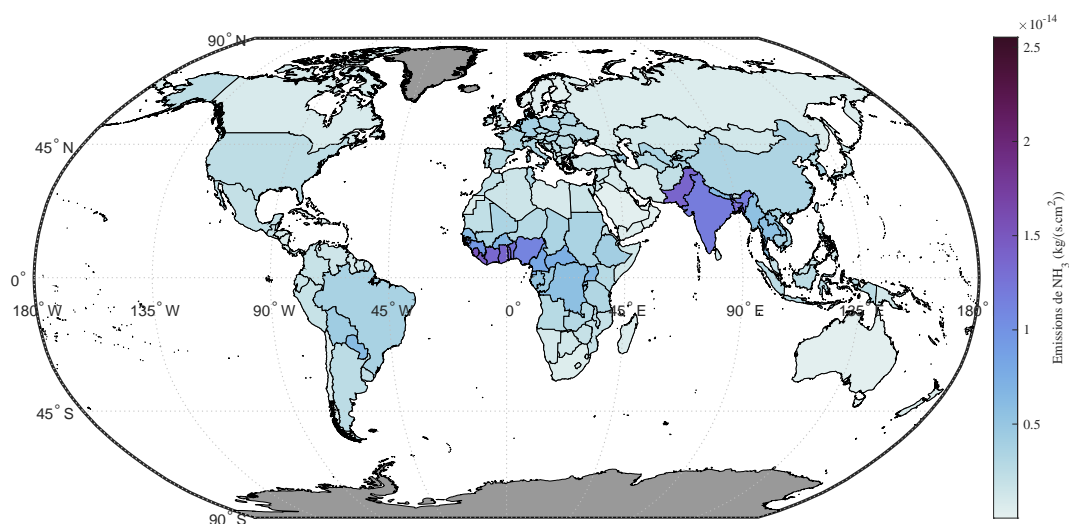


Mémoire

Joana PINTO SEIXAS

10 juin 2019

Évaluation des émissions d'ammoniac : des sources ponctuelles jusqu'à l'échelle mondiale



Joana Pinto Seixas

Promoteur : Lieven Clarisse

Co-Promoteur : Pierre-François Coheur

Service : Chimie Quantique et Photophysique

Mémoire de fin d'études présenté
en vue de l'obtention du diplôme de
Master en Sciences Chimiques

Résumé

Les questions se rapportant au le changement climatique et à la pollution de l'air sont au cœur de l'actualité. Pour surveiller ces problématiques, l'Europe conjointement avec les Etats-Unis ont lancé dans ce but une mission. Celle-ci consiste à lancer une série de satellites contenant différents instruments dédiés à la prévision météorologique et la surveillance du climat. Les trois satellites Metop, lancés entre 2006 et 2018, sont la contribution européenne au projet.

L'instrument IASI (*Interféromètre atmosphérique de Sondage dans l'Infrarouge*) lancé à bord des Metop est un interféromètre de Michelson. Il mesure les spectres de radiance du système Terre-atmosphère dans l'infrarouge thermique. Ceux-ci permettent par la suite d'obtenir des profils verticaux ou des colonnes totales pour différents composés absorbant dans l'atmosphère. Le service de Chimie Quantique et Photophysique de l'ULB exploite ces spectres afin de mesurer la distribution spatiale et l'évolution dans le temps de certains gaz jouant un rôle dans la chimie atmosphérique (O_3 , HNO_3 , NH_3 , SO_2 , ...).

Le travail réalisé pour ce mémoire s'est porté sur un des composés important de l'atmosphère, l'ammoniac (NH_3), dont les colonnes peuvent être mesurées par IASI. Les données récoltées jusqu'à aujourd'hui permettent d'avoir des séries de données temporelles des colonnes totales de NH_3 sur 10 ans. La série étant robuste, en terme d'homogénéité, elle permet l'analyse et l'interprétation des tendances et des variations interannuelles de l'ammoniac dans l'atmosphère. C'est l'objectif de ce travail, qui se focalise sur la détermination des tendances sur deux sources d'échelles : celle de la source ponctuelle puis celle du pays.

Tout d'abord, le travail commence par une introduction du sujet où l'ammoniac et ses interactions avec les réservoirs de la Terre sont introduits. Ensuite, la mission Metop et l'instrument IASI sont décrits afin de comprendre comment les données étudiées sont obtenues. La dernière section, divisée en trois parties, propose une analyse des émissions de NH_3 calculées à partir des colonnes totales mesurées par IASI entre 2008 et 2017. La première partie traite de l'évolution, sur les 10 ans de IASI, des sources ponctuelles détectées par IASI dans *Van Damme et al., 2018*. A partir de leurs émissions l'apparition et la disparition de ces sources ponctuelles ont pu être mises en évidence et étudiées. La deuxième partie s'attache à l'obtention des émissions à l'échelle nationale. Les émissions calculées, dérivées des mesures de IASI, sont analysées et comparées aux émissions reportées dans l'inventaire d'émission EDGAR. Pour finir, les tendances des émissions de NH_3 de cinq pays et une région sont examinées et discutées.

Table des matières

1	Introduction	1
1.1	Azote	1
1.1.1	Cycle de l'azote	1
1.1.2	Impact de l'Homme sur le cycle	3
1.1.3	Conséquences environnementales de la modification du cycle	5
1.2	Ammoniac dans l'atmosphère	9
1.2.1	L'ammoniac en général	9
1.2.2	Sources, puits et réactivité du NH_3 atmosphérique	9
1.2.3	Impacts environnementaux	11
1.3	Téledétection spatiale	12
1.3.1	Caractéristiques	12
1.3.2	Principe	13
2	Méthodologie	17
2.1	IASI	17
2.1.1	La mission Metop	17
2.1.2	Description de IASI	18
2.1.3	Détermination des colonnes de NH_3	20
2.2	EDGAR	21
2.3	Calcul des émissions à partir des mesures IASI	23
2.3.1	Sources ponctuelles	24
2.3.2	Pays	25
3	Evolution des sources ponctuelles de NH_3	27
3.1	Identification des sources ponctuelles	27
3.2	Ouvertures et fermetures des sources ponctuelles	29
3.3	Choix des seuils et quelques exemples	34
4	Analyse des émissions par pays	43
4.1	Comparaison des émissions nationales et détermination d'un nouveau temps de vie pour le NH_3	43
4.2	Comparaison entre IASI et EDGAR	46
5	Tendances annuelles des émissions de NH_3	49
5.1	Etats-Unis	49
5.2	Pérou	50
5.3	Russie	51
5.4	Europe	52
5.5	Chine	52
5.6	Inde	53
6	Conclusion	55

1 Introduction

Cette première partie du travail introduit les différents éléments qui composent le sujet du mémoire. Dans un premier temps, le cycle de l'azote est développé ainsi que l'impact de l'Homme sur celui-ci. Les conséquences environnementales induites par la modification du cycle sont également décrites en détails. Ensuite, le rôle de l'ammoniac (NH_3) dans l'atmosphère est développé afin de comprendre sa réactivité, ses sources et ses puits. Pour finir, la télédétection spatiale est introduite dans le but d'expliquer comment l'instrument IASI (*Interféromètre atmosphérique de Sondage dans l'Infrarouge*), utilisé dans ce travail, mesure la concentration de composés atmosphériques.

1.1 Azote

L'azote (N) est un nutriment essentiel pour l'Homme, les plantes et les animaux. Il se retrouve dans la composition de l'ADN, des acides aminés, des protéines et des vitamines. L'atmosphère terrestre est composée à 78 % de diazote (N_2), une forme non réactive de l'azote. Les organismes vivants nécessitent que l'azote soit sous une forme réactive (N_r)¹ pour l'assimiler. La conversion de l'azote non réactif en azote réactif est appelée la fixation et est faite par certains micro-organismes spécifiques. Le N_r est donc un facteur limitant dans les écosystèmes naturels. [1][2]

1.1.1 Cycle de l'azote

L'azote circule de l'atmosphère aux écosystèmes terrestres et aquatiques sous différentes formes. La circulation de l'azote entre ces différents compartiments de la Terre est appelée le cycle de l'azote. Il commence à la fixation du N_2 atmosphérique et se finit à son retour dans l'atmosphère sous la même forme.

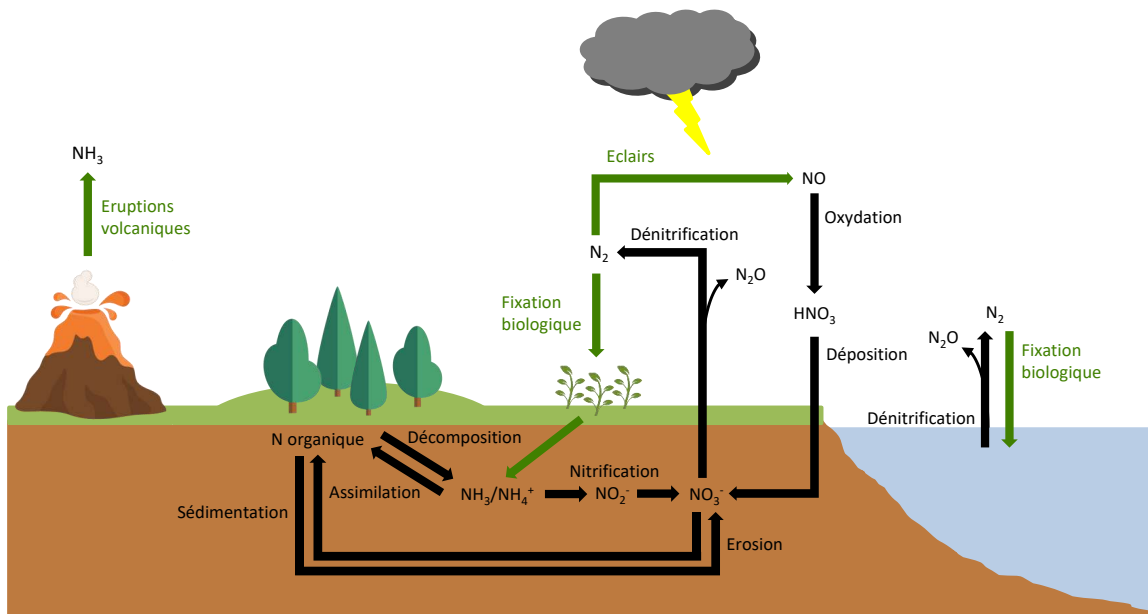
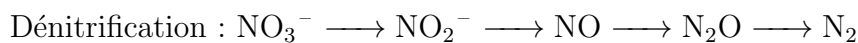
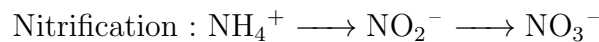


Figure 1 – Cycle de l'azote pré-industriel adapté de [3].

1. L'azote réactif dans tout le texte se rapporte aux formes oxydées (NO_x ($= \text{NO} + \text{NO}_2$), N_2O , NO_3 , HNO_3), aux formes réduites (NH_3 , NH_4^+) et aux formes organiques de l'azote (urée, ...).

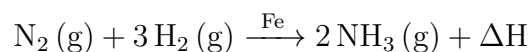
Dans les différents écosystèmes l'azote doit être fixé afin qu'il soit utilisable par les organismes vivants. Il existe quatre sources naturelles pour la fixation de l'azote (indiquées avec des flèches vertes dans la *figure 1*). La première source est la fixation par des bactéries fixatrices d'azote. Ces micro-organismes libres ou en symbiose avec des plantes produisent 90 % du N_r présent dans les écosystèmes terrestres en réduisant le N_2 en NH_3 . Ce dernier est assimilé par les bactéries elles-mêmes ou par les plantes hôtes. Ensuite, les animaux consomment les plantes et excrètent l'azote ou meurent. L'azote organique est alors minéralisé par des bactéries et transformé en ammonium (NH_4^+) le rendant à nouveau disponible pour d'autres organismes. Les bactéries fixatrices d'azote peuvent aussi utiliser le NH_4^+ comme source d'énergie en le transformant en nitrate. Cette étape, appelée la nitrification, se passe en condition d'aérobie (en présence d'oxygène). Elle consiste à oxyder le NH_4^+ en nitrite (NO_2^-) puis en nitrate (NO_3^-). Les nitrates, très solubles dans les sols, sont facilement assimilables par les plantes et les bactéries créant ainsi un nouveau chemin pour la formation d'azote organique. Par contre lorsque les bactéries sont dans un milieu anaérobie (en absence d'oxygène) le NO_3^- est converti en N_2 . Ce processus est appelé la dénitrification. Il permet aux bactéries de convertir le carbone organique en dioxyde de carbone (CO_2) en utilisant les nitrates comme oxydant alternatif. La dénitrification émet aussi des petites quantités de protoxyde d'azote (N_2O). [1][3][4]



Les autres sources d'azote réactif sont les éclairs qui produisent du monoxyde d'azote (NO) par oxydation du N_2 , les éruptions volcaniques qui libèrent du NH_3 et la fixation biologique dans les océans par des algues vertes. Cette dernière représente plus de 50 % de l'azote fixé naturellement. De plus, les processus de nitrification et de dénitrification ont aussi lieu dans les écosystèmes aquatiques. La circulation et les différentes transformations de l'azote décrites dans le texte ci-dessus sont représentées dans la *figure 1*. Il faut rajouter qu'une partie du N_r des écosystèmes terrestres et aquatiques est enterrée dans les sédiments. [1][3][5]

Les quatre sources naturelles explicitées ci-dessus ont été pendant longtemps les seules sources d'azote réactif. Au début du 20^{ème} siècle la révolution industrielle et la demande en nourriture grandissante ont profondément bousculé le cycle. Le N_r étant un facteur limitant dans la production alimentaire, sa production synthétique est devenue indispensable.

En 1908, Fritz Haber découvre un procédé pour synthétiser de l'ammoniac et quelques années plus tard Carl Bosch l'industrialise. Le procédé d'Haber-Bosch produit du NH_3 à partir de diazote (N_2) et de dihydrogène (H_2). Les deux réactifs sont combinés à des hautes pressions et hautes températures en présence d'un catalyseur. [5]



Haber et Bosch ont été récompensés tous les deux pour leur découverte en recevant un Prix Nobel de chimie en 1918 et en 1931 respectivement. La motivation officielle de Haber était de répondre aux besoins alimentaires de la population mondiale croissante. Toutefois, la production de grandes quantités de N_r nécessaires à la fabrication d'explosifs

a également été un moteur important pour le développement du procédé. Ce dernier a joué un rôle majeur dans les deux Guerres Mondiales et les conflits armés du siècle dernier. Une étude a estimé qu'il est responsable de la mort de 100 à 150 millions d'êtres humains. D'un autre côté, la fabrication de fertilisants à partir du procédé Haber-Bosch révolutionna le secteur de l'agriculture et subvient, depuis le début du 21^{ème} siècle, aux besoins alimentaires de la moitié de la population mondiale. Dans les années 1970, la production de NH_3 dépassait déjà la quantité d'azote fixé naturellement et aujourd'hui, le procédé d'Haber-Bosch produit 120 Tg N/an dont 80 % sont utilisés pour la fabrication de fertilisants et 20 % comme matière première pour des processus industriels. [1][2][5][6]

La combustion d'énergies fossiles et la combustion de biomasse viennent s'ajouter aux sources anthropiques de N_r . Le secteur du transport et les industries, en particulier les centrales électriques, sont les sources principales des émissions d'oxydes d'azote (NO_x) dans l'atmosphère. Elles émettent essentiellement du NO et du NO_2 (dioxyde d'azote) provenant de l'oxydation du N_2 atmosphérique. Dans la *figure 2*, les différentes sources d'azote réactif sont reprises. La fixation d'azote par les océans est la source la plus importante mais prises dans leur globalité, il transparaît que les sources anthropiques sont actuellement plus élevées que les sources naturelles. [5]

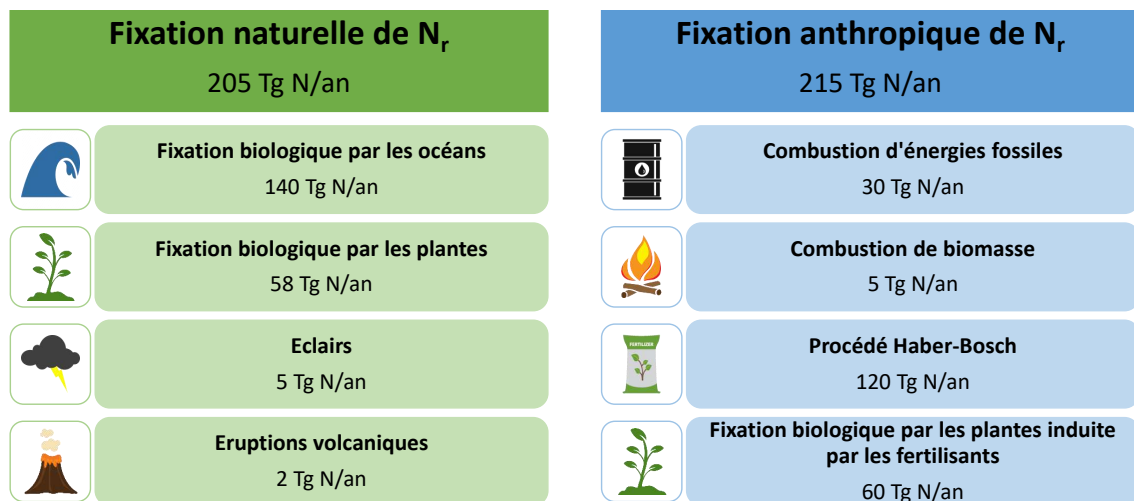


Figure 2 – Sources naturelles et anthropiques de l'azote réactif [1][5].

1.1.2 Impact de l'Homme sur le cycle

Le cycle de l'azote a été radicalement bouleversé par l'Homme d'une part à cause de l'utilisation des fertilisants et d'autre part à cause de la combustion d'énergies fossiles. La quantité d'azote fixé a doublé en un siècle impliquant des modifications majeures dans les flux du cycle. Certains d'entre eux ont parfois doublé et même triplé depuis l'époque pré-industrielle [4]. La *figure 3* représente le cycle de l'azote actuel où les sources anthropiques et naturelles sont reprises de même que, de manière qualitative, les flux entre les réservoirs de la Terre. Ces derniers sont détaillés ci-dessous, séparément pour les différents réservoirs.

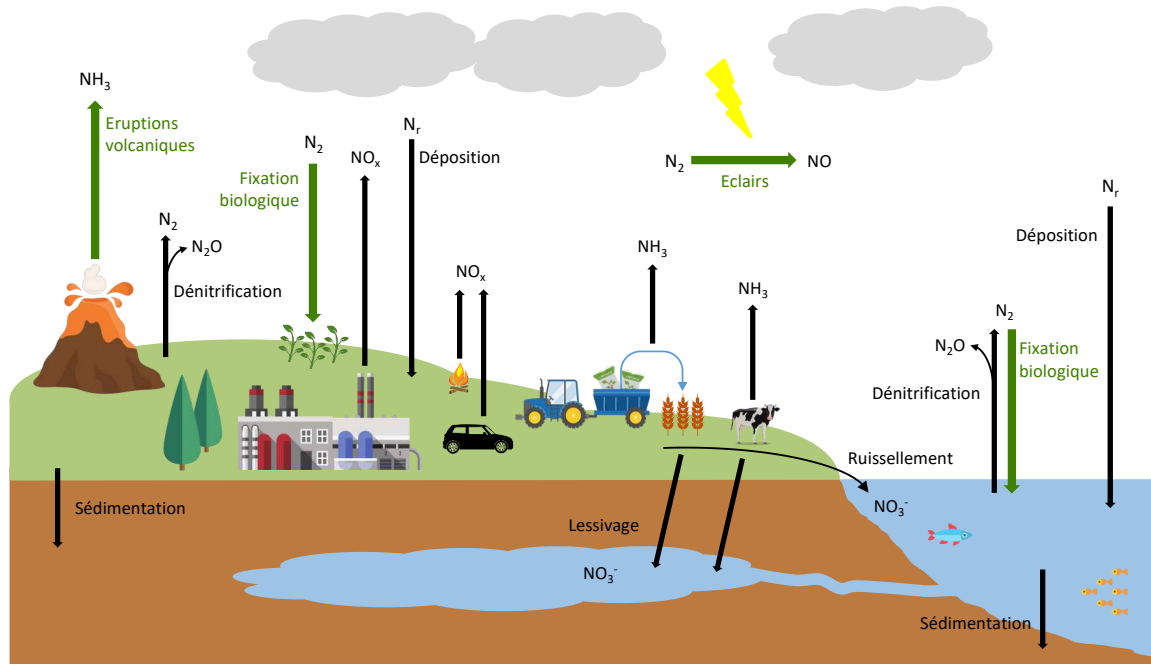


Figure 3 – Cycle de l'azote actuel.

Atmosphère

La circulation d'azote réactif dans l'atmosphère est d'environ 100 Tg N/an. Cet azote provient en grande partie des émissions de NO_x et de NH_3 provenant de l'écosystème terrestre. La combustion des énergies fossiles et de la biomasse émettent les NO_x qui réagissent avec les composés organiques volatils (COVs) pour former l'ozone (O_3) troposphérique. Ils produisent aussi des aérosols secondaires et d'autres oxydants photochimiques. La formation de l'acide nitrique (HNO_3) à partir de l'oxydation du NO_2 est une autre des transformations possibles. Le NH_3 est quant à lui émis suite à l'application des fertilisants industriels et naturels sur les terres agricoles. Les océans et les volcans en émettent aussi mais plus faiblement (voir *figure 3*). Lorsque le NH_3 se retrouve dans l'atmosphère il peut réagir avec des acides ou d'autres composés pour former des aérosols (voir section 1.2.2). Tous ces produits formés dans l'atmosphère retournent aux écosystèmes terrestres et aquatiques par déposition. Le N_2O est également présent dans l'atmosphère. Il est émis lors du processus de dénitrification qui se déroule dans les sols et les océans. Son temps de vie dans l'atmosphère est d'environ 100 ans car sa destruction n'est possible que dans la stratosphère par photolyse ou oxydation. [1][5][7]

Ecosystème terrestre

L'écosystème terrestre est l'écosystème qui utilise la plus grande quantité de N_r par an avec une valeur de 240 Tg N. L'azote réactif provient de l'utilisation de fertilisants, de la fixation biologique d'azote naturelle ou induite et de la déposition. Les sources anthropiques sont aujourd'hui plus importantes que les sources naturelles pour les milieux terrestres. L'azote réactif transformé dans les sols est transporté dans les eaux souterraines et les eaux de surface par lessivage et ruissellement. Le processus de dénitrification au niveau des sols réémet aussi du N_2 et du N_2O dans l'atmosphère. [1][5]

Ecosystème aquatique

L'écosystème aquatique domine actuellement la fixation de l'azote. Il fixe 140 Tg N/an qui s'ajoutent aux imports de N_r , soit environ 110 Tg N/an par déposition et par ruissellement. La plupart de l'azote réactif retourne dans l'atmosphère par dénitrification. Le reste est enfoui dans les sédiments ou réémis sous forme de NH_3 . Le temps de vie des N_r dans ce réservoir peut aller jusqu'à 100 ans. Cependant le temps de mélange dans les océans est encore plus long et ceci implique une variation importante des concentrations de N_r au niveau régional et en profondeur. On constate le plus souvent une accumulation de N_r dans les zones côtières, les eaux aux pôles et les eaux profondes qui deviennent alors des sources importantes d'émissions de N_2O . [5]

1.1.3 Conséquences environnementales de la modification du cycle

Comme il a été vu dans le point précédent, l'Homme a bouleversé le cycle de l'azote. La quantité d'azote réactif a augmenté de manière significative depuis le 20^{ème} siècle perturbant les différents écosystèmes qui composent la Terre. La circulation des N_r dans les écosystèmes et les transformations entre les multiples formes sont telles qu'un atome de N_r , qu'il soit d'origine naturelle ou anthropique, peut mener à plusieurs effets néfastes pour la planète. Ces impacts peuvent aller du niveau local jusqu'au niveau global. En effet, un même atome peut, lorsqu'il est intégré à une forme moléculaire ou une autre, affecter la qualité de l'air, impacter la biodiversité, contaminer les eaux souterraines et détruire la couche d'ozone. La cascade de l'azote représente la séquence de ces impacts dans l'espace-temps (voir *figure 4*). L'azote réactif descend dans la cascade jusqu'à son retour dans l'atmosphère sous forme de N_2 . [1]

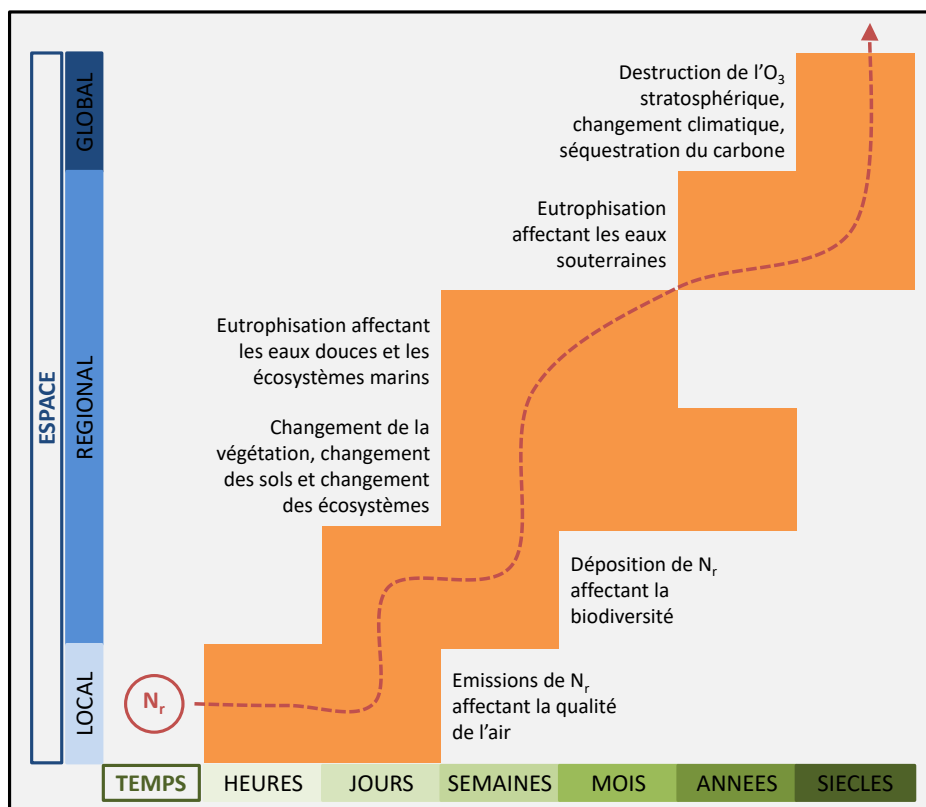


Figure 4 – Cascade de l'azote adaptée de [1].

