



HAL
open science

Étude de la pollution atmosphérique en Chine par modélisation et télédétection

Mathieu Lachatre

► **To cite this version:**

Mathieu Lachatre. Étude de la pollution atmosphérique en Chine par modélisation et télédétection. Sciences de l'environnement. Sorbonne Université, 2018. Français. NNT : . tel-02914807v1

HAL Id: tel-02914807

<https://hal.science/tel-02914807v1>

Submitted on 12 Aug 2020 (v1), last revised 27 Sep 2022 (v2)

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE DE DOCTORAT

présentée et soutenue le 20 décembre 2018 en vue de l'obtention du grade de Docteur en Sciences

MATHIEU LACHATRE

Étude de la pollution atmosphérique en Chine par modélisation et télédétection

JURY

| | | |
|----------------------------|----------|-----------------------|
| MME CLAIRE GRANIER | LA | Rapportrice |
| MME VIRGINIE MARECAL | CNRM | Rapportrice |
| MME CATHY CLERBAUX | LATMOS | Examinatrice |
| MME FANNY MINVIELLE-THOMAS | LOA | Examinatrice |
| M. ABDELWAHID MELLOUKI | ICARE | Examineur |
| M. MATTHIAS BEEKMANN | LISA-OSU | Directeur de thèse |
| M. GILLES FORET | LISA | Co-Directeur de thèse |

École Doctorale :

École Doctorale des Sciences de l'Environnement d'Ile de France

Spécialité :

Sciences de L'Univers et de l'Environnement

Unité de Recherche :

LISA [CNRS UMR 7583], Université Paris Est Créteil et Université Paris Diderot.

Correspondance :

Mathieu.lachatre@lmd.polytechnique.fr





Remerciements

Mes premiers remerciements vont à mes deux directeurs de thèse : MATTHIAS BEEKMANN et GILLES FÔRET, pour leur confiance et m’avoir permis de travailler avec eux, dans les meilleures conditions d’encadrement au quotidien.

À GILLES, pour tous ses conseils et pour avoir écrit un sujet sur un pays gigantesque et dont l’étude s’est révélée passionnante à tel point qu’il se retrouve dans presque toutes mes conversations.

À MATTHIAS, pour toutes ses idées, qui auraient permis de poursuivre cette thèse des années durant, et cette connaissance page par page du petit livre [bleu ?] de Seinfeld & Pandis.

Je tiens aussi à faire part de ma reconnaissance envers l’École doctorale des Sciences de l’Environnement d’Ile-de-France et l’Université Pierre et Marie Curie - Sorbonne Universités pour m’avoir permis de conduire mes travaux par leur encadrement et leur financement.

Un grand merci à l’équipe d’enseignement de l’IUT de Mesure Physique de Paris Diderot et plus particulièrement à SANDRA LAFON, pour m’avoir fait découvrir les joies de l’enseignement et ces riches moments que procure la correction des copies.

Merci à toutes les personnes du CRAES, à Pékin, plus particulièrement aux DR. FAN MENG et DR. WEI TANG, pour leur accueil chaleureux, pour m’avoir permis de collaborer avec eux et de découvrir la capitale chinoise, aux 7 périphériques [Ok, celui qui fût le 1^{er} n’existe plus, mais un 8^{ème} sera bien construit un jour, j’anticipe].

Bien sûr, merci au LISA pour ses structures, le matériel et l’ensemble de personnes croisées ces 4 dernières années, du DT au pôle administratif, en passant par les différents groupes, des réunions jusqu’au PMU. Un merci particulier au projet PoEASIA et à GAËLLE DUFOUR, pour les échanges scientifiques, mais aussi les conférences et petits périple que cela peut comporter.

Et merci à toutes ces nombreuses personnes qui ont pris le temps de m’aider dans mes travaux et de m’expliquer les leurs - une entreprise généreuse et surtout courageuse. Merci à ADRIANA COMAN, GAËLLE DUFOUR [Pour les vac... voyages en Chine], CHRISTEL BOUET, AUDREY FORTEMS-CHEINEY [pour toutes ses bonnes idées], BEATRICE MARTICORENA, CAROLINE PIERRE, BERNARD AUMONT, GILLES BERGAMETTI, YOHANN CHAILLEUX, LORENZO COSTANTINO, FLORIAN COUVIDAT, JUAN CUESTA, BENOIT LAURENT [Chef du master], ABDELWAHID MELLOUKI [Pour le SESAC] et GUILLAUME SIOUR [Chef des bières et de CHIMERE]. Merci à toutes ces personnes croisées au quotidien au laboratoire, CHARLOTTE [consoeur présidente], BOUTHAINA, CORA, ISABELLE, JULIE [consoeur de hockey], JOANNA, LORYELLE [Laveuse de carreaux], MARIE [MERCİ pour le café], MERYL, STEPHANIE, AXEL, GIANCARLO, FRANCK, RICHARD [Positive attitude], RENAUD, VINCENT et VICTOR [Pour ce périple à Shanghai] . Et merci, pour tout ce temps partagé en P2-237 à ARINEH [Boss du Bureau], INES [Rdv en 2021 !], ARTHUR [Le Steph’ Curry des émissions] et VINCENT [Prince des relous].

Enfin, mes derniers remerciements vont à l’ensemble de mes amis et de ma famille, qui me supportent depuis 27 ans, ce qui, je le reconnais, ne doit pas toujours être facile.



Avant-propos

La rédaction de ce document a été partagée entre le français et l'anglais, certains chapitres étant issus d'articles soumis ou en préparation, rédigés sous un format spécifique et destinés à une publication scientifique. Il a été choisi de ne conserver les acronymes que sous leurs mentions anglaises, afin de faciliter la lecture du document et de préserver l'unicité des termes entre les passages en français et en anglais du document. Également, certaines figures présentées dans ce document ont été extraites de publications scientifiques, réalisées en anglais, par souci d'homogénéité, l'ensemble des figures présentées dans le document sont produites en anglais. Nous prions d'avance le lecteur d'excuser l'éventuelle gêne induite par le passage d'une langue à l'autre au cours de la lecture du document.



Résumé

À la suite de son important développement économique, la société chinoise s'est transformée et fait face aujourd'hui à une crise environnementale globale. Au quotidien, le ciel des grandes villes chinoises s'est recouvert d'un épais brouillard de gaz et de particules, qui est à l'origine de plus de 1.6 millions de décès prématurés, ce qui fait de la Chine le pays le plus affecté par la pollution atmosphérique, avec son voisin, l'Inde.

On retrouve en Chine, de nombreuses sources de pollution atmosphériques liées aux activités humaines [trafic, industrie, agriculture, production d'énergie, construction], mais aussi des sources de polluants d'origine naturelle, avec à l'Ouest, notamment les émissions de poussières minérales depuis les déserts d'Asie. La République Populaire de Chine a commencé à réglementer les activités pouvant dégrader la qualité de l'air. L'efficacité de telles actions est conditionnée par la connaissance fine de la part anthropique de cette pollution et de la relation complexe entre polluants primaires et secondaires.

Dans cette thèse nous avons investigué d'une part l'impact des politiques de réduction des polluants primaires sur les concentrations d'ammoniac et plus généralement sur l'aérosol inorganique. D'autre part, la contribution de l'aérosol désertique sur la charge particulaire des grandes agglomérations chinoises. Pour cela, nous avons combiné des outils d'étude de l'atmosphère comme les instruments satellitaires et la modélisation numérique via le modèle de chimie-transport régional CHIMERE, afin d'étudier et de caractériser cette pollution atmosphérique en Chine.

Dans un premier temps, nous avons procédé à une évaluation détaillée des simulations effectuées avec une configuration du modèle CHIMERE mise en place pour la Chine. Nous nous sommes appuyés sur les observations satellitaires, mesures de télédétection, et mesures in-situ des concentrations en particules et de leurs précurseurs gazeux [inorganiques]. Les résultats obtenus montrent un fonctionnement satisfaisant du modèle selon les critères donnés dans la littérature.

Concernant l'impact des politiques de réductions des émissions – notamment pour les oxydes de soufre et d'azote, les sondages de l'instrument OMI à bord du satellite AURA permettent de constater une diminution rapide des colonnes atmosphériques de dioxyde de soufre et de dioxyde d'azote, comme réponse aux normes mises en place en Chine. À partir de ces observations, il a été possible de dériver des émissions corrigées [par rapport à l'inventaire 2010 disponible] pour les années 2013 et 2015 pour les NO_x et le SO_2 . Cette représentation des tendances d'émissions a ensuite été exploitée pour étudier les impacts sur la Chimie atmosphérique, notamment sur les bilans des particules inorganiques et des gaz associés comme l'ammoniac dont les concentrations semblent augmenter fortement ces dernières années. Il apparait, qu'entre 2011 et 2015, la forte diminution des émissions de SO_2 et NO_2 a entraîné une diminution de 14 % de la production de nitrate, sulfate et ammonium, ainsi qu'une augmentation de presque 50 % des niveaux des colonnes d'ammoniac, une valeur corroborée par les observations de l'instrument IASI qui indiquent une augmentation des colonnes d'ammoniac de +65 % selon les mêmes conditions.

Dans un second temps, l'objectif a été d'évaluer la contribution des sources d'aérosols naturels que sont les déserts sur la charge particulaire des villes chinoises. La modélisation des émissions depuis les régions désertiques asiatiques a d'abord été évaluée à partir d'informations obtenues par télédétection. Puis, nous avons vérifié la capacité du modèle à représenter les concentrations des $\text{PM}_{2.5}$ et PM_{10} dans les mégapoles chinoises par confrontation à des mesures des réseaux d'observations aux sols. L'étude se concentre principalement sur trois des villes les plus peuplées de PRC aux situations géographiques différentes : Pékin, Chengdu et Shanghai. Il en ressort que les poussières minérales impactent ces 3 villes pour 6.6 % [Pékin], 9.5 % [Chengdu] et 9.3 % [Shanghai] des PM_{10} en moyenne annuelle. Les fréquences de participation des « dust » à la pollution particulaire [i.e. quand les dust contribuent à plus de 25 % des valeurs journalières des PM_{10}] ont été déterminées pour l'ensemble des jours du printemps, ainsi que pour les 25 % des jours du printemps les plus pollués. Il apparait pour cette saison que les poussières participent de façon plus fréquente aux évènements de pollution : à Pékin pour 22 % des jours pollués contre 18 % pour l'ensemble des jours de printemps, à Chengdu pour 52 % des jours pollués contre 31 % pour l'ensemble des jours de printemps, et à Shanghai pour 43 % des jours pollués contre 19 % pour l'ensemble des jours de printemps. En revanche, pour toutes les saisons confondues et surtout pour les pics de pollution par les particules en hiver, l'origine anthropique de la pollution est mise en avant.



Abstract

As a result of its significant economic development, Chinese society has transformed itself and today faces a global environmental crisis. In everyday life, China's big cities are covered with a thick smog of gas and particles, which is responsible for more than 1.6 million premature deaths, making China the most affected country by air pollution, along with its neighbor, India.

In China, there are many sources of air pollution linked to human activities [traffic, industry, agriculture, energy production, construction], but also various natural sources of pollutants, in particular emissions of mineral dust from the deserts of Asia, in western China.

The People's Republic of China has begun to regulate activities that may affect air quality. The effectiveness of such actions is conditioned by the detailed knowledge of the anthropogenic contribution to this pollution and the complex relationship between primary and secondary pollutants.

In this thesis, we have investigated, on the one hand, the impact of primary pollutant reduction policies on ammonia concentrations and more generally inorganic aerosols, and on the other hand, the contribution of desert aerosol to the particulate matter load in Chinese urban agglomerations. To do so, we combined data sources and tools such as satellite observations and numerical modelling. We use the CHIMERE regional chemistry-transport model to study and characterize air pollution in China.

First, we carried out a detailed evaluation of the simulations performed with a configuration of the CHIMERE model set up for China. For this, we relied on satellite observations, remote sensing, and in-situ measurements of particulate concentrations and gaseous [inorganic] precursors. The results obtained show that the model works satisfactorily according to criteria given in the literature.

Regarding the impact of emission reduction policies - especially for sulfur and nitrogen oxides, long term measurements with the OMI instrument aboard the AURA satellite show a sharp decrease in the atmospheric sulfur dioxide and nitrogen dioxide columns. From these observations, it was possible to derive corrected emissions [compared to the available 2010 inventory] for the years 2013 and 2015 for NO_x and SO_2 . The derived emission trends were then used to study the impacts on atmospheric composition, particularly on the formation of inorganic particles and associated gases such as ammonia, whose concentrations appeared to strongly increase in recent years. Simulations showed that the sharp decrease in SO_2 and NO_2 emissions between 2011 and 2015 led to an overall 14 % decrease in nitrate, sulphate and ammonium aerosol concentrations, as well as an increase of nearly 50 % of ammonia column levels, a value corroborated by the IASI observations that indicate an increase in ammonia columns of +65 % under the same conditions.

In a second step, the objective was to evaluate the contribution of desert aerosol to the particulate matter load in several Chinese cities. Dust emission modeling by Asian desert regions was first evaluated using remote sensing observations. Then, we verified the model's ability to represent $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} concentrations in Chinese megacities by comparing measurements of ground based observation networks. The study focuses mainly on three of the most populated PRC cities with different geographic locations, Beijing, Chengdu and Shanghai. It appears that mineral dust impacts these 3 cities for 6.6 % [Beijing], 9.5 % [Chengdu] and 9.3 % [Shanghai] PM_{10} on an annual average. The frequencies of dust participation in particulate pollution [i.e. when dust contributes more than 25 % to the daily averages of >25 % of the mass of PM_{10}] have been determined for all spring days, as well as for the 25 % of the most polluted spring days. It appears that, over this season, dust contributes more significantly to pollution events : in Beijing it accounts for 22 % of polluted days compared to 18 % for all spring days, in Chengdu for 52 % of polluted days compared to 31 % for all spring days, and in Shanghai for 43 % of polluted days compared to 19 % for all spring days. On the contrary, for all seasons combined and especially for peaks of particulate pollution in winter, the anthropogenic origin of pollution is highlighted.



Table des matières

| | |
|--|------------|
| Remerciements | i |
| Avant-propos | iii |
| Résumé | v |
| Abstract | ix |
| Table des matières | 1 |
| Introduction | 7 |
| I L'atmosphère et la pollution atmosphérique | 9 |
| I.1 Généralités sur l'atmosphère | 11 |
| I.1.1 Le temps de vie des espèces traces dans l'atmosphère | 12 |
| I.1.2 Les radicaux hydroxyles, un rôle central dans la chimie troposphérique | 14 |
| I.2 Les principaux polluants gazeux | 15 |
| I.2.1 Le dioxyde de soufre [SO ₂] | 15 |
| I.2.2 L'ammoniac [NH ₃] | 17 |
| I.2.3 Les oxydes d'azote réactifs [NO _y] | 17 |
| I.2.4 Les Composés Organiques Volatils Non Méthanique [NMVOC] | 18 |
| I.2.5 L'ozone [O ₃] | 19 |
| I.3 Les aérosols | 21 |
| I.3.1 Définition générale | 21 |
| I.3.2 Distribution et évolution des aérosols dans l'atmosphère | 21 |
| I.3.3 Mélange des aérosols | 22 |
| I.3.4 Les aérosols primaires | 23 |
| I.3.4.1 Les sources naturelles | 23 |
| I.3.4.2 Les sources anthropiques d'aérosol primaire | 26 |
| I.3.5 Les aérosols secondaires | 27 |
| I.3.6 Composition des aérosols et variabilité spatiale | 29 |
| I.4 Impacts environnementaux des polluants atmosphériques | 30 |
| I.4.1 Propriétés optiques des aérosols | 30 |

| | | |
|------------|---|-----------|
| I.4.2 | Impact radiatifs des aérosols et conséquences sur le climat | 33 |
| I.4.3 | Impact des composés traces de l’atmosphère sur les écosystèmes | 34 |
| I.4.4 | Impact sanitaire | 35 |
| I.4.5 | Interactions avec les organismes vivants | 35 |
| I.4.6 | Estimation du coût humain | 36 |
| I.4.7 | Quels coûts économiques et sociétaux | 38 |
| Conclusion | | 39 |
| II | La République populaire de Chine, un contexte particulier | 41 |
| II.1 | La Chine, un géant mondial | 43 |
| II.2 | De la Chine impériale à la PRC actuelle, un pays plusieurs fois millénaire. | 43 |
| II.2.1 | La Chine impériale, société millénaire. | 43 |
| II.2.2 | Une guerre civile de plus de 30 ans | 45 |
| II.2.3 | La proclamation de la PRC et le modèle socialiste chinois | 45 |
| II.2.4 | Une Chine ouverte, une Chine nouvelle. | 46 |
| II.2.5 | La Chine de Xi Jinping | 46 |
| II.3 | L’évolution de la position de la Chine dans l’économie mondiale. | 47 |
| II.3.1 | Une addiction de la Chine à l’égard du charbon | 48 |
| II.4 | La population chinoise, un cas unique | 49 |
| II.4.1 | De l’explosion des naissances à une démographie sous contrôle | 49 |
| II.4.2 | Une urbanisation rapide | 50 |
| II.5 | La crise environnementale en Chine, une crise globale | 51 |
| II.5.1 | Un impact global | 51 |
| II.5.2 | L’action politique chinoise face aux défis environnementaux | 53 |
| II.5.3 | Mise en place de réglementation : | 53 |
| II.5.4 | Une implication et une demande de la population | 54 |
| III | La pollution atmosphérique en Chine | 57 |
| III.1 | Les tendances des principaux polluants en Chine | 59 |
| III.1.1 | Le dioxyde de soufre en Chine | 59 |
| III.1.2 | L’ammoniac en Chine | 60 |
| III.1.3 | Les oxydes d’azote en Chine | 61 |
| III.1.4 | Les Composés Organiques Volatils Non Méthaniques en Chine | 61 |
| III.1.5 | L’Ozone | 61 |
| III.1.5.1 | Composition, variabilité et évolution des aérosols en Chine | 62 |
| III.2 | Influence à l’échelle globale de la pollution atmosphérique chinoise | 67 |
| III.2.1 | Impact radiatif des aérosols et conséquences sur le climat | 67 |
| III.2.2 | Transport de la pollution jusqu’au Japon et États-Unis | 67 |
| Conclusion | | 68 |
| IV | Outils et méthodes : observer et modéliser l’atmosphère | 69 |
| IV.1 | Les instruments d’observation de l’atmosphère | 71 |
| IV.1.1 | Les mesures au sol | 71 |
| IV.1.2 | L’observation depuis l’espace | 74 |
| IV.2 | La modélisation numérique de la pollution atmosphérique | 77 |
| IV.2.1 | Généralités | 77 |
| IV.2.2 | Le modèle CHIMERE | 77 |

TABLE DES MATIÈRES

| | | |
|-----------|---|------------|
| IV.2.2.1 | Les informations d'entrée du modèle : les forçages externes | 78 |
| IV.2.2.2 | Discrétisation et principe général de fonctionnement du modèle : | 80 |
| IV.2.2.3 | La chimie de la phase gazeuse : | 83 |
| IV.2.2.4 | Représentation de la physico-chimie des aérosols : | 84 |
| IV.2.2.5 | La modélisation des émissions de poussières minérales désertiques : | 85 |
| IV.2.2.6 | La représentation des processus de dépôt et de la re-suspension : | 88 |
| V | Evaluation du modèle CHIMERE | 91 |
| V.1 | Indicateurs statistiques | 93 |
| V.2 | Evaluation des simulations à partir des mesures de surfaces fournies par le CRAES | 94 |
| V.2.1 | Stratégie | 94 |
| V.2.2 | Résultats des comparaisons | 94 |
| V.2.3 | Analyse des nuages de points établis par centiles | 94 |
| V.3 | Evaluation des simulations à partir des mesures des ambassades des États-Unis | 98 |
| V.3.1 | Résultats des comparaisons | 98 |
| V.4 | Evaluation des simulations à partir des AOD du réseau AERONET | 99 |
| V.4.1 | Stratégie | 99 |
| V.4.2 | Résultats des comparaisons | 100 |
| V.5 | Evaluation des simulations à partir des observations satellites MODIS | 100 |
| V.5.1 | Stratégie | 100 |
| V.5.2 | Résultats des comparaisons | 101 |
| V.6 | Evaluation des simulations à partir des observations satellitaires OMI | 102 |
| V.6.1 | Stratégie | 102 |
| V.6.2 | Résultats des comparaisons | 102 |
| V.7 | Conclusion | 104 |
| VI | The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations over China | 105 |
| | Résumé de l'article | 107 |
| VI.1 | Abstract | 109 |
| VI.2 | Introduction | 109 |
| VI.3 | Material and method | 110 |
| VI.3.1 | IASI Satellite observations | 110 |
| VI.3.2 | The chemistry-transport CHIMERE model and updated NO _x and SO ₂ emissions | 110 |
| VI.3.3 | ISORROPIA | 112 |
| VI.3.4 | Set-up of the performed sensitivity tests | 113 |
| VI.4 | Results and Discussion | 113 |
| VI.4.1 | Impact of meteorological conditions on the NH ₃ / NH ₄ ⁺ / SO ₄ ²⁻ / NO ₃ ⁻ system | 113 |
| VI.4.2 | Impact of SO ₂ and NO _x emission reduction on NH ₃ columns and inorganic aerosol | 115 |
| VI.4.2.1 | Impact of SO ₂ and NO _x emission reduction on NH ₃ columns | 115 |
| VI.4.2.2 | Impact of SO ₂ and NO _x emission reduction on pSNA production | 116 |
| VI.4.2.3 | NH ₃ : a key role for the regulation of PM as a limiting reactant | 116 |
| VI.4.3 | Time evolution of inorganic PM and precursor species between 2011 and 2015 | 118 |
| VI.4.4 | Evaluation against PM _{2.5} surface measurements | 118 |
| VI.4.5 | Correspondences between IASI NH ₃ columns observations | 119 |
| VI.5 | Conclusion | 120 |

| | |
|---|------------|
| VII Air quality degradation by mineral dust over Beijing, Chengdu and Shanghai | 125 |
| Résumé de l'article | 127 |
| VII.1 Abstract | 129 |
| VII.2 Introduction | 129 |
| VII.3 Materials and Method | 131 |
| VII.3.1 The CHIMERE CTM | 131 |
| VII.3.1.1 Anthopogenic and biogenic aerosols modeling | 131 |
| VII.3.1.2 Mineral dust aerosol modeling | 132 |
| VII.3.1.3 Method to determine dust origins in cities | 133 |
| VII.3.2 AOD data set and their use for model evaluation comparison methods | 133 |
| VII.3.3 Surface measurements data set and comparison methods | 134 |
| VII.4 Results and discussion | 135 |
| VII.4.1 Dust emissions and evaluation | 135 |
| VII.4.1.1 Mineral dust emissions and seasonality | 135 |
| VII.4.1.2 CHIMERE AOD evaluation in dust emission source areas | 136 |
| VII.4.1.3 Dust vertical dispersion | 138 |
| VII.4.2 Dust contribution to urban Chinese particle pollution | 138 |
| VII.4.2.1 Evaluation of PM concentration modeling | 138 |
| VII.4.2.2 Dust contribution to cities' air pollution and dust origin | 140 |
| VII.4.2.3 PM Chemical composition and comparison to observations | 142 |
| VII.4.2.4 Daily variability of PM ₁₀ component concentrations | 143 |
| VII.4.2.5 Dust contribution during high pollution episodes | 143 |
| VII.5 Conclusion | 145 |
| Conclusion | 151 |
| Perspectives | 153 |
| Table des figures | 155 |
| Liste des tableaux | 159 |
| Liste des équations et réactions | 161 |
| Glossaire | 163 |
| A [Annexe] Quelques marqueurs de l'histoire récente de la République populaire | I |
| A.1 La guerre civile [1927 – 1950] et ses mythes | III |
| A.2 La grande révolution culturelle prolétarienne | IV |
| A.3 Historique des dirigeants et évènements marquants | V |
| A.4 L'organisation de la République populaire de Chine | V |
| B [Annexe] Description de CHIMERE | VII |
| B.1 Les schémas chimiques | IX |
| B.2 Les paramètres météorologiques | XIV |
| C [Annexe] The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations | XV |

TABLE DES MATIÈRES

| | |
|---|---------------|
| D [Annexe] Air quality degradation by mineral dust over Chinese megacities | XXIII |
| E [Annexe] Participation à différentes conférences | XXIX |
| Bibliographie | XXXIII |



Introduction

LA République populaire de Chine [PRC, *People Republic of China*] est le pays le plus peuplé du monde, avec 1.4 milliards d'habitants, la seconde puissance économique du monde selon le produit intérieur brut nominal [GDP, *Gross Domestic Product*] qui est d'environ 12 000 milliards de dollars, et la 1^{re} selon le GDP à parité de pouvoir d'achat [PPP, *Purchasing Power Parity*]. Cette position de la Chine comme l'un des plus importants acteurs de l'économie internationale s'est affirmée récemment et rapidement depuis le début des années 1980; en 2015, la PRC est le 1^{er} exportateur mondial, avec un volume d'exportations de 2 227 milliards de dollars, soit 14 % du total planétaire [World Factbook, 2016]. Cette situation et cette transformation de la Chine a conduit aussi à un important questionnement autour de son l'environnement et plus spécifiquement sur la qualité de l'air.

La pollution atmosphérique est définie comme étant la perturbation de la composition atmosphérique par les activités humaines et ce, pour les espèces ayant un effet nocif sur la santé des populations sur les écosystèmes ou sur le climat [à partir de la loi LAURE 1996]. La Chine fait aujourd'hui face à une crise environnementale globale, qui ne comprend pas la seule problématique climatique, mais aussi des problèmes de pollution et de disponibilité des ressources d'eaux, de traitements des déchets, de pollution et/ou désertifications des sols et enfin des enjeux liés à la qualité de l'air. La PRC est une des nations les plus impliquée et concernée par les accords de 2015 établis à la sortie de la conférence de Paris sur le changement climatique [accords ratifiées par la Chine le 02/09/2016], en tant que premier émetteur mondial de CO₂ [30 % du total en 2014, soit le double de la contribution des États Unis d'Amérique en absolu [moins si on considère les émissions par habitant, Boden et al., 2017].

En Chine, le nombre de décès prématurés attribuables à la pollution atmosphérique a augmenté de 33 % entre 2000 et 2010, passant de 0.9 millions.an⁻¹ à 1.2 millions.an⁻¹ [Xie et al., 2016]. Selon Rohde and Muller [2015], en Chine pour l'année 2014, ce sont 1.6 millions de décès qui seraient imputables à la détérioration de la qualité de l'air, ce qui fait de la Chine le deuxième pays le plus durement touché par cette problématique, juste après l'Inde [1.8 millions de décès]. Les différents polluants atmosphériques présentent une importante variabilité en termes de compositions, de sources et d'effets sur les populations. Les sources d'émissions pouvant se décliner en différentes catégories, selon qu'elles sont « naturelles » ou « anthropiques », et en différents secteurs d'activités [agriculture, trafic ...]. La population Chinoise est donc exposée à un mélange de pollution atmosphérique complexe, dont la composition et la contribution des différentes sources varient aussi fortement en fonction des saisons et des régions. Grâce à la modélisation, il est possible de reproduire les différents processus contrôlant la pollution [production, transport, élimination], afin de quantifier les différentes

sources de pollutions, et de comprendre la nature de celle-ci et ses évolutions. Une représentation de la pollution par le modèle qu'il faudra évaluer, afin d'en estimer les limites, en la confrontant à différentes observations in-situ ou par télédétection.

■ Objectifs, questions scientifiques et organisation de la thèse :

En utilisant le modèle de chimie transport CHIMERE, des observations obtenues par différents satellites et des mesures à la surface, le travail de recherche effectué au cours de cette thèse aura pour objectif de représenter aussi précisément que possible la pollution atmosphérique en Chine et ses sources, en se concentrant sur une période d'étude récente, de 2011 à 2015. Pour, dans un premier temps, évaluer l'impact des politiques de réductions des émissions sur la formation et la composition des aérosols inorganiques d'origines anthropiques et dans un second temps estimer la contribution naturelle liée aux aérosols désertiques, émis depuis les différentes régions désertiques situées en Asie et ensuite transportés jusqu'aux régions les plus peuplées de Chine.

Le premier chapitre du document définit le contexte scientifique via la description de la pollution atmosphérique et ses impacts. Le chapitre II est dédié à une mise en perspective du contexte spécifique de la République populaire de Chine, de son histoire récente et de l'évolution de sa société, en précisant le contexte environnemental spécifique de la Chine qui lui est associé. La pollution atmosphérique en Chine est décrite spécifiquement dans le chapitre III. La partie méthodologique [chapitre IV] intègre la présentation des différents outils, ressources et méthodes utilisés durant ce travail. La robustesse du modèle CHIMERE est évaluée par la confrontation aux mesures in situ et observations satellites précédemment exposées [chapitre V]. Enfin, le document présente les deux études conduites au cours du doctorat soumis ou à soumettre sous forme d'article. Les études sont menées sur l'impact de la réduction des émissions anthropiques de NO_x et SO_2 sur la pollution particulaire et gazeuse, notamment l'ammoniac [chapitre VI], et l'impact des poussières minérales d'origine désertique sur la pollution de plusieurs grandes agglomérations en Chine [chapitre VII].

L'atmosphère et la pollution atmosphérique

« Le courage, c'est de chercher la vérité et de la dire. »

JEAN JAURÈS, 1903

Sommaire

| | | |
|-------|--|-----------|
| I.1 | Généralités sur l'atmosphère | 11 |
| I.1.1 | Le temps de vie des espèces traces dans l'atmosphère | 12 |
| I.1.2 | Les radicaux hydroxyles, un rôle central dans la chimie troposphérique | 14 |
| I.2 | Les principaux polluants gazeux | 15 |
| I.2.1 | Le dioxyde de soufre [SO ₂] | 15 |
| I.2.2 | L'ammoniac [NH ₃] | 17 |
| I.2.3 | Les oxydes d'azote réactifs [NO _y] | 17 |
| I.2.4 | Les Composés Organiques Volatils Non Méthanique [NMVOC] | 18 |
| I.2.5 | L'ozone [O ₃] | 19 |
| I.3 | Les aérosols | 21 |
| I.3.1 | Définition générale | 21 |
| I.3.2 | Distribution et évolution des aérosols dans l'atmosphère | 21 |
| I.3.3 | Mélange des aérosols | 22 |
| I.3.4 | Les aérosols primaires | 23 |
| I.3.5 | Les aérosols secondaires | 27 |
| I.3.6 | Composition des aérosols et variabilité spatiale | 29 |
| I.4 | Impacts environnementaux des polluants atmosphériques | 30 |
| I.4.1 | Propriétés optiques des aérosols | 30 |
| I.4.2 | Impact radiatifs des aérosols et conséquences sur le climat | 33 |
| I.4.3 | Impact des composés traces de l'atmosphère sur les écosystèmes | 34 |
| I.4.4 | Impact sanitaire | 35 |
| I.4.5 | Interactions avec les organismes vivants | 35 |
| I.4.6 | Estimation du coût humain | 36 |
| I.4.7 | Quels coûts économiques et sociétaux | 38 |
| | Conclusion | 39 |

La pollution atmosphérique se définit par la présence d'une substance étrangère ou la variation importante de composants atmosphériques étant susceptibles de provoquer un effet nocif sur la santé des populations ou sur l'environnement. Les polluants atmosphériques se retrouvent principalement dans la troposphère et la stratosphère, soit les deux parties inférieures constituant l'atmosphère. Dans le cadre de cette thèse, les enjeux étudiés liés à la pollution concernent principalement le compartiment troposphérique. La description des polluants se concentre en conséquence sur leurs spécificités dans cette section de l'atmosphère. Ce premier chapitre a pour objectif de présenter l'atmosphère, ses caractéristiques et de définir les principaux polluants atmosphériques, leurs sources, et leurs processus d'éliminations afin de comprendre leurs cycles au sein de l'atmosphère.

I.1 Généralités sur l'atmosphère

L'atmosphère terrestre est l'enveloppe gazeuse qui entoure la Terre. Elle est composée majoritairement de N_2 [78 %], d' O_2 [21 %], d'Argon [0.9 %], de nombreux gaz traces [H_2O , CO_2 , O_3 ...] et de particules solides ou liquides en suspension, dites aérosols. L'atmosphère est divisée en 4 principales couches, définies en fonction de la variation de la température :

- ▶ La Troposphère, où la température décroît avec l'altitude [Surface – 15 km à l'équateur ; Surface – 8 km aux pôles].
- ▶ La Stratosphère, où la température augmente avec l'altitude, [8 / 15 km – 50 km d'altitude].
- ▶ La Mésosphère, où la température décroît avec l'altitude [50 km – 80 km d'altitude].
- ▶ La Thermosphère, où la température augmente avec l'altitude, [80 km – 350/800 km d'altitude].

La masse totale de l'atmosphère est principalement distribuée dans les couches les plus basses qui sont les plus denses : la troposphère, qui contient environ 80 % de la masse, et la stratosphère, qui contient environ 9 % de la masse totale de l'atmosphère dont la couche d'ozone. Ainsi, dans la troposphère, la pression exercée par la colonne atmosphérique décroît de façon exponentielle avec l'augmentation de l'altitude $[z]$, selon l'Équation I.1 [Seinfeld and Pandis \[2006\]](#) :

$$P_z = P_0 \times e^{(-zgM_{air}/RT)} \quad (I.1)$$

où P_0 est la pression à $z = 0$ m, M_{air} représente la masse molaire moyenne de la colonne d'air, g l'accélération de pesanteur, T la température moyenne de la colonne d'air en Kelvin, et R la constante des gaz parfaits. La majorité des gaz traces, notamment la vapeur d'eau [99 %] et des aérosols se trouvent dans la troposphère où ils peuvent jouer un rôle essentiel sur le bilan radiatif du fait de leur interaction avec le rayonnement électromagnétique : absorption du rayonnement Infra Rouge [IR] par les gaz à effets de serre [GHG, *Greenhouse Gases*] et du rayonnement Ultra-Violet [UV] par l'Ozone [O_3 ; une absorption d'autant plus forte dans la stratosphère où se trouve la couche d'ozone]. La Figure I.1 montre la structure et les propriétés des différentes couches de l'atmosphère.

L'eau est un élément déterminant du système climatique terrestre, correspondant au premier GHG naturel, comptant pour 35 % à 65 % du forçage radiatif naturel. Le cycle atmosphérique de l'eau [évaporation, condensation, précipitation] peut modifier le bilan d'énergie de l'atmosphère. L'eau se retrouve principalement sous forme gazeuse de vapeur d'eau, mais aussi sous forme liquide et solide

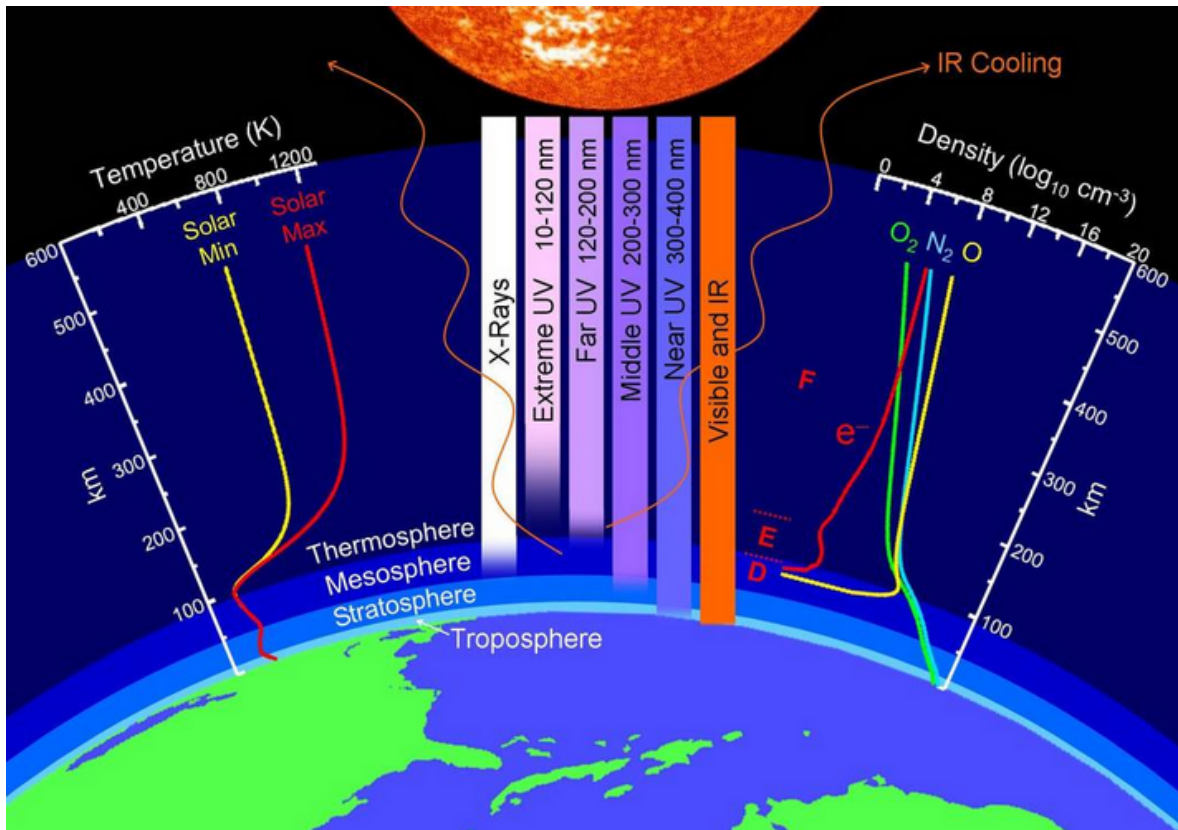


FIGURE I.1 – Schéma récapitulatif de la structure et des propriétés de l'atmosphère [depuis le site de la NASA, consulté le 03/08/2018].

[nuages], et présente une variabilité temporelle et spatiale très forte sur l'ensemble du globe, avec une forte présence au niveau de l'équateur et des valeurs faibles au niveau des pôles et des déserts.

I.1.1 Le temps de vie des espèces traces dans l'atmosphère

L'atmosphère contient une multitude d'espèces gazeuses différentes, aux compositions chimiques variées, qui vont interagir différemment entre elles et avec l'atmosphère. Le parcours d'une molécule « M » dans l'atmosphère peut être schématisé sous forme de cycle. Il commence par l'introduction de la molécule dans l'atmosphère, de par son émission depuis un autre compartiment constitutif du système terrestre, comme la biosphère ou les océans, émis par les activités anthropiques, ou de par sa formation dans l'atmosphère. La molécule peut ensuite être transportée au sein de la masse d'air dans laquelle elle a été introduite, avant d'être finalement éliminée de la masse d'air, par dépôt [humide ou sec] ou par transformation chimique. Le temps écoulé entre l'introduction et l'élimination de la molécule de l'atmosphère correspond à son temps de vie $[\tau_i]$ dans la colonne atmosphérique. Ce temps de vie dépend de l'ensemble des processus qui interviennent dans l'atmosphère et des propriétés de la molécule considérée. À l'état stationnaire, lorsque la concentration de l'espèce M est constante au cours du temps, le temps de vie peut être calculé par le rapport entre la quantité de polluant présent dans la colonne atmosphérique $[M_{col} \text{ en } \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}]$ et le flux de production $[P, \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}]$ ou d'élimination $[R, \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}]$:

$$\tau_i = \frac{M_{col}}{P} = \frac{M_{col}}{M} \quad (I.2)$$

Le temps de vie d'une espèce définit sa capacité à être transportée verticalement, horizontalement et à persister dans l'atmosphère. La distribution spatiale d'une espèce qui présente un long temps de vie sera plus homogène que celle d'une espèce au temps de vie plus court, qui sera concentrée et présentera un fort gradient près de sources. Les échelles de temps correspondant au mélange atmosphérique selon le transport vertical ou horizontal sont représentées sur la Figure I.2. Les conditions météorologiques influent fortement sur le transport des masses d'air. La couche de mélange atmosphérique [ABL, *Atmospheric Boundary Layer*], contrôle la hauteur du transport vertical des polluants à l'échelle de quelques heures et pilote ainsi en partie leur accumulation ou leur dispersion. À l'échelle de la journée, la hauteur de la couche de mélange atmosphérique présente généralement un cycle diurne très prononcé, car le transport en altitude des masses d'air près du sol dépend de l'ensoleillement et de la chaleur transmis par le sol à la masse d'air. Le transport horizontal est plus efficace dans la troposphère libre, i.e au-dessus de la couche limite, où l'intensité du vent horizontal est plus fort.

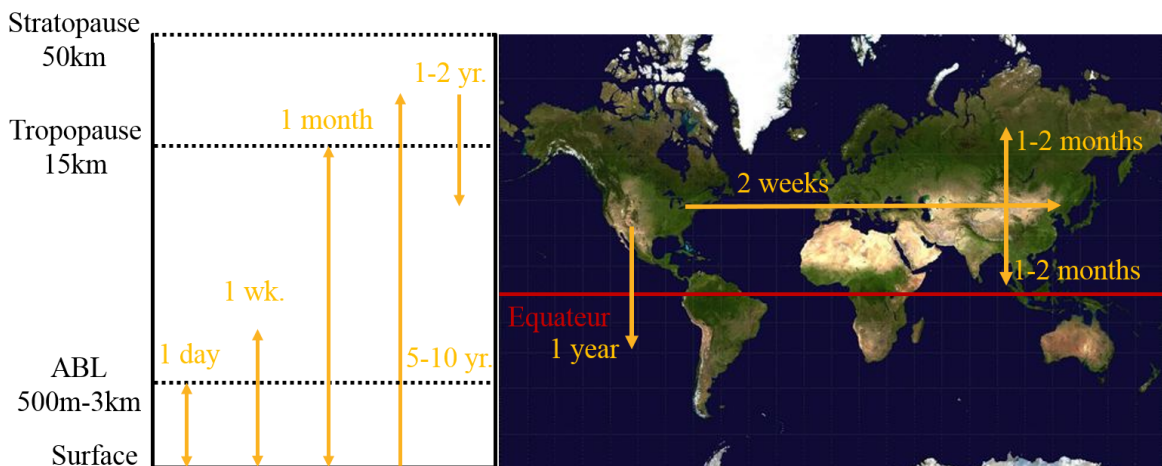


FIGURE I.2 – *Echelle de temps de mélange atmosphérique, à gauche diffusion verticale, à droite diffusion horizontale.*

Il est donc possible de classer les différents composés atmosphériques en fonction de leurs temps de vies, afin d'évaluer leurs capacités à être transportés et les échelles spatio-temporelles de leurs impacts atmosphériques, comme sur la Figure I.3.

Les espèces aux durées de vie les plus courtes auront un impact à une échelle locale et celles présentant des temps de vie plus longs peuvent être transportées sur des centaines voire des milliers de kilomètres et pourront avoir un impact à grande échelle. C'est le cas des principaux gaz à effet de serre tel que le méthane [CH_4 ; $\tau_{\text{CH}_4} = 8$ ans] et le dioxyde de carbone [CO_2 ; $\tau_{\text{CO}_2} = 30 - 95$ ans]. Il est aussi possible d'exprimer le temps de vie d'un polluant par rapport à un processus unique d'élimination [dépôt ou réaction chimique], et de calculer un temps de vie spécifique à un processus. On peut exprimer le temps de vie de l'espèce M par rapport à sa réactivité avec l'espèce A selon la réaction d'ordre 2 :

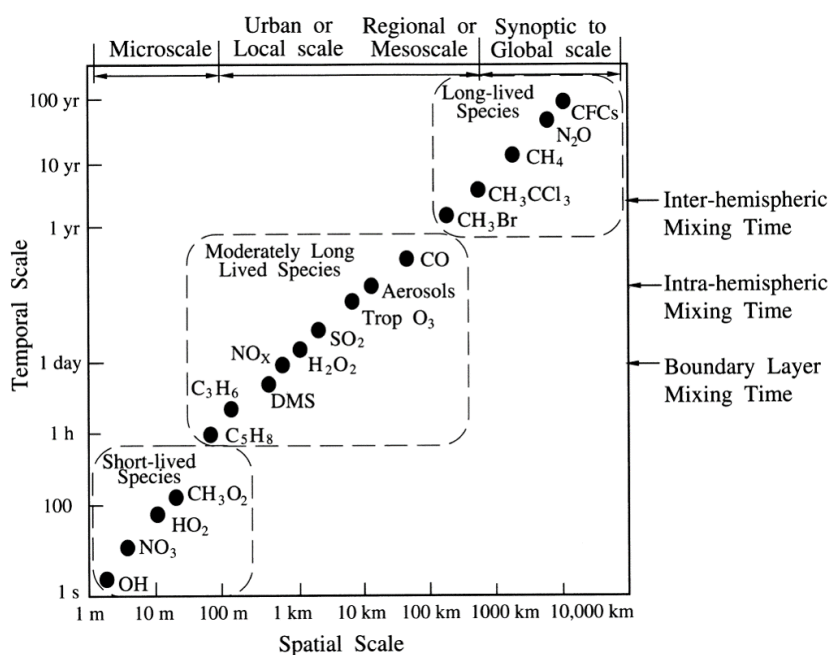


FIGURE I.3 – Echelles de transport spatial de certains composés atmosphériques en fonction de leur temps de vie, depuis Seinfeld and Pandis [2006].



Selon l'équation :

$$\tau_{M/A} = \frac{1}{k_{M+A} \times [A]} \quad (\text{I.4})$$

où k_{M+A} exprime la réactivité.

I.1.2 Les radicaux hydroxyles, un rôle central dans la chimie troposphérique

La troposphère est un réacteur chimique qui possède une très forte capacité oxydante due, de façon indirecte, à la forte quantité de O₂ et de O₃ présents en phase gaz. Cette capacité est principalement liée aux différents radicaux hydroxyles [HO_x], OH [hydroxyl] et HO₂ [Hydroperoxyl]. Les radicaux sont des espèces chimiques possédant un ou plusieurs électrons non appariés, ce qui leur procure une réactivité importante. Cette propriété concerne plus spécifiquement OH, premier oxydant de la troposphère, qui est formé à partir de la photodissociation de O₃ [$h\nu < 319 \text{ nm}$] en présence de H₂O selon :



Mais après la formation de $O(^1D)$ excité dans l'Équation I.5, il est possible que l'atome d'oxygène excité puisse entrer en collision avec un élément M dans l'atmosphère et perdre son surplus d'énergie pour retourner à l'état stationnaire, comme dans l'Équation I.6 :

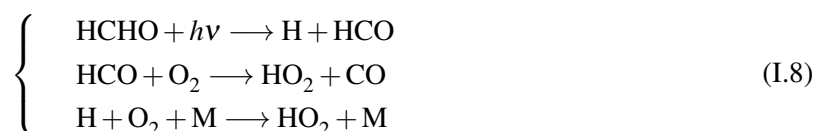


In fine, on peut écrire la vitesse de production d'OH par la formule suivante :

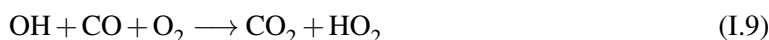
$$P_{OH} = 2 \times [H_2O] \times k_{I.5} \times \frac{[O_3] \times J_{O_3 \rightarrow O(^1D)}}{[M] \times k_{I.6}} \quad (I.7)$$

L'importance du radical hydroxyle dans la chimie troposphérique est liée à son absence de réactivité avec les constituants principaux de l'atmosphère [O_2 , N_2 , CO_2 et H_2O] et à sa réactivité avec la plupart des espèces traces présentes dans l'atmosphère.

Le HO_2 se forme aussi par photochimie, à partir de la photolyse de Composés Organiques Volatils [VOC, *Volatile Organic Compounds*] fonctionnalisés, par exemple :



Mais la voie principale de formation du HO_2 se fait à l'échelle globale à partir de OH, avec CO :



Ce type de cycle de réactions d'oxydation, transformant OH en HO_2 [et inversement lors de la formation de O_3] se fait également pour la grande majorité des composés organiques volatils non méthaniques [NMVOC, *Non-Methane Volatile Organic Compound*]. Pour illustrer cette diversité et cette complexité de la chimie radicalaire atmosphérique, les variations diurnes des vitesses de formation et d'élimination de OH et HO_2 par leurs principales voies de réactions sont présentées Figure I.4.

I.2 Les principaux polluants gazeux

Une partie importante des polluants atmosphériques sont présents sous forme de gaz. Les principaux polluants gazeux et/ou leurs précurseurs sont décrits dans cette section.

I.2.1 Le dioxyde de soufre [SO_2]

Le dioxyde de soufre est le polluant emblématique de l'ère industrielle avec notamment l'épisode du smog de Londres [« The Great Smog », 1952]. Si ses émissions ont été fortement réduites en Europe, il joue encore un rôle majeur dans la pollution asiatique. La forme principale sous laquelle se retrouvent les oxydes de soufre est le dioxyde de soufre [$S^{(+IV)}O_{2(g)}$]. Le dioxyde de soufre peut être introduit directement dans l'atmosphère ou formé par différents processus de chimie atmosphérique. La majorité des émissions de $SO_{2(g)}$ provient de sources anthropiques [le plus souvent à partir de combustion de combustible fossile], depuis différents secteurs d'activité [Figure I.5]. Les secteurs de la production d'énergie et de l'industrie sont les deux principaux contributeurs [Klimont et al.,

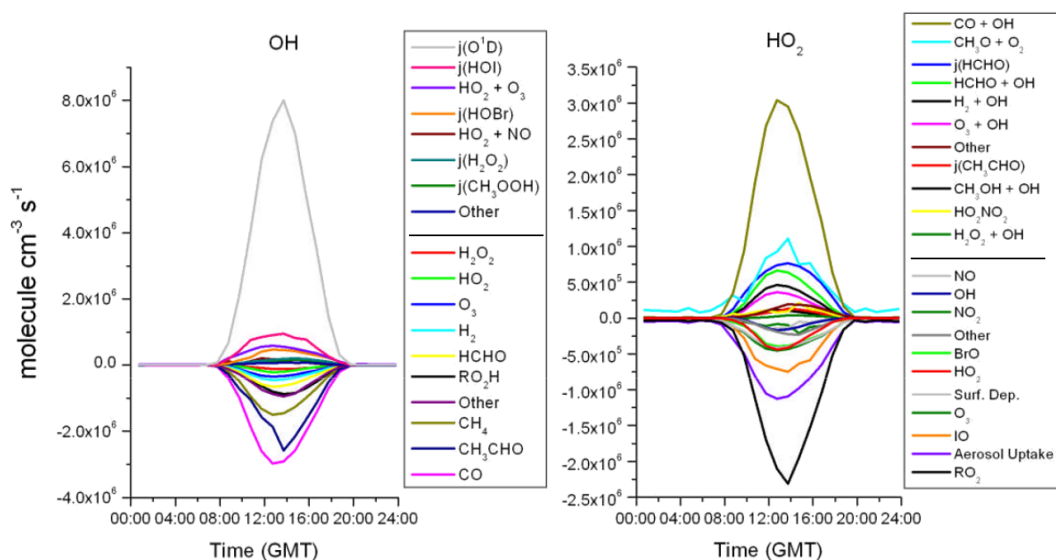
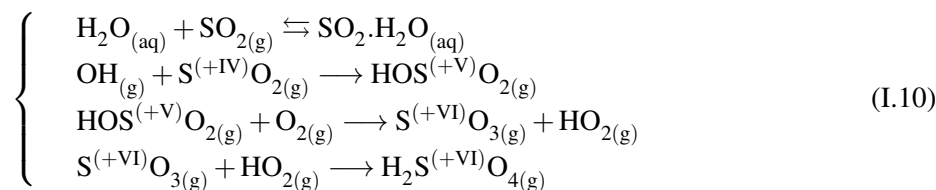


FIGURE I.4 – Variations diurne des vitesses de réactions de OH [gauche] et HO₂ [droite] pour les principaux mécanismes de production et consommation, depuis Whalley *et al.* [2010] dans des conditions idéales établies par le modèle MCM [Master Chemical Mechanism] dans Saunders *et al.* [2003], pour un milieu propre [i.e. marin].

2013; Janssens-Maenhout *et al.*, 2015]. La Figure I.5a nous renseigne sur l'évolution des émissions globale de SO₂, qui sont en diminution au moins depuis 1990 [la première année prise en compte] et la Figure I.5b nous renseigne sur la distribution par continent des émissions, qui proviennent principalement d'Asie en 2010.

Le dioxyde de soufre est aussi émis depuis des sources naturelles dans l'atmosphère, notamment l'activité volcanique. Il peut aussi être produit directement dans l'atmosphère via l'oxydation par le radical hydroxyle de différents composés soufrés réduits, comme le sulfure d'hydrogène [H₂S^(-II)] ou le diméthyle sulfure [CH₃S^(-II)CH₃], qui peuvent être émis dans l'atmosphère par la biosphère, depuis les océans [entre 15 et 25 Mt_S.yr⁻¹] et par l'activité volcanique [entre 0.5 et 1.5 Mt_S.yr⁻¹]. En termes de puits, le SO_{2(g)} peut être éliminé par dépôt sec, mais il est également transformé dans l'atmosphère ou dissout en phase aqueuse [Equation 2] et est impliqué dans la production de PM [Particulate Matter]. Ainsi le SO_{2(g)} peut réagir avec le radical OH pour former par réaction d'oxydation du trioxyde de soufre [S^(+VI)O_{3(g)}] et de l'acide sulfurique [H₂SO_{4(g)}^(+VI)] par combinaison avec de la vapeur d'eau [Équation I.10].



Les concentrations de SO₂ continental varient entre 70 ppt et 10 ppb [Seinfeld and Pandis, 2006], entre un environnement propre et un environnement pollué. Le temps de vie du SO_{2(g)} varie en fonc-

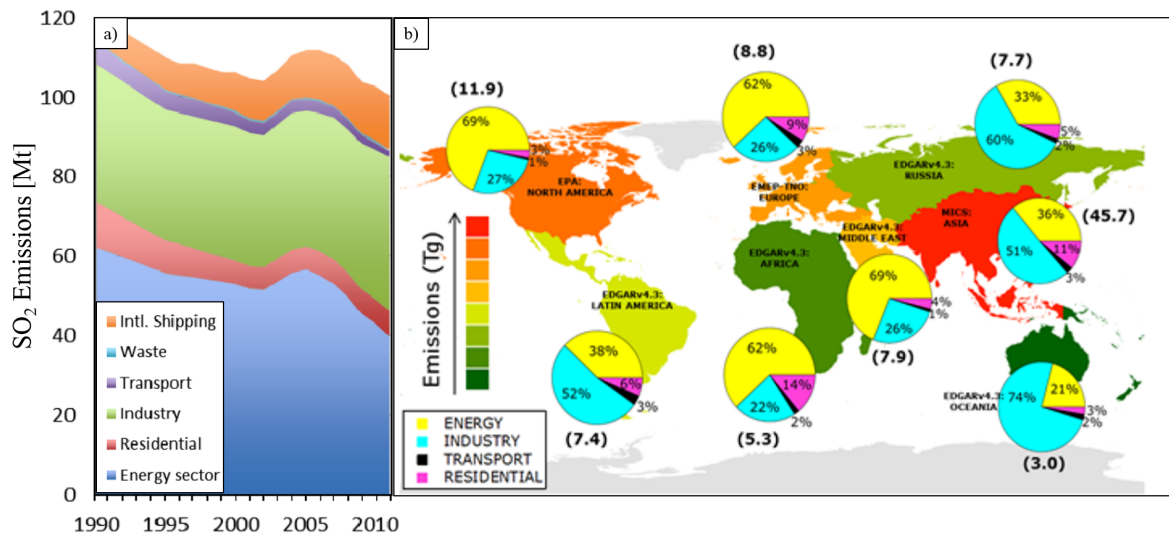


FIGURE I.5 – a) Répartition des émissions de SO₂ par secteurs d'activités entre 1990 et 2010 pour le monde, depuis Klimont et al. [2013] et distribution des émissions par continent pour 2010, depuis Janssens-Maenhout et al. [2015].

tion de la saison, d'environ 13 h en été à 48 h en hiver [Lee et al., 2011].

I.2.2 L'ammoniac [NH₃]

L'ammoniac est un des principaux composants de l'atmosphère contenant de l'azote, et une des principales espèces basiques présentes en phase gaz. Les émissions d'ammoniac à l'échelle globale sont estimées à 49 Mt pour l'année 2010. Les activités du secteur agricole [épandage, élevage...], sont les principales responsables de l'émission d'ammoniac dans l'atmosphère, avec une part de ce secteur estimée à près de 90 % de l'ensemble des émissions [Kang et al., 2016]. Le rapport de mélange dans la troposphère de l'ammoniac continental varie entre 0.1 et 100 ppb. L'ammoniac se dépose rapidement, à proximité des zones sources, par dépôt sec, mais peut aussi être transformé dans l'atmosphère en NO [oxydation par OH] ou transféré en phase aqueuse, car l'ammoniac est un gaz relativement soluble [35.6 % d'ammoniac pour une solution saturée à 15°C] qui forme par association avec des acides divers sels d'ammonium en phase aqueuse [e.g. NH₄CH₃CO_{2(aq)}; NH₄NO_{3(aq)}; (NH₄)₂SO_{4(aq)}]. Les processus de transformation de l'ammoniac vers la phase particulaire, qui représentent un autre puits important pour cette espèce sont décrits dans une partie spécifique plus tard dans ce chapitre [page 27].

I.2.3 Les oxydes d'azote réactifs [NO_y]

Les oxydes d'azote réactifs [NO_y] sont définis comme l'ensemble des NO_x [NO₂ + NO] et les composés issus de l'oxydation des NO_x dans l'atmosphère, comme l'acide nitrique [HNO₃], l'acide nitreux [HONO], le pentoxyde d'azote [N₂O₅], les nitrates [NO₃] ou encore le nitrate de peroxyacétyle [CH₃C(O)OONO₂; dit PAN]. On retrouve principalement les NO_y sous forme de NO_x et de HNO₃. Environ 23 % des émissions de NO_x viennent de sources naturelles [depuis les sols et les orages] pour environ 11.3 Mt_N.y⁻¹, à l'échelle globale. Les principales sources anthropiques sont les transports, la production d'énergie et l'industrie, pour environ 37.5 Mt_N.y⁻¹ [Janssens-Maenhout et al., 2015; IPCC, 2013], et peuvent dans certaines régions servir de traceur du trafic automobile.

Les NO_x peuvent aussi se former directement dans l'atmosphère, à partir de l'oxydation de diazote [à partir de l'énergie fournie dans les orages], d'ammoniac ou d'ammine. Le cycle de l'azote dans la troposphère et ses interactions avec la stratosphère et les compartiments terrestre et marin sont présentées sur la Figure I.6. Le rapport de mélange des NO_x troposphériques oscille en 0.2 ppb en atmosphère continentale propre et 1000 ppb en milieu exposé à des sources de pollution.

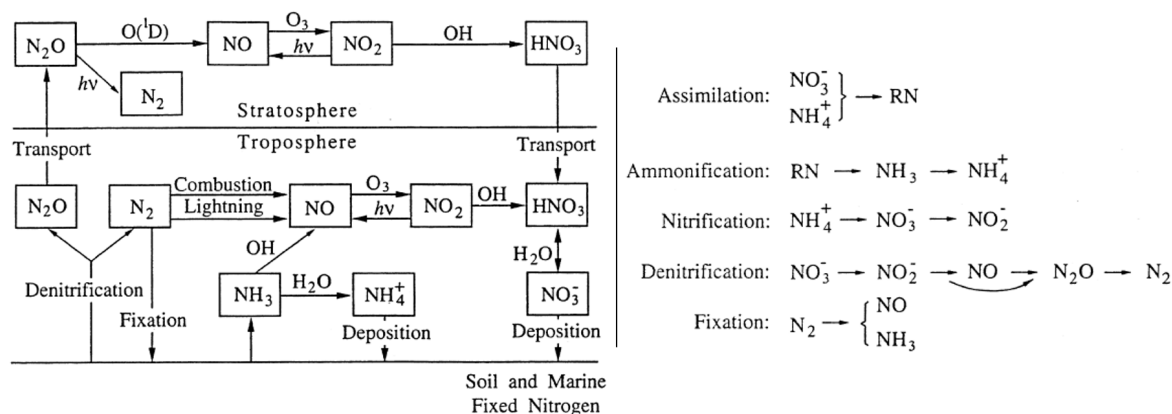


FIGURE I.6 – À gauche : Réactions et procédés mis en jeu dans le cycle de l'azote atmosphériques. À droite : les processus du cycle de l'azote dans les sols [Seinfeld and Pandis, 2006].

Les oxydes d'azote peuvent être éliminés par dépôt sec [NO_x], et par oxydation puis dépôt humide [HNO_3]. Les NO_x ont un temps de vie d'environ un à deux jours dans la basse troposphère et sont principalement transformés en acide nitrique [Seinfeld and Pandis, 2006] par la réaction suivante :



I.2.4 Les Composés Organiques Volatils Non Méthanique [NMVOC]

Cette famille inclut l'ensemble des multiples composés organiques [excluant le CH_4] présents en phase gaz dans l'atmosphère, et qui peuvent être en partie à l'origine de composés particuliers. À l'échelle globale, la majorité des émissions de NMVOC sont dues à des sources naturelles [90 %], notamment la biosphère et environ 10 % des émissions de NMVOC sont d'origines anthropiques. Les émissions de NMVOC par la biosphère sont estimées à $1150 \text{ Mt}_C.\text{yr}^{-1}$, dont 44 % sous forme d'Isoprène [C_5H_8] [Guenther et al., 1995]. L'émission des NMVOC par les végétaux de la biosphère est fortement dépendante des conditions météorologiques, comme l'intensité du rayonnement solaire, l'humidité, et surtout de la température. Lamb et al. [1987] estime que pour une variation de la température ambiante de 25°C à 35°C , les émissions de NMVOC depuis la biosphère peuvent augmenter d'un facteur 4, ce qui induit une variation saisonnière très forte des émissions de VOC. Les émissions additionnelles liées aux activités anthropiques [combustion incomplète, évaporation ...] sont estimées à $142 \text{ Mt}_C.\text{yr}^{-1}$ [Seinfeld and Pandis, 2006]. Les NMVOC sont impliqués dans la chimie atmosphérique en réagissant initialement avec différents oxydants [O_3 , OH , NO_3 , Cl^-] ou en se dissociant par photolyse. Ils forment au cours de cycles de réactions successifs de nombreux produits d'oxydations, jusqu'à la formation de CO_2 , produit terminal majoritaire de cette chaîne de transformations chimiques Figure I.7a]. Les diversités de structures et réactivités des COV entraînent un

nombre conséquent de produits d'oxydations générés, qui augmente avec le nombre de carbone de la molécule considérée [Figure I.7b]. Les NMVOC plus fonctionnalisés ou de longues chaînes de carbone sont moins volatils [SVOC, *Semi Volatile Organic Compounds*], et peuvent être partagés entre phase gaz et phase particulaire, ce qui représente à la fois un puit et une source de ces espèces [Robinson et al., 1995].