Les conséquences environnementales des perturbations anthropiques du cycle de l'azote, reprises ci-dessous, sont nombreuses et affectent tant la santé humaine que la santé des écosystèmes terrestres et aquatiques. Aujourd'hui, la production de N_r est plus rapide que sa conversion en N_2 . Son accumulation dans les différents réservoirs de la Terre est par conséquent inévitable.

Qualité de l'air

Les NO_x et le NH_3 émis dans la basse atmosphère affectent la qualité de l'air car ils contribuent à la formation d'ozone troposphérique et d'aérosols pouvant aboutir à la formation de smogs photochimiques et particulaires si les conditions météorologiques sont adéquates. La concentration élevée de NO_x , d' O_3 et d'aérosols dans l'atmosphère provoque chez les humains des troubles respiratoires comme l'asthme, l'inflammation des voies respiratoires, la diminution de la fonction pulmonaire et même des cancers. Selon un rapport de l'*Organisation Mondiale de la Santé* (OMS), chaque année l'exposition à la pollution de l'air extérieur est responsable de la mort prématurée de plus de 4 millions de personnes dans le monde. Elle est devenue aujourd'hui une des dix causes majeures de mortalité dans le monde.

L'ozone présent dans l'atmosphère conduit aussi à des effets nocifs sur les plantes. Une fois absorbé par les plantes, il détruit les parois cellulaires. Dès lors, la mort des cellules affectées cause une réduction de la photosynthèse de ces plantes. Les conséquences de ceci est la diminution des rendements des récoltes mais aussi la diminution du captage de CO_2 . L' O_3 troposphérique serait ainsi responsable d'une perte de 4 % dans les récoltes. [1][7][8][9]

Qualité de l'eau

Le lessivage et le ruissellement à partir des terres agricoles apportent de grandes quantités de nitrates aux nappes phréatiques et aux eaux de surface. La consommation d'eau contaminée affecte gravement la santé car elle peut causer des cancers du côlon ainsi que de la méthémoglobinémie infantile. Toutefois, l'ingestion de nitrates se fait aussi au travers de la nourriture. Il a été estimé que 70 % de la population mondiale consomme plus de nitrates que recommandé. [7]

Eutrophisation des zones côtières et des eaux douces

L'eutrophisation se définit comme l'accumulation de nutriments dans les écosystèmes terrestres et aquatiques entraînant des déséquilibres écologiques. Ce phénomène est très présent dans les zones côtières et les eaux douces dû au ruissellement des fertilisants, à l'érosion de sédiments riches en nutriments et au rejet des eaux usées. La déposition atmosphérique de NO_x et de NH_3 accroît également cet enrichissement. Ces milieux se retrouvent alors avec des niveaux élevés de nitrates et lorsque leur concentration dépasse 1 mg NO_3/L ils sont dits eutrophes. L'augmentation de N_r dans les écosystèmes aquatiques génère une prolifération d'algues et de bactéries. La surface de l'eau est alors recouverte par ces organismes (voir *figure 5*). Les plantes présentes au fond de ces milieux sont privées de lumière et donc de photosynthèse, ce qui provoque leur mort. Les algues et les bactéries meurent aussi ce qui augmente la décomposition et la sédimentation de la biomasse. Ces

processus consomment l'oxygène des couches profondes provoquant l'hypoxie du milieu (voir *figure 6*). Les milieux affectés peuvent devenir des *zones mortes*. Actuellement plus de 500 estuaires sont reconnus comme des zones mortes dans le monde. [1][6][7]



Figure 5 – Image satellite de la prolifération d'algues dans la Mer Baltique. L'image provient du satellite Envisat.

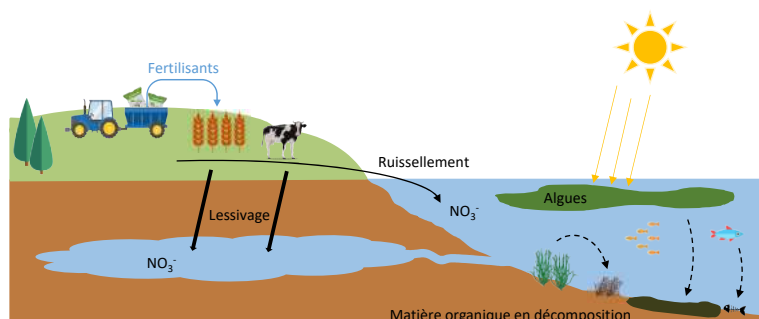


Figure 6 – Processus d'eutrophisation.

Acidification des océans

La déposition de N_r et de soufre (S) engendre l'acidification des écosystèmes aquatiques. Si l'acidification est persistante, les organismes au bas de la chaîne alimentaire tolérants aux milieux acides sont alors favorisés. Cette perturbation peut remonter la chaîne alimentaire et modifier les espèces qui peuplent cet écosystème. [7]

Diminution de la biodiversité

La déposition de N_r augmente de manière importante la teneur en N_r des écosystèmes. L'impact sur les écosystèmes terrestres est considérable en particulier pour les milieux pauvres en N_r qui y sont très sensibles. Les plantes à croissance rapide assimilent plus vite le N_r . Dès lors, elles sont favorisées par rapport aux plantes qui sont adaptées à des milieux pauvres en nutriments et donc qui ont une croissance plus lente. Le reste de la chaîne alimentaire est affecté, ce qui aboutit à un changement et/ou une perte de la biodiversité. La résilience de l'écosystème, c'est-à-dire sa capacité à s'adapter à une perturbation, est alors diminuée. L'eutrophisation et l'acidification des milieux aquatiques, causées par la déposition, conduisent aussi à une perte de la biodiversité.

Bien que le changement d'affectation des terres et le changement climatique soient actuellement les causes majeures de la perte de la biodiversité, il est important de constater que la déposition azotée y contribue quand même pour 5 à 10 %. La déposition de N_r est de 0,5 kg N/(ha an) dans le cycle naturel de l'azote mais de nos jours de larges régions du monde reçoivent environ 10 kg N/(ha an). Il a été montré que 40 % des zones protégées² devraient recevoir plus de 10 kg N/(ha an) d'ici 2030 (voir *figure 7*), ce qui mettrait la biodiversité considérablement en péril. [1][6][7][10]

2. Les zones protégées (*Protected Areas*) ont été définies par le *World Database on Protected Areas* en 2008 [1].

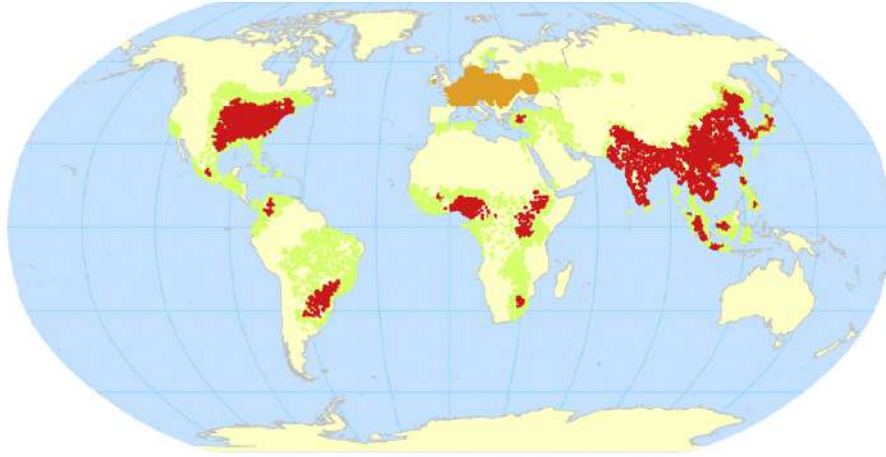


Figure 7 – Distribution des classes de taux de déposition de N_r pour les zones protégées entre 2000 et 2030. En rouge : $2030 > 10 \text{ kg N/an}$ et $2030 > 2000$, en orange : $2030 > 10 \text{ kg N/an}$ et $2030 < 2000$, en vert : $2030 > 5 \text{ kg N/an}$ et $2030 > 2000$ [10].

Changement climatique

L'azote réactif a plusieurs effets sur le climat. Ces effets peuvent augmenter et/ou diminuer le réchauffement climatique. Le N_2O et l' O_3 troposphérique (dont les NO_x sont précurseurs) augmentent le réchauffement climatique car ce sont des gaz à effet de serre. Le N_2O contribue à lui seul pour 11 % du forçage radiatif anthropique. Comme il a été dit antérieurement l' O_3 diminue aussi la productivité des plantes et donc la capture de CO_2 . Ces deux composés provoquent donc un effet de réchauffement. [1][2][7]

Toutefois les N_r jouent aussi un rôle dans deux effets de refroidissement majeurs. Le premier est l'augmentation de la séquestration et du captage du CO_2 par la végétation et les sols due à l'utilisation de fertilisants et à la déposition de N_r . Lorsque la concentration d'azote augmente dans le milieu terrestre, la végétation pousse plus vite. Au niveau mondial, la déposition de N_r a augmenté de 10 % la séquestration de CO_2 . L'autre effet de refroidissement s'explique par l'augmentation de l'albédo suite à la production des aérosols dans l'atmosphère.

La contribution de toutes les émissions de N_r au forçage radiatif total est négative, c'est-à-dire qu'elle contribue à $-0,24 \text{ W/m}^2$ avec une gamme d'incertitude allant cependant de $+0,2$ à $-0,5 \text{ W/m}^2$. [1][2][7]

Trou dans la couche d'ozone

La destruction de l'ozone de la stratosphère par les N_r est due à la présence de N_2O . La concentration de ce composé a augmenté de 20 % par rapport à l'époque pré-industrielle. C'est aujourd'hui, en terme d'abondance, la principale espèce contribuant aux cycles catalytiques de destruction de l'ozone stratosphérique. [1][7]

1.2 Ammoniac dans l'atmosphère

1.2.1 L'ammoniac en général

L'ammoniac (NH_3) est une molécule composée d'un atome d'azote (N) lié à trois atomes d'hydrogène (H). Le doublet d'électrons libres de l'atome de N donne à la molécule de NH_3 une géométrie pyramidale. Cette molécule joue un rôle clé dans les écosystèmes car elle est la forme primaire de l'azote réactif dans l'environnement. Sa production industrielle, par le processus Haber-Bosch, a augmenté de manière importante sa concentration dans les réservoirs de la Terre. Ainsi, malgré son rôle vital dans les écosystèmes, l'ammoniac est aussi devenu un problème pour ceux-ci et pour la santé humaine (voir section 1.1). [11]

1.2.2 Sources, puits et réactivité du NH_3 atmosphérique

L'agriculture est la source principale des émissions de NH_3 au niveau mondial, elle compte pour entre 64 % et 85 % de celles-ci en fonction des études [8][12]. Selon l'*Agence Européenne pour l'environnement*³ (EEA), le secteur agricole en Europe compte pour 92 % des émissions. Ce secteur englobe les terres agricoles et les animaux d'élevage. Les autres sources sont la combustion de biomasse, les procédés industriels, le transport routier et la volatilisation à partir des océans et des sols. L'ammoniac est le composé avec les plus grandes incertitudes dans le cycle de l'azote dû au manque de mesures dans la plupart des régions de la planète. [11][13]

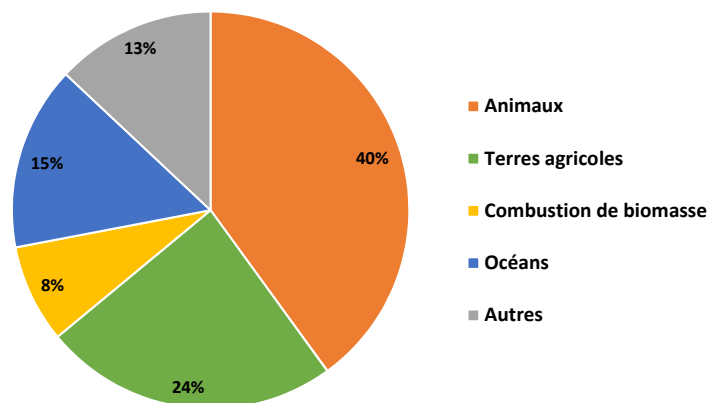


Figure 8 – Répartition des émissions mondiales de NH_3 adaptée de [12].

La consommation annuelle de fertilisants est actuellement de 100 Tg N mais seulement 17 % de cet azote est consommé par l'Homme au travers des récoltes, des produits laitiers et de la viande. En effet, l'*efficacité de l'utilisation de l'azote*⁴ est en moyenne de 20 % pour les végétaux et de seulement 8 % pour la viande et les produits laitiers. Cela veut dire que 92 % du N_r utilisé pour la production de protéines animales sont perdus dans l'environnement. Lors de la production des protéines animales, le N_r est perdu à deux stades. La première perte se fait à la production de nourriture pour les animaux et la

3. *European Environment Agency.*

4. *Nitrogen Use Efficiency* (NUE). L'efficacité de l'utilisation de l'azote représente une mesure de l'efficacité de capture de N par les terres agricoles par rapport à l'apport total [1].

deuxième lors de l'élevage car la plupart du N_r est perdu dans les excréments.

Aujourd'hui, la consommation mondiale de fertilisants ne cesse d'augmenter (voir *figure 9*) mais de façon inégale, si bien que plusieurs régions du monde souffrent d'un déficit en N_r . Selon un rapport de l'*Organisation des Nations Unies pour la nourriture et l'agriculture*⁵ (FAO), il y a environ 850 millions de personnes qui sont sous-alimentées dans le monde. En contraste, les pays d'Europe et d'Amérique du Nord consomment des quantités énormes de N_r à cause du régime alimentaire très riche en protéines animales de ces populations. De plus, la quantité de fertilisants appliquée par hectare dans ces pays est de plus en plus importante ce qui mène généralement à une diminution de l'efficacité de l'utilisation de l'azote augmentant ainsi les pertes d'ammoniac dans la nature. [1][6][14]

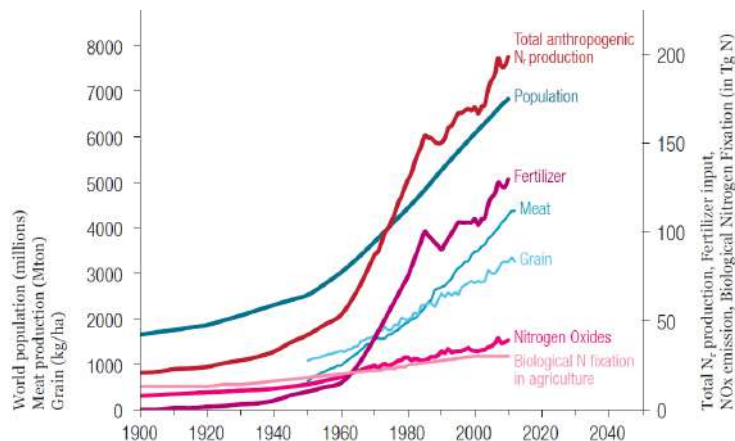
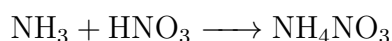


Figure 9 – Tendances globales entre 1900 et 2012 de la production anthropique de N_r (Tg N), l'utilisation de fertilisants (Tg N), les émissions de NO_x (Tg N), la fixation biologique de N (Tg N), la population mondiale (millions), la production de viande (Mt) et les récoltes de céréales (kg/ha) [1].

Une grande partie du NH_3 appliqué sous forme de fertilisants sur les terres agricoles est perdu. Il peut se volatiliser et passer ainsi dans l'atmosphère. L'ampleur de la volatilisation dépend des conditions météorologiques, des propriétés du sol mais aussi du type et de la quantité de fertilisants et de son mode d'application. Une autre partie du NH_3 est emportée dans les eaux de surface par ruissellement. Le reste se retrouve dans les sols. [6][15]

Après son émission le NH_3 joue un rôle primordial dans l'atmosphère car il est la seule base atmosphérique présente en assez grande quantité pour neutraliser les acides, en particulier l'acide sulfurique (H_2SO_4) et l'acide nitrique (HNO_3). Comme il a été introduit à la section 1.1.2, c'est la réaction entre le NH_3 et ces derniers qui forme des particules d'ammonium, appelées aussi aérosols ou particules fines⁶.

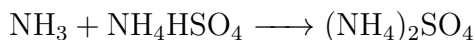
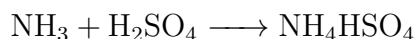
Plus spécifiquement, la réaction de l'ammoniac et de l'acide nitrique produit du nitrate d'ammonium (NH_4NO_3) qui se retrouve sous forme de particule dans l'atmosphère. La formation de cet aérosol dépend de plusieurs conditions comme la température, l'humidité, la concentration en acide et la concentration en NH_3 . [16][17]



5. Food and Agriculture Organization of the United Nations.

6. Les particules d'ammonium sont une classe d'aérosols, de particules fines.

L'ammoniac atmosphérique peut aussi réagir avec l'acide sulfurique pour donner du sulfate d'ammonium ((NH₄)₂SO₄). Cette réaction dépend des mêmes conditions que la réaction précédente.



La présence de ces deux acides dans l'atmosphère crée une compétition, le plus souvent en faveur de la réaction du NH₃ avec le H₂SO₄. La formation de NH₄NO₃ dépendra donc de la concentration en NH₃. Dans une atmosphère pauvre en ammoniac, la quantité de NH₃ n'est pas suffisante pour neutraliser tous les sulfates présents. Dès lors, il n'y a pas de NH₃ pour réagir avec le HNO₃ et pas de formation de nitrates. A contrario, dans une atmosphère riche en ammoniac, une partie du NH₃ neutralise la totalité des sulfates tandis que l'autre est disponible pour former les nitrates. [16][17]

Les sels d'ammonium produits rentrent dans la catégorie des PM_{2,5}⁷. Etant donné la rapidité des réactions avec les acides, le temps de résidence du NH₃ dans l'atmosphère est court alors que pour les aérosols il va de quelques jours à une semaine. La formation des aérosols à partir du NH₃ permet donc le transport à longue distance de l'azote réactif.

L'ammoniac, qui n'a pas réagi, et les aérosols quittent l'atmosphère soit par déposition humide soit par déposition sèche. La présence de ces composés dans l'atmosphère et par la suite dans les autres réservoirs de la Terre ont des effets sur la santé humaine et la santé des écosystèmes ainsi que sur le climat. Ces effets décrits en général pour les N_r dans la section 1.1.3 sont maintenant précisés et revus brièvement pour le NH₃. [5][7]

1.2.3 Impacts environnementaux

Les impacts environnementaux du NH₃ sont surtout liés à sa déposition et sa transformation en particules fines. La déposition de NH₃ sur les écosystèmes terrestres et aquatiques engendre l'acidification des sols et des océans mais également l'eutrophisation des milieux aquatiques. Ces deux problèmes amènent ensuite une perte de biodiversité qui peut être parfois très importante dans les milieux eutrophes. Les zones proches de terres agricoles sont souvent les plus touchées car l'ammoniac émis dans l'atmosphère a tendance à se déposer rapidement. L'acidification des sols entraîne aussi une contamination des eaux souterraines et des eaux de surface. L'apport important de NH₃ dans les sols génère un excès de nitrates par nitrification, qui détériore notamment la qualité des eaux. [7]

La formation de particules fines engendre des problèmes au niveau local et au niveau global. Les particules fines contribuent pour une part majeure des effets nocifs de la pollution de l'air sur l'Homme. Elles engendrent des problèmes respiratoires et cardiovasculaires. Une étude de l'EEA a montré que la pollution aux particules fines est associée à plus de 455 000 morts prématurées par an dans l'Europe des 27. [5][7]

Au niveau global, les aérosols affectent le climat avec un forçage radiatif négatif. L'effet direct des aérosols dans l'atmosphère est l'absorption et la diffusion de la radiation solaire

7. Particules avec un diamètre inférieur à 2,5 μm.

incidente provoquant un effet de refroidissement. Indirectement les aérosols influencent aussi la formation de nuages, ce qui renforce leur effet de refroidissement. [7]

1.3 Télédétection spatiale

La télédétection, dans son aspect général, désigne l'acquisition d'informations sur les propriétés d'un certain phénomène, objet ou matériau par l'intermédiaire d'un instrument n'ayant pas de contact avec l'objet étudié. Pour ce travail, nous utilisons la télédétection à partir d'instruments embarqués sur des satellites. La télédétection spatiale peut être définie comme l'ensemble des techniques utilisées pour observer la Terre, ou une autre planète, à partir d'un satellite. Ces observations à distance sont exploitées pour déterminer les caractéristiques de l'atmosphère, de la surface et des océans. La télédétection spatiale est souvent "passive", en ce sens qu'elle exploite pour cela le rayonnement électromagnétique naturel émis ou réfléchi par les objets dans le domaine spectral allant de l'UV-Visible aux micro-ondes. [18][19][20]

La télédétection à partir d'instruments spatiaux a révolutionné l'acquisition de données globales. C'est en 1957 que le premier satellite de l'histoire, Spoutnik-1, est lancé par l'URSS. Rapidement, les Etats-Unis et l'Union Soviétique se lancent dans une course pour conquérir l'espace. La première image satellite de la Terre est capturée en 1959 par l'Explorer-6 appartenant à la NASA (*National Aeronautics and Space Administration*). Cette même année les Etats-Unis lancent le premier satellite météorologique, Vanguard 2, qui est suivi par TIROS-1 en 1960. Ensuite, dans les années 60 et 70, les deux nations lancent une série de satellites de reconnaissance, de météorologie et de communications en orbite. [18][19]

Dans les années 90, les Etats-Unis, via la *National Oceanic and Atmospheric Administration* (NOAA), et l'Europe, via l'*Organisation européenne pour l'exploitation des satellites météorologiques*⁸ (EUMETSAT), s'allient pour lancer une série de satellites en orbite polaire. Ce programme conjoint, appelé *Initial Joint Polar Satellite System* (IJPS), a pour but de récolter des informations sur l'atmosphère et la surface de la Terre afin d'améliorer les prévisions météorologiques et les recherches sur le changement climatique. C'est dans le cadre de cette mission que l'instrument de mesure IASI est développé et lancé à bord des satellites européens Metop. [21][22]

La mission Metop et l'instrument IASI seront décrits plus en détails dans les sous-sections suivantes. Tout d'abord, les caractéristiques et les principes généraux de la télédétection spatiale sont développés. La télédétection dans l'infrarouge, qui est celle utilisée par IASI, sera aussi vue afin de comprendre comment les colonnes d'ammoniac sont restituées.

1.3.1 Caractéristiques

L'observation de la Terre peut se faire par différents types d'appareils de télédétection spatiale. Le sondage atmosphérique peut être passif ou actif, à partir de satellites en orbite polaire ou en orbite géostationnaire et avec une géométrie au limbe ou au nadir. Dans le cas de la mission IASI/Metop, il s'agit de télédétection passive avec une géométrie au

8. *European Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites.*

nadir à partir d'une orbite polaire de basse altitude. [20][22]

Les satellites en orbite polaire offrent l'avantage d'avoir une couverture totale de la planète en 12h alors que ceux en orbite géostationnaire ne voit qu'un même disque de la Terre (voir *figure 10*). Enfin, il y a la géométrie utilisée pour les observations. Le sondeur atmosphérique IASI utilise une géométrie au nadir ce qui veut dire qu'il observe la radiation solaire émise et réfléchi par l'atmosphère et la surface terrestre à la verticale (voir *figure 11*). Les autres géométries possibles observent une radiation tangente à la surface de la planète. [20]

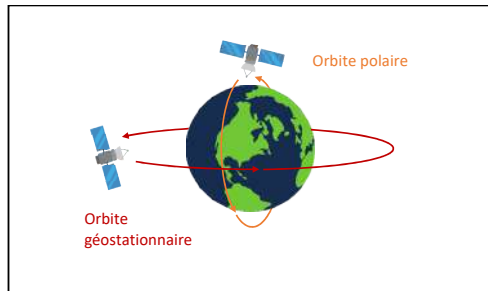


Figure 10 – *Orbite polaire et orbite géostationnaire.*

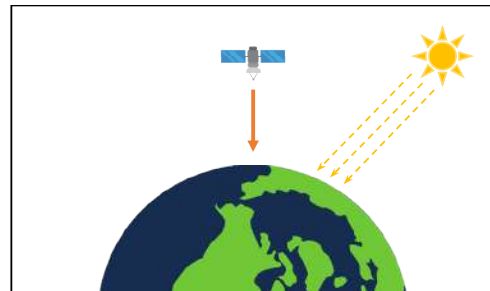


Figure 11 – *Géométrie au nadir.*

1.3.2 Principe

La télédétection spatiale passive se base sur la détection du rayonnement électromagnétique émis ou réfléchi par la Terre. Pour l'instrument qui nous occupe c'est le rayonnement thermique de la Terre dans le domaine spectral de l'IR thermique qui est utilisé comme source. Cette radiation terrestre est le moyen pour la Terre de dégager son excédent d'énergie. Les gaz atmosphériques absorbent le rayonnement lors de sa propagation mais réémettent également aux différentes températures atmosphériques. Les molécules interagissant avec la radiation terrestre subissent différents mouvements qui s'expriment spectroscopiquement par des transitions de rotation et de vibration. [20]

La loi de Planck

Un rayonnement (ou une radiation) équivaut à une quantité d'énergie exprimée en Watt [W]. Lorsque ce rayonnement provient d'une surface et non plus d'un point, on parle d'irradiance, ou de flux, qui s'exprime en W/m^2 . Enfin, l'intensité de la radiation, appelée luminance ou plus généralement radiance (L ou I), est définie comme le flux par unité d'angle solide⁹ dans une direction donnée. Cette grandeur s'exprime en $W/(m^2 sr nm)$ lorsqu'elle est donnée en longueur d'onde. [23]

L'émission de la radiation dans l'IR thermique est gouvernée par la loi de Planck. Cette loi décrit la distribution spectrale de l'énergie du rayonnement émis par un *corps noir* qui se définit comme un objet absorbant toute la radiation qui lui parvient sans en réfléchir ni en transmettre. Elle ne dépend que la température à une longueur d'onde

9. L'angle solide mesure la fraction du champ visuel d'un instrument occupé par l'objet. Il s'exprime en stéradian [sr].

(fréquence ou nombre d'onde) donnée. La loi de Planck en fonction de la longueur d'onde s'exprime de la façon suivante :

$$B(\lambda, T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5 \left[\exp\left(\frac{hc}{k_B T \lambda}\right) - 1 \right]}$$

où λ est la longueur d'onde, T est la température, h est la constante de Planck ($6,626 \times 10^{-34}$ J s), k_B est la constante de Boltzmann ($1,381 \times 10^{-23}$ J/K), et c est la vitesse de la lumière ($2,998 \times 10^8$ m/s). En d'autres termes, la fonction de Planck $B(\lambda, T)$ est l'intensité de la radiation émise par un corps noir à la température T et à la longueur d'onde λ exprimée en W/(m² sr nm s) (voir *figure 13*). [23]

Les corps noirs parfaits sont des cas idéaux. Un corps réel ne se comportera jamais comme un corps noir, c'est pourquoi le terme *corps gris* est utilisé. Ce dernier correspond à un corps dont la radiance est celle d'un corps noir pondérée par l'émissivité spectrale ε . Ce facteur exprime la déviation au comportement d'un corps noir parfait. La radiance d'un corps gris en terme de longueur d'onde est alors donnée par :

$$I(\lambda, T) = \varepsilon(\lambda) B(\lambda, T)$$

L'émissivité est une grandeur sans unité qui est comprise entre 0 et 1. Elle varie en fonction de la surface étudiée. Sa valeur n'est donc pas la même pour les déserts, les forêts ou les océans. La radiance calculée à partir de l'émissivité peut être ensuite convertie en une température équivalente du corps noir appelée température de brillance T_B . Elle est obtenue à partir de la formule suivante :

$$T_B = \frac{hc}{k_B \lambda} \frac{1}{\ln\left(\frac{1}{\varepsilon(\lambda)} \frac{2hc^2}{\lambda^5} + 1\right)}$$

La température de brillance d'une surface au travers d'une atmosphère transparente est la température physique de la surface. L'atmosphère est considérée transparente lorsque la radiation n'est pas affectée lors de son passage par celle-ci. Cette situation n'est possible que dans certaines régions du spectres, appelées fenêtres spectrales. [23]

Transfert radiatif

L'équation du transfert radiatif permet de décrire l'interaction entre le rayonnement IR émis par la Terre et les espèces absorbantes présentes dans l'atmosphère. Son expression générale pour une atmosphère discrétisée en couches est donnée par :

$$I_z^\uparrow = I_0^\uparrow t^* + \int_0^z B(T_{z'}) \frac{dt}{dz'} dz'$$

où I_z^\uparrow est la radiance qui arrive au satellite, I_0^\uparrow est la radiance de la surface terrestre, t^* est la transmittance totale de la surface jusqu'au sommet de l'atmosphère, $B(T_{z'})$ est la fonction de Planck de la couche z' de l'atmosphère et t la transmittance de la couche z' . La radiance mesurée par le satellite est donc composée de deux contributions. La première correspond (premier terme à droite du signe égal) à l'absorption du rayonnement terrestre par l'atmosphère et le deuxième (deuxième terme à droite du signe égal) est l'émission de

chaque couche de l'atmosphère influencée par les couches supérieures. [19][23]

Si chaque couche de l'atmosphère allant de 0 à z est considérée isotherme, la radiance de chaque couche i peut être donnée par une formule simplifiée :

$$I_i^\uparrow = I_{i-1}^\uparrow t_i + B_i(1 - t_i)$$

où I_i^\uparrow est la radiance sortant de la couche i, I_{i-1}^\uparrow est la radiance sortant de la couche i-1, B_i est la fonction de Planck de la couche i à la température constante T_i de la couche i et t_i est la transmittance effective de la couche i. [19][23]

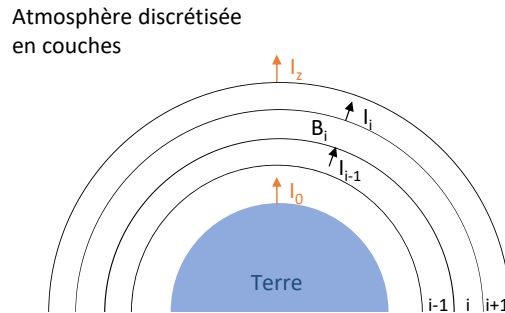


Figure 12 – Transfert radiatif dans l'atmosphère discrétisée en couches.

La *figure 13* illustre le spectre de la radiance du système Terre-atmosphère dans le domaine spectral de l'IR thermique. Il se rapproche du spectre d'un corps noir à ~ 295 K qui serait la température de la surface terrestre. La radiation est absorbée par le CO_2 , l' O_3 , la vapeur d'eau ainsi que d'autres composés. Chaque molécule a des bandes d'absorption caractéristiques de ses transitions de vibration et de rotation ce qui donne sa signature spectrale. Les régions où le rayonnement est faiblement affecté correspondent aux fenêtres atmosphériques. [19]

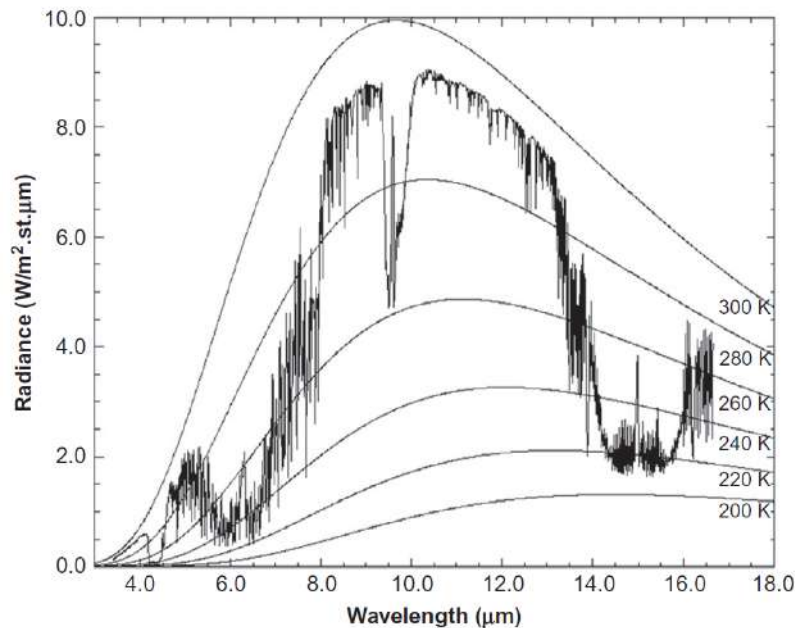


Figure 13 – Spectre de la radiance du système Terre-atmosphère superposé aux spectres de la radiance de corps noir à différentes températures entre 200 et 300 K [19].

2 Méthodologie

2.1 IASI

2.1.1 La mission Metop

Comme nous l'avons indiqué préalablement, la série de satellites Metop, gérée par EUMETSAT, est la contribution européenne au programme conjoint entre l'Europe et les Etats-Unis. Ce programme, l'IJPS, consiste en une série de satellites lancés en orbite polaire héliosynchrone proche de la Terre. La NOAA gère la série de satellites américains NOAA-N et NOAA-N'. [22][24][25]

Le but principal de la mission Metop est de fournir des données en continu et à long terme pour la prévision météorologique et la surveillance de la chimie atmosphérique et du climat mondial. Le programme de Metop consiste au lancement de trois satellites appelés Metop-A, Metop-B et Metop-C. Leurs lancements ont été espacés d'environ 6 ans afin d'avoir des mesures suivies sur 15-20 ans. Metop-A a été lancé en octobre 2006 suivi de Metop-B en septembre 2012 et pour finir de Metop-C en novembre 2018. Dans le cadre de ce mémoire, seules les données de Metop-A et Metop-B sont exploitées. [21][22][25]

Le satellite Metop est pionnier dans son domaine car il est composé d'une combinaison d'instruments permettant de répondre aux objectifs en matière de météorologie et de climat. Il transporte huit instruments de météorologie et de chimie atmosphérique : ASCAT (*Advanced SCATterometer*), AVHRR (*Advanced Very High Resolution Radiometer*), MHS (*Microwave Humidity Sounder*), AMSU-A (*Advanced Microwave Sounding Unit-A*), HIRS (*High-resolution Infrared Radiation Sounder*), GRAS (*GNSS¹⁰ Receiver for Atmospheric Sounding*), GOME-2 (*Global Ozone Monitoring Experiment-2*) et enfin IASI qui nous occupe dans ce travail (voir *figure 14*). [22][25]

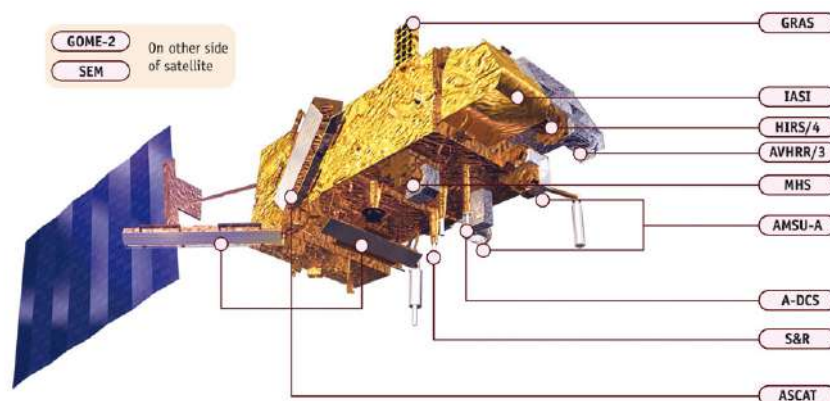


Figure 14 – Agencement des instruments de mesure à bord du satellite Metop [25].

Metop est sur une orbite polaire héliosynchrone à environ 817 km de la Terre. L'orbite polaire permet d'avoir une couverture globale tandis que l'orbite héliosynchrone permet au satellite de passer au-dessus du même endroit tous les jours à la même heure. L'inclinaison

10. Global Navigation Satellite System.

de Metop par rapport à l'Equateur est de $98,7^\circ$ et sa trace passe au-dessus du même point deux fois par jour. La première fois vers 9h30 et une deuxième fois vers 21h30 (heure locale solaire). Metop assure de cette façon le service du matin du programme IJPS et les satellites américains assurent le service de l'après-midi¹¹. Le satellite complète une orbite en 101 minutes ce qui veut dire qu'il fait environ 14 révolutions par jour. [22][24]

2.1.2 Description de IASI

L'instrument IASI est un interféromètre de Michelson. Il consiste en un spectromètre à transformée de Fourier associé à un instrument d'imagerie. Il a été conçu pour mesurer le spectre émis par le système Terre-atmosphère dans la gamme spectrale de l'infrarouge thermique (IR-thermique) entre 645 et 2760 cm^{-1} .

IASI observe la Terre avec un angle de $48,3^\circ$ de chaque côté de la trace du satellite. Sa bande de balayage est composée de deux fois 15 positions miroirs et fait environ 2200 km au sol. Chaque position correspond à son champ de vision instantané, d'une dimension de $50\text{ km} \times 50\text{ km}$ au nadir, composé de 2×2 pixels circulaires, chacun de 12 km de diamètre (voir *figure 15*). L'acquisition d'une bande complète prend 8 secondes et équivaut à 120 interférogrammes. La mission IASI fournit ainsi chaque jour 1 300 000 spectres envoyés en quasi temps réel à la station au sol. [22]

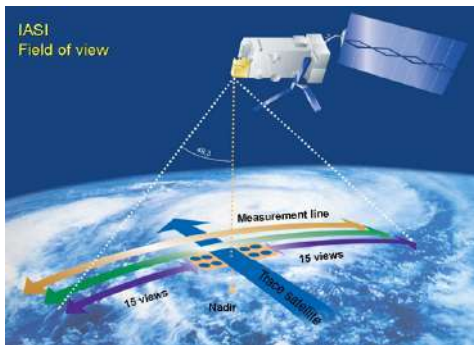


Figure 15 – Champ de vision de l'instrument IASI [25].

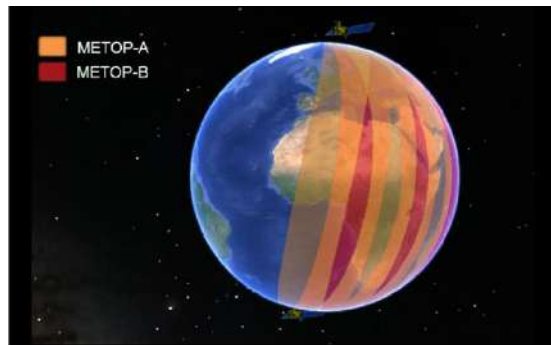


Figure 16 – Trace des satellites Metop-A et Metop-B [26].

Pour combiner les deux objectifs du programme Metop, il a fallu trouver un compromis entre la nécessité d'une bonne couverture spatiale, pour les instruments dédiés à la prévision météorologique, et la nécessité d'une précision élevée et d'une bonne sensibilité verticale, pour les instruments dédiés à la composition atmosphérique. Le résultat obtenu est un instrument qui allie une couverture globale bi-journalière et une résolution spectrale (la largeur à mi-hauteur) de $0,2$ et $0,5\text{ cm}^{-1}$ en fonction de la région du spectre. Les radiances distribuées aux utilisateurs sont apodisées par une fonction gaussienne de $0,5\text{ cm}^{-1}$, qui correspond à la résolution spectrale apodisée pour tout le spectre. Le spectre est donc échantillonné tous les $0,25\text{ cm}^{-1}$ ce qui donne 8461 canaux de radiance. L'instrument IASI a également un bruit radiométrique¹² très faible qui fluctue entre $0,2$ et $0,4\text{ K}$. [20][22]

Les excellentes performances de IASI en vol ont permis de faire des avancées bien plus importantes, notamment en ce qui concerne les mesures d'absorbeurs faibles dont fait

11. Ils passent autour de 13h30 et de 1h30 (heure locale solaire).

12. Bruit sur la mesure de radiance.

partie le NH_3 .

Le premier panneau de la *figure 17* représente un spectre atmosphérique de la radiance normalisée mesuré par IASI. Les panneaux suivants représentent les différents composés détectés dans l'atmosphère qu'on peut classer dans trois catégories [20][22] :

1. La première catégorie contient les absorbeurs forts à modérés. Il y a le CO_2 et le N_2O qui sont des composés avec un long temps de résidence (> 50 ans) et des concentrations atmosphériques stables. Ensuite, il y a également le H_2O , le CH_4 , l' O_3 , le CO et le HNO_3 . Ces derniers ont des temps de vie plus courts allant de quelques années à quelques semaines. Cette catégorie contient essentiellement des gaz à effet de serre.
2. La deuxième catégorie comprend les absorbeurs faibles : le dioxyde de soufre (SO_2), l'ammoniac et certains COVs (acide formique, méthanol, éthène, PAN). Ils ne sont souvent détectables qu'au-dessus des sources ponctuelles ou dans des panaches. Ces espèces ont des temps de vie allant de quelques heures à quelques jours et sont toutes détectées dans la gamme spectrale allant de 800 à 1200 cm^{-1} . Cette catégorie contient aussi les CFCs (chlorofluorocarbones) qui sont des gaz avec un temps de vie long.
3. La troisième catégorie contient les aérosols émis lors de tempêtes de sables ou d'éruptions volcaniques. Ils sont généralement détectés entre 700 - 1300 cm^{-1} .

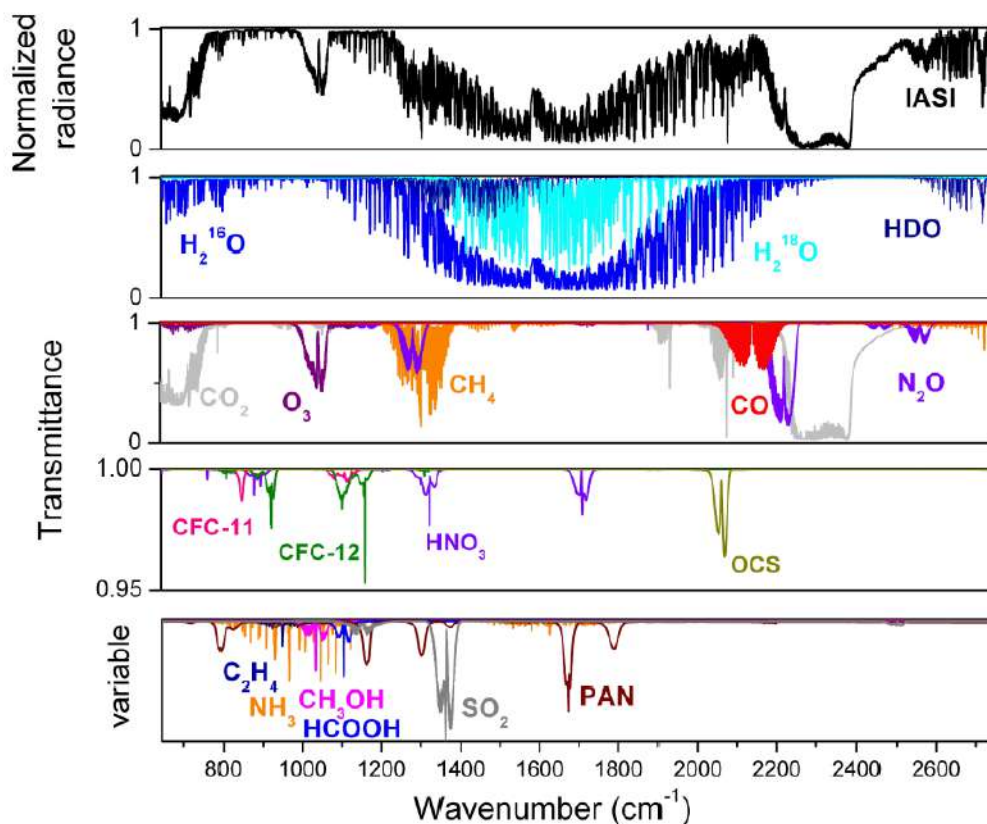


Figure 17 – Premier panneau : spectre atmosphérique de la radiance mesurée par IASI/Metop (unités normalisées). Panneaux suivants : simulation du transfert radiatif pour les principaux absorbants atmosphériques dans cette région spectrale [22].

La concentration de ces espèces et le profil vertical de la température et de la vapeur d'eau dans la troposphère peuvent être restitués des mesures, ils constituent les données IASI de niveau 2. La restitution fait appel à des méthodes inverses. Dans ce travail, seules les données de niveau 2 sont utilisées et nous ne décrivons que très succinctement la méthode utilisé pour les obtenir (voir section 2.1.3). [21][22][26]

L'habilité de IASI à sonder la troposphère dépend de la localisation, de la température, du type de surface et du moment de la journée mais aussi et surtout de la couverture nuageuse [22]. Pour minimiser l'importance des nuages tout en gardant une quantité importante de mesures, seuls les spectres récoltés avec une couverture nuageuse inférieure à 25 % sont gardés. Sur les 1 300 000 spectres journaliers, la moitié est en général exploitée.

L'autre limitation de l'instrument IASI est celle du sondage de la couche de surface (entre 0 et 2 km), qui est dépendante du contraste thermique ΔT défini comme la différence entre la température de surface et la température de la couche de mélange. Plus le ΔT est grand plus la sensibilité de l'appareil aux concentrations de polluants dans la couche de mélange est élevée. Le contraste thermique montre une variabilité géographique, saisonnière et diurne. La sensibilité de IASI et par conséquent la résolution verticale est meilleure au cours du passage matinal du satellite et au-dessus des continents. Le ΔT régule pour une bonne part la précision avec laquelle les espèces à courte durée de vie peuvent être mesurées par IASI. [22]

2.1.3 Détermination des colonnes de NH_3

Les premières colonnes d'ammoniac calculées à partir de IASI ont été décrites dans [27]. Cette première méthode de calcul se basait sur la différence de températures de brillance (BTD) entre un canal sensible à l'ammoniac ($867,85 \text{ cm}^{-1}$) et deux canaux de référence ($861,25$ et $873,50 \text{ cm}^{-1}$). Cette BTD permettait de déterminer la présence ou non d'ammoniac et sa concentration. Malgré que cette méthode soit rapide elle était peu sensible et sujette à de nombreuses sources d'erreurs. [27]

Les colonnes de NH_3 sont aujourd'hui restituées à l'ULB à partir d'une méthode inverse en deux étapes, appelée ANNI- NH_3 -v2R. Cette dernière se base sur le calcul d'un indice de radiance hyperspectral (HRI), propre au NH_3 , qui est ensuite converti, en utilisant un réseau de neurone artificiel, en une valeur de colonne de NH_3 exprimée en molécules/ cm^2 (voir *figure 18*).

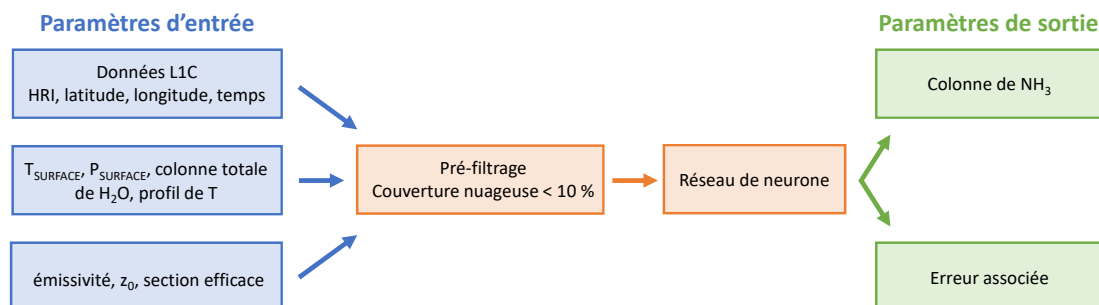


Figure 18 – Etapes de la méthode inverse utilisée pour calculer les colonnes de NH_3 à partir des mesures IASI.