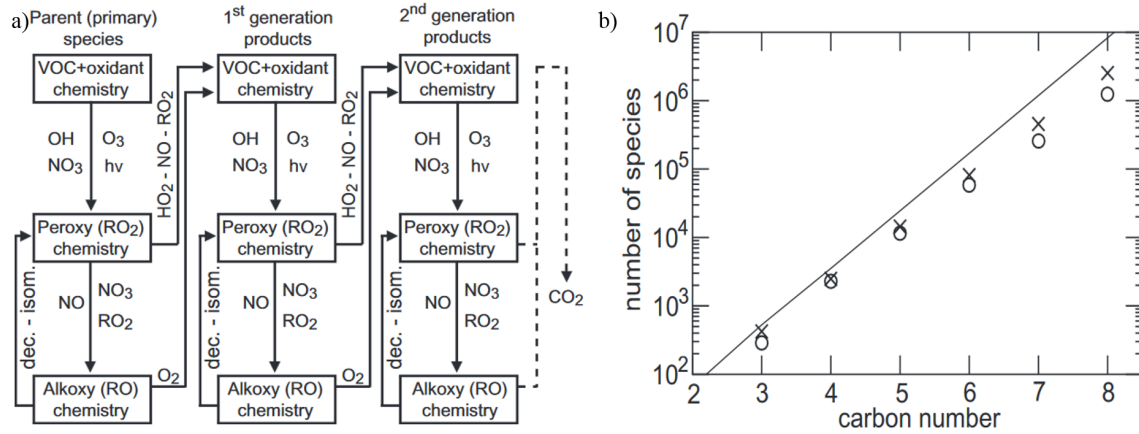
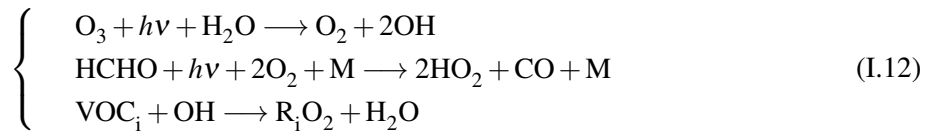


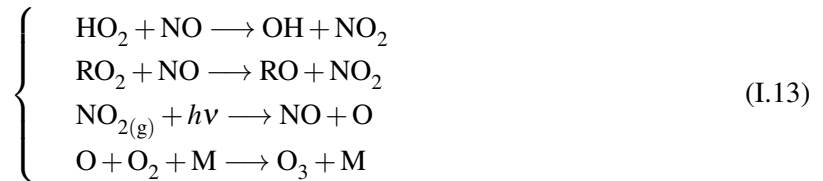
FIGURE I.7 – a) Schéma de fonctionnalisation des NMVOC et b) nombre de produits associés au nombre de carbone de la molécule considérée au début du cycle de réaction, depuis Aumont et al. [2005].

I.2.5 L'ozone [O₃]

L'ozone troposphérique est généralement produit par photochimie directement dans l'atmosphère ou transporté depuis la stratosphère. Globalement, environ 4553 Mt_{O₃}.y⁻¹ sont formés dans la troposphère, et 656 Mt_{O₃}.y⁻¹ sont transportés depuis la stratosphère [Murray et al., 2014]. L'ozone est une espèce relativement stable, avec un temps de vie dans l'atmosphère de l'ordre de 20 jours [Murray et al., 2014; Young et al., 2013]. La formation par photochimie de l'ozone met en jeu principalement les VOC, les NO_x, les radicaux HO_x et le rayonnement solaire, pour initier les réactions de chaîne radicalaire.



Les HO₂ et R_iO₂ peuvent ensuite transformer le monoxyde d'azote en dioxyde d'azote, qui peut former de l'ozone par photodissociation puis association au dioxygène :



Le cycle de formation d'ozone peut être schématisé comme sur la Figure I.8, qui montre l'implication des différentes espèces.

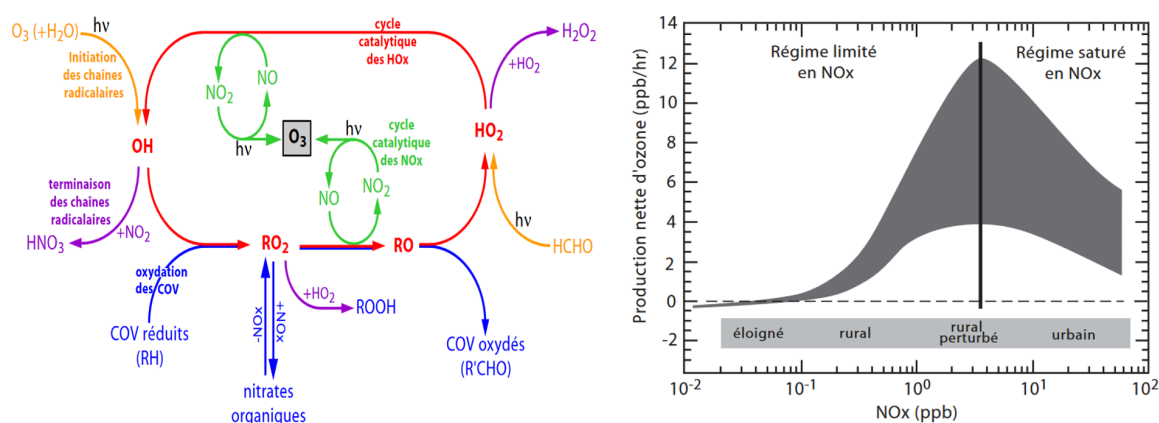
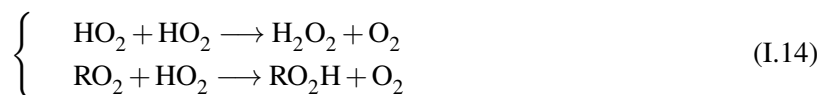


FIGURE I.8 – à gauche, représentation schématique du cycle de formation de l'ozone. À droite, vitesse de production d'ozone en fonction des concentrations de NO_x . [Figures de [Camredon and Aumont, 2007](#)].

La vitesse de formation de l'ozone dépend du rapport entre les quantités de NO_x et de NMVOC dans le mélange atmosphérique. Le régime de formation de l'ozone peut être limité en NO_x ou saturé en NO_x , comparé à la quantité de VOC. À partir d'une certaine proportion de NO_x , la formation d'ozone sera moins efficace, car l'ozone peut être titré par le monoxyde d'azote et l'excès de NO_2 peut consommer OH [en compétition avec la réaction d'oxydation des NMVOC par OH ; Équation I.12].

Réactions de terminaison préférentielles en régime limité en NO_x :



Réaction de terminaison préférentielle en régime saturé en NO_x :



Selon les différents régimes chimiques, la production d'ozone s'exprime selon [[Seinfeld and Pandis, 2006](#)] : Régime limité en NO_x :

$$P_{O_3} = 2 \times k_{(HO_2+NO)} \left(\frac{P_{HO_x}}{2 \times k_{(HO_2+HO_2)}} \right)^{0.5} \times [NO] \quad (I.16)$$

Régime saturé en NO_x :

$$P_{O_3} = \frac{P_{HO_x} \times \sum_i k_{i+OH}[VOC_i]}{k_{(HO_2+NO)} \times [NO_2]} \quad (I.17)$$

L'ozone étant dépendant de la formation de HO_x , c'est un polluant caractérisé par un cycle diurne très prononcé. L'ozone est majoritairement éliminé de l'atmosphère de par son implication dans la chimie atmosphérique par photolyse [$4436 \text{ Mt}_{O_3} \cdot \text{y}^{-1}$; presque à l'équilibre avec la production] et aussi par dépôt sec [$773 \text{ O}_3 \cdot \text{y}^{-1}$] [[Murray et al., 2014](#)].

I.3 Les aérosols

I.3.1 Définition générale

Le terme « aérosol » regroupe l'ensemble des éléments [« particules atmosphériques »] que l'on retrouve sous forme solide ou liquide en suspension dans l'atmosphère ainsi que les molécules de gaz alentours, à l'exception des hydrométéores dans le cas de l'atmosphère [soit l'eau sous forme liquide ou solide]. Dans la pratique, les termes aérosols et particules sont utilisés de façon synonymes dans le sens de « particules atmosphériques ». Les aérosols ou particules atmosphériques, regroupent avec cette définition une très large diversité de sources, de compositions et de taille d'aérosols, formant un mélange varié et complexe.

La taille des aérosols s'étend sur plusieurs ordres de grandeur, de quelques dizaines d'Ångström à plusieurs dizaines de micromètres, elle dépend de leurs sources et peut évoluer sous l'influence de différents processus physico-chimiques. La distribution en taille des aérosols est souvent représentée sous la forme d'une distribution multimodale [souvent avec des « modes » log-normaux]. On peut définir un mode lognormal par une valeur centrale de la distribution [$\overline{D_p}$ = médiane] et une valeur permettant d'estimer la dispersion de la distribution autour du mode [σ_g = Ecart-type d'une distribution log-normale]. On utilise souvent trois modes pour représenter cette distribution, le mode ultrafin [0.1 nm – 0.01 μm ; mode de nucléation], le mode fin [0.01 μm – 0.1 μm ; mode aitken], le mode d'accumulation [0.1 μm – 1 μm]. La distribution des particules plus grosses dites « grossières », peut aussi présenter plusieurs modes entre 1 μm et 100 μm [Buseck and Adachi, 2008].

Il est possible de classifier plus précisément les différents aérosols présents dans le mélange atmosphérique en utilisant différents critères. Ainsi, on distingue principalement l'aérosol dit primaire, émis directement en phase particulaire dans l'atmosphère, et l'aérosol dit secondaire, formé à partir de la nucléation et de la condensation de précurseur gazeux dans l'atmosphère. L'origine des aérosols permet aussi une différenciation des aérosols selon la nature de la source, pouvant être naturelle ou anthropique, i.e liée aux activités humaines. Cette distinction est bien sûr importante lorsque l'on s'intéresse aux politiques de réduction des émissions. Les particules peuvent aussi être différenciées en fonction de leurs compositions chimiques, pouvant être organiques ou minérales.

I.3.2 Distribution et évolution des aérosols dans l'atmosphère

La Figure III.8 montre les distributions des aérosols selon leur diamètre aérodynamique pour différents critères. La distribution en nombre des aérosols est principalement contrôlée par les modes les plus fins [mode de Nucléation et le mode Aitken]. La distribution des aérosols selon la surface cumulée des particules est contrôlée par un mode intermédiaire [Le mode d'accumulation]. Enfin, la distribution selon la masse [ou en volume, proportionnelle à la masse] est contrôlée principalement par les particules les plus grossières, mais selon les environnements, la part de la masse attribuable à chaque mode est différente : celle du mode d'accumulation est plus importante dans les milieux urbains alors que celle du mode grossier prédomine dans le cas des aérosols désertiques.

La distribution granulométrique des particules dans la masse d'air peut évoluer par différents processus. À partir des précurseurs gazeux, des particules peuvent se former directement dans l'atmosphère par nucléation, formant de fines particules dites « secondaires ». Les précurseurs gazeux peuvent aussi se fixer sur des particules déjà existantes, par condensation [passage de la phase gaz à la phase liquide], sur une large gamme de taille. Enfin, la collision entre différentes particules peut conduire à la coagulation de celles-ci, formant alors un nouvel aérosol, avec une conservation de la

masse totale des particules au départ de la coagulation, mais une augmentation du diamètre de la nouvelle particule, et un mélange de leur composition.

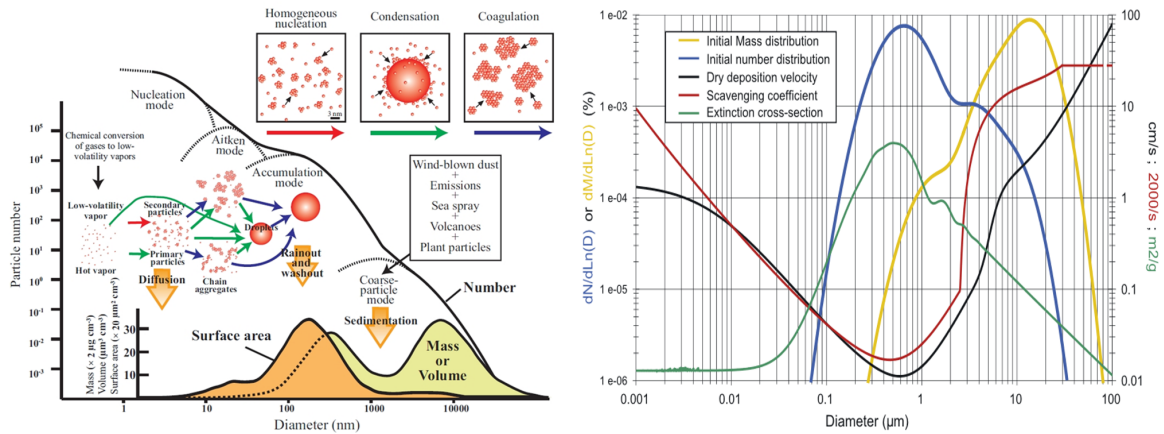


FIGURE I.9 – à gauche, distribution standard des aérosols en fonction de leur taille et processus physiques de productions et éliminations impliqués dans la dynamique des aérosols, adaptée depuis [Buseck and Adachi \[2008\]](#). À droite, variation de la vitesse de dépôt [sec et humide] des aérosols en fonction de leur diamètre, depuis [Foret et al. \[2006\]](#).

En fonction de leurs tailles, les aérosols vont se déposer selon des mécanismes et avec des efficacités différentes [Figure III.8]. Les plus petites des particules sont principalement déposées à la surface par diffusion dans la masse d'air selon le mouvement brownien. La sédimentation représente le processus d'élimination prédominant pour les particules les plus volumineuses. Cependant, l'efficacité et la fréquence des différents mécanismes de dépôt ne sont pas équivalentes, ce qui implique une forte variabilité du temps de vie des aérosols dans l'atmosphère en fonction de leur diamètre [Figure III.8]. En effet, les particules les plus grossières [diamètre supérieur à 2.5 µm] vont être déposées plus efficacement par sédimentation, et seront transportées sur des distances plus réduites que les aérosols les plus fins, plus aptes à persister dans l'atmosphère et à être transportés. Les faibles vitesses de dépôt sec des aérosols dans les distributions intermédiaires favorisent la présence des aérosols dans le mode d'accumulation. Ces aérosols sont déposés plus efficacement par voie humide, en étant lessivés par les hydrométéores durant leur chute [washout], ou entraînés par la chute des gouttes de pluies qui se sont formées par condensation de la vapeur d'eau à la surface des particules considérées au sein des nuages [rainout]. Au final, les aérosols se situant dans le mode d'accumulation sont ceux les plus à même de subsister dans l'atmosphère, car ce sont ceux qui sont déposés le moins efficacement par l'ensemble des différentes voies [Figure III.8]. Le plus couramment, les mesures et la réglementation des aérosols se fait pour deux classes de tailles, les PM_{2,5}, qui correspondent aux particules présentant un diamètre aérodynamique inférieur à 2.5 µm, et les PM₁₀, qui se rapportent aux particules présentant un diamètre aérodynamique inférieur à 10 µm. Cette discrimination granulométrique est imposée par la capacité des particules à se diffuser dans l'organisme qui varie en fonction de leurs tailles [voir section I.4.5, page 35 pour les effets sur la santé].

I.3.3 Mélange des aérosols

Le mélange des différentes composantes des particules forme la pollution particulaire. Les différents types d'aérosols peuvent se mélanger de différentes façons durant leur transport :

- ▶ Le cas d'un mélange externe, les espèces ne sont pas mélangées conjointement au sein de la même entité particulaire qui n'est constituée que d'une unique composante. Une situation plus fréquente proche des sources d'émissions et de particules qui n'ont pas été altérées par l'atmosphère.
- ▶ Le cas d'un mélange interne, où les espèces sont associées au sein des particules, qui se forment au cours des différentes interactions entre les polluants au cours de leur transport. Le mélange peut être homogène et les composantes sont alors mélangées dans les mêmes proportions, un cas idéal peu fréquent. De façon plus réaliste, le mélange des aérosols est hétérogène, avec un noyau d'une certaine nature à la surface duquel d'autres espèces condensent et enveloppent le noyau.

I.3.4 Les aérosols primaires

Il est possible de distinguer les différents aérosols primaires en fonction de leurs sources.

I.3.4.1 Les sources naturelles

Il existe une diversité d'aérosols d'origine naturelle, avec différentes spécificités [de mécanisme et de fréquence d'émissions, de réactivité chimique ...] et présents, à l'échelle globale, dans l'atmosphère en plus grande quantité que les aérosols liés aux activités humaines [Seinfeld and Pandis, 2006]. L'étude et la compréhension des différents processus liés aux aérosols d'origine naturelle, depuis les mécanismes d'émissions à ceux d'éliminations, sont motivées par leur aspect indissociable du fonctionnement du compartiment atmosphérique. Cette section présente les principaux aérosols primaires d'origine naturelle, avec une attention plus particulière pour les poussières minérales d'origine désertique [aussi désignées par l'anglicisme « dust »], une partie des recherches présentées dans ce document se concentrant sur cette espèce spécifiquement.

■ Les embruns marins :

Les embruns marins sont émis directement depuis les océans par différents processus physiques, comme l'érosion éolienne, ou l'intensité du mouvement de la houle, dépendants de la vitesse du vent. Les émissions marines incluent des aérosols organiques [des POA, émis dans les modes tailles les plus fins] depuis les régions présentant une activité biologique marine, ou des émissions sous forme de sel inorganiques [principalement $\text{NaCl}_{(p)}$, émis dans les modes d'accumulation et grossier]. Le volume global des émissions de sels marins est estimé autour de $10\,000\text{ Mt.y}^{-1}$ par Gong and Lazare [2002].

■ Les particules volcaniques :

L'activité volcanique est une source d'émissions de gaz et de particules atmosphériques en lien avec des processus de combustion. Ces émissions ont lieu lors des éruptions volcaniques, mais aussi de façon continue pour certains volcans. Intrinsèquement, les émissions volcaniques présentent un aspect très sporadique et très localisé avec parfois des événements d'une intensité extrême en terme de flux émis. Les aérosols volcaniques [aussi appelées cendres volcaniques ; Kiehl and Rodhe, 1995] sont constitués de produits et d'intermédiaires de combustion [black carbon – BC, 30 Mt.y^{-1}] et de particules soufrées, un élément fortement émis par l'activité volcanique le plus généralement sous forme gazeuse [H_2S , SO_2] et qui forme des aérosols secondaires [SO_4^{2-}] dans l'atmosphère [20 Mt.y^{-1} ; Kiehl and Rodhe, 1995]. Selon l'intensité et la puissance de l'éruption, les émissions peuvent atteindre la stratosphère, un compartiment dans lequel les polluants persistent plus longtemps, et peuvent influencer le climat [Shindell et al., 2003].

■ Les particules minérales d'origine désertique :

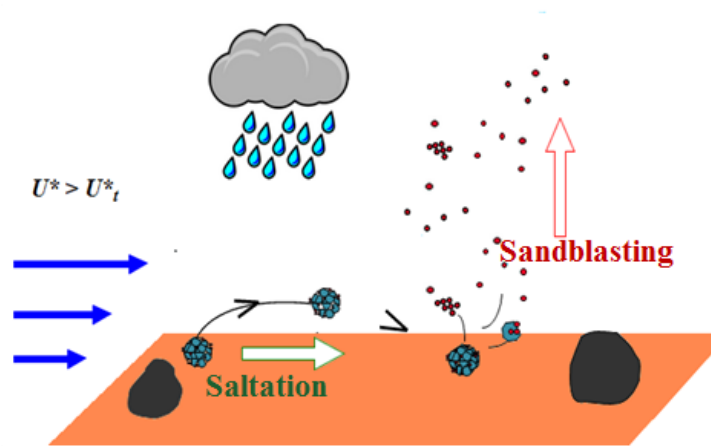


FIGURE I.10 – Schématisation des processus de saltation et de sandblasting permettant l'émission d'aérosols désertiques issus des agrégats du sol sous l'action du vent. Image adaptée depuis [Laurent \[2005\]](#).

Le cycle des particules minérales d'origine désertique peut se décomposer en trois phases classiques : l'émission depuis les surfaces continentales, le transport dans le compartiment atmosphérique, et enfin l'élimination de l'atmosphère par dépôt sec ou humide. Les aérosols désertiques en suspension dans l'air résultent de l'action des forces de frictions du vent sur les agrégats constitutifs du sol, provoquant leurs soulèvements, on parle alors d'érosion éolienne. Les poussières d'origine désertique, aussi désignées par l'anglicisme « dust », sont des particules primaires d'origine naturelle. En termes de composition, les aérosols désertiques sont représentatifs de la constitution minérale des sols parents, contenant principalement du silicium, de l'aluminium, du calcium et du fer. Les aérosols désertiques se retrouvent principalement dans les modes les plus grossiers de la distribution en taille des particules. L'aérosol désertique constitue la majeure partie de l'aérosol atmosphérique continental [IPCC, 2011], avec des émissions estimées autour de 2000 Mt.y^{-1} [Tanaka and Chiba, 2006; Zender et al., 2003; Tegen et al., 2004] à l'échelle globale. Les émissions d'aérosols désertiques sont conditionnées par les propriétés de surface des sols et la climatologie [i.e. intensité du vent et des précipitations]. L'émission de particules par l'érosion des sols par le vent est un phénomène à seuil, se produisant lorsque la force exercée par le vent sur les agrégats du sol est supérieure à l'ensemble des forces maintenant les agrégats au sol. Cela implique en plus de la variabilité spatiale des émissions, un caractère très sporadique de celles-ci, qui sont dominées par de courts événements d'émissions intenses discontinus. L'initiation des émissions est représentée par une vitesse de friction seuil du vent [U^{*T}] qui est reliée à différentes propriétés de la parcelle considérée. L'énergie nécessaire à la mise en mouvement des grains constitutifs du sol est fonction de leur granulométrie. Le contenu en eau du sol augmente aussi les forces de cohésion entre les agrégats. Les aspérités de surface, représentées par la hauteur de rugosité aérodynamique [Z_0 , Priestley, 1959] peuvent faire obstacle à l'écoulement du vent et induire une absorption d'une fraction de la quantité de mouvement du vent. L'émission d'aérosols désertiques se décompose en deux processus [Figure I.10], lorsque la vitesse de friction du vent est supérieure à la vitesse de friction seuil, les agrégats du sol mobilisables sont entraînés dans un mouvement horizontal dit « de saltation ». Ce mouvement des agrégats est défini par le flux de saltation intégré sur la verticale, qui peut se modéliser selon [White \[1986\]](#) :

$$F_h(D_p) = \frac{k\rho_a}{g}U^{*3} \left(1 - \frac{U^{*T}}{U^*}\right) \left(1 + \frac{U^{*T}}{U^*}\right)^2 \quad (\text{I.18})$$

où g représente l'accélération de la pesanteur, ρ_a la masse volumique de l'air, et k est une constante de valeur 1. La valeur U^{*T} est déterminée à partir de Z_0 et de la granulométrie des grains du sol [Marticorena and Bergametti, 1995]. Le flux de saltation reste nul jusqu'au dépassement par U^* de U^{*T} , et dès lors, est proportionnel au cube de la vitesse de friction. Les agrégats entraînés dans un mouvement de saltation retombent ensuite et sont susceptibles lors de la percussion du sol de libérer de fins agrégats par dislocation des grains, un phénomène appelé « Sandblasting » [Figure I.10]. Ces fins agrégats peuvent être entraînés dans la masse d'air, et constituent le flux vertical d'émissions des aérosols désertiques qui s'expriment à partir du flux de saltation [depuis Alfaro and Gomes, 2001, décrite en détail section IV.2.2.5, page 87] :

$$F_{v,m,i}(D_p) = \sum_{k=1}^{N_{class}} \frac{\pi\rho_p\beta p_i(D_p,k)_{m,i}^3}{6e_i} dF_h(D_p) \quad (\text{I.19})$$

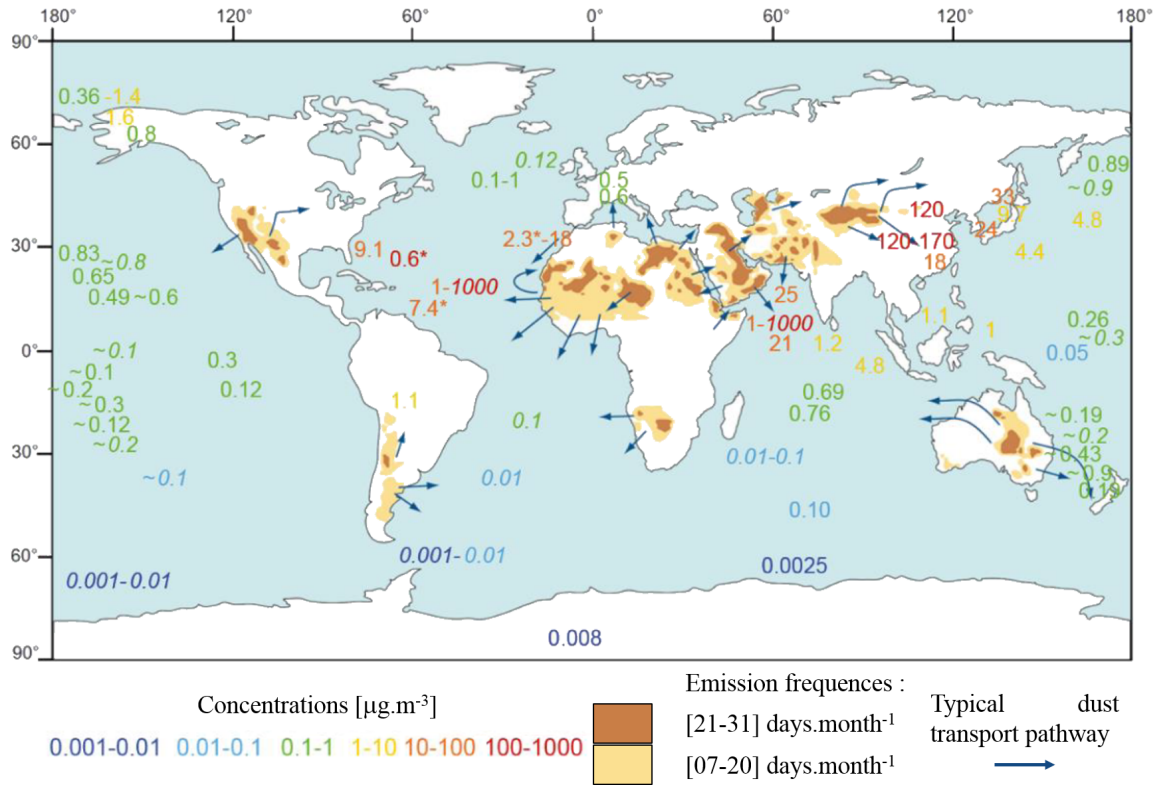


FIGURE I.11 – Carte des régions sources d'aérosols désertiques [Muhs, 2013 d'après Prospero et al., 2002]. Principales voies de transport de poussières indiquées par les flèches d'après l'interprétation d'images satellites MODIS Terra et Aqua de Muhs [2013], et concentrations typiques mesurées en zones océaniques et continentales d'après les données de Chester [1986] et Duce [1995]. Figure issue de Laurent [2018].

La Figure I.11 décrit la distribution spatiale des zones sources d'émissions de « dust » à l'échelle globale. Ces émissions sont localisées dans les régions désertiques autour des tropiques et sont associées aux zones de subsidence des branches de Hadley, qui correspondent aux régions les plus arides, aussi bien dans l'hémisphère nord que l'hémisphère sud. Les principales régions d'émission sont le Sahara, la péninsule arabique et les déserts de Chine et de Mongolie pour l'hémisphère Nord, les déserts australiens et la Patagonie pour l'hémisphère Sud. Plus de 80 % des émissions de « dust » se font depuis les déserts de l'hémisphère nord [Tanaka and Chiba, 2006]. Le temps de vie des aérosols désertiques oscille entre 1 journée et 1 semaine, ce qui permet un transport à l'échelle régionale [indiqué par les flèches Figure I.11], voire continentale, mais la distribution spatiale des poussières présente de fortes disparités, qui s'étendent sur 6 ordres de grandeurs [de $0.001 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ à $1000 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; Chester, 1986] avec une charge plus importante proche des zones d'émissions et des concentrations proches de valeurs nulles aux alentours des pôles, comme le représentent les concentrations sur la Figure I.11.

Si les propriétés des sols définissent les régions sujettes à l'érosion, le vent est le moteur de l'initiation de l'émission de poussières minérales. La variation de l'ensoleillement et les variations climatologiques saisonnières influent sur la dynamique atmosphérique et les distributions des vitesses des vents. Il en résulte que la saison du printemps est la saison préférentielle des émissions de dust dans les deux hémisphères, y compris pour les déserts asiatiques [Tanaka and Chiba, 2006; Laurent et al., 2006, 2008]. Cette période favorise les émissions de poussières de par les forts épisodes de vents, mais aussi du fait que la végétation, qui absorbe l'énergie éolienne, n'est pas autant développée que pendant la période estivale [Zhou et al., 2001].

I.3.4.2 Les sources anthropiques d'aérosol primaire

Les activités humaines [industrie, transport, production d'énergie] sont responsables d'une part importante des émissions primaires de particules dans l'atmosphère, notamment lors de processus de combustion, d'activités de constructions, de processus de re-suspension ou d'activités industrielles.

■ Les suies et les aérosols organiques primaires :

Les suies, aussi appelées « black carbon » [BC] sont des composés carbonés provenant de produits issus de processus de combustions complètes ou incomplètes, constituées d'un cœur de graphite [EC, *Elementary Carbon*] entouré de carbone organique [OC, *Organic Carbon*] et éventuellement de métaux. Leurs émissions anthropiques sont estimées à $12 \text{ Mt}_C\cdot\text{y}^{-1}$ par Lioussse et al. [1996].

Les aérosols organiques primaires [POA, *Primary Organic Aerosols*] sont émis directement dans l'atmosphère majoritairement par les activités humaines [$81 \text{ Mt}_C\cdot\text{y}^{-1}$; Lioussse et al., 1996] mais on retrouve aussi des POA issus de sources biogéniques, comme des feux de biomasse [$50 \text{ Mt}_C\cdot\text{y}^{-1}$; Kiehl and Rodhe, 1995].

■ Les poussières d'origine anthropique :

On retrouve en phase particulaire des particules d'origine anthropique, émises par les activités de construction, de l'usure des pneus et des freins automobiles, du secteur industriel, de la re-suspension de particules et estimées autour de $100 \text{ Mt}_C\cdot\text{y}^{-1}$ [Kiehl and Rodhe, 1995]. La composition de ces particules est un ensemble hétérogène, qui inclue des métaux et des composés organiques et inorganiques.

I.3.5 Les aérosols secondaires

L'atmosphère représente un véritable réacteur, permettant, au travers d'équilibres thermodynamiques et de réactions hétérogènes, des modifications de l'état chimique et physique de ses constituants. Cela peut notamment permettre la formation de nouvelles espèces particulières issues de la transformation physique et/ou chimique de précurseurs atmosphériques en différentes étapes :

- i) Emissions de précurseurs gazeux volatils dans l'atmosphère
- ii) Oxydation des composés volatils, formant des produits plus polaires et de plus faibles volatilités
- iii) Ces produits secondaires peuvent alors subir des processus de nucléation ou se condenser dans la phase particulaire [solide, liquide organique ou liquide aqueuse]

Ces particules dites secondaires peuvent être formées à partir de composés d'origine naturelle ou anthropique, de composition organique ou inorganique. Dans cette partie sont décrits les mécanismes qui mènent à la formation d'aérosols secondaires pour les fractions inorganiques et organiques.

■ Les aérosols organiques secondaires :

À partir des NMVOC émis par la biosphère et par les activités humaines, des aérosols dit « aérosols organiques secondaires » [SOA, *Secondary Organic Aerosols*] peuvent se former. Les NMVOC peuvent réagir avec de nombreux oxydants atmosphériques [OH, NO₃, O₃, O₂ . . .] pouvant former une multiplicité de composés organiques secondaires [SOC] avec différentes fonctionnalisations. L'ensemble des NMVOC et SVOC sont partagés selon un équilibre entre la phase gazeuse et la phase condensée. Un composé organique gazeux semi-volatile peut potentiellement s'adsorber ou se désorber de la phase particulaire, selon leurs volatilités, les conditions de température, de pression et les aérosols préexistants dans la parcelle. La volatilité d'un composé définit sa capacité à persister en phase gaz, ou à contrario, à se retrouver principalement [voire complètement] en phase particulaire. La pression de vapeur saturante [$P_{0(i,T,P)}$] correspond à la pression partielle maximale possible associée à un composé seul à l'équilibre entre les phases gaz/particule, pour une température et une pression données de la parcelle d'air. C'est un paramètre clé pour suivre la phase des composés organiques atmosphériques et qui permet de les représenter par classes de volatilité. La relation entre la pression de vapeur saturante et la température est donnée par l'équation :

$$P_{sat}(T_2) = P_{sat}(T_1) \times e^{\frac{\Delta H_{vap}}{R} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right)} \quad (\text{I.20})$$

avec T_1 et T_2 la température initiale et T_2 la température finale, P_{sat} la pression de vapeur saturante à T_1 et T_2 , R la constante des gaz parfaits et ΔH_{vap} enthalpie de vaporisation du corps pur. Avec l'augmentation de la température, la pression saturante et donc la volatilité d'une espèce augmente en même temps que l'énergie totale contenue dans le système. Dans la réalité, le mélange d'un ensemble de composés dans une masse d'air induit que les pressions partielles effectives de chaque composé sont déterminées en fonction de leurs proportions dans le mélange considéré. La Figure I.12a présente un cas qui illustre la loi de Raoult [Équation I.21], permettant de calculer la pression d'un gaz à l'équilibre entre la phase liquide et gazeuse, pour un mélange idéal.

$$P_i = \gamma_i \times x_i \times P_{sat} \quad (\text{I.21})$$

La loi de Raoult permet d'estimer la pression partielle [P_i] d'une espèce i en phase gaz, à partir de P_{sat} , de la fraction molaire i dans le mélange [x_i], et γ_i le coefficient d'activité de l'espèce i dans

la phase condensée. La pression de vapeur saturante P_A^0 étant supérieure à P_B^0 , on remarque que la pression partielle P_A va excéder P_B avant $x_A = x_B = 0.5$ [Figure I.12a].

D'autres facteurs influencent la répartition gaz/particule d'une espèce, comme la concentration totale d'aérosols préexistants dans le système et leurs distributions en taille, qui déterminent la surface d'interaction entre les constituants de la phase gaz et la phase particulaire, qui en augmentant, favorise la condensation et réduit la volatilité des VOC. La Figure I.12b illustre cet effet pour différentes concentrations types d'aérosols dans une parcelle d'air, pour une large gamme de composés de différentes pressions de vapeur saturantes. Pour les composés les moins volatils [ELVOC, *Extremely Low Volatile Organic Carbon*], P_{sat} [10^{-16} – 10^{-13} atm], l'ensemble des composés se retrouvent dans la phase particulaire, quand pour les composés présentant de fortes P_{atm} [10^{-4} – 10^{-1} atm], ils persistent en phase gazeuse. La production nette de SOA est estimée entre 510 – 910 $Mt_C.yr^{-1}$ à l'échelle globale [à partir d'une estimation de 1300 $Mt_C.yr^{-1}$ émis] [Seinfeld and Pandis, 2006], avec des concentrations pouvant aller de quelques $\mu g.m^{-3}$ [en environnement rural] à plusieurs dizaines de $\mu g.m^{-3}$ [en zone urbaine, en Asie].

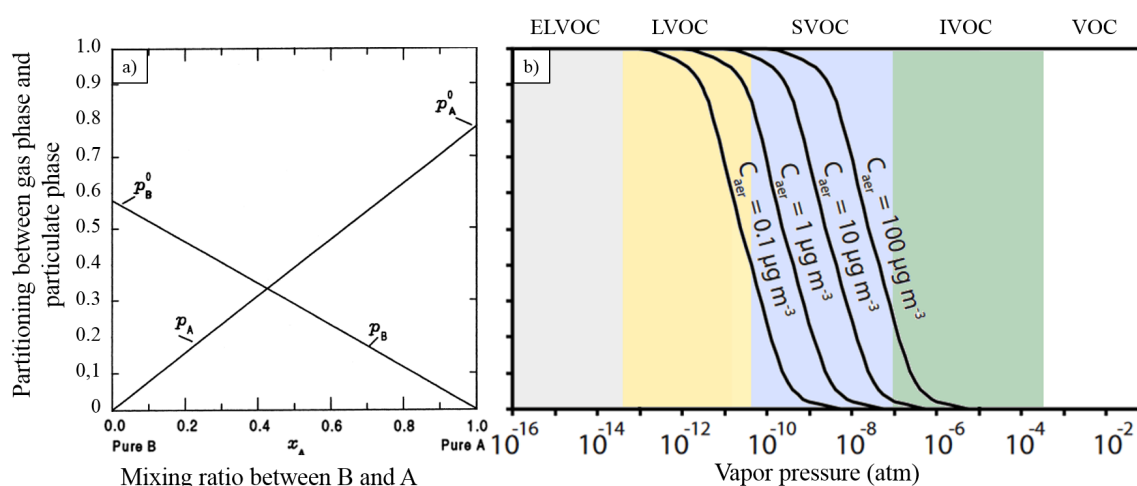
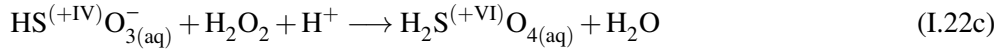
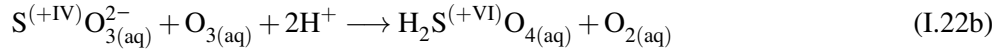


FIGURE I.12 – Répartition entre la phase gaz et particulaire d'un composé dans l'air a) En fonction de la fraction du composé A [x_A] dans un mélange idéal binaire avec un composé B, selon la loi de Raoult [depuis Seinfeld and Pandis, 2006]. b) En fonction de la pression de vapeur des NMVOC et pour différentes concentrations d'aérosols préexistants dans le système, adapté par Lannuque [2017] depuis Valorso et al. [2011]. ELVOC = Extremely Low VOC; LVOC = Low VOC; SVOC = Semi VOC; IVOC = Intermediate VOC.

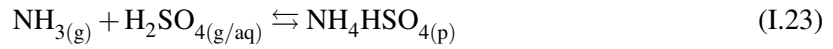
■ Les aérosols inorganiques secondaires :

Les principaux aérosols inorganiques secondaires sont les nitrates [$NO_{3(p)}^-$], les sulfates [$SO_{4(p)}^{2-}$], et l'ammonium [$NH_{4(p)}^+$]. Les sulfates en phase gaz se forment principalement à partir du dioxyde de soufre, qui sont oxydés dans l'atmosphère selon le mécanisme I.10 par le radical hydroxyl, formant le radical $HOSO_2$ puis le trioxyde de soufre en présence de vapeur d'eau [section I.2.1]. Le temps de vie du $SO_{2(g)}$ relatif à cette oxydation en phase homogène est assez long, compris entre une et deux semaines [Seinfeld and Pandis, 2006]. Le dioxyde de soufre $SO_{2(g)}$ peut aussi être oxydé par des mécanismes hétérogènes en lien notamment avec sa solubilité élevée. Lorsque le $SO_{2(g)}$ se solubilise [Équation I.10], le pH de la phase aqueuse détermine la forme sous laquelle le soufre prédomine [Équation I.22a]; il est oxydé principalement par l'ozone [majoritaire à $pH > 6$; Équation I.22b] et le

peroxyde d'hydrogène [majoritaire à $pH < 6$; Équation I.22c] dissout.

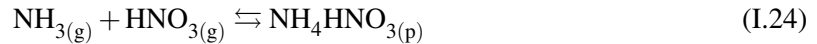


Cette voie hétérogène d'oxydation du $\text{SO}_{2(\text{g})}$ et de formation d'acide sulfurique est sensiblement plus rapide que la voie homogène, et est généralement la voie prédominante d'oxydation du SO_2 en acide sulfurique. La présence en phase gaz ou particulaire de l'acide sulfurique permet la formation de sulfates d'ammonium en phase particulaire via la neutralisation par l'ammoniac présent en phase gaz :



La neutralisation peut s'effectuer en phase gaz ou en phase aqueuse selon l'humidité relative [RH, rapport entre $P_{\text{H}_2\text{O}}$ et $P_{\text{H}_2\text{O}}^0$] et le point de déliquescence de l'aérosol [DRH, *Deliquescence Relative Humidity* – explications dans le paragraphe suivant]. L'ammonium et le sulfate se combinent en fonction de leurs proportions et de l'humidité relative sous plusieurs formes, comme $(\text{NH}_4)_3\text{H}(\text{SO}_4)_2$, $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, NH_4HSO_4 ou sous forme ionique $[\text{NH}_4^+, \text{SO}_4^{2-}]$ en phase aqueuse.

À ce système se rajoute un autre composé inorganique issu de précurseurs gazeux anthropiques, l'acide nitrique [HNO_3]. L'acide nitrique se forme à partir de l'oxydation du NO_2 par OH, [voir section I.1.2, page 14], principalement en phase gaz. Le nitrate d'ammonium peut alors se former dans les régions qui présentent de forts niveaux d'ammoniac et d'acide nitrique, selon la réaction :



Le nitrate d'ammonium se retrouve en phase solide ou liquide en cas de fortes humidités relatives, sous forme ionique $[\text{NH}_4^+; \text{NO}_3^-]$.

■ Partage de l'aérosol inorganique entre l'état solide et la phase liquide :

La plupart des particules inorganiques se caractérisent par une forte hygroscopicité [i.e. capacité à capter l'eau]. Le partage d'une espèce entre la phase solide et la phase liquide dépend de l'RH du milieu, plus l'humidité relative est importante, plus l'aérosol considéré se retrouvera en phase liquide. Pour chaque composé, il existe des valeurs d'humidité relative pour lesquelles l'ensemble du composé sera intégralement contenu dans la phase liquide ou la phase solide. Selon l'historique du milieu, on parle de point d'humidité relative de déliquescence [DRH, Tableau I.1] ou d'efflorescence [ERH, *Efflorescence Relative Humidity*]. Lorsque l'humidité relative augmente, DRH correspond à la valeur d'humidité relative au-dessus de laquelle l'ensemble du composé passera de la phase solide à la phase liquide. À l'inverse, lorsque l'humidité diminue, ERH correspond à la valeur d'humidité relative – inférieure à DRH, en dessous de laquelle l'aérosol passe d'un état liquide à un état solide.

I.3.6 Composition des aérosols et variabilité spatiale

À l'échelle du globe, les contributions et teneurs des différentes composantes de l'aérosol présentent une importante variabilité, comme le résume la Figure I.13 [IPCC, 2013]. Les niveaux de

TABLE I.1 – Humidité relative de déliquescence de différents électrolytes en solutions à 298 °K.

| Électrolytes | DRH[%] |
|--|--------|
| $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ | 79.9 |
| $(\text{NH}_4)_3\text{H}(\text{SO}_4)_2$ | 69.0 |
| NH_4NO_3 | 61.8 |
| NH_4HSO_4 | 40.0 |

PM_{10} en Chine en milieu urbain sont parmi les plus élevés dans le monde, seulement comparables aux niveaux mesurés dans les milieux urbains du Sud Est Asiatique [Selon la Figure I.13]. L'étude de la pollution atmosphérique est particulièrement complexe, car on retrouve dans le mélange de pollution particulaire chinois des teneurs élevées de nombreuses composantes de l'aérosol, issues d'un ensemble divers de sources [Naturelles ou anthropiques, de sources primaires ou secondaires]. On remarque, en Chine, en plus des niveaux de particules d'origines anthropiques très élevés, des niveaux de particules minérales [Combinaison de sources anthropiques et d'émissions éolienne depuis les déserts] comparables à ceux observés en Afrique, proche du Sahara, la première région d'émission de dust.

I.4 Impacts environnementaux des polluants atmosphériques

Les différentes espèces présentes dans l'atmosphère sont constamment en interaction avec leurs environnements. Selon les propriétés des polluants considérés, leurs localisations ou leurs temps de vie, leurs impacts peuvent être de différentes natures et intensités, sur la visibilité, la santé des populations exposées, ou à une échelle globale sur le système climatique. Ces impacts motivent l'étude des différentes composantes de la pollution atmosphérique, des procédés contrôlant leurs productions, à la quantification de leurs effets jusqu'aux mises en place de réglementations permettant la réduction de ces impacts.

I.4.1 Propriétés optiques des aérosols

L'atmosphère et ses constituants sont perpétuellement soumis au rayonnement provenant du soleil, entrant dans le système terrestre, et au rayonnement tellurique, émis par la surface de la terre et par l'atmosphère elle-même. Des rayonnements de différentes énergies se propagent alors dans le compartiment atmosphérique, couvrant une gamme large du spectre électromagnétique, des Ultra-violet [UV] provenant du soleil, aux rayonnements infra-rouge [IR] terrestres et atmosphériques. Les aérosols et gaz atmosphériques [même présents à l'état de traces] participent, de par leurs propriétés optiques, aux interactions, de différentes natures [e.g. diffusion élastique, inélastique, absorption ...], entre les rayonnements qui parcourent l'atmosphère et la matière.

Une appréciation directe de ces interactions est la réduction de la visibilité [i. e. portée visuelle] qui est induite par l'extinction de la lumière par les aérosols, qui présente à la fois un impact psychologique sur les populations mais peut également affecter les activités humaines, comme le trafic aérien qui peut être interrompu, comme à Pékin lors de l'épisode de dust du 4 mai 2017; au plus fort de l'évènement, la concentration de $\text{PM}_{2.5}$ a atteint $684 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ [US Embassy and consulates,

I.4 Impacts environnementaux des polluants atmosphériques

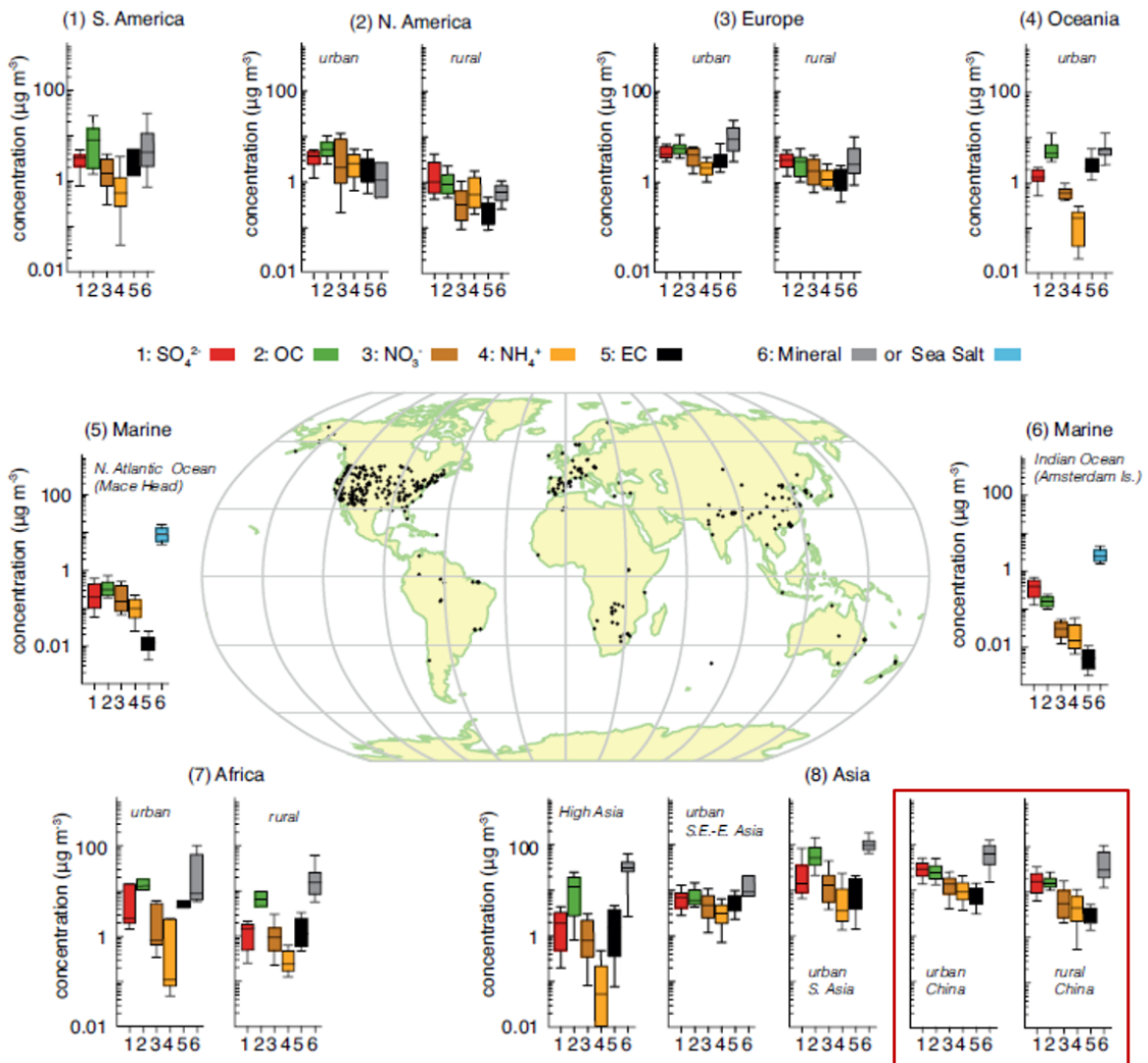


FIGURE I.13 – Variabilité des concentrations et de la distribution des PM_{10} dans le monde, extrait de *IPCC [2013]*.

Figure I.14]. La visibilité dans l'atmosphère se réduit avec l'augmentation de la teneur en particules [Han et al., 2012], et la diffusion de la lumière par des particules comprises dans la gamme de taille [$0.1 \mu\text{m} - 1 \mu\text{m}$], proches de l'ordre de grandeur des longueurs d'ondes visibles [$0.4 \mu\text{m} - 0.8 \mu\text{m}$], est plus efficace [théorie de mie].

Les propriétés optiques des aérosols permettent aussi de les observer à partir de grandeurs caractéristiques qui intègrent les interactions rayonnement matière, et qui sont utilisées plus tard dans la thèse. La combinaison des effets d'absorption et de diffusion du rayonnement est définie comme l'extinction totale du signal, σ_{ext} [en m^{-1}]. Il est possible d'intégrer sur l'ensemble de la colonne l'extinction des rayonnements par les aérosols, en calculant l'épaisseur optique [AOD, *Aerosol Optical*



FIGURE I.14 – Extinction du rayonnement solaire et réduction de la visibilité de la ligne d'horizon de la ville de Pékin induite par les aérosols. À gauche, par temps clair [25/03/2017], à droite, sous l'effet d'une tempête de poussière minérale désertiques [04/05/2017]. Depuis nytimes.com [consulté le 12/08/2018], photo : Nicolas Asfour/Agence France-Presse.

Depth] associée à une section verticale de l'atmosphère :

$$AOD(\lambda) = \int_{z=0}^{z_{max}} \sigma_{ext}(z, \lambda) dz \quad (I.25)$$

L'AOD varie en fonction de la longueur d'onde du rayonnement considéré, λ , et de la distribution granulométrique des aérosols. Pour un mélange de particules fines, l'extinction sera plus forte pour les longueurs d'onde les plus faibles du rayonnement visible, et à l'inverse, pour un mélange de particules plus grossières, l'extinction sera plus forte pour les longueurs d'onde les plus élevées. En conséquence, il est possible d'obtenir une information sur la distribution granulométrique des aérosols présents dans une colonne atmosphérique en mesurant l'AOD à plusieurs longueurs d'onde et en calculant le rapport des AOD selon la définition du coefficient d'Ångström :

$$\alpha = - \frac{\ln \left(\frac{AOD_1}{AOD_2} \right)}{\ln \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)} \quad (I.26)$$

AOD_1 et AOD_2 représentent les épaisseurs optiques aux longueurs d'onde λ_1 et λ_2 , ou λ_1 est inférieure à λ_2 [en nm]. Pour les aérosols les plus fins, AOD_1 sera supérieure à AOD_2 . À l'inverse, pour les aérosols les plus grossiers, AOD_1 sera inférieure à AOD_2 [dans le visible]. La valeur du coefficient d'Ångström augmente pour des distributions d'aérosols fins, et diminue pour des distributions d'aérosols plus grossiers. Il est admis que les valeurs de coefficient d'Ångström inférieur à 0.4 correspondent à des mélanges d'aérosols majoritairement grossiers, comme les dust.

La Figure I.15 indique pour la même période la valeur du coefficient d'Ångström, qui qualifie la granulométrie des aérosols dans la colonne atmosphérique. Au-dessus des régions désertiques de la Chine et de la Mongolie, les valeurs des coefficients d'Ångström sont sensiblement plus faibles qu'aux abords des régions densément peuplées, à l'Est ou au centre de la Chine. La granulométrie des aérosols au-dessus des déserts est donc plus grossière, ce qui est caractéristique des aérosols primaires naturels comme les particules minérales désertiques.

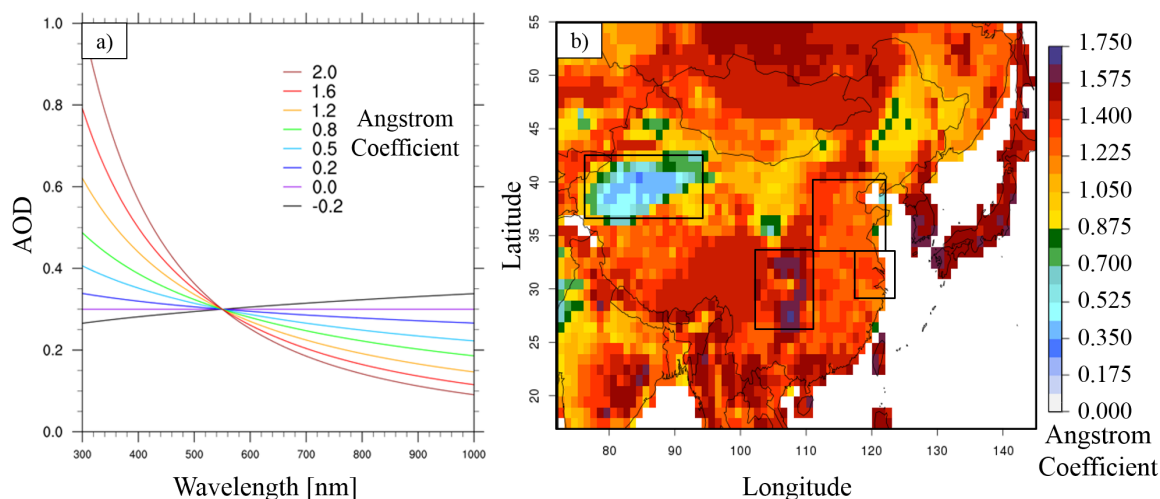


FIGURE I.15 – a) Variation de l'AOD en fonction de la longueur d'onde pour différents coefficients d'Ångström, depuis *Nabat [2014]*. b) Observation des colonnes atmosphériques au-dessus de la Chine par le satellite MODIS entre 2001 et 2017. Coefficient d'Ångström. À l'Ouest, le Taklamakan, au Nord-Est la région « North China Plain » [NCP] et à l'Est la région de Shanghai. Données téléchargées depuis la plateforme Giovanni, développée par NASA GES DISC [*Acker and Leptoukh, 2007*].

I.4.2 Impact radiatifs des aérosols et conséquences sur le climat

Le climat correspond aux conditions météorologiques intégrées sur de longues périodes [au minimum 30 ans] sur une région donnée. Le climat de la Terre est la traduction de l'équilibre entre les flux d'énergie entrant et sortant. L'atmosphère joue un rôle central dans la régulation du climat, se trouvant au centre des échanges d'énergie entre le système terrestre et l'extraterrestre.

La modification de l'équilibre entre les flux d'énergie entrant et sortant de l'atmosphère par les polluants atmosphériques est représentée sous forme de « forçage radiatif » [$\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$] pouvant être négatif [i.e. qui participe à un refroidissement de l'atmosphère] ou positif [i.e. qui participe à un réchauffement de l'atmosphère]. De fait, les gaz à effet de serre [CO_2 , CH_4 , O_3 , N_2O , H_2O ...], transparents au rayonnement incident solaire, mais capables d'absorber une partie du rayonnement tellurique [IR] conservent une partie de l'énergie qui aurait dû s'échapper, et induisent un réchauffement. Les aérosols ont la particularité de contraindre conjointement les flux entrant et sortant, pouvant entraîner un réchauffement ou un refroidissement de l'atmosphère. Les effets directs des aérosols sur le rayonnement [permettant la rétrodiffusion du rayonnement] solaire vers l'espace entraînent un forçage radiatif négatif et par voie de conséquence un refroidissement du système climatique. À l'inverse, l'absorption par les particules des rayonnements entraîne un réchauffement dans la masse d'air contenant les aérosols, soit un forçage positif sur le système. Cette capacité fait de l'aérosol atmosphérique

une composante importante dans le système climatique et justifie l'intérêt de leurs études et incorporations aux modèles radiatifs. Les composants de l'aérosol comme les sulfates, et les nitrates vont principalement induire un forçage radiatif négatif, en diffusant le rayonnement. En opposition, le « black carbon » est la composante particulaire la plus absorbante, et un contributeur significatif au forçage radiatif global [Figure I.16]

Aux effets directs des aérosols sur les rayonnements présentés plus tôt [diffusion, absorption], s'ajoutent les effets dits « indirects », comprenant leurs interactions avec les nuages, qui sont eux aussi en interaction avec les différents rayonnements électromagnétiques. Les aérosols interagissent et font partie intégrante du cycle de formation et disparition des nuages. Ils sont à l'origine de leurs formations, en faisant office de noyaux de nucléation ou de glaciation [CCN, *Cloud Condensation Nuclei*, ICN *Ice Condensation Nuclei*] et la variabilité de la teneur en aérosol dans les nuages modifient leurs caractéristiques, pouvant déterminer la taille du nuage [e.g. son extension verticale], sa durée de vie ou encore ses propriétés optiques [albedo]. Les nuages étant capables de rétrodiffuser le rayonnement solaire et d'absorber le rayonnement tellurique, ils sont un élément essentiel du système climatique et la modification de leur cycle de formation par les aérosols induit un effet radiatif dit indirect.

Depuis 1990, L'IPCC [*Intergovernmental Panel on Climate Change*] a eu pour objectif d'étudier et de comprendre les modifications du climat enregistrées depuis la fin du 18^{ème} siècle. L'organisme a publié un total de 6 rapports, dont le dernier [à ce jour] est paru en octobre 2018. L'étude et la caractérisation des différents effets radiatifs des constituants de l'atmosphère a permis d'estimer l'amplitude des forçages par type d'aérosols et de les répertorier, comme présenté sur la Figure I.16. [Li et al. \[2016\]](#) estime à 10 % la contribution de la Chine au forçage radiatif total [Figure I.16], une valeur relativement faible due aux fortes quantités de sulfates et nitrates attribuables aux émissions chinoises et qui induisent un forçage radiatif négatif.

Comme évoqué précédemment, le caractère absorbant ou diffusant des aérosols dépend de leurs compositions chimiques, tailles et formes. Le carbone suie présente une forte capacité à absorber le rayonnement et à induire un forçage radiatif positif [0.64] très marqué alors que les autres espèces principales de la phase particulaire diffusent majoritairement le rayonnement, ce qui conduit un refroidissement [-0.41].

I.4.3 Impact des composés traces de l'atmosphère sur les écosystèmes

Certains composants traces de l'atmosphère ont également la capacité d'interagir avec les écosystèmes. Ainsi, de par ses propriétés oxydantes, l'ozone est susceptible d'interagir avec les systèmes végétaux, et de réduire l'efficacité de la photosynthèse et s'introduire dans les organismes végétaux via leurs stomates, entraînant des pertes de production agricole, chiffrées à plusieurs milliards de dollars [[Jud et al., 2016](#)].

L'émission d'aérosols minéraux désertiques peut entraîner un appauvrissement en nutriment des sols, pouvant atténuer leur fertilité et accentuer leur désertification. À l'inverse, le transport des particules sur de longues distances jusqu'à des environnements marins ayant une faible activité biologique, et le dépôt d'aérosols désertiques constitue alors une source d'enrichissement du milieu en éléments nutritifs comme le Fer ou le phosphore, permettant le développement de la productivité biologique marine.