Dans la première étape, le HRI de chaque spectre est calculé. Puis, dans la deuxième étape, des données de niveau 2, comme le profil de la vapeur d'eau, le profil de NH_3 et le profil de température, sont envoyés dans un réseau de neurone. Grâce à tous ces paramètres, ce dernier peut alors calculer un facteur de conversion et donc transformer le HRI en une colonne de NH_3 . La sensibilité des mesures de NH_3 par un sondeur atmosphérique dépend surtout du contraste thermique (ΔT) et de la concentration de NH_3 . C'est pourquoi seuls les spectres de l'orbite matinale et avec une couverture nuageuse inférieure à 10 % sont utilisés afin d'augmenter au maximum la sensibilité de l'instrument. [28]

La *figure 19* représente la distribution spatiale des colonnes moyennes de NH_3 mesurées à partir des 10 ans de données IASI. La concentration de NH_3 est particulièrement élevée en Inde et au Pakistan mais également en Afrique centrale.

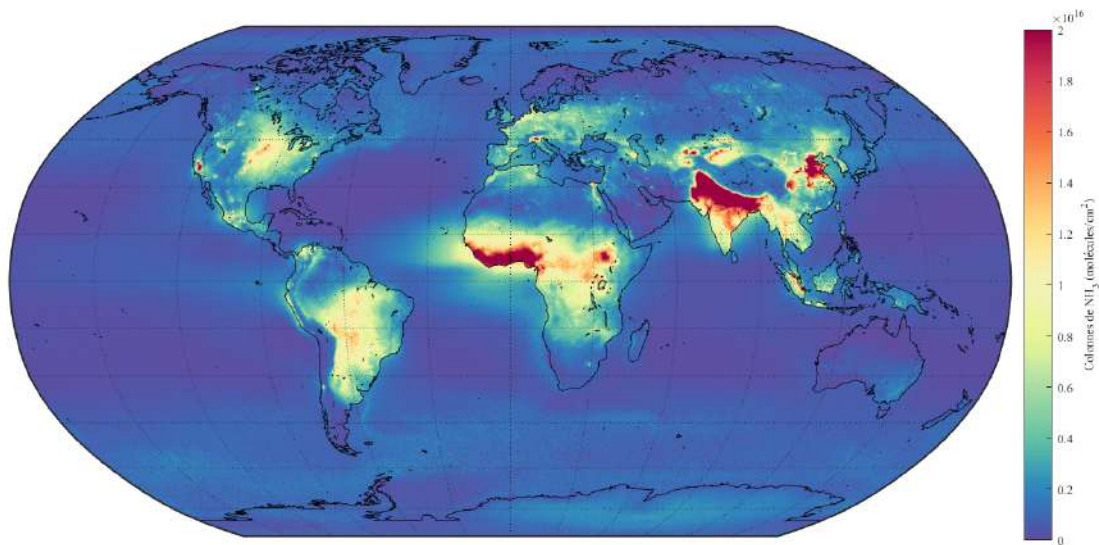


Figure 19 – Distribution spatiale sur une grille de $0,01^\circ \times 0,01^\circ$ des colonnes de NH_3 calculées à partir des 10 ans de données IASI (2008-2017). Les colonnes de NH_3 sont exprimées en molécules/cm².

2.2 EDGAR

EDGAR (*Emissions Database for Global Atmospheric Research*) est un inventaire d'émission qui fournit les émissions anthropiques de certains polluants atmosphériques et gaz à effet de serre à l'échelle globale. Il rassemble les émissions annuelles et mensuelles de 1970 à 2012 par secteur, par pays et sur une grille spatiale. EDGAR a été créé par un projet commun entre le *European Commission Joint Research Centre* et le *Netherlands Environmental Assessment Agency*. [29]

EDGAR est un inventaire d'émission construit à partir d'une approche dite *bottom-up* car il se base sur les données d'activités et les facteurs d'émissions. La formule générale pour calculer les émissions d'un composé X pour un pays P est donnée par [29] :

$$E_{P,X} = \sum_S [EF_{X,S} \times A_S \times (1 - CE_{X,S})]$$

Les émissions sont calculées à partir de la somme de toutes les sources du pays où :

- A_S est l'activité de la source S. Les données d'activités proviennent des rapports complétés par les pays. Elles incluent par exemple le type d'élevage, la quantité de récoltes, la superficie de terres agricoles, etc.
- $EF_{X,S}$ est le facteur d'émission pour un composé X d'une source S. Il exprime la masse de X émise par la source S par unité d'activité. Les facteurs d'émissions sont des valeurs tabulées.
- $CE_{X,S}$ est l'efficacité des régulations pour un composé X d'une source S.

Cette formule est une formule générale où certains termes ont été inclus dans d'autres pour faciliter la compréhension. Ces termes sont complexes et spécifiques aux types d'émissions. La *figure 20* représente la distribution globale des émissions de NH_3 sur une grille spatiale de $0,1^\circ \times 0,1^\circ$ pour l'année 2012. Il faut souligner que EDGAR ne prend pas en compte les émissions de NH_3 issues de la combustion de biomasse (les feux). Ce détail est important pour les comparaisons que nous verrons dans la suite. Dans le cas présent, les émissions annuelles de NH_3 par pays de la version EDGARv432 sont les données utilisées. Les émissions de EDGAR sont données en Gigatonne (Gt) par an et afin de pouvoir les comparer aux émissions calculées à partir des observations IASI, elles sont converties en kg/s. [29][30]

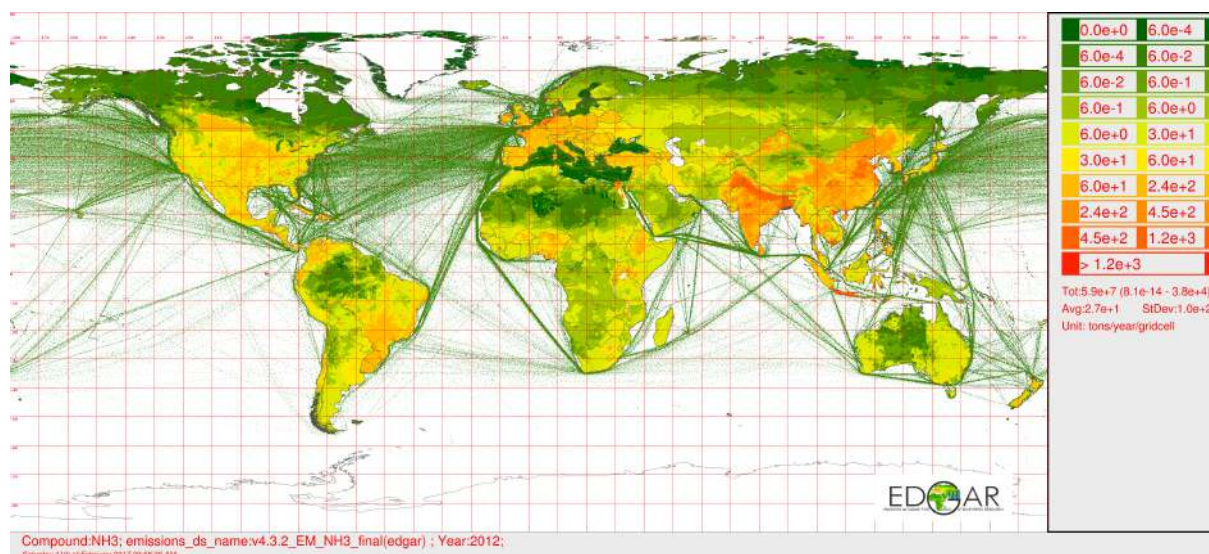


Figure 20 – *Distribution spatiale sur une grille de $0,1^\circ \times 0,1^\circ$ des émissions de NH_3 calculées par EDGAR pour l'année 2012 [31].*

2.3 Calcul des émissions à partir des mesures IASI

Les émissions analysées dans la suite de ce mémoire sont calculées à partir des colonnes de NH_3 , mesurées par IASI, en utilisant le modèle simple boîte qui assume la stationnarité et des processus d'élimination de premier ordre. La *figure 21* illustre le modèle simple boîte pour une espèce X. Il décrit l'abondance du composé X dans cette boîte qui correspond à une portion de l'atmosphère. La quantité de X à l'intérieur de la boîte est donnée par l'équation du bilan de masse :

$$\frac{dm}{dt} = F_{\text{in}} + F_{\text{out}} + P + E + L + D$$

où F_{in} est le transport exprimé par un flux entrant, F_{out} est le flux sortant, P est la vitesse d'introduction de X par production chimique, E est la vitesse d'introduction de X par les émissions, L est la vitesse d'élimination de X par dégradation chimique et D est la vitesse d'élimination de X par déposition. Cette équation exprime donc la variation de masse de X au cours du temps à partir des sources et des puits de X tous exprimés en kg/s. [3][32]

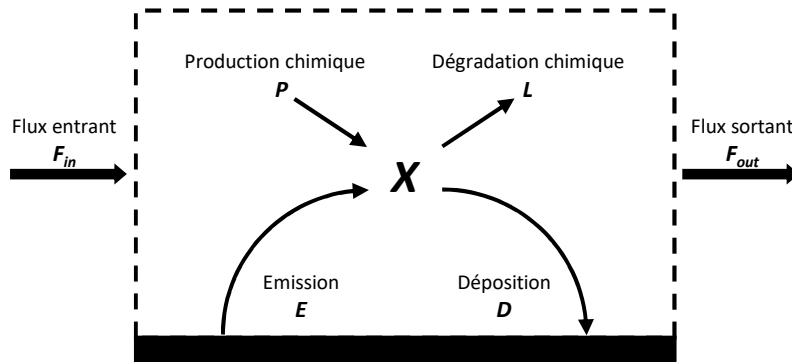


Figure 21 – Modèle simple boîte adapté de [3].

Ce modèle permet également d'introduire le temps de vie ou temps de résidence τ qui exprime le temps moyen pendant lequel une molécule X reste dans la boîte. Il est décrit comme la rapport de la masse m (kg) de X sur la vitesse de disparition de X.

$$\tau = \frac{m}{F_{\text{out}} + L + D}$$

Les temps de vie peuvent aussi être exprimés pour chaque terme de perte. On parle alors de temps de vie effectif.

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{\text{out}}} + \frac{1}{\tau_L} + \frac{1}{\tau_D}$$

où τ_{out} , τ_L et τ_D sont les temps de vie pour le flux sortant, la dégradation chimique et la déposition respectivement. De plus, si les puits sont considérés comme des processus de premier ordre, le temps de vie est déterminé à partir des constantes de vitesse de réaction k .

$$\tau = \frac{1}{k_{\text{out}} + k_L + k_D}$$

où $k_{\text{out}} = 1/\tau_{\text{out}}$, $k_L = 1/\tau_L$ et $k_D = 1/\tau_D$.

Le temps de vie du NH_3 atmosphérique varie de quelques heures à quelques jours. Dans ce travail, le temps de vie choisi est de 12h. Ce choix, décrit dans [32], est basé sur les données disponibles dans la littérature. Le temps de vie dépend de plusieurs facteurs comme la présence d'autres polluants atmosphériques, des variables météorologiques (vapeur d'eau, température, vents, nuages) et de la colonne de NH_3 .

La formule pour calculer les émissions de NH_3 à la stationnarité et en faisant l'hypothèse de pertes de premier ordre est finalement donnée par :

$$\frac{dm}{dt} = E_{\text{NH}_3} - \frac{m}{\tau} = 0 \implies E_{\text{NH}_3} = \frac{m}{\tau}$$

où m est la masse totale de NH_3 contenue dans la boîte considérée et τ est le temps de vie du NH_3 . Les colonnes de NH_3 mesurées par IASI permettent d'obtenir la masse m qui est ensuite divisée par 12h, le temps de résidence du NH_3 . Les émissions calculées sont exprimées en kg/s. Dans le cadre de ce mémoire, les émissions sont calculées à partir des colonnes de NH_3 moyennées sur un an ou sur les 10 ans de IASI.

2.3.1 Sources ponctuelles

Une source ponctuelle, ou hotspot, est une source de pollution unique et identifiable parmi les autres sources, comme par exemple une industrie. Dans notre cas, les sources ponctuelles sont surtout des industries et des élevages intensifs. Chaque source ponctuelle est contenue dans une boîte. Pour le calcul des émissions, il faut donc tenir compte de la colonne de NH_3 de chaque cellule de $0,01^\circ \times 0,01^\circ$ comprise dans cette boîte (*figure 22*).

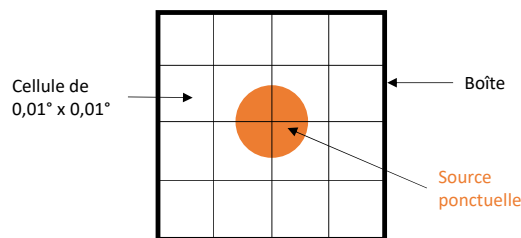


Figure 22 – Schéma représentant une boîte contenant une source ponctuelle.

Les émissions des sources ponctuelles sont calculées à partir de $E = m/\tau$ où m est la masse totale de la boîte calculée à partir des colonnes de NH_3 de IASI et τ est le temps de vie du NH_3 . Dans notre cas, on utilise des émissions annuelles ce qui veut dire que les colonnes de NH_3 sont moyennées sur un an.

Ensuite, à chaque colonne de NH_3 incluse dans la boîte nous soustrayons une valeur de bruit de fond. Cette dernière est estimée à partir du 10^{ème} percentile de la moyenne de toutes les colonnes contenue dans la boîte. Cette soustraction permet ainsi d'obtenir uniquement les émissions provenant de la source ponctuelle. Le choix du percentile est décrit dans [32]. Lorsque les colonnes de NH_3 sans le bruit de fond exprimées en molécules/cm² sont obtenues, elles sont multipliées par la surface de chaque cellule, sommées et finalement divisées par le temps de vie du NH_3 , valant 12h. La formule pour passer des colonnes aux

émissions est alors donnée par :

$$E_{\text{NH}_3} = \frac{\left(\sum_{\text{cellules}} C_{\text{NH}_3} \times S_{\text{NH}_3} \right)}{\tau} \times \frac{M_{\text{NH}_3}}{N_{\text{AV}} \times 1000}$$

où E_{NH_3} sont les émissions de NH_3 d'une source ponctuelle exprimées en kg/s, C_{NH_3} est la colonne de NH_3 d'une cellule, S_{NH_3} est la surface d'une cellule, N_{AV} est le nombre d'Avogadro ($6,022 \times 10^{23}$ molécules/mol), M_{NH_3} est la masse molaire de NH_3 (17,03 g/mol) et τ est le temps de vie (12h = 43200 s). Le dernier terme de droite est un facteur multiplicatif pour passer des molécules à des kilogrammes.

2.3.2 Pays

Les émissions par pays sont calculées de la même manière que pour les sources ponctuelles à ceci près que nous n'effectuons plus la soustraction de la valeur de bruit de fond. La boîte représente ici la surface du pays et donc la masse m est calculée à partir de toutes les colonnes de NH_3 au-dessus du pays en question (voir *figure 23*). Après l'extraction des colonnes pour le pays, la colonne de chaque cellule est multipliée par la surface de la cellule afin d'obtenir une colonne exprimée en molécules. Pour finir, toutes les colonnes sont converties en kilogramme (kg) et divisées par le temps de vie du NH_3 , qui vaut ici aussi 12h. La distribution spatiale des émissions de NH_3 du pays sont alors exprimées en kg/s comme illustré à la *figure 24* pour la Belgique.

Les émissions nationales annuelles se basent sur les colonnes de NH_3 moyennées sur un an et les émissions nationales reprenant les 10 années de IASI se basent sur les colonnes de NH_3 moyennées sur 10 ans.

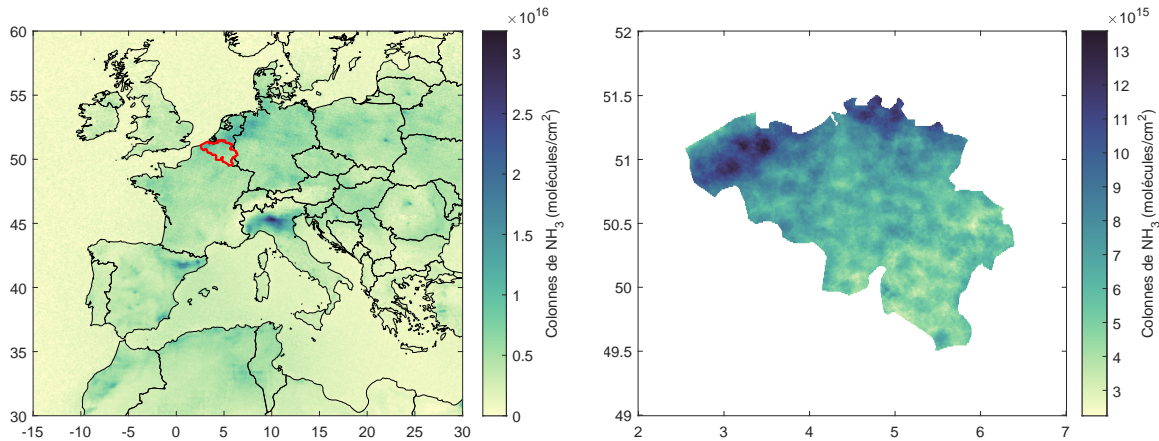


Figure 23 – Extraction des colonnes de NH_3 au-dessus de la Belgique à partir de la distribution spatiale sur une grille de $0,01^\circ \times 0,01^\circ$ de colonnes de NH_3 calculée à partir des 10 ans de données IASI.

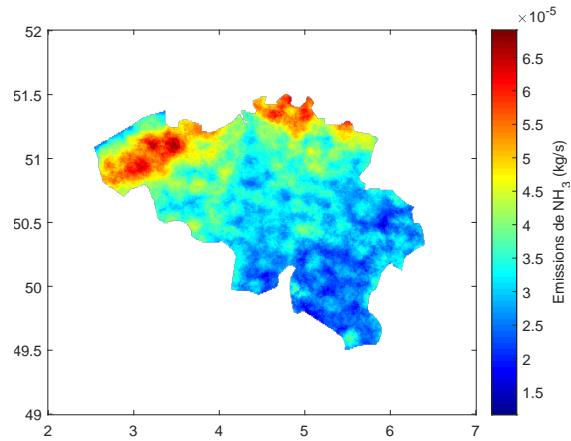


Figure 24 – *Distribution spatiale sur une grille de $0,01^\circ \times 0,01^\circ$ des émissions de NH_3 pour la Belgique calculée à partir des 10 ans de données IASI et avec un temps de résidence de 12h.*

Pour obtenir les émissions totales du pays, les colonnes de NH_3 de tout le pays sont multipliées par la surface de leur cellule et sommées. Le résultat obtenu est alors converti en kg et divisé par le temps de vie. Les émissions totales de NH_3 pour la Belgique, par exemple, valent $1,4 \text{ kg/s}^{13}$.

13. Valeur calculée à partir des colonnes de NH_3 de IASI moyennées sur 10 ans et avec un temps de résidence pour le NH_3 de 12h.

3 Evolution des sources ponctuelles de NH₃

La première partie de nos résultats concerne l'évolution des sources ponctuelles de NH₃, détectées par [32], pendant les 10 ans de IASI. Les émissions annuelles de ces sources ont été calculées et analysées afin de déterminer les sources qui ont débuté et/ou fermé entre 2008 et 2017. Ensuite, la méthode utilisée est expliquée et illustrée par quelques exemples.

Notons que c'est la première fois qu'une série de données de NH₃ aussi longue et complète est étudiée. En effet, IASI est le premier instrument à fournir des mesures de NH₃ dans la troposphère pour une période de plus de 10 ans. L'analyse de ces données permet la détection de sources ponctuelles ainsi que leur évolution. De plus, l'étude, menée dans [32], montre aussi que plus d'un quart des sources ponctuelles détectées par IASI ne sont pas répertoriées dans l'inventaire d'émission EDGAR.

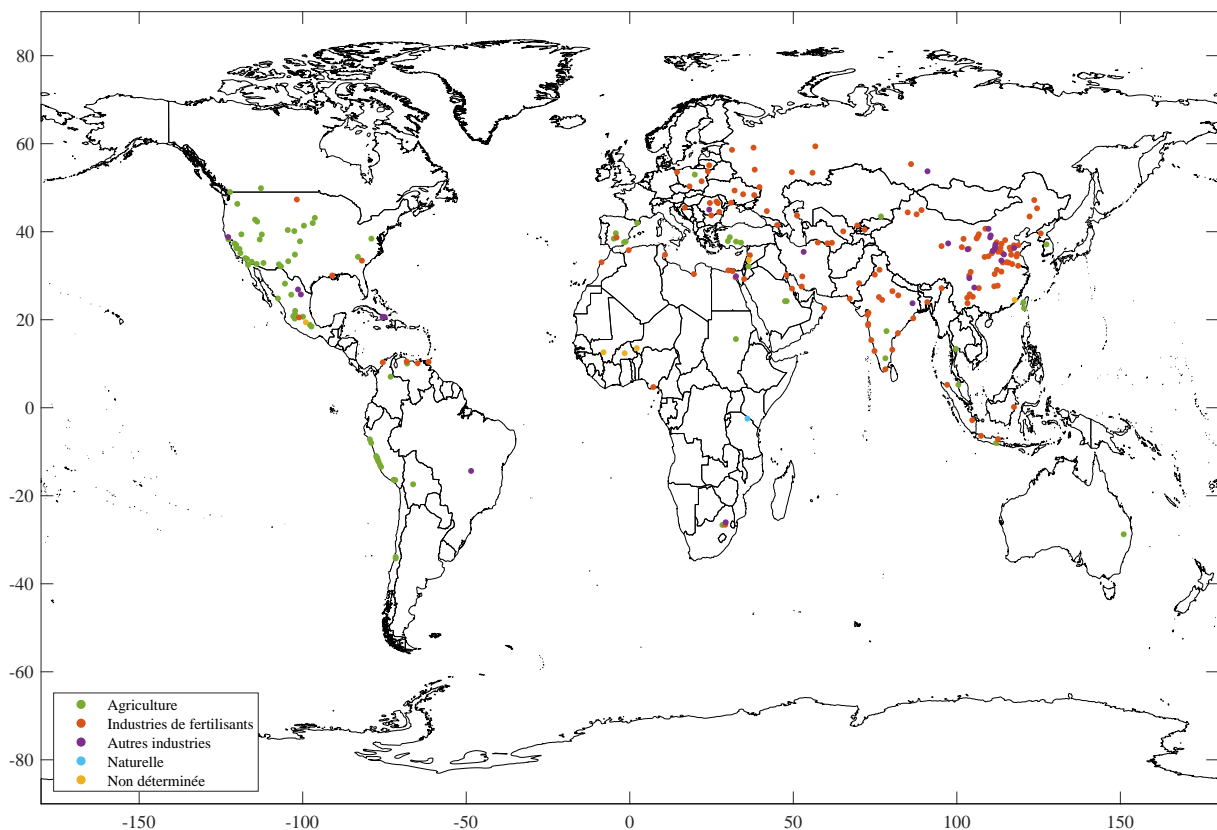


Figure 25 – Type (couleur) et emplacement des 248 sources ponctuelles identifiées dans [32].

3.1 Identification des sources ponctuelles

Les sources ponctuelles étudiées sont celles répertoriées dans [32]. Dans cet article, 248 hotspots ont été identifiés et catégorisés à partir des émissions IASI¹⁴ moyennées sur 9 ans (voir figure 25). Ces hotspots ont des diamètres inférieurs à 50 km et contiennent une ou

14. Dans la suite du travail, on parlera d'émissions IASI pour désigner les émissions de NH₃ calculées à partir des colonnes de NH₃ mesurées par IASI.

plusieurs sources. Leur identification s'est faite à partir d'images aériennes, d'inventaires et de sources internet. Seules 6 sources n'ont pas pu être catégorisées.

Les 242 autres sources ponctuelles ont été classées dans trois catégories [32] :

- Les **sources agricoles** sont associées à l'élevage intensif, qu'il soit en plein air ou dans un bâtiment et sont au nombre de 83. Ces sources ponctuelles sont très présentes aux Etats-Unis où l'élevage est un secteur d'activité majeur. La *figure 26* représente à titre d'exemple une source ponctuelle agricole située à Broken Bow (Nebraska, Etats-Unis). Les deux panneaux sont des images aériennes de la source où l'élevage intensif de bétail¹⁵ est clairement visible.



Figure 26 – Exemple d'une source ponctuelle agricole de NH_3 située à Broken Bow (NE, Etats-Unis). Sur la figure de gauche, la source ponctuelle est montrée dans son ensemble et dans la figure de droite, c'est un zoom sur une parcelle où on y distingue nettement le grand nombre d'animaux. Les images sont tirées de Google Earth.

- Les **sources industrielles** comptent pour 158 des sources ponctuelles identifiées. Elles sont majoritairement associées à des industries de fabrication de fertilisants à base de NH_3 mais elles comprennent aussi des mines de nickel et de cobalt, des industries de carbonate de soude (soudières) et des centrales géothermiques. Ces industries sont très nombreuses en Chine. La *figure 27* montre une industrie de fertilisants à Pingsongxiang (Shanxi, Chine).
- Les **sources naturelles** sont en grande partie dues aux émissions des océans et des sols non cultivés mais leur identification est difficile car elles sont diffuses. Une source a pu être identifiée : le Lac Natron (Tanzanie) (voir *figure 27*) [33]. Les autres sources ponctuelles possibles sont les volcans et les colonies de phoques et d'oiseaux de mer. Néanmoins celles-ci n'ont pas pu être identifiées à partir des mesures de IASI.