Le dépôt d'aérosols tels que les sulfates et nitrates d'ammonium ainsi que les gaz contenant de

I.4 Impacts environnementaux des polluants atmosphériques

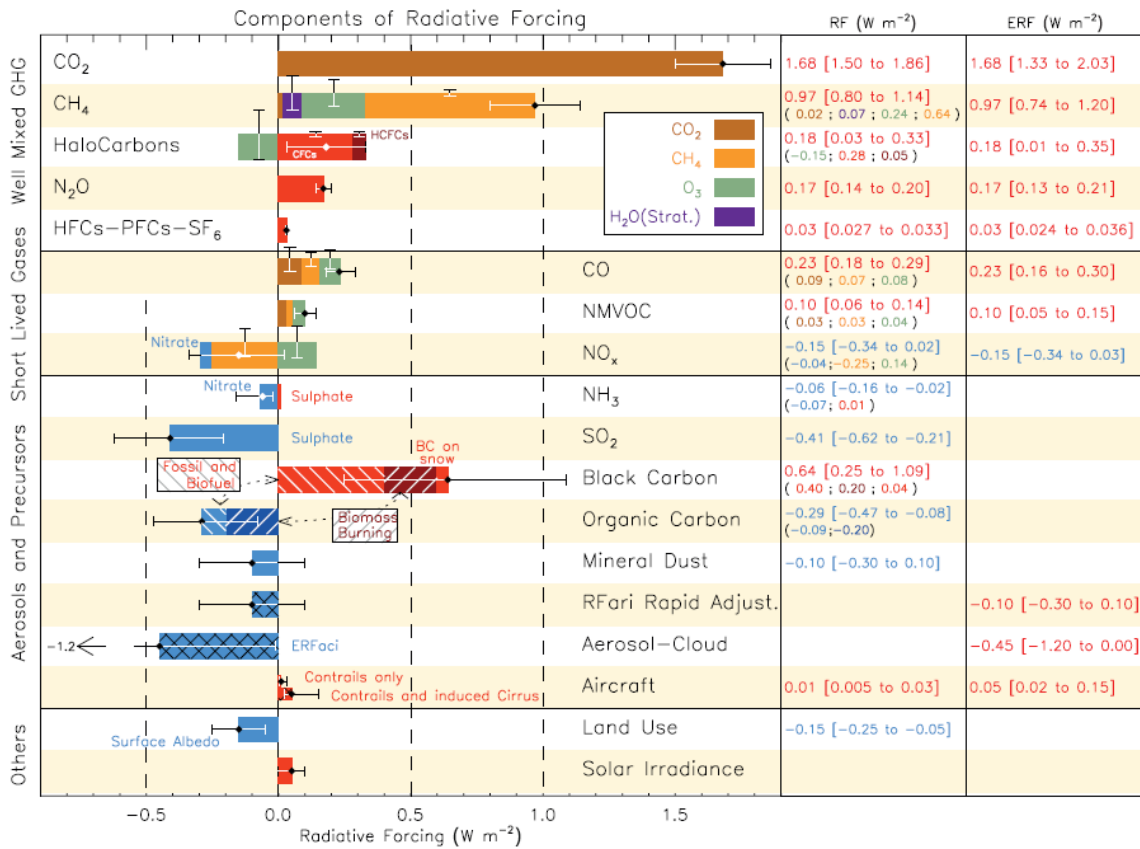


FIGURE I.16 – a) Bilan radiatif des principaux constituants de l'atmosphère impliqués dans des procédés radiatifs responsables de forçages climatiques, depuis IPCC [2013] et b) Contribution relative de la Chine aux forçages par constituants [Li et al., 2016].

L'azote peut modifier les équilibres chimiques des milieux aquatiques ou des sols, pouvant entraîner une acidification des environnements ou une saturation en nutriments [eutrophisation des sols]. En environnement urbain, les aérosols vont avoir un impact directement observable sur le bâti en se déposant sur les surfaces, ce qui entraîne un noircissement et une altération des matériaux.

I.4.4 Impact sanitaire

Les impacts sanitaires induits sur les populations par la pollution atmosphérique est une préoccupation centrale des études liées à celle-ci, et qui a entraîné un encadrement législatif dans la plupart des pays du monde.

I.4.5 Interactions avec les organismes vivants

Les gaz et les aérosols sont principalement intégrés à l'organisme par les voies respiratoires. La propagation dans le système respiratoire va dépendre de la capacité des polluants à se diffuser dans l'organisme, et à atteindre les zones les plus profondes du système respiratoire est fonction de leur taille. Il est communément admis que la capacité de propagation d'un polluant [plus spécifiquement pour les aérosols] augmente avec la diminution de la taille. Les particules les plus grossières se re-

trouvant donc stoppées au niveau des parois nasales, lorsque les plus fines pourront se diffuser dans l'appareil cardio-vasculaire via les alvéoles pulmonaires [Figure I.17].

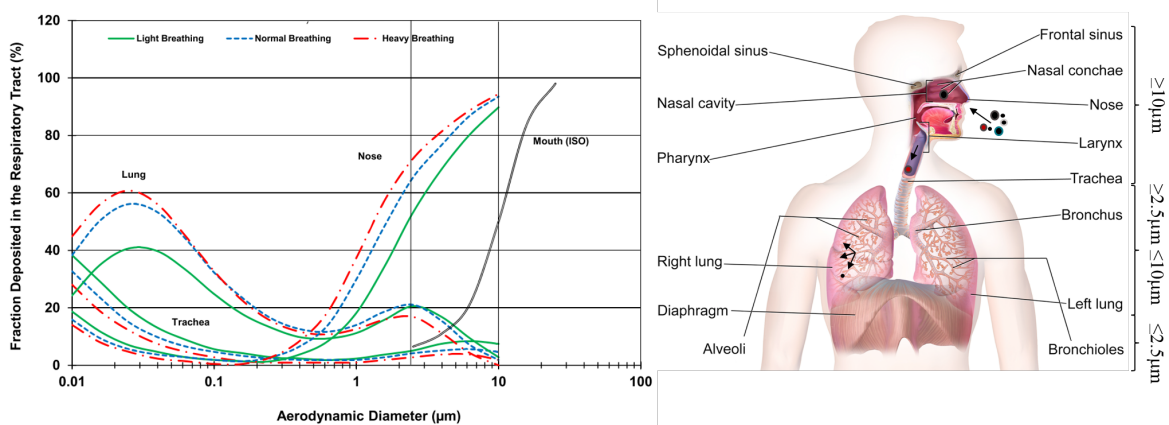


FIGURE I.17 – à gauche, fraction d'aérosols déposée dans les différents organes du système respiratoire selon leur granulométrie et pour différents rythmes de respiration, depuis [Cao et al. \[2013\]](#). À droite, diffusion des aérosols dans les différents organes du système respiratoire.

En plus de leurs propensions à se diffuser en profondeur dans le système respiratoire, l'impact des aérosols sur l'organisme dépend de leurs capacités à persister dans les organes, et de la capacité des poumons à éliminer ces différents types d'aérosols. La bioaccumulation des aérosols dépend principalement de leur caractère hydrophile ou hydrophobe, les particules les plus solubles dans l'eau pouvant plus facilement être extraites de l'organisme, quand les moins solubles s'accumulent dans les tissus gras [Kampa and Castanas, 2008].

I.4.6 Estimation du coût humain

De nombreuses études toxicologiques et épidémiologiques sur l'exposition et l'impact des populations à la pollution permettent de mieux quantifier les retombées sanitaires de la pollution atmosphérique. En 2016, une étude de l'Organisation mondiale de la Santé [WHO, *World Health Organization*] estime, pour l'année 2012, que 90 % de la population mondiale réside dans des environnements ne respectant pas les minima recommandés par la WHO [$PM_{2.5}$: $10 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; PM_{10} : $20 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, en moyenne annuelle]. À l'échelle mondiale un total de 3 millions de décès prématurés et un total de 85 millions d'années de vie perdues seraient imputables à la détérioration de la qualité de l'air extérieur. Une étude la Banque mondiale [[The World Bank et al., 2016](#)] estime pour 2013 un total de 5.5 millions de décès prématurés imputables à la pollution de l'air extérieur et intérieur [1 décès sur 10]; une valeur en augmentation comparée à 1990 [4.8 millions] mais en diminution lorsqu'elle est rapportée à la population mondiale totale [population mondiale en 1990 : 5.3 milliards ; population mondiale en 2013 : 7.2 milliards].

La pollution atmosphérique est à l'origine de la manifestation de différentes pathologies, induites par une exposition aigüe ou chronique aux polluants, provoquant un stress oxydatif ou une inflammation des cellules de l'organisme. On recense notamment des maladies coronariennes [IHD, *Ischemic Heart Disease*] ou des déficits neurologiques soudains d'origine vasculaire, reconnus couramment sous l'appellation d'accident vasculaire cérébral [CVA ; *CerebroVascular Accident*], qui sont responsables de 62 % des décès liés à la détérioration de la qualité de l'air. Le reste des décès imputables

à la pollution atmosphérique se traduit par des maladies respiratoires, comme l'infection aiguë des voies respiratoires inférieures [ALRI, *Acute Lower Respiratory Disease*] – comme la bronchite ou la pneumonie, l'obstruction chronique des voies aériennes et des poumons [COPD, *Chronic Obstructive Pulmonary Disease*] – une inflammation des voies respiratoires supérieures, ou encore des cancers du poumon et cancer bronchique [Figure I.18a, [World Health Organization, 2016](#)]. La pollution atmosphérique est aussi responsable de différentes pathologies respiratoires, neurologiques ou autre, responsables de désagréments sans entrainer de décès.

La Figure I.18 17b permet d'apprécier la distribution des décès liés à la pollution atmosphérique par pays en fonction de leur revenu national brut [GNI, *Gross National Income*] par habitant. Les populations asiatiques, notamment celles d'Inde et de Chine, sont les plus impactées par les problèmes de pollution de l'air. De fait, les régions présentant le plus de décès sont celles où les populations sont exposées aux niveaux de pollution les plus forts, notamment en $PM_{2.5}$. De plus, la région asiatique présente entre 2008 et 2013 une tendance à la détérioration de la qualité de l'air. En effet, une large part de la population [60 %] a constaté une augmentation des niveaux de pollution auxquels elle se retrouve exposée, pour le reste de la population [40 %] constatant des niveaux d'exposition stables ou en diminutions. À l'inverse, en Europe, une majorité de la population [90 %] est confrontée à des niveaux de pollution stables ou en diminutions pour cette même période 2008 – 2013 en ce qui concerne les polluants réglementés comme les $PM_{2.5}$, le SO_2 et le NO_2 .

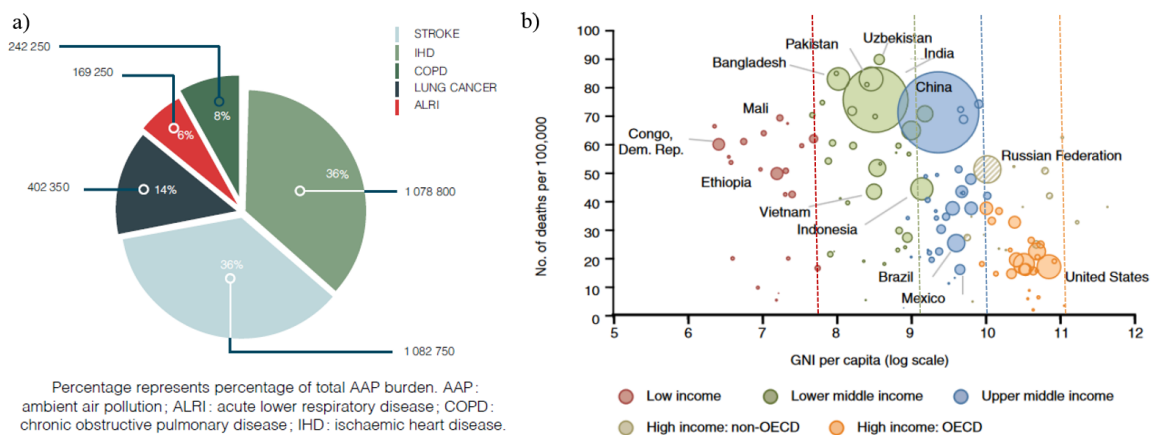


FIGURE I.18 – Rapport de la WHO, a) Répartition des décès imputables à la pollution atmosphérique par pathologies, [[World Health Organization, 2016](#)] b) Répartition des décès, normalisée par rapport à la population, imputables à la pollution atmosphérique par pays en fonction de leurs GNI, la dimension des cercles étant proportionnelle au nombre de décès total [[The World Bank et al., 2016](#)].

Pendant, l'évaluation de la toxicité des mélanges de polluants gazeux reste une question en débat dans la communauté scientifique. Si la granulométrie est un paramètre déterminant de la propagation des aérosols dans le système respiratoire jusqu'au système cardio-vasculaire, il est admis que toutes les $PM_{2.5}$ ne présentent pas les mêmes risques pour l'organisme selon leur composition, de leur état de mélange, et que les seuls critères de masse et de taille des aérosols ne permettent pas de discriminer efficacement leurs effets [[Metzger et al., 2004](#); [Jia et al., 2017](#); [Peixoto et al., 2017](#)].

I.4.7 Quels coûts économiques et sociétaux

Les différents impacts de la pollution atmosphérique entraînent des pertes ou coûts monétaires [pertes agricoles, coût liés à la santé et aux soins], qui restent néanmoins difficiles à quantifier. La Banque mondiale estime pour 2013, le coût sociétal global de la pollution à 5 000 milliards US\$ [PPP - à parité de pouvoir d'achat entre les pays], soit une augmentation de 100 % par rapport à 1990 [2 500 milliards US\$]. Cet impact n'est pas prononcé de façon équivalente entre les différents états, les pays aux revenus moyens sont les plus impactés [6.7 % du GDP], lorsque les pays de l'OCDE présentent les impacts les moins conséquents [3.7 % du GDP], comme présenté sur la Figure I.19 [The World Bank et al., 2016]. Soit une perte estimée de 78 milliards d'euros pour la France [3.7 % du GDP 2013, $2\,100 \times 10^9$ euros], une valeur comprise entre celles recensées par le rapport N°610 du Sénat de 2015, qui estiment en compilant plusieurs études un coût estimé entre 40 et 120 milliards d'euros [Aïchi, 2015].

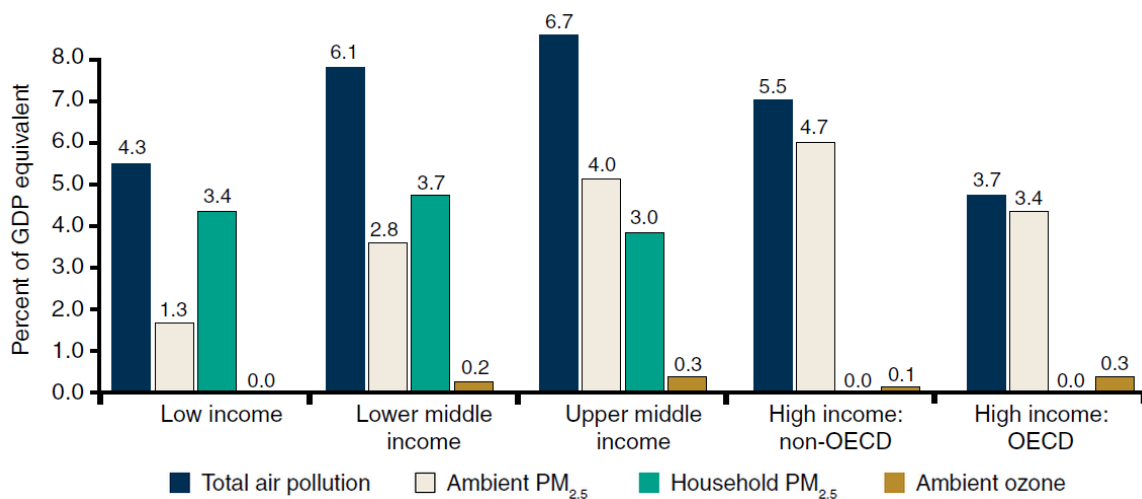


FIGURE I.19 – Coût sociétal de la pollution atmosphérique exprimé en pourcentage du GDP par groupes de revenus.

■ Impact sanitaire et économique de la pollution atmosphérique en Chine :

La société chinoise est confrontée depuis plusieurs décennies à un accroissement continu des teneurs en polluants atmosphériques et à l'exposition de sa population. La population chinoise s'étant nettement regroupée dans de grandes mégapoles, elle se retrouve aussi particulièrement affectée par les multiples risques sanitaires inférés à la pollution atmosphérique. Rohde and Muller [2015] estiment que pour l'année 2014, un total de 1.6 millions de décès prématurés attribuables à la détérioration de la qualité de l'air, un chiffre similaire à celui de The World Bank et al. [2016] qui estiment en 2013 le nombre de décès à 1.62 millions. Ces chiffres prennent en compte la pollution de l'air extérieur et la pollution de l'air intérieur, la WHO estime pour la pollution de l'air ambiant en Chine un total de 1 million [+/- 0.2 M] de décès prématurés et 23 millions d'années perdues pour la population pour l'année 2012. En PRC 44 % des décès sont liés à des accidents vasculaires cérébraux, 31 % à des maladies respiratoires, et 25 % à des maladies coronariennes World Health Organization [2016]. Selon la The World Bank et al. [2016], le coût de la pollution atmosphérique à l'échelle de la PRC serait de 9.9 % du GDP en 2013, soit environ 960 milliards de dollars.

Conclusion

Ce chapitre nous a permis d'explorer les caractéristiques de l'atmosphère, de la pollution atmosphérique, qu'elle soit particulaire ou gazeuse, ainsi que les multiples impacts des polluants sur les environnements et sociétés. Après cette première approche générale du sujet de thèse, les chapitres suivant se concentrent sur une description du pays cible et de l'état de la pollution.

La République populaire de Chine, un contexte particulier

*« Je ne cherche pas à connaître les
réponses, je cherche à comprendre
les questions. »*

CONFUCIUS, ~ -500 Av. J.C.

Sommaire

| | | |
|--------|---|-----------|
| II.1 | La Chine, un géant mondial | 43 |
| II.2 | De la Chine impériale à la PRC actuelle, un pays plusieurs fois millénaire. | 43 |
| II.2.1 | La Chine impériale, société millénaire. | 43 |
| II.2.2 | Une guerre civile de plus de 30 ans | 45 |
| II.2.3 | La proclamation de la PRC et le modèle socialiste chinois | 45 |
| II.2.4 | Une Chine ouverte, une Chine nouvelle. | 46 |
| II.2.5 | La Chine de Xi Jinping | 46 |
| II.3 | L'évolution de la position de la Chine dans l'économie mondiale. | 47 |
| II.3.1 | Une addiction de la Chine à l'égard du charbon | 48 |
| II.4 | La population chinoise, un cas unique | 49 |
| II.4.1 | De l'explosion des naissances à une démographie sous contrôle | 49 |
| II.4.2 | Une urbanisation rapide | 50 |
| II.5 | La crise environnementale en Chine, une crise globale | 51 |
| II.5.1 | Un impact global | 51 |
| II.5.2 | L'action politique chinoise face aux défis environnementaux | 53 |
| II.5.3 | Mise en place de réglementation : | 53 |
| II.5.4 | Une implication et une demande de la population | 54 |

Pour appréhender la problématique de la pollution atmosphérique appliquée à la Chine et surtout la façon de la combattre, il est intéressant et parfois nécessaire de comprendre comment ce pays a évolué durant les derniers siècles, et notamment durant le 20^{ème} siècle, porteur de nombreuses révolutions. La première partie de ce chapitre a pour objectifs de décrire les périodes caractéristiques de l'histoire de la Chine et les transformations que la société chinoise a traversées, entre rupture politique, crises démographiques et évolutions des modes de vie. Ce chapitre introduit en premier lieu les spécificités géographiques et climatiques de la Chine, avant de décrire brièvement l'histoire politique de la Chine ainsi que l'évolution de la Chine dans l'économie mondiale. Cette approche permet une mise en perspective de son histoire récente et des déterminants de la situation environnementale actuelle, et de la gestion par l'administration chinoise de ces enjeux.

II.1 La Chine, un géant mondial

La République populaire de Chine est le pays le plus peuplé de la planète avec presque 1.4 milliard d'habitants en 2017 pour une superficie d'environ 9.6 millions de km², ce qui en fait le second plus grand territoire derrière la fédération de Russie [en considérant la superficie continentale uniquement] et les frontières de la Chine sont partagées avec 14 voisins. Son influence politique sur la scène internationale est importante, notamment de par sa position de membre permanent du Conseil de sécurité de l'Organisation des Nations Unies [UN, *United Nation*]. L'espace chinois présente de nombreuses spécificités géographiques [II.1a] et une importante disparité dans la répartition de sa population. Cette répartition s'explique en partie par les nombreuses spécificités géographiques et climatiques que présente la PRC. Au Nord-Ouest de la Chine [dans les provinces du Xinjiang et de la Mongolie intérieure, voir II.1c], où les précipitations à l'année sont très faibles [Figure II.1b] et les ressources en eaux limitées, La Chine présente sur son territoire de nombreux déserts [le désert du Taklamakan et une partie du désert de Gobi pour les principaux] qui couvrent 12.5 % de l'espace chinois. On retrouve aussi au Sud-Ouest du territoire chinois la chaîne de l'Himalaya et à l'Ouest la chaîne de montagne du Karakoram. Ces deux massifs contiennent les 14 sommets de la terre s'élevant à plus de 8000 m d'altitude et sont co-administrés par plusieurs pays [la Chine, le Pakistan, l'Inde, le Népal et d'autres]. Au total, 40 % du territoire chinois se trouve au-dessus de 2000m d'altitude [Guermond, 2007]. Ces environnements arides ou montagneux réduisent les possibilités de production agricole et d'établissement des populations, qui se sont principalement regroupées sur la côte Est du pays où l'on retrouve les plus grandes agglomérations. La Figure II.1c] permet de repérer la localisation géographiques des principales villes Chinoises ainsi que le découpage administratif de la Chine, qui compte 22 provinces, 5 régions autonomes [le Guangxi, la Mongolie-Intérieure, le Ningxia, le Xinjiang et le Tibet], 4 municipalités [Pékin, Chongqing, Shanghai et Tianjin] et 2 régions administratives spéciales [Hong Kong et Macau]. Au total, 16 villes chinoises sont parmi les 100 plus peuplées au monde.

II.2 De la Chine impériale à la PRC actuelle, un pays plusieurs fois millénaire.

II.2.1 La Chine impériale, société millénaire.

Depuis l'antiquité [-2000 av. J.-C.] de nombreuses dynasties se succèdent et différents royaumes cohabitent sur ce qui correspond à l'actuel territoire chinois. La culture chinoise se développe dès lors, avec le développement de la calligraphie ou de la pensée de Confucius [551 av. J.-C. ; 479 av. J.-C] et la Chine devient une puissance mondiale. Le début de l'empire se situe vers -221 av J.C., avec la

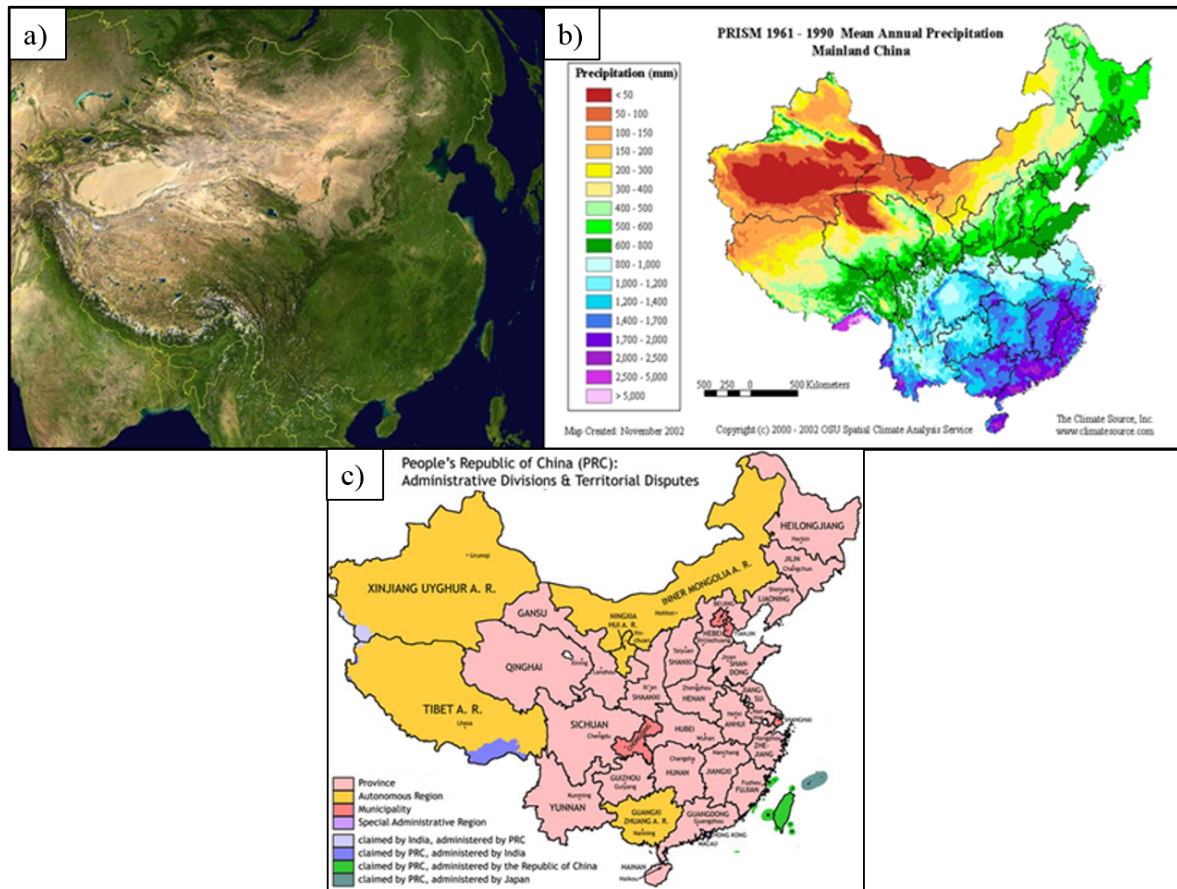


FIGURE II.1 – a) Vue satellite de la Chine, b) précipitations annuelles moyenne en Chine, c) division administrative de la Chine.

dynastie Qin, à l'origine de l'unification des royaumes combattants féodaux. La dynastie des Qin ne règnera sur la Chine que pendant une quinzaine d'années, mais est le marqueur du début de la Chine impériale, qui perdura jusqu'en 1911, voyant plusieurs dynasties se succéder, comme la dynastie Song [960 – 1279] et la dynastie Ming [1368 – 1662].

La Chine impériale va prospérer durant plusieurs siècles étendant ses territoires, mais la première guerre de l'opium entre le Royaume-Uni et la Chine impériale de la dynastie Qing, entre 1839 et 1842 marque le début du déclin de l'empire chinois et ouvre une longue période d'instabilité politique, qui sera plus tard requalifiée par le terme « Le siècle de l'humiliation » [« The century of humiliation » ; 1839 – 1949]. À la suite de la capitulation chinoise, le Royaume Unis négocie de nombreux avantages commerciaux via le traité de Nankin [1842], tel que la cession de Hong-Kong, qui sera rétrocédé à la PRC en 1999. Jusqu'à la fin du 19^{ème} siècle, quelques 28 concessions territoriales sont octroyées et placées sous administration de puissances étrangères, parmi lesquelles on retrouve notamment l'Angleterre, la France et le Japon. À partir de cette période, alors que des pays tels que le Royaume Unis, la France, l'Allemagne ou les Etats unis sont en plein essor industriel, la Chine va marquer le pas et s'appauvrir, affaiblissant petit à petit la stabilité de la dynastie au pouvoir avec les défaites lors des guerres franco-chinoise [1883 – 1885] et sino-japonaise [1894 – 1895].

La Révolution chinoise de 1911, aussi appelée révolution de Xinhai, mettra fin à la Dynastie des

Qing [1644 – 1912] et à la Chine impériale, alors plusieurs fois millénaire. À sa suite, la République de Chine est proclamée le 1^{er} janvier 1912.

II.2.2 Une guerre civile de plus de 30 ans

La jeune république se retrouve cependant rapidement secouée par la Guerre civile chinoise, qui s'étend de 1927 à 1949 et qui oppose les partisans du Parti Communiste Chinois [CCP, *Chinese Communist Party*] à ceux du parti capitaliste et nationaliste chinois, le Kuomintang, alors au pouvoir. Finalement, le 1er octobre 1949, le dirigeant des troupes communistes révolutionnaires, Mao Zedong [1893 – 1976] proclame officiellement du balcon de Tiananmen à Pékin, la République populaire de Chine. Le Kuomintang, qui a perdu la Chine continentale, s'exile à Taïwan et installe son gouvernement à Taipei, et conserve le nom de République de Chine. Les deux entités politiques revendiquent toujours le territoire occupé par leur opposant. La PRC remplacera la République de Chine au sein de l'organisation des nations unies 22 ans plus tard, en 1971 et est depuis un des cinq membres permanents du conseil de sécurité de l'organisation. Une rapide description de la guerre civile et du rôle de Mao durant cette période est proposée en Annexe.

II.2.3 La proclamation de la PRC et le modèle socialiste chinois

À l'aube de la fin de la guerre civile chinoise, la République populaire de Chine [PRC] est proclamée par Mao [1^{ère} génération de dirigeants chinois]. La PRC a été dès lors la principale alliée de l'union soviétique, dans le contexte grandissant de la guerre froide qui oppose bloc de l'Ouest et bloc de l'Est, adoptant un modèle politique communiste aux accents nationalistes et aux interactions internationales limitées. Durant la période de gouvernance de Mao Zedong, l'ensemble de la production industrielle chinoise est contrôlée par le pouvoir central, et ne laisse pas de place au développement des acteurs du secteur privé. Mao souhaite développer un modèle socialiste « chinois », qui met au centre de sa société la classe paysanne, là où le modèle soviétique s'appuie sur sa classe ouvrière. Mao met en place une politique d'industrialisation et de développement agricole intensif, dans la recherche de l'autosuffisance de l'état chinois [Une idéologie qui se justifie par la crainte d'un conflit avec les Etats Unis et de l'éloignement de la PRC de l'URSS, cf. du conflit frontalier sino-soviétique de 1969] et même de l'autosuffisance à l'échelle des provinces chinoises.

C'est dans cette optique qu'il met en place la politique du « Grand bond en avant » [souvent référencé comme « The Great Leap Forward »; 1958 – 1962], une collectivisation accélérée de la production agricole et industrielle. Le grand bond en avant est un échec, qui entraîne une famine meurtrière dans la population chinoise, au coût estimé à 36 millions de victimes [Yang, 2012]. Mao perd alors une partie de son influence au sein du CCP, et Liu Shaoqi [1898 – 1969] le remplace en tant que Président de la République populaire de Chine en 1959. Cependant, Mao reste à la tête du parti et bénéficie encore d'une forte sympathie héritée de la guerre civile auprès de la population chinoise. L'image du Grand Timonier va lui permettre, quelques années plus tard, de lancer la révolution culturelle [1966 – 1976] et de faire entrer alors la Chine dans un état de révolution permanente et de répression, et de renforcer sa position à la tête de la République. Une présentation rapide de la Révolution culturelle est proposée en Annexe.

La révolution culturelle prend fin en 1976 à la mort de Mao. Deng Xiaoping devient le nouveau numéro 1 du régime à partir de 1978 [2^{ème} Génération de dirigeants chinois], signifiant la fin de la direction par l'idéologie Maoïste de la Chine.

Durant la gouvernance de Mao Zedong, l'agriculture chinoise se développe le plus souvent sans considérer les spécificités des sols ou des climats des régions, l'industrialisation s'est faite sans se préoccuper des impacts environnementaux [80 000 barrages seront construits et l'intérêt de ces ouvrages sera contesté dès les années 1980], induisant, comme le modèle social soviétique, un gaspillage des ressources naturelles.

II.2.4 Une Chine ouverte, une Chine nouvelle.

L'arrivée de Deng Xiaoping, qui fut un temps écarté du CCP lors de la révolution culturelle marque une rupture dans l'histoire de la Chine communiste. Le fiasco du « Grand bond en avant » avait fait dire à Deng « Peu importe qu'un chat soit blanc ou noir, s'il attrape la souris, c'est un bon chat » en 1960, remettant alors en cause le collectivisme mis en place par Mao Zedong. À son arrivée au pouvoir, Deng définit les nouvelles priorités du régime chinois dans la recherche du développement économique, technologique et l'implication de la Chine dans le commerce international, duquel elle est jusqu'alors absente. La croissance économique rapide de la Chine s'explique par l'accroissement des investissements domestiques, l'arrivée de capitaux étrangers ainsi que par la rapide augmentation de la production chinoise via une multiplication des emplois, notamment dans le secteur industriel [une création imposée par l'évolution démographique des années 1960 – 1970, offrant une main d'œuvre nombreuse et à bas coût].

Les exportations chinoises sont passées de 63×10^9 US\$ en 1990 contre $2\,280 \times 10^9$ US\$ en 2015 [soit 36 fois plus], les importations sont passées de 54×10^9 US\$ en 1990 à $1\,601 \times 10^9$ US\$ en 2015 [soit 30 fois plus], laissant à la Chine une balance commerciale largement positive. En 25 ans, la part des exportations chinoise sur l'ensemble des exportations mondiales est passée de 2 % en 1990 à 14.1 % en 2015 [Economie Intelligence Unit]. Le secteur de la construction en Chine est passée de 250×10^6 m² construit en 1980 à $1\,800 \times 10^6$ m² en 2016, soit une évolution de la surface habitable disponible de 7 m².habitant⁻¹ en 1980 contre 35 m².habitant⁻¹ en 2016 [Huchet, 2016].

La Figure II.2 montre l'évolution de divers indicateurs, qui illustrent la vitesse à laquelle la Chine s'est développée, voyant son parc automobile passer de 2.5 millions de véhicules en 1990 [~0.2 véhicules pour 100 habitants] à 150 millions de véhicules en 2015 [~11 véhicules pour 100 habitants], et une tendance toujours à l'augmentation [Wang et al., 2011]. À titre de comparaison, en 2015, la France comptait 58 véhicules pour 100 habitants, ce qui laisse à la Chine une importante marge d'évolution dans ce secteur. La Chine a aussi vu sa consommation d'énergie être multipliée par 9 entre 1990 et 2015 [+250 % entre 2000 et 2010. Liu et al., 2013a] et ses émissions de CO₂ augmenter très fortement, jusqu'à représenter 20 % du total des émissions mondiales [Figure II.2b].

II.2.5 La Chine de Xi Jinping

Xi Jinping est la figure principale de la 5^{ème} génération de dirigeants chinois et est en poste en tant que président de la République populaire de Chine depuis 2013. La présidence de Xi Jinping est un tournant dans l'histoire de PRC, si ses convictions économiques suivent celles initiées par Deng, sa vision de la Chine dans la géopolitique internationale est beaucoup plus ambitieuse. À l'inverse de Deng qui voulait faire de la Chine un acteur international discret, Xi souhaite ériger la Chine en une première puissance mondiale, par la force de son économie, mais aussi sa force militaire et politique. Xi incarne la combinaison de l'autorité et du nationalisme chinois de Mao - dont il entretient la nostalgie, et la vision du commerce international définie par Deng [Bougon, 2017]. En effet, le premier mandat de Xi a été associé à une restriction des libertés fondamentales [visant notamment la presse],

II.3 L'évolution de la position de la Chine dans l'économie mondiale.

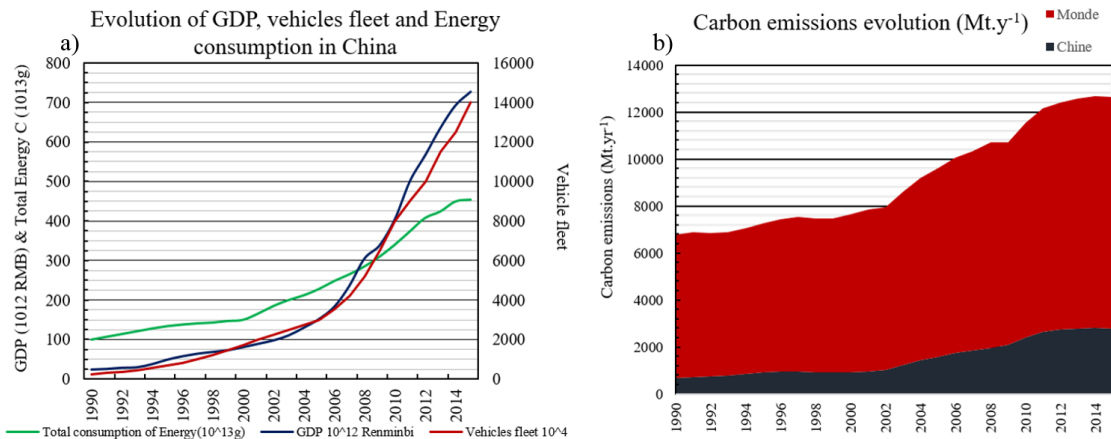


FIGURE II.2 – a) Évolution du GDP, du parc automobile et de la consommation d'énergie en Chine comparée pour la période 1990 – 2014, b) évolution des émissions de carbone mondiale et chinoise entre 1990 et 2014.

l'évocation du « rêve chinois », en opposition au « rêve américain » et l'inscription de la pensée de Xi Jinping dans la chartre du CCP lors du XIX^{ème} congrès en 2017. Le 11 mars 2018, Xi obtient de l'Assemblée Nationale Populaire [NPC, *National People's Congress*, 2980 membres] une révision de la constitution de la PRC supprimant la limitation de deux mandats présidentiels réalisables, ce qui permet aujourd'hui à Xi de rester pour une période indéfinie à la tête de la PRC. En 2014 et sous l'impulsion de Xi, le parlement a augmenté les pouvoirs des agences en charge de la protection de l'environnement et a en même temps alourdi les sanctions envers les acteurs ne respectant pas les normes environnementales.

Sur la scène internationale, Xi affiche clairement son intention d'être un acteur majeur sur les enjeux climatiques, par la ratification des accords de la conférence de Paris de 2015. D'un point de vue économique, Xi Jinping montre sa volonté de voir la Chine en première puissance mondiale d'ici 2049 [marquant le centenaire de la PRC] et est à l'origine du projet d'échanges commerciaux « la nouvelle route de la soie » [BRI, *Belt and Road Initiative*], le projet inclut près de 70 pays, 4.4 milliards d'habitants et des investissements de plusieurs dizaines de trillions de US\$.

II.3 L'évolution de la position de la Chine dans l'économie mondiale.

Depuis son ouverture aux investissements étrangers et ses gains de productivité, la Chine a depuis 1980 connu des transformations rapides dans de nombreux domaines. Le GDP a quant à lui été multiplié par 30 [Figure II.3b] alors que la population chinoise n'a augmenté que de 17 % sur cette même période, la croissance démographique chinoise ayant fait l'objet de contrôle, notamment via la politique de l'enfant unique [1979 – 2013] initiée par Deng Xiaoping. En 2016, la distribution du GDP en Chine présentait une part du secteur primaire à 27.8 %, à 23.9 % pour le secteur secondaire et 48.3 % pour le secteur tertiaire. Une société qui s'est modifiée depuis 1980, où le premier secteur de l'économie était alors le secteur secondaire [50 % du GDP], puis le secteur primaire [30 % du GDP] et enfin le secteur tertiaire [20 %].

Avant cette période de croissance prononcée, la Chine est passée par des périodes de développe-

ment économique plus compliquées. La Figure II.3a présente l'évolution de contribution de la Chine et de plusieurs pays au GDP mondial, de 1700 à 2003. Les années présentées permettent d'observer l'évolution du développement économique de la Chine pour des périodes spécifiques, comme pour le siècle de l'humiliation [1939 – 1949], la gouvernance de Mao [1949 – 1976] et les 25 premières années de la PRC version Deng Xiaoping [1978 – 2003]. On observe qu'en 1820, la Chine impériale est la principale économie de la planète [32.9 %], principalement de par sa population. La période du siècle de l'humiliation va cependant complètement bouleverser la Chine, qui stagnera entre 1820 et 1952 à une croissance moyenne de $0.22\%.y^{-1}$ [contre $1.64\%.y^{-1}$ pour la moyenne mondiale] et ne représente en 1952 plus que 5.2 % du GDP mondial. La croissance réelle moyenne du pays sous les politiques de Mao entre 1950 et 1978 est d'environ $4.4\%.y^{-1}$, ce qui est légèrement inférieure à la croissance réelle mondiale de $4.6\%.y^{-1}$ sur cette période, et bien moindre que le Japon, qui connaît une croissance forte durant cette période $7.9\%.y^{-1}$ [Maddison, 2007]. En 1978, la part de la PRC dans le GDP mondial est de 4.9 %, un minimum historique, mais la forte croissance qui suit en Chine ramène sa contribution à 15.3 % en 2003 – une croissance de $7.9\%.y^{-1}$ sur cette période, contre une moyenne mondiale de $3.1\%.y^{-1}$ [Maddison, 2007].

Certaines études prévoient cependant un ralentissement de la croissance chinoise dans les décennies à venir due à la diminution de la force de travail chinoise, avec une diminution de la population chinoise à partir de 2040 [McKinsey Global Institute, 2015].

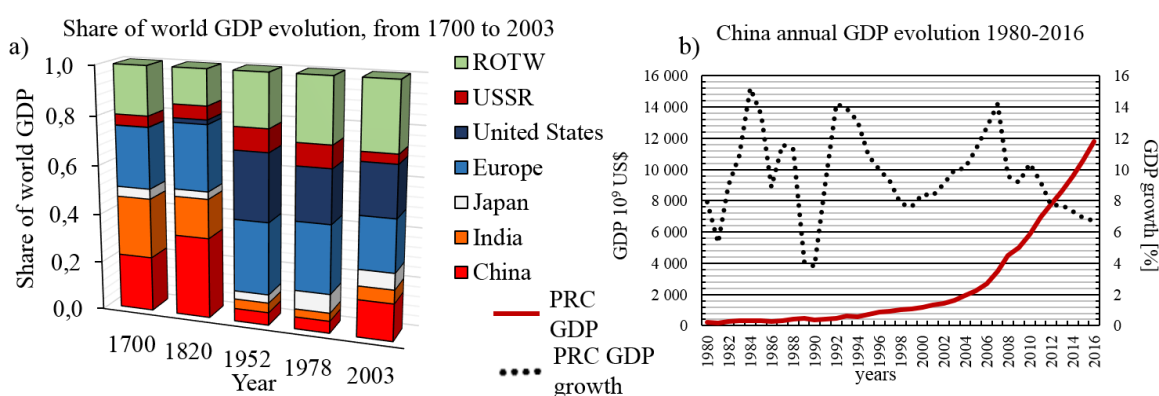


FIGURE II.3 – a) Évolution du partage du GDP mondial entre les principales puissances économiques entre 1700 et 2003, à partir des informations de Maddison [2007]. b) évolution du GDP nominal chinois et croissance chinoise réelle pour la période 1980 – 2016.

II.3.1 Une addiction de la Chine à l'égard du charbon

Les premières marques d'industrialisation [i.e. production de fer, extraction du charbon] en Chine se retrouvent à partir de la dynastie Song [960 – 1279], bien avant les sociétés européennes. Cependant, la Chine impériale ne s'est pas développée comme les sociétés européennes [cf. « The Great divergence »] et aucune période de développement n'est identifiée comme en Europe à une période de révolution industrielle. En 1960, 60 % de la population est employée aux travaux agricoles, et le « Grand bond en avant » incarne une intention de développement industriel, mais l'échec de cette politique retarde finalement ce développement. La situation démographique et économique, ainsi que les choix politiques de Deng Xiaoping à son arrivée au pouvoir initie une période de développement qui présente des caractéristiques similaires à celle de la révolution industrielle. L'addiction de la Chine

au charbon est au centre de ses problèmes environnementaux et sanitaires. La Chine possédant d'importantes réserves de charbon [i.e. les 3^{ème} plus conséquentes derrière celles des États-Unis et de la Russie ; [Cohen, 2014](#)], et leur exploitation a été en perpétuelle augmentation au cours des 60 dernières années. Les estimations quant à la consommation totale de charbon en Chine sont soumises à une certaine incertitude, il a été établi en 2015 que la consommation avait été sous-évaluée pour la période 2000 – 2014, d'environ 15 %. En 2015, la consommation totale de charbon a été estimée à 4×10^6 Mt, soit 4 fois plus qu'en 1990 [[National Bureau of Statistics of China, 2017](#)] et 50 % du total mondial. Cependant, la croissance de la consommation chinoise de charbon montre une inflexion depuis 2013, avec une légère baisse de la consommation. En 2015, 71 % de la production d'énergie se fait à partir du charbon.

■ Mais des investissements encourageants

Pour cette même année, la part d'énergie renouvelable dans le mix de production d'énergie était de l'ordre de 24.3 % du total, dont environ 80 % provenant d'énergies hydroélectriques ; ce qui place la Chine au premier rang des producteurs d'électricité depuis les sources d'énergie renouvelable. Les investissements de la PRC sont en augmentation depuis plusieurs années, et sont estimés à 3 fois ceux des États-Unis pour 2017, notamment en ce qui concerne le solaire photovoltaïque, la Chine possédant les ressources nécessaires à la production des panneaux, elle compte aujourd'hui pour 60 % de la production mondiale de solaire PV.

II.4 La population chinoise, un cas unique

II.4.1 De l'explosion des naissances à une démographie sous contrôle

Depuis 1949 et l'arrivée du CCP au pouvoir, la démographie chinoise a subi de nombreux bouleversements. Initialement, l'administration de Mao Zedong a mis en place des politiques natalistes, qui ont amené un Baby-boom chinois dans les années 50. On peut observer sur la Figure II.4b à droite la démographie chinoise en 2010, et on peut remarquer une anomalie démographique pour les classes d'âges 45 – 55 ans, qui apparaissent sous représentées. Cela correspond à la période de la politique du « Grand bond en avant » mise en place par Mao qui sera un échec et à l'origine d'une des plus importantes famines du 20^{ème} siècle. Au delà des décès d'environ 36 millions de morts, cette famine a également causé un déficit de naissances de 40 millions, entre les 1958 et 1961 [[Yang, 2012](#)]. À la suite de cela, la PRC connaît alors son plus grand saut démographique, avec en 1963, année pour laquelle l'indice de fécondité maximum était de 7.6 enfants par femme en âge de procréer. Dès les années 1970, des politiques de contrôle de la natalité sont mises en place [comme « wan-xi-shao » , qui signifie : « mariage tardif, naissances peu rapprochées et peu nombreuses »], et une chute de la fécondité va marquer cette décennie [le taux de fécondité passant de 5.7 à 2.6 entre 1970 et 1979]. Ce n'est qu'en 1979 qu'est réellement mise en place la réglementation connue sous le nom de « politique de l'enfant unique » , qui restreint fortement les droits des familles appartenant à l'ethnie Han [soit ~90 % de la population chinoise] ayant plusieurs enfants. Cette politique aura cours jusqu'en 2013, année à partir de laquelle les familles sont autorisées à avoir deux enfants. Cette politique va entraîner un fort déséquilibre homme-femme dans les classes les plus jeunes de la démographie chinoise [voir Figure II.4b]. En résumé, de 1950 à 1980, la population chinoise est passée de 550 millions à 1 milliard d'habitants [+90 %] et entre 1980 et 2017, la population chinoise s'est accrue jusqu'à 1.4 milliard [+40 % ; Figure II.4a], passant de 21 % du total mondial à environ 19 %.

Aujourd'hui, l'évolution démographique chinoise s'est stabilisée et la population chinoise est

vieillissante, et pourrait faire face à une diminution de sa population d'ici 2040 [McKinsey Global Institute, 2015].

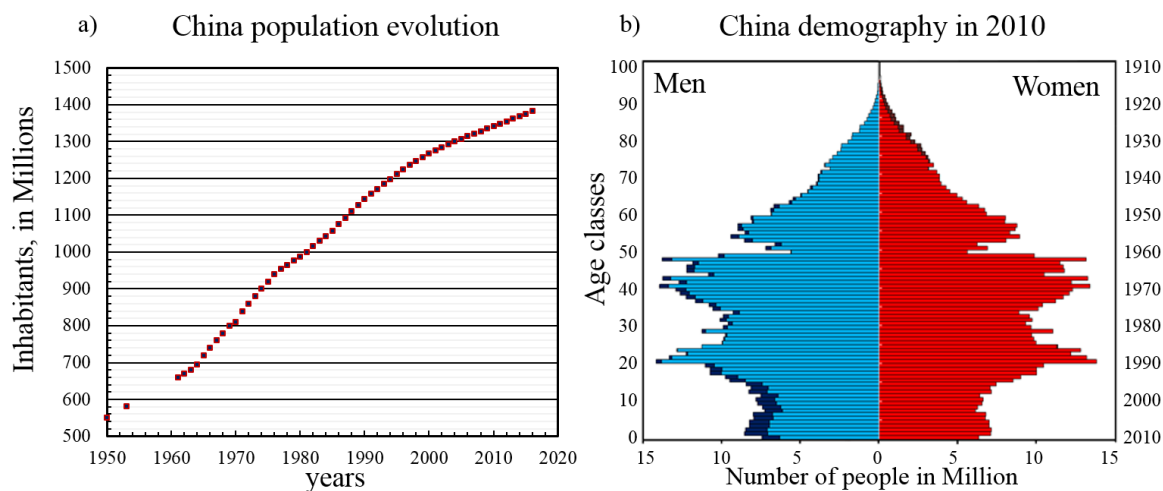


FIGURE II.4 – a) *Evolution de la population chinoise* [adaptée depuis Huchet, 2016], b) *démographie chinoise en 2010*, adaptée depuis [National Bureau of Statistics of China, 2017], les fractions bleues et rouges foncées correspondent au surplus d'hommes ou de femmes par tranche d'âge.

II.4.2 Une urbanisation rapide

La Chine présente sur l'ensemble de sa moitié Est une densité de population de plus de 300 habitants.km⁻² [contre 100 habitants.km⁻², en France], plus concentrée sur le littoral encore. En effet, 94 % de la population chinoise se répartie sur 43 % de son espace [Figure II.5b]. Seule l'Inde peut se comparer à d'aussi larges superficies présentant de tels niveaux de densité de population. Cette pression démographique va avoir de nombreux impacts dans l'utilisation des ressources par les populations et la pollution de l'environnement. Les populations sont aussi concentrées à proximité des principaux fleuves chinois, on peut repérer à proximité de Shanghai un fort établissement de population, le long du fleuve Yangtze, le plus long fleuve chinois, dont l'embouchure se trouve à Shanghai. On distingue également d'importants regroupements de population le long du fleuve Jaune [Yellow River – 2^{ème} fleuve chinois, dont l'embouchure se situe sur la côte de la NCP] au Nord Est de la Chine et long de la rivière des perles [Pearl River] dans la région de Hong Kong, au Sud de la Chine. Les 2 fleuves sont représentés sur la Figure II.6.

De 1949 à nos jours, si l'ensemble de la population a principalement été concentrée à l'Est du pays [Figure II.5b], elle s'est peu à peu transformée, passant d'une population rurale à une population urbaine, modifiant ainsi son mode de vie au cours des dernières décennies. En 2015, 56 % de la population chinoise [724 millions] vie dans des centres urbains contre 26 % [300 millions] en 1990 et seulement 10 % [55 millions] en 1950 [Huchet, 2016]. À titre de comparaison, en France la part urbaine de la population est passée de 74 % à 80 % entre 1990 et 2015.

La Figure II.5a nous permet de voir l'évolution des aires urbaines de 3 villes du Nord Est de la Chine entre 1980 et 2010. Si les 3 villes ne se sont pas développées sur les mêmes modèles, les aires urbaines de Pékin, Tianjin et Shijiazhuang se sont fortement étendues [+3.8 %.y⁻¹, +4.7 %.y⁻¹ et +3.2 %.y⁻¹ respectivement, Wu et al., 2015] sous l'effet de la pression démographique [+300 Mil-

lions d’habitants en 30 ans] et de la modification du mode de vie de la population chinoise. À titre d’exemple, la population de Pékin est passée de [~10 millions d’habitants en 1990 à ~21.7 millions d’habitants en 2017.

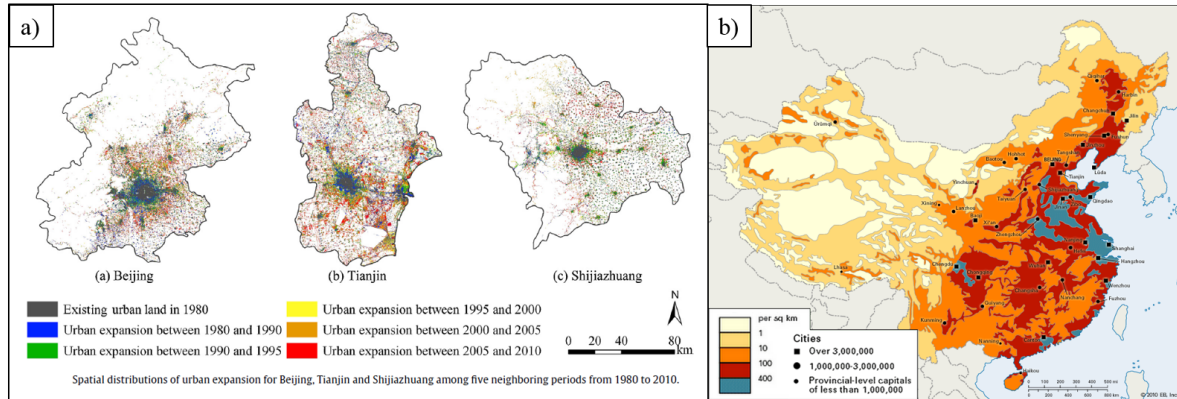


FIGURE II.5 – a) Expansion urbaine de différentes villes chinoises [Pékin, Tianjin et Shijiazhuang, Wu et al., 2015], b) répartition géographique de la population chinoise

II.5 La crise environnementale en Chine, une crise globale

La crise environnementale chinoise est une crise globale, impactant de nombreuses composantes du système environnemental.

II.5.1 Un impact global

■ Carence et pollution des ressources aquifères :

Le développement particulièrement intensif et sans retenue de la Chine a entraîné une consommation importante des ressources naturelles, à commencer par les ressources en eau. Aujourd’hui le pays fait face à une double menace concernant cette ressource, une partie de la population chinoise vit dans une situation de stress hydrique [350 millions de chinois, principalement dans les provinces du nord et de l’ouest, Figure II.6] et de surconsommation. Cela se traduit par l’affaiblissement des cours d’eau, comme dans le cas du Fleuve Jaune, un des principaux fleuve chinois, qui n’atteint plus la mer de Chine et est asséché en hiver sur des périodes de plus en plus longues [2 à 3 mois]. Les nappes phréatiques chinoises voient aussi leurs niveaux se réduire rapidement, comme le bassin du Yucheng [province du Shaanxi] qui pourrait disparaître d’ici 30 ans [Currell et al., 2010] à cause des activités agricoles. En plus de la diminution des ressources, les réservoirs d’eau chinois sont pour beaucoup pollués, seulement 11 % des nappes phréatiques peuvent être considérées comme de bonne qualité, quand 57 % sont impropres à la consommation [Zhang and Luna, 2013], un problème majeur quand 80 % de la population chinoise dépend de ces nappes.

■ La détérioration des sols :

Entre 2005 et 2008 le Ministère de l’Environnement et de l’Ecologie de la République populaire de Chine a fait conduire une étude sur les sols chinois sur plus de 60 % du territoire du pays. Selon les résultats de l’étude, 16.1 % des sols et 19.4 % des terres arables sont polluées, principalement à cause des activités industrielles et agricoles [Huchet, 2016]. La Chine concentre l’ensemble de sa population,

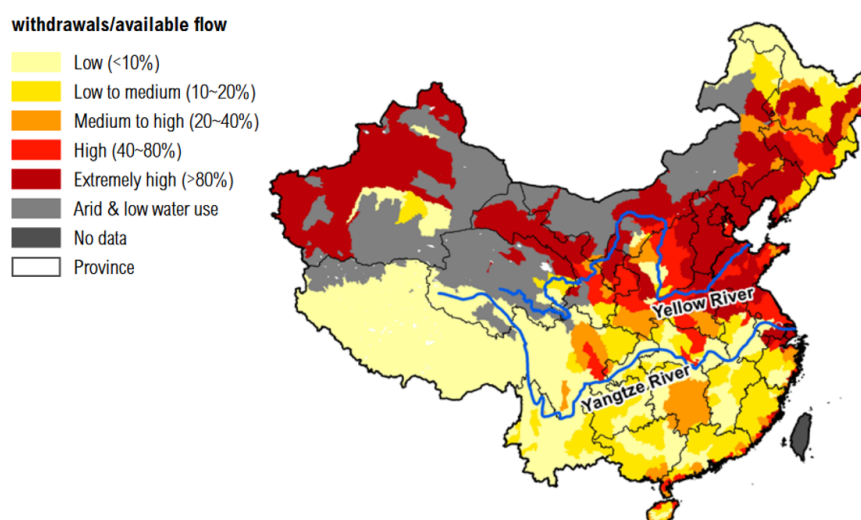


FIGURE II.6 – Ratio entre les besoins en eau et les ressources en eau disponibles permettant de caractériser le stress hydrique, depuis Wang et al. [2016].

la première au monde, sur une partie réduite de son territoire, ce qui fait que depuis que la densité de population chinoise sur la moitié Est du pays est particulièrement élevée. Cette importante densité de population est à l'origine de la désertification des sols chinois, un processus qui a commencé avant les débuts de l'industrialisation du pays mais qui s'est renforcé dès lors [Huchet, 2016]. La désertification s'explique par des facteurs humains et climatiques, au total depuis 1949, ce sont 129 000 km² qui ont été gagnés par le désert, ce qui représente 1.3 % du territoire chinois. 17 % du territoire chinois est aujourd'hui considéré comme désertique [Wang, 2004].

■ La problématique des déchets :

La problématique de la gestion et du traitement des déchets est une problématique large, qui comprend différents types de déchets [e.g. déchets électroniques, déchets plastiques ou encore déchets ménagers] et qui concerne l'ensemble des pays. Les déchets électroniques sont considérés comme des déchets dangereux selon la convention de Bâle [ouverte en 1989, ratifiée par 186 pays dont la Chine], de par leurs toxicités et doivent être éliminés. En 2012, 70 % des 500 millions de tonnes de déchets électroniques produits sont traités en Chine, mais les usines en charge de ces traitements manquent souvent de systèmes de préventions des dommages sur l'environnement et la santé [Greenpeace, 2004]. De même, depuis 1992, 45 % des déchets plastiques produits ont été importés en Chine, les pays de l'Organisation de coopération et de développement économiques [OECD, *Organisation for Economic Co-operation and Development*] exportant une grande partie de leurs productions vers les pays d'Asie de l'Est et du Pacifique [70 % en 2016, Brooks et al., 2018]. Face aux augmentations croissantes des niveaux d'importations et à la difficulté que représente la gestion de ces quantités de déchets, la Chine a récemment changé de politique et a fixé un seuil d'importation maximal annuel [110 Mt.y⁻¹], qui devrait amener le déplacement d'un volume de 111 Mt cumulées d'ici à 2030 vers d'autres pays [Brooks et al., 2018].

■ La pollution atmosphérique chinoise : L'Airpocalypse

La problématique de la pollution atmosphérique est conséquente des activités et des transformations des sociétés, notamment lorsqu'elles commencent leurs industrialisations [McNeill, 2001]. C'est

dans le but d'avoir une meilleure appréhension de la société chinoise que les différentes périodes et transformations associées ont été présentées dans ce chapitre. Cela permet notamment de constater une différence de temporalité entre les périodes de développement de la PRC et des pays de l'OCDE – pour lesquels l'historique politique, technologique et environnementale est souvent mieux connue. La Chine est le pays le plus peuplé du monde, mais surtout, présente une forte concentration de sa population à l'Est de son territoire [90 % de la population se rassemblant sur 45 % du territoire]. La PRC est toujours en plein développement dans de nombreux secteurs, même si celui-ci s'est ralenti depuis le début des années 2010. Il s'appuie principalement sur le charbon [3^{ème} réserves mondiales], mais la PRC diversifie aujourd'hui ses sources d'énergie.

La pollution atmosphérique étant au centre de ce travail de recherche, sa description est faite dans un chapitre dédié plus détaillé, à la suite de ce chapitre de contextualisation plus général.

II.5.2 L'action politique chinoise face aux défis environnementaux

Au fur et à mesure, la Chine s'est dotée d'instituts et d'un arsenal législatif pour la protection de l'environnement, une évolution qui s'explique par des scandales sanitaires dus à la pollution entraînant une inquiétude forte de la part des populations qui a obligé les responsables politiques à avancer sur ces questions. La première institution de surveillance et de protection de l'environnement en Chine est créée en 1974, le bureau de protection de l'environnement [EPLC, *Environmental Protection Leadership Commission*], mais ne bénéficie à cette époque que d'un statut et de moyens limités. De 1974 à 2008, le statut et les moyens du EPLC vont évoluer, devenant en 1998 le State Environmental Protection Administration [SEPA], puis en 2008 le Ministère de l'Environnement et de l'Ecologie de la République populaire de Chine [MEP, *Ministry of Ecology and Environment the People's Republic of China*, anciennement - Ministry of Environmental Protection], membre du Conseil des Affaires de l'État de la République populaire de Chine [SC, *State Council* Figure A.3], la principale autorité exécutive du pays [Qiu and Li, 2009]. Cela à la suite de la volonté de Hu Jintao [4^{ème} génération de dirigeants, né en 1942] figure principale de la PRC de 2002 à 2012, qui inscrit dans la charte du CCP « le concept de développement scientifique », associant notamment le développement d'une société durable et harmonieuse.