15. On parle en anglais de *Concentrated Animal Feeding Operations* (CAFO).



Figure 27 – A gauche : exemple d'une source ponctuelle industrielle de NH_3 située à Pingsongxiang (SX, Chine). Le complexe est celui d'une industrie de fertilisants à base de NH_3 . A droite : l'unique source ponctuelle naturelle de NH_3 identifiée est le Lac Natron (Tanzanie). Les images sont tirées de Google Earth.

3.2 Ouvertures et fermetures des sources ponctuelles

La première étape pour analyser l'évolution des hotspots est de calculer les émissions annuelles de NH_3 comme nous l'avons expliqué à la section 2.3.1. Ensuite en utilisant des seuils fixes sur les émissions normalisées, les sources ponctuelles qui ont ouvert et/ou fermé pendant les 10 ans ont été déterminées. Le choix des seuils est développé dans le point suivant. La *figure 28* montre les résultats obtenus pour toutes les sources où des tendances nettes sont observables.

Les deux conclusions importantes qui peuvent être tirées de la *figure 28* c'est une tendance à l'ouverture en Chine et une tendance à la fermeture en Europe de l'Est. Plus globalement nous constatons que sur l'ensemble des sources ponctuelles analysées, 55 ont débuté, 35 ont fermé et 162 sont restées actives entre 2008 et 2017. Ces dernières étaient donc présentes avant les premières mesures IASI et se sont maintenues en activité jusqu'à la fin de la période étudiée. Parmi les sources qui ont subi des changements, il est intéressant de noter que 4 ont débuté leurs activités après 2008 mais ont également fermé avant 2017. Ces 4 sources ponctuelles sont représentées à la *figure 28* par deux triangles superposés.

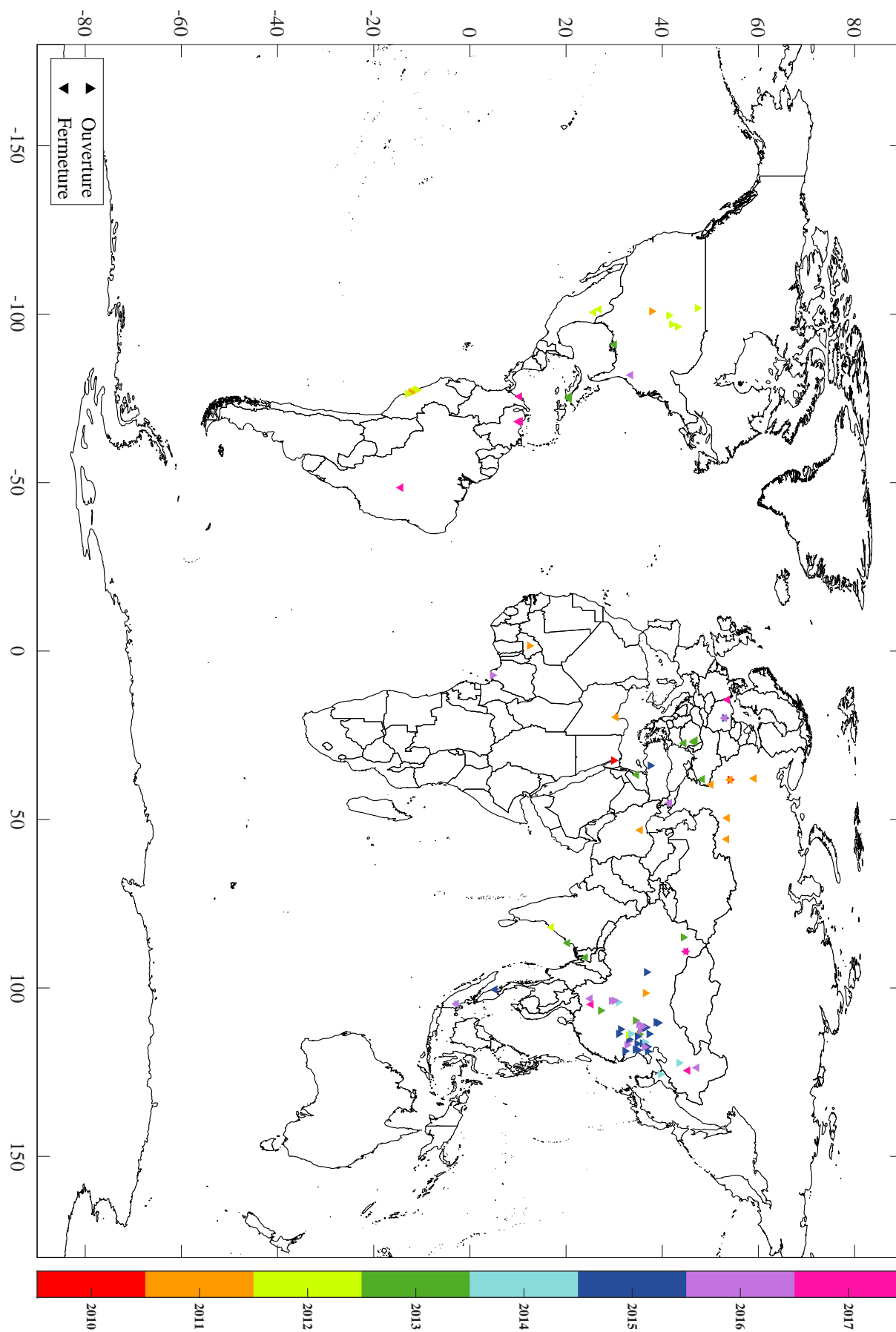


Figure 28 – Année d'ouverture (▲) et fermeture (▼) des sources ponctuelles de NH_3 pendant les 10 ans d'activité de IASI (2008-2017). Les triangles superposés (▼ + ▲) correspondent aux sources ponctuelles qui ont débuté et fermé entre 2010 et 2017.

Ouvertures de complexes industriels et agricoles

Plus de 70 % des sources qui ont débuté entre 2008 et 2017 sont situées en Chine. Elles représentent essentiellement des industries de fertilisants à base de NH_3 ouvertes entre 2014 et 2016. Les autres sources sont des grandes exploitations agricoles situées en Amérique. Elles concernent notamment des élevages de poulets au Pérou, qui ont ouverts entre 2011 et 2012. Les données FAO (*Organisation des Nations Unies pour la nourriture et l'agriculture*) sont en accord avec ces dernières car elles indiquent une augmentation de la production de poulets dans le pays à partir de 2011 (voir *figure 29*). Aux Etats-Unis, 5 sources ont vu le jour pendant la même période dont 4 ont été identifiées comme des élevages.

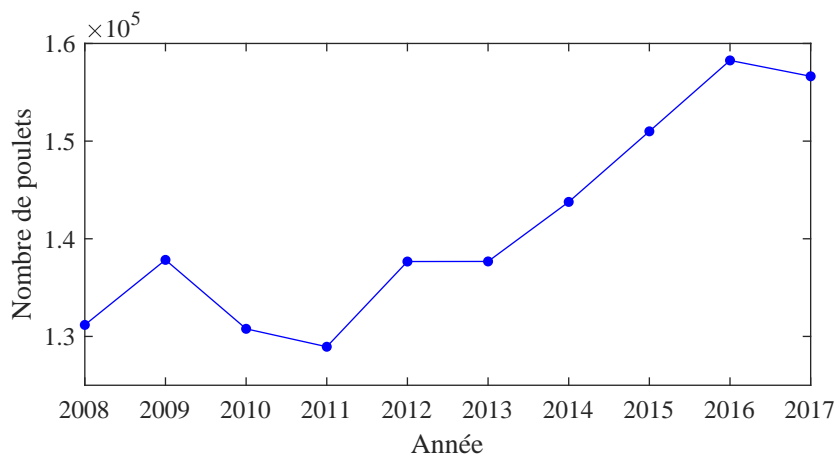


Figure 29 – Production de poulets au Pérou de 2008 à 2017 [34].

Fermetures de complexes industriels et agricoles

Parmi les 35 sources ponctuelles qui ferment, 32 sont des industries et seulement 3 concernent des sources issues de l'agriculture. Les fermetures d'industries de fertilisants se situent surtout en Europe de l'Est et plus précisément en Russie, en Roumanie et en Ukraine. Quelques industries ferment aussi sur le continent américain comme au Mexique, à Cuba et en Colombie.

Dans le *tableau 1*, toutes les sources ponctuelles industrielles sont reprises avec leur année de fermeture ainsi que, si possible, la confirmation ou non de la fermeture et la cause de la fermeture. Ces informations ont été obtenues à partir de recherches internet. Celles-ci se sont essentiellement concentrées sur les sites internet des sociétés concernées, sur des articles de presse et parfois sur les images satellites provenant de Google Earth. Les sources agricoles ne sont pas détaillées suite au manque d'informations disponibles.

Dans le point suivant, certaines ouvertures et fermetures sont discutées plus en détail.

Nom	Pays	Source	Année	Commentaires
Ashuganj	Bangladesh	IF	2013	Pas d'informations trouvées
Xingyi - Qianxinan	Chine	IF	2017	Pas d'informations trouvées
Hulan Ergi	Chine	IF	2016	Pas d'informations trouvées
Changshan	Chine	IF	2017	Pas d'informations trouvées
Wucaiwan	Chine	IF	2017	Fermeture suite à des accidents mortels [35]
Yiliang	Chine	IF	2016	Pas d'informations trouvées
Cartegena - Manomal	Colombie	IF	2017	Pas d'informations trouvées
Rustavi - Gardabani	Géorgie	IF	2016	Fermeture temporaire en 2016 pour causes économiques (hausse du prix du gaz) [36]
Bikkavolu - Balabhadrapuram	Inde	IF	2012	Pas d'informations trouvées
Paradip - Batighara	Inde	IF	2013	Pas d'informations trouvées
Palembang	Inde	IF	2016	Identification d'une fausse fermeture due à l'impact possible des feux de 2015 [37]
Marsa el Brega	Libye	IF	2011	Fermeture temporaire en 2011 à cause d'instabilités politiques [38]
Police	Pologne	IF	2017	Pas d'informations trouvées
Bacau	Roumanie	IF	2013	Fermeture en 2011 pour causes économiques (hausse du prix du gaz) [39][40]
Savinesti - Roznov - Slobozia	Roumanie	IF	2013	Fermeture en 2011 pour causes économiques (hausse du prix du gaz) [39][40]
Slobozia - Dragalina	Roumanie	IF	2013	Fermeture en 2011 pour causes économiques (hausse du prix du gaz) [39][40]
Cherepovets	Russie	IF	2011	Identification d'une fausse fermeture due à l'impact des feux de 2010. Continuation des activités et modernisation du site [41]
Novomoskovsk	Russie	IF	2011	Identification d'une fausse fermeture due à l'impact des feux de 2010. Continuation des activités [42]
Rossosh	Russie	IF	2011	Identification d'une fausse fermeture due à l'impact des feux de 2010. Continuation des activités [43]

Nom	Pays	Source	Année	Commentaires
Salavat	Russie	IF	2011	Identification d'une fausse fermeture due à l'impact des feux de 2010. Continuation des activités et modernisation du site pour réduire les émissions de polluants [44]
Togliatti	Russie	IF	2011	Identification d'une fausse fermeture due à l'impact des feux de 2010. Continuation des activités et modernisation du site [45]
South of Homs	Syrie	IF	2013	Diminution des activités à partir de 2011 suivie d'une fermeture temporaire (environ 2 ans) [46]
Gorlovka	Ukraine	IF	2013	Accident sur le site en août 2013 [47]
Donaldsonville	Etats-Unis	IF	2013	Arrêt temporaire des activités à cause d'une explosion mortelle en juin 2013 mais suivi d'une expansion du site [48][49][50]
Beech Island	Etats-Unis	IF	2016	Pas d'informations trouvées
Moron	Vénézuéla	IF	2017	L'industrie ne fonctionne qu'à 20 % de sa capacité depuis fin 2017 à cause de problèmes de gestion au sein de la société [51]
Niquelândia	Brésil	AI	2017	Fermeture en février 2016 pour causes économiques (chute du prix du nickel) [52]
Moa	Cuba	AI	2013	Diminution des activités ces dernières années pour causes économiques (chute du prix du nickel) mais annoncée en 2018 d'une modernisation du site [53][54]
Nicarao	Cuba	AI	2013	Fermeture en décembre 2012 [55]
Nezami	Iran	AI	2011	Pas d'informations trouvées
Garcia	Mexique	AI	2012	Pas d'informations trouvées
Monclova	Mexique	AI	2012	Pas d'informations trouvées

Table 1 – Liste des sources ponctuelles fermées entre 2010 et 2017. (IF = industries de fertilisants et AI = autres industries)

3.3 Choix des seuils et quelques exemples

Pour commencer, les émissions annuelles des sources ponctuelles sont normalisées par rapport au maximum d'émissions de la source en question. Après l'obtention des émissions annuelles normalisées des 248 sources ponctuelles, des seuils fixes sont appliqués à ces données enfin d'en tirer les informations sur les ruptures dans les séries temporelles, et qui correspondrait donc à des ouvertures ou/et fermetures. Notons que les émissions de 2008 et 2009 ont été moyennées car ces deux années, qui correspondent aux premières mesures de IASI, ont des données plus bruyantes. Pour la même raison, les ouvertures et les fermetures ont été recherchées entre 2010 et 2017.

Pour déterminer une ouverture dans les séries temporelles, deux conditions sont fixées. La première est que la moyenne des émissions normalisées de NH_3 pour 2008-2009 soit inférieure à 0,25. Puis si cette condition est remplie, la première année à partir de 2010 qui a des émissions supérieures à 0,5 correspond à l'année d'ouverture du hotspot. Nous illustrons cette procédure dans la *figure 30* pour 2 sites où une ouverture est identifiée.

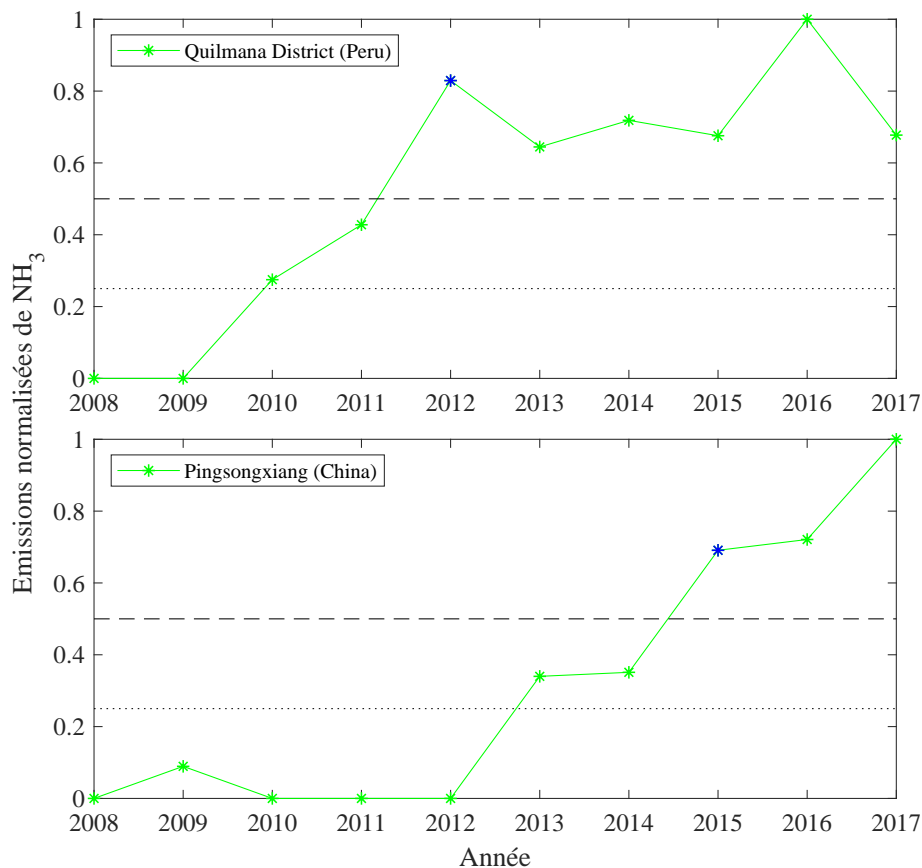


Figure 30 – Evolution temporelle des émissions de NH_3 de 2 sources ponctuelles. En haut : la source ponctuelle agricole située à Quilamaná District (Pérou) qui ouvre en 2012. En bas : la source ponctuelle industrielle située à Pingsongxiang (SX, Chine) qui ouvre en 2015. Les ouvertures sont représentées par les astérisques bleus.

Le premier site est une source de type agricole située à Quilmaná District au Pérou. Elle est causée par des élevages intensifs de poulets. Avec les seuils appliqués, l'année d'ouverture trouvée pour cette source est 2012. En utilisant des images satellites, l'évolution de la source ponctuelle peut être suivie et confirmée (voir *figure 31*). En 2007, aucun élevage n'était encore présent. En 2010, les premiers élevages apparaissent (entourés en orange

dans la *figure 31(b)*) ce qui coïncide avec les premières émissions conséquentes de NH_3 détectées par IASI. Dans les années suivantes, les émissions continuent de grimper, suivant de ce fait le nombre croissant d'élevages. L'évolution du nombre de bâtiments dédiés à l'élevage de poulets augmente au fil des années et cette évolution correspond bien à celle des émissions de NH_3 mesurées par IASI.

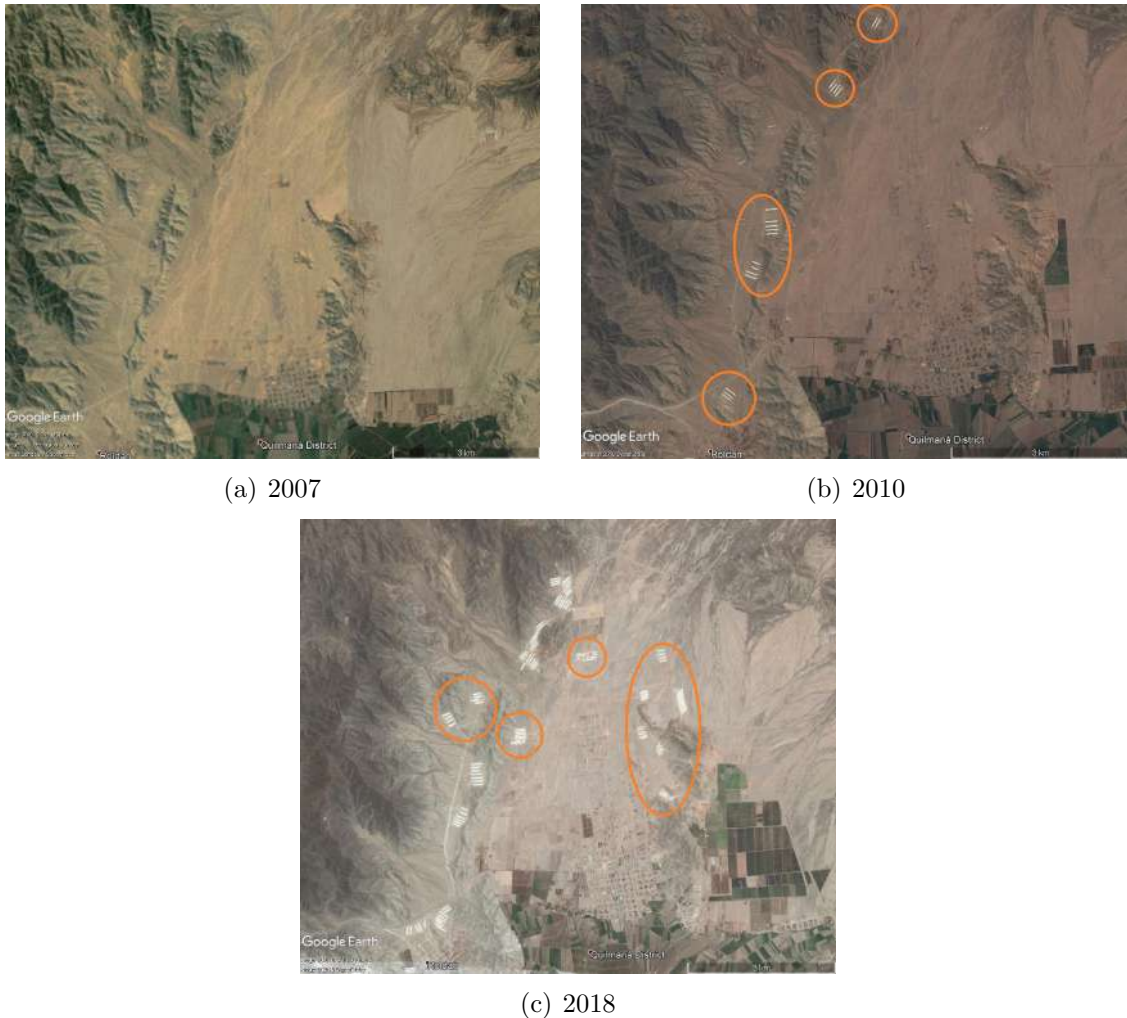


Figure 31 – Images aériennes des élevages de poulets situés à Quilmaná District (Pérou) en 2007, en 2010 et en 2018. Les élevages sont les longs bâtiments blancs visibles en 2010 et 2018. Les images sont tirées de Google Earth.

Le deuxième panneau de la *figure 30* montre l'évolution temporelle du NH_3 issue d'une source industrielle située à Pingsongxiang en Chine. Selon les émissions dérivées de IASI, ce complexe aurait débuté ses activités en 2015. Les images aériennes de cette source ponctuelle permettent de voir que sa construction débute pendant l'année 2011 et semble se terminer en 2013 (voir *figure 32*). L'évolution temporelle montre une augmentation des émissions cette même année malgré que l'ouverture ne soit considérée qu'en 2015. La justification de cela peut être que l'usine n'a commencé à fonctionner à plein régime qu'en 2015. En 2013 et 2014, l'activité avait déjà débuté mais les émissions restent modérées. Le choix du seuil à 0,5 semble dans ce cas conservatif mais ce choix est discuté dans la suite.

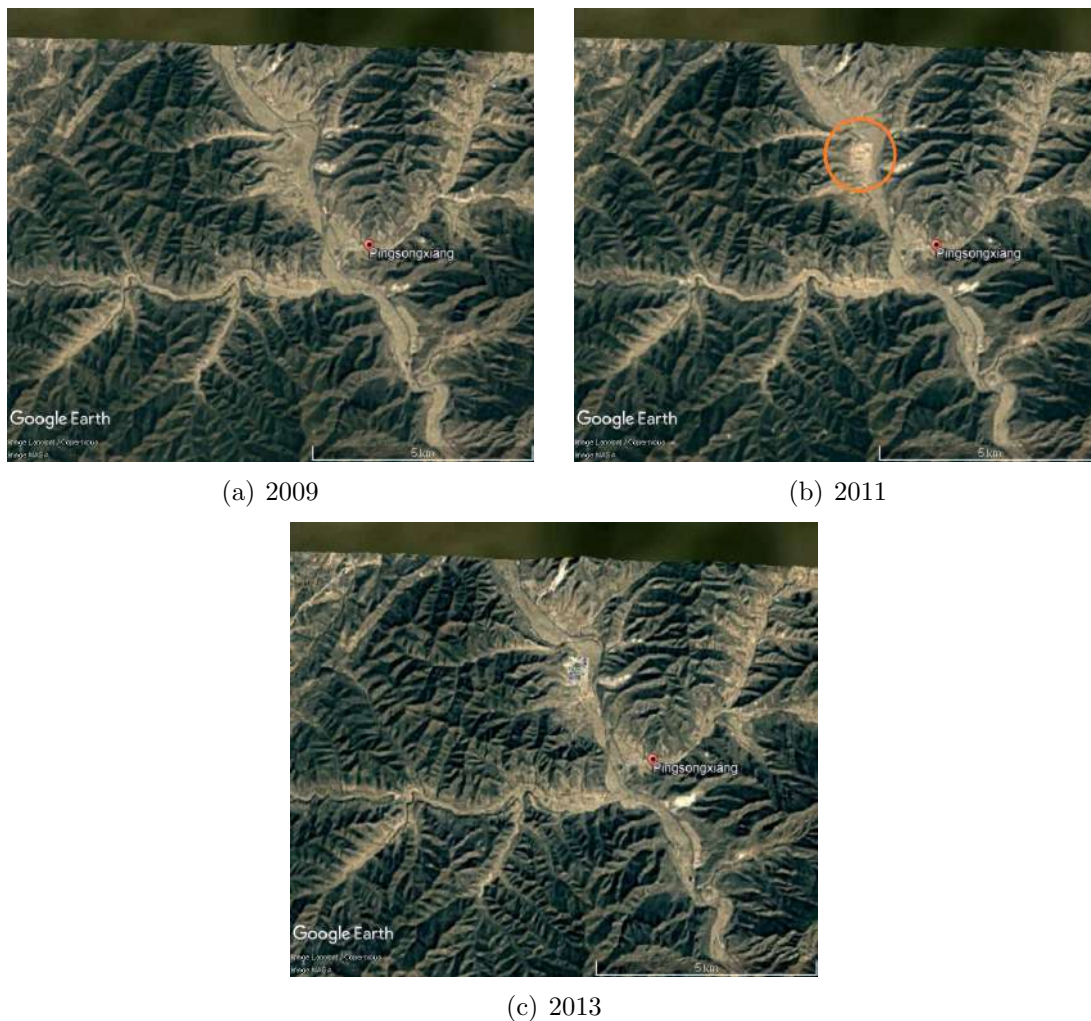


Figure 32 – Images aériennes de l’industrie de fertilisants à base de NH_3 située à Pingsongxiang (SX, Chine) en 2009, en 2011 et en 2013. L’industrie, entourée en orange, apparaît en 2011. Les images sont tirées de Google Earth.