II.5.3 Mise en place de réglementation :

Les estimations des impacts sanitaires et sociétaux induits par la pollution atmosphérique en Chine ont été relativement difficiles à établir, car les autorités chinoises ont pendant longtemps manqué de transparence et limité la diffusion des niveaux de pollutions, préférant atténuer la gravité de la situation. Sous la pression des instances internationales, d'Organisation Non Gouvernementales [NGO, *Non-governmental organization*] ou de la population chinoise elle-même, la Chine informe depuis 2013 sa population au quotidien via la mesure et le calcul de l'AQI [*Air Quality Index*; <http://aqicn.org/city/beijing/>, consulté le 18/08/2018], standardisée à l'échelle nationale. Les normes établies par les autorités chinoises pour hiérarchiser les concentrations de polluants en fonction de leurs dangers, sont différentes de celles mises en place en Europe :

Les normes chinoises ont été appliquées à certaines villes à partir de 2012 et étendues à l'ensemble des villes chinoises en 2016. La réglementation chinoise présente la particularité de présenter des objectifs de qualité différents en fonction de l'environnement considéré, c'est-à-dire une norme pour les environnements ruraux et les parcs nationaux [class 1], et une norme pour les environnements urbains et industriels [class 2]. La réglementation GB 3095-2012 [*Guobiao standards*] succède à

TABLE II.1 – Standards de qualité de l'air en Chine selon GB 3095-2012 [<http://www.mep.gov.cn/>, consulté 17/08/2018] comparés aux normes européennes selon la directive 2004/107/CE.

| Polluants | Period | Chinese standards [$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$] | | EU standards |
|-------------------|---------------|---|----------------------|------------------|
| | | Class 1 [rural env.] | Class 2 [urban env.] | |
| SO ₂ | annual | 20 | 60 | 20 |
| | 24 hours | 50 | 150 | 125 |
| NO ₂ | annual | 40 | 40 | 40 |
| | 24 hours | 80 | 80 | |
| | hourly | 200 | 200 | 200 |
| CO | 24 hours | 4×10^3 | 4×10^3 | |
| | hourly | 10×10^3 | 10×10^3 | 10×10^3 |
| O ₃ | daily, 8-hour | 100 | 160 | 120 |
| | hourly | 160 | 200 | 240 |
| PM ₁₀ | annual | 40 | 70 | 40 |
| | 24 hours | 50 | 150 | 50 |
| PM _{2.5} | annual | 15 | 35 | 25 |
| | 24 hours | 35 | 75 | - |

l'ancienne réglementation GB 3095-1996, établie en 1996, moins limitatives et comprenant une classe supplémentaire pour les environnements industriels.

Afin d'atteindre les objectifs de qualités demandés concernant les polluants atmosphériques, une législation plus contraignante a été mise en place en 2012 pour encadrer les nombreuses activités industrielles et leurs émissions, qui pour certaines n'étaient jusque-là pas ou peu contrôlées. Le Tableau II.2 montre l'implémentation des différentes normes nationales [GB] concernant la protection de la qualité de l'air misent en place entre 2010 et 2017 [Zheng et al., 2018, en discussion].

Certaines industries n'étaient encadrées dans leurs activités par aucune norme, comme la production d'acier, une activité très importante en Chine et fortement polluante. L'encadrement de la production d'énergie [cf « Thermal power plants »], qui se fait principalement via les énergies fossiles, s'est renforcé en 2012 et 2017, entraînant la fermeture des plus anciennes centrales à charbons, aux procédés les moins efficaces et les plus polluants [Huchet, 2016].

II.5.4 Une implication et une demande de la population

La PRC restreint dans les faits le droit d'association et contraint la liberté du discours politique, que ce soit à l'échelle de l'individu ou des groupes de presse. Malgré les difficultés effectives rencontrées par les populations pour revendiquer une législation plus protectrice des environnements et des populations, les populations sont de plus en plus concernées et mobilisées sur ces questions. L'idée de la préservation de l'environnement comme un bien commun progresse, avec entre 75 000 et 180 000 manifestations par an d'au moins 500 personnes, ce qui correspond à 50 % des manifestations ayant lieu en PRC. L'intérêt de la population pour les questions de pollution atmosphérique s'est montré lors de la sortie du film documentaire indépendant « Under the Dome », réalisé en 2015 par Chai Jing [Journaliste, née en 1976] visionné environ 150 millions de fois sur internet, avant

TABLE II.2 – Chronologies des implémentations des différentes réglementations de protection de la qualité de l'air encadrant différents secteurs d'activités entre 2010 et 2017, depuis Zheng et al., 2018. Le sigle « GB » [Guobiao standards] notifie les standards nationaux chinois de la PRC.

| Source sector | Emission source | 2010 | 2011 | 2012 | 2013 | 2014 | 2015 | 2016 | 2017 | |
|----------------|-----------------------------|---------------|-------------------------|---------------|---|---|------|-------------------------------|------|--|
| Power | Thermal power plants | GB 13223-2003 | | GB 13223-2011 | | | | "ultra-low" emission standard | | |
| | Flat glass | No standards | GB 26453-2011 | | | | | | | |
| Industry | Sinter | No standards | | GB 28662-2012 | | | | | | |
| | Iron | No standards | | GB 28663-2012 | | | | | | |
| | Steel making | No standards | | GB 28664-2012 | | | | | | |
| | Steel rolling | No standards | | GB 28665-2012 | | | | | | |
| | Electronic glass | No standards | | | GB 29495-2013 | | | | | |
| | Brick | No standards | | | GB 29620-2013 | | | | | |
| | Cement | GB 4915-2004 | | | GB 4915-2013 | | | | | |
| | Industrial boiler | GB 13271-2001 | | | GB 13271-2014; Eliminate small coal-fired boilers. | | | | | |
| | All | / | | | Phase out outdated industrial capacity; Strengthen emissions standards; Phase out small and polluted factories; Install VOC emission control facilities | | | | | |
| | Residential | All | No specific regulations | | | Replace coal with electricity and natural gas | | | | |
| Transportation | Light duty gasoline vehicle | Euro 3 | Euro 4 | | | | | Euro 5 | | |
| | Heavy duty gasoline vehicle | Euro 3 | | | Euro 4 | | | | | |
| | Diesel vehicle | Euro III | | | | Euro IV | | Euro V | | |
| | All | / | | | Strengthen emissions standards; Retire old vehicles; Improve fuel quality | | | | | |

d'être retiré 4 jours après sa sortie des plateformes de diffusion chinoises [document disponible : <https://www.youtube.com/watch?v=V5bHb3ljjbc>, consulté le 18/08/2018]. Une prise de conscience qui entraîne une demande d'information permettant l'appréciation de la dangerosité de la qualité de l'air par la population. L'état de la qualité de l'air dans les principales villes chinoises est renseigné auprès des habitants par l'AQI, qui agrège les mesures des différents polluants et s'étend sur une échelle de 0 à 500.

L'AQI chinois a été construit sur un modèle proche du modèle américain [Figure II.7a], et les valeurs seuils entre les deux systèmes sont relativement proches pour l'ozone, le monoxyde de carbone, le dioxyde de soufre et les PM₁₀. Ils diffèrent cependant fortement sur les valeurs seuils attribuées aux PM_{2,5}, pourtant le principal polluant à Pékin [Figure II.7b]. La discrimination choisie par le modèle chinois porte des exigences de qualité beaucoup plus faibles, par exemple une concentration entre 75µg.m⁻³ et 115µg.m⁻³ est considérée de classe 3 [AQI entre 101 et 150, Light Polluted] contre une classe 4 [AQI 151 – 200, Unhealthy] dans le modèle américain. C'est en partie pour cela que l'on retrouve principalement les PM₁₀ comme polluant principal dans les 4 premières classes, puis les PM_{2,5} sur les deux dernières [équivalentes au système américain].

L'AQI montre ainsi rapidement ses limites quant à la caractérisation de la qualité de l'air, de par sa construction arbitraire des classes d'AQI et du risque associé, les informations quant à la dangerosité de la qualité de l'air peuvent être minimisées.

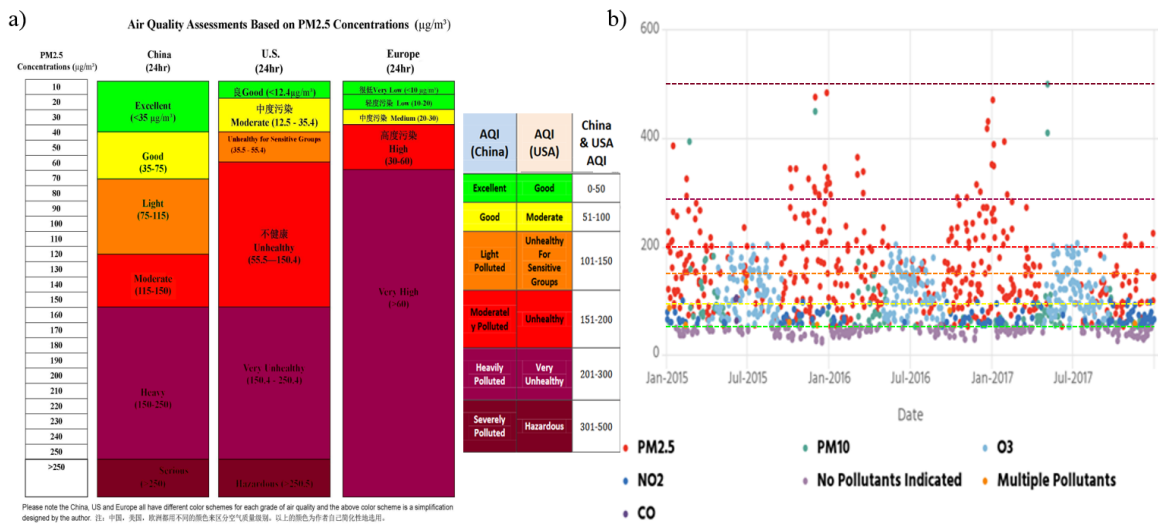


FIGURE II.7 – a) Echelle de calcul de l’AQI à partir des concentrations en PM_{2.5}, pour le système chinois, américain et européen. b) série temporelle AQI et polluants responsables pour la ville de Pékin [MEP].

La pollution atmosphérique en Chine

*« L'histoire est entièrement vraie
puisque je l'ai imaginée d'un bout à
l'autre. »*

BORIS VIAN, 1947

Sommaire

| | | |
|---------|--|-----------|
| III.1 | Les tendances des principaux polluants en Chine | 59 |
| III.1.1 | Le dioxyde de soufre en Chine | 59 |
| III.1.2 | L'ammoniac en Chine | 60 |
| III.1.3 | Les oxydes d'azote en Chine | 61 |
| III.1.4 | Les Composés Organiques Volatils Non Méthaniques en Chine | 61 |
| III.1.5 | L'Ozone | 61 |
| III.2 | Influence à l'échelle globale de la pollution atmosphérique chinoise | 67 |
| III.2.1 | Impact radiatif des aérosols et conséquences sur le climat | 67 |
| III.2.2 | Transport de la pollution jusqu'au Japon et États-Unis | 67 |
| | Conclusion | 68 |

Ce chapitre décline la problématique de la qualité de l'air à l'échelle de la PRC et ses spécificités.

III.1 Les tendances des principaux polluants en Chine

III.1.1 Le dioxyde de soufre en Chine

Comme décrit précédemment, les politiques de contrôle en Chine se sont mises en place plus récemment que pour les États-Unis et l'Europe, l'inflexion des émissions de polluants en Chine qui en découle s'est faite aussi depuis peu. La Figure III.1 montre l'évolution relative depuis 2001 des émissions des différents polluants pour 3 régions [Est des États Unis, Europe de l'Ouest et Est de la Chine]. Pour l'ensemble des polluants considérés, mis à part l'ammoniac, les émissions sont à la baisse en Europe et aux États-Unis. Le constat est très différent en ce qui concerne la Chine, car les émissions ont augmenté jusqu'en 2005 pour l'ensemble des polluants.

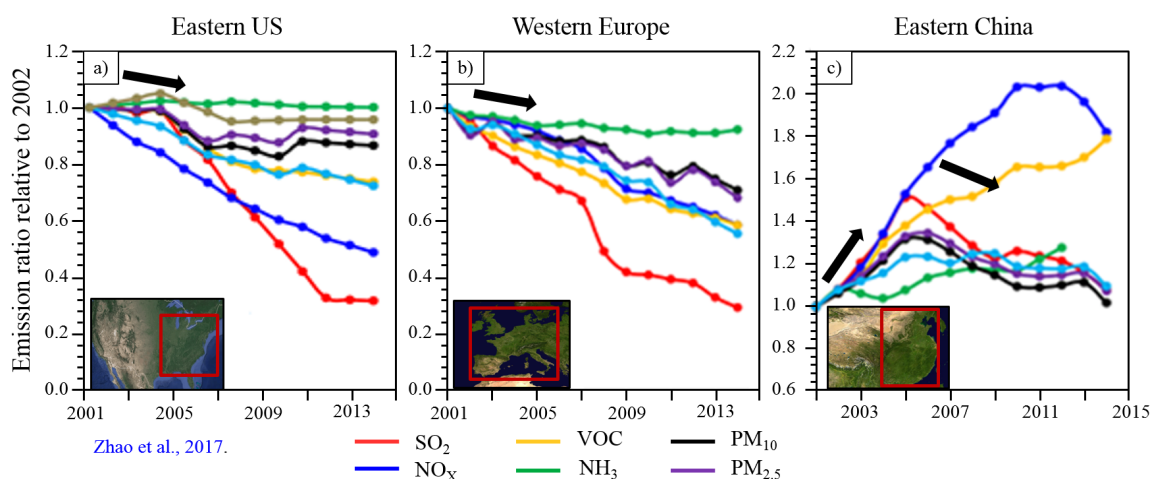


FIGURE III.1 – Evolution des émissions entre 2001 et 2015 pour les principaux polluants atmosphériques pour a) La côte Est des États-Unis, b) l'Europe de l'Ouest et c) l'Est de la Chine, adapté depuis Zhao et al. [2017].

En Chine, les émissions de SO₂ ont fortement augmenté jusqu'en 2005, suivant l'évolution de la consommation de charbon, nécessaire à la production d'énergie [Figure III.1c], mais les réglementations mises en places par le MEP durant les années 2000 ont renforcé les protocoles de contrôles des émissions, [e.g. désulfuration des émissions pour les centrales thermiques les plus importantes, ou le contrôle de fonctionnement des cimenteries et aciéries]. À cela s'ajoute une volonté affichée de réduire la part du charbon dans la production d'énergie à 50 % d'ici 2040 [en promouvant l'énergie nucléaire, Singer and Peterson, 2016] et solaire, ce qui permet actuellement une diminution des émissions de dioxyde de soufre en Chine entamée depuis 2005 [Xia et al., 2016; Klimont et al., 2013]. La Figure III.2a permet de visualiser la distribution spatiale des émissions de SO₂ pour la Chine, qui montre une corrélation avec la répartition de la population Chinoise, principalement à l'Est du pays et le long des principaux fleuves. Les émissions de dioxyde de soufre contenues dans l'encart rectangulaire incluant l'Est de la Chine correspondent à 19.7 Mt [Janssens-Maenhout et al., 2015].

Le MEP de la PRC publie depuis 1996 un rapport annuel sur l'état de l'environnement [Bruit, atmosphère, réserves d'eaux continentales et territoriales, ect... <http://english.mep.gov.cn/Resources/>

Reports/soe/, consulté le 17/08/2018], plus détaillé depuis le début des années 2010 en ce qui concerne la caractérisation de la qualité de l'air grâce à un réseau de mesures plus développé et une volonté de transparence. Les efforts conduits par le gouvernement pour abaisser les niveaux de pollutions commencent à montrer des résultats, si l'on compare les concentrations de SO_2 mesurées dans différentes villes chinoises entre 2013, 2015 et 2017 [Distributions extraites des rapports officiels du MEP; [Ecology and Environment, 2014](#); [Ecology and Environment, 2016](#); [Ecology and Environment, 2018](#); Figure III.2b].

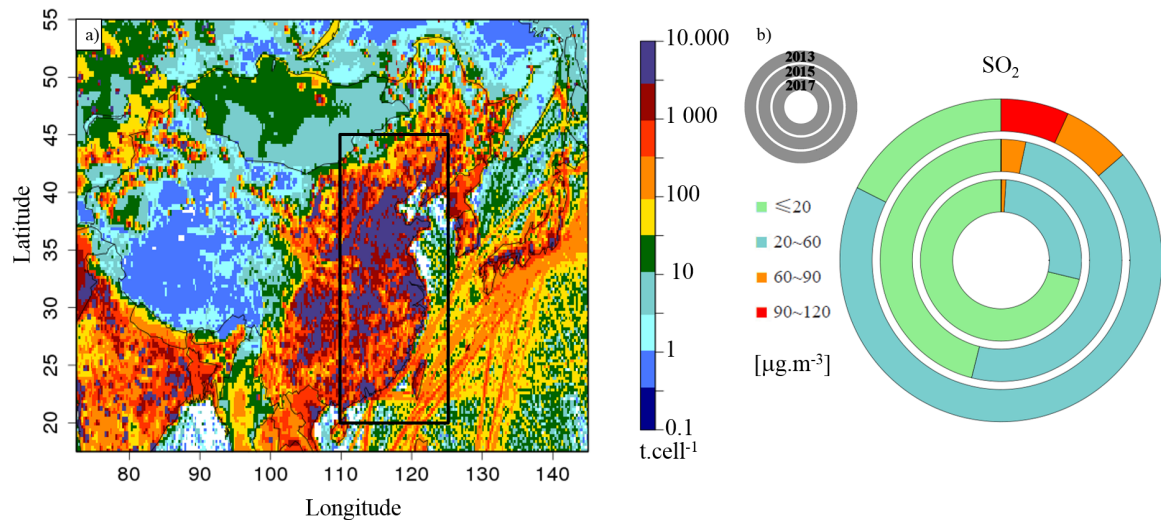


FIGURE III.2 – a) Distribution spatiale des émissions de SO_2 en Chine selon [Janssens-Maenhout et al. \[2015\]](#). b) Evolutions entre 2013 et 2015 des distributions des concentrations annuelles de SO_2 dans les villes de Chine. 74 villes sont analysées pour 2013 [cercle extérieur], 338 villes sont analysées pour 2015 et 2017 [respectivement cercle du milieu et cercle intérieur]. Adapté depuis [Ecology and Environment \[2014, 2016, 2018\]](#).

Cette diminution des concentrations de polluants indiquée dans les rapports du MEP est confirmée en partie par des mesures satellites, comme les mesures du satellite OMI [*Ozone Monitoring Instrument*], qui indiquent une diminution des colonnes de SO_2 depuis 2011 [[Krotkov et al., 2016](#)] ou par des mesures indépendantes comme celles des ambassades et consulats des Etats Unis en Chine, qui montrent une amélioration pour Pékin, Shanghai, Guangzhou, Shenyang et Chengdu [[Lowsen and Conway, 2017](#)].

III.1.2 L'ammoniac en Chine

Les émissions d'ammoniac en Chine comptent pour environ 20 % des émissions mondiales [Figure III.3a], et se concentrent principalement aux niveaux des zones agricoles Chinoise, au Nord Est de la Chine [Figure III.3b]. Les quantités émises sont plus prononcées à la fin du printemps et au début de l'été, lorsque se font les épandages d'engrais [Figure III.3c; [Zhang et al., 2018](#)] et à l'échelle de la Chine, 90 % des émissions sont liées au secteur agricole [Agriculture et élevage; Figure III.3c; [Kang et al., 2016](#)]. D'après [Kang et al. \[2016\]](#), les émissions d'ammoniac sont relativement stables en PRC depuis l'année 2008.

III.1 Les tendances des principaux polluants en Chine

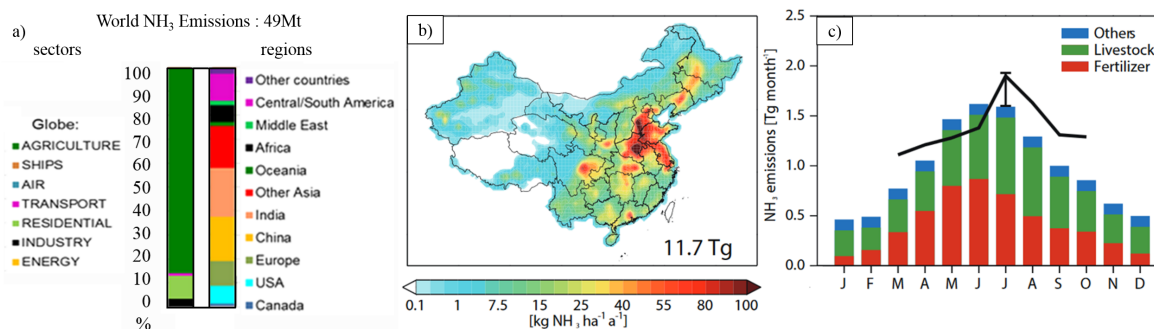


FIGURE III.3 – a) Répartition par secteurs [gauche] et par régions [droite] des émissions d’ammoniac en 2010. [Janssens-Maenhout et al., 2015], b) distribution spatiale des émissions d’ammoniac en Chine et c) distribution mensuelle des émissions en Chine, adapté depuis Zhang et al. [2018].

III.1.3 Les oxydes d’azote en Chine

Plusieurs études [de Foy et al., 2016; Liu et al., 2017] indiquent que les émissions des oxydes d’azote en PRC sont en diminution, avec cependant une inflexion des courbes observée plus récemment que pour le dioxyde de soufre, en effet, les émissions de NO_x n’ont commencé à se réduire qu’à partir de 2014 [Figure III.1]. La Figure III.4a est extraite de Liu et al. [2017] qui compare les observations des colonnes atmosphériques de dioxyde d’azote du satellite OMI avec l’évolution du parc automobile chinois et de la consommation de charbon. Il apparaît grâce à cette comparaison que la diminution des niveaux de NO₂ n’est pas expliquée par un ralentissement des secteurs de l’énergie ou du trafic, mais par l’introduction de normes de contrôle des émissions plus contraignantes. Cette diminution des niveaux de dioxyde d’azote se retrouve dans les rapports du MEP et l’évolution de la distribution des concentrations de surface de NO₂ est montrée sur la Figure III.4, selon le même modèle que pour le SO₂ Figure III.2b.

III.1.4 Les Composés Organiques Volatils Non Méthaniques en Chine

En Chine, les émissions de NMVOC sont un cas particulier, car elles semblent être toujours en augmentation [Figure III.1]. Une information validée par les observations dérivées du satellite OMI, pour lequel les valeurs des colonnes de formaldéhyde augmentent depuis 2013 selon et [Dufour et al., 2018, soumis].

On retrouve aussi en Chine de nombreux VOC émis par la biosphère [forêt, arbuste, herbe, repérés par de forts NDVI, *Normalized Difference Vegetation Index* sur la Figure III.5], notamment au Sud et Sud-Est de la Chine. Des émissions qui seraient en augmentation depuis quelques années [Wang et al., 2018; Tie et al., 2006].

III.1.5 L’Ozone

Durant la période estivale, l’O₃ représente l’un des polluants les plus dangereux, car c’est pendant cette période que les conditions de formation de l’ozone sont optimales. L’évolution des émissions de ces précurseurs pose la question de l’évolution des tendances d’ozone elles-même. Il apparaît selon certaines études que les concentrations d’ozone à la surface sont en augmentation [Gao et al., 2017], une tendance qui pourrait s’expliquer par la diminution des niveaux de SO₂ et NO_x, induisant une diminution de la titration de l’ozone par NO et de la consommation de radical hydroxyle par SO₂.

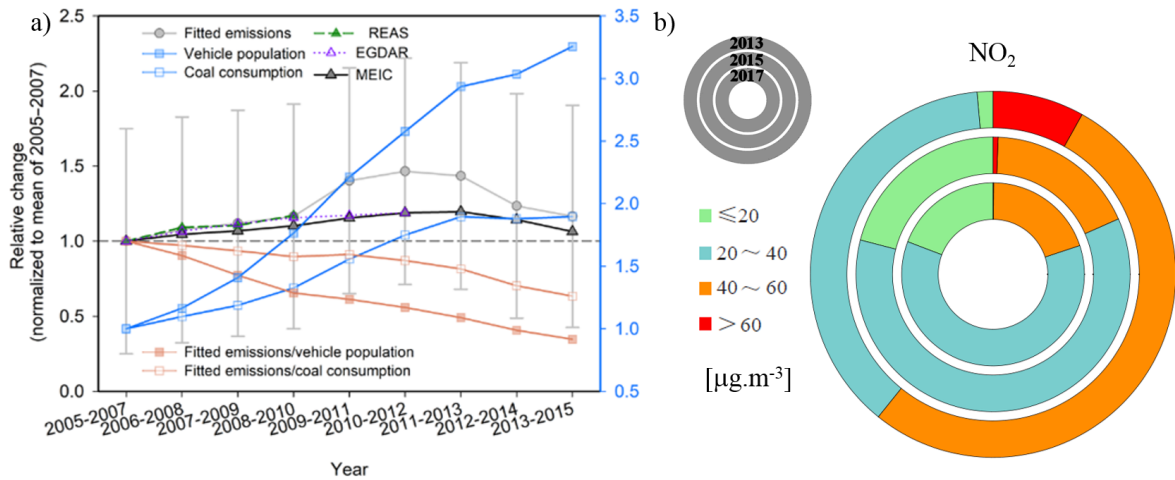


FIGURE III.4 – a) Evolution relative des émissions de NO_2 [OMI], du parc automobile et de la consommation de charbon en Chine de Liu et al. [2017]. b) Evolutions entre 2013 et 2015 des distributions des concentrations annuelles de surface de NO_2 dans les villes de Chine. 74 Villes sont analysées pour 2013 [cercle extérieur], 338 villes sont analysées pour 2015 et 2017 [respectivement cercle du milieu et cercle intérieur]. Adapté depuis Ecology and Environment [2014, 2016, 2018].

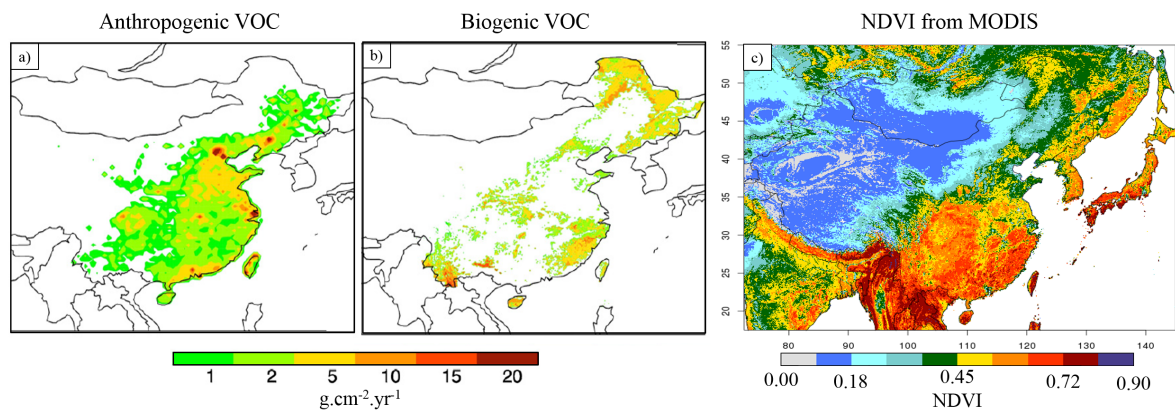


FIGURE III.5 – Emissions de composés organiques volatils en Chine, depuis les sources a) Anthropique [Tie et al., 2006], b) biogéniques et c) carte des NDVI MODIS entre 2001 et 2017 [Acker and Leptoukh, 2007].

A l'inverse, les niveaux d'ozone intégrés sur la colonne atmosphérique partielle [0 – 6 km] présentent une tendance négative significative de $-1.2\% \cdot \text{y}^{-1}$ entre 2013 et 2017 Dufour et al. [2018]. Cependant, plusieurs études s'accordent sur l'effet possible du changement climatique et anticipent une augmentation des niveaux d'ozone [Wang et al., 2013; Liu et al., 2013b; Zhu and Liao, 2016], principalement en réponse à l'augmentation des émissions de VOC biogéniques.

III.1.5.1 Composition, variabilité et évolution des aérosols en Chine

La pollution particulaire est le problème dominant en termes de pollution atmosphérique. Dans le cas de la Chine les sources de cette pollution complexe sont nombreuses. Cela rend la question du

contrôle de cette pollution non triviale puisqu'il faut tenir compte du fait qu'une partie de la charge atmosphérique particulaire est associée à des sources naturelles et aussi du fait que la fraction secondaire est dominante et contrôlée par des processus largement non linéaires par rapport aux émissions de précurseurs.

■ Répartition spatiale de l'aérosol en Chine :

En combinant les différentes sources de pollution particulaire abordées dans ce chapitre, il est possible de spatialiser les activités et leurs émissions spécifiques, comme présenté sur la Figure III.6a. Cette diversité de polluants mesurés dans les villes chinoises s'explique par la multiplicité des sources de pollution qui se retrouve sur le territoire chinois ou à ses frontières, comme détaillé sur la Figure II.4. Si les régions au Nord de la Chine sont arides voire désertiques, et sont à l'origine d'émission de poussières minérales, le Sud-Est de la Chine présente une importante densité de végétation, à l'origine de l'émission de NMVOC biogéniques. À l'Est de la Chine, où se concentre plus de 90 % de la population chinoise, se retrouvent les émissions de polluants issus des activités agricoles, industrielles et des environnements urbains.

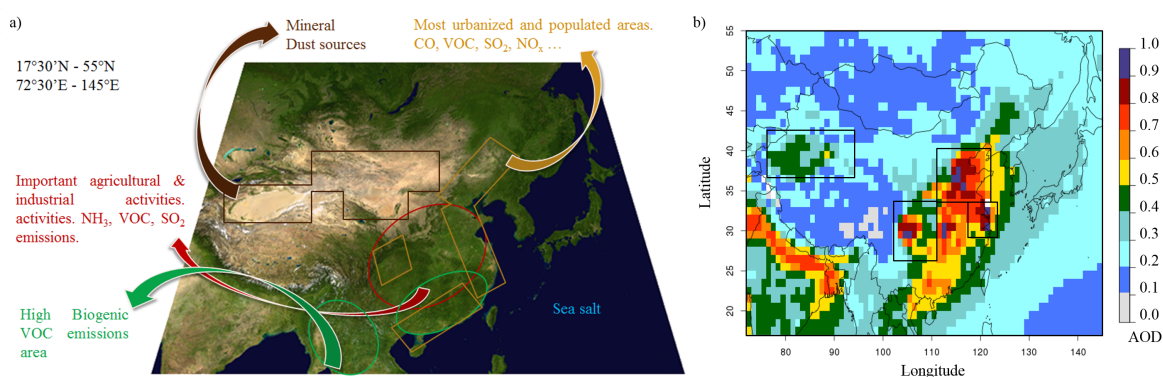


FIGURE III.6 – a) Localisation des différentes sources de pollution en Chine et b) Observation des épaisseurs optiques à 550 nm des colonnes atmosphériques au-dessus de la Chine par l'instrument MODIS entre 2001 et 2017. À l'Ouest, le Taklamakan, au Nord-Est la région North China Plain et à l'Est la région de Shanghai. Données téléchargées depuis la plateforme Giovanni, développée par NASA GES DISC, [Acker and Leptoukh, 2007].

Il est possible d'utiliser les propriétés d'extinction du signal par les aérosols pour observer depuis l'espace le contenu en aérosols des colonnes atmosphériques via leurs épaisseurs optiques, comme avec le satellite MODIS [*Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer*, section IV.1.2], qui survole quotidiennement la Chine depuis 2001. La Figure III.6b renseigne les valeurs d'AOD moyennes des colonnes atmosphériques au-dessus de la Chine de 2001 à 2017, et permet d'identifier les différentes spécificités des régions chinoises. La partie Est de la Chine présente des valeurs d'AOD élevées, plus fortement au Nord Est, partant de la région appelée « North China Plain », à l'embouchure du Fleuve Jaune, comprenant les provinces Liaoning, Tianjin, Hebei, et Shandong, jusqu'à Shanghai et le centre de la Chine [municipalité de Chongqing et province du Sichuan]. Cette région correspond à la localisation des populations, et des différentes activités agricoles et industrielles. La région correspondant à l'Himalaya située à l'ouest du domaine, est repérée par de faibles AOD, et à l'inverse, le Taklamakan, enclavé à l'ouest de la chaîne montagneuse présente des niveaux d'AOD élevés.

■ Composition de l'aérosol en Chine :

La Figure III.7 extraite de Wang et al. [2017] regroupe des mesures de spéciation des aérosols [PM_{2.5}] pour différentes villes de Chine entre 2009 et 2015. La composition de l'aérosol présente une importante variabilité selon la région considérée. Les villes proches des régions sources de poussières minérales [i.e. Xi'an, Yinchuan, Lanzhou, Chengdu] présentent une forte contribution liée à la composante de l'aérosol minérale, entre 13 % et 41 % pour Chengdu et Yinchuan. La fraction attribuable à l'aérosol organique varie entre 15 % [Urumqi] et 51 % [Lhasa] et celle attribuable aux aérosols inorganiques secondaires [SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺] entre 8 % [Lhasa] et 51 % [Jinan].

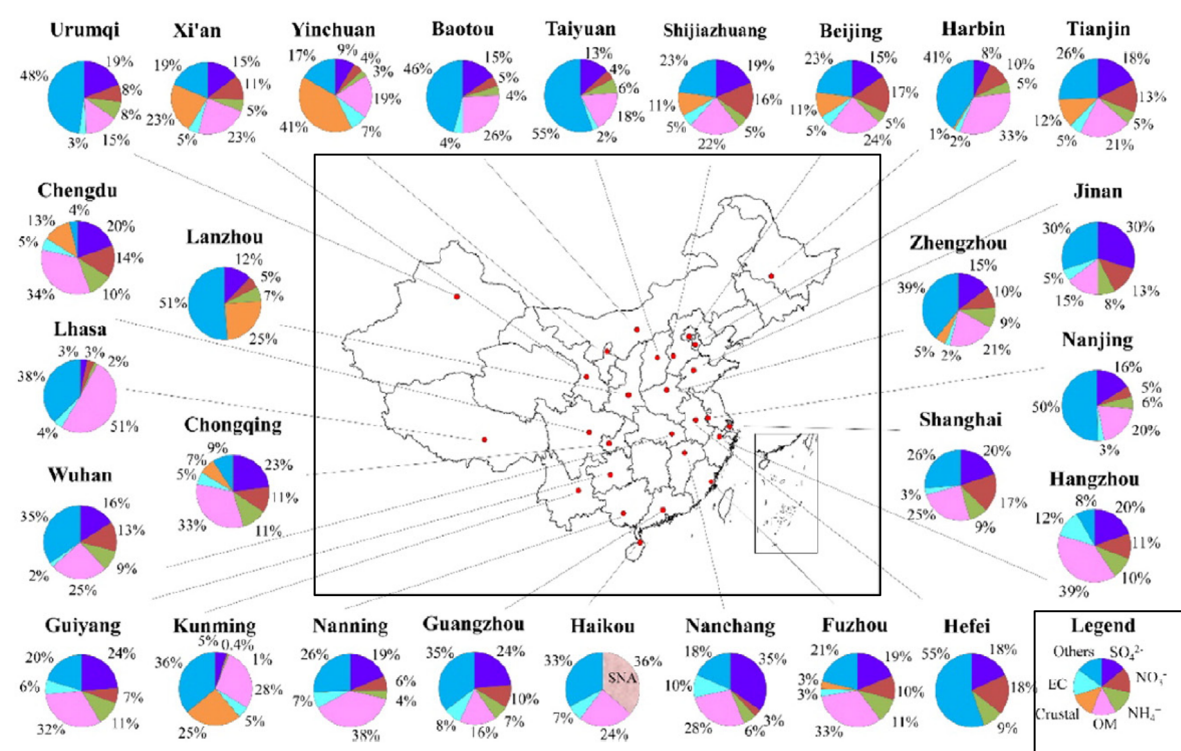


FIGURE III.7 – Mesure de la composition de l'aérosol pour la fraction PM_{2.5} dans les principales villes Chinoise, figure extraite de Wang et al. [2017].

■ évolution de l'aérosol en Chine :

Les efforts conduits par le gouvernement pour abaisser les niveaux de pollutions commencent à montrer des résultats, si l'on compare les niveaux de PM_{2.5} mesurés dans différentes villes chinoises entre 2013 et 2017, représentés Figure III.8 [Distributions extraites depuis Wang et al., 2017 et des rapports officiels du Ecology and Environment [2014, 2016, 2018]]. Ces diminutions des concentrations de polluants indiquées dans les rapports du MEP sont confirmées en partie par des mesures indépendantes comme celles des ambassades et consulats des États-Unis en Chine, qui montrent une amélioration pour Pékin, Shanghai, Guangzhou, Shenyang et Chengdu [Lowsen and Conway, 2017].

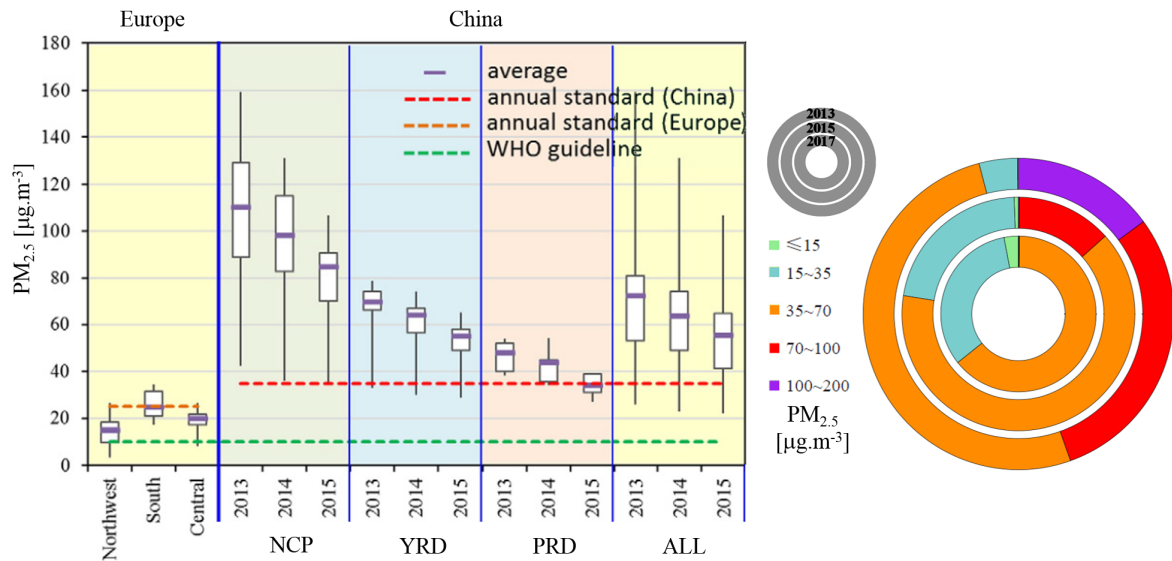


FIGURE III.8 – À gauche, évolution des distributions des mesures de $PM_{2.5}$ en Chine par région entre 2013 et 2015 [Wang et al., 2017]. À droite, évolutions des distributions des concentrations annuelles de $PM_{2.5}$ dans les villes de Chine. 74 Villes sont analysées pour 2013 [cercle extérieur], 338 villes sont analysées pour 2015 et 2017 [respectivement cercle du milieu et cercle intérieur]. Adapté de Ecology and Environment [2014, 2016, 2018].

■ Les poussières minérales d'origine désertique en Asie :

L'Asie regroupe de nombreuses régions arides, considérées comme désertiques et à l'origine d'émissions de poussières désertiques. La Figure III.9a montre les spécificités des déserts situés en Chine et en Mongolie. Une majorité des espaces désertiques sont de types « rocheux », caractérisés par des hauteurs de rugosité élevées et des vitesses de friction seuils associées plus élevées. On retrouve cependant plusieurs déserts de sable, comme le désert du Taklamakan, caractérisés à l'inverse par des hauteurs de rugosité plus faibles. Les émissions de poussières désertiques fluctuent fortement d'une année sur l'autre, il est donc compliqué d'estimer en moyenne ce que représentent les émissions depuis les déserts chinois. Laurent et al. [2006] a simulé les émissions pour 6 années [1996 – 2001] et estime les émissions autour de 242 Mt.y^{-1} , avec un écart type relatif sur les émissions annuelles de 54 %. Une étude plus récente de Chen et al. [2017] a simulé sur 5 années [2007 – 2011] une émission de dust moyenne de 367 Mt.y^{-1} . Les deux études montrent un cycle d'émission saisonnier très marqué, avec un maximum d'émissions durant le printemps [75 % des émissions au printemps pour Laurent et al., 2006, contre 38 % pour Chen et al., 2017].

Les particules d'origine désertique sont susceptibles d'être transportées sur de longue distance à partir des zones d'émissions, et le cas échéant, peuvent impacter les populations situées en ville. Une étude de Yang et al. [2004] analyse entre 1999 et 2000 la composante minérale de l'aérosol à Pékin et Shanghai, et mesure des concentrations annuelles de $13.1 \mu\text{g.m}^{-3}$ et $7.4 \mu\text{g.m}^{-3}$ respectivement, principalement liées à des événements de fortes intensités, comme présenté sur la Figure III.9b.

■ Les suies :

En Chine, Yang et al. [2017] estime les émissions des activités anthropiques et des feux de biomasses à 2.5 Mt.y^{-1} , distribuées spatialement selon la Figure III.10. Il est important de noter que les

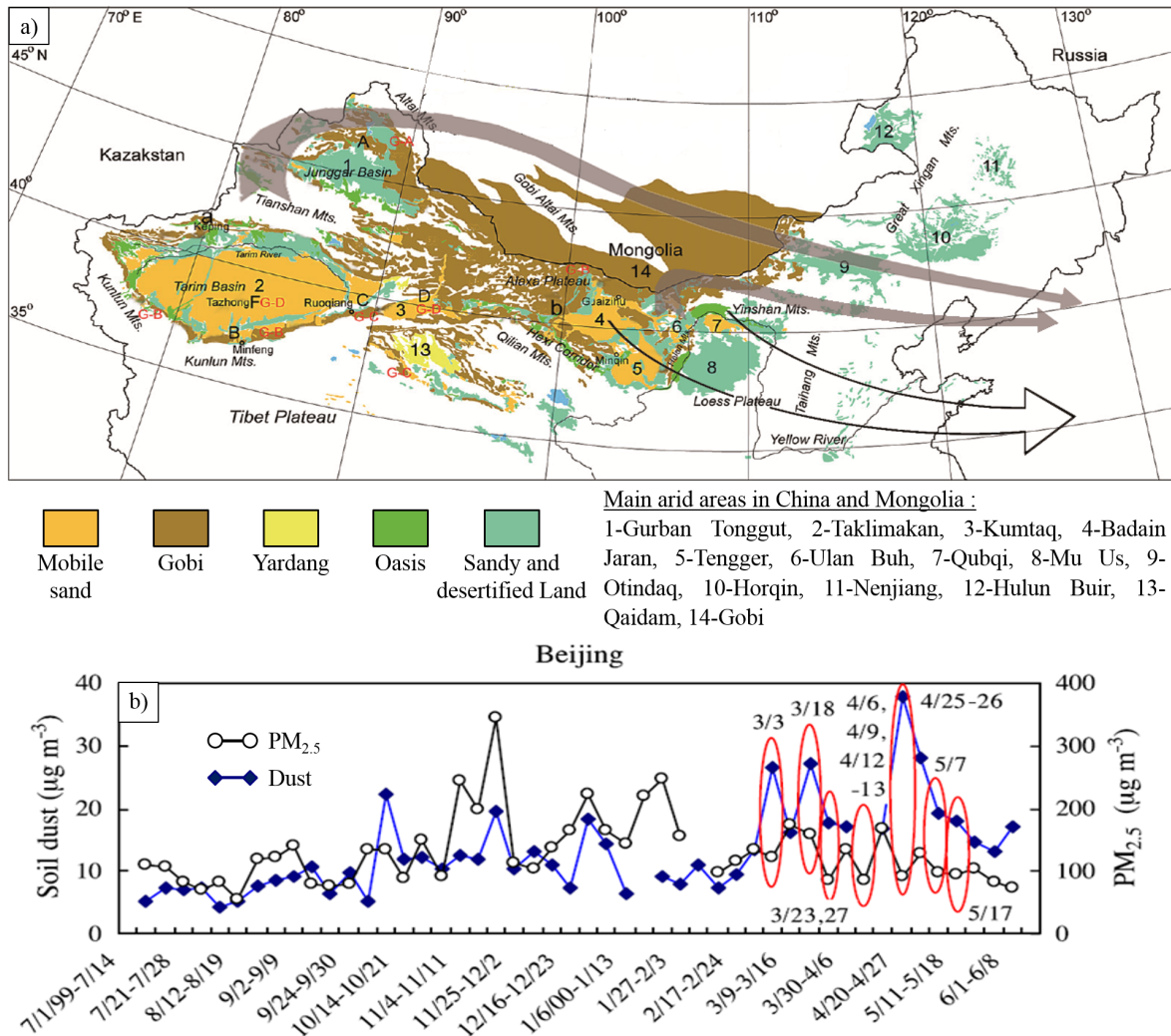


FIGURE III.9 – a) La figure renseigne la localisation des déserts d’Asie, leurs caractéristiques géomorphologiques ainsi que le transport de poussières depuis les déserts du nord de la Chine. Le transport depuis les déserts se fait à différentes altitudes, le plus souvent supérieures à 5000 m [flèches grises], ou à une altitude généralement inférieure à 2500 m [flèche blanche]. Figure adaptée depuis Laurent [2018]; Sun [2002]; X. et al. [2008] et b) série temporelle de mesures de la composante minérale de l’aérosol comparées aux teneurs en PM_{2.5} à Pékin, depuis Yang et al. [2004].

chiffres de Lioussé et al. [1996] [présentés section I.3.4.2] et Yang et al. [2017] sont établis pour des années de références différentes. Depuis quelques années, il apparait que les émissions de BC sont en légère diminution comme l’expose la Figure III.1.

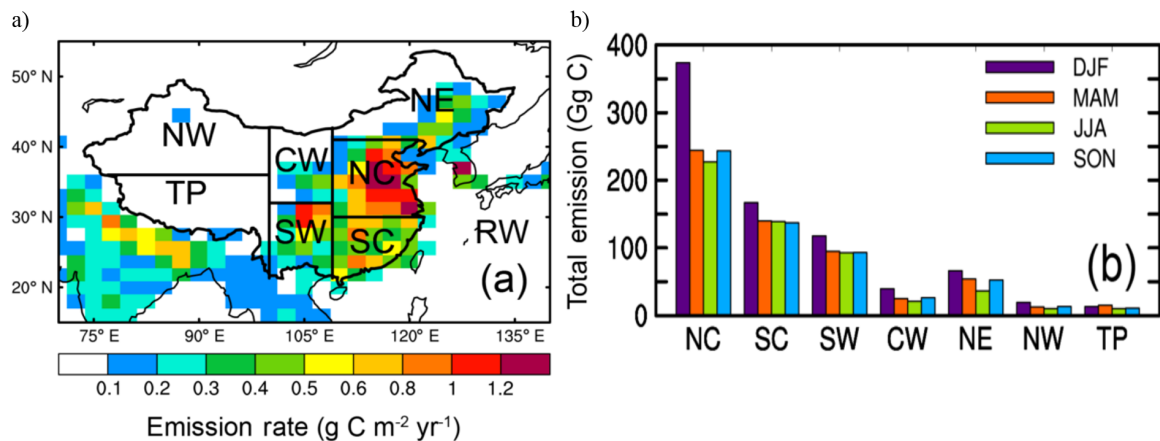


FIGURE III.10 – a) Distribution des émissions de BC en Chine et b) Variations saisonnières des émissions par régions [Yang et al., 2017].

III.2 Influence à l'échelle globale de la pollution atmosphérique chinoise

III.2.1 Impact radiatif des aérosols et conséquences sur le climat

Les aérosols aux temps de vie les plus longs peuvent se transporter sur de longues étendues et impacter des régions situées en aval des régions émettrices parfois à grandes distances [Li et al., 2016]. La pollution particulaire émise depuis la Chine peut être transportée dans l'hémisphère Nord, au-dessus de l'Europe ou de l'Amérique du Nord, c'est notamment le cas pour les sulfates et le black carbon [voir Figure III.11], mais aussi pour les nitrates et les aérosols organiques.

A l'échelle globale, les contributions de la Chine aux forçages radiatifs ont été quantifiées et sont présentées Figure III.11c, extraite de Li et al. [2016]. Les contributions les plus importantes sont attribuées à la pollution particulaire des sulfates et nitrates, évaluées respectivement à 28 % et 24 % et impliquant un forçage négatif. Les contributions correspondant à des polluants aux forçages positifs sont généralement moins conséquentes, estimées entre 23 % et 29 % pour le CO_2 , entre 12 % et 20 % pour le méthane, ou encore 21 % +/- 7 % pour le BC. En intégrant l'ensemble des espèces et leurs effets, la contribution de la Chine aux forçages radiatifs est estimée entre 8 et 12 %.

III.2.2 Transport de la pollution jusqu'au Japon et États-Unis

L'étude de Lin et al. [2012] estime que les émissions de polluants depuis la Chine contribuent à la pollution à l'ozone de surface de la côte Ouest américaine jusqu'à 15 ppb. L'ozone peut se former au-dessus de la Chine et de l'Océan pacifique, ou se former au-dessus des côtes américaines suite à la décomposition du PAN - formé aux latitudes élevées à partir de NO_x émis en Chine. 50 % d'excès de la limite de dépassement à l'ozone américaine [70 ppb] au printemps seraient dues à l'apport d'ozone ou de précurseurs venant de Chine. Verstraeten et al. [2015] quantifie l'impact de la pollution chinoise sur la formation d'ozone en Amérique du nord à $+0.03\text{DU.y}^{-1}$ entre 2005 et 2010.

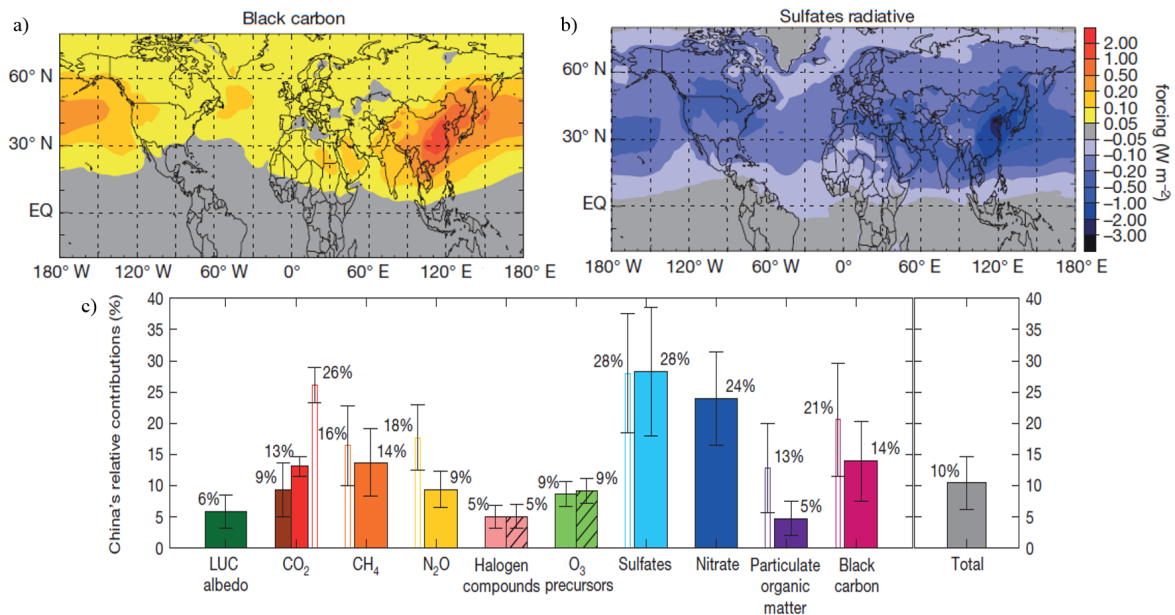


FIGURE III.11 – *Distribution spatiale et impact radiatif d'aérosols émis depuis la Chine en 2010, a) Black carbon et b) Sulfate, adapté depuis [Li et al., 2016]. c) Contribution relative de la PRC au bilan radiatif des principaux constituants de l'atmosphère impliqués dans des procédés radiatifs responsables de forçages climatiques [Li et al., 2016].*

Conclusion

A travers ce chapitre de présentation de la pollution atmosphérique, nous avons pu constater que le rapide développement de la Chine s'est accompagné d'importants impacts sur la composition de l'atmosphère, avec des niveaux de pollution particulaire et gazeuse élevés, notamment au Nord-Est de la Chine. La proximité de sources d'aérosols comme les déserts d'Asie et le développement récent de la PRC font que se retrouvent dans le mix de pollution atmosphérique chinois de forts niveaux de dust, de dioxyde soufre et sulfate, de dioxyde d'azote et nitrates, d'ammoniac et d'ammonium, d'aérosols organiques et aussi d'ozone, même si les teneurs de ces composants présentent une variabilité spatiale conséquente. Il apparaît cependant que les efforts conduits par le gouvernement depuis le milieu des années 2000 et accentués en 2012 ont un impact positif sur les niveaux de polluants mesurés un peu partout en Chine.

Dans ce document, nous avons cherché à évaluer l'impact de la pollution d'origine désertique par rapport aux autres sources de pollution, à l'aide du modèle CHIMERE, qui nous permet de caractériser la spéciation de la pollution et de pouvoir circonscrire l'apport des sources naturelles par rapport aux sources anthropiques. De même, nous nous sommes appliqués à représenter l'évolution récente [2011 – 2015] des émissions du dioxyde de soufre et des oxydes d'azote, afin d'appréhender les conséquences sur la phase particulaire associée à ces précurseurs.

Outils et méthodes : observer et modéliser l'atmosphère

« Of all the gin joints, in all the towns, in all the world, she walks into mine... »

RICK, CASABLANCA

Sommaire

| | | |
|--------|---|-----------|
| IV.1 | Les instruments d'observation de l'atmosphère | 71 |
| IV.1.1 | Les mesures au sol | 71 |
| IV.1.2 | L'observation depuis l'espace | 74 |
| IV.2 | La modélisation numérique de la pollution atmosphérique | 77 |
| IV.2.1 | Généralités | 77 |
| IV.2.2 | Le modèle CHIMERE | 77 |

Afin de surveiller et d'étudier l'atmosphère et les polluants atmosphériques, différents outils ont été développés, présentant chacun leurs avantages et leurs limites. Il n'existe pas d'instruments permettant une appréciation globale, continue et précise des différents polluants et variables géophysiques de l'atmosphère. Une approche intégrant différentes sources d'informations, telles que les mesures in-situ et par télédétection, ou la modélisation numérique, permet une description aussi complète que possible de la pollution atmosphérique. Ce chapitre a pour objectif de décrire les différents instruments utilisés pour étudier la pollution atmosphérique en Chine durant cette thèse, en présentant leurs spécificités, leurs avantages et leurs limites.

IV.1 Les instruments d'observation de l'atmosphère

La connaissance des polluants atmosphériques et des variables météorologiques s'appuie largement sur le développement et la mise en œuvre d'instruments de mesures, qui peuvent être installés au sol, transportés dans la troposphère [par avions, par ballons] ou déployés à l'extérieur de l'atmosphère, sur l'orbite terrestre [mesures par satellites].

IV.1.1 Les mesures au sol

Les stations de mesures au sol comportent un certain nombre d'instruments, permettant la mesure des concentrations de différents polluants en continu. Les stations permettent une mesure précise de différentes variables géophysiques, mais ne vont pas permettre une caractérisation spatiale globale de la pollution atmosphérique. Les observations faites depuis une station de mesure ont une représentativité, notamment spatiale, variable. Cette représentativité dépend du type d'environnement dans lequel elle se trouve, caractérisé par la densité de population [type urbain, péri-urbain, rural] et la nature de certaines sources spécifiques présentes à proximité [trafic, industrielles, fond]. La situation géographique d'une station est une caractéristique nécessaire à l'interprétation des mesures, aussi bien concernant leurs valeurs que sur l'amplitude du cycle diurne des concentrations de polluants. Les stations de trafic ont une propension - du fait de leur proximité aux sources, à représenter des environnements aux niveaux de pollutions élevés et sujets à de fortes variations au cours de la journée. Elles ont une représentativité spatiale souvent réduite. À l'inverse, les stations dites « de fond », plus éloignées des sources, présentent moins de variabilité, et sont représentatives d'un environnement plus large, notamment dans le milieu rural. Ces stations sont principalement en charge de la surveillance des polluants réglementés, le CO, les NO_x, l'O₃, le SO₂, les PM_{2.5} et les PM₁₀. Les méthodes de mesures sont spécifiques à chaque polluant étudié et s'appuient sur les propriétés physico-chimiques des espèces [i.e propriétés chimiques, optiques, aérodynamique ou autres]. Dans le cas des particules, les mesures réglementées se font par gravimétrie à l'aide de TEOM [*Tapered Element Oscillating Monitor*] et renseignent une concentration massique intégrée quelle que soit la nature chimique des particules pour des tailles cibles [PM₁₀, PM_{2.5}]. La mesure de la spéciation des différentes composantes de l'aérosol est plus complexe, récente, et nécessite des instruments de mesure plus coûteux [ACSM, *Aerosol Composition Speciation Monitor*], ce qui fait que ces informations sont en générales moins bien renseignées, même si cette discrimination des constituants de l'aérosol permet de mieux caractériser leurs origines et leurs voies de formation. Le plus fréquemment, les stations sont organisées en réseau de mesures, permettant une surveillance de la pollution atmosphérique à différentes échelles spatiales. La mise en place d'un réseau performant de surveillance de qualité de l'air en Chine s'est accéléré depuis 2012, comme planifié dans le 12^{ème} plan quinquennal Chinois [China's 12th Five-Year Plans; 2011 – 2015]. Ce réseau compte environ 5000 stations de mesures en 2017 [Zheng, 2017] - environ deux fois moins de stations par habitant qu'en France.

Dans cette thèse, des informations provenant de 3 réseaux de mesures vont être exploitées pour étudier la pollution atmosphérique en Chine et évaluer le modèle CHIMERE : les mesures du réseau AERONET, du réseau des ambassades et consulats américains et enfin des informations provenant de stations administrées par les autorités chinoises et fournies par le CRAES [*Chinese Research Academy of Environmental Sciences - Atmospheric Environment Institute*], à Pékin.

■ Le réseau AERONET

Le réseau AERONET [*Aerosol RObotic NETwork*, <https://aeronet.gsfc.nasa.gov/>, consulté le 28/08/18] regroupe un ensemble d'instituts, d'universités, de scientifiques et d'autres partenaires internationaux. Il est administré par la NASA [*National Aeronautics and Space Administration*] et PHOTON [*PHOTométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire*; Université de Lille 1, CNES, and CNRS-INSU] depuis 25 ans. Les stations d'observations sont équipées de photomètres permettant de mesurer les radiations solaires et de dériver l'épaisseur optique des aérosols présents dans la colonne atmosphérique à plusieurs longueurs d'ondes entre 440 et 675 nm. Les instruments permettent un suivi de l'AOD en continu, et fournissent plusieurs mesures par heure. Au total, 140 stations ont procédé à des mesures en Chine ou à proximité [i.e. comprises dans le domaine de simulation du modèle présenté plus tard dans le document] entre 2011 et 2015 dont 3 présentent une série temporelle bien documentée sur cette période [voir Figure IV.1] :

- ▶ Une station située à Pékin, avec 776 jours renseignés.
- ▶ Une station située à Hong Kong, avec 328 jours renseignés.
- ▶ Une station située à Xianghe [Dans la province de Hebei], avec 765 jours renseignés.

■ Le réseau de stations des Ambassades et consulats américains

Les différentes ambassades et consulats américains établis en Chine ont mis en place un système de surveillance des concentrations de $PM_{2.5}$ dans l'atmosphère et diffusent, notamment via le réseau social « twitter », ses informations, ce qui permet un suivi heure par heure de la pollution atmosphérique particulière. Le projet a été initié en 2008 à Pékin, et les mesures fournies par l'ambassade ont été parmi les premières à quantifier et à communiquer de façon transparente et régulière [@BeijingAir] sur la dangerosité de la pollution atmosphérique à Pékin. Aux informations de Pékin se sont rajoutées les mesures de 4 consulats situés à Chengdu, Guangzhou, Shanghai, et Shenyang à partir de 2013 [voir Figure IV.1]. Plusieurs articles de presse estiment que la diffusion de l'état de la qualité de l'air par l'ambassade américaine à Pékin aurait influencé les autorités Chinoises, en les forçant à mettre en place un réseau de surveillance et une réglementation pour réduire la pollution plus rapidement qu'elles ne l'auraient fait sinon [Roberts, 2013; Andrews, 2014].

■ Le réseau de stations de mesures chinoises

Durant mon passage à l'institut de recherche chinois, le CRAES, dans le cadre du projet PolEAsia [projet ANR, *POLLution in Eastern ASIA*], des données issues du réseau de mesures chinois nous ont été fournies. Ce réseau qui se développe depuis 2013 compte plus de 1000 stations à travers la Chine. Les stations mesurent les concentrations de l'ensemble des polluants surveillés : CO, SO₂, NO_x, O₃, PM_{2.5} et PM₁₀. Les mesures sont effectuées en continu et renseignent une valeur moyenne horaire, pour les mois de février, mars et avril en 2013, et de janvier à septembre pour l'année 2015. Au total, 38 stations sont disponibles, réparties aux abords de 25 villes chinoises [le plus souvent les chef lieux des provinces, voir Figure IV.1].

Pour exploiter les données des stations de mesure, il est souhaitable de connaître le type d'envi-

ronnement géographique dans lequel chaque station opère et donc sa représentativité. Il est possible de déterminer la situation d'une station considérée à partir des mesures de polluants elles-mêmes et d'une méthode de classification décrite dans [Flemming et al. \[2005\]](#). Cette méthode a pour avantage de ne nécessiter aucune information supplémentaire autre que les mesures de polluants pour discriminer les stations par types d'environnement. [Flemming et al. \[2005\]](#) s'appuie sur l'analyse de l'amplitude relative des cycles diurnes des observations de SO_2 ou O_3 . L'indicateur statistique $P50DV$ [médiante relative des variabilités journalière] est calculé selon l'Équation IV.1 :

$$P50DV = \frac{\widetilde{DV}_{\text{O}_3}}{[\text{O}_3]} \quad (\text{IV.1})$$

où $[\text{O}_3]$ correspond à la concentration moyenne journalière d'ozone, et $\widetilde{DV}_{\text{O}_3}$ correspond à la valeur médiane des amplitudes des concentrations horaires d'ozones calculée pour chaque jour $DV_{\text{O}_3,i}$:

$$DV_{\text{O}_3,i} = [\text{O}_3]_{(\text{max},i)} - [\text{O}_3]_{(\text{min},i)} \forall i \in [1 : n] \text{ days} \quad (\text{IV.2})$$

où $[\text{O}_3]_{(\text{max},i)}$ et $[\text{O}_3]_{(\text{min},i)}$ représentent respectivement les valeurs des concentrations horaires maximales et minimales pour le jour i , parmi les n jours compris dans l'intervalle de la série temporelle. La valeur de l'indicateur $P50DV$ est alors comparée aux valeurs décrites dans [Flemming et al. \[2005\]](#), ce qui permet la détermination de l'environnement propre à chaque station [Tableau IV.1]. La méthode est transposable pour les mesures de SO_2 , ce qui permet en théorie de valider le résultat obtenu avec l'ozone. Cette méthode appliquée par [Flemming](#) aux stations allemandes a également été appliquée avec succès à l'ensemble des stations européennes par [Gaubert et al. \[2014\]](#). Les résultats, appliqués au réseau du CRAES, sont présentés dans le Tableau IV.1.