Dans les deux cas ci-dessus, les ouvertures détectées correspondent bien à l’apparition de nouvelles sources ponctuelles. Cependant, l’année d’ouverture est fonction de l’évolution des émissions annuelles de la source en question. Comme il a été vu pour les deux exemples précédents, les premières années d’activités des sources ont des émissions faibles ce qui implique que l’ouverture n’est détectée qu’une à trois années plus tard. Notons aussi que certaines ouvertures détectées n’en sont pas réellement une. Elles peuvent par exemple être dues à l’expansion d’une source ponctuelle existante qui provoque une augmentation des émissions et donc un dépassement du seuil.

Pour déterminer une fermeture, deux conditions similaires sont utilisées. La première condition est que les émissions de 2017 soient inférieures à 0,25. Ensuite si cette condition est remplie, la dernière année, en partant de 2017 à 2010, avec des émissions qui dépassent 0,5 est prise comme celle correspondant à la dernière année d’activité. Dès lors l’année suivante est considérée comme l’année de fermeture de la source ponctuelle. La *figure 33* représente l’évolution d’une source ponctuelle industrielle située à Nicaro (Cuba) qui, selon la procédure suivie sur les émissions IASI, fermerait en 2013.

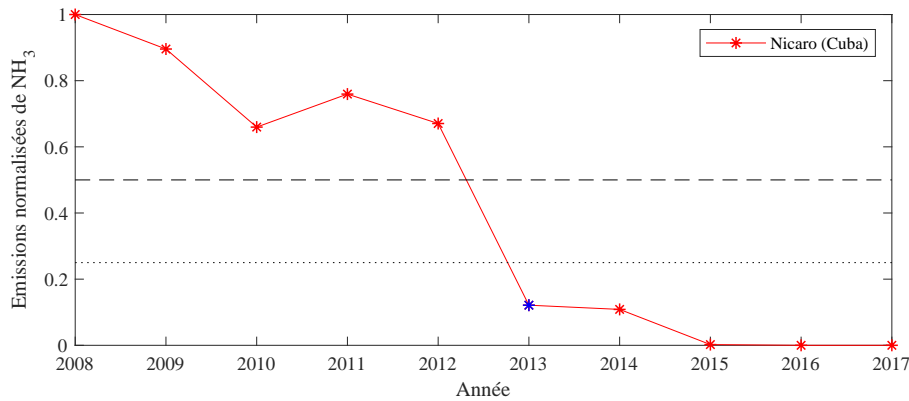


Figure 33 – Evolution temporelle des émissions de NH_3 de la source ponctuelle industrielle située à Nicaro (Cuba) qui ferme en 2013. La fermeture est représentée par l’astérisque bleu.

Etant donné que les fermetures ne correspondent pas nécessairement à la disparition du complexe émetteur, elles ne sont pas observables à partir d’images aériennes comme s’était le cas pour les ouvertures. Il faut donc se baser sur les articles de presse et les communiqués des sociétés. Dans le cas de Nicaro, un article de presse paru en décembre 2012 annonce la fermeture de la mine de nickel après 70 ans d’activité [55]. Comme reporté dans le *tableau 1* beaucoup de fermetures ne correspondent pas à une fermeture définitive. En effet, plusieurs causes peuvent être à l’origine d’une baisse des émissions de NH_3 . Citons à titre d’exemple des travaux d’infrastructures, des accidents ou une instabilité politique dans le pays.

Parfois il est aussi possible qu’un événement impacte les concentrations de NH_3 dans la zone de la source ponctuelle induisant des émissions erronées pour celle-ci. Ce problème est rencontré pour les sources ponctuelles de Russie. L’analyse de l’évolution temporelle des hotspots du pays révèlent que 5 des 10 hotspots ferment en 2011 pourtant ces derniers sont toujours en activité (voir *tableau 1*). Les évolutions temporelles normalisées pour le NH_3 , illustrées à la *figure 34*, montrent que les 5 stations ont le maximum de leurs émissions en 2010. Cette année-là, la Russie a été touchée par des feux puissants en particulier dans l’ouest du pays où ces complexes industriels sont situés [56]. Les feux ont provoqué une augmentation générale des concentrations de NH_3 dans cette région c’est pourquoi une hausse importante des émissions est détectée en 2010. L’année suivante, les émissions, revenues à la normale, sont beaucoup plus faibles. L’anomalie de 2010 est donc telle que, selon les critères fixés, l’année 2011 ressort comme une année de fermeture pour toutes ces industries.

Si l’on retire l’année 2010 de la série, l’évolution temporelle des émissions de NH_3 de ces sources ponctuelles est modifiée à cause du changement d’échelle lié à la renormalisation (voir *figure 35*). Toutefois, l’année 2011 demeure une année où les émissions de NH_3 sont particulièrement faibles. Il est possible que les industries aient été touchées par les feux provoquant une diminution des activités de celles-ci pendant l’année suivante. Une autre explication possible serait liée à une diminution de la demande en fertilisants pour cette année, toujours en conséquence des feux. Nous devons finalement faire remarquer que les émissions de 2008 et 2009, basées sur des données plus bruyantes, sont aussi très élevées et influencent le reste de l’évolution temporelle.

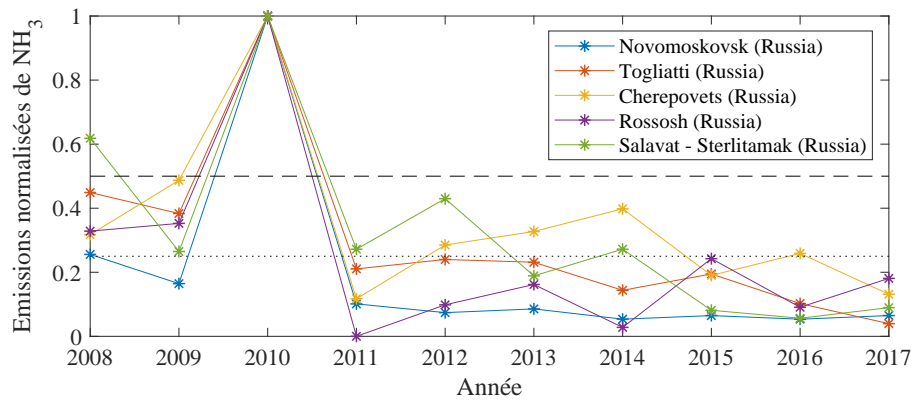


Figure 34 – Evolution temporelle des émissions de NH_3 de 5 sources ponctuelles situées à l'ouest de la Russie. Le pic de 2010 s'explique par les feux importants de cette année-là qui se sont accompagnés d'émissions massives de NH_3

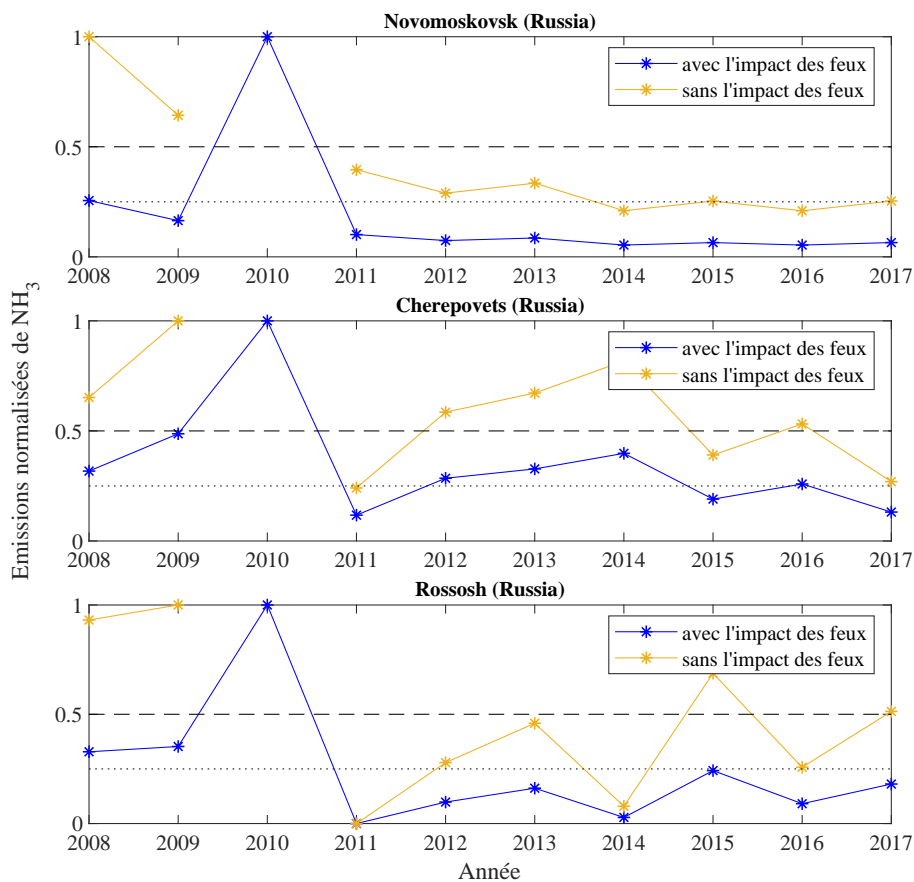


Figure 35 – Evolution temporelle des émissions de NH_3 de 3 sources ponctuelles situées à l'ouest de la Russie avec l'année 2010 fortement affectée par les feux (en bleu) et sans l'année 2010 (en jaune).

L'analyse de la source ponctuelle de Novomoskovsk suggérait que celle-ci ouvre en 2010 et ferme en 2011. La *figure 35* montre donc l'ouverture est un artefact dû à l'impact majeur des feux en 2010. Parmi les 248 sources, 3 autres semblent ouvrir et fermer durant la période d'activité de IASI. Il y a une source agricole située à Biezun (Pologne) et deux sources industrielles, une à Palembang (Indonésie) et une autre à Wucaiwan (Xinjiang, Chine).

- La source ponctuelle de Biezun est plus difficile à interpréter car il s'agit d'une source agricole, pour laquelle les émissions sont plus variables d'année en année. L'attribution à une ouverture et une fermeture peut être faussée par cette variabilité interannuelle. Les émissions calculées par IASI suggèrent une ouverture en 2015 et une fermeture en 2016 (voir *figure 36*). La seule information que nous avons pu trouver concernant l'exploitation agricole est la construction de deux bâtiments avec une capacité de 35 000 poules en octobre 2014 [57].
- La source de Palembang, d'après nos résultats, ouvrirait en 2014 et fermerait en 2016 (voir *figure 36*). Pourtant l'industrie semble toujours en activité [58]. La cause de la fermeture semble ici se justifier également par les feux importants qui ont eu lieu en 2015 en Indonésie [37].

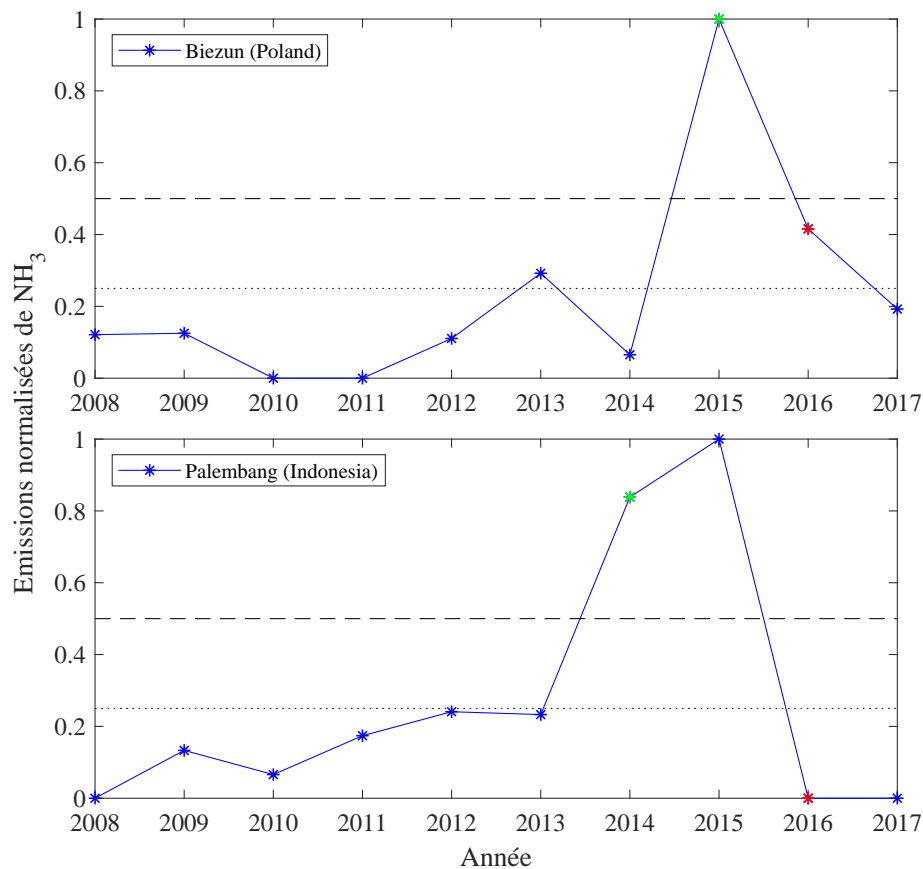


Figure 36 – Evolution temporelle des émissions de NH_3 de 2 sources ponctuelles. En haut : la source ponctuelle agricole située à Biezun (Pologne) qui ouvre en 2015 et ferme en 2016. En bas : la source ponctuelle industrielle située à Palembang (Indonésie) qui ouvre en 2014 et ferme en 2016. Les ouvertures sont représentées par les astérisques verts et les fermetures par les astérisques rouges.

- La source ponctuelle de Wucaiwan est une industrie de fertilisants. L'évolution temporelle des émissions indique que la source débute en 2016 et ferme en 2017 (voir *figure 37*). Les images aériennes de cette région à la *figure 38* montre que la construction de l'industrie a démarré en 2011. Dans les données IASI les émissions de NH_3 débutent en 2012 ce qui correspond à la mise en activité de l'usine. Cependant, les émissions restent faibles et n'atteignent un maximum qu'en 2016. L'ouverture n'est donc détectée que cette année-là. L'année suivante les émissions chutent ce qui suppose une fermeture de l'usine. Les informations trouvées indiquent que l'industrie a fermé ses portes suite à des accidents mortels [35].

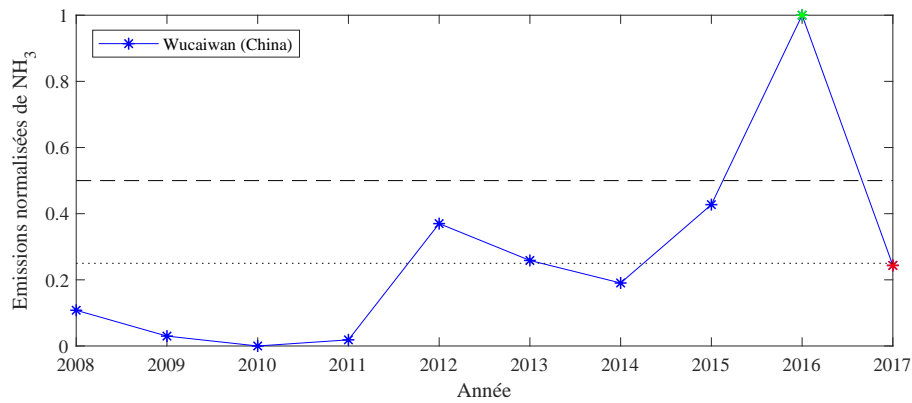


Figure 37 – Evolution temporelle des émissions de NH_3 de la source ponctuelle industrielle située à Wucaiwan (XJ, Chine). Elle ouvre en 2016 et ferme en 2017. L'ouverture est représentée par l'astérisque vert et la fermeture par l'astérisque rouge.



Figure 38 – Images aériennes de l'industrie de fertilisants à base de NH_3 à Wucaiwan (XJ, Chine) en 2010, en 2011 et en 2015. L'industrie, entourée en orange, apparaît en 2011. Les images sont tirées de Google Earth.

Le choix des seuils a été un choix arbitraire permettant de déterminer automatiquement une ouverture (fermeture) quand les émissions sont supérieures (inférieures) à la

moitié de la valeur maximale des émissions de la source ponctuelle en question. En choisissant un seuil trop bas (inférieur à 0,5), le nombre d'ouvertures et de fermetures est plus élevé car la variabilité de certaines sources ponctuelles est importante. Dans ce cas, le nombre d'identifications d'ouvertures/fermetures erronées serait probablement accru. Un seuil plus élevé limite quant à lui les fausses détections (comme certaines prises en exemple dans cette section), mais les fluctuations dues à des fermetures temporaires sont perdues. Or, ces informations sont aussi intéressantes à exploiter. Après l'application de différents seuils, nous avons donc défini que la valeur seuil optimale était de 0,5.

4 Analyse des émissions par pays

Après s'être attaché à analyser les séries temporelles de NH_3 à l'échelle de la source ponctuelle, cette deuxième partie du travail traite des émissions de 158 pays calculées à partir des 10 ans de mesures IASI. Pour chaque pays, les émissions totales sont calculées et comparées aux émissions EDGAR¹⁶. La comparaison fournie dans la section 4.1 ci-dessous nous amène à une révision empirique du temps de résidence moyen de NH_3 . Ensuite, l'écart entre les émissions dérivées des observations de IASI et celles de l'inventaire d'émission EDGAR a été étudié sur une base globale et nous discutons dans la section 4.2 les différences principales.

4.1 Comparaison des émissions nationales et détermination d'un nouveau temps de vie pour le NH_3

Les émissions IASI et EDGAR étudiées correspondent aux émissions totales de NH_3 des pays. Pour les émissions calculées à partir des colonnes totales de IASI, la méthodologie décrite à la section 2.3.2 est utilisée.

La *figure 39* compare les émissions de l'inventaire EDGAR à celles dérivées de IASI pour 90 pays¹⁷. Le temps de résidence considéré est de 12h comme dans [32]. La droite noire correspond à la droite de pente 1 qui passe par (0,0). Dès lors les pays situés au-dessus de celle-ci suggèrent une surestimation des émissions par EDGAR et ceux situés en-dessous une sous-estimation.

Le graphique obtenu révèle que les émissions de la plupart des pays sont sous-estimées par EDGAR. Seuls les pays d'Europe, certains pays d'Asie, dont la Chine, et quelques exceptions comme l'Afrique du Sud, l'Uruguay, le Chili, l'Iran et l'Australie ont des émissions plus importantes que EDGAR. Le bon accord entre les émissions IASI et EDGAR pour les pays d'Europe est encourageante et vraisemblablement expliquée en grande partie par le fait que ces pays rendent des rapports complets ce qui permet à EDGAR d'aboutir à de bonnes estimations via l'approche bottom-up. De plus, les facteurs d'émissions sont souvent calculés en se basant sur les pays européens.

Comme nous le rappelions, les émissions IASI sont calculées sur base d'un temps de vie unique de 12h comme pour les sources ponctuelles. Si l'on part du principe que l'inventaire EDGAR fournit des estimations correctes pour les pays d'Europe, nous pouvons obtenir un meilleur accord avec les mesures IASI en modifiant la valeur du temps de vie du NH_3 prise comme référence. Seuls les pays d'Europe centrale ont été choisis car les pays nordiques comme la Norvège et la Suède sont à des latitudes où la sensibilité de IASI n'est pas aussi bonne. Les pays de l'Est comme la Pologne et la Roumanie ont été exclus car les données de EDGAR pour ces pays semblent plus lacunaires. Les pays choisis pour cette "normalisation" sont donc la France, l'Italie, la Suisse, l'Espagne, la Belgique, les Pays-Bas, le Royaume-Uni, l'Irlande, l'Allemagne, l'Autriche, le Portugal et le Danemark.

16. Dans la suite du travail, on parlera d'*émissions EDGAR* pour désigner les émissions de NH_3 calculées par l'inventaire d'émissions EDGAR.

17. Ces pays sont les pays où la distribution mondiale des colonnes de NH_3 montrait les plus grandes concentrations.

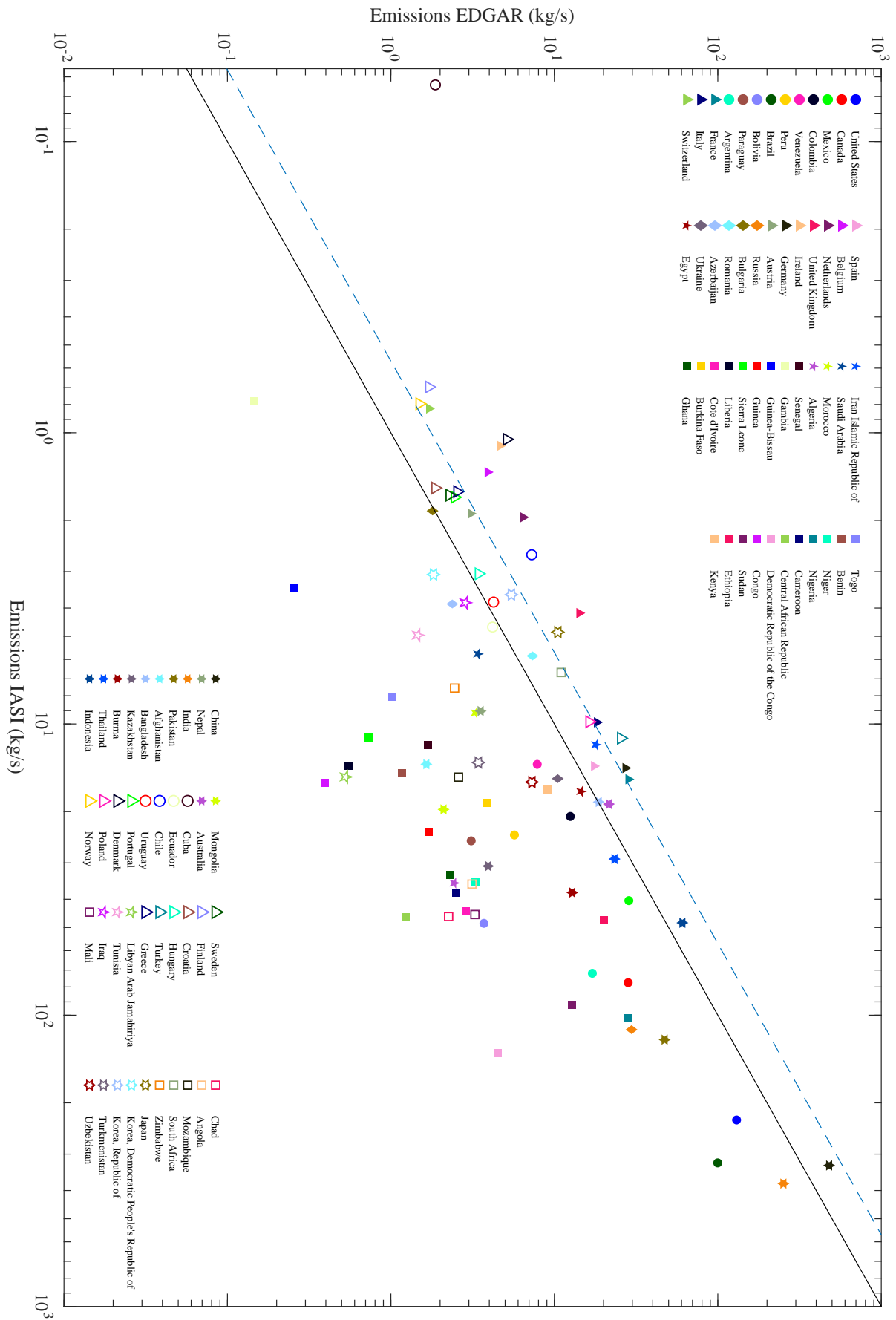


Figure 39 – Graphique des émissions EDGAR en fonction des émissions IASI pour une base nationale (symboles et couleurs). Les émissions sont exprimées en kg/s. La droite 1 : 1 est donnée en noir. La droite en pointillé bleu est la droite obtenue en traçant la régression linéaire entre les jeux de données pour quelques pays d'Europe pris en référence (voir texte).

Une régression linéaire entre les deux séries de données est calculée, elle est représentée en pointillé bleu dans la *figure 39*. A partir de l'équation de celle-ci, le temps de vie calculé vaut 7h. Le temps de résidence du NH_3 atmosphérique est presque divisé par deux par rapport à l'hypothèse initiale. Cette valeur semble en accord avec ce qui est dit dans [32] où ils suggèrent que le temps de vie est probablement inférieur à 12h. Les émissions IASI, calculées pour cette valeur de 12h, seraient donc toutes sous-estimées. C'est un résultat important car elles sont déjà plus susceptibles d'être sous-estimées par IASI puisqu'en fonction du contraste thermique, l'instrument peut être très peu sensible dans la basse atmosphère où le NH_3 est émis [32].

Dans la *figure 40*, les émissions sont calculées à partir des colonnes de NH_3 de IASI avec un temps de résidence de 12h (figure du haut) et de 7h (figure du bas). Dans ce cas-ci, elles sont exprimées en $\text{kg}/(\text{s cm}^2)$. Les émissions calculées avec le temps de vie plus court sont logiquement plus élevées. La figure permet de bien visualiser que les émissions de NH_3 sont très élevées en Inde et au Pakistan mais également en Afrique centrale. Pour l'Inde et le Pakistan c'est sans doute l'agriculture, le brûlage et l'utilisation d'eau non-traitée pour l'irrigation qui serait à l'origine de ces fortes émissions. Pour l'Afrique c'est plus vraisemblablement la déforestation et la culture sur brûlis qui en sont la cause.

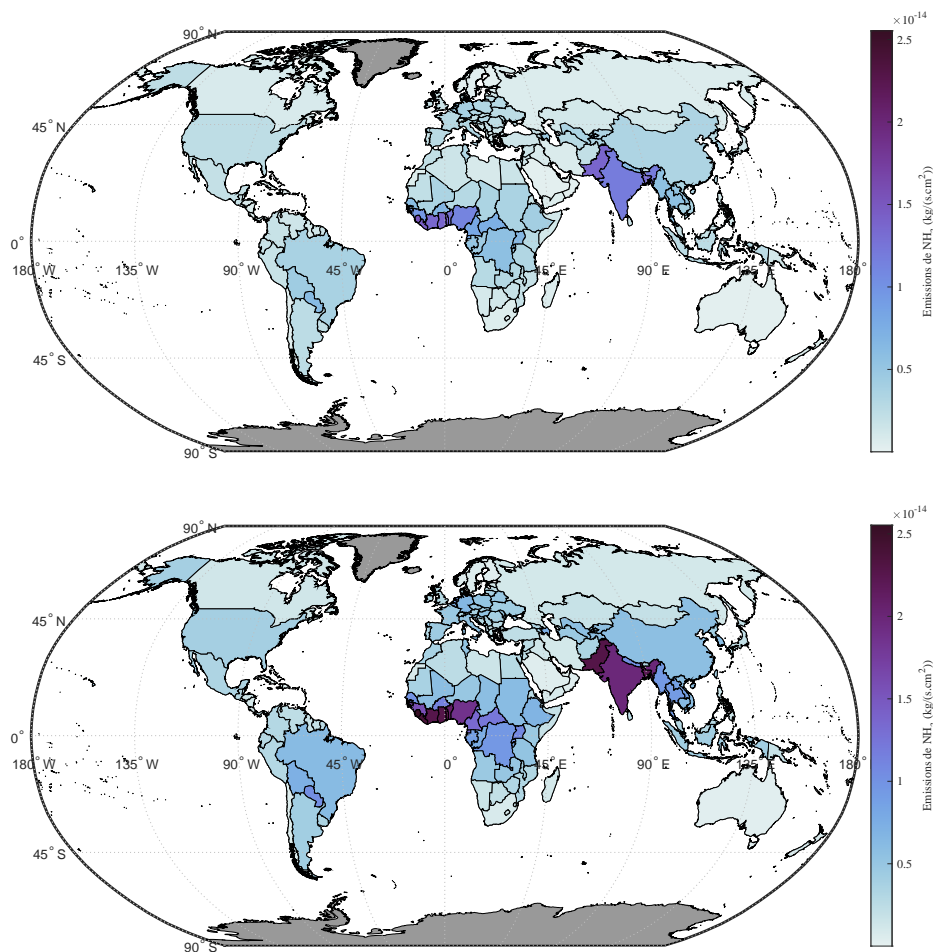


Figure 40 – Les émissions nationales de NH_3 calculées à partir des 10 ans de données IASI. Les émissions sont exprimées en $\text{kg}/(\text{s cm}^2)$. En haut : émissions calculées avec un temps de vie de 12h. En bas : émissions calculées avec un temps de vie de 7h.

4.2 Comparaison entre IASI et EDGAR

Afin de mettre en évidence les désaccords entre les émissions IASI et EDGAR, la différence entre les deux séries est portée sur une carte du monde (voir *figure 41*). Elle est calculée comme :

$$D = \frac{E^{\text{IASI}} - E^{\text{EDGAR}}}{E^{\text{EDGAR}}} \times 100$$

où D est le pourcentage de la différence entre IASI et EDGAR, E^{IASI} sont les émissions de NH_3 calculées à partir des émissions IASI avec l'hypothèse d'un temps de résidence de 12h et E^{EDGAR} sont les émissions de NH_3 calculées par EDGAR¹⁸.

De cette manière, les pays représentés en une teinte orange-rouge sont les pays où les émissions de EDGAR sont sous-estimées alors que les pays en une teinte bleue sont ceux où les émissions sont surestimées. Les observations faites au point précédent ressortent clairement de cette figure. Ainsi, la région européenne, la Chine et les autres pays sont ceux pour lesquels les émissions de l'inventaire sont plus grandes (en bleu). Dans les paragraphes qui suivent, les différentes régions sont discutées afin d'essayer de comprendre le contraste entre les émissions.

Il est d'abord important de rappeler que les feux, émetteurs de NH_3 par la combustion de biomasse, ne sont pas pris en compte dans EDGAR. La sous-estimation des émissions par EDGAR dans certaines régions du globe est attendue et pourrait donc être expliquée par cela. Les zones cerclées de vert sur la *figure 41* indiquent les régions où le nombre de feux par an est égal ou supérieur à 150. Ces données sur les feux proviennent de l'instrument de mesure MODIS¹⁹ (*Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer*) obtenues entre 2008 et 2017. Cet instrument de télédétection spatiale détecte le rayonnement IR émit par la Terre entre 0,4 et 14,4 cm^{-1} avec une résolution spatiale de 1 km au nadir [59].

Nous constatons que l'Afrique et l'Amérique du Sud sont des régions très affectées par les feux ce qui explique dès lors l'écart important entre IASI et EDGAR. L'Indonésie, l'Australie et Madagascar sont aussi touchés par de nombreux feux pourtant leurs émissions sont plus grandes du point de vue de EDGAR. Une raison pouvant justifier la sous-estimation des émissions dérivées de IASI serait le transport accru dans les zones côtières. Le transport étant plus substantiel, le NH_3 est plus vite transporté (le temps de résidence réel serait donc très inférieur à 12h) et les émissions calculées avec un temps de vie de 12h seraient par conséquent plus faibles. La contribution du transport horizontal pourrait également expliquer la surestimation de EDGAR dans les pays d'Amérique centrale et d'Europe qui ont beaucoup de zones côtières. Les émissions plus grandes de l'inventaire d'émission pour les pays d'Europe peut aussi s'expliquer par le fait que IASI est moins sensible dans cette région de la planète et manque une partie du NH_3 réellement émis. De la même façon, cette perte de sensibilité aux hautes latitudes affecte les émissions IASI au Canada et en Russie où leur grande superficie contribue à accentuer les différences. Les émissions de EDGAR sont plus élevées pour ceux-ci. Nous l'expliquons par l'occurrence de feux importants dans ces deux pays. Ils se produisent sur la totalité du territoire et pas dans une région précise (ce qui explique le peu de *cercles verts* dans ces pays) mais

18. Données nationales de l'année 2012.

19. MODIS se trouve sur les satellites Terra et Aqua gérés par la NASA.

constituent une part importante des émissions à l'échelle nationale.

Les émissions des pays en développement ont tendance à être sous-estimées par EDGAR. Une explication simple à cela serait le manque de ressources de ces pays pour fournir des rapports complets nécessaires à l'élaboration d'inventaires d'émission. Une autre raison de la sous-estimation en général peut venir des émissions IASI qui ont été calculées à partir des mesures de l'orbite matinale. Les émissions calculées sont considérées comme représentatives de toute la journée alors que les concentrations de NH_3 sont plus faibles à cette période de la journée [32].

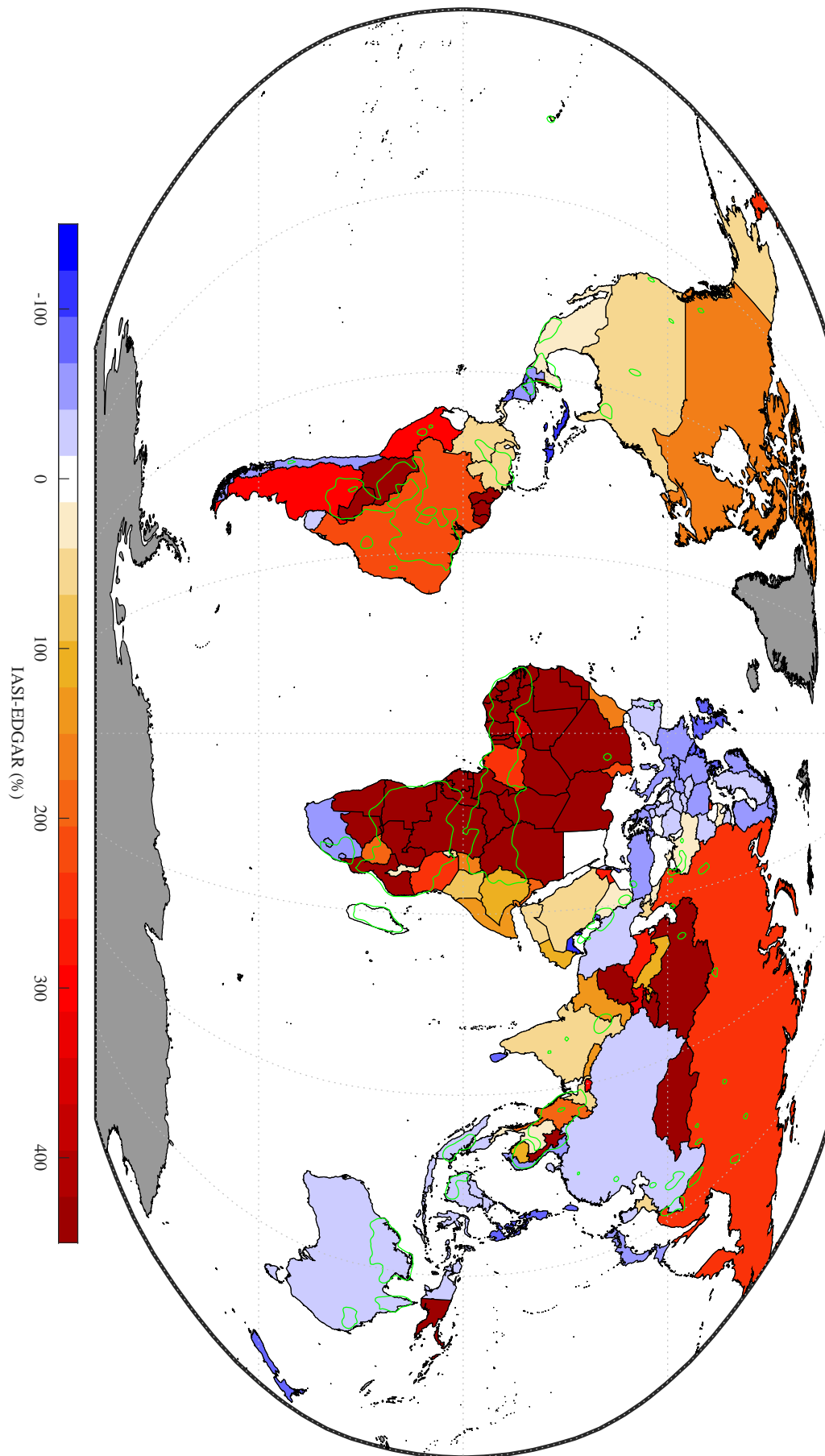


Figure 41 – Différence entre les émissions IASI et les émissions EDGAR exprimée en % pour les 158 pays. Les contours en vert indiquent les zones où le nombre de feux moyen annuel est égal ou supérieur à 150.

5 Tendances annuelles des émissions de NH_3

Dans cette dernière partie, les tendances des émissions de six pays/régions sont étudiées. L'aspect des tendances est intéressant pour IASI même si les émissions sont biaisées (par rapport au choix d'un temps de vie fixe) les tendances révèlent une évolution concrète. Par ailleurs les tendances sont importantes dans un contexte de surveillance de l'évolution du système atmosphérique et du respect des réglementations en vigueur dans chaque pays.

Dans cette partie, les évolutions temporelles des émissions IASI et des émissions EDGAR sont donc exploitées et comparées. Dans le cas présent, les émissions IASI sont les émissions annuelles de NH_3 par pays de 2008 à 2017 et les émissions EDGAR sont les émissions annuelles de NH_3 par pays de 1997 à 2012. Les émissions annuelles des sources ponctuelles (voir section 2) du pays en question sont aussi reprises et sommées toutes ensembles. Ces données sont à prendre avec précaution car elles ne représentent pas les émissions de toutes les sources ponctuelles du pays mais uniquement celles identifiées par IASI (la somme ne représente parfois que la somme de 3 ou 4 sources). Par conséquent, elles ne sont données qu'à titre indicatif.

Dans chacun des graphiques ci-dessous pour chacun des pays, on a effectué une régression linéaire sur les trois séries de données. Les émissions sont normalisées à celle de l'année où elles sont plus élevées de la même manière que dans la section 3. Les pentes de ces droites sont exprimées en pourcentage ainsi que l'erreur sur celle-ci. Toutes les émissions calculées à partir des mesures IASI sont obtenues en faisant l'hypothèse que le temps de vie du NH_3 est de 12h.

5.1 Etats-Unis

Les résultats à la section 4 suggèrent que les Etats-Unis émettent en moyenne 229,0 kg/s de NH_3 . Cette valeur moyenne est calculée à partir des 10 ans de données IASI et avec l'hypothèse de $\tau = 12\text{h}$. Une grande partie des émissions de NH_3 du pays proviennent du secteur agricole, en particulier les élevages, qui occupe presque la moitié du territoire américain [60]. Les trois tendances de la *figure 42* indiquent une stagnation ou une légère augmentation (EDGAR) dans les émissions nationales. Les émissions dérivées de IASI sont sujettes à une variabilité importante. Cela peut être dû au fait que les émissions de NH_3 provenant en grande partie de l'agriculture sont influencées par les facteurs météorologiques et climatiques.

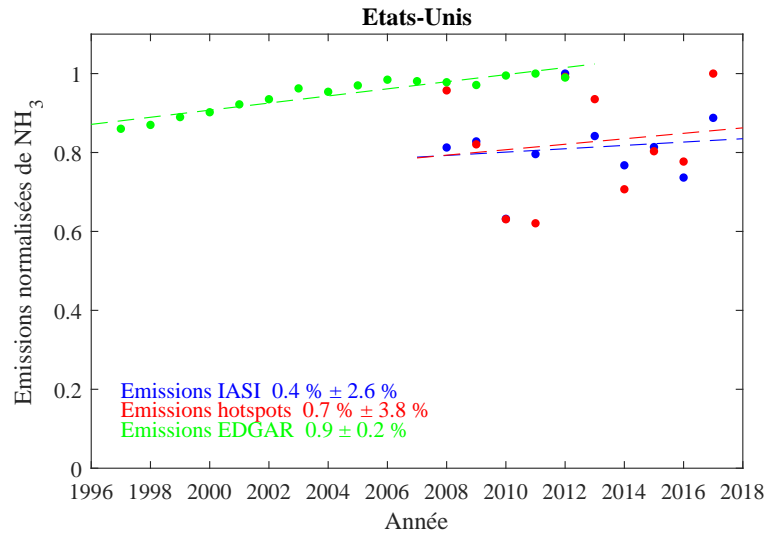


Figure 42 – Tendances des émissions normalisées de NH_3 pour les Etats-Unis entre 1997 et 2017. En bleu : les émissions IASI, en rouge : les émissions IASI des sources ponctuelles du pays et en vert : les émissions EDGAR.

5.2 Pérou

Comme nous l'avons vu dans la section 3, le Pérou a vu l'apparition de sources ponctuelles majeures ces dernières années. Les tendances des émissions du Pérou sont divergentes et reflètent ceci (voir *figure 43*). Plus spécifiquement, les émissions EDGAR révèlent une augmentation significative des émissions ($1,6 \pm 0,5\%$) alors que les émissions IASI suggèrent une diminution marquée ($-4,0 \pm 4,5\%$). Cette diminution ne semble pas liée aux feux qui ne montrent pas de tendances particulières sur les 10 ans (voir *figure 44*). Les sources ponctuelles sont causées par des élevages de poulets et leur tendance indiquent une nette tendance positive de $6,2 \pm 3,9\%$ par an. L'augmentation de ces émissions semble cohérente vu que plus de la moitié des sources a débuté entre 2011 et 2012 (voir la *figure 29*, à la section 3.1, qui illustre l'augmentation d'élevage de poulets dans le pays).

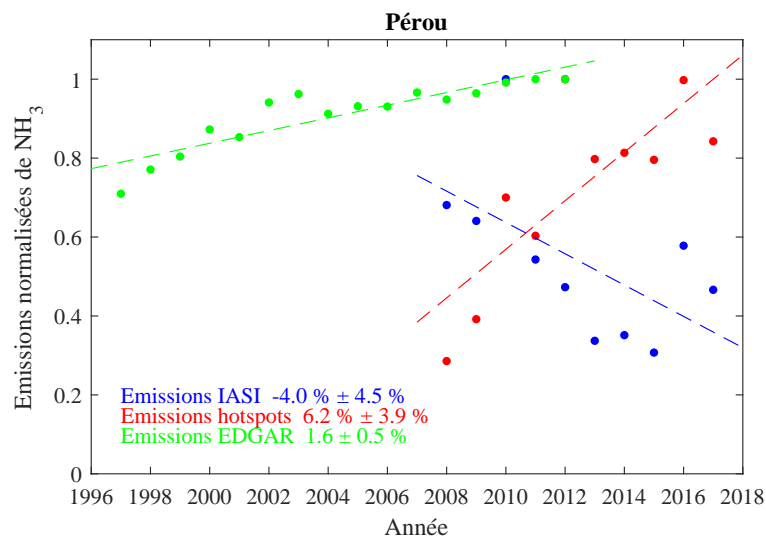


Figure 43 – Tendances des émissions normalisées de NH_3 pour le Pérou entre 1997 et 2017. En bleu : les émissions IASI, en rouge : les émissions IASI des sources ponctuelles du pays et en vert : les émissions EDGAR.

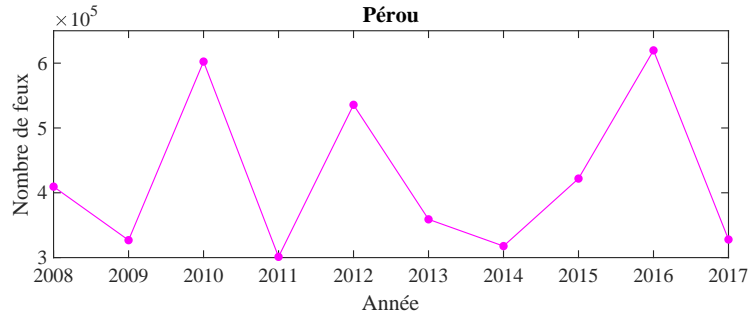


Figure 44 – Nombre de feux au Pérou entre 2008 et 2017 calculé à partir des données MODIS.

5.3 Russie

La Russie a des tendances très marquées qui indiquent toutes une diminution des émissions. Elles sont de $-1,5 \pm 0,4 \%$ par an dans les données EDGAR et plus substantielles dans les mesures IASI ($-3,8 \pm 2,0 \%$). Il faut souligner que les régressions linéaires à partir des données IASI ont été faites sans tenir compte de l'année 2010 fortement affectée par les feux qui ont touché le pays. En ce qui concerne les données des émissions de NH_3 par IASI il faut être prudent dans leurs utilisations sachant que l'erreur sur les mesures des colonnes de NH_3 en Russie est élevée en raison des concentrations faibles. Cette erreur sur les colonnes se propage naturellement sur les émissions et vraisemblablement en partie sur les tendances. Il est toutefois intéressant de constater que les tendances vont dans le même sens que EDGAR et que la valeur trouvée est significative en regard de la déviation standard. Il est également étonnant de constater que les sources ponctuelles suivent une tendance similaire.

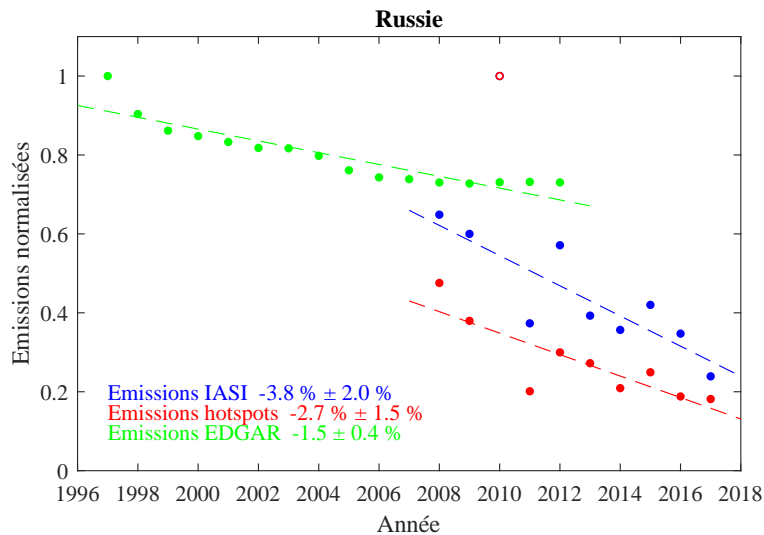


Figure 45 – Tendances des émissions normalisées de NH_3 pour la Russie entre 1997 et 2017. En bleu : les émissions IASI, en rouge : les émissions IASI des sources ponctuelles du pays et en vert : les émissions EDGAR.

5.4 Europe

La *figure 46* suggère des émissions stables en Europe²⁰ pour la période de mesure IASI. La tendance retrouvée est légèrement négative mais non significative ($-0,4 \pm 2,2 \%$). Elle est cependant cohérente avec celle qui ressort de l'inventaire EDGAR pour la période démarrant en 1997 ($-0,5 \pm 0,1\%$). Ces tendances confirment que les émissions IASI et les émissions EDGAR sont concordantes en Europe comme il a été suggéré à la section 4.

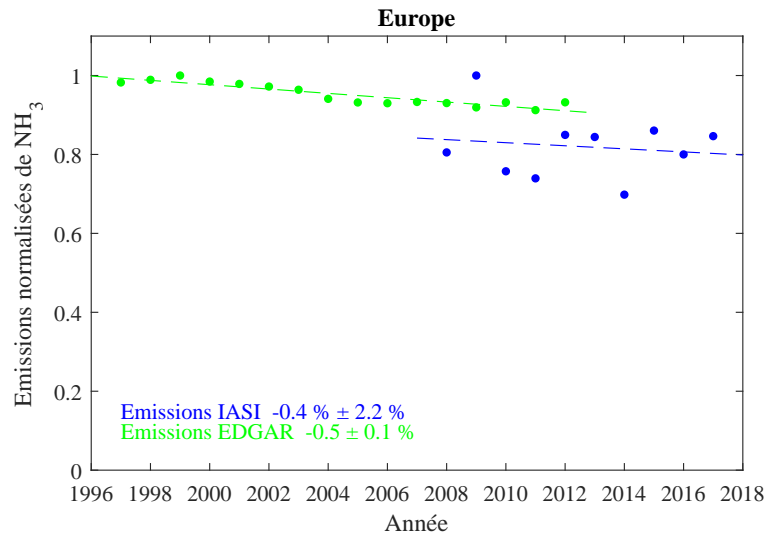


Figure 46 – Tendances des émissions normalisées de NH₃ pour l'Europe entre 1997 et 2017. En bleu : les émissions IASI et en vert : les émissions EDGAR.

5.5 Chine

D'après nos calculs, la Chine émet en moyenne 328,0 kg/s de NH₃. Toutes les tendances montrent une augmentation des émissions. La Chine est un pays en développement et se caractérise par de nombreuses ouvertures de sources ponctuelles (voir section 3). Dans ce cas-ci, les sources ponctuelles peuvent être représentatives de la tendance du pays car elles sont nombreuses. L'augmentation des émissions du pays sont considérables et nous relevons un bon accord entre la tendance obtenue par l'inventaire ($2,6 \pm 0,3 \%$) et celle déduite des mesures IASI ($3,1 \pm 2,6 \%$). Elles sont probablement liées aux industries de fertilisants mais également aux terres agricoles en augmentation dans le pays [61]. Les sources ponctuelles révèlent la tendance la plus importante, de $8,8 \pm 3,6 \%$ par an.