TABLE IV.1 – *Classifications des stations par la méthode [Flemming et al. \[2005\]](#). R correspond à un environnement rural, U1 un environnement suburbain, U2 un environnement urbain, U3 un environnement urbain pollué et S une station proche du trafic. Les valeurs de $P50DV_{\text{O}_3}$ et $P50DV_{\text{SO}_2}$ représentent les centres de classes.*

| Type d'environnement | R | U1 | U2 | U3 | S |
|--------------------------------------|------|------|------|------|------|
| $P50DV_{\text{O}_3}$ | 0.88 | 1.27 | 1.63 | 1.83 | 2.02 |
| $P50DV_{\text{SO}_2}$ | 1.19 | 1.26 | 1.37 | 1.58 | 1.72 |
| Nb de stations $P50DV_{\text{O}_3}$ | 35 | 4 | 1 | 0 | 0 |
| Nb de stations $P50DV_{\text{SO}_2}$ | 35 | 3 | 1 | 1 | 0 |

L'application de cette méthode a permis de déterminer qu'une majorité [35/40] des stations de mesures à notre disposition sont représentatives d'environnement de fonds [R]. 5 stations sont représentatives d'environnements urbains, dont 3 sont identifiées par $P50DV_{\text{O}_3}$ et $P50DV_{\text{SO}_2}$ comme des environnements suburbains. Les stations de Guanzhou et Wuhan ne sont pas classées selon le même environnement par les deux indicateurs. Guanzhou étant identifiée comme U1 [$P50DV_{\text{O}_3}$] et U2 [$P50DV_{\text{SO}_2}$] et Wuhan comme U2 [$P50DV_{\text{O}_3}$] et U3 [$P50DV_{\text{SO}_2}$]. Cette information nous permettra

lors de nos comparaisons entre les informations des stations de mesure et les résultats des simulations du modèle de sélectionner selon l'objectif poursuivi les stations en fonction de leurs représentativités.

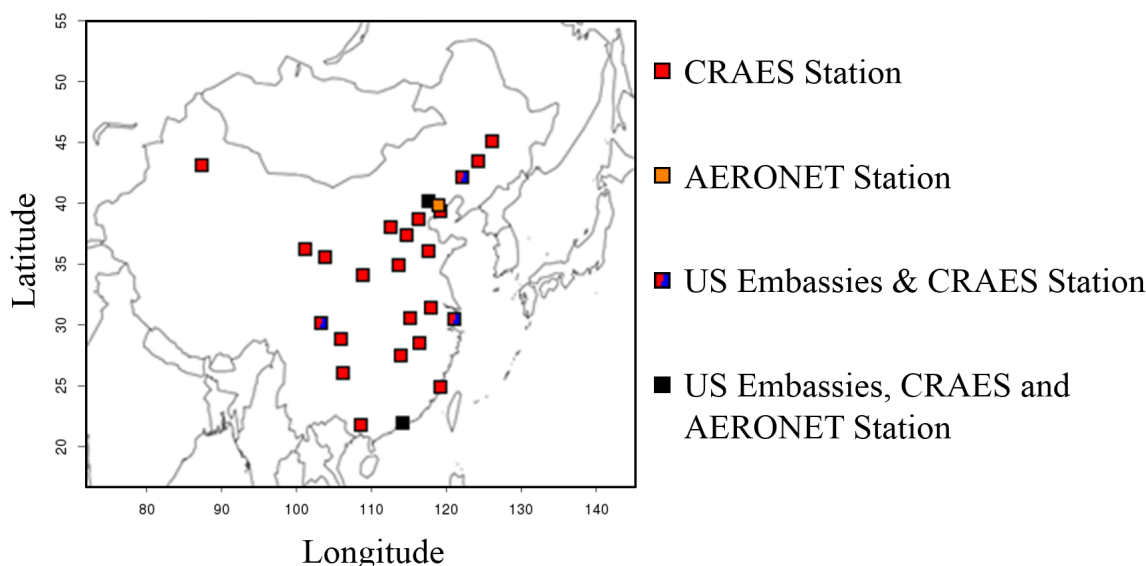


FIGURE IV.1 – Localisation des différentes stations de mesures au sol pour les différents réseaux.

IV.1.2 L'observation depuis l'espace

Le sondage de l'atmosphère par les satellites en orbite autour de la terre est l'unique méthode permettant d'obtenir une image globale de la Terre. Les instruments satellitaires dédiés à l'analyse de la composition de l'atmosphère reposent en majorité sur des méthodes de télédétection passive – c'est-à-dire sur l'analyse du rayonnement émis par une source naturelle comme la terre ou le soleil. Les principales radiances étudiées correspondent aux gammes des UV [émis par le rayonnement solaire] et des IR [émis par le rayonnement terrestre], mais des produits d'analyse dans le visible existent aussi [MODIS]. La mesure des constituants de l'atmosphère se fait donc de façon indirecte, en inversant à l'aide d'algorithmes [Rodgers, 1977] les mesures des radiances pour restituer les concentrations de polluants. Selon les cas, à partir des observations satellitaires on peut obtenir les colonnes ou les profils atmosphériques des composés traces. La sensibilité verticale associée aux observations est une des limitations de l'exploitation des mesures par satellite, la détection des polluants dans les couches atmosphériques les plus proches de la surface étant plus faible [Dufour et al., 2012], avec les domaines spectraux considérés, avec une sensibilité très faible voire nulle pour l'IR proche de la surface, et une sensibilité simplement réduite pour les domaines visible et UV. L'amélioration de la qualité des produits satellitaires dans les couches les plus basses de la troposphère fait partie des principaux enjeux et objectifs actuels de développement des algorithmes d'inversions [Cuesta et al., 2015; Dufour et al., 2012]. Dans cette thèse, plusieurs produits satellitaires sont exploités, afin de pouvoir évaluer le modèle et contraindre les émissions sur l'ensemble du territoire chinois, grâce aux mesures d'AOD [MODIS], d'ammoniac [IASI], de dioxyde de soufre [OMI] et de dioxyde d'azote [OMI]

■ L'instrument MODIS

MODIS [*Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer*] est un instrument de sondage de l'at-

mosphère embarqué sur les satellites de la NASA Terra [lancé en 1999] et Aqua [lancé en 2002] en orbite à environ 700 km d'altitude. L'instrument mesure la radiance de 36 longueurs d'ondes, comprises entre $[0.4 - 14.4 \mu\text{m}]$, ce qui correspond aux domaines des longueurs d'ondes visibles et IR. Les informations exploitées sont les informations du satellite Terra, qui observe la surface à 10 : 30 a.m. heure locale [<https://modis.gsfc.nasa.gov/>, consulté le 01/09/2018]. MODIS renseigne l'AOD à 550 nm et le coefficient d'Ångström de la colonne de façon quotidienne, à une résolution de $1^\circ \times 1^\circ$ [après plusieurs traitements du produit]. Le produit d'AOD utilisé est le produit combiné des algorithmes « Deep Blue » [continents] et « dark target » [continents et océans]. Les produits satellites ont été extraits depuis la plateforme giovanni [<https://giovanni.gsfc.nasa.gov/giovanni/>, consulté le 01/09/2018]. L'épaisseur optique observée par MODIS renseigne sur le contenu des colonnes atmosphériques en aérosols.

■ L'instrument OMI

L'instrument OMI [*Ozone Monitoring Instrument*], développé par l'agence spatiale Néerlandaise et l'institut météorologique de Finlande, mesure les rayonnements UV $[270 - 380 \text{ nm}]$ et visible $[380 - 500 \text{ nm}]$ et est embarqué à bord du satellite de la NASA AURA [Figure IV.2a]. Le satellite orbite à environ 705 km d'altitude. L'instrument possède une largeur de balayage de 2600 km à la surface de la Terre, avec une résolution de $24 \text{ km} \times 13 \text{ km}$ au nadir et $150 \text{ km} \times 13 \text{ km}$ à l'extrémité de la fenêtre de balayage [Schéma Figure IV.2b; [Levelt et al., 2006](#); [McCormick et al., 2013](#)]. Les observations OMI fournissent des produits pour plusieurs composés atmosphériques, notamment l'ozone [[Ahmad et al., 2003](#)], le dioxyde de soufre [[Theys et al., 2015](#)] et le dioxyde d'azote [[Boersma et al., 2007](#)].

Dans les travaux de cette thèse, les observations des colonnes atmosphériques de SO_2 et NO_2 sont exploitées. Ces données ont été préparées par A. Fortems-Cheiney [Comm. Pers.]. Les colonnes atmosphériques de NO_2 sont disponibles avec une résolution temporelle journalière et une résolution spatiale de $0.25^\circ \times 0.25^\circ$, obtenues selon le modèle d'inversion DOMINO, avec une incertitude sur les mesures estimées entre 30 % et 80 % sur les mesures individuelles [[Boersma et al., 2007](#)]. Les colonnes atmosphériques de SO_2 sont disponibles avec une résolution temporelle annuelle et une résolution spatiale de $0.25^\circ \times 0.25^\circ$, avec une gamme d'incertitude similaire à celle du NO_2 pour les mesures individuelles.

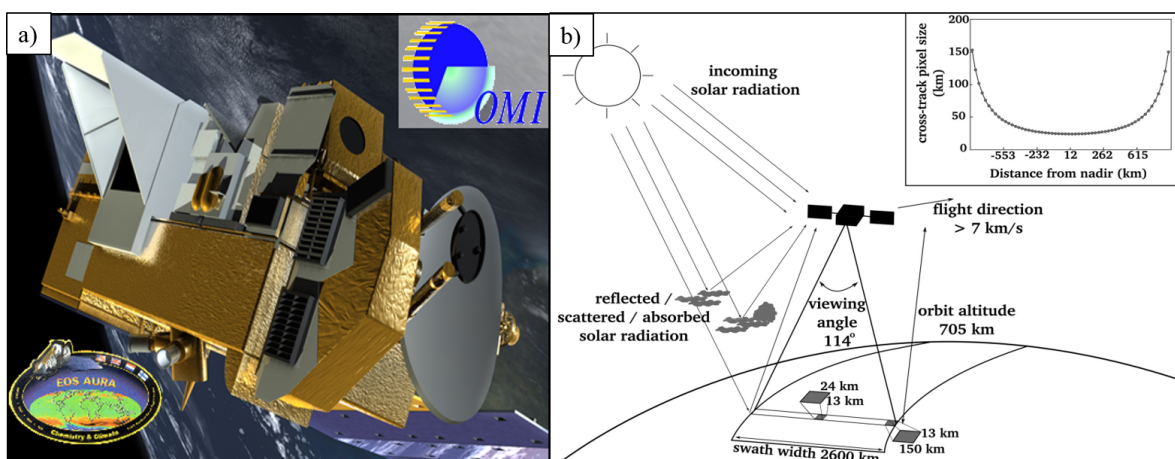


FIGURE IV.2 – a) Vue d'artiste du satellite AURA et b) schéma d'observation de l'instrument OMI adapté de [Levelt et al. \[2006\]](#); [McCormick et al. \[2013\]](#).

■ L'instrument IASI

Plusieurs instruments sont embarqués à bord des satellites Metop, notamment les instruments IASI [*Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*]. L'instrument IASI [A et B, selon le satellite], embarqué sur les plateformes Meteosat-A [lancé en 2006] et Meteosat-B [lancé en 2012] en orbite à 817 km d'altitude, observe l'atmosphère dans le domaine de l'IR [$3.7 - 15.5 \mu\text{m}$], avec deux mesures quotidiennes de la surface de la Terre. L'instrument balaye la surface de la Terre sur une largeur de 2200 km, avec une résolution au nadir des pixels circulaires projetés sur la surface de la Terre de 12 km de diamètre.

L'instrument IASI fournit une mesure des niveaux d'ammoniac dans les colonnes atmosphériques, selon Van Damme et al. [2017]. Van Damme et al. [2014] estime l'incertitude de l'instrument au-dessus des continents principalement entre 75 et 100 %, comme indiqué par la distribution des incertitudes sur la Figure IV.3a correspondant aux incertitudes associées aux distributions spatiales des mesures IASI. La distribution des erreurs au-dessus des océans est cependant partagée de façon plus équilibrée entre la gamme [75 – 100 %] et la portion d'erreurs supérieures à 100 %. La Figure IV.3b montre la variabilité temporelle des niveaux d'ammoniac hémisphérique entre 2007 et 2012, et les erreurs associées. Les deux hémisphères suivent un cycle saisonnier opposé et les niveaux d'ammoniac observés au-dessus de l'hémisphère nord sont significativement plus importants que ceux observés au-dessus de l'hémisphère sud.

Les données de NH_3 observées par IASI utilisées dans ce document ont été préparées par A. Fortems-Cheiney [Comm. Pers.], avec une résolution de $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ [calculée à partir de la moyenne de l'ensemble des mesures localisées dans la cellule] et une mesure quotidienne à 9 : 30 a.m. Le produit IASI NH_3 final est obtenu selon Van Damme et al. [2017], sans appliquer de sélection particulière des valeurs à partir de leurs incertitudes.

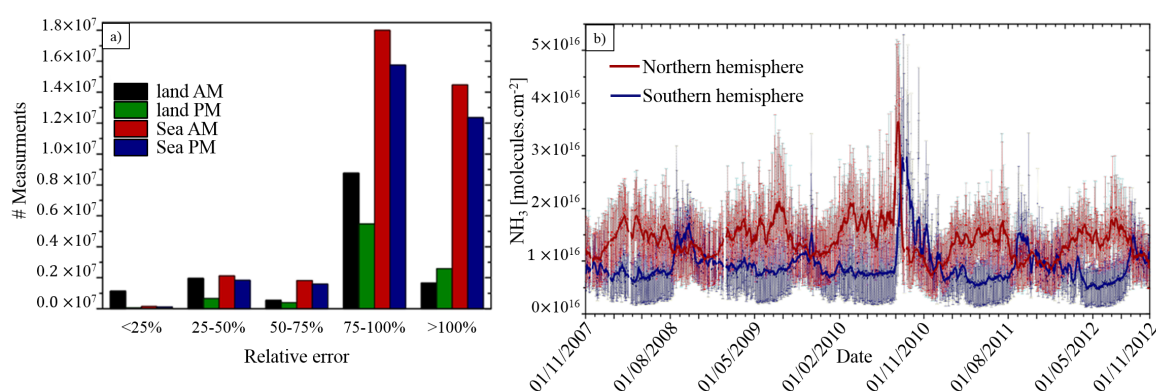


FIGURE IV.3 – Incertitudes associées aux colonnes d'ammoniac IASI, a) pour l'ensemble des pixels à l'échelle globale [$0.25^\circ \times 0.25^\circ$], selon l'heure de passage du satellite et le type de surface [continent ou océan] et b) incertitudes sur les valeurs journalières d'ammoniac pour l'hémisphère nord et l'hémisphère sud, entre 2007 et 2012.

IV.2 La modélisation numérique de la pollution atmosphérique

La modélisation numérique consiste à mettre en œuvre des méthodes numériques pour donner une estimation de la solution des équations mathématiques de la physique théorisant un phénomène réel [e.g. phénomène physique, chimique, physiologique...]. Ces estimations, surtout pour les systèmes complexes comme les systèmes environnementaux, sont réalisées par des moyens informatiques.

IV.2.1 Généralités

On distingue principalement deux approches mathématiques distinctes liées aux questions de modélisation : une description mathématique par un modèle dit « statistique » ou une description par un modèle dit « déterministe ». Un modèle statistique s'appuie sur des observations pour établir une relation mathématique entre des objets sans définition des processus mis en jeu dans leurs interactions [e.g. établissement de relation directe entre pollution atmosphérique et impact sanitaire à partir d'information sur les niveaux de pollution et recensement de symptômes des maladies respiratoires, [Schlink et al., 2006](#)]. L'approche déterministe repose sur la compréhension théorique du phénomène considéré et la mise en œuvre d'un modèle mathématique qui représente plus ou moins explicitement les processus qui régissent le phénomène considéré.

La simulation numérique permet de représenter l'évolution d'un système, en partant d'un état initial jusqu'à un état final prédit, le plus souvent en passant par la représentation d'états intermédiaires. Par opposition, la problématique de la modélisation inverse permet à partir de la connaissance des paramètres d'un système à un état final [le plus souvent par l'observation] de déterminer les causes responsables d'un phénomène, en retrouvant les paramètres du système à un état initial.

L'atmosphère est un environnement complexe dans lequel interviennent conjointement de nombreuses interactions dynamiques et physico-chimiques. Les travaux de modélisation numérique de la pollution atmosphérique s'appuient sur la représentation des phénomènes du système atmosphérique, de la description du comportement de ses constituants et de la dynamique de ses interactions avec les autres compartiments du système terrestre. La modélisation des concentrations des polluants atmosphériques et de leur transport dans l'atmosphère se fait souvent à l'aide de modèles dit de « Chimie – Transport », qui, à partir de données d'entrées [météo, émissions] représentent un ensemble de processus qui pilotent l'évolution spatio-temporelle des concentrations associées aux différentes espèces considérées. À nouveau, on distingue deux approches distinctes : les modèles lagrangiens et les modèles eulériens. La description lagrangienne d'un écoulement consiste à suivre les particules d'un fluide le long de leur trajectoire. L'approche eulérienne repose sur une discrétisation du temps et de l'espace en un maillage fixe sur plusieurs dimensions au sein duquel se déplacent les particules de fluides, on parle ici de modèle 3D pour tridimensionnel.

Le modèle de chimie-transport [CTM, *Chemistry Transport Model*] mis en œuvre au cours de ma thèse est le modèle régional CHIMERE.

IV.2.2 Le modèle CHIMERE

Le modèle numérique CHIMERE est un outil libre de droit [distribué sous Licence publique générale GNU], développé pour permettre l'étude et la prévision des phénomènes de pollutions atmosphériques. Ce modèle est un des deux modèles utilisés pour la prévision de la qualité de l'air en France [<http://www2.prevoir.org/>, consulté le 12/09/2018; [Honoré et al., 2008](#)] en complément des informations fournies par les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air [AASQA].

Le modèle est un CTM régional à l'état de l'art qui est utilisé par de nombreuses équipes de recherche à travers le monde [<http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>, consulté le 12/09/2018].

IV.2.2.1 Les informations d'entrée du modèle : les forçages externes

Le modèle régional CHIMERE, comme tous les CTM régionaux, fonctionne en utilisant certains forçages externes. Ainsi sont requis des informations sur les émissions des différentes espèces [anthropiques et biogéniques], des informations sur les paramètres météorologiques, des informations sur l'utilisation des sols et des informations sur les concentrations aux limites du domaine considéré puisque le modèle est un modèle régional donc à surface limitée [voir schéma Figure IV.4].

■ La météorologie

Les conditions météorologiques jouent un rôle central dans les procédés contrôlant l'état de la qualité de l'air. Le transport des parcelles d'air au sein de la troposphère est un élément fondamental du contrôle de la pollution atmosphérique. La dynamique de la couche limite contrôle la dispersion verticale des polluants atmosphériques, elle présente d'importantes variabilités journalière et saisonnière car la turbulence de la colonne atmosphérique est notamment conditionnée par l'énergie fournie par les radiations solaires. L'advection des masses d'air permet le transport des polluants sur de larges échelles, et régit la dispersion horizontale des polluants. La turbulence des masses d'air, ainsi que les précipitations, sont respectivement des variables essentielles à la juste représentation des processus de dépôt sec et de dépôt humide. La représentation des processus photochimiques et le calcul des constantes de photolyse prend en considération l'extinction due aux aérosols et aux nuages, pour ensuite déterminer les constantes de photolyse. Le compartiment atmosphérique et la réactivité des composés en présence est dépendante de plusieurs variables géophysiques, comme la température, l'humidité relative et l'ensoleillement, qui déterminent les cinétiques de réactions et les changements d'états des composés. Les flux d'émissions de certains polluants sont directement dépendants des conditions météorologiques, comme les émissions de composés biogéniques depuis la biosphère qui dépend de la température, ou les émissions poussières minérales [dust] provenant de l'érosion éolienne.

Dans notre cas, les forçages météorologiques sont renseignés par les prévisions du centre météorologique européen [système IFS, ECMWF, [Owens and Hewson, 2018](#)], avec une résolution temporelle initiale de 3h, ensuite interpolées à l'échelle horaire. Les principales données météorologiques renseignées dans CHIMERE se trouvent en Annexe B.2 [page XIV].

■ Les conditions chimiques initiales et aux limites du domaine

Pour initier les simulations du modèle CHIMERE, comme pour tout modèle numérique, une information est nécessaire sur l'état initial du système atmosphérique, on parle de conditions initiales, correspondant à des niveaux « type » pour les différents polluants [conditions climatologiques] ou provenant de simulations de modèles globaux qui fournissent des prévisions de la composition atmosphérique à l'échelle globale [système COPERNICUS Atmosphère, CAMS]. En général, pour obtenir des conditions initiales réalistes [pour des simulations *a posteriori*, le cas de la prévision étant différent], on prévoit un temps de mise à l'équilibre du système [appelé spin-up] qui va dépendre de la taille du domaine de simulation. Au moins 10 jours sont nécessaires dans le cas de notre domaine de simulation chinois. CHIMERE étant un modèle régional, une information sur les conditions aux extrémités du domaine est nécessaire pour prendre en considération les polluants transportés depuis l'extérieur du domaine étudié, ce qui est particulièrement important pour les polluants aux temps de vie les plus

longs. Comme dans le cas de l'initialisation, on peut utiliser des climatologies ou des prévisions globales. Dans notre cas, vu l'extension géographique importante du domaine [Szopa et al., 2008] et pour ne pas alourdir le système, nous avons utilisé des conditions climatologiques. Les conditions utilisées aux limites du domaines et à l'initialisation des simulations proviennent pour les poussières minérales du modèle global GOCART [Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport; Ginoux et al., 2001] et du modèle global LMDZ-INCA [Laboratoire de Météorologie Dynamique Zoom; Hauglustaine et al., 2004; Hourdin et al., 2006] pour les autres espèces présentées dans la liste ci-dessous :

- Acétaldéhyde
- C₃H₆
- HNO₃
- O₃
- Alcanes
- CH₄
- NH₃
- OC
- BC
- CO
- NH₄⁺
- PAN
- C. Aromatiques
- Formaldéhyde
- NO₂
- SO₂
- C₂H₄
- H₂O₂
- NO₃⁻
- SO₄²⁻

■ Les émissions biogéniques

Les émissions biogéniques regroupent un ensemble de composés [NO, VOC...] provenant de la végétation et de l'activité bactérienne des sols. Les émissions biogéniques sont générées à partir du modèle en ligne MEGAN-v2 [Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature] [Guenther et al., 2012], qui estime les potentiels d'émissions en prenant en compte l'influence de la température et du rayonnement. Les émissions sont conditionnées par l'occupation des sols et les conditions météorologiques, et se calcule pour les VOC et NO selon l'Équation IV.3 :

$$ER_i = EF_i \times \gamma_{(i,T)} \times \gamma_{LAI} \times \gamma_{PPFD} \quad (IV.3)$$

ER_i représente le flux d'émission de l'espèce i , EF_i le facteur d'émission pour des conditions standard de température [303 K] fournies par MEGAN, $\gamma_{(i,T)}$ est le facteur d'activité des émissions qui prend en compte la déviation par rapport à la température standard, γ_{LAI} un facteur prenant compte de l'indice de surface foliaire [LAI, Leaf Area Index] aussi fourni par MEGAN et γ_{PPFD} qui rend compte de la densité du rayonnement du flux solaire.

■ Les émissions anthropiques

Les émissions anthropiques sont regroupées dans des inventaires qui peuvent être établis à partir d'un recensement et une spatialisation des sources en leur attribuant un facteur d'émission propre à chaque espèce et à chaque secteur d'activité. Une démarche alternative pour établir les inventaires d'émissions ou pour corriger/affiner les inventaires existants s'appuie sur l'utilisation des observations des polluants elles-mêmes. À partir de la connaissance *a priori* de l'inventaire et l'utilisation des observations, on utilise des méthodes inverses pour extraire la meilleure information de ces deux informations combinées. Cette seconde méthode nécessite des observations suffisamment renseignées sur une large couverture spatiale avec des incertitudes acceptables [e.g. certains produits satellitaires]. Certaines études combinent des informations de surface et de sondage de l'atmosphère par satellite pour corriger les inventaires d'émissions de NO_x [cas du Texas Tang et al., 2013] ou seulement à partir d'informations satellitaires, comme le satellite OMI, pour corriger les émissions au-dessus de la Chine selon Gu et al. [2014].

L'inventaire d'émissions EDGAR-HTAP V2.2 [Janssens-Maenhout et al., 2015] basé sur l'année 2010 a été utilisé pour générer les émissions anthropiques des espèces gazeuses et particulaires. Les

émissions sont initialement regroupées par secteur d'activité [SNAP, *Standardized Nomenclature for Air Pollutants*], elles sont alors décomposées pour correspondre aux polluants réels, puis agrégées pour correspondre aux espèces représentées dans CHIMERE [une construction des émissions du type Middleton et al., 1990]. Les émissions sont distribuées spatialement et des profils horaires journaliers d'émissions sont attribués [en UTC] pour chaque jour de la semaine. Le Tableau IV.2 résume les émissions issues de l'inventaire EDGAR-HTAP pour une sous-région du domaine, où se concentrent la population chinoise et les émissions [East China : 20°N – 45°N; 110°E – 125°E]. La variabilité mensuelle des émissions de l'espèce considérée est calculée à partir de l'écart type des émissions mensuelles normalisées par rapport à la moyenne des émissions mensuelles, selon l'Équation IV.4 :

$$Variability [\%] = \frac{\sigma_{E_{emismonthly}}}{\overline{E_{emismonthly}}} \times 100 \quad (IV.4)$$

TABLE IV.2 – Émissions annuelles [Mt] issues de HTAP pour la sous-région de l'Est de la Chine [20°N – 45°N; 110°E – 125°E] pour les principaux polluants. La variabilité correspond à l'écart type des émissions mensuelles normalisées sur la moyenne des émissions mensuelles.

| | NH ₃ | NO | NO ₂ | SO ₂ | HCHO | POA | BC | PPM |
|------------------|-----------------|------|-----------------|-----------------|------|------|------|------|
| Émissions [Mt] | 5.96 | 13.0 | 1.84 | 19.7 | 2.32 | 1.69 | 1.36 | 8.67 |
| Émissions [Tmol] | 0.35 | 0.43 | 0.04 | 0.31 | 0.08 | | | |
| Variabilité [%] | 24 | 6 | 4 | 8 | 9 | 50 | 17 | 7 |

IV.2.2.2 Discrétisation et principe général de fonctionnement du modèle :

Le modèle CHIMERE est un modèle de Chimie-Transport qui calcule les concentrations de polluants au cours du temps sur un champ tridimensionnel. Le domaine d'étude est découpé en un ensemble de « boîtes » ou cellules considérées comme homogènes renseignant l'ensemble des paramètres géophysiques impliqués dans la dynamique et la chimie atmosphérique - soit une discrétisation de l'espace selon la longitude, la latitude et l'altitude [version 2014b; Menut et al., 2013a; Mailler et al., 2017]]. Le domaine d'application de notre étude s'étend de l'Ouest de la Chine à l'Est du Japon [72°30'E – 145°E; 290 colonnes] et du Sud au Nord de la RPC [17°30'N – 55°N; 150 lignes] comme présenté sur la Figure IV.4. Le choix d'un domaine aussi large est motivé par la localisation à l'extrême Ouest du désert du Taklamakan, et au Nord du désert de Gobi. Cet espace est donc découpé en cellules de 0.25° × 0.25°, sur 17 niveaux verticaux [de la surface à 200 hPa] avec une résolution verticale plus fine dans les premiers kilomètres de l'atmosphère pour un total de 739 500 cellules. Pour chaque cellule, il est possible de calculer l'évolution temporelle associée à une espèce i en résolvant l'ensemble des processus impliqués dans la production et l'élimination de l'espèce considérée i [Équation IV.5 et Figure IV.4] :

$$\frac{\delta c_i}{\delta t} = \left(\frac{\delta c_i}{\delta t} \right)_{advection} + \left(\frac{\delta c_i}{\delta t} \right)_{emission} + \left(\frac{\delta c_i}{\delta t} \right)_{deposition} + \left(\frac{\delta c_i}{\delta t} \right)_{chemistry} \quad (IV.5)$$

Les termes pouvant s'exprimer de façon discrétisée et schématique selon Équation IV.6 :

$$\frac{\Delta c_i}{\Delta t} = \left(\frac{\Delta c_i}{\Delta t} \right)_{advection} + \left(\frac{\Delta c_i}{\Delta t} \right)_{emission} + \left(\frac{\Delta c_i}{\Delta t} \right)_{deposition} + \left(\frac{\Delta c_i}{\Delta t} \right)_{chemistry} \quad (IV.6)$$

Le terme d'émission s'écrit à partir du flux d'émission q_i [quantité émise par unité de temps], et les dimensions de la cellule [surface, volume, hauteur] :

$$\left(\frac{\Delta c_i}{\Delta t}\right)_{emission} = \frac{q_i \times S_{cell}}{V_{cell}} = \frac{q_i}{h_{cell}} \quad (IV.7)$$

Le terme de dépôt est exprimé à partir de la vitesse de dépôt vd_i et de la concentration du polluant $[C_i]$:

$$\left(\frac{\Delta c_i}{\Delta t}\right)_{deposition} = \frac{vd_i \times [C_i]}{h_{cell}} \quad (IV.8)$$

Le terme du bilan de la chimie peut être redéfini par R_i qui représente le terme net lié aux réactions de production et de consommation de l'espèce i :

$$\left(\frac{\Delta c_i}{\Delta t}\right)_{chemistry} = R_i \quad (IV.9)$$

Le terme d'advection peut s'exprimer à partir de la vitesse du vent $[u]$, de la dimension de la cellule $[\Delta_x]$, de la concentration dans la cellule $[C_i]$ et du milieu de provenance des masses d'air $[C_i^0]$:

$$\left(\frac{\Delta c_i}{\Delta t}\right)_{advection} = \frac{\Delta_x}{u} (C_i^0 - C_i) \quad (IV.10)$$

Le bilan sur l'espèce i peut donc s'exprimer selon l'équation simplifiée suivante :

$$\frac{\Delta c_i}{\Delta t} = \frac{\Delta_x}{u} (C_i^0 - C_i) + \frac{q_i}{h_{cell}} + \frac{vd_i \times [C_i]}{h_{cell}} + R_i \quad (IV.11)$$

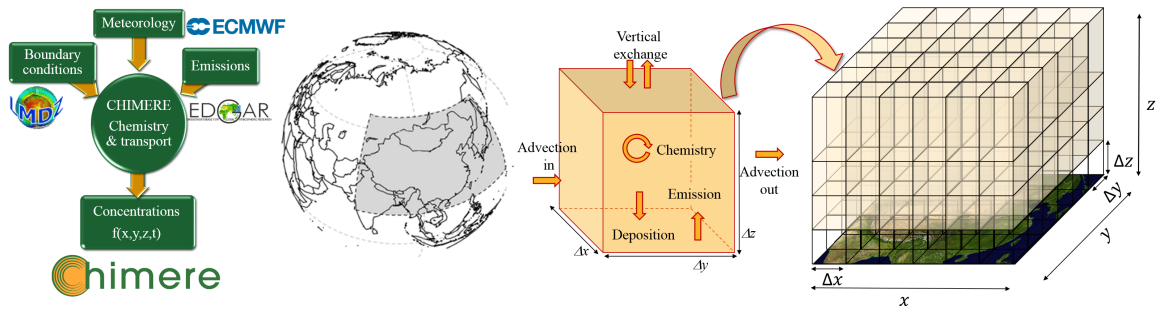


FIGURE IV.4 – À gauche, schéma du fonctionnement du modèle CHIMERE. Au centre à gauche, le domaine de simulation choisi, au centre à droite, schéma de représentation des différents processus modélisés pour calculer le bilan associé à une espèce et à droite représentation du domaine en découpé en 3 dimensions.

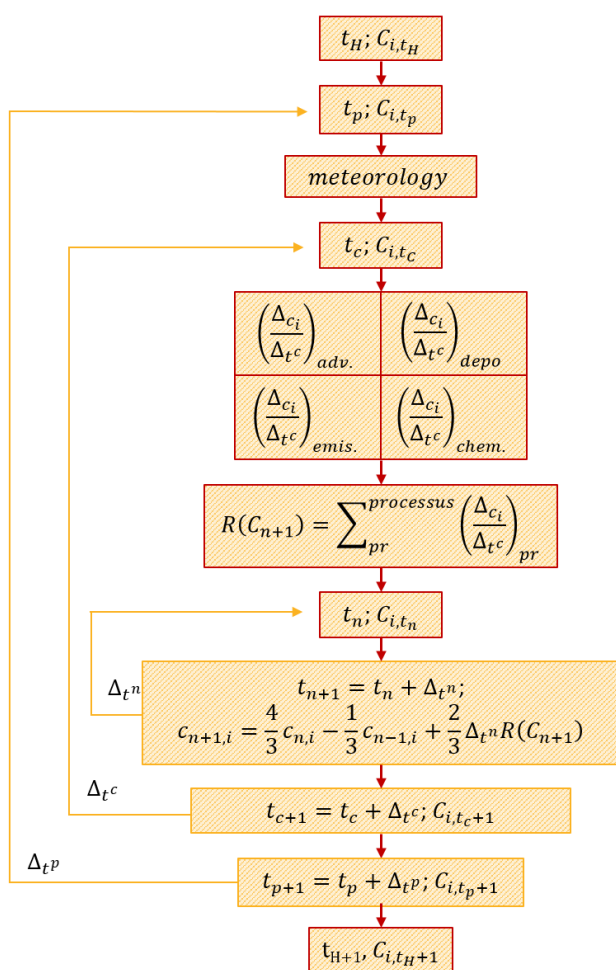


FIGURE IV.5 – Schéma de fonctionnement du solveur, présentant la méthode de séparation des opérateurs.

Durant le pas de temps chimique, le solveur va calculer les sources et les puits pour chaque processus $[R_{C_{(n+1)}}]$. Enfin, pour minimiser les divergences, le calcul de l'itération du pas de temps chimique se fait selon la méthode itérative de Gauss-Seidel [Boucle Δ_{t_n}] Verwer [1994], c'est une méthode dite semi-implicite, qui combine calcul en avant [explicite] et itératif en arrière [implicite – qui confère la stabilité]).

■ L'orographie dans CHIMERE

La Figure IV.6 nous permet de comparer la représentation de l'orographie dans le modèle, pour une résolution de $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ [soit des surface par cellules entre 450 km^2 et 650 km^2] à une représentation haute définition [$1'' \times 1''$, $\sim 1 \text{ km}^2$]. Cette résolution permet de conserver les caractéristiques principales de l'orographie chinoise qui sont importantes pour comprendre et représenter la composition de l'atmosphère chinoise. En effet, la Chine présente un territoire aux caractéristiques orographiques très disparates, contenant la chaîne montagneuse la plus large et haute au monde [Himalaya], des plateaux désertiques de moyenne altitude [Taklamakan] et aux abords du littoral chinois, de larges plaines proches du niveau de la mer [Figure IV.6b]. Ce paysage très contrasté est un élément clé du

■ Le solveur numérique

L'Équation IV.11 n'admet pas de solution analytique, elle doit être résolue en dissociant les différents opérateurs et en effectuant le calcul pour chacun séparément. La variation de la concentration de l'espèce considérée peut être obtenue en sommant chaque terme associé aux processus et résolu indépendamment.

CHIMERE renseigne des champs de concentrations pour chaque heure de la journée $[t_H, t_{H+1} \dots]$. Cependant, le modèle progresse par itération sur de plus courtes échelles de temps. La Figure IV.5 présente le schéma de fonctionnement du solveur numérique tel que construit dans CHIMERE. Le calcul de la concentration de l'espèce i $[C_{H+1,i}]$ à l'instant t_{H+1} depuis l'instant t_H $[C_{H,i}]$ est résolu par des itérations successives de différents types. À chaque pas de temps physique $[\Delta_{t_p}$ – Itération grossière, ~ 10 minutes], les variables météorologiques sont recalculées, en utilisant le champ de forçage météorologique [précipitations, vitesse d'advection]. Ces variables sont considérées comme constantes pour les différents pas de temps chimiques $[\Delta_{t_c}$ – Itération fine, ~ 2.5 minutes] imbriqués dans un pas de temps physique.

contrôle du déplacement des masses d'airs sur le territoire. Il est possible de distinguer deux régions dans une situation particulière d'enclave topographique : le désert du Taklamakan [$\sim 1000 - 1500$ m d'altitude], positionné entre la chaîne de l'Himalaya et la chaîne du Karakoram. La municipalité de Chongqing [$\sim 200 - 500$ m d'altitude], à l'extrémité Est de la chaîne himalayenne. L'orographie représentée dans le modèle influence la description du comportement des masses d'air par CHIMERE.

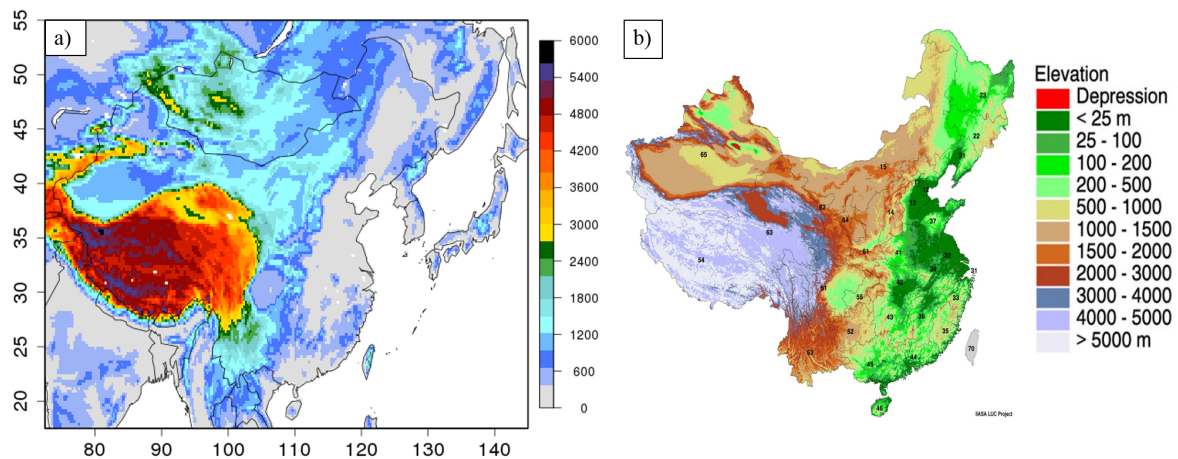


FIGURE IV.6 – Orographie en Chine a) tel que représenté par CHIMERE à $0.25^\circ \times 0.25^\circ$, et b) avec une résolution de $1'' \times 1''$ [EROS data center, Revision 2.0 – Copyright © 2011 by Gerhard K. Heilig. All rights reserved].

IV.2.2.3 La chimie de la phase gazeuse :

La chimie atmosphérique est représentée dans un modèle à partir de schémas chimiques qui regroupent l'ensemble des équations que l'on souhaite restituer, ainsi que les constantes de réactions qui leur sont associées, pour différentes conditions météorologiques. La complexité et la multiplicité d'espèces mises en jeu dans la chimie atmosphérique interdit toute représentation explicite de cette chimie. La chimie des espèces inorganiques est à présent bien renseignée et peut être décrite à partir d'un nombre restreint d'espèces et d'une vingtaine de réactions. La chimie des espèces organiques est cependant plus difficile à décrire dans un modèle, en raison de la multitude de composés et de réactions qu'elle implique. La description précise d'un ensemble aussi expansif de réactions et d'espèces se retrouve assujettie à certaines contraintes : i) la documentation scientifique ne permet pas de renseigner l'ensemble des constantes cinétiques de réactions nécessaire, ii) les ressources de calculs nécessaires à la résolution de schémas aussi complexes. La description de la chimie des espèces organiques dans les modèles se fait à partir de schéma réduits, qui tentent de représenter le plus précisément possible l'ensemble des composés à partir d'un nombre réduit d'espèces. Plusieurs schémas à des niveaux de description différents sont disponibles dans CHIMERE, pour l'ensemble du travail présenté dans cette thèse le schéma utilisé est le schéma MELCHIOR réduit [Derognat et al., 2003; Siour, 2012], qui renseigne 120 réactions et 44 espèces, présenté en Annexe B.1 [page IX].

La majorité des constantes cinétiques $k(t)$ [$\text{cm}^3 \cdot \text{molec}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$] de réaction peuvent être calculées en fonction de la température $[T; \text{Kelvin}]$, de la constante des gaz parfait $[R]$ à partir de l'équation d'Arrhenius [Équation IV.12], de l'énergie d'activation de la réaction $[E_A; \text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}]$ et d'un facteur

[A ; cm³.molec⁻¹.s⁻¹] propre à la réaction considérée :

$$k(t) = A.e^{-E_A/RT} \quad (\text{IV.12})$$

Les différentes espèces et réactions incluses dans MELCHIOR2 sont présentées en Annexe B.1 [page IX], ainsi que les formules de calcul des constantes cinétiques.

IV.2.2.4 Représentation de la physico-chimie des aérosols :

Dans le modèle, l'ensemble des aérosols sont représentées par 14 espèces : les aérosols désertiques [Dust], les particules primaires minérales et organiques d'origine anthropique [PPM], les suies [BC], les POA [OC], les sels marins [SALT], les nitrates [NO₃⁻], les sulfates [SO₄²⁻, l'ammonium [NH₄⁺], 5 fractions pour les SOA [3 sous-espèces issues de précurseurs biogéniques : BiA1D, BiBmP et ISOPA1, 2 sous espèces issues de précurseurs anthropiques : AnA1D et AnBmP] et une espèce permettant d'exprimer la fraction d'eau de l'aérosol. Le modèle rend compte de la distribution granulométrique des aérosols en répartissant chaque espèce dans 10 classes de taille [aussi appelées « bins »] comprises entre 40 nm et 40 μm de diamètre, selon un découpage décrivant avec plus de précisions la partie fine de l'aérosol [i.e 6 classes pour décrire les PM_{2,5}, 2 pour décrire les PM [2.5 – 10 μm] et 2 classes pour décrire les PM > PM₁₀]. Sur la base de cette représentation de la distribution des aérosols, le modèle opère les différents processus physiques qui leurs sont associées : la nucléation, la coagulation et l'absorption.

■ La nucléation

Le processus de nucléation associé à l'acide sulfurique est le seul inclus dans le modèle CHIMERE, et est paramétré à partir de [Kulmala et al. \[1998\]](#), permettant la production d'aérosols dans la plus petite classe de taille [40 – 80 nm]. Le processus de nucléation pour l'acide sulfurique est en compétition avec les processus d'absorption, et ne devient significatif que dans des conditions de faibles teneurs en particules. Si des processus de nucléation ont été observés pour les VOC, leurs transformations ne sont pas paramétrées dans cette version du modèle.

■ La coagulation

La coagulation des particules est déterminée à partir de la paramétrisation de [Gelbard and Seinfeld \[1980\]](#), qui prend en considération les propriétés de la particule et les conditions météorologiques comme la turbulence et la température.

■ L'absorption

Pour chaque espèce semi-volatile k , on détermine un coefficient d'absorption moyen H_k [s⁻¹] pour chaque section de taille l , selon l'Équation IV.13 :

$$H_l^k = \frac{12\lambda C_k}{\rho_p d_l^2 (1 + (8\lambda / \alpha_k d_l))} (G^k - G_{l,eq}^k) \quad (\text{IV.13})$$

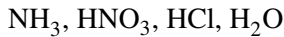
Avec G et G_{eq} [μm.m⁻³] qui sont respectivement les concentrations de la phase gaz et la concentration à l'équilibre de l'espèce k . λ [m] est le libre parcours moyen de la molécule, d_l [m] le diamètre des particules, N [#.m⁻³] le nombre de particules, α_k le coefficient d'accommodation de l'espèce k , c [m.s⁻¹] la vitesse moléculaire moyenne de l'espèce k , et ρ_p la densité de la particule.

L'absorption est prise en compte dans le modèle de façon différenciée pour les espèces organiques et les espèces inorganiques.

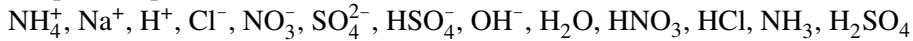
La formation des SOA se fait à la suite de l'oxydation des différents VOC précurseurs en produits moins volatils et susceptibles de condenser. Pour ces espèces SVOC, afin de déterminer le coefficient d'absorption moyen H_{SVOC_k} , la concentration de la phase gaz à l'équilibre $G_{(l,eq)}^K$ est calculée à partir de Pankow [1994] et Kaupp and Umlauf [1992],

Le partage entre la phase gazeuse et particulaire des principaux composés inorganiques du système est déterminé en utilisant le module ISORROPIA V2006 d'équilibres thermodynamiques [Nenes et al., 1998]. Les partages entre les différentes espèces et leurs différents états [gazeux, liquide et solide] sont estimés à partir d'informations renseignées selon une tabulation. Les équilibres entre les espèces sont déterminés à partir de plusieurs variables, pour une gamme de température [entre 260 K – 312 K; incrément de $\Delta T = 2.5$ K], une gamme d'humidité relative [entre 0.3 – 0.99; incrément de $\Delta RH=0.05$], en prenant en considération les quantités totales de nitrates [TN = $NO_{3(p)}^- + HNO_3$], total de sulfates [TS = $SO_{4(p)}^{2-} + H_2SO_4$] et total d'ammonium [TA = $NH_{4(p)}^+ + NH_3$]. Le module estime l'équilibre thermodynamique du système sulfate-nitrate-ammonium-sodium-chlorure-eau pour les différentes espèces inorganiques :

Pour la phase gaz :



Pour la phase liquide :



Pour la phase solide :



IV.2.2.5 La modélisation des émissions de poussières minérales désertiques :

Les émissions de poussières minérales désertiques dans CHIMERE sont calculées à partir du flux [horizontal] de saltation, qui représente l'entraînement des grains du sol par le vent, puis du phénomène de sandblasting, qui décrit la libération des fins agrégats constitutifs des grains et leurs émissions dans l'atmosphère. Ce calcul nécessite de connaître les caractéristiques de surfaces des sols des régions étudiées et les conditions météorologiques. La résolution des équations [décrites ci-dessous] nécessite alors le développement de base de données renseignant la cartographie des différentes variables intégrant les propriétés de surface des sols.

■ Modélisation du processus de saltation

La résistance de la surface à la mise en mouvement des agrégats du sol est représentée par la vitesse de friction seuil [U_t^*]. Cette valeur seuil inclut les effets des différents éléments de protrusion à la surface sur l'écoulement du fluide, grâce à hauteur de rugosité [Z_0] et de la granulométrie sèche des agrégats de sol [D_p] et s'exprime selon Marticorena and Bergametti [1995] :

$$U_{t(D_p, Z_0)}^* = \frac{U_{t(D_p)}^*}{f_{eff}(Z_0)} \quad (IV.14)$$

où $U_{t(D_p)}^*$, qui représente la vitesse de friction seuil pour une surface lisse est calculée selon :

$$U_{t(D_p)}^* = \left[f(R_t) \left(\frac{\rho_p g D_p}{\rho_a} + \frac{\gamma}{\rho_a D_p} \right) \right]^{0.5} \quad (\text{IV.15})$$

Avec $f(R_t) = 0.0123$ et $\gamma = 3 \times 10^{-4} \text{ kg.s}^{-2}$. L'influence de la hauteur de rugosité est intégrée dans $f_{eff}(Z_0)$ [Marticorena and Bergametti, 1995], qui représente la répartition de l'énergie entre les éléments de protrusions du sol et les agrégats de surfaces, et est calculée selon :

$$f_{eff}(Z_0) = 1 - \left[\frac{\ln(Z_0/Z_{0s})}{\ln(0.35(10/Z_{0s}))^{0.8}} \right] \quad (\text{IV.16})$$

Avec Z_{0s} représentant la hauteur de rugosité de la surface lisse [$Z_{0s} = 10^{-3}$].

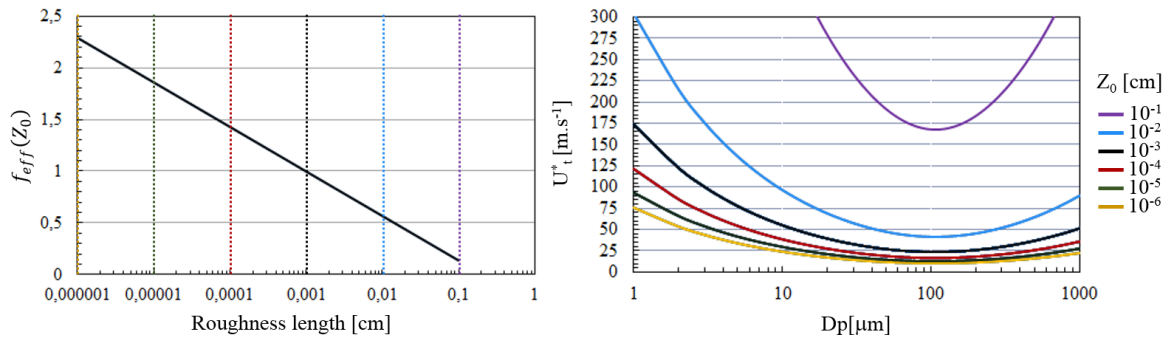


FIGURE IV.7 – à gauche, variation $f_{eff}(Z_0)$ en fonction de Z_0 et à droite, variation de la vitesse de friction seuil en fonction de taille des grains du sol, pour différentes hauteurs de rugosité.

La vitesse de friction seuil est minimale pour des grains de sol d'un diamètre proche de $100 \mu\text{m}$, variant entre 10 m.s^{-1} et 42 m.s^{-1} pour des hauteurs de rugosités de respectivement 10^{-6} cm et 10^{-2} cm [Figure IV.7]. La valeur de $U_{t(D_p, Z_0)}^*$ permet de calculer le flux de saltation selon White [1986] présenté plus tôt et est adapté pour décrire la dépendance de l'entraînement des agrégats du sol à leur distribution granulométrique, selon [Marticorena and Bergametti, 1995] :

$$F_h(D_p) = E \frac{k \rho_a}{g} U^{*3} \sum \left(1 - \frac{U^* T}{U} \right) \left(1 + \frac{U^* T}{U} \right)^2 dS_{rel}(D_p) dD_p \quad (\text{IV.17})$$

■ Modélisation du processus de sandblasting

Le modèle physique associé au processus de sandblasting représentant la libération d'agrégats fins du sol [les dust] suite aux chocs entre les grains en saltation et la surface est développé par Alfaro et al. [1998]; Alfaro and Gomes [2001]. Celui-ci est basé sur le rapport entre l'énergie cinétique [e_c] des grains entraînés dans le mouvement de saltation lors de leur impact sur la surface et l'énergie de cohésion des particules agrégées au sein du grain [e_i]. Si la force du choc entre le grain et la surface est

supérieure à la force retenant les particules agrégées entre elles, alors une portion d'aérosol désertique sera libérée. L'énergie cinétique est déterminée à partir de la vitesse de friction, de la granulométrie et de la masse volumique des grains selon :

$$e_c = \frac{100\rho_p\pi}{3}D_p^3(U^*)^2 \quad (\text{IV.18})$$

Alfaro and Gomes [2001] estiment à partir de mesures réalisées en soufflerie que les aérosols désertiques émis lors du processus de sandblasting suivent une distribution constituée de 3 modes log normaux [$d_1 = 1.5 \mu\text{m}$, $d_2 = 6.7 \mu\text{m}$ et $d_3 = 14.3 \mu\text{m}$], qui sont indépendants de la distribution initiale des agrégats du sol. La répartition du flux d'émissions des poussières entre ces 3 modes est déterminée en comparant l'énergie cinétique des grains en saltation aux énergies de cohésions associées à chacun des modes, $e_1 = 0.376$, $e_2 = 0.366$ et $e_3 = 0.346 \text{ kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$. Cela permet de déterminer les fractions relatives $p_1(d_1)$, $p_2(d_2)$ et $p_3(d_3)$ de répartition du flux vertical d'émission des poussières minérales dans les 3 modes de distribution des 3 modes de distribution de l'aérosol désertique [de diamètre : $d_1 = 1.5 \mu\text{m}$, $d_2 = 6.7 \mu\text{m}$ et $d_3 = 14.3 \mu\text{m}$] [Alfaro and Gomes, 2001] :

$$F_{v,m,i}(D_p) = \sum_{k=1}^{N_{class}} \frac{\pi\rho_p\beta p_i(D_p,k)_{m,i}^3}{6e_i} dF_h(D_p) \quad (\text{IV.19})$$

■ Influence de l'humidité des sols sur les fréquences d'émissions

Comme mentionné à la section I.3.4.1, l'apport d'eau au sein d'un sol entraîne la formation d'un film d'absorption entre les agrégats constitutifs du sol, augmentant les forces de cohésions les unissant. La mise en mouvement des agrégats nécessite alors une pression éolienne sur le sol plus conséquente à la suite d'un apport en eau, comme lors d'évènements de précipitation. Ce phénomène d'inhibition est représenté dans le module d'émissions des poussières minérales par un seuil de précipitation au-delà duquel l'ensemble des émissions du pixel considéré sont stoppées. La valeur de précipitation seuil est positionnée à $0.01 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}$ et interrompt les émissions pour 3 heures.

■ Cartographie des informations de surface

Les caractéristiques de surface [Z_0 et D_p] des régions désertiques de Chine ont été cartographiées par Laurent et al. [2005, 2006]. Les distributions granulométriques des populations des grains constitutifs des sols ont été établies en combinant les mesures de granulométries sèches d'échantillons de sols des déserts asiatiques disponibles dans la littérature. La cartographie des hauteurs de rugosité de surface des régions arides asiatiques a été établie grâce au sondage des surfaces par l'instrument POLDER-1 [*POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances*] embarqué sur le satellite ADEOS [*Advanced Earth Observing Satellite*]. Le satellite permet la mesure du coefficient de protrusion [PC], qui caractérise les aspérités de la surface considérée [Roujean et al., 1992] et dont l'extrapolation permet d'estimer la hauteur de rugosité de surface selon la relation établie par Marticorena et al. [2004] :

$$Z_0 = ae^{(\frac{PC}{b})} \quad (\text{IV.20})$$

où a et b sont des constantes respectivement égales à $4.859 \times 10^{-3} \text{ cm}$ et 0.052.
 À partir des sondages de surface des déserts asiatiques de l'instrument POLDER-1 et de la rela-

tion IV.20, [Laurent et al. \[2005\]](#) a cartographié la hauteur de rugosité des zones correspondantes, comme représenté Figure IV.8 :

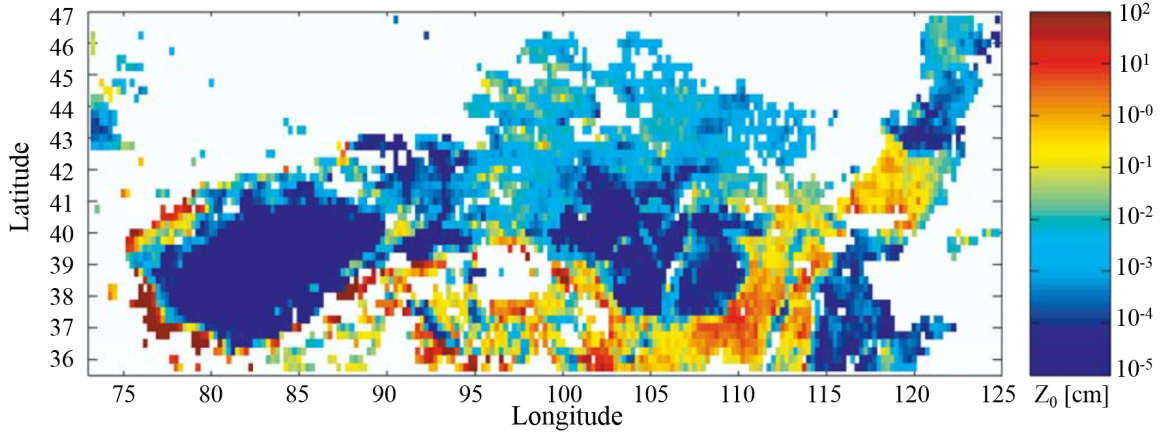


FIGURE IV.8 – *Distribution spatiale de la hauteur de rugosité de surface [cm] à une résolution de $0.25^\circ \times 0.25^\circ$, depuis [Laurent et al. \[2005\]](#).*

Les hauteurs de rugosité les plus faibles correspondent aux régions les plus sensibles à l'érosion éolienne. On retrouve à l'Ouest les déserts du Taklamakan et du centre de la Chine [Tengger ect. . .] des régions à la géomorphologie semblable [désert de sable] et des hauteurs de rugosité autour de 10^{-4} cm. Au nord, le désert de Gobi présente des hauteurs de rugosité [10^{-3} cm] caractéristiques de déserts de plaines rocheuses.

IV.2.2.6 La représentation des processus de dépôt et de la re-suspension :

Le processus de dépôt sec des aérosols (mais aussi des gaz) est communément représenté par analogie à un modèle de résistance décrit par [Wesely \[1989\]](#). Le flux de dépôt [$F_{d,i}$] s'exprime selon :

$$F_{d,i} = -C_i \times v_{d,i} \quad (\text{IV.21})$$

où C_i correspond à la concentration de l'espèce et $v_{d,i}$ sa vitesse de dépôt calculée pour les gaz à partir de l'analogie des résistances selon :

$$v_{d,i} = \frac{1}{R_a + R_b + R_c} \quad (\text{IV.22})$$

La vitesse de dépôt est inversement proportionnelle à la somme des termes de résistances imposés par l'atmosphère [R_a], la couche limite [R_b] et par la surface [R_c]. La résistance attribuée à la surface est calculée en parallèle pour différents types et propriétés des surfaces [sol, surface des feuilles, stomates] et varie selon l'espèce considéré estimée par [Erisman et al. \[1994\]](#). Les résistances attribuables à l'atmosphère et à la couche limite sont déterminées à partir des informations météorologiques caractéristiques de la turbulence des masses d'air, comme la vitesse de friction du vent et la longueur de Monin-Obukov [L].

Dans le cas des aérosols, le processus de sédimentation des aérosols s'ajoute et l'expression de la vitesse de dépôt devient :

$$v_{d,i} = \frac{1}{R_a + R_b + R_a R_b} v_{s,i} + v_{s,i} \quad (\text{IV.23})$$

Par ailleurs, le modèle représente les processus de dépôt humide par « rain out » [formation de goutte de pluie autour de l'aérosol] et « wash out » [entraînement des aérosols par le chute des gouttes de pluie] qui sont représentés pour les aérosols et les gaz. On utilise les informations météorologiques sur les précipitations et les teneurs en eau nuageuse de l'atmosphère, ainsi que la capacité des différentes espèces à se partager entre la phase gazeuse et la phase aqueuse des gouttelettes nuageuses [Constante de Henry].

La re-suspension des particules est dépendante de la vitesse de friction du vent, d'un facteur de modulation fonction de l'humidité des sols [$f(w)$ entre 0 et 1] et P une constante. Le processus de re-suspension des particules est calculé pour l'ensemble du domaine selon :

$$F_{d,i} = P f(w) U^{*1.43} \quad (\text{IV.24})$$

Evaluation du modèle CHIMERE

« *Beijing calling.* »

JOE STRUMMER, 1979

Sommaire

| | | |
|-------|---|------------|
| V.1 | Indicateurs statistiques | 93 |
| V.2 | Evaluation des simulations à partir des mesures de surfaces fournies par le CRAES | 94 |
| V.2.1 | Stratégie | 94 |
| V.2.2 | Résultats des comparaisons | 94 |
| V.2.3 | Analyse des nuages de points établis par centiles | 94 |
| V.3 | Evaluation des simulations à partir des mesures des ambassades des États-Unis | 98 |
| V.3.1 | Résultats des comparaisons | 98 |
| V.4 | Evaluation des simulations à partir des AOD du réseau AERONET | 99 |
| V.4.1 | Stratégie | 99 |
| V.4.2 | Résultats des comparaisons | 100 |
| V.5 | Evaluation des simulations à partir des observations satellites MODIS | 100 |
| V.5.1 | Stratégie | 100 |
| V.5.2 | Résultats des comparaisons | 101 |
| V.6 | Evaluation des simulations à partir des observations satellitaires OMI | 102 |
| V.6.1 | Stratégie | 102 |
| V.6.2 | Résultats des comparaisons | 102 |
| V.7 | Conclusion | 104 |

Afin de déterminer les forces et les limites de la représentation de la pollution atmosphérique par le modèle de chimie-transport régional CHIMERE en Chine, les simulations du modèle ont été confrontées à un certain nombre d'observations disponibles [chapitre IV.1 pour une présentation des observations]. Le modèle CHIMERE a précédemment été largement évalué sur le domaine européen [Gaubert et al., 2014; Konovalov et al., 2008; Solazzo et al., 2017; Couvidat et al., 2018; Menut et al., 2013b]. Les performances du modèle sont cependant moins documentées sur le domaine asiatique. Afin d'éviter les redondances, certaines comparaisons exploitées dans les chapitres VI et VII, ne sont pas détaillées ici.

V.1 Indicateurs statistiques

Nous rappelons ici brièvement les indicateurs statistiques couramment utilisés pour comparer les séries de mesures ou d'observations de polluants et les valeurs simulées par le modèle :

$$r = \frac{\sum x_{meas,i} x_{model,i} - N \bar{x}_{meas} \bar{x}_{model}}{\sqrt{(\sum x_{meas,i}^2 - N \bar{x}_{meas}^2)} \sqrt{(\sum x_{model,i}^2 - N \bar{x}_{model}^2)}} \quad (V.1)$$

Le coefficient de corrélation de Pearson r [Équation V.1] est utilisé ici pour déterminer la correspondance entre deux séries temporelles. Ici, x_{meas} représente les valeurs de la série de mesure, x_{model} les valeurs associées simulées par le modèle et N le nombre total de mesures i .

$$Bias[\%] = \frac{(\bar{x}_{model} - \bar{x}_{meas}) \times 100}{\bar{x}_{meas}} \quad (V.2)$$

Le biais statistique entre les séries de mesures et les valeurs simulées représente l'écart entre les moyennes des deux séries, qui peut être normalisé par rapport à la valeur moyenne de la série de mesure, comme montré dans l'Équation V.2.

$$NRMSE[\%] = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (x_{model,i} - x_{meas,i})^2}{N}} \times \frac{100}{\bar{x}_{meas}} \quad (V.3)$$

L'écart quadratique [RMSE, *Root Mean Square Error*] est utilisé pour estimer l'écart quadratique moyen entre les valeurs prédites par le modèle et celles observées. La RMSE peut être normalisée à la valeur moyenne de la série d'observations [\bar{x}_{meas}], afin d'obtenir la RMSE normalisée [Équation V.3]. On peut utiliser cet indicateur pour estimer l'erreur du modèle.

$$MFB = \frac{1}{S} \sum_{i=1}^S \frac{(\bar{x}_{model,i} - \bar{x}_{meas,i})}{(\bar{x}_{meas,i} + \bar{x}_{model,i}/2)} \quad (V.4a)$$

$$MFE = \frac{1}{S} \sum_{i=1}^S \frac{|\bar{x}_{model,i} - \bar{x}_{meas,i}|}{(\bar{x}_{meas,i} + \bar{x}_{model,i}/2)} \quad (V.4b)$$

Boylan and Russell [2006] propose d'utiliser les indicateurs que sont le biais fractionnaire [MFB, *Mean Fractional Bias*; Équation V.4a] et l'erreur fractionnaire [MFE, *Mean Fractional Error*; Équation V.4b] pour évaluer la capacité du modèle à reproduire les observations, en prenant en compte l'ensemble des S stations.

V.2 Evaluation des simulations à partir des mesures de surfaces fournies par le CRAES

V.2.1 Stratégie

Pour comparer les résultats du modèle aux mesures fournies par les stations du CRAES, le choix a été fait de ne conserver que les stations de fond qui sont considérées comme plus comparables au modèle en termes de représentativité spatiale [voir la sous-section IV.1.1. Pour estimer cette représentativité nous avons utilisé la classification réalisée selon la méthode de [Flemming et al. \[2005\]](#). Au total, des observations sont disponibles pour 38 stations dans 24 centres urbains majeurs [le plus souvent dans les chefs-lieux des différentes provinces chinoises]. Les comparaisons sont initialement produites pour chaque station indépendamment des autres, mais afin de simplifier l'interprétation des nombreux résultats, un regroupement des stations est fait par régions, selon le découpage suivant [Figure V.1] :

- ▶ Région centre [Central region] : 4 villes ; [100°E – 110°E] [22°30'N – 35'N]
- ▶ Région Est [Eastern region] : 6 villes ; [110°E – 125°E] [20°N – 32°30'N]
- ▶ Région Nord [Northern region] : 8 villes ; [110°E – 125°E] [32°30'N – 42°30'N]

V.2.2 Résultats des comparaisons

Les comparaisons sont produites à partir des mesures horaires des différents polluants auxquelles nous avons accès, sur la période du 01/03/2013 au 30/04/2013 et 01/03/2015 au 30/09/2015 – soit 275 jours sur 1095 simulés. Les valeurs extraites du modèle correspondant aux mesures sont calculées, en fonction des coordonnées de la station, par interpolations bilinéaires des concentrations de surface sur les 4 points de grille les plus proches. Les valeurs moyennes par régions présentées dans Tableau V.1 sont calculées en moyennant les indicateurs statistiques de chaque station en pondérant la valeur de chaque station par le nombre de points d'observations disponibles [pour x_{meas} , x_{model} , r , NRMSE].

V.2.3 Analyse des nuages de points établis par centiles

Le nombre de points de mesures [20 000 à 130 000] interdisant une visualisation des données en l'état. Une compression de celles-ci a été établie par centiles sur les données de mesures. La valeur moyenne du 1^{er} centile pour les mesures représente la valeur de la moyenne de l'ensemble des 1 % de mesures les plus faibles. La valeur moyenne du 1^{er} centile pour le modèle représente la moyenne des valeurs du modèle correspondant à l'ensemble des 1 % de mesures utilisées pour calculer le 1^{er} centile des mesures. L'opération est répétée pour les 99 centiles restants. Le calcul des centiles du modèle ne suit donc pas nécessairement une évolution croissante. Cela permet de réduire l'ensemble de la série de mesures à 100 valeurs, pour lesquelles sont calculées les valeurs de simulations associées [[Couvidat et al., 2018](#)]. Les représentations en nuage de points par centiles associées à chaque région et chaque polluant sont montrées Figure V.1 et les statistiques associées sont résumées dans le Tableau V.2.

TABLE V.1 – Résultats des comparaisons entre les mesures des polluants et les simulations du modèle pour différentes régions. n_C représente le nombre de villes dans la région, et n_H le nombre de mesures horaires disponible pour la région.

| Indicators | Regions | PM ₁₀ | PM _{2.5} | O ₃ | NO ₂ | SO ₂ |
|--|----------|------------------|-------------------|----------------|-----------------|-----------------|
| n_C | All | 24 | 24 | 24 | 24 | 24 |
| | Northern | 8 | 8 | 8 | 8 | 8 |
| | Eastern | 6 | 6 | 6 | 6 | 6 |
| | Central | 4 | 4 | 4 | 4 | 4 |
| n_H | All | 129493 | 139118 | 136552 | 138115 | 129940 |
| | Northern | 42228 | 45140 | 44280 | 45117 | 43296 |
| | Eastern | 31207 | 34057 | 33618 | 34069 | 32428 |
| | Central | 22030 | 23305 | 22865 | 23062 | 22082 |
| x_{meas} [$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$] | All | 109.7 | 55.4 | 59.8 | 40.9 | 25.3 |
| | Northern | 103.4 | 61.5 | 66.6 | 42.2 | 31.5 |
| | Eastern | 106.1 | 54.2 | 62.2 | 38.4 | 25.8 |
| | Central | 112.4 | 55.7 | 59.3 | 41.6 | 26.1 |
| x_{model} [$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$] | All | 93.6 | 65.5 | 101.1 | 27.0 | 16.5 |
| | Northern | 122.3 | 72.6 | 104.2 | 29.3 | 18.6 |
| | Eastern | 96.4 | 67.4 | 103.1 | 27.8 | 18.3 |
| | Central | 96.7 | 66.7 | 99.5 | 27.3 | 17.0 |
| NRMSE [%] | All | 87.6 | 87.4 | 110.9 | 77.8 | 138.5 |
| | Northern | 94.6 | 87.9 | 92.35 | 74.4 | 136.2 |
| | Eastern | 90.0 | 89.8 | 106.9 | 78.5 | 149.3 |
| | Central | 88.4 | 89.4 | 105.2 | 79.0 | 142.8 |
| r | All | 0.38 | 0.45 | 0.61 | 0.43 | 0.32 |
| | Northern | 0.35 | 0.44 | 0.66 | 0.46 | 0.35 |
| | Eastern | 0.39 | 0.45 | 0.61 | 0.46 | 0.28 |
| | Central | 0.40 | 0.45 | 0.62 | 0.42 | 0.34 |
| MFB [%] | All | -10.1 | +09.8 | +40.1 | -28.7 | -26.4 |
| | Northern | -10.7 | +10.3 | +33.5 | -24.01 | -30.5 |
| | Eastern | -05.7 | +13.8 | +38.6 | -22.6 | -21.9 |
| | Central | -09.6 | +10.5 | +39.2 | -29.5 | -25.8 |
| MFE [%] | All | 19.3 | 18.15 | 40.1 | 33.6 | 37.3 |
| | Northern | 18.1 | 16.99 | 33.5 | 29.5 | 38.2 |
| | Eastern | 20.1 | 20.5 | 38.6 | 30.7 | 37.2 |
| | Central | 18.5 | 18.8 | 39.2 | 34.4 | 36.5 |

Les représentations des mesures contre les observations nous permettent de caractériser le biais et la corrélation de la représentation du modèle par rapport à la distribution des mesures. Les comparaisons par centiles des PM_{2.5}, O₃, NO₂ et SO₂ sont associés à des pentes [respectivement : 0.34, 0.56, 0.67, 0.50 et 0.22, Tableau V.2] inférieures à 1, ainsi que des ordonnées à l'origine [57, 34, 61.7 et 11 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$] supérieures à 0. Il apparaît que le modèle surestime les valeurs les plus basses de

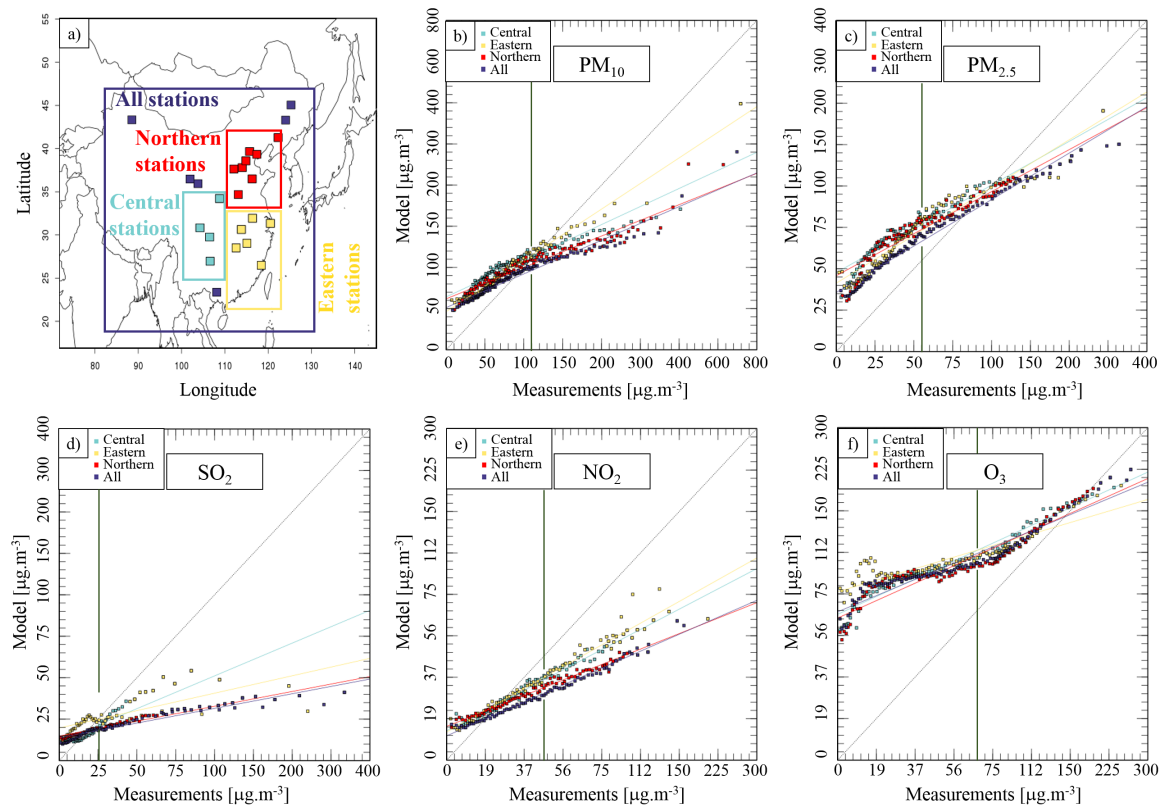


FIGURE V.1 – a) Localisation des stations de mesures et découpage des régions. Nuages de points par centiles pour b) PM₁₀ c) PM_{2.5}, d) SO₂, e) NO₂ et f) O₃. La barre verticale verte représente la moyenne des séries de mesures. N.D.A. les échelles utilisées pour ces graphiques ne sont pas régulières et ont été choisies pour permettre une visualisation optimale des données.

la distribution des mesures [un constat particulièrement prononcé pour l’ozone et les PM_{2.5}], mais sous-estime finalement les maximums de la distribution [un constat moins prononcé pour l’ozone, qui s’explique par son caractère secondaire, et des gradients de pollutions moins prononcées que les polluants primaires proches de leurs sources].

Pour le dioxyde de soufre, il apparaît que les concentrations de surface sont sous-estimées pour les trois régions considérées, même si la région du centre de la Chine présente un écart plus réduit [i.e. Biais = -26 %] pour une corrélation satisfaisante [$r = 0.81$].

Pour le dioxyde d’azote, le constat est identique, même si les sous-estimations sont moins prononcées [-37 % pour le NO₂ contre -50 % pour le SO₂]. La région pour laquelle la représentation des concentrations de surface semble être la plus satisfaisante est la région Est [Biais = -13 % ; $r = 0.99$]. Il est possible de suspecter à partir de cela que le modèle n’est pas assez représentatif pour les stations proches des sources de pollution. Cependant, la confrontation à des mesures du satellite OMI, représentatives de zones spatiales plus larges [section V.6] nous montre que les écarts sont moins importants à cette échelle, ce qui nous permet de penser que les émissions de NO_x sont correctement représentées.

Pour l’ozone, la région du Nord de la Chine est celle qui présente les meilleures correspondances

entre les concentrations mesurées et celles simulées. Les valeurs les plus basses de la distribution sont fortement surestimées par CHIMERE, et les valeurs les plus élevées de la distribution sont-elles mieux représentées. Le caractère diurne de l’ozone est correctement représenté pour les maxima d’ozone [période diurne], cependant les niveaux des heures où les concentrations sont les plus faibles [période nocturne] sont sensiblement surestimés.

Pour les PM_{10} et les $PM_{2.5}$, le modèle se comporte de façon similaire, avec une surestimation des valeurs les plus faibles de la distribution, pour finalement sous-estimer les maxima de la distribution. Sur l’ensemble de la distribution, les $PM_{2.5}$ apparaissent comme légèrement surestimées [biais = +14 %], et les PM_{10} comme légèrement sous-estimées [biais = -15 %]. La représentation des PM semble être optimale dans la région du Nord de la Chine. Selon [Boylan and Russell \[2006\]](#), il est possible de considérer les représentations des $PM_{2.5}$ et PM_{10} comme acceptables lorsque les valeurs de MFB et MFE sont respectivement inférieures à 30 et 50 %. Ce critère est respecté pour l’ensemble des régions sur la période étudiée, car les valeurs de MFE sont pour l’ensemble inférieures à 30 %.

TABLE V.2 – Résultats statistiques des comparaisons nuage de points par centiles entre les séries de mesures et les simulations de CHIMERE.

| Indicators | Regions | PM_{10} | $PM_{2.5}$ | O_3 | NO_2 | SO_2 |
|----------------------|-----------------|-----------|------------|-------|--------|--------|
| r | All | 0.97 | 0.96 | 0.99 | 0.99 | 0.82 |
| | Northern | 0.96 | 0.95 | 0.98 | 0.98 | 0.89 |
| | Eastern | 0.97 | 0.93 | 0.96 | 0.99 | 0.54 |
| | Central | 0.95 | 0.95 | 0.99 | 0.94 | 0.81 |
| Bias [%] | All | -15 | 14 | 65 | -37 | -50 |
| | Northern | -18 | 14 | 49 | -32 | -55 |
| | Eastern | 21 | 42 | 75 | -13 | -20 |
| | Central | 03 | 35 | 82 | -26 | -26 |
| b₁ | All | 0.34 | 0.56 | 0.67 | 0.50 | 0.22 |
| | Northern | 0.24 | 0.36 | 0.77 | 0.46 | 0.23 |
| | Eastern | 0.65 | 0.70 | 0.41 | 0.72 | 0.12 |
| | Central | 0.44 | 0.55 | 0.83 | 0.63 | 0.65 |

CHIMERE présente pour la Chine comme pour l’Europe un problème de représentativité pour les concentrations nocturnes [[Gaubert et al., 2014](#)], notamment pour l’ozone. Un problème qui peut être expliqué par la difficulté du modèle à reproduire certains processus sous-maille dans le cas de couches limites basses. La représentativité spatiale de ces stations diminue car les processus [diffusion, dépôt, chimie nocturne] mis en jeu sont plus locaux. Ce « phénomène » disparaît la journée lorsque les couches limites sont bien mélangées. En journée, nous suspectons au vu des sous-estimation des valeurs de SO_2 et NO_2 que le biais du modèle est lié à la représentativité spatiale des stations proches des sources qui est plus fine que celle du modèle qui va donc lisser l’intensité de ces sources.

V.3 Evaluation des simulations à partir des mesures de surfaces fournies par les ambassades et consulats des États-Unis

Les informations fournies par le réseau des ambassades américaines [5 stations] nous permettent de bénéficier de mesures de $PM_{2.5}$ sur de longues périodes. Les comparaisons sont réalisées sur les années 2013 et 2015, car l'ensemble des stations renseignent des mesures sur ces 2 années. Les valeurs journalières du modèle sont calculées en fonction de la disponibilité des mesures.

V.3.1 Résultats des comparaisons

Le Tableau V.3 renseigne les résultats des comparaisons entre les mesures et le modèle pour 2013 et 2015. On remarque comme précédemment que les valeurs de $PM_{2.5}$ sont surestimées par le modèle CHIMERE, notamment pour la station de Chengdu [+51 %], exception faite de la ville de Shenyang [-13 %]. Les corrélations sont les plus importantes pour Shanghai, Pékin et Chengdu mais restent satisfaisantes pour Shenyang et Chengdu. La surestimation des concentrations les plus faibles se retrouve principalement à Chengdu. Pour l'ensemble des stations, l'erreur fractionnaire est de 17 %, ce qui permet de valider l'acceptabilité de la représentation des $PM_{2.5}$ selon [Boylan and Russell, 2006].

Il apparaît sur la Figure V.2 que les niveaux de $PM_{2.5}$ s'étendent sur de larges amplitudes à Pékin et Chengdu, dans une moindre mesure à Shanghai et Shenyang, et ne dépassent pas $200\mu\text{g.m}^{-3}$ à Guangzhou, la ville la plus au sud et la moins polluée, du fait des fréquences de précipitations et de la situation géographique de la ville [proche de la côte].

Comme les mesures des différentes stations sont renseignées pour l'année 2013 et 2015, nous avons calculé les différences entre les biais du modèle pour l'année 2015 et celui de l'année 2013 [$\text{Bias}_{2015} - \text{Bias}_{2013}$], lesquelles sont retranscrites dans le Tableau V.3. Pour l'année 2015, les écarts entre les simulations et les mesures augmentent significativement, sauf pour Shenyang, où les mesures sont sous-estimées par le modèle. Cela s'explique par la diminution des concentrations enregistrées par les stations [le plus vraisemblablement lié aux émissions] qui n'est pas complètement reproduite dans le modèle puisque les émissions utilisées sont celles basées sur l'année 2010.

Les séries temporelles correspondant aux stations de Pékin, Chengdu et Shanghai sont disponibles en Annexe D.

TABLE V.3 – Résultats statistiques des comparaisons entre les mesures $PM_{2.5}$ des ambassades américaines et les valeurs simulées par CHIMERE. n représente le nombre de mesures journalières.

| Indicators | Beijing | Chengdu | Guangzhou | Shanghai | Shenyang |
|---|---------|---------|-----------|----------|----------|
| n | 730 | 687 | 719 | 723 | 570 |
| Obs [$\mu\text{g.m}^{-3}$] | 92.3 | 83.8 | 47.6 | 55.3 | 74.0 |
| Model [$\mu\text{g.m}^{-3}$] | 115.4 | 126.5 | 59.5 | 67.5 | 64.4 |
| NRMSE [%] | 64 | 69 | 63 | 52 | 61 |
| r | 0.77 | 0.73 | 0.55 | 0.79 | 0.69 |
| Bias [%] | +25 | +51 | +25 | +22 | -13 |
| Bias ₂₀₁₅ [%] - Bias ₂₀₁₃ [%] | +14 | +24 | +40 | +33 | -13 |

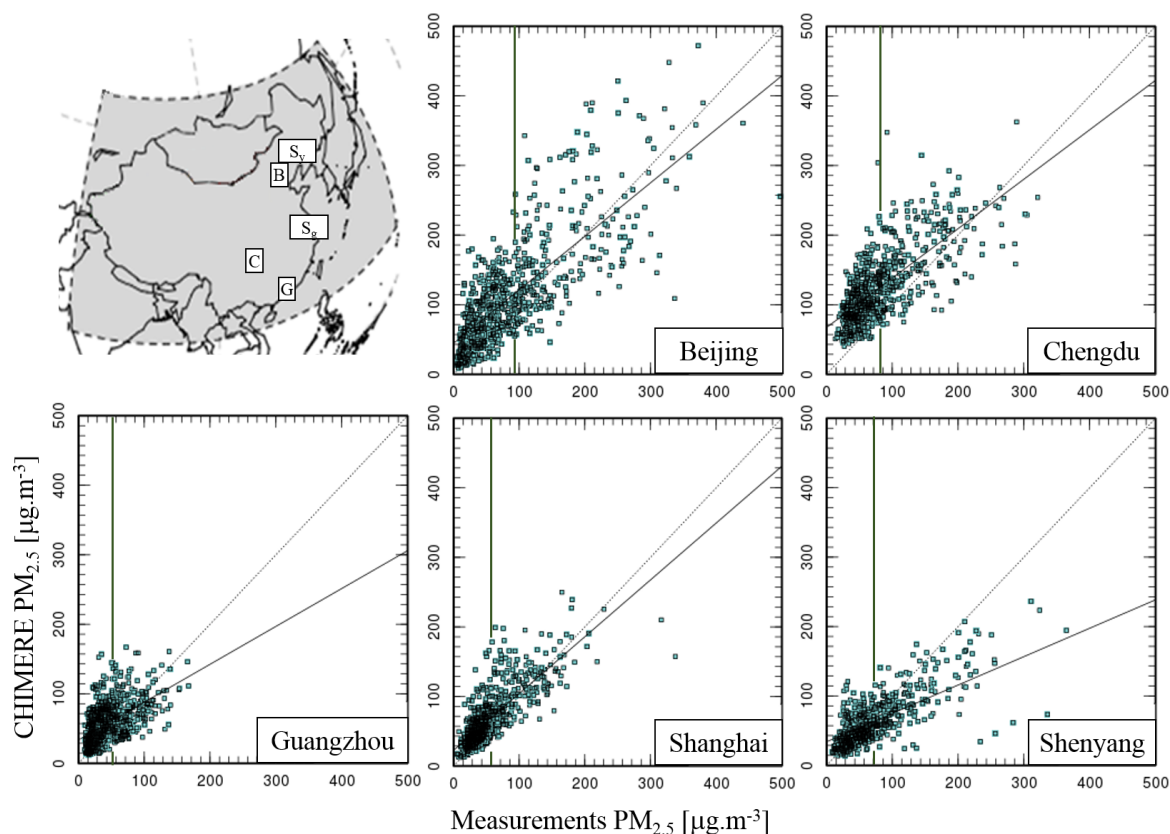


FIGURE V.2 – Comparaison des mesures journalières de $PM_{2.5}$ des stations aux ambassades américaines avec le modèle CHIMERE, pour 2013 et 2015. La barre verticale verte indique la valeur moyenne des stations de mesures. Les séries temporelles correspondant aux stations de Pékin, Chengdu et Shanghai sont disponibles en Annexe D.

V.4 Evaluation des simulations à partir des mesures de surfaces fournies par le réseau AERONET

V.4.1 Stratégie

La méthode de comparaison appliqué aux mesures des stations AERONET est sensiblement identique à celle mise en place pour les stations de mesures des ambassades. Le modèle CHIMERE calcule en ligne les valeurs d'AOD à 200, 300, 400, 600 et 999 nm, la valeur d'épaisseur optique pour 550 nm est calculée par interpolation en utilisant le coefficient d'Angstrom moyen $\bar{\alpha}$ [i.e. calculé avec plusieurs longueurs d'ondes] :

$$AOD_{550} = \frac{\sum_{i=300}^{i=999} e^{(-\bar{\alpha} \times \ln(\frac{\lambda_{550}}{\lambda_i}))} \times AOD_i}{4} \quad \forall i \in [300, 400, 600, 999] \quad (V.5)$$

Les comparaisons sont faites sur la base de données journalières, calculées à partir des données horaires en respectant la disponibilité des mesures d'épaisseurs optiques. Si de nombreuses stations

sont installées sur le domaine de simulation utilisé, uniquement trois d'entre elles proposent des observations régulières sur 2011, 2013 et 2015 et deux d'entre elles sont géographiquement très rapprochées et donnent des résultats cohérents [i.e. région de Pékin]. Au final, seules deux stations sont retenues, une station à Pékin et Hong-Kong, ce qui permet aussi une comparaison avec les stations des ambassades américaines à Pékin et Guangzhou – qui est relativement proche de Hong-Kong.

V.4.2 Résultats des comparaisons

Les valeurs d'AOD observées sont, comme pour les $PM_{2.5}$, plus élevées à Pékin qu'à Hong-Kong [Tableau V.4]. Les corrélations temporelles entre les séries AERONET et celle de CHIMERE sont proches de celles observées pour le réseau de mesure aux ambassades, à Pékin [0.76 et 0.77] et à Hong-Kong [0.62 et 0.55]. Néanmoins, les valeurs d'AOD calculées par le modèle sous-estiment dans les deux cas les AOD observées par le satellite, alors que les concentrations en $PM_{2.5}$ modélisées à la surface surestiment les concentrations mesurées. Un résultat qui n'est pas contradictoire, car l'AOD intègre la mesure de l'ensemble de la colonne atmosphérique qui peut être sensiblement différente des valeurs observées à la surface par exemple si des panaches sont présents en altitude.

TABLE V.4 – Comparaison des AOD AERONET et CHIMERE pour 2011, 2013 et 2015. La valeur n représente le nombre de mesures journalières disponibles.

| Indicators | Beijing | Hong-Kong |
|------------------|---------|-----------|
| n | 774 | 328 |
| AERONET | 0.59 | 0.43 |
| CHIMERE | 0.43 | 0.36 |
| NRMSE [%] | 76% | 56% |
| r | 0.76 | 0.62 |
| Bias [%] | -27% | -17% |

V.5 Evaluation des simulations à partir des observations satellites MODIS

V.5.1 Stratégie

Les observations de l'instrument MODIS nous permettent d'évaluer les épaisseurs optiques simulées sur l'ensemble du domaine. Les sorties de CHIMERE sont projetées sur une grille correspondant à la résolution des observations [soit $1^\circ \times 1^\circ$, Figure V.3], puis filtrées en fonction de la disponibilité des données d'observations. Le domaine étudié étant très étendu, les résultats sont présentés pour l'ensemble du domaine mais aussi pour les trois sous domaines précédemment présentés [i.e Région Centre, Nord et Est].

Une comparaison des AOD MODIS et CHIMERE pour les régions sources de dust sont exploitées dans le chapitre VII.

Les séries temporelles journalières sont calculées à partir de l'information disponible pour chaque journée si au minimum 40 % de la surface de la zone étudiée est renseignée par des observations, dans le cas inverse, la moyenne pour la journée considérée n'est pas calculée. À partir de ces séries de données journalières, les valeurs moyennes correspondant à chaque centile [selon la méthode expliquée V.2.3] sont calculées et sont représentées sur la Figure V.4 [Nuage de points par centiles].

V.5.2 Résultats des comparaisons

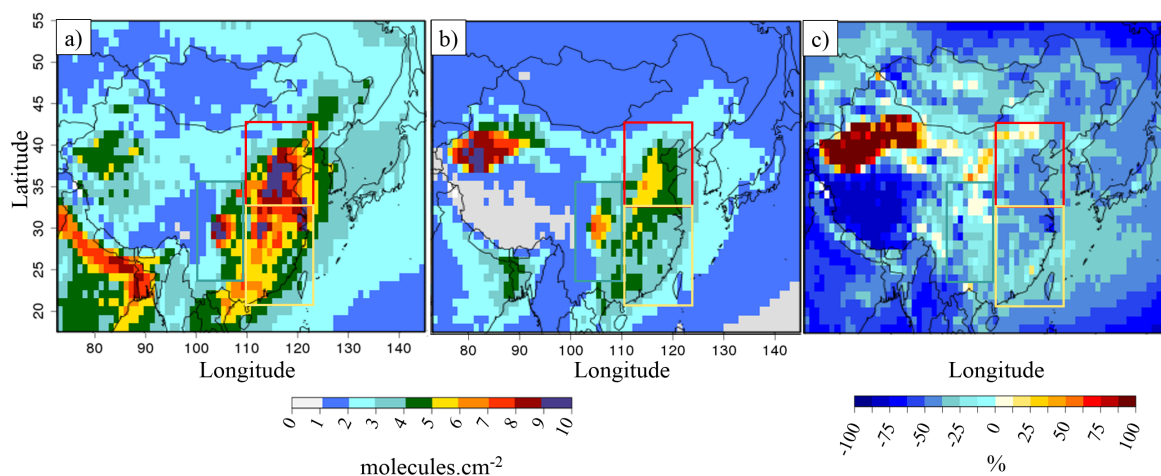


FIGURE V.3 – Épaisseurs optiques moyennes à 550 nm en Chine pour 2011, 2013 et 2015, avec a) MODIS, b) CHIMERE, c) et les différences relatives aux observations.

La Figure V.3 montre que le modèle simule des valeurs d'épaisseurs optiques plus faibles que celles observées par MODIS avec un biais global de 40 %, à l'exception de la région du Taklamakan [Les comparaisons pour cette zone sont exploitées plus en détails dans le chapitre VII]. Cet écart des épaisseurs optiques est cohérent avec celui précédemment observé à partir des informations du réseau AERONET. La distribution spatiale des AOD par CHIMERE est cohérente avec celle observée par les AOD MODIS pour les trois zones découpées [$r = 0.93$, 0.83 et 0.87 ; Tableau V.5], avec les niveaux les plus élevés au Nord Est de la Chine.

La Figure V.4 montre la correspondance entre les séries temporelles journalières des observations et simulations d'AOD pour les différents sous-domaines. La variabilité journalière du modèle est en accord avec celle des observations, notamment pour la région Nord Est [$r = 0.74$], et dans une moindre mesure pour les régions du Centre et de l'Est de la Chine [$r = 0.64$ et $r = 0.63$].

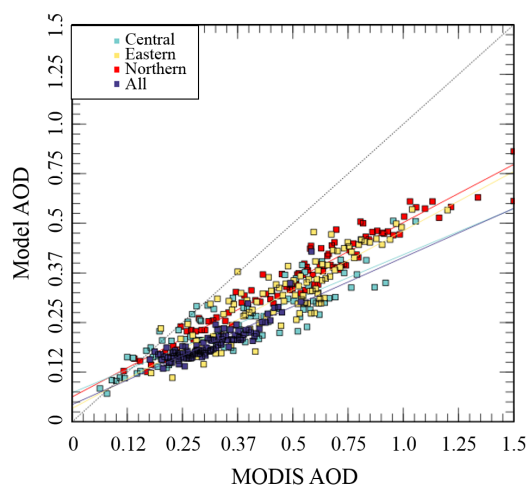


FIGURE V.4 – Nuage de point par centiles pour les séries temporelles journalières épaisseurs optiques à 550 nm du satellite MODIS et CHIMERE. N.D.A. les échelles utilisées pour ce graphique ne sont pas régulières et ont été choisies pour permettre une visualisation optimale des données.

TABLE V.5 – Résultats statistique des comparaisons des AOD MODIS et des AOD CHIMERE. n représente le nombre cellules de dimension $1^\circ \times 1^\circ$ avec une information MODIS renseignée par région [partie supérieure du tableau]. n représente le nombre de valeurs moyennes journalières disponibles d'AOD MODIS par région [partie inférieure du tableau].

| | Regions | MODIS | CHIMERE | Bias [%] | NRMSE[%] | r | n |
|--|-----------------|-------|---------|----------|----------|------|------|
| Spatial variability comparison | All | 0.32 | 0.18 | -40 | 60 | 0.68 | 2662 |
| | Northern | 0.59 | 0.37 | -38 | 47 | 0.93 | 130 |
| | Eastern | 0.54 | 0.33 | -39 | 45 | 0.83 | 169 |
| | Central | 0.42 | 0.27 | -36 | 44 | 0.87 | 80 |
| Temporal variability comparison | All | 0.31 | 0.21 | - | - | - | - |
| | Northern | 0.59 | 0.38 | -36 | 51 | 0.74 | 831 |
| | Eastern | 0.54 | 0.33 | -38 | 48 | 0.63 | 485 |
| | Central | 0.40 | 0.25 | -37 | 55 | 0.64 | 388 |

V.6 Evaluation des simulations à partir des observations satellitaires OMI

V.6.1 Stratégie

Les observations des colonnes de dioxyde d'azote par l'instrument OMI pour 2011, 2013 et 2015 sont comparées à celles simulées par CHIMERE, à une résolution de $0.25^\circ \times 0.25^\circ$, en filtrant les données du modèle en fonction de la disponibilité des observations [Figure V.5]. Les valeurs moyennes journalières par région sont calculées si un minimum de 10 % de la surface de la zone considérée est renseignée. Comme précédemment, à partir de ces séries, les valeurs moyennes correspondant à chaque centile [selon la distribution des mesures] sont calculées et sont représentées sur la Figure V.6.

Les informations de l'instrument OMI sur les colonnes de SO_2 sont exploitées dans le chapitre VI, de même que les observations de l'instrument IASI sur les colonnes d'ammoniac.

V.6.2 Résultats des comparaisons

La Figure V.5 et le Tableau V.6 indiquent une bonne correspondance entre les distributions spatiales des observations et des simulations, avec un coefficient de corrélation spatiale de Pearson pour l'ensemble du domaine de 0.91. Les colonnes de NO_2 présentent un fort gradient de concentration, avec des niveaux très élevés à l'Est, où se concentre principalement la population de la PRC, et à l'inverse, des niveaux très faibles pour les régions éloignées des activités humaines. Comme pour les concentrations de surface de NO_2 , le modèle sous-estime les teneurs observées dans les colonnes, même si le biais est moins important que pour les stations [e.g. biais = -10 % pour les colonnes contre -30 % pour les concentrations de surface pour la région Nord].

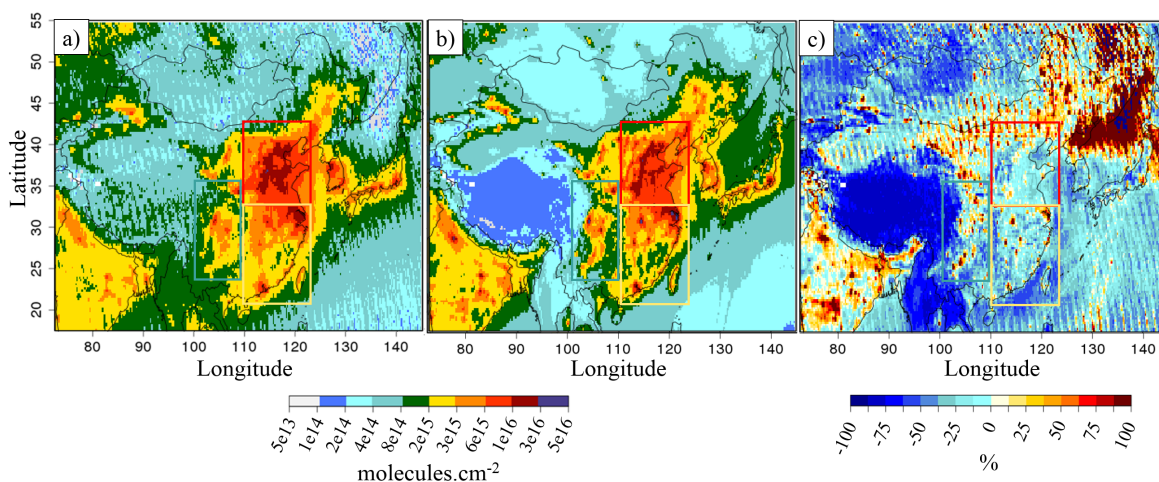


FIGURE V.5 – Colonnes de dioxyde d’azote en Chine pour 2011, 2013 et 2015, avec a) les sondages OMI, b) les simulations CHIMERE, en molecules.cm^{-2} c) et les différences relatives.

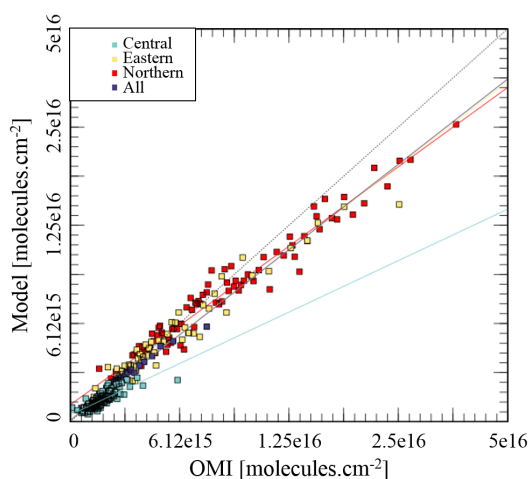


FIGURE V.6 – Nuage de points par centiles pour les colonnes de dioxyde d’azote du satellite OMI et CHIMERE. N.D.A. les échelles utilisées pour ce graphique ne sont pas régulières et ont été choisies pour permettre une visualisation optimale des données.

Les variabilités journalières des deux séries montrent des corrélations élevées pour les trois régions [Tableau V.6]. La Figure V.5 permet de remarquer que les niveaux sont bien plus importants pour les régions Nord et Est du domaine que pour l’ensemble de celui-ci. De plus, il apparaît que la partie supérieure de la distribution est légèrement sous-estimée, pour les trois régions.

Les comparaisons des colonnes de NO_2 font apparaître une correspondance très satisfaisante entre les observations et le modèle, notamment pour les régions les plus exposées à ce polluant.

TABLE V.6 – Résultats statistique des comparaisons des colonnes de NO_2 OMI et CHIMERE. n représente le nombre cellules de dimension $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ avec une information OMI renseignée par région [partie supérieure du tableau]. n représente le nombre de valeurs moyennes journalières disponibles des colonnes de NO_2 OMI par région [partie inférieure du tableau].

| | Regions | OMI | CHIMERE | Bias [%] | NRMSE[%] | r | n |
|--|-----------------|----------------------|----------------------|----------|----------|------|-------|
| Spatial variability comparison | All | 1.8×10^{15} | 1.6×10^{15} | -11 | 69 | 0.91 | 42783 |
| | Northern | 9.0×10^{15} | 8.1×10^{15} | -11 | 29 | 0.90 | 2000 |
| | Eastern | 4.3×10^{15} | 3.9×10^{15} | -12 | 56 | 0.89 | 2500 |
| | Central | 1.8×10^{15} | 1.4×10^{15} | -23 | 57 | 0.82 | 1280 |
| Temporal variability comparison | All | 1.8×10^{15} | 1.6×10^{15} | - | - | - | - |
| | Northern | 8.8×10^{15} | 8.0×10^{15} | -11 | 38 | 0.87 | 608 |
| | Eastern | 4.3×10^{15} | 3.9×10^{15} | -11 | 42 | 0.90 | 552 |
| | Central | 1.8×10^{15} | 1.4×10^{15} | -25 | 60 | 0.64 | 386 |

V.7 Conclusion

Les colonnes de dioxyde d'azote observées par OMI et simulées par CHIMERE présentent de bonnes correspondances, avec un biais de -11% , ce qui nous permet de penser que la représentation des émissions des oxydes d'azote est correcte. En revanche, les concentrations de surface des oxydes de soufre et d'azote sont sensiblement sous-estimées, ce qui peut-être expliqué par la résolution relativement grossière du modèle, comparativement à la représentativité des mesures réalisées aux stations de surface. Cela se répercute sur la représentation des valeurs faibles de la distribution des concentrations de surface d'ozone, qui sont surestimées [période nocturne]. Cependant, les valeurs hautes de la distribution d'ozone semblent bien représentées, ce qui permet de dire que la photochimie est bien représentée [en journée]. Le modèle montre une bonne représentation des distributions spatiales et des variabilités temporelles des différentes grandeurs considérées [AOD, concentrations de surface]. Cependant, les épaisseurs optiques apparaissent presque de façon systématique sous-estimées, que ce soit par rapport aux observations MODIS ou AERONET. Les particules apparaissent comme relativement bien représentées, notamment pour les $\text{PM}_{2.5}$, aux alentours de Pékin et Shanghai. La validation de [Boylan and Russell \[2006\]](#) est respectée par l'ensemble des jeux de données de PM.

The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations over China : increase of ammonia levels and impact on PM_{2.5}

« An apple a day keeps the doctor away... as long as you aim well. »

WINSTON CHURCHILL

Sommaire

| | |
|---|------------|
| Résumé de l'article | 107 |
| VI.1 Abstract | 109 |
| VI.2 Introduction | 109 |
| VI.3 Material and method | 110 |
| VI.3.1 IASI Satellite observations | 110 |
| VI.3.2 The chemistry-transport CHIMERE model and updated NO _x and SO ₂ emissions | 110 |
| VI.3.3 ISORROPIA | 112 |
| VI.3.4 Set-up of the performed sensitivity tests | 113 |
| VI.4 Results and Discussion | 113 |
| VI.4.1 Impact of meteorological conditions on the NH ₃ /NH ₄ ⁺ /SO ₄ ²⁻ /NO ₃ ⁻ system | 113 |
| VI.4.2 Impact of SO ₂ and NO _x emission reduction on NH ₃ columns and inorganic aerosol | 115 |
| VI.4.3 Time evolution of inorganic PM and precursor species between 2011 and 2015 | 118 |
| VI.4.4 Evaluation against PM _{2.5} surface measurements | 118 |
| VI.4.5 Correspondences between IASI NH ₃ columns observations | 119 |
| VI.5 Conclusion | 120 |

Résumé de l'article

L'Est de la Chine concentre une forte densité de population et donc d'activités anthropiques à l'origine d'émissions de polluants [SO_2 , PM, NO_x , NH_3 , VOC], parmi lesquelles l'agriculture et l'élevage occupent une place prépondérante, et sont responsables de 90 % des émissions d'ammoniac dans l'atmosphère. L'ammoniac est un précurseur important à la formation d'aérosols inorganiques, pouvant former de l'ammonium en se combinant avec les sulfates et nitrates. L'observation depuis l'espace par différents instruments portés par des satellites nous permet de suivre l'évolution des teneurs de certains polluants atmosphériques, et notamment l'ammoniac [IASI], ou les dioxydes de soufre et d'azote [OMI]. Ce suivi permet ainsi d'évaluer les effets des politiques de réductions d'émissions mises en place depuis la fin des années 2000 en Chine, réglementant notamment les émissions de SO_2 et de NO_x . L'instrument IASI indique un accroissement prononcé des niveaux d'ammoniac à l'Est de la Chine, estimé à +65 % entre 2011 et 2015, avec une augmentation intermédiaire de 15 % en 2013. Cette augmentation ne semble cependant pas directement expliquée par les variations des émissions d'ammoniac. L'objectif de notre étude sera de caractériser les facteurs à l'origine de l'évolution des niveaux d'ammoniac sur cette période de temps, en discriminant les effets de la météorologie et l'impact de la réduction des émissions à l'aide du modèle de chimie transport CHIMERE.

Dans un premier temps, la sensibilité de l'ammoniac aux conditions météorologiques a été étudiée à partir de simulations dont l'ensemble des émissions restaient identiques, et avec des conditions météorologiques représentatives des années 2011, 2013 et 2015. Comparés à l'année 2011, les niveaux d'ammoniac présentent une augmentation de 4 %, pour 2013 et une diminution de 7 % pour 2015. La réponse de l'ammoniac à la modification de la seule météorologie en 2015 est donc à l'opposé des observations produites par l'instrument IASI, avec une diminution des colonnes d'ammoniac simulées, à laquelle sont associées les augmentations des colonnes d'ammonium et de sulfates simulées.

Dans un second temps, nous avons souhaité estimer la sensibilité de l'ammoniac vis-à-vis de la réduction des émissions de NO_x et de SO_2 entre 2011 et 2015. Faute d'inventaire disponible pour les années souhaitées [i.e. 2013 et 2015], il a été nécessaire dans un premier temps de mettre à jour les émissions de NO_x et de SO_2 pour ces années. Les tendances dérivées à partir de l'instrument OMI pour 2013 et 2015 vont permettre de produire les émissions pour ces années, à partir de l'inventaire HTAP-v2, basé sur l'année 2010. Cette correction permet d'attribuer aux émissions de SO_2 une réduction de 37.5 %, et à celles des NO_x une réduction de 21 %, entre 2011 et 2015. Une première simulation pour 2015 a été réalisée en ne considérant que la réduction des émissions de SO_2 , et une seconde en intégrant les réductions des émissions de NO_x à celle de SO_2 . En comparant ces deux cas de figure à la simulation initialement réalisée pour 2015 sans corrections apportées aux émissions, cela a permis de constater une augmentation des colonnes d'ammoniac de 36 % due à la réduction des émissions de SO_2 , et une augmentation additionnelle de 15 % des colonnes d'ammoniac due à la réduction de NO_x . Pour ces mêmes cas, une diminution significative des niveaux de sulfate [-28 %] et d'ammonium [-18 %] ont été observées. Dans le cas des nitrates, une augmentation des nitrates est remarquée [+48 %] entre la simulation initiale pour 2015 et celle n'incluant qu'une réduction des sources de SO_2 , mais une diminution de la formation de nitrates est constatée [-17 %] entre cette dernière simulation et celle considérant la réduction des sources de NO_x .

Enfin, nous avons comparé les évolutions d'ammoniac représentées dans le modèle entre 2011 et 2015 à celles constatées par les sondages IASI. Entre 2011 et 2013, les observations indiquent une augmentation de 15 % des colonnes d'ammoniac, et le modèle CHIMERE une augmentation de 24 %. Pour l'évolution observée entre 2011 et 2015, l'instrument indique une augmentation de 65 %, contre

une augmentation de 49 % par le modèle CHIMERE. Les évolutions de l'ammoniac représentés par le modèle sont cohérentes avec celles observées par IASI.

Nos résultats nous permettent de constater que l'augmentation observée des niveaux d'ammoniac est principalement expliquée par la diminution des émissions des précurseurs inorganiques [NO_x et SO₂], ce qui entraîne une diminution de la production d'aérosols secondaires inorganiques à partir de l'ammoniac.

L'article a été publié à la date du 20 mai 2019, et est disponible sur ACP (Accès). Les figures additionnelles à l'article et citées dans l'article [Numérotées Figure S] se trouvent en annexes section C, page XV.



The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations over China: increase of ammonia levels and impact on PM_{2.5} concentrations

Mathieu Lachatre¹, Audrey Fortems-Cheiney^{1,a}, Gilles Foret¹, Guillaume Siour¹, Gaëlle Dufour¹, Lieven Clarisse³, Cathy Clerbaux^{2,3}, Pierre-François Coheur³, Martin Van Damme³, and Matthias Beekmann¹

¹Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA), UMR7583, CNRS, Université Paris-Est-Créteil, Université de Paris, Institut Pierre Simon Laplace, Créteil, France

²LATMOS/IPSL, Sorbonne Université, UVSQ, CNRS, Paris, France

³Université libre de Bruxelles (ULB), Spectroscopie Atmosphérique, Service de Chimie Quantique et Photophysique, Brussels, Belgium

^anow at: Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE-IPSL (CEA-CNRS-UVSQ), Université Paris-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

Correspondence: Mathieu Lachatre (mathieu.lachatre@lisa.u-pec.fr)

Received: 12 October 2018 – Discussion started: 12 November 2018

Revised: 18 April 2019 – Accepted: 24 April 2019 – Published: 20 May 2019

Abstract. Air pollution reaching hazardous levels in many Chinese cities has been a major concern in China over the past decades. New policies have been applied to regulate anthropogenic pollutant emissions, leading to changes in atmospheric composition and in particulate matter (PM) production. Increasing levels of atmospheric ammonia columns have been observed by satellite during recent years. In particular, observations from the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) reveal an increase of these columns by 15 % and 65 % from 2011 to 2013 and 2015, respectively, over eastern China. In this paper we performed model simulations for 2011, 2013 and 2015 in order to understand the origin of this increase and to quantify the link between ammonia and the inorganic components of particles: $\text{NH}_{4(\text{p})}^+/\text{SO}_{4(\text{p})}^{2-}/\text{NO}_{3(\text{p})}^-$. Interannual change of meteorology can be excluded as a reason: year 2015 meteorology leads to enhanced sulfate production over eastern China, which increases the ammonium and decreases the ammonia content, which is contrary to satellite observations. Reductions in SO₂ and NO_x emissions from 2011 to 2015 of 37.5 % and 21 % respectively, as constrained from satellite data, lead to decreased inorganic matter (by 14 % for $\text{NH}_{4(\text{p})}^+ + \text{SO}_{4(\text{p})}^{2-} + \text{NO}_{3(\text{p})}^-$). This in turn leads to increased gaseous NH_{3(g)} tropospheric columns by as much as 24 % and 49 % (sampled corresponding to IASI data availability)

from 2011 to 2013 and 2015 respectively and thus can explain most of the observed increase.

1 Introduction

Particulate matter (PM) pollution poses serious health concerns all over the world and particularly over China (Cohen et al., 2017; Landrigan et al., 2017). Among PM precursors, several studies (Seinfeld and Pandis, 2006; Schaap et al., 2004; Lelieveld et al., 2015; Bauer et al., 2016; Pozzer et al., 2017) pointed out the importance of ammonia (NH_{3(g)}), whose main source is agriculture and which acts as a limiting species in the formation of fine particulate matter (PM_{2.5}, particulate matter with an aerodynamic diameter less than 2.5 μm; Banzhaf et al., 2013). Balance between SO₂, NO_x and NH₃ emissions will define cation- or anion-limited regimes of inorganic particulate matter formation, and this is key for PM control policies (Paulot et al., 2016; Fu et al., 2017). Yet, an increase in the ammonia atmospheric content over China has been observed by the satellite instrument AIRS, with a trend of +2.27 % yr⁻¹ from 2002 to 2016 (Warner et al., 2017). Infrared Atmospheric Sounding Interferometer instrument (IASI) satellite observations

(Van Damme et al., 2017) also show an increased density of the NH_{3(g)} column over China between 2011 and 2015, with a sharper trend between 2013 and 2015. Several factors could explain this enhancement, including an increase of NH_{3(g)} emissions in China, whereby agricultural activities represent 80 %–90 % of total ammonia emissions in China (Kang et al., 2016). However, ammonia emissions appear to have reached a maximum in 2005 and have been almost constant since (Kang et al., 2016). Another study (Zhang et al., 2018) estimates a 7 % increase of NH₃ emissions between 2011 and 2015, much lower than the observed trends. Other sources, such as biomass burning and associated ammonia emissions, do not show particular trends (Wu et al., 2018). Consequently, the increase of atmospheric NH_{3(g)} concentrations over China does not seem to be explained by changes in ammonia emissions. The rise of ammonia concentrations over China could be explained by increased NH_{3(g)} evaporation from inorganic PM due to a rise in temperature, as shown by Riddick et al. (2016). Meteorological variations would change both the NH_{3(g)} volatilization and the equilibrium between ammonia, ammonium nitrate (NH₄NO₃) and nitric acid (HNO₃). Finally, a decrease in sulfate and total nitrate availability caused by SO_x (SO₂ + SO_{4(p)}²⁻) and NO_x (NO + NO₂) emission reductions (Liu et al., 2017; de Foy et al., 2016) could leave more ammonia in the gas phase, since less ammonium is required to neutralize particle-phase acids, following a mechanism already observed by Schiferl et al. (2016) over the United States. Such a decrease in SO₂ emissions has also occurred over China since 2011 (Koukoulis et al., 2018). Its impact on atmospheric ammonia concentrations has not been quantified yet. Wang et al. (2013) examined the change of Chinese sulfate–nitrate–ammonium aerosols due to anthropogenic emission changes of SO₂ and NO_x from 2000 to 2015. However, they assumed an increase of NO_x emissions from 2006 to 2015 and not the large decrease observed since 2013.

A recent study by Liu et al. (2018) suggests that ammonia increase mainly comes from SO₂ emission policies. They found that the changes in NO_x emissions decreased the NH₃ column concentrations in their study period. Conversely, Fu et al. (2017) have shown that SO₂ and NO₂ emissions control was an important factor affecting the significant enhancement of NH₃ column concentrations over China during the period 2011–2014. In addition, our study also presents a comparison to NH₃ IASI satellite observations. Our goal here is to understand the factors controlling atmospheric ammonia concentrations over China in recent years. In order to identify the drivers of NH_{3(g)} variability over China, we conducted different sensitivity studies with a regional chemistry-transport model, isolating the impacts of (i) meteorological conditions and (ii) decrease of anthropogenic SO₂ and NO_x emissions. Section 2 presents the regional chemistry-transport model (CTM) CHIMERE used in this study and the different settings of the performed sensitivity tests. It also presents IASI NH₃ column and surface

PM observations. Section 3 gives the results of the sensitivity tests and shows the impacts of meteorological conditions and emission changes on ammonia and ammonium concentrations. The simulations are also evaluated by comparison of the modelled PM_{2.5} concentrations with surface measurements. Finally, the modelled NH_{3(g)} column interannual variability is compared to that retrieved from satellite (IASI) data.

2 Material and method

2.1 IASI satellite observations

NH_{3(g)} column observations from space are provided by the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer instrument (IASI), operating between 3.7 and 15.5 μm, on board the Metop-A European satellite (Clarisse et al., 2009; Van Damme et al., 2018). The algorithm used to retrieve NH₃ columns from the radiance spectra is described in Whitburn et al. (2016) and Van Damme et al. (2017).

For this study we used the dataset ANNI-NH3-v2.2R-I, relying on ERA-Interim ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts) meteorological input data rather than the operationally provided EUMETSAT IASI Level 2 (L2) data used for the standard near-real-time version. An analysis of ANNI-NH3-v2.1 time series revealed sharp discontinuities coinciding with IASI L2 version changes (Van Damme et al., 2017). With the ECMWF ERA-Interim reanalysis, the time series is now coherent in time (except for the cloud coverage flag) and can therefore be used to study interannual NH_{3(g)} variability over eastern China between 2011 and 2015 (Fig. 1). We used the daily satellite information from morning orbits (at ~ 09:30 LT) to have daily information on IASI data availability. The IASI total columns are first averaged into daily “super-observations” (average of all individual IASI data within the 0.25° × 0.25° resolution of CHIMERE). The annual gridded means of Fig. 1 are calculated from these gridded daily super-observations. In this study, and as suggested in Van Damme et al. (2017), we do not apply a selection to the IASI observations. In 2011, a mean value of 4.7 × 10¹⁵ molecules cm⁻² is observed for eastern China, increasing to 5.36 × 10¹⁵ molecules cm⁻² in 2013 (+15 %) and 7.76 × 10¹⁵ molecules cm⁻² in 2015 (+65 %).

2.2 The chemistry-transport CHIMERE model and updated NO_x and SO₂ emissions

CHIMERE (2014b version) is a three-dimensional chemistry-transport regional model (Menut et al., 2013; Mailler et al., 2017; <http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>, last access: 15 September 2018) run here over a 0.25° × 0.25° regular grid, on a domain completely covering China’s territory (72° 30′–145° E, 17° 30′–55° N).

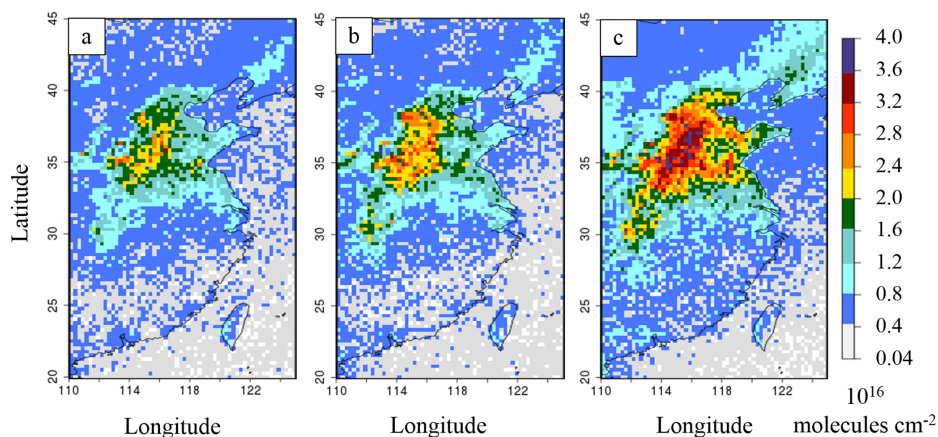


Figure 1. IASI instrument NH_{3(g)} total columns over eastern China (110–125° E, 20–45° N), in 10¹⁶ molecules cm⁻² for (a) 2011, (b) 2013 and (c) 2015. In this figure, the available observations have been averaged on a 0.25° × 0.25° grid.

The domain includes 290 (longitude) grid cells × 150 (latitude) grid cells and 17 vertical layers, with altitude going from the ground to 200 hPa (about 12 km), with eight layers within the first 2 km. Meteorological fields are provided by ECMWF meteorological forecasts (Owens and Hewson, 2018; Jingjing et al., 2015; Chen et al., 2010). To prescribe atmospheric boundaries and initial composition, climatological values are used from the LMDZ-INCA global model (Szopa et al., 2008). Biogenic emissions are calculated taking into account meteorological parameters with the MEGAN-v2 model (Guenther et al., 2006). We use the EDGAR-HTAP-v2.2 inventory delivered for the year 2010 (Janssens-Maenhout et al., 2015), to prescribe the anthropogenic emissions for the simulation. Chinese emissions in EDGAR-HTAP-v2.2 are derived from the Multi-resolution Emission Inventory for China (MEIC) developed by Tsinghua University, the NH_{3(g)} emission inventory from Peking University (Huang et al., 2012) and the Regional Emission inventory in Asia (REAS) (Kurokawa et al., 2013) to fill the remaining gaps. The respective total annual emissions of SO₂, NO and NH_{3(g)} for 2010 are 42.4, 25.2 and 20.3 Mt (Table 1), and the spatial distributions of these emissions are represented in Fig. 2.

We used the most recent HTAP emission inventory built for the year 2010 to simulate emissions of the year 2011, assuming that both years have similar emissions. Initially, a comparison of the OMI and CHIMERE NO₂ columns for 2011 shows a Pearson correlation coefficient of 0.78 for daily values and an annual mean bias of -7%. To understand the impact of the NO_x and SO₂ emission reductions observed over China in 2013 and 2015, the model emissions need to be updated. The observed variability of satellite columns has been used to update emissions, as in Palmer et al. (2006). Here NO, NO₂ and SO₂ emissions have been updated following the variability observed by OMI between 2011, 2013 and 2015. We assume that NO₂ variations are controlled by

NO_x emissions changes. The yearly gridded relative variabilities seen by the OMI instrument between 2011 and 2013 and between 2011 and 2015 are applied to daily prior anthropogenic SO₂, NO and NO₂ emissions. H₂SO₄ emissions represent only a small fraction of SO_x (1%) and, consequently, are not updated here. Equation (1) has been applied to each pixel of our regional grid for 2015 and 2013, where i can be SO₂, NO₂ or NO and j the pixel number:

$$\text{Emis}_{(\text{year},i,j)} = \text{Emis}_{(2010,i,j)} \times \left(\frac{\text{Col}_{(\text{year},i,j)}}{\text{Col}_{(2011,i,j)}} \right). \quad (1)$$

Emis₍₂₀₁₀₎ represents the reference HTAP emission inventory, and Col₍₂₀₁₁₎ and Col_(year) the respective OMI satellite observation values for 2011 and 2015 (or 2013). Corrections for the emission inventory are shown in Fig. 3. Values of derived emissions have been limited to 500% of initial values, to avoid outlier values located in North Korea. It should be noted that our update based on annual averages does not modify the seasonal cycle for NO_x and SO₂ (with a maximum in winter; see Fig. S1 in the Supplement). In the model, spatial distributions for NO_x and SO₂ emissions appear to have a similar structure (see Fig. 2). Ammonia emissions show a significant seasonal cycle with emissions higher during summer than during the other seasons. On a molar basis, NH_{3(g)} emissions are low compared to SO₂ and NO_x emissions, except in summer when NH_{3(g)} emissions are in excess compared to SO₂ alone (Fig. S1 in the Supplement).

When applying Eq. (1), the temporal evolution of OMI NO₂ columns leads to a decrease in NO_x emissions (Figs. S3 and S4 in the Supplement), particularly after 2013 (+1% in 2013 and -21% in 2015 as compared to 2011). Liu et al. (2017) derived similar NO_x emission changes with the exponentially modified Gaussian method of Beirle et al. (2011) (e.g. decrease of 21% of NO_x emissions within Chinese cities between 2011 and 2015). We have also compared our updated inventories for NO_x and SO₂ with the DECSO

Table 1. Annual budgets of the EDGAR-HTAP-v2.2 inventory and of emissions corrected from the OMI instrument (this work), for SO₂, NO and NO₂, over Asia and over eastern China (in Mt). The Asian domain corresponds to our full domain (72° 30′–145° E, 17° 30′–55° N), and the eastern China domain corresponds to a smaller domain (110–125° E, 20–45° N), displayed by a black rectangle in Fig. 2.

| Domains | Species | Reference emissions EDGAR-HTAP-v2.2 for 2010 | Emissions derived for 2013 | Emissions derived for 2015 |
|---------------|-----------------|---|-------------------------------|-------------------------------|
| Asia | NH ₃ | 20.3 Mt | = | = |
| | SO ₂ | 42.4 Mt | +3.8 Mt/ +08.9 % | −6.8 Mt/ −16.0 % |
| | NO | 25.2 Mt | +1.2 Mt/ +04.8 % | −2.2 Mt/ −08.7 % |
| | NO ₂ | 4.1 Mt | +0.2 Mt/ +04.9 % | −0.2 Mt/ −04.9 % |
| Eastern China | NH ₃ | 6.0 Mt | = | = |
| | SO ₂ | 19.7 Mt | −4.7 Mt/ −23.8 % | −7.4 Mt/ −37.5 % |
| | NO | 13.0 Mt | < +0.1 Mt/ < +1.0 % | −2.8 Mt/ −21.5 % |
| | NO ₂ | 1.85 Mt | < +0.1 Mt/ +2.5 % | −0.4 Mt/ −21.0 % |

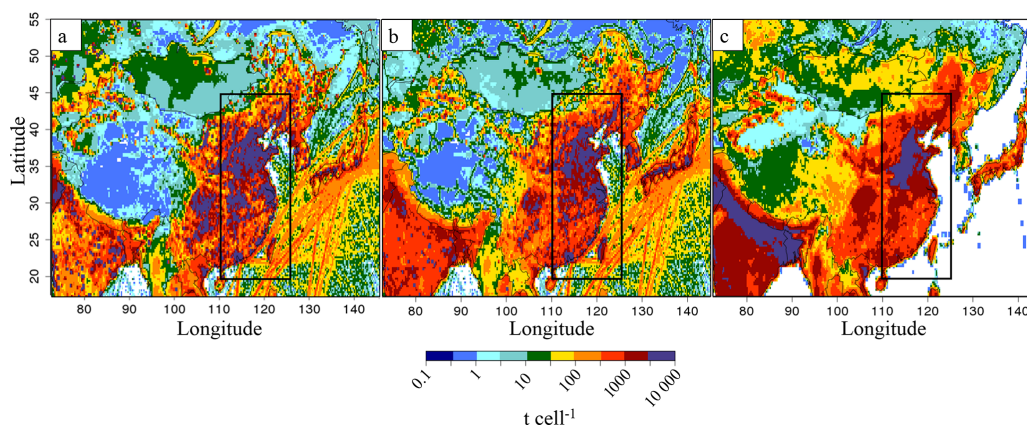


Figure 2. EDGAR-HTAP-v2.2 emissions for the year 2010 for (a) SO₂, (b) NO and (c) NH₃. Units are tons per cell (t cell^{-1}) (cell size of $0.25^\circ \times 0.25^\circ$). The black rectangle shows the eastern China domain.

v5 inventories calculated with an inverse modelling method based on an extended Kalman filter (Mijling and Zhang, 2013; Ding et al., 2017; <http://www.globemission.eu/>, last access: 4 July 2018). For DECSO, the a priori NO_x anthropogenic emissions are taken from the EDGAR-v4.2 inventory, whereas our prior emissions come from EDGAR-HTAP-v2.2. EDGAR-v4.2 does not take into account shipping emissions, as shown in Fig. S2 in the Supplement. Our annual evolution rates are consistent with DECSO trend estimates (+1 % in 2013 and −14 % in 2015, compared to DECSO in 2011). A recent study from Zheng et al. (2018) evaluated NO_x emissions and found a change of −17.4 % from 2011 to 2015, similar to our −24 % change. The OMI SO₂ trends imply (following Eq. 1) a continuous decrease of SO₂ emissions from 2011 to 2015 (−24 % in 2013 and −37 % in 2015 compared to 2011; see Table 1 and Fig. 2a). This decreasing trend is consistent with trend estimates of the SO₂ in DECSO, −11 % in 2013 and −25 % in 2014 compared to 2011. Nevertheless, our total SO₂ emissions in 2013 seem to be underestimated compared to the DECSO an-

nual estimates (−15 % in 2011, −25 % in 2013). It should be noted here that our method to update emissions has some limitations. All the variability of satellite tropospheric columns is attributed to emissions, without taking into account variability associated to meteorology, transport, chemistry or instrumental degradation. However, the comparison with independent emission estimations shows good consistency. Zheng et al. (2018) found SO₂ emissions change of −41.9 % between 2011 and 2015, again similar to our −37.5 % evolution. Hence, we consider our estimated emission inventories realistic enough to conduct sensitivity tests.

The emission update helped correctly reproduce the column changes for SO₂ −44 % (CHIMERE) and −53 % (OMI) between 2011 and 2015 and for NO₂ −31 % (CHIMERE) and −23 % (OMI) between 2013 and 2015.

2.3 ISORROPIA

The composition and phase state of inorganic aerosol in thermodynamic equilibrium with gas-phase precursors are calculated using the ISORROPIA V2006 module (Nenes et al.,

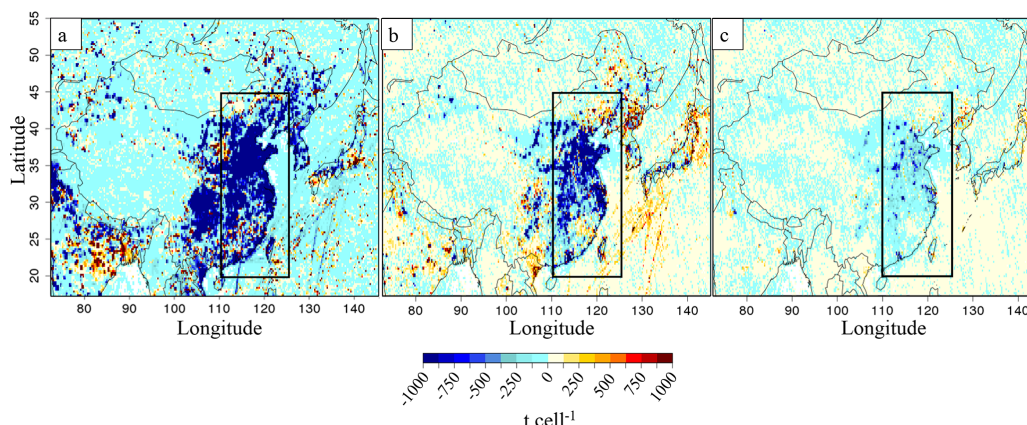


Figure 3. Annual differences between the EDGAR-HTAP-v2.2 inventories for the year 2010 and the emissions corrected from OMI for the year 2015, for (a) SO₂, (b) NO and (c) NO₂. Units are tons per cell (t cell^{-1}) (cell size of $0.25^\circ \times 0.25^\circ$).

1998). The CHIMERE CTM calculates the thermodynamical equilibrium of the system: sulfate–nitrate–ammonium–water for a given temperature (in a range [260–312 K]; increment: $\Delta K = 2.5$ K) and relative humidity (RH, in a range [0.3–0.99]; increment: $\Delta RH = 0.05$). Considering temperature, relative humidity, TN ($\text{TN} = \text{NO}_3^- + \text{HNO}_3$; total nitrates), TA ($\text{TA} = \text{NH}_4^+ + \text{NH}_3(\text{g})$; total ammonia) and TS ($\text{TS} = \text{SO}_4^{2-} + \text{H}_2\text{SO}_4$; total sulfates), the gas to particle partitioning of $\text{NH}_4^+(\text{p})/\text{NH}_3(\text{g})$ and $\text{HNO}_3(\text{g})/\text{NO}_3^-(\text{p})$ is calculated using tabulated values. Depending on the equilibrium calculation, both the absorption and desorption of ammonia are represented in the model. Within CHIMERE, a kinetic approach is also added to simulate transport barriers for the gas to the particle phase and vice versa. Over Europe, a recent study, conducted with CHIMERE and the ISORROPIA V2006 module, showed that higher temperature and lower RH will promote $\text{NH}_3(\text{g})$ at the expense of $\text{NH}_4^+(\text{p})$ (Petetin et al., 2016).

2.4 Set-up of the performed sensitivity tests

Six experiments were performed to discriminate factors that control the ammonia atmospheric budget over China over recent years. Configurations corresponding to the six experiments are described in Table 2. The 2011 reference simulation serves as a baseline for comparison with the other simulations (under different meteorological and emissions scenarios). The simulations labelled “A” are used to quantify the influence of meteorological parameters, the simulation labelled “B” to quantify the influence of SO₂ emissions variations and simulations labelled “C” to quantify the influence of both SO₂ and NO_x emissions variations. The 2013A and 2015A simulations were performed keeping emissions at 2010 levels, but the meteorology was updated to isolate effects of meteorological variability on simulated ammonia levels. Among scenarios performed in our study, the 2015B

simulation uses the same meteorology as 2015A but with 2015 SO₂ emission giving information on the role of Chinese SO₂ emission reduction in the $\text{NH}_3(\text{g})$ atmospheric content. Finally, the 2015C simulation uses the same meteorology as 2015A but using both SO₂ and NO_x emissions corrected with 2015 OMI observations (see Table 2). As the updated 2013 NO_x emissions are similar to the initial EDGAR-HTAP-v2.2 emissions used for the 2011 reference simulation, we expect similar results for the 2013B and 2013C simulations. Consequently, the 2013B simulation was not conducted. Hence, 2013C and 2015C are the key simulations of our study showing the combined effect of SO₂ and NO_x emission reductions and of meteorology on atmospheric ammonia.

3 Results and discussion

3.1 Impact of meteorological conditions on the ammonia/ammonium–sulfate–nitrate system

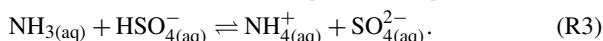
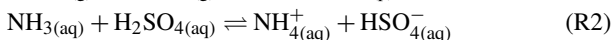
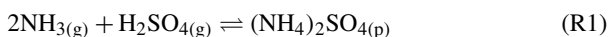
Three scenario simulations using the same emissions but different meteorological conditions (2011A, 2013A and 2015A) were performed to understand the role of meteorology in ammonia atmospheric concentrations. As our study uses satellite observations giving tropospheric trace gas columns for different purposes, the model results will be generally presented as vertical columns (reaching from the ground to 12 km height). However, most of the column content can generally be found within the first 2.5 km, close to the ground (more than 90 % of $\text{NH}_3(\text{g})$ is located within the first 2.5 km in CHIMERE). Hence, to study the meteorological influence on ammonia, we restrict the comparison to 0 to 2.5 km (which corresponds to about 720 hPa) partial columns, as we want to average meteorological parameters for a height that should be representative of conditions where pollutants are located. Figure 4 shows $\text{NH}_3(\text{g})$ columns in 2011 (Fig. 4a) and simulated variations depending on meteorological condi-

Table 2. Description of the different experiments performed with the regional chemistry-transport model CHIMERE.

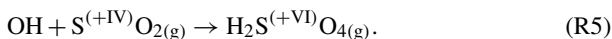
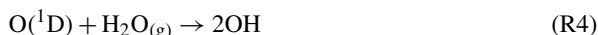
| Name | Meteorology | SO ₂ emissions | NO _x emissions | Objectives of the simulation |
|-------|-------------|---------------------------|---------------------------|---|
| 2011A | ECMWF 2011 | EDGAR-HTAP-v2.2 2010 | EDGAR-HTAP-v2.2 2010 | Baseline simulation |
| 2013A | ECMWF 2013 | EDGAR-HTAP-v2.2 2010 | EDGAR-HTAP-v2.2 2010 | Sensitivity to meteorology |
| 2013C | ECMWF 2013 | Deduced from OMI for 2013 | Deduced from OMI for 2013 | Sensitivity to SO ₂ and NO _x emission reduction |
| 2015A | ECMWF 2015 | EDGAR-HTAP-v2.2 2010 | EDGAR-HTAP-v2.2 2010 | Sensitivity to meteorology |
| 2015B | ECMWF 2015 | Deduced from OMI for 2015 | EDGAR-HTAP-v2.2 2010 | Sensitivity to SO ₂ emission reduction |
| 2015C | ECMWF 2015 | Deduced from OMI for 2015 | Deduced from OMI for 2015 | Sensitivity to SO ₂ and NO _x emission reduction |

tions for 2013 (Fig. 4b) and 2015 (Fig. 4c). It can be observed that the eastern China area includes regions with the highest NH_{3(g)} values (except the Indo-Gangetic Plain). Over the eastern China area, meteorological conditions affect NH_{3(g)} columns: an increase of 4 % is simulated in 2013, whereas a decrease of 7 % is simulated in 2015. In addition, it can be observed that over the southern China area (see black rectangle in Fig. 4b–c) ammonia decreases for 2013 and 2015.

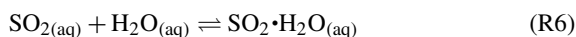
Figure 5 shows that ammonia changes caused by meteorological variations are opposite to sulfate and ammonium changes in both cases, for 2013 and 2015. Meteorological conditions in 2015 (Fig. S5 in the Supplement) promoted the formation of ammonium and sulfates (+6 % and +12 % respectively) in 2015A compared to 2011A and a decrease of nitrates (−13 %; Fig. 5). For 2013, changes of NH_{3(g)} are opposite to ammonium (−7 %) and sulfates (−7 %), with a slight increase of NH_{3(g)} (+4 %). It appears that changes in the NH_{3(g)}/NH_{4(p)}⁺ ratio are correlated with SO_{4(p)}^{2−} changes. This can be explained from well-known neutralization reactions in the gas (Reaction R1) or aqueous phase (Reactions R2 and R3):



SO₂ oxidation to SO_{4(p)}^{2−} can happen in the gas phase, from process Reaction (R5), in which OH is the oxidant, produced from Reaction (R4), that is linked to humidity:



Sulfate production can also occur in the aqueous phase, by SO_{2(aq)} oxidation with O₃ or H₂O₂, yielding sulfuric acid which can then be neutralized to form ammonium sulfate (Hoyle et al., 2016). The extent of this reaction chain depends on cloud liquid water content. It is initiated by a solution of SO_{2(g)} in the water phase (SO₂·H₂O_(aq)):



While the aqueous-phase pathway is globally dominant, the gas-phase pathway can also be important under dry conditions (e.g. Seinfeld and Pandis, 2006). In our study, we did not investigate the relative importance of both pathways because this would have required inclusion of specific tagging. Nevertheless, for both pathways, RH increase favours SO_{4(p)}^{2−} production, either through increased production of OH radicals in the gaseous phase (for a given temperature, so that specific humidity also increases) or through a larger cloud liquid water content (Hedegaard et al., 2008). In 2013, annual mean temperature and annual mean RH increased by +0.7 K and decreased by −0.9 % respectively compared to 2011; cloud liquid water relative variation also shows a decrease of −7 %. In 2015, temperature and annual mean RH increased by 1 K and increased by +1.3 % respectively compared to 2011, and cloud liquid water relative variation increased by +20 %. Accordingly, the total sulfate–nitrate–ammonium (called pSNA hereafter) production is increased by +7 % in 2015A compared to 2011A, which explains the decrease in the NH_{3(g)} columns of −7 %. Conversely, meteorological conditions in 2013 (decrease of RH and liquid water) depressed the formation of pSNA (Fig. 5). Consequently, its production was lower by about 6 % in 2013A compared to 2011A, and NH_{3(g)} columns were larger by +4 %. These relationships between meteorological parameters and NH_{3(g)} columns can also be documented by correlation statistics (Fig. 6). An inverse correlation between monthly RH and NH_{3(g)} column variations over the eastern China domain is shown in Fig. 6a, with Pearson correlation coefficients of −0.47 and −0.56 in 2013 and 2015, respectively. An even more pronounced negative correlation is also observed on a daily basis, with correlation coefficients for 2013 and 2015 of −0.71 and −0.61 respectively. When RH increases, the production of NH_{4(p)}⁺ from NH_{3(g)} also increases. The largest difference between 2013A and 2015A is observed in November and December 2013 and 2015, when RH variations and NH_{3(g)} column variations are opposite (Fig. 6a). Figure 6b shows that temperature changes do not control the NH_{3(g)} variation, as the Pearson correlation coefficients are −0.04 and 0.09 in 2013 and 2015 respectively. It should also be noted that decreases of ammonia and ammonium are observed over areas showing an increase in rainfall frequencies (see Fig. S6 in the Supplement) in 2015 and 2013 (in the south of China, Guangxi and Guangdong Province; see

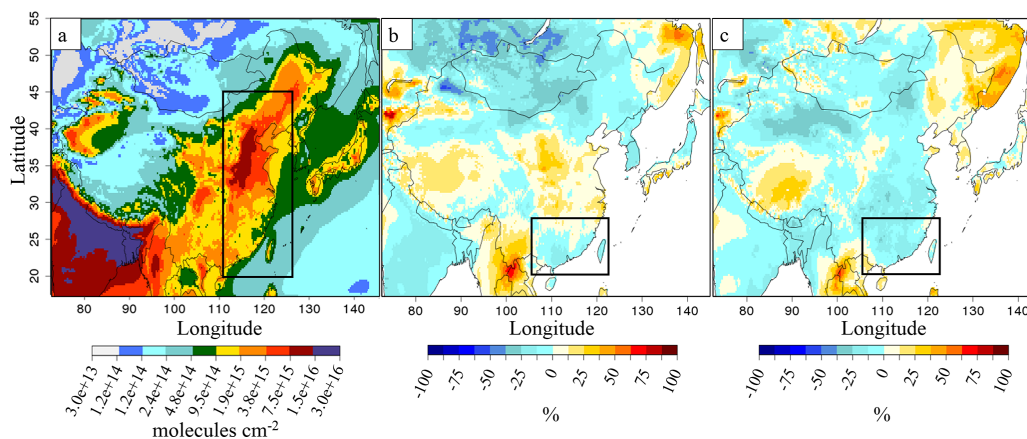


Figure 4. (a) Ammonia columns (molecules cm⁻²) for the 2011A simulation; (b) relative differences (%) of ammonia columns between 2013A and 2011A; (c) relative differences between 2015A and 2011A. Note that as values over the sea mostly represent only small variations, we do not show them here and in the following figures.

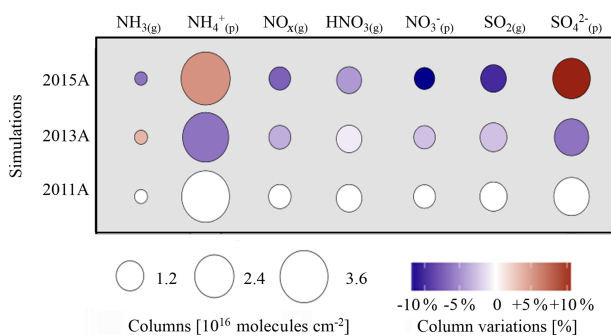


Figure 5. Gaseous and particulate inorganic species variation for the eastern China region. Disk surfaces are proportional to column amount (molecules cm⁻²) and colours indicate relative evolution rates compared to 2011A (%).

the black box in Fig. 4). Conversely, with rainfall frequencies lower than 90 d yr⁻¹ (for rainfall above 1 mm d⁻¹), and small changes in rainfall frequencies over the North China Plain for 2011 and 2013, changes in wet deposition do not seem to impact ammonia levels significantly. Indeed, low correlation is found between monthly rainfall frequency variations and monthly ammonia variations over eastern China (Pearson correlation coefficients of -0.12 and -0.18 for 2013 and 2015 respectively).

Finally it has been observed in this study that total NH_{3(g)} + NH_{4(p)} columns will vary depending on meteorological conditions. It should be noted that if NH_{3(g)} is favoured, as for 2015, the total content will decrease as NH_{3(g)} lifetime is shorter than NH_{4(p)} lifetime due to faster deposition.

3.2 Impact of SO₂ and NO_x emission reduction on NH₃ columns and inorganic aerosol

3.2.1 Impact of SO₂ and NO_x emission reduction on NH₃ columns

Figure 7b represents the impact of the SO₂ emission reduction on NH_{3(g)} columns for the 2015B simulations. For the year 2013, the comparison is made from the 2013C simulation (see Table 1, and Fig. S7 in the Supplement), since NO_x emissions between 2011 and 2013 are similar. The SO₂ emission reduction (-24% for 2013 and -37% for 2015 as compared to 2011) strongly affects NH_{3(g)} columns, which increase by $+10\%$ over eastern China in the 2013C simulation compared to 2013A and by about $+36\%$ in the 2015B simulation compared to 2015A. Thus, the effect of SO₂ reduction on NH_{3(g)} columns appears to be non-linear because NH_{3(g)} interactions are not limited to SO₂. It should be noted that the column change is mainly controlled by changes between the surface and the first few kilometres of altitude, as much of column content ($> 90\%$) is located between the surface and 2.5 km of altitude; but as IASI and OMI satellite provide full column information, we present the entire CHIMERE column to be as consistent as possible with observations. In the two cases, the decrease of ammonia over western China and Mongolia (between 0% and -15% ; Fig. 7b), where NH_{3(g)} values are initially low (Fig. 7a), remains small. Figure 7c shows the additional impact of NO_x emission reductions, of about -21% between 2015 and 2011, on the NH_{3(g)} amount over eastern China (with the 2015C simulation, compared to 2015B). The additional increase of ammonia columns in the 2015C simulation, is about 15% compared to the 2015B simulation (SO₂ emission decrease only) in the northern part of the eastern China subdomain. This statement on NO_x emission evolution impacts is different from that in Liu et al.

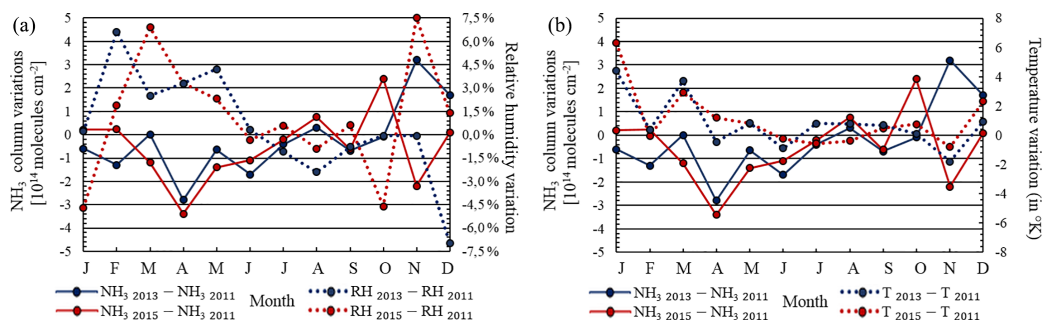
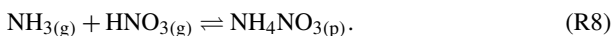


Figure 6. (a) Monthly variation of NH_{3(g)} partial columns and relative humidity in 2013 and 2015 compared to 2011. (b) Monthly variation of NH_{3(g)} partial columns and temperature in 2013 and 2015 compared to 2011.

(2018), in which NO_x emission reduction is considered not responsible for the NH₃ increase between 2011 and 2015.

Figure 8b represents the impact of the SO₂ emission reductions on NH_{4(p)}⁺ columns with a decrease of about 14 % in the 2015B simulation compared to 2015A. The reduction of NO_x emissions between 2015B and 2015C leads to an additional decrease of ammonium levels in the 2015C simulation, −4 % compared to 2015B for eastern China, where the decrease is most pronounced (Fig. 8c). In addition, ammonium columns have decreased by about 2 % over eastern China in the 2013C simulation compared to 2013A. The spatial anti-correlation observed between NH_{4(p)}⁺ and NH_{3(g)} is explained by less production of NH_{4(p)}⁺ from the NH_{3(g)} due to emission modifications. It is interesting to note that the NO_x and SO₂ emission reduction impacts on NH_{3(g)} and NH_{4(p)}⁺ columns can differ depending on the area (see Fig. S8 in the Supplement). In the 2015B simulation the ammonium production decreases most strongly in the Sichuan Province and Chongqing municipality (black rectangle, Fig. 8b), and there is a large-scale decrease around SO₂ sources (Fig. 2a). In the 2015C simulation, we can observe a larger decrease in the northern China region (red rectangle, Fig. 8c), where ammonium nitrate is produced with freshly formed HNO_{3(g)}, following Reaction (R8):



These relationships between sources and impacted regions are explained by the time needed for SO_{4(p)}²⁻ and NO_{3(p)}⁻ formation from SO₂ and NO_x precursors of several days and several hours to 1 d respectively. Thus, SO₂ to H₂SO₄ oxidation is more a regional process (unless it happens in the aqueous phase), whereas nitrate formation proceeds closer to the sources. However, for conditions of weak atmospheric dispersion or high humidity, as in the Sichuan Province and Chongqing municipality (located in an orographic depression), sulfates can be formed closer to sources. In this area, sulfates contribute as much as 32 % to the PM column, compared to 23 % over eastern China, SO_{4(p)}²⁻ (Fig. S8 in the Supplement).

3.2.2 Impact of SO₂ and NO_x emission reduction on pSNA production

The emission update leads to changes in the pSNA production, as already suggested by changes in the NH_{4(p)}⁺ columns. As SO₂ columns are strongly decreased (−40 % for 2015B; −41 % for 2015C), less ammonium (−14 % for 2015B; −18 % for 2015C) is formed in the particulate phase from the reaction with sulfuric acid (Reactions R1, R2, R3), and more NH_{3(g)} remains in the gas phase (+36 % for 2015B; +51 % for 2015C; see Figs. 9 and S9 in the Supplement). These higher NH_{3(g)} levels trigger a larger conversion (Reaction R8) of gaseous nitric acid into particulate NO_{3(p)}⁻ (+33 %; Figs. 9 and S10). In the 2015C simulation, the increase of NO_{3(p)}⁻ is less notable (+11 % because NO_x emissions decrease), and ammonia columns show a bigger increase than in 2015B over eastern China. On the whole, the reduction of emissions in the 2015B and 2015C simulations leads to a reduction of the total pSNA PM production (e.g. −16.6 % and −18.5 %, respectively, compared to 2015A), mainly promoted by the reduction of SO₂ emissions. Among PM components, a decrease of the sulfate molar fraction is observed (from 32 % to 29 %), and the NO_{3(p)}⁻ fraction increases, from 12 % to 15 %, while the NH_{4(p)}⁺ molar fraction stays stable around 56 % (21 % of pSNA PM mass). It can also be observed in these scenarios that for similar emissions and meteorology, TA = [NH_{3(g)}] + [NH_{4(p)}⁺] decreases in 2015B and slightly more in 2015C (Fig. S9 in the Supplement). The reasons are that ammonia is favoured compared to 2015A and that deposition is a more efficient process for ammonia.

3.2.3 NH_{3(g)}: a key role in the regulation of PM pollution as a limiting reactant

The regime of nitrate production, limited either by NH_{3(g)} or HNO_{3(g)}, can be evaluated using the G_{ratio} calculation (Ansari and Pandis, 1999; Pinder et al., 2008; G_{ratio} two-dimensional distribution is displayed in Fig. S10 in the Supplement). A negative value of the G_{ratio} indicates that TA low

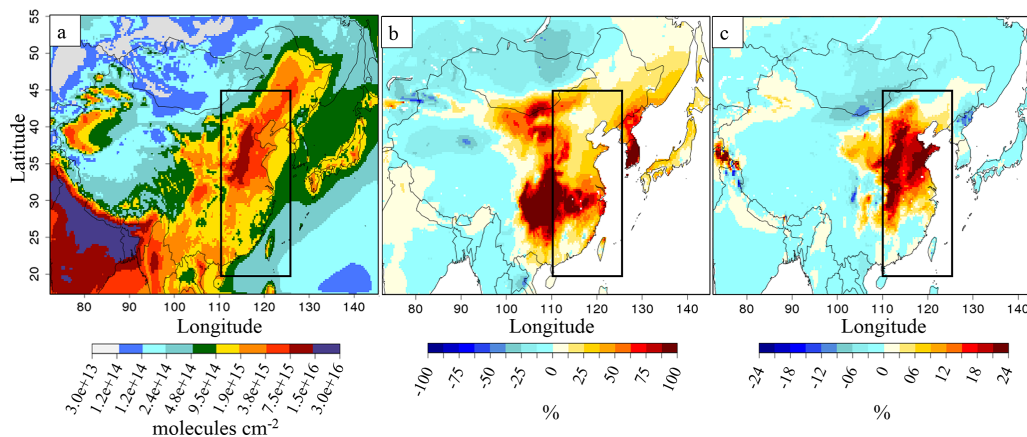


Figure 7. (a) Ammonia columns (molecules cm^{-2}) for the 2015A simulation, (b) relative differences of ammonia columns between the simulations from 2015B and 2015A, in %, and (c) additional relative differences of ammonia columns between the simulations from 2015C minus 2015B compared to 2015A, in %. The black rectangle is for the eastern China domain.

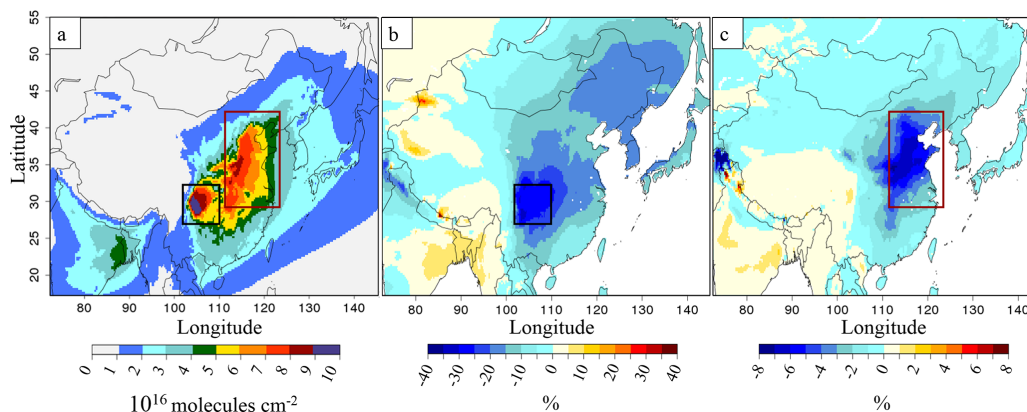


Figure 8. (a) Ammonium columns (molecules cm^{-2}) for the 2015A simulation, (b) relative differences of ammonium columns between the simulations from 2015B and 2015A, in %, and (c) additional relative differences of ammonium columns between the simulations from 2015C minus 2015B compared to 2015A, in %. The black rectangle is for the Sichuan Province and Chongqing municipality, and the red rectangle is for northern China.

availability is strongly limiting nitrate production in competition to sulfate production, while a value in the range [0–1] indicates a TA-limited situation, and a value greater than 1 indicates that TA is in excess. In our study, as we want to know if we are facing a cation- or anion-limited regime, we chose to adapt the G_{ratio} to a cation / anion ratio (C/A_{ratio}), easier to interpret with no negative values, as follows:

$$C/A_{\text{ratio}} = \frac{\text{TA}}{\text{TN} + 2 \times [\text{SO}_{4(\text{p})}^{-2}]}, \quad (\text{R9})$$

where $\text{TA} = [\text{NH}_{3(\text{g})}] + [\text{NH}_{4(\text{p})}^+]$ is the total ammonia reservoir, and $\text{TN} = [\text{HNO}_{3(\text{g})}] + [\text{NO}_{3(\text{p})}^-]$ is the total nitrate reservoir. When the C/A_{ratio} is in the range [0–1] $\text{mol}_C \text{mol}_A^{-1}$, we are in a cation-limited regime, and when C/A_{ratio} is larger than 1 $\text{mol}_C \text{mol}_A^{-1}$, we are in an anion-limited regime. The

C/A_{ratio} has been calculated for columns, partial columns (up to 1 km) and for the surface, and results for various scenarios are displayed in Fig. 10. It should be noted that the ratio has an important month-to-month variability (normalized standard deviation of 10 %), as displayed in Fig. 10d for the East Asia region. Note that $\text{NH}_{4(\text{p})}^+$ is the only cation considered here; the potential role of other cations is discussed below. Figure 10d presents the C/A_{ratio} for the simulations considering several altitudes, at the surface, the 0–1 km column and the CHIMERE total column. C/A_{ratio} is highly variable depending on the vertical layer considered, with a significantly lower C/A_{ratio} considering a total column than a reduced layer close to the surface, a statement also observable in Paulot et al. (2016). Close to sources (surface), more ammonium will be present, leading often in the 2015B and

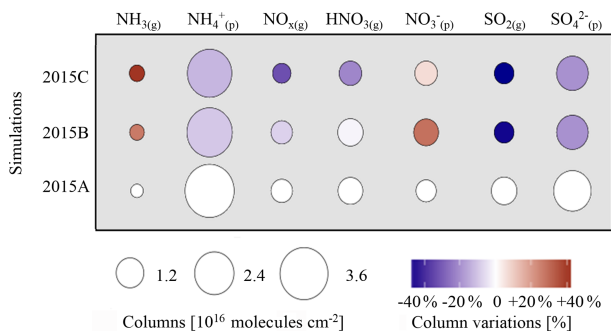


Figure 9. Gaseous and particulate inorganic species variation for the eastern China region. Disk surfaces are proportional to column amount (molecules cm⁻²), and colours indicate relative evolution rates compared to 2015A (%).

2015C scenarios to an excess cation regime. If we consider vertical columns, as 0–1 km for example (which corresponds roughly to the atmospheric mixing layer), the ratio is below 1 (anion-limited regime) for most months. Considering the entire tropospheric column, a cation-limited regime occurs for all months. This decrease in the C/A_{ratio} with altitude can be explained by the fact that sulfuric and nitric acid need some time to be formed from precursor gases, while the major cation NH_4^+ is directly emitted at the surface. In addition, a slight increase of C/A_{ratio} is observed from January to May, when a maximum is reached. It is probably due to the increase of NH_3 emissions during this period compared to decreasing SO_2 and NO_x emissions (Fig. S1 in the Supplement). Then, for July and August, the cation/anion ratio drops. This change is not explained by a change in emissions because these months display emissions close to June emissions. A probable explanation is the following: first, July and August correspond to the monsoon season, with higher water vapour content and solar radiation over the study area. This leads to enhanced OH radical concentrations (up to twice the annual mean) to form $\text{H}_2\text{SO}_{4(\text{g})}$ and $\text{HNO}_{3(\text{g})}$. Second, higher water content induces more $\text{SO}_{2(\text{g})}$ dissolution in the aqueous phase. Both factors induce more $\text{SO}_{4(2-\text{p})}^{2-}$ formation (Stockwell and Calvert, 2016), which decreases the C/A_{ratio} .

C/A_{ratio} two-dimensional distributions are shown in Fig. 10 for the 0–1 km column. The atmosphere is mainly cation-limited over eastern China in the 2015A initial scenario. As expected from the decrease in anion precursor emissions (i.e. SO_2 and NO_x), the C/A_{ratio} is higher in the 2015C and 2015B simulations than in the 2015A simulation, as for example in the Sichuan Province and Chongqing municipality (black square in Fig. 10b) and northern China regions (red rectangle in Fig. 10c). Reductions of SO_2 and NO_x emissions led to a C/A_{ratio} increase and change in the limitation regime close to $\text{NH}_{3(\text{g})}$ source areas (Fig. 10a and c). In the future, emission reductions for NH_3 and anion precursors should reduce $\text{NH}_4\text{NO}_{3(\text{p})}$ and $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_{4(\text{p})}$ formation, re-

ducing observed PM levels, which was already suggested in Fu et al. (2017). It should also be noted that cations such as Ca^{2+} or Mg^{2+} (from dust or anthropogenic emissions) are not included in CHIMERE chemistry. They could induce a bias in our analysis, underestimating the C/A_{ratio} . Nevertheless, we can reasonably assume here that the $\text{NH}_{4(\text{p})}^+$ molar content is generally much higher than Ca^{2+} and Mg^{2+} content. A study by Li et al. (2013) with measurements in Beijing (from September 2006 to August 2007) shows that in winter, when the lowest $\text{NH}_{4(\text{p})}^+$ concentrations are met, the $\text{NH}_{4(\text{p})}^+$ content (about $0.5 \mu\text{mol m}^{-3}$) still exceeds 3 times the ($\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$) amount (about $0.15 \mu\text{mol m}^{-3}$). Another recent study measuring soluble ions of $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing shows a large excess of $\text{NH}_{4(\text{p})}^+$ compared to Ca^{2+} or Mg^{2+} in summer and winter 2014 (Chen et al., 2017). Still, not taking into account this chemistry for mineral cation species can lead to simulated cation-limited situations instead of a cation-excess situation for restricted times of the year and areas, when the ratio reaches values close to 1.

3.3 Time evolution of inorganic PM and precursor species between 2011 and 2015

The combined impacts of meteorology and emission reductions on gaseous and particulate species are shown in Fig. 11 using simulations 2011A, 2013C and 2015C including meteorology and updated emissions for the three corresponding years. The time evolution between 2011 and 2015 is qualitatively similar to that presented in the previous section for emission changes alone. The impact of changing meteorology is to damp the negative changes of pSNA (Sect. 3.1, Figs. 5 and S11 in the Supplement present two-dimensional distribution of pSNA changes) and the positive changes in $\text{NH}_{3(\text{g})}$ due to emission reductions. As a result, in our simulations, $\text{NH}_{3(\text{g})}$ columns increased by as much as +14 % in 2013 and by 41 % in 2015 over eastern China, as compared to 2011, combining both meteorological and emission changes.

3.4 Evaluation against $\text{PM}_{2.5}$ surface measurements

The evolution of surface $\text{PM}_{2.5}$, induced by changes in SO_2 and NO_x emissions in our simulations, is evaluated here against independent daily $\text{PM}_{2.5}$ surface measurements. Scores for normalized bias, normalized RMSE (NRMSE), ratios of model and observed variability and Pearson correlation coefficients are displayed in Table 3. We used data from the U.S. Department of State Air Quality Monitoring Program over China (e.g. in Beijing, Chengdu, Guangzhou, Shanghai and Shenyang; <http://www.stateair.net/>, last access: 5 October 2018), for the years 2013 and 2015. For the year 2011, data are available only for Beijing, so this year was discarded. We present results for updated inventories (simulations 2013C and 2015C). We also present changes between simulations 2013A and 2015A and 2013C and 2015C in Table 3. The $\text{PM}_{2.5}$ values measured in Chinese

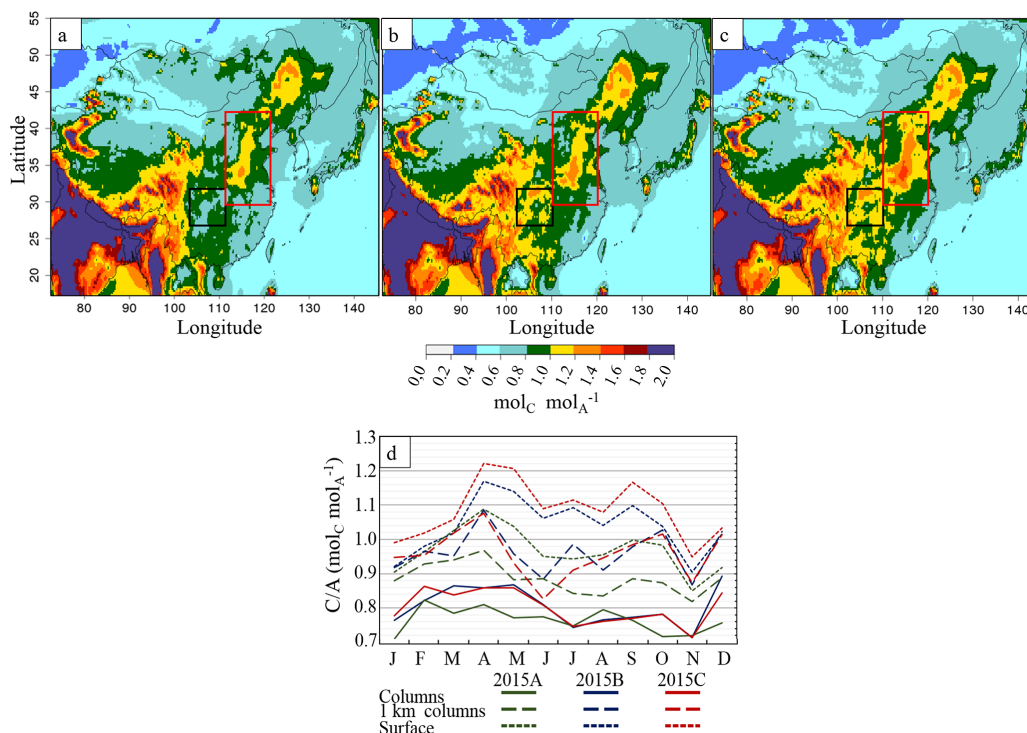


Figure 10. Partial column (0–1 km) cation/anion ratio ($\text{mol}_C \text{mol}_A^{-1}$) over China for the simulations (a) 2015A, (b) 2015B and (c) 2015C and (d) monthly variation of C/A_{ratio} over eastern China. Full lines represent ratios derived from columns (up to 12 km), dashed lines represent ratios derived from the 0–1 km column and dotted lines represent ratios derived from surface concentrations. Black rectangles represent central China, and red rectangles northern China.

cities show large amplitudes, ranging from 0 to $500 \mu\text{g m}^{-3}$, and CHIMERE correctly represents both these amplitudes and the strong day-to-day variability of $\text{PM}_{2.5}$ surface concentrations, as illustrated by good correlation coefficients (Pearson's coefficient averaging 0.7) between time series and a ratio of standard deviations close to unity (except for Shenyang; Table 3). Our 2013C and 2015C simulations overestimate average $\text{PM}_{2.5}$ concentrations for four cities (Beijing, Shanghai, Guangzhou and Chengdu) and underestimate them for Shenyang (bias = -13%). For the Beijing, Shanghai, Guangzhou and Chengdu stations, we observe a slight decrease of $\text{PM}_{2.5}$ means (-4.3 , -2.2 , -1.1 and $-11.5 \mu\text{g m}^{-3}$) between our reference simulations (2013A and 2015A) and simulations with modified inventories (2013C and 2015C). This means that updating the emissions improves agreement with observations by reducing biases and errors (NRMSE). We also find a slight decrease at Shenyang station ($-1.1 \mu\text{g m}^{-3}$), making the already negative bias slightly worse. The strongest improvement is observed in Chengdu (central China), an area where inorganic PM mainly depends on sulfate and ammonium.

$\text{PM}_{2.5}$ observations show a decrease from 2013 to 2015 for Beijing, Chengdu, Guangzhou and Shanghai of -19% , -20% , -30% and -15% respectively and an increase for

Shenyang of $+18\%$. These changes are not fully reproduced by CHIMERE, possibly because emissions have been modified for NO_x and SO_2 only and not for organic or other inorganic species. In CHIMERE, $\text{PM}_{2.5}$ decreases are calculated for Beijing and Chengdu (-3.6% and -10% respectively), no significant change is simulated for Guangzhou and increases are modelled for Shanghai and Shenyang ($+12.5\%$ and $+3.7\%$ respectively). All changes are calculated filtering simulation results according to the availability of measurements. The increase in Shenyang can be explained by a lack of data for a significant fraction of the sampling periods between 2013 and 2015 (229 d available against 341). In Shanghai, the modelled increase is not explained by $\text{PM}_{2.5}$ inorganic components, which present a $+1\%$ trend at surface, but is due to the effects of meteorological conditions on other $\text{PM}_{2.5}$ components, which present larger increases.

3.5 Correspondences between CHIMERE simulations and IASI $\text{NH}_{3(g)}$ column observations

Data retrieved from the IASI instrument allow us to compare satellite observations to simulations and to verify the simulated trends. Figure 12 shows the spatial distributions of ammonia over China for IASI and CHIMERE for 2011, 2013

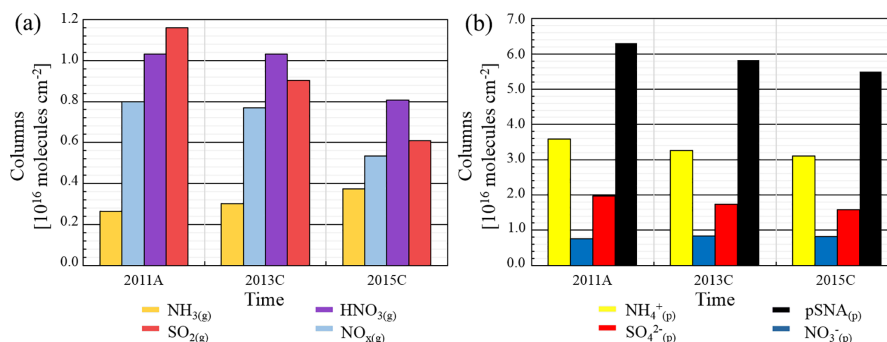


Figure 11. (a) Evolution of NO_{x(g)}, SO_{2(g)}, NH_{3(g)} and HNO_{3(g)} tropospheric columns (molecules cm⁻²) for 2011A, 2013C and 2015C over the eastern China domain. (b) Evolution of NH_{4⁺(p)}, SO_{4²⁻(p)}, NO_{3⁻(p)} and pSNA tropospheric columns (molecules cm⁻²) from 2011 to 2015 over the eastern China domain.

Table 3. Daily PM_{2.5} comparison between model and measurements for 2013C and 2015C simulations. “Changes” corresponds to differences between 2013C and 2015C comparisons on the one hand and 2013A and 2015A on the other (i.e. bias_{changes} = bias_C – bias_A). Bias and NRMSE are normalized using the measurement mean. *R* corresponds to the Pearson correlation coefficient and *n* represents the number of available daily means.

| Stations | PM _{2.5} measurement mean (μg m ⁻³) | PM _{2.5} model mean (μg m ⁻³)/ changes (μg m ⁻³) | Bias (%) / changes (%) | NRMSE (%) / changes (%) | $\frac{\sigma_{\text{CHIMERE}}}{\sigma_{\text{obs}}}$ | <i>R</i> / changes | <i>n</i> |
|-----------|--|---|------------------------|-------------------------|---|--------------------|----------|
| Beijing | 92.3 | 115.7 / - 4.3 | +25 % / - 05 % | 64 % / - 03 % | 1.0 | 0.77 / = | 730 |
| Shanghai | 55.3 | 68.6 / - 2.2 | +24 % / - 04 % | 57 % / - 04 % | 1.1 | 0.76 / = | 723 |
| Guangzhou | 47.6 | 59.8 / - 1.1 | +26 % / - 02 % | 64 % / - 01 % | 1.0 | 0.54 / = | 719 |
| Chengdu | 83.8 | 127.6 / - 11.5 | +52 % / - 14 % | 71 % / - 12 % | 1.0 | 0.72 / + 0.03 | 687 |
| Shenyang | 74.0 | 64.4 / - 1.0 | - 13 % / - 02 % | 61 % / - 01 % | 0.6 | 0.68 / + 0.02 | 570 |

and 2015, presenting a similar spatial pattern and a good correlation ($\sim R_{\text{IASI-CHIMERE}} = 0.91$ over eastern China) and an acceptable daily correlation ($\sim R_{\text{IASI-CHIMERE}} = 0.55$). Nevertheless, simulations underestimate ammonia levels with a bias of -39 %, mainly because of the comparison over the sea area. As described above, IASI observations show a +65 % increase between 2011 and 2015. Interestingly, our model results between 2011A and 2015C, taking into account emission and meteorology changes, show a rather similar difference of +49 % of NH_{3(g)} (when CHIMERE simulations are sampled on daily IASI observations’ availability). For the intermediate year 2013, the IASI satellite observed a +15 % increase in NH_{3(g)} columns, while CHIMERE simulations showed a +24 % increase in the 2013C scenario (again sampled on IASI observations). Conversely, simulations with unmodified emissions only show small changes for both years (+6 % in 2013A; -3 % in 2015A). Liu et al. (2018) estimated a +35 % NH₃ column increase over the North China Plain, between 2011 and 2015, taking account of SO₂ emissions decreases, a value close to our result for this case (+27 % between 2011A and 2015B). This suggests that the observed increase for ammonia by IASI can be explained to a large extent by changes in atmospheric chemistry induced by SO₂ but also by NO_x emission reductions, with

less ammonium present within inorganic aerosol and more ammonia remaining in the gas phase.

4 Conclusion

Sensitivity tests with the regional chemistry-transport model CHIMERE have been performed to understand the evolution of the NH_{3(g)} atmospheric content over China, with an increase observed by IASI measurements over eastern China of +15 % between 2011 and 2013 and of +65 % between 2011 and 2015. One of the main results of this study is that the strong observed changes in the NH_{3(g)} atmospheric content are mainly associated with a reduction of anthropogenic SO₂ emissions and, to a lesser extent, with a reduction in anthropogenic NO_x emissions and with interannual changes in meteorological conditions. With SO₂ emissions reduced by 24 % between 2011 and 2013 and by 37.5 % between 2011 and 2015, and an additional NO_x emission reduction of -21 % between 2011 and 2015, CHIMERE reproduces an increase in NH_{3(g)} of +24 % between 2011 and 2013 and of +49 % between 2011 and 2015 (when filtering simulations according to IASI observations’ availability). Also, it should be recalled that NH₃ emissions have remained constant in our scenarios, as no precise information on NH₃ emission

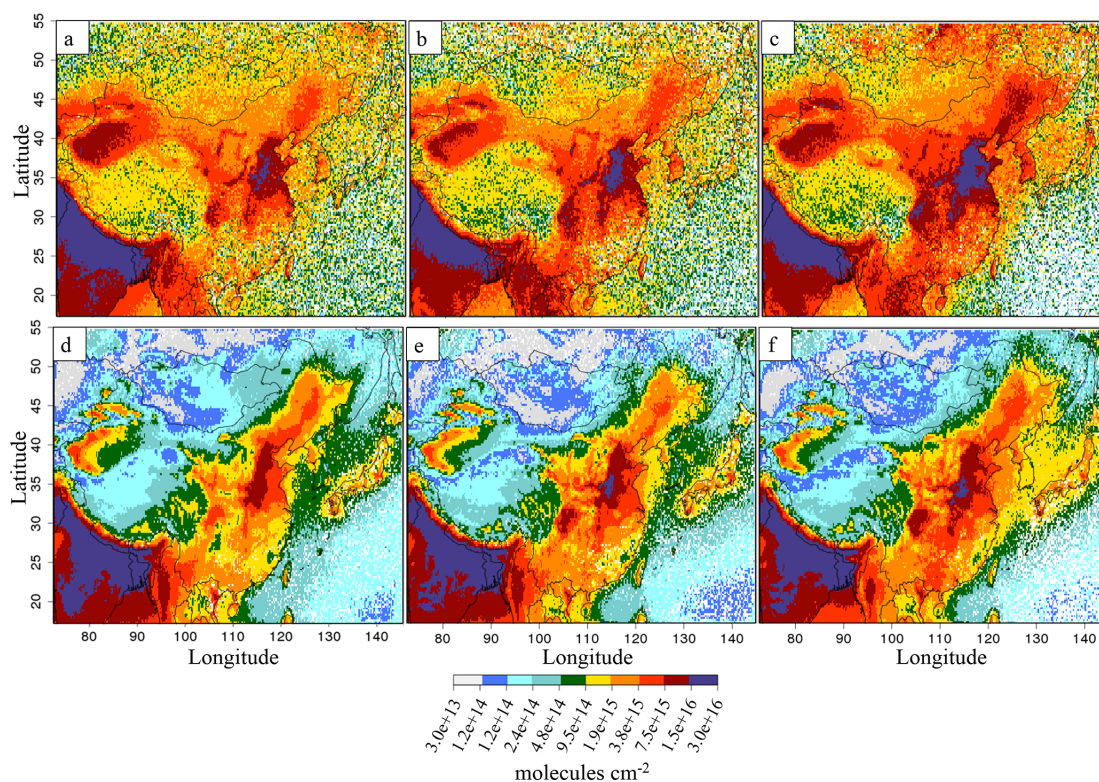


Figure 12. Ammonia column evolution for IASI (a, b, c) and CHIMERE (d, e, f) in (a) 2011, (b) 2013, (c) 2015, (d) 2011A, (e) 2013C and (f) 2015C (molecules cm⁻²).

changes was available to us, but Zhang et al. (2018) suggested a 7 % increase between 2011 and 2015, which could partly explain the difference between IASI and CHIMERE increases. SO₂ and NO_x emission reductions have been inferred from OMI satellite observations, so our study is to a large degree constrained by observations. Simulations then allow us to state that observed decreases in SO₂ and NO_x columns and increases in NH₃ are mutually consistent. The cation / anion ratio shows an interesting height dependence. It is below unity for total columns, above unity for surface and near unity for the first kilometre of the atmosphere. The latter is probably most relevant for inorganic aerosol formation affecting air quality. Thus it appears that in addition to SO₂ and NO_x reductions, NH₃ emission reductions would also be efficient to reduce inorganic aerosol formation. The reduction of SO₂ and NO_x emissions also leads to a decrease of inorganic pSNA production (−14 % in the tropospheric columns between 2011 and 2015), which is a major contributor to PM_{2.5} concentrations (about 50 % of surface PM_{2.5} and 33 % of column PM). A shift from sulfate to nitrate is simulated due to stronger SO₂ reduction than NO_x reduction, with more ammonia thus available for nitrate formation. Finally, based on our work, it appears that the changes in gaseous precursors must be updated each year to understand changes in PM. Cur-

rent bottom-up inventories are not updated quickly enough. The method we used to derive inventories for 2013 and 2015 from satellite data provides an interesting first estimation but presents uncertainties when pollutants are transported or eliminated. It would be interesting to use inverse methods operating in synergy between regional CTM and atmospheric observations (i.e. DECSO; Mijling and Zhang, 2013) to better represent NO_x and SO₂ emissions. Inverse modelling systems could also be used to quantify NH₃ emissions, as IASI space-based NH₃ observations have shown considerable potential to reveal the high spatio-temporal variability of NH₃ emissions (Fortems-Cheiney et al., 2016).

Data availability. Data are available by contacting the author.

Supplement. The supplement related to this article is available online at: <https://doi.org/10.5194/acp-19-6701-2019-supplement>.

Author contributions. ML and AFC designed the experiments, and ML carried them out. LC, CC, PFC and MVD were responsible for the satellite retrieval algorithm development and the processing of the IASI NH₃ dataset. GS prepared meteorological and emission

data. AFC prepared emission update and satellite data. ML adapted the model code, performed the simulations and prepared the paper. All authors contributed to the text and interpretation of the results and reviewed the paper.

Competing interests. The authors declare that they have no conflict of interest.

Acknowledgements. We acknowledge the free use of tropospheric NO₂ column data from the OMI sensor from <http://www.temis.nl/index.php> (last access: 3 May 2019). The thesis of Mathieu Lachatre was funded by Sorbonne Universités, and this study was funded by PolEASIA ANR project under the allocation ANR-15-CE04-0005. This work was granted access to the HPC resources of TGCC under the allocation A0030107232 made by GENCI. PM_{2.5} measurements were provided by the U.S. Department of State Air Quality Monitoring Program, Mission China. IASI is a joint mission of EUMETSAT and the Centre National d'Études Spatiales (CNES, France). The authors acknowledge the Aeris data infrastructure (<https://www.aeris-data.fr/>, last access: 3 May 2019) for providing access to the IASI Level-2 NH₃ data used in this study. The French scientists are grateful to CNES and Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) for financial support. The research in Belgium is also funded by the Belgian State Federal Office for Scientific, Technical and Cultural Affairs and the European Space Agency (ESA Prodex IASI Flow project).

Review statement. This paper was edited by Kostas Tsigaridis and reviewed by two anonymous referees.

References

- Ansari, A. S. and Pandis, S. N.: Prediction of multicomponent inorganic atmospheric aerosol behavior, *Atmos. Environ.*, **33**, 745–757, [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(98\)00221-0](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(98)00221-0), 1999.
- Banzhaf, S., Schaap, M., Wichink Kruit, R. J., Denier van der Gon, H. A. C., Stern, R., and Builtjes, P. J. H.: Impact of emission changes on secondary inorganic aerosol episodes across Germany, *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 11675–11693, <https://doi.org/10.5194/acp-13-11675-2013>, 2013.
- Bauer, S. E., Tsigaridis, K., and Miller, R.: Significant atmospheric aerosol pollution caused by world food cultivation, *Geophys. Res. Lett.*, **43**, 5394–5400, <https://doi.org/10.1002/2016GL068354>, 2016.
- Beirle, S., Boersma, K., Platt, U., Laurence, M., and Wagner, T.: Megacity emissions and lifetimes of nitrogen oxides probed from space, *Science*, **333**, 1737–1739, <https://doi.org/10.1002/2016GL068354>, 2011.
- Chen, Q., Song, S., Stefan, H., Yuei-An, L., Zhu, W., and Jingyang, Z.: Assessment of ZTD derived from ECMWF/NCEP data with GPS ZTD over China, *GPS Solut.*, **15**, 415–425, <https://doi.org/10.1007/s10291-010-0200-x>, 2010.
- Chen, R., Cheng, J., Lv, J., and Wu, L.: Comparison of chemical compositions in air particulate matter during summer and winter in Beijing, China, *Environ. Geochem. Hlth.*, **39**, 913–921, <https://doi.org/10.1007/s10653-016-9862-9>, 2017.
- Clarisse, L., Clerbaux, C., Dentener, F., Hurtmans, D., and Coheur, P. F.: Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations, *Nat. Geosci.*, **2**, 479–483, <https://doi.org/10.1038/ngeo551>, 2009.
- Cohen, A. J., Brauer, M., Burnett, R., Anderson, H. R., Frostad, J., Estep, K., Balakrishnan, K., Brunekreef, B., Dandona, L., Dandona, R., Feigin, V., Freedman, G., Hubbell, B., Jobling, A., Kan, H., Knibbs, L., Liu, Y., Martin, R., Morawska, L., Pope, C. A., Shin, H., Straif, K., Shaddick, G., Thomas, M., van Dingenen, R., van Donkelaar, A., Vos, T., Murray, C. J., and Forouzanfar, M. H.: Estimates and 25-year trends of the global burden of disease attributable to ambient air pollution: an analysis of data from the Global Burden of Diseases Study 2015, *The Lancet*, **389**, 1907–1918, [https://doi.org/10.1016/S0140-6736\(17\)30505-6](https://doi.org/10.1016/S0140-6736(17)30505-6), 2017.
- de Foy, B., Lu, Z., and Streets, D.: Satellite NO₂ retrievals suggest China has exceeded its NO_x reduction goals from the twelfth Five-Year Plan, *Sci. Rep.-UK*, **6**, 35912, <https://doi.org/10.1038/srep35912>, 2016.
- Ding, J., Miyazaki, K., van der A, R. J., Mijling, B., Kurokawa, J.-I., Cho, S., Janssens-Maenhout, G., Zhang, Q., Liu, F., and Levelt, P. F.: Intercomparison of NO_x emission inventories over East Asia, *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 10125–10141, <https://doi.org/10.5194/acp-17-10125-2017>, 2017.
- Fortems-Cheiney, A., Dufour, G., Hamaoui-Laguél, L., Foret, G., Siour, G., Van Damme, M., Meleux, F., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Clarisse, L., Favez, O., Wallasch, M., and Beekmann, M.: Unaccounted variability in NH₃ agricultural sources detected by IASI contributing to European spring haze episode, *Geophys. Res. Lett.*, **43**, 5475–5482, <https://doi.org/10.1002/2016GL069361>, 2016.
- Fu, X., Wang, S., Xing, J., Zhang, X., Wang, T., and Hao, J.: Increasing Ammonia Concentrations Reduce the Effectiveness of Particle Pollution Control Achieved via SO₂ and NO_x Emissions Reduction in East China, *Environ. Sci. Tech. Lett.*, **4**, 221–227, <https://doi.org/10.1021/acs.estlett.7b00143>, 2017.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 3181–3210, <https://doi.org/10.5194/acp-6-3181-2006>, 2006.
- Hedegaard, G. B., Brandt, J., Christensen, J. H., Frohn, L. M., Geels, C., Hansen, K. M., and Stendel, M.: Impacts of climate change on air pollution levels in the Northern Hemisphere with special focus on Europe and the Arctic, *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 3337–3367, <https://doi.org/10.5194/acp-8-3337-2008>, 2008.
- Hoyle, C. R., Fuchs, C., Järvinen, E., Saathoff, H., Dias, A., El Haddad, I., Gysel, M., Coburn, S. C., Tröstl, J., Bernhammer, A.-K., Bianchi, F., Breitenlechner, M., Corbin, J. C., Craven, J., Donahue, N. M., Duplissy, J., Ehrhart, S., Frege, C., Gordon, H., Höppel, N., Heinritzi, M., Kristensen, T. B., Molteni, U., Nichman, L., Pinterich, T., Prévôt, A. S. H., Simon, M., Slowik, J. G., Steiner, G., Tomé, A., Vogel, A. L., Volkamer, R., Wagner, A. C., Wagner, R., Wexler, A. S., Williamson, C., Winkler, P. M., Yan, C., Amorim, A., Dommen, J., Curtius, J., Gallagher, M. W., Flanagan, R. C., Hansel, A., Kirkby, J., Kulmala, M., Möhler, O., Stratmann, F., Worsnop, D. R., and Baltensperger, U.: Aqueous phase oxidation of sulphur dioxide by ozone in cloud droplets, *At-*

- mos. Chem. Phys., 16, 1693–1712, <https://doi.org/10.5194/acp-16-1693-2016>, 2016.
- Huang, X., Song, Y., Li, M., Li, J., Huo, Q., Cai, X., Zhu, T., Hu, M., and Zhang, H.: A high-resolution ammonia emission inventory in China, *Global Biogeochem. Cy.*, 26, GB1030, <https://doi.org/10.1029/2011GB004161>, 2012.
- Janssens-Maenhout, G., Crippa, M., Guizzardi, D., Dentener, F., Muntean, M., Pouliot, G., Keating, T., Zhang, Q., Kurokawa, J., Wankmüller, R., Denier van der Gon, H., Kuenen, J. J. P., Klimont, Z., Frost, G., Darras, S., Koffi, B., and Li, M.: HTAP_v2.2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11411–11432, <https://doi.org/10.5194/acp-15-11411-2015>, 2015.
- Jingjing, L., Jianping, H., Bin, C., Tian, Z., Hongru, Y., Hongchun, J., Zhongwei, H., and Beidou, Z.: Comparisons of PBL heights derived from CALIPSO and ECMWF reanalysis data over China, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 153, 102–112, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2014.10.011>, 2015.
- Kang, Y., Liu, M., Song, Y., Huang, X., Yao, H., Cai, X., Zhang, H., Kang, L., Liu, X., Yan, X., He, H., Zhang, Q., Shao, M., and Zhu, T.: High-resolution ammonia emissions inventories in China from 1980 to 2012, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2043–2058, <https://doi.org/10.5194/acp-16-2043-2016>, 2016.
- Koukoulis, M. E., Theys, N., Ding, J., Zyrichidou, I., Mijling, B., Balis, D., and van der A, R. J.: Updated SO₂ emission estimates over China using OMI/Aura observations, *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 1817–1832, <https://doi.org/10.5194/amt-11-1817-2018>, 2018.
- Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Janssens-Maenhout, G., Fukui, T., Kawashima, K., and Akimoto, H.: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in ASIA (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11019–11058, <https://doi.org/10.5194/acp-13-11019-2013>, 2013.
- Landrigan, P. J., Fuller, R., Acosta, N. J., Adeyi, O., Arnold, R., Basu, N., Baldé, A. B., Bertollini, R., Bose-O'Reilly, S., Boufford, J. I., Breyse, P. N., Chiles, T., Mahidol, C., Coll-Seck, A. M., Cropper, M. L., Fobil, J., Fuster, V., Greenstone, M., Haines, A., Hanrahan, D., Hunter, D., Khare, M., Krupnick, A., Lanphear, B., Lohani, B., Martin, K., Mathiasen, K. V., McTeer, M. A., Murray, C. J., Ndahimananjara, J. D., Perera, F., Potočnik, J., Preker, A. S., Ramesh, J., Rockström, J., Salinas, C., Samson, L. D., Sandilya, K., Sly, P. D., Smith, K. R., Steiner, A., Stewart, R. B., Suk, W. A., van Schayck, O. C., Yadama, G. N., Yumkella, K., and Zhong, M.: The Lancet Commission on pollution and health, *The Lancet*, 391, 10119, [https://doi.org/10.1016/S0140-6736\(17\)32345-0](https://doi.org/10.1016/S0140-6736(17)32345-0), 2017.
- Lelieveld, J., Evans, J. S., Fnais, M., Giannadaki, D., and Pozzer, A.: The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale, *Nature*, 525, 367–371, <https://doi.org/10.1038/nature15371>, 2015.
- Li, X., Zhou, W., and Ouyang, Z.: Forty years of urban expansion in Beijing: What is the relative importance of physical, socio-economic, and neighborhood factors?, *Appl. Geogr.*, 38, 1–10, <https://doi.org/10.1016/j.apgeog.2012.11.004>, 2013.
- Liu, F., Beirle, S., Zhang, Q., van der A, R. J., Zheng, B., Tong, D., and He, K.: NO_x emission trends over Chinese cities estimated from OMI observations during 2005 to 2015, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 9261–9275, <https://doi.org/10.5194/acp-17-9261-2017>, 2017.
- Liu, M., Huang, X., Song, Y., Xu, T., Wang, S., Wu, Z., Hu, M., Zhang, L., Zhang, Q., Pan, Y., Liu, X., and Zhu, T.: Rapid SO₂ emission reductions significantly increase tropospheric ammonia concentrations over the North China Plain, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 17933–17943, <https://doi.org/10.5194/acp-18-17933-2018>, 2018.
- Mailler, S., Menut, L., Khvorostyanov, D., Valari, M., Couvidat, F., Siour, G., Turquety, S., Briant, R., Tuccella, P., Bessagnet, B., Colette, A., Létinois, L., Markakis, K., and Meleux, F.: CHIMERE-2017: from urban to hemispheric chemistry-transport modeling, *Geosci. Model Dev.*, 10, 2397–2423, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-2397-2017>, 2017.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J.-L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., and Vivanco, M. G.: CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling, *Geosci. Model Dev.*, 6, 981–1028, <https://doi.org/10.5194/gmd-6-981-2013>, 2013.
- Mijling, B., van der A, R. J., and Zhang, Q.: Regional nitrogen oxides emission trends in East Asia observed from space, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 12003–12012, <https://doi.org/10.5194/acp-13-12003-2013>, 2013.
- Nenes, A., Pilinis, C., and Pandis, S.: ISORROPIA: A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols, *Aquat. Geochem.*, 4, 123–152, 1998.
- Owens, R. G. and Hewson, T.: ECMWF Forecast User Guide, <https://doi.org/10.21957/m1cs7h>, 2018.
- Palmer, P. I., Abbot, D. S., Fu, T.-M., Jacob, D. J., Chance, K., Kurosu, T. P., Guenther, A., Wiedinmyer, C., Stanton, J. C., Pilling, M. J., Pressley, S. N., Lamb, B., and Sumner, A. L.: Quantifying the seasonal and interannual variability of North American isoprene emissions using satellite observations of the formaldehyde column, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 111, D12315, <https://doi.org/10.1029/2005JD006689>, 2006.
- Paulot, F., Ginoux, P., Cooke, W. F., Donner, L. J., Fan, S., Lin, M.-Y., Mao, J., Naik, V., and Horowitz, L. W.: Sensitivity of nitrate aerosols to ammonia emissions and to nitrate chemistry: implications for present and future nitrate optical depth, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 1459–1477, <https://doi.org/10.5194/acp-16-1459-2016>, 2016.
- Petetin, H., Sciare, J., Bressi, M., Gros, V., Rosso, A., Sanchez, O., Sarda-Estève, R., Petit, J.-E., and Beekmann, M.: Assessing the ammonium nitrate formation regime in the Paris megacity and its representation in the CHIMERE model, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10419–10440, <https://doi.org/10.5194/acp-16-10419-2016>, 2016.
- Pinder, R. W., Gilliland, A. B., and Dennis, R. L.: Environmental impact of atmospheric NH₃ emissions under present and future conditions in the eastern United States, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L12808, <https://doi.org/10.1029/2008GL033732>, 2008.
- Pozzer, A., Tsimpidi, A. P., Karydis, V. A., de Meij, A., and Lelieveld, J.: Impact of agricultural emission reductions on fine-particulate matter and public health, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 12813–12826, <https://doi.org/10.5194/acp-17-12813-2017>, 2017.

- Riddick, S., Ward, D., Hess, P., Mahowald, N., Massad, R., and Holland, E.: Estimate of changes in agricultural terrestrial nitrogen pathways and ammonia emissions from 1850 to present in the Community Earth System Model, *Biogeosciences*, 13, 3397–3426, <https://doi.org/10.5194/bg-13-3397-2016>, 2016.
- Schaap, M., van Loon, M., ten Brink, H. M., Dentener, F. J., and Builtjes, P. J. H.: Secondary inorganic aerosol simulations for Europe with special attention to nitrate, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 857–874, <https://doi.org/10.5194/acp-4-857-2004>, 2004.
- Schiferl, L. D., Heald, C. L., Van Damme, M., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Nowak, J. B., Neuman, J. A., HERNON, S. C., Roscioli, J. R., and Eilerman, S. J.: Interannual variability of ammonia concentrations over the United States: sources and implications, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 12305–12328, <https://doi.org/10.5194/acp-16-12305-2016>, 2016.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N.: *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, 2nd edn., John Wiley & Sons, New York, USA, 2006.
- Stockwell, W. R. and Calvert, J. G.: The mechanism of the HO–SO₂ reaction, *Atmos. Environ.*, 17, 2231–2235, [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(83\)90220-2](https://doi.org/10.1016/0004-6981(83)90220-2), 2016.
- Szopa, S., Foret, G., and Menut, L., and Cozic, A.: Impact of large scale circulation on European summer surface ozone: consequences for modeling, *Atmos. Environ.*, 43, 1189–1195, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.10.039>, 2008.
- Van Damme, M., Whitburn, S., Clarisse, L., Clerbaux, C., Hurtmans, D., and Coheur, P.-F.: Version 2 of the IASI NH₃ neural network retrieval algorithm: near-real-time and reanalysed datasets, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 4905–4914, <https://doi.org/10.5194/amt-10-4905-2017>, 2017.
- Van Damme, M., Clarisse, L., Whitburn, S., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Clerbaux, C., and Coheur, P.-F.: Industrial and agricultural ammonia point sources exposed, *Nature*, 564, 99–103, <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0747-1>, 2018.
- Wang, Y., Zhang, Q. Q., He, K., Zhang, Q., and Chai, L.: Sulfate-nitrate-ammonium aerosols over China: response to 2000–2015 emission changes of sulfur dioxide, nitrogen oxides, and ammonia, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2635–2652, <https://doi.org/10.5194/acp-13-2635-2013>, 2013.
- Warner, J. X., Dickerson, R. R., Wei, Z., Strow, L. L., Wang, Y., and Liang, Q.: Increased atmospheric ammonia over the world’s major agricultural areas detected from space, *Geophys. Res. Lett.*, 44, 2875–2884, <https://doi.org/10.1002/2016GL072305>, 2017.
- Whitburn, S., Van Damme, M., Clarisse, L., Turquety, S., Clerbaux, C., and Coheur, P. F.: Doubling of annual ammonia emissions from the peat fires in Indonesia during the 2015 El Niño, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 11007–11014, <https://doi.org/10.1002/2016GL070620>, 2016.
- Wu, J., Kong, S., Wu, F., Cheng, Y., Zheng, S., Yan, Q., Zheng, H., Yang, G., Zheng, M., Liu, D., Zhao, D., and Qi, S.: Estimating the open biomass burning emissions in central and eastern China from 2003 to 2015 based on satellite observation, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 11623–11646, <https://doi.org/10.5194/acp-18-11623-2018>, 2018.
- Zhang, L., Chen, Y., Zhao, Y., Henze, D. K., Zhu, L., Song, Y., Paulot, F., Liu, X., Pan, Y., Lin, Y., and Huang, B.: Agricultural ammonia emissions in China: reconciling bottom-up and top-down estimates, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 339–355, <https://doi.org/10.5194/acp-18-339-2018>, 2018.
- Zheng, B., Tong, D., Li, M., Liu, F., Hong, C., Geng, G., Li, H., Li, X., Peng, L., Qi, J., Yan, L., Zhang, Y., Zhao, H., Zheng, Y., He, K., and Zhang, Q.: Trends in China’s anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 14095–14111, <https://doi.org/10.5194/acp-18-14095-2018>, 2018.

Air quality degradation by mineral dust over Beijing, Chengdu and Shanghai Chinese megacities

*« Dans la vie, rien n'est à craindre,
tout est à comprendre. »*

MARIE SKLODOWSKA-CURIE

Sommaire

| | |
|--|-----|
| Résumé de l'article | 127 |
| VII.1 Abstract | 129 |
| VII.2 Introduction | 129 |
| VII.3 Materials and Method | 131 |
| VII.3.1 The CHIMERE CTM | 131 |
| VII.3.2 AOD data set and their use for model evaluation comparison methods | 133 |
| VII.3.3 Surface measurements data set and comparison methods | 134 |
| VII.4 Results and discussion | 135 |
| VII.4.1 Dust emissions and evaluation | 135 |
| VII.4.2 Dust contribution to urban Chinese particle pollution | 138 |
| VII.5 Conclusion | 145 |

Résumé de l'article

AU même titre que la pollution gazeuse, la charge atmosphérique de particules est devenue un important problème de santé publique en Chine qui contraint les autorités à prendre des mesures de réduction des émissions liées aux activités humaines [cf. section II.5.2]. Cependant, comme exposé dans l'introduction, de larges déserts sont présents en Chine et sont associés à de fortes émissions de poussières minérales désertiques dans l'atmosphère. Cette contribution d'origine naturelle peut impacter les concentrations de particules observées dans les zones peuplées, et de ce fait, doit être documentée pour faciliter l'établissement des politiques efficaces de réduction de la pollution. Dans cet article, le modèle CHIMERE est utilisé pour représenter les émissions de poussières minérales depuis les régions désertiques asiatiques, comme le Taklamakan et le désert de Gobi, ainsi que l'impact des aérosols désertiques sur la pollution atmosphérique des grandes villes chinoises. L'étude se concentre sur 3 années, 2011, 2013 et 2015.

Sur cette période, la moyenne annuelle des émissions modélisées de poussières est de 283 Mt.yr^{-1} , une valeur en accord avec celles produites par d'autres récentes études [i.e. 293 Mt.yr^{-1} , [Huneus et al., 2011](#)], principalement émises au printemps [51 % de la masse] et depuis la région du Taklamakan [70 % de la masse]. Les épaisseurs optiques à 500 nm de l'instrument MODIS sont utilisées pour évaluer la capacité du modèle CHIMERE à reproduire les émissions de poussières minérales. Pour les régions désertiques, 95 % des émissions de particules sont en effet d'origine désertique, et les épaisseurs optiques sont alors principalement pilotées par cette composante désertique de l'aérosol. La confrontation du modèle aux observations a permis d'identifier une correspondance satisfaisante entre les variations journalières des épaisseurs optiques des simulations et des produits MODIS, avec pour les différentes régions désertiques des coefficients de corrélation [Pearson] de 0.74, 0.54, 0.66 et 0.51 pour la région du désert du Taklamakan, du désert du Gurban, du Nord de la Chine et enfin du désert de Gobi [ordre déterminé par émissions décroissantes]. Les émissions de « dust » se concentrent sur de courts évènements de forte intensité, avec 54 % de la masse de poussières minérales émise lors de 5 % du temps et 87 % en 20 % du temps.

D'autre part, la représentation des PM par CHIMERE a été évaluée à partir de l'information fournie par différents réseaux de mesures dans les villes de Pékin, Chengdu et Shanghai. L'intérêt porté à ces trois mégapoles s'explique par leurs situations géographiques contrastées [i.e. respectivement au Nord, au Centre et à l'Est de la Chine], ainsi que par leurs populations, présentant respectivement les 2nd, 6^{ème} et 1^{ère} populations des aires urbaines chinoises. Les comparaisons journalières [données du modèle filtrées selon la disponibilité des données de mesures] des $\text{PM}_{2.5}$ entre le modèle et les mesures aux stations pour 2013 et 2015 [ainsi que 2011 pour la station de Pékin uniquement] montrent un coefficient de corrélation de 0.75, 0.76 et 0.72 respectivement pour les villes de Pékin, Chengdu et Shanghai. CHIMERE surestime légèrement les concentrations de $\text{PM}_{2.5}$ pour les villes de Pékin et Shanghai, avec des biais de +19 % et +24 %. Le modèle, pour Chengdu, présente cependant une surestimation plus importante des valeurs de $\text{PM}_{2.5}$ avec un biais de +52 %.

En moyenne annuelle, les poussières minérales participent à hauteur de 6.6 % [Pékin], 9.5 % [Chengdu] et 9.3 % [Shanghai] aux PM_{10} , mais ces apports sont plus conséquents au printemps, atteignant 18.9 %, 24.1 % et 18.3 %. Les villes de Pékin et de Shanghai sont plus impactées par des émissions se produisant depuis le désert de Gobi, quand la ville Chengdu semble, quant à elle, plus impactée par celles du désert du Taklamakan. Cependant, ces résultats intégrés sur de longues périodes ne permettent pas de rendre compte du caractère sporadique des émissions de poussières. Nous avons alors comparé les fréquences des contributions de « dust » aux PM_{10} supérieures à 25 % des

concentrations journalières à Pékin, Chengdu et Shanghai pour :

- ▶ l'ensemble de la période simulée.
- ▶ les 25 % des journées avec les concentrations en PM_{10} les plus élevées.

En considérant l'année complète, il apparaît que les aérosols désertiques ne participent pas significativement plus aux événements de pollution [en considérant les 25 % des journées les plus polluées] qu'à l'ensemble de la période considérée, à Pékin [0.04 contre 0.07], Chengdu [0.14 contre 0.11] et Shanghai [0.15 contre 0.08], les événements les plus importants étant principalement contrôlés par la pollution d'origine anthropique. Cependant, en considérant l'unique saison du printemps, il apparaît que les « dust » pilotent de façon plus significative les événements de pollution pour les 3 villes étudiées : Pékin [0.22 contre 0.18], Chengdu [0.52 contre 0.31] et Shanghai [0.43 contre 0.19]. Un constat commun avec la fraction $PM_{2,5}$, mais pour laquelle cependant les contributions des poussières restent moindres.

Finalement, il apparaît que les poussières ont une contribution à la pollution limitée sur l'année, avec des apports aux PM_{10} inférieures à 10 %. Toutefois, leur impact est plus significatif en considérant les épisodes de pollution au printemps, en étant impliqué dans 22 %, 52 % et 43 % des événements respectivement pour Pékin, Chengdu et Shanghai.

L'article sera prochainement soumis sur la revue ACP. Les figures additionnelles à l'article et citées dans l'article [Numéroté Figure A] se trouvent en annexes section D, page XXIII.

Article

Air Quality Degradation by Mineral Dust over Beijing, Chengdu and Shanghai Chinese Megacities

Mathieu Lachatre ^{1,*}, Gilles Foret ¹, Benoit Laurent ¹, Guillaume Siour ¹, Juan Cuesta ¹,
Gaëlle Dufour ¹, Fan Meng ², Wei Tang ², Qijie Zhang ³ and Matthias Beekmann ¹

¹ Laboratoire Inter-Universitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA), UMR CNRS 7583, CNRS, Université Paris Est Créteil et Université de Paris, Institut Pierre Simon Laplace, 94000 Créteil, France;

Gilles.Foret@lisa.u-pec.fr (G.F.); Benoit.Laurent@lisa.u-pec.fr (B.L.); guillaume.siour@lisa.u-pec.fr (G.S.);

Juan.Cuesta@lisa.u-pec.fr (J.C.); gaelle.dufour@lisa.u-pec.fr (G.D.); Matthias.Beekmann@lisa.u-pec.fr (M.B.)

² Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Atmospheric Environment Institute, Beijing 100012, China; mengfan@craes.org.cn (F.M.); tangwei@craes.org.cn (W.T.)

³ Yunyiran Kinton Technology Co. Ltd., Nanchang 330000, China; jerry_eshk@163.com

* Correspondence: mathieu.lachatre@lmd.polytechnique.fr

† Current address: LMD/IPSL, École Polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, ENS, PSL Université, Sorbonne Université, CNRS, 91128 Palaiseau, France.

Received: 14 May 2020; Accepted: 29 June 2020; Published: 2 July 2020



Abstract: Air pollution in Chinese megacities has reached extremely hazardous levels, and human activities are responsible for the emission or production of large amounts of particulate matter (PM). In addition to PM from anthropogenic sources, natural phenomena, such as dust storms over Asian deserts, may also emit large amounts of PM, which lead episodically to poor air quality over Chinese megacities. In this paper, we quantify the degradation of air quality by dust over Beijing, Chengdu and Shanghai megacities using the three dimensions (3D) chemistry transport model CHIMERE, which simulates dust emission and transport online. In the first part of our work, we evaluate dust emissions using Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) and Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) satellite observations of aerosol optical depth, respectively, in the visible and the thermal infrared over source areas. PM simulations were also evaluated compared to surface monitoring stations. Then, mineral dust emissions and their impacts on particle composition of several Chinese megacities were analyzed. Dust emissions and transport over China were simulated during three years (2011, 2013 and 2015). Annual dust contributions to the PM₁₀ budget over Beijing, Chengdu and Shanghai were evaluated respectively as 6.6%, 9.5% and 9.3%. Dust outbreaks largely contribute to poor air quality events during springtime. Indeed it was found that dust significantly contribute for 22%, 52% and 43% of spring PM₁₀ events (for Beijing, Chengdu and Shanghai respectively).

Keywords: mineral dust; air quality; modeling

1. Introduction

Chinese atmospheric pollution is a major health problem with more than 82% of Chinese population living in environment exceeding particulate matter (PM_{2.5}) concentrations of 75 µg m⁻³ [1] (Chinese National Standard GB 3095-2012 for PM_{2.5} in an urban environment, 24H mean: 75 µg m⁻³; annual mean: 35 µg m⁻³). During haze pollution events, PM_{2.5} levels have even exceeded 75 µg m⁻³ in 74 China major cities (800 million inhabitants) for 69% of days in January 2013—reaching a daily concentration of 772 µg m⁻³ for PM_{2.5} [2]. A [3] recent study has aggregated chemical speciation from several Chinese cities and report that particle's composition is dominated by organic matter (26.0%), sulfate (17.7%), mineral dust (11.8%), nitrate (9.8%), ammonium (6.6%) and elemental carbon

(6.0%). The People's Republic of China has seen its population exposed to strongly increasing pollution levels until the first decade of the 21st century. As a consequence, daily sunshine duration has been reduced [4] and premature mortality went up from 0.9 million in 2000 to more than 1.2 million (+33%) in 2010 [5], while population increased only by 6% in the same time. Indeed, China has observed an important growth in several economic sectors such as transport increasing from 24 millions vehicles in 2003 to 78 millions vehicles in 2010 [6], energy production with an increase of 250% between 2000 and 2010 [7], construction and other sectors. To lower anthropogenic pollutants emissions, China has developed its environmental policy and tightened air quality standards, leading to a decrease of PM_{2.5} after 2007 [8] or latter for some components, as of NO_x after 2012 [9]. Besides, China comprises extended arid areas, as the Taklimakan desert (270 × 10³ km²), or the Gobi desert (1.3 × 10⁶ km²) that naturally emit PM. As a result, Chinese air pollution is a mix of pollutants that come from a multitude of sources. Pollution sources will differently affect Chinese cities depending on their locations, their geographical situations or their meteorological situations.

Mineral dust aerosol from deserts represents about 40% of total aerosol mass emitted each year into the atmosphere [10]. Global dust emission estimates range from 1000 Mt.year⁻¹ to 5000 Mt.year⁻¹ [11,12]. The authors of [11] compile several model studies and estimate a global emission median value of 1572 Mt.year⁻¹. It is thus the most important aerosol component in term of mass for the global atmosphere. Mineral dust aerosol is characterized by a very high spatial and temporal variability, due to the episodic character of emission events associated to meteorological conditions like surface wind speed, and surface characteristics like protrusion elements. Dust aerosols must also be considered and study for their direct and indirect radiative impacts [13,14]. A previous study [15] has estimated that Chinese and Mongolian annual desert dust emissions between 1996 and 2001 are 240 Mt.year⁻¹ (+/- 130 Mt.year⁻¹) contributing to between 10 to 25% of global dust emissions. For spring time only, [16] found an emission of 252 Mt.year⁻¹. Mineral dust lifetime in the atmosphere can vary from few hours to several days, [17,18] depending on meteorological conditions, and mineral dust particles can impact air quality of Chinese cities. Thus, dust can be transported over large areas and impact cities PM load: a one-year study, based on 2000, from [19] resulted in an annual dust average in PM_{2.5} fraction of 13 µg m⁻³ in Beijing and 7 µg m⁻³ in Shanghai (corresponding to about 12% of PM_{2.5} load in both cities). It shows high seasonal variability, with higher values in spring. In this study, maximum daily means dust content reaches 40 µg m⁻³ in Beijing and 30 µg m⁻³ in Shanghai. Recent studies have used Lagrangian modeling to determine the dust contribution to PM_{2.5} and PM₁₀ in Chinese cities or study dust vertical diffusion and transport pathways [20,21]. Reference [20] has simulated dust plume over East China region and focused on a case study in spring 2015 which shows a large contribution of mineral elements to PM_{2.5} (34% of Ca²⁺). The authors of [21] consider that dust plumes from Taklimakan are most commonly transported around 1.7 km above sea level.

In this work, we simulated mineral dust aerosol emissions from deserts and their transport across China. From these simulations, mineral dust impact on particulate matter load in several Chinese cities compared to anthropogenic pollution was studied. Three years were simulated (2011, 2013 and 2015) to study inter-annual variability and seasonal variations. In this study, we first evaluated the accuracy of modeled dust emissions, using satellite Aerosol Optical Depth (AOD) observations over source regions, then, we evaluated the regional simulated PM concentration with in situ measurements. Finally, the model capacity to represent PM chemical speciation on a daily basis and during several years allowed us to investigate the part of dust to PM average and peak burdens in several cities. It was also possible to determine dust burden from each desert area for each studied city. The results depend on the model ability to reproduce as correctly as possible for a long-term period the various geophysical processes that control Chinese cities air quality, from mineral dust emissions, transport to anthropogenic pollutants modeling. Thus, the CHIMERE model allows us to propose quantitative results and study the frequencies of pollution events controlled by dust transported to Chinese megacities, which brings additional information to the existing literature.

Beijing, Chengdu and Shanghai are respectively the 2nd, 6th and 1st most populated cities in China, with 22.5, 14.5 and 24.5 million of inhabitants. These three cities also present different geographic situations, Beijing is located in Northern China (39°54′13″ N; 116°23′15″ E), Chengdu in Central China (30°39′00″ N; 104°04′00″ E) and Shanghai in Eastern China (31°13′56″ N; 121°28′09″ E). Beijing and Shanghai are in a similar monsoon system, with strong rainfall within summer season. Chengdu is located in a basin surrounded by plateau and high mountains (Tianshan, Qinling to the north) and climate, especially wind, is more continental and quite different. This induces different exposure to mineral dust pollution from sources mainly located in Western and Northern China (Cities location displayed later in the document). This choice is similar to cities selection made in previous work which reviewed observations of PM composition for representative Chinese megacities [22].

In Section 2, the paper first presents the material and method used in the study. Model and observations are described, then evaluation methods are explained. In Section 3, results are presented, starting with the characterization of mineral dust emissions, and then evaluating its contribution to urban particle pollution for the selected cities. Section 4 gives conclusions.

2. Materials and Method

2.1. The CHIMERE Chemistry Transport Model

In this work, we used the CHIMERE 3D regional chemistry transport model (CTM) ([23,24], 2014b version) run over a $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ regular grid. The domain is chosen large enough to include the Taklimakan desert on the West, Japan on the East and China's northern and southern territories (72°30′ E–145° E; 17°30′ N–55° N, simulation domain is displayed Figure 2). The domain is composed by 290 (longitude) \times 150 (latitude) grid cells and 17 vertical layers, from the ground to 200 hPa. Vertical layer thicknesses are increasing with altitude, 8 layers lie within the first 2 km of altitude. Advection is resolved using the Van Leer [25] second-order slope-limited transport scheme. Meteorological forcing is generated by ECMWF-IFS meteorological forecasts [26] and then interpolated to hourly resolution.

In our simulations, aerosols were distributed into 10 size-classes (also denoted as bins), from 0.05 μm to 40 μm . 6 bins that correspond to $\text{PM}_{2.5}$, 2 bins describe PM between 2.5 μm and 10 μm and finally 2 describe PM coarser than 10 μm . The model's AOD is calculated using a Fast-J photolysis scheme [27] and considering optical properties (Mie scattering, absorption) for each bin and each aerosols species.

2.1.1. Anthropogenic and Biogenic Aerosols Modeling

EDGAR-HTAP V2.2 emission inventories [28] based on 2010 were used to generate anthropogenic emissions (gaseous species and particulate matter). NO_x and SO_2 emissions for 2013 and 2015 have been derived from remote sensing observation (SO_2 and NO_x columns from OMI instrument), with a method used and evaluated in [29], leading to decreases of 37% (SO_2) and 21% (NO_x) between 2011 and 2015, similar to recent inventory trends [30]. Biogenic emissions are generated by the MEGAN-v2 model [31]. Climatological boundary and initial conditions for dust are obtained from the GOCART global model [17] and from the LMDZ-INCA global model for others species [32,33].

Composition and phase state of inorganic aerosol is tabulated by using the ISORROPIA V2006 module [34]. It calculates the partitioning of $\text{NH}_{3(g)}/\text{NH}_{4(p)}^+$, $\text{HNO}_{3(g)}/\text{NO}_{3(p)}^-$, and $\text{H}_2\text{SO}_{4(p)}/\text{HSO}_{4(p)}^-/\text{NO}_{3(p)}^-$, from the initial gaseous and particulate precursors content and meteorological conditions (temperature, relative humidity). Organic and inorganic species gas-phase chemistry is described with the reduced MELCHIOR2 mechanism [35], and the equilibrium for organic species between gas and particle phase is calculated using [36,37].

In this study, PM chemical speciation is divided into 8 different species (from 13 in our simulations): Dust (only representing the desert and natural fraction), $\text{NH}_{4(p)}^+$ (ammonium), $\text{SO}_{4(p)}^{2-}$ (sulfate), $\text{NO}_{3(p)}^-$ (nitrate), AMPP (Anthropogenic Mineral Primary Particulate matter—including soil

dust emitted from anthropogenic activities such as construction), OM (primary and secondary Organic Matter from biogenic and anthropogenic sources), BC (Black Carbon) and SALT (sea salt).

2.1.2. Mineral Dust Aerosol Modeling

The CHIMERE model dust modeling was evaluated in a multi model comparison on Northern Chinese areas [38]. In this study, CHIMERE is the only model used and evaluate without need in tuning dust concentrations and which showed good performances.

Mineral dust emissions are a threshold phenomenon, which occurs when the wind friction force exercised on soil particle aggregates is higher than forces maintaining these aggregates on the ground. When a threshold wind friction velocity is exceeded, the wind kinetic energy will mobilize soil aggregates into a horizontal flux, a process called saltation. During saltation, soil aggregates go rolling along the surface, and then, shocks between aggregates and soil will liberate fine soil material from aggregates, in a process called sandblasting. The dust emission calculation requires a soil properties database (roughness length, texture and soil aggregates size distribution) as developed in [39] for China. Saltation fluxes are defined in [40] and calculated as follows (Equation (1)):

$$F_h(D_p) = \frac{K\rho_{air}U^{*3}}{g} \left(1 - \frac{U_t^*}{U^*}\right) \left(1 + \frac{U_t^*}{U^*}\right)^2 \quad (1)$$

where U^* is the friction wind speed, U_t^* is the threshold friction wind speed, calculated following Marticorena and Bergametti (1995). K is constant with value equal to 1, ρ_{air} is the air density and the gravitational acceleration $g = 9.8 \text{ m.s}^{-2}$.

The sandblasting process and vertical emission fluxes were calculated in CHIMERE from a parameterization by [41], which calculates the emission fluxes for a given aerosol size distribution, following Equation (2) [40]:

$$F_{(v,m,i)}(D_p) = \sum_{k=1}^{Nclass} \frac{\pi\rho_p\beta p_i(D_{p,k})d_{m,i}^3}{6e_i} dF_h(D_p) \quad (2)$$

where $Nclass$ corresponds to the intervals of soil size distribution, p_i the relative fraction corresponding to $Nclass$, e_i is individual kinetic energy of aggregate, ρ_p is particle density and β an acceleration constant. We incorporated an optimization of emissions modeling, by adding a criterion on meteorological conditions. When the precipitation rate (inquired by ECMWF) is greater than $0.01 \text{ kg.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$, we assume an increase of binding energies in the soil that will inhibit the dust emissions for the next two hours.

Three dust size-distribution parameterizations based on a physical description of the emission processes are commonly used in models: [41–44], these parameterizations have been validated on a reduced set of data and the simulation of the dust size distribution remains uncertain mainly due to our ability to document correctly the soil properties at the emissions. The multi model evaluation [38] study included CHIMERE model with [41,43] parameterizations; finally the parameterization [41] was retained for their multi model comparison, due to better results. In our simulations [41,45] was used, about 15% of dust emissions were distributed into $\text{PM}_{2.5}$ (similar as [46]), 61% were distributed into the coarse fraction of PM_{10} excluding $\text{PM}_{2.5}$ ($\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10} = 0.20$), finally, 24% were distributed into a PM fraction with a diameter larger $10 \mu\text{m}$, a fraction, which is not always considered [47]. This slightly differs from the 9.8% distribution proposed by [43,47,48] for the mass distributed into the $\text{PM}_{2.5}$ which might results to higher AOD at 550 nm close to source regions (AOD at that wavelength being particularly sensitive to particles between $0.5 \mu\text{m}$ – $1 \mu\text{m}$ [49]). However, even if the chosen parameterization impacts the $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ ratio, the study mainly focus on the PM_{10} fraction (76% of total mass emitted in our case). The main issue to the $\text{PM}_{2.5,dust}/\text{PM}_{10,dust}$ distribution is finally the difference of transport behavior between the 2 particle range sizes, as the $\text{PM}_{2.5,dust}$ fraction is most

efficiently transported—the ratio increases to 0.32, 0.25 and 0.34 for Beijing, Chengdu and Shanghai respectively—which might induce an overestimation of $PM_{10,dust}$ mass.

CHIMERE model and modules are described in details in the [model documentation](#).

In our study, simulations were performed for 2011, 2013 and 2015, to study inter annual variability of dust emissions. The years 2011 and 2013 were chosen because numerous dust events have been observed for those years [50,51]. However, these years were not abnormally high in total dust emissions from deserts [52] or in mineral dust detected in cities [53].

2.1.3. Method to Determine Dust Origins in Cities

To determine the contribution of each area to dust load in target cities, we successively inhibited dust emissions from the various arid areas to tag dust desert origin (Equation (3)).

$$Contribution_{(n,i,t)} = \frac{(dust)_{(0,i,t)} - (dust)_{(n,i,t)}}{(dust)_{(0,i,t)}} \quad (3)$$

where $(dust)_{(0)}$ represents the baseline simulation in which emissions are included for all areas, n indicates computed simulations while inhibiting arid areas emissions, i pixel locations and t timestep. Simulations have been performed inhibiting one area at a time, and an additional simulation has been conducted by removing dust coming from outside the domain (i.e., boundary conditions) to evaluate their impact. This method will lead to some error in deposition process modeling, because deposition processes are non linear, depend on multiple factors such as meteorology, interactions between particles and soils with different types and properties [54,55]. The resulting underestimation for the dust concentration of 9% for Beijing, 8% for Chengdu and 13% for Shanghai and is considered as still acceptable.

2.2. AOD Data Set and Its Use for Model Evaluation

Satellite based information from the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) instrument, based on the NASA Terra satellite, was used to evaluate simulated dust emissions, as in [56]. The MODIS AOD product was largely used to study particulate pollution and decently compared to other AOD products as AERONET or MISR [52]. The MODIS instrument provides a global sampling of the Earth once a day, passing around 10:30 a.m. at local time. It provides information on atmospheric column content as a combined Dark Target and Deep Blue 550 nm AOD product, on a $1^\circ \times 1^\circ$ resolution grid. Additionally, we compared AODs derived at $10 \mu m$ from thermal infrared measurements of the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) onboard the MetOp-A satellite (overpass at 09:30 a.m. local time) with those calculated from simulated dust distributions by CHIMERE ([57], using a Mie code and Asian dust refractive indexes from). IASI-derived AODs in the thermal infrared are estimated with the newly-developed AEROIASI retrieval approach ([58,59], version 2). We used CHIMERE simulations at 10:00 a.m. local time for the comparisons of AODs derived by both MODIS and IASI.

We first focused on dust emissions areas, to evaluate the simulated emissions. We verified that changes brought by dust emission inhibition by rainfall have improved correspondences between MODIS and CHIMERE AODs. For the 4 arid sub regions, AOD is mostly controlled by mineral dust, as mineral dust emissions represent more than 90% of the mass of total pollutant emissions for these regions.

The large dust emitting areas were divided into 4 regions (Figure 1) and compared to MODIS observations: the so-called Taklimakan desert area, which includes Taklimakan, the Kumtaq desert and the Qaidam desert; the Gobi desert, mainly situated over Mongolia; the Gurban desert, situated between the Taklimakan and Gobi desert; the last and smallest area, which is also the closest to China's biggest cities, contains several Chinese deserts (Tengger desert, Ulan Buh desert, Qubqi desert and Mu Us sandy land) and is called hereafter the Northern China desert. This separation of arid areas into

smaller areas allows for a finer comparison between model and observations and a better analysis of dust variability; indeed the heterogeneity (especially in terms of emission frequencies) between each arid sub region is very important. The delimited sub-regions contain most of dust emissions, in our case, ~98% of total dust emissions. The sub regions are different with respect to their emission/surface ratio (Table 1). Taklimakan is the main dust source region with $1\,460 \times 10^3 \text{ km}^2$. The Northern China desert region is the smallest area ($260 \times 10^3 \text{ km}^2$), but is located closer to China East coast, and then to densely populated areas. The Mongolian Gobi desert is the largest area ($1\,630 \times 10^3 \text{ km}^2$), but is split into two areas, the Gurban Tunggut desert ($211 \times 10^3 \text{ km}^2$; Called Gurban desert hereafter) and the main part of the Mongolian Gobi desert ($1\,104 \times 10^3 \text{ km}^2$). It was necessary to split up the Mongolian Gobi Desert, as the temporality in dust emissions for the considered sub domains was different. Statistical results are presented in Table 2.

The AERONET network (AErosol RObotic NETwork, aeronet.gsfc.nasa.gov last consulted 09/30/2018) distributes observations of AOD for several wavelengths, and Ångström coefficients, with an hourly resolution for 2011, 2013 and 2015 in Beijing. Ångström coefficients provide information on particle size distribution in the atmospheric column, and can be calculated from AOD measurements at several wavelengths. Larger particles are characterized by lower Ångström coefficients and vice-versa. A value below 0.4 characterizes coarse particles such as dust [60].

Table 1. Mineral dust emissions from the different source regions, annual average calculated from 2011, 2013 ad 2015 simulations. Last column indicates the proportion of mineral dust emitted during the 5% and 20% strongest emitting days.

| Areas | Mean Emissions (Mt.y ⁻¹)/ Contribution | Standard dev. (Mt) | Emis/Surf (10 ⁻³ t.km ⁻²) | % of Mass Emitted in 5%/20% Strongest Days |
|---------------------|--|-----------------------|---|--|
| Taklimakan desert | 198 Mt/70 % | 15 Mt | 135 | 62%/94% |
| Mongolian G. desert | 65 Mt/23% | 7 Mt | 50 | 53%/90% |
| Northern C. desert | 18 Mt/ 7% | 6 Mt | 71 | 82%/99% |
| Total domain | 283 Mt/- | 28 Mt | - | 54%/87% |

2.3. Surface Measurements Data Set and Comparison Methods

CHIMERE PM modeling in populated areas was also evaluated against PM_{2.5} and PM₁₀ measurements from background stations close to cities, during spring periods and full years. We first wanted to assure that CHIMERE correctly models particulate pollution levels and variability in Beijing, Chengdu and Shanghai.

A comparison between model and hourly measurements from Chinese monitoring was performed from PM_{2.5} and PM₁₀ spring season for 2013 (March–April) and 2015 (March–April–May). We focused our comparisons on these periods, because of data availability and because the dust impact was expected to be the strongest in spring. PM measurements are from TEOM instruments [61].

We first used a method to evaluate the representativeness of monitoring stations, from [62] which uses the relative diurnal variability of SO₂ or O₃, in order to evaluate if the considered stations were representative of rural, suburban, urban or traffic environment. This was motivated by the need to compare model simulations to monitoring stations with a coherent spatial resolution representativeness and in our case, stations near sources are not eligible. Based on [62] method results, the Beijing, Chengdu and Shanghai stations are located in a rural environment.

Additionally, similar information is also available for an other 30 stations located in a rural environment and 3 located in a suburban environment, located in 21 different cities. These stations were used to evaluate model performances on various areas, but the results are not detailed. Station locations can be found in Figure S5 (in the supplementary section).

Model versus measurement comparisons were conducted on an hourly basis, sampling model output depending on measurements' availability. Simulated model concentrations are bi-linearly interpolated at stations' coordinates.

We also used data from the U.S. Embassy and consulates over 3 cities (e.g., in Beijing, Chengdu and Shanghai, in urban background environment) to evaluate the $PM_{2.5}$ correspondences over a larger period (2011, 2013 and 2015). $PM_{2.5}$ is measured on an hourly basis with a MetOne BAM 1020 instrument [63]. It has to be noted that 2011 measurements are available only for Beijing. Comparison methods applied are the same as for previous comparisons, but daily values are calculated from hourly data depending on measurements availability, and compared.

Statistical results of comparisons, such as normalized bias, Normalized Root Mean Square Error (NRMSE) and correlation mean are presented in Tables 3 and 4 for spring seasons in 2011, 2013 and 2015 and in Figure S2 (in supplement).

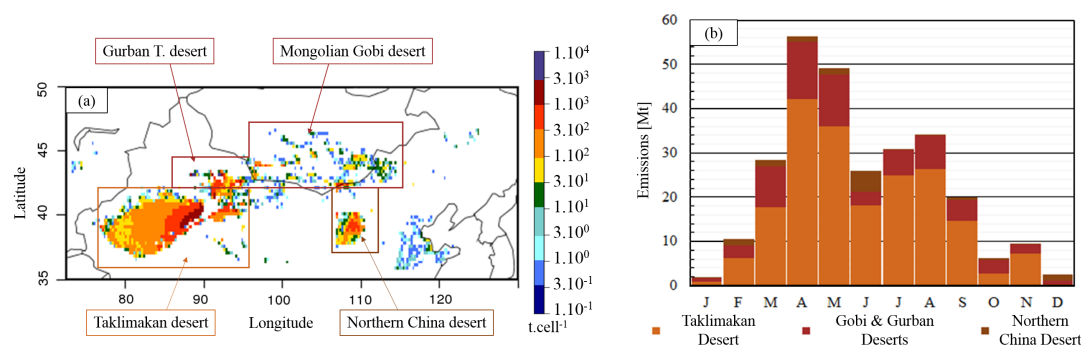


Figure 1. (a) Mean annual dust emissions from the main arid areas in Asia, simulated with CHIMERE for 2011, 2013 and 2015, in $t.cell^{-1}$. (b) Monthly emissions for the main arid areas in Mt.

3. Results and Discussion

3.1. Dust Emissions and Evaluation

3.1.1. Mineral Dust Emissions and Seasonality

Dust emissions yearly means for each desert areas are displayed in Table 1 and Figure 1a. The Taklimakan desert is the main dust source region with $198 Mt.year^{-1}$ emissions. We simulated $18.5 Mt.year^{-1}$ dust emissions from the Northern China Desert ($71 \times 10^{-3} t.km^{-2}$). From the Mongolian Gobi desert $65.2 Mt.year^{-1}$ were emitted ($50 \times 10^{-3} t.km^{-2}$). On average, total emissions reach about $283 Mt.year^{-1}$, with 51% of mass emitted within spring season, 31% emitted in summer, 12% emitted in fall and about 6% emitted in winter (Figure 1b). A result close to [11], who indicate a median value of $294 Mt.year^{-1}$ for Asia (standard deviation: $253 Mt.year^{-1}$), obtained from an ensemble with 15 models. Lower results were obtained in [15,64] with values respectively of 242 Mt (1996–2001 average; $\sigma = 131 Mt$) and 213 Mt (2006 and 2010 average). The CHIMERE dust spatial distribution also fits results found in more recent study as [65].

Dust emissions can strongly vary from one year to another: for 2011, 2013 and 2015 respectively 321, 255 and 274 Mt were emitted each year, which makes a 66 Mt difference between the highest and lowest value (23% of annual mean emissions). Compared to yearly emissions from (294 Mt, 242 Mt, 213 Mt [11,15,65]), we concluded that 2011 emissions are slightly higher than mean values for emissions, but 2013 and 2015 represent average years.

Mean spring emissions for the three selected years are 145 Mt, slightly higher than in [66] with 120 Mt (1960–2003 average), and lower than in [15] with values respectively of 182 Mt (1996–2001 average).

Table 1 presents the percent of dust emitted from the deserts during the 5% highest emitting days. For the Mongolian Gobi desert and the Northern China desert more than 80% of total dust mass is emitted during these days, which indicates intensive, but infrequent events. For the Taklimakan desert and the Gurban desert, more than 50% of mass is emitted during this subset of high emitting days, which still implies intense emissions events but with also more regular mineral dust emissions according to study of [15].

Figure 2 presents CHIMERE dust related 550 nm AOD over China (from ground to 200 hPa), for each season and, calculated from an 2011, 2013 and 2015 average. The largest AOD_{dust} values near emissions areas occur during spring, and are efficiently transported over China and overseas (Figure 2). During summer season (Figure 2) AOD values over deserts are still high, but transport to Eastern China is not pronounced. This is due to particular meteorological conditions during the summer monsoon season, with high rainfall and southerly winds unfavorable for advection of dust to Eastern China. For winter and fall season, modeled dust emissions are low, and thus dust related AODs are low over emissions areas.

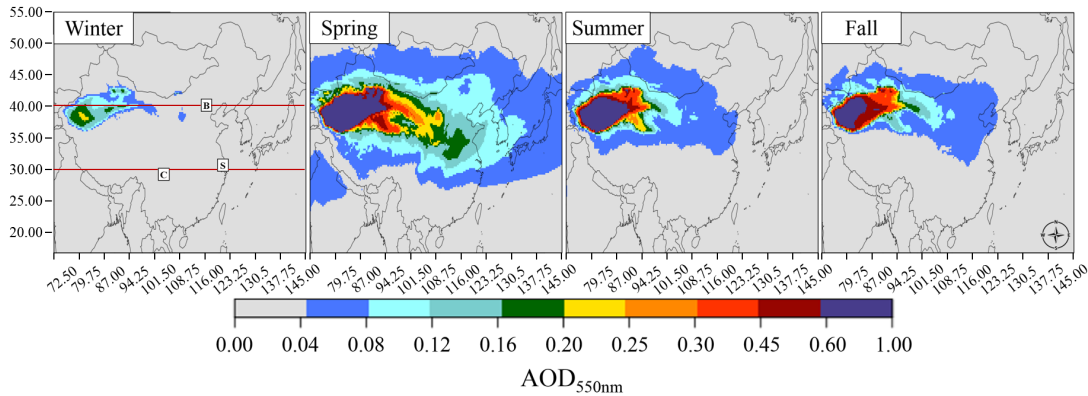


Figure 2. CHIMERE seasonal 550 nm Aerosol Optical Depth (AOD) associated to dust aerosols for Winter, Spring, Summer and Fall. Beijing (B), Chengdu (C) and Shanghai (S) locations are indicated on Winter map. Red lines on Winter map indicate 39.5° and 31.0° latitudes.

3.1.2. CHIMERE AOD Evaluation in Dust Emission Source Areas

Comparisons of CHIMERE AOD against MODIS AOD are gathered in Table 2, the table shows the temporal correspondences (day per day comparison of AOD values). We proceed to a comparison over the different areas for 2011, 2013 and 2015. Daily comparisons were conducted, calculating daily mean AOD for each sub domain with MODIS and CHIMERE outputs, filtering model data depending on MODIS pixels data availability. A daily sub-domain average value was accepted if at least 40% of MODIS data were available. Statistical information was calculated on time series (Bias(%), NRMSE(%)) and Pearson correlation coefficient (*r*) to estimate correspondences between model and satellite observations.

Table 2. Temporal correspondences between CHIMERE 550 nm AOD and MODIS 550 nm AOD, for 2011, 2013 and 2015 over main arid areas. NRMSE is the Normalized Root Mean Square Error. *r* is the correlation coefficient. *n* indicates number of daily mean value for sub domain.

| Areas | Bias (%) | NRMSE (%) | <i>r</i> | <i>n</i> |
|-----------------------|----------|-----------|----------|----------|
| Taklimakan desert | +50 % | 159% | 0.74 | 1014 |
| Mongolian Gobi desert | −31 % | 60% | 0.51 | 897 |
| Gurban desert | +64 % | 161% | 0.54 | 937 |
| Northern China desert | −10% | 65% | 0.66 | 862 |

Figure S1 (in supplements) represents the 550 nm AOD spatial distributions in a $1^\circ \times 1^\circ$ resolution for 2011, 2013 and 2015, as measured by the MODIS instrument and modeled by CHIMERE. Statistical results for AODs spatial distribution comparisons are resumed in Table S1 (in the supplementary section). A similar spatial pattern between simulation and observations can be noted corresponding to a Pearson correlation coefficient of 0.68. For most of the grid cells, CHIMERE AOD underestimates MODIS values ($bias = -40\%$), excepted over Taklimakan and Gurban desert areas, where AOD are overestimated ($bias = +50\%$ and $+64\%$ respectively). Thus, this overestimation could partly be induced by an excessive distribution of mineral dust mass into $PM_{2.5}$.

Indeed, CHIMERE AOD mainly overestimates MODIS AOD for the two most dust emitting areas, but a good daily correlation is obtained (Pearson correlation coefficient $r = 0.74$ for Taklimakan and $r = 0.54$ for the Gurban desert). This statement is also verified for the Mongolian Gobi desert and the Northern Desert ($r = 0.51$ and $r = 0.66$ respectively). These correlations show that the model reproduces at least part of the dust emissions events in a correct timing.

Comparisons for 2011, 2013 and 2015 separately have shown similar results for 2011 and 2013. As for Taklimakan example Pearson correlation coefficients equal $r_{2011} = 0.76$; $r_{2013} = 0.77$ bias equal $+59\%$ and $+51\%$. In 2015, Pearson correlation coefficient is 0.69 and bias equals $+39\%$. The same variability is found for Northern China desert area. For Mongolian Gobi desert, slightly more variability is found between the three years, as for Mongolian Gobi desert area, Pearson correlation coefficient equal $r_{2011} = 0.60$, $r_{2013} = 0.41$ and $r_{2015} = 0.50$, nonetheless bias is quite stable (-35% , -27% and -30%). A similar variability is found for the Gurban desert area.

Additional information is gained from AEROIASI retrieval, deriving AOD at $10\ \mu\text{m}$. CHIMERE AOD for dust at $10\ \mu\text{m}$ was calculated to compare with an additional independent instrument particularly sensitive to the coarse fraction of aerosols. In this analysis only focusing on dust, we have evaluated the model ability to simulate the occurrence of dust events (with AODs larger than 0.2). Frequencies (in %) of daily dust $10\ \mu\text{m}$ exceeding 0.2 in AEROIASI and CHIMERE are displayed on Figure 3, covering 2011, 2013 and 2015 period (used here for model evaluation, but not as a climatology). The AOD threshold is most likely to be exceeded in desert areas and both retrieval and model highlighted the same patterns. Similarly, as in the MODIS comparison, the Mongolian Gobi desert frequencies are underestimated and Taklimakan frequencies are slightly overestimated but well reproduced.

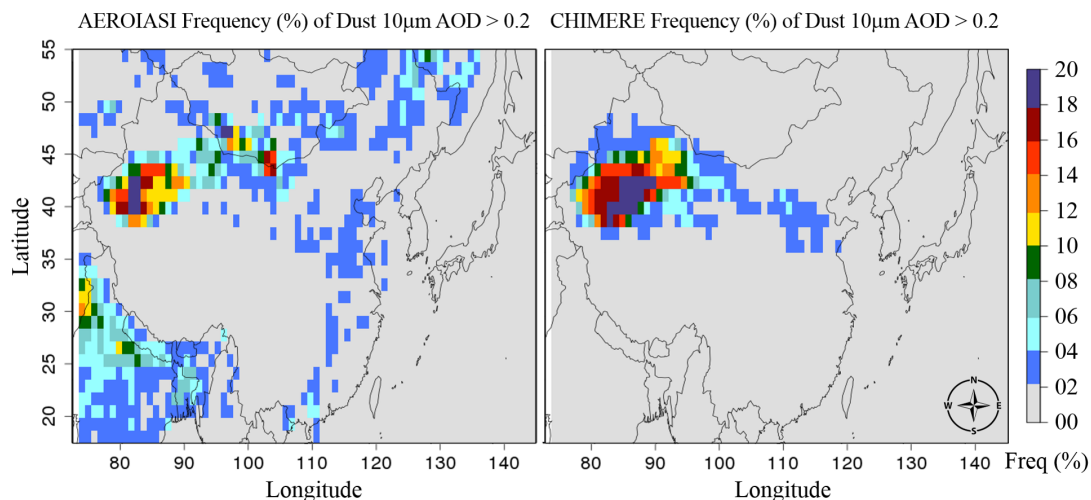


Figure 3. (left) AEROIASI Frequency (%) of daily dust $10\ \mu\text{m}$ AOD > 0.2 . (right) CHIMERE Frequency (%) of daily dust $10\ \mu\text{m}$ AOD > 0.2 . Frequencies are calculated over daily value for 2011, 2013 and 2015.

An additional comparison has been done between AEROIASI and CHIMERE AOD with the same criteria as done for the MODIS vs CHIMERE comparison. Similar results have been found for the Taklimakan area ($r = 0.75$, $n = 945$, $NRMSE = 134\%$) with the notable exception for the bias ($bias = 9\%$), which is rather small and much lower than the bias with respect to MODIS AOD at 550 nm. Distinctly of the 550 nm AOD, the 10 μm AOD is mostly controlled by the coarser fraction of dust aerosol. This aspect provides reliability on the amounts of dust simulated by CHIMERE, since most of its mass corresponds to the coarse fraction of aerosols (85% of dust mass correspond to particle larger than 2.5 μm , q.v. Section 2.1).

3.1.3. Dust Vertical Dispersion

Over the Taklimakan area (39.5° of latitude), CHIMERE simulations shows desert dust vertically transported up 4 and 8 km of altitude depending on the season, with a marked vertical gradient between the surface and the upper layers (see Figure 4 1st row). Such vertical distribution of dust with a marked gradient over several kilometers is consistent with a climatology (2007–2015) of desert dust vertical distribution over this area [67], done with measurements from the CALIOP instrument ([68,69], Cloud Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization). However, dust plume transport appears to be more vertically spread in CHIMERE simulations than in the CALIOP climatology in which dust do not reach altitude higher than 6 km, while in CHIMERE simulations they can reach 10 km of altitude. This excessive spreading in vertical transport modeling has already been observed for simulation of volcanoes plumes [24,70,71], and it is a point which requires improvement (e.g., vertical transport scheme or vertical resolution). As a consequence, mineral dust plume is transported over the Himalayas (2nd row, 31.0° of latitude) a path that is not observed in [67] and pollutant in plume can be excessively diffused, leading to low concentrations.

3.2. Dust Contribution to Urban Chinese Particle Pollution

3.2.1. Evaluation of PM Concentration Modeling

CHIMERE simulation results compared to measurements for PM_{10} and $\text{PM}_{2.5}$ during 2013 and 2015 springs are displayed in Table 3. A model evaluation with surface measurements is necessary to quantify model skills and limits. As China is a large country with various pollution sources (anthropogenic or natural), evaluation of surface concentrations is necessary to determine which cities present lower uncertainties in the available database to afterwards evaluate the impact of dust on PM load. PM content is underestimated in eastern and north—western areas, but slightly overestimated over central and southern China compared to measurements. Also, in these areas, NRMSE is smaller than over northern areas. The $\text{PM}_{2.5}$ daily variation is better represented than PM_{10} , with higher Pearson correlation coefficients.

Mean, normalized bias, NRMSE and correlation are presented in Table 3, for three selected cities. Normalized mean errors were calculated for $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} , estimated respectively to 21% and 31%. The authors of [72] suggest to evaluate PM modeling performances based on mean fractional bias and error statistical indicators, expressed as in Equations (4) and (5) respectively:

$$MFB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{(C_m - C_o)}{(C_o + C_m/2)} \quad (4)$$

$$MFE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{|C_m - C_o|}{(C_o + C_m/2)} \quad (5)$$

where C_m is the CHIMERE estimated concentration at i station, C_o the measured concentration at station i , and N the number of available stations for the considered time period. The authors of [72] suggest that model performances for PM is fairly good for the considered period if MFB is lower than

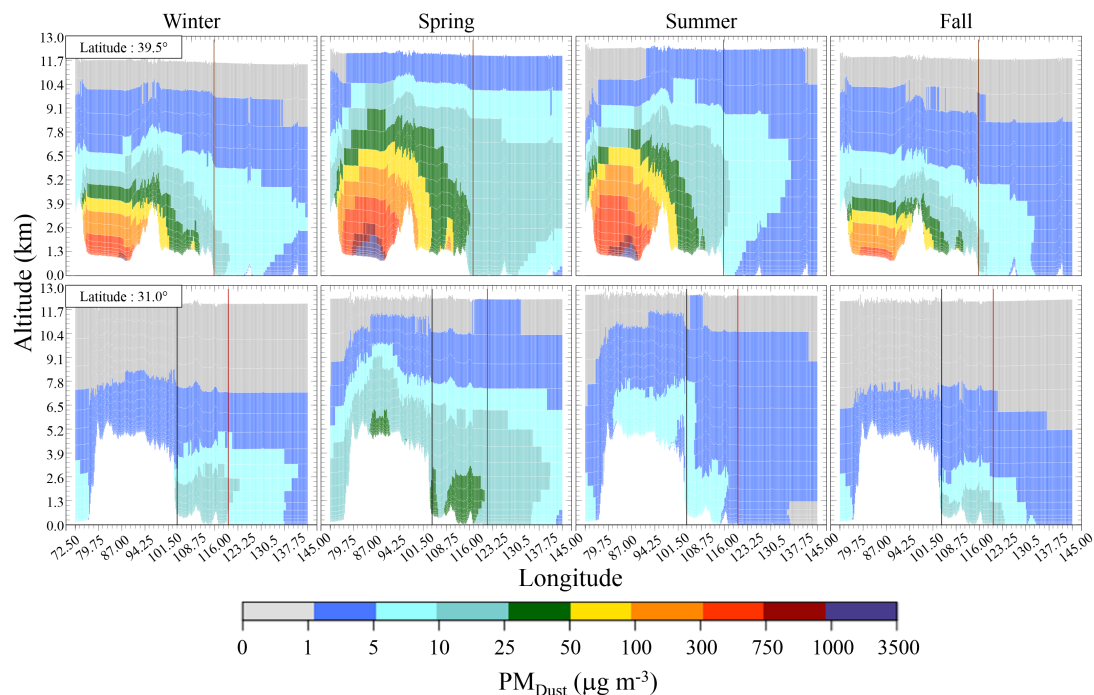


Figure 4. CHIMERE dust concentration vertical profiles longitude cut for winter (1st column), spring (2nd column), summer (3rd column) and fall (4th column). 1st row shows profiles for 39.5° latitude, 2nd row shows profiles for 31.0° latitude. Altitudes are calculated compared to sea level. All figures are produced with 2011, 2013 and 2015 data. Beijing is identified on 1st row by the brown vertical line, Chengdu is identified on 2nd row by the black vertical line and Shanghai is identified on 2nd row by the red vertical line. Transect latitudes are displayed on Figure 2.

0.3 and MFE lower than 0.5. Both criteria are met for PM_{2.5}(−0.002 and 0.14) and PM₁₀(−0.21 and 0.24) for MFB and MFE respectively (MFE and MFB values are calculated on all stations available in the dataset see Section 2.3).

Table 3. CHIMERE Model PM₁₀ and PM_{2.5} comparisons to hourly measurements from monitoring stations for springs 2013 and 2015. *n* indicates number of hourly measurements.

| Stations | Meas Mean | Bias (%) | NRMSE(%) | r | n |
|----------------------------|--------------------------|----------|----------|------|------|
| Beijing PM ₁₀ | 120.7 μg m ^{−3} | −26% | 73% | 0.47 | 2921 |
| Chengdu PM ₁₀ | 165.1 μg m ^{−3} | −10% | 67% | 0.69 | 3533 |
| Shanghai PM ₁₀ | 85.9 μg m ^{−3} | +05% | 47% | 0.69 | 2704 |
| Beijing PM _{2.5} | 77.3 μg m ^{−3} | −06% | 57% | 0.77 | 3556 |
| Chengdu PM _{2.5} | 82.5 μg m ^{−3} | +23% | 64% | 0.69 | 3648 |
| Shanghai PM _{2.5} | 54.6 μg m ^{−3} | +19% | 55% | 0.69 | 3341 |

We then evaluated PM_{2.5} over 2011, 2013 and 2015 for the three selected cities, from US embassy data. CHIMERE vs US embassy PM_{2.5} comparisons results for 2011, 2013 and 2015 are shown in Table 4. Daily time series for Beijing, Chengdu and Shanghai are displayed in Figure S2 (in supplement). 2011 measurements are available only for the Beijing station. The highest annual mean PM_{2.5} is observed in Beijing (92.2 μg m^{−3}), and the lowest in Shanghai (55.3 μg m^{−3}). Measurements show for all of the three stations a seasonal cycle, with highest pollution levels in winter and lowest pollution levels in summer. It was observed in available time series that Beijing, Chengdu and Shanghai exceed

Chinese standard for daily PM_{2.5} (75 µg m⁻³; Ambient Air Quality Standards—National Standard GB 3095-2012) respectively on 47%, 43% and 21% of available days. The daily PM_{2.5} variability is correctly represented in CHIMERE with Pearson correlation coefficients of 0.75, 0.72 and 0.76 in Beijing, Chengdu and Shanghai respectively. CHIMERE simulated PM_{2.5} overestimates measurements values, particularly in Chengdu (+52%). Differences between measurements and simulations are larger in 2015, maybe because of a decreasing pollution trend not completely reproduced by 2010 based inventories [29]. CHIMERE also satisfies PM_{2.5} modeling performance goals as suggested by [72], with a MFB and MFE of 0.19 for the three stations for the considered period.

Table 4. CHIMERE model PM_{2.5} comparison to daily measurements from monitoring stations for 2011, 2013 and 2015. *n* indicates number of daily mean measurements.

| Stations | Meas Mean | Bias (%) | NRMSE(%) | r | n |
|----------------------------|-------------------------|----------|----------|------|------|
| Beijing PM _{2.5} | 94.2 µg m ⁻³ | +19% | 61% | 0.75 | 1085 |
| Chengdu PM _{2.5} | 83.8 µg m ⁻³ | +52% | 69% | 0.72 | 687 |
| Shanghai PM _{2.5} | 55.3 µg m ⁻³ | +24% | 57% | 0.76 | 723 |

3.2.2. Dust Contribution to Cities' Air Pollution and Dust Origin

Figure S4 (in the supplementary section) presents PM₁₀ and respective dust contributions for 2011, 2013 and 2015 spring seasons to PM₁₀. As dust emissions present high variability (2015 emissions are 25% lower than 2011 emissions), dust impact to populated areas is also varying causing a significant change of dust contribution in Beijing (from 25% in 2011 to 16% in 2015), Chengdu (24% to 18%) and Shanghai (21% to 14%). It also can be noted that absolute PM₁₀ values decrease between 2011 and 2015.

Figure 5 shows the monthly variability of dust contributions to PM₁₀ in three Chinese cities, Beijing, Chengdu and Shanghai. The specific desert mineral dust is originating from is also displayed on Figure 5.

It can be observed for the three cities that the highest daily PM₁