20. Les pays pris en compte sont la France, l'Italie, la Suisse, l'Espagne, la Belgique, les Pays-Bas, le Royaume-Uni, l'Irlande, l'Allemagne, l'Autriche, le Portugal et le Danemark.

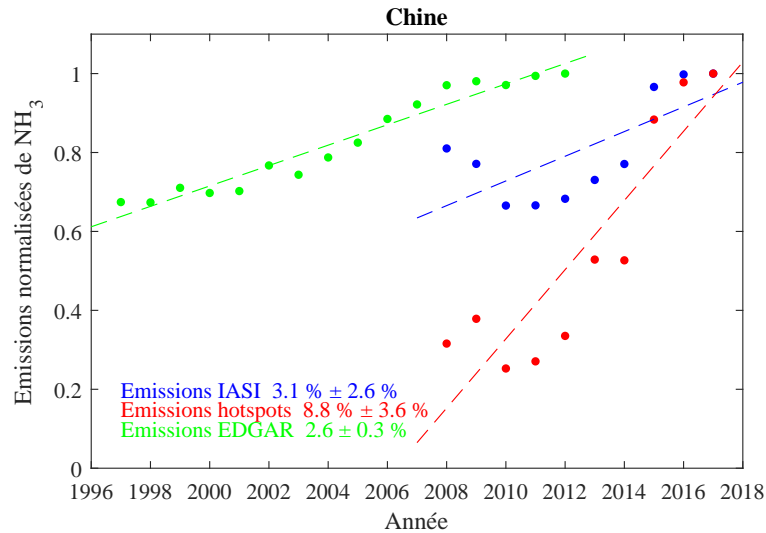


Figure 47 – Tendances des émissions normalisées de NH_3 pour la Chine entre 1997 et 2017. En bleu : les émissions IASI, en rouge : les émissions IASI des sources ponctuelles du pays et en vert : les émissions EDGAR.

5.6 Inde

L'Inde est le pays qui, d'après nos estimations, émet le plus de NH_3 avec une moyenne de 378,6 kg/s. Pour ce pays, les tendances dans les émissions IASI et les émissions EDGAR sont opposées. Les données obtenues par IASI pointent une diminution ($2,4 \pm 1,2 \%$) pour la période 2008-2017, là où EDGAR indique une augmentation ($2,1 \pm 0,4 \%$) sur toute la période considérée, y compris les années communes avec IASI. Il est intéressant de faire remarquer que la diminution des émissions vue par IASI est due à la réduction des émissions dans le sud du pays. La disparité des émissions entre le nord et le sud de l'Inde est en effet très marquée et augmente depuis ces dernières années (voir *figure 49*).

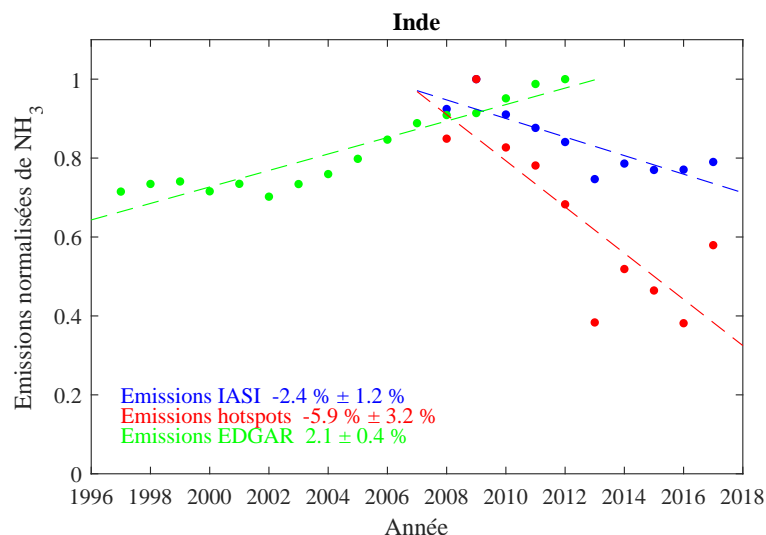


Figure 48 – Tendances des émissions normalisées de NH_3 pour l'Inde entre 1997 et 2017. En bleu : les émissions IASI, en rouge : les émissions IASI des sources ponctuelles du pays et en vert : les émissions EDGAR.

Entre 2008 et 2012 les émissions entre les deux parties du pays sont similaires. Les émissions entre 2013 et 2017 montrent une nette différence. La *figure 49* (à droite) représente

la différence entre les deux cartes de la *figure 49* (à gauche). Nous pouvons constater que le sud a vu ses émissions diminuer ces 5 dernières années alors que le nord montre une hausse des émissions. Au niveau national, la réduction des émissions du sud de l'Inde l'emporte sur l'augmentation au nord ce qui aboutit à une baisse en général pour le pays.

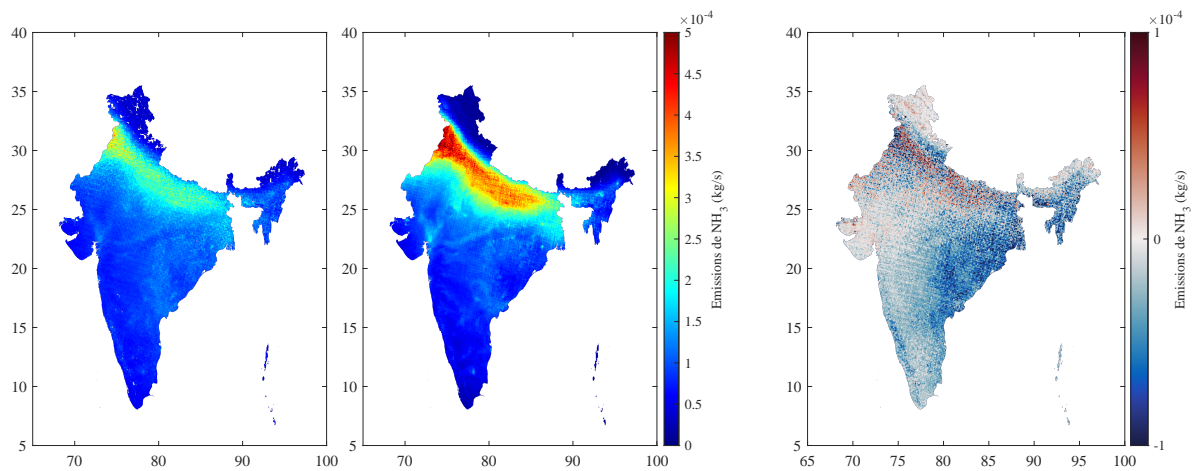


Figure 49 – A gauche : distribution spatiale sur une grille de $0,01^\circ \times 0,01^\circ$ des émissions moyennes de NH_3 , mesurées par IASI, en Inde pour 2008-2012 (à gauche) et 2013-2017 (à droite). A droite : différence entre les émissions moyennes de NH_3 de 2013-2017 et les émissions moyennes de NH_3 de 2008-2012.

6 Conclusion

Le travail réalisé a permis d'analyser des données de NH_3 sur une durée de 10 ans. Aucun autre instrument que IASI n'a pu fournir autant de données pour le NH_3 . Les résultats obtenus sont donc intéressants non seulement pour les comparer aux inventaires d'émission mais aussi pour avoir un *état des lieux* des émissions de NH_3 . Dans le futur, ces résultats pourront être confrontés aux données des 10 prochaines années vu que la relève des instruments IASI est déjà en développement.

Au cours de ce mémoire, les émissions de sources ponctuelles et de pays ont été analysées. L'étude des sources ponctuelles a permis d'analyser la capacité de IASI à suivre l'évolution des sources ponctuelles. Les résultats obtenus semblent en accord avec la réalité. Cependant, certains événements, comme les feux, affectent les évolutions temporelles et par conséquent biaisent les résultats. Nous avons aussi montré que les tendances au niveau des sources ponctuelles agricoles restent difficiles à analyser à cause de la variabilité saisonnière. C'est pourquoi les ruptures détectées dans leurs séries temporelles doivent être prises avec précaution.

Ensuite, la comparaison entre les émissions IASI et les émissions EDGAR au niveau mondial semble montrer que l'inventaire d'émission sous-estime les émissions de la plupart des pays. Le fait que EDGAR ne prenne pas en compte les émissions de NH_3 issues de la combustion de la biomasse explique, pour une grande partie des pays, l'écart important avec les émissions de IASI. D'une manière plus générale, il semble que les mesures de l'instrument IASI apportent des informations nouvelles, qu'il serait intéressant de prendre en compte pour améliorer les inventaires d'émission. C'est important en particulier car les inventaires d'émission sont à la base des modèles utilisés pour la prévision de notre atmosphère future.

La dernière partie du travail a permis d'analyser la tendances des émissions annuelles de plusieurs pays répartis sur les tous continents et avec des niveaux de développement différents. Les résultats ont montré que les pays développés, comme les Etats-Unis et ceux de la région européenne, ont des émissions de NH_3 qui stagnent. Alors que les pays en développement, comme la Chine, montrent une nette augmentation. Ces tendances représentent la réalité car elles se basent sur les mesures IASI collectées pendant 10 ans. Elles sont par conséquent un bon indicateur pour quantifier la mise en place de directives éventuelles destinées à la réduction des émissions de NH_3 .

L'instrument IASI apporte sans aucun doute des informations cruciales pour la surveillance des émissions de NH_3 dans l'atmosphère. Les mesures de IASI sont un atout qu'il faut continuer d'exploiter afin de réduire les incertitudes dans les émissions de NH_3 . Le contrôle des émissions de NH_3 étant primordiale pour d'un côté diminuer la pollution de l'air mais aussi préserver la biodiversité et mieux évaluer les changements climatiques.

Références

- [1] J. W. Erisman, J. N. Galloway, N. B. Dise, M. A. Sutton, A. Bleeker, B. Grizzetti, A. M. Leach, and W. de Vries, *Nitrogen : too much of a vital resource*. WWF Netherlands, 2015.
- [2] J. W. Erisman, J. N. Galloway, S. Seitzinger, A. Bleeker, and K. Butterbach-Bahl, “Reactive nitrogen in the environment and its effect on climate change,” *Current Opinion in Environmental Sustainability*, vol. 3, no. 5, pp. 281–290, 2011.
- [3] D. J. Jacob, *Introduction to Atmospheric Chemistry*. Princeton University Press, 1999.
- [4] P. M. Groffman and E. J. Rosi-Marshall, *Fundamentals of Ecosystem Science*. Academic Press, 2012.
- [5] D. Fowler, M. Coyle, U. Skiba, M. A. Sutton, J. N. Cape, S. Reis, L. J. Sheppard, A. Jenkins, B. Grizzetti, J. N. Galloway, P. Vitousek, A. Leach, A. F. Bouwman, K. Butterbach-Bahl, F. Dentener, D. Stevenson, M. Amann, and M. Voss, “The global nitrogen cycle in the twenty-first century,” *Philosophical Transactions of the Royal Society B : Biological Sciences*, vol. 368, no. 1621, 2013.
- [6] J. W. Erisman, M. A. Sutton, J. N. Galloway, Z. Klimont, and W. Winiwarter, “How a century of ammonia synthesis changed the world,” *Nature Geoscience*, vol. 1, no. 10, pp. 636–639, 2008.
- [7] J. W. Erisman, J. N. Galloway, S. Seitzinger, A. Bleeker, N. B. Dise, A. M. R. Petrescu, A. M. Leach, and W. de Vries, “Consequences of human modification of the global nitrogen cycle,” *Philosophical Transactions of the Royal Society B : Biological Sciences*, vol. 368, no. 1621, 2013.
- [8] L. Zhu, D. K. Henze, J. O. Bash, K. E. Cady-Pereira, M. W. Shephard, M. Luo, and S. L. Capps, “Sources and impacts of atmospheric NH₃ : Current understanding and frontiers for modeling, measurements, and remote sensing in North America,” *Current Pollution Reports*, vol. 1, no. 2, pp. 95–116, 2015.
- [9] OMS (organisation Mondiale de la Santé, “Qualité de l’air ambiant et santé.” [https://www.who.int/fr/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/fr/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health), 2008. Consulté le 12/04/2019.
- [10] A. Bleeker, W. K. Hicks, F. Dentener, J. N. Galloway, and J. W. Erisman, “N deposition as a threat to the world’s protected areas under the convention on biological diversity,” *Environmental Pollution*, vol. 159, no. 10, pp. 2280–2288, 2011.
- [11] M. Van Damme, R. W. Kruit, M. Schaap, L. Clarisse, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, E. Dammers, A. Dolman, and J. Erisman, “Evaluating 4 years of atmospheric ammonia (NH₃) over europe using IASI satellite observations and LOTOS-EUROS model results,” *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, vol. 119, no. 15, pp. 9549–9566, 2014.
- [12] J. W. Erisman, A. Bleeker, J. N. Galloway, and M. S. Sutton, “Reduced nitrogen in ecology and the environment,” *Environmental Pollution*, vol. 150, no. 1, pp. 140–149, 2007.
- [13] European Environment Agency (EEA), *European Union emission inventory report 1990–2015 under the UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution (LRTAP)*. 2018.

- [14] FAO (Organisation des Nations Unies pour l'alimentation et l'agriculture), "Engrais." <http://www.fao.org/faostat/fr/#data/EF/visualize>. Consulté le 15/04/2019.
- [15] S. N. Behera, M. Sharma, V. P. Aneja, and R. Balasubramanian, "Ammonia in the atmosphere : a review on emission sources, atmospheric chemistry and deposition on terrestrial bodies," *Environmental Science and Pollution Research*, vol. 20, no. 11, pp. 8092–8131, 2013.
- [16] S. E. Bauer, D. Koch, N. Unger, S. M. Metzger, D. T. Shindell, and D. G. Streets, "Nitrate aerosols today and in 2030 : importance relative to other aerosol species and tropospheric ozone," *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, vol. 7, no. 2, pp. 5553–5593, 2007.
- [17] W. Reno, *Warfare in Independent Africa (New Approaches to African History)*. Cambridge University Press, 2011.
- [18] S. Khorram, F. H. Koch, C. F. van der Wiele, and S. A. C. Nelson, "Introduction," in *Remote Sensing*, pp. 1–15, Springer US, 2012.
- [19] W. Menzel, D. Tobin, and H. Revercomb, "Infrared remote sensing with meteorological satellites," in *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, pp. 193–264, Elsevier, 2016.
- [20] J. P. Burrows, P. Borrell, and U. Platt, eds., *The Remote Sensing of Tropospheric Composition from Space*. Springer Berlin Heidelberg, 2011.
- [21] C. Clerbaux, J. Hadji-Lazaro, S. Turquety, M. George, A. Boynard, M. Pommier, S. Safieddine, P.-F. Coheur, D. Hurtmans, L. Clarisse, and M. Van Damme, "Tracking pollutants from space : Eight years of IASI satellite observation," *Comptes Rendus Geoscience*, vol. 347, no. 3, pp. 134–144, 2015.
- [22] C. Clerbaux, A. Boynard, L. Clarisse, M. George, J. Hadji-Lazaro, H. Herbin, D. Hurtmans, M. Pommier, A. Razavi, S. Turquety, C. Wespes, and P.-F. Coheur, "Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder," *Atmospheric Chemistry and Physics*, vol. 9, no. 16, pp. 6041–6054, 2009.
- [23] D. G. Andrews, *An Introduction to Atmospheric Physics*. Cambridge University Press, 2010.
- [24] F. Hilton, R. Armante, T. August, C. Barnet, A. Bouchard, C. Camy-Peyret, V. Capelle, L. Clarisse, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, A. Collard, C. Crevoisier, G. Dufour, D. Edwards, F. Faijan, N. Fourrié, A. Gambacorta, M. Goldberg, V. Guidard, D. Hurtmans, S. Illingworth, N. Jacquinet-Husson, T. Kerzenmacher, D. Klaes, L. Lavanant, G. Masiello, M. Matricardi, A. McNally, S. Newman, E. Pavelin, S. Payan, E. Péquignot, S. Peyridieu, T. Phulpin, J. Remedios, P. Schlüssel, C. Serio, L. Strow, C. Stubenrauch, J. Taylor, D. Tobin, W. Wolf, and D. Zhou, "Hyperspectral earth observation from IASI : Five years of accomplishments," *Bulletin of the American Meteorological Society*, vol. 93, no. 3, pp. 347–370, 2012.
- [25] EUMETSAT (European Organisation for the exploitation of Meteorological Satellites. <https://www.eumetsat.int/website/home/Satellites/CurrentSatellites/Metop/index.html>. Consulté le 18/04/2019.
- [26] C. Clerbaux, S. Turquety, and P. Coheur, "Infrared remote sensing of atmospheric composition and air quality : Towards operational applications," *Comptes Rendus Geoscience*, vol. 342, no. 4-5, pp. 349–356, 2010.

- [27] L. Clarisse, C. Clerbaux, F. Dentener, D. Hurtmans, and P.-F. Coheur, “Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations,” *Nature Geoscience*, vol. 2, no. 7, pp. 479–483, 2009.
- [28] S. Whitburn, M. Van Damme, J. W. Kaiser, G. R. van der Werf, S. Turquety, D. Hurtmans, L. Clarisse, C. Clerbaux, and P.-F. Coheur, “Ammonia emissions in tropical biomass burning regions : Comparison between satellite-derived emissions and bottom-up fire inventories,” *Atmospheric Environment*, vol. 121, pp. 42–54, 2015.
- [29] M. Crippa, D. Guizzardi, M. Muntean, E. Schaaf, F. Dentener, J. A. van Aardenne, S. Monni, U. Doering, J. G. J. Olivier, V. Pagliari, and G. Janssens-Maenhout, “Gridded emissions of air pollutants for the period 1970–2012 within EDGAR v4.3.2,” *Earth System Science Data*, vol. 10, no. 4, pp. 1987–2013, 2018.
- [30] G. Janssens-Maenhout, V. Pagliari, D. Guizzardi, and M. Muntean, “Global emission inventories in the emission database for global atmospheric research (edgar) - manual (i),” *European Commission - Institute for Environment and Sustainability (Joint Research Centre)*, 2013.
- [31] EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research). https://edgar.jrc.ec.europa.eu/overview.php?v=432_AP. Consulté le 19/04/2019.
- [32] M. Van Damme, L. Clarisse, S. Whitburn, J. Hadji-Lazaro, D. Hurtmans, C. Clerbaux, and P.-F. Coheur, “Industrial and agricultural ammonia point sources exposed,” *Nature*, vol. 564, no. 7734, pp. 99–103, 2018.
- [33] L. Clarisse, M. V. Damme, W. Gardner, P.-F. Coheur, C. Clerbaux, S. Whitburn, J. Hadji-Lazaro, and D. Hurtmans, “Atmospheric ammonia (NH₃) emanations from lake natron’s saline mudflats,” *Scientific Reports*, vol. 9, no. 1, 2019.
- [34] FAO (Organisation des Nations Unies pour l’alimentation et l’agriculture), “Production de poulets au pérou.” <http://www.fao.org/faostat/fr/#data/QA/visualize>. Consulté le 05/05/2019.
- [35] <https://baike.baidu.com/item/%E6%96%B0%E7%96%86%E5%AE%9C%E5%8C%96%E5%8C%96%E5%B7%A5%E6%9C%89%E9%99%90%E5%85%AC%E5%8F%B8/13835349>. Consulté le 31/05/2019.
- [36] “Azot chemical plant in Rustavi shuts down for a month.” <https://dfwatch.net/azot-chemical-plant-in-rustavi-shuts-down-for-a-month-40618>, 2016. Consulté le 15/05/2019.
- [37] R. A. Chisholm, L. S. Wijedasa, and T. Swinfield, “The need for long-term remedies for indonesia’s forest fires,” *Conservation Biology*, vol. 30, no. 1, pp. 5–6, 2016.
- [38] “Lifeco shuts Marsa el-Brega urea unit on Libya unrest - Yara.” <https://www.icis.com/explore/resources/news/2011/02/21/9437186/lifeco-shuts-marsa-el-brega-urea-unit-on-libya-unrest-yara/>, 2011. Consulté le 15/05/2019.
- [39] “Interagro to close down four fertilizers factories by april.” <https://www.romania-insider.com/interagro-to-close-down-four-fertilizers-factories-by-april>, 2011. Consulté le 15/05/2019.
- [40] “Romania’s interagro closes last of six fertilizer units.” <https://www.icis.com/explore/resources/news/2011/04/12/9451925/romania-s-interagro-closes-last-of-six-fertilizer-units/>, 2011. Consulté le 15/05/2019.

- [41] Phosagro. <https://www.phosagro.com/about/history/>. Consulté le 14/05/2019.
- [42] EuroChem. <http://www.eurochemgroup.com/en/who-we-are/history/>. Consulté le 14/05/2019.
- [43] National Chemical Group. <http://nchg.ru/en/activity/production/>. Consulté le 14/05/2019.
- [44] Gazprom. <http://salavat-neftekhim.gazprom.com/about/working/applying/>. Consulté le 14/05/2019.
- [45] Togliattiazot. https://toaz.ru/eng/about_eng/document2623.phtml?prod=6#ep2001. Consulté le 14/05/2019.
- [46] E. Baladi, “General fertilizers company : From syrian stumbling and iranian competition to russian takeover.” <https://english.enabbaladi.net/archives/2019/01/general-fertilizers-company-from-syrian-stumbling-and-iranian-competition-to-russian-takeover/>, 2019. Consulté le 15/05/2019.
- [47] “2013 chemical accident in Horlivka.” https://en.wikipedia.org/wiki/2013_Chemical_accident_in_Horlivka, 2019. Consulté le 14/05/2019.
- [48] “CF expansion project complete.” <https://www.weeklycitizen.com/news/20170327/cf-expansion-project-complete>, 2017. Consulté le 17/05/2019.
- [49] R. Nickel, “RPT-CF industries plant down longer than planned due to blast.” <https://www.reuters.com/article/cfindustries-explosion/cf-industries-plant-down-longer-than-planned-due-to-blast-idUSL2N0EU1EU20130619>, 2013. Consulté le 17/05/2019.
- [50] CF Industries, “CF industries announces start-up of new ammonia plant at donaldsonville nitrogen complex.” <http://www.sn1.com/IRW/file/4533245/Index?KeyFile=36408492>, 2016. Consulté le 17/05/2019.
- [51] V. R. EZ, “Pequiven paralizada por mala gestión oficialista.” <http://www.venezuelaalodia.com/2018/01/26/pequiven-paralizada-mala-gestion-oficialista/>, 2018. Consulté le 17/05/2019.
- [52] M. Delamarche, “La crise du nickel fait ses premières victimes.” <https://www.usinenouvelle.com/article/la-crise-du-nickel-fait-ses-premieres-victimes.N376574>, 2016. Consulté le 20/05/19.
- [53] I. D. Torres, “Cuba looks to expand its open pit nickel mines.” <https://havanatimes.org/diaries/cuba-looks-to-expand-its-open-pit-nickel-mines/>, 2017. Consulté le 17/05/2019.
- [54] “Cubaniquel busca modernizar las plantas de moa para llevar la producción a 50.000 toneladas.” http://www.diariodecuba.com/cuba/1524570391_38915.html, 2018. Consulté le 17/05/2019.
- [55] M. Frank, “Cuba closes oldest nickel processing plant.” <https://www.reuters.com/article/metals-cuba-nickel/cuba-closes-oldest-nickel-processing-plant-idUSL1E8NS1EQ20121228>, 2012. Consulté le 17/05/2019.
- [56] Y. R’Honi, L. Clarisse, C. Clerbaux, D. Hurtmans, V. Duflot, S. Turquety, Y. Ngadi, and P.-F. Coheur, “Exceptional emissions of NH₃ and HCOOH in the 2010 Russian wildfires,” *Atmospheric Chemistry and Physics*, vol. 13, no. 8, pp. 4171–4181, 2013.

- [57] <http://bip.biezun.nv.pl/a,16861,zawiadomienie-o--zakonczeniupostepowania-dla-przedsiwzieca-budowy-ferwy-dobruj-w-mwilewo.html>. Consulté le 20/05/2019.
- [58] PT Pupuk Sriwidjaja Palembang, “Annual report 2017.” <http://www.pusri.co.id/eng/report-annual-report/>. Consulté le 15/05/2019.
- [59] D. Chen, J. M. C. Pereira, A. Masiero, and F. Pirotti, “Mapping fire regimes in china using MODIS active fire and burned area data,” *Applied Geography*, vol. 85, pp. 14–26, 2017.
- [60] FAO (Organisation des Nations Unies pour l’alimentation et l’agriculture), “Données - etats unis d’amérique.” <http://www.fao.org/faostat/fr/#country/231>. Consulté le 13/05/2019.
- [61] FAO (Organisation des Nations Unies pour l’alimentation et l’agriculture), “Utilisation des terres.” <http://www.fao.org/faostat/fr/#data/RL/visualize>. Consulté le 24/05/2019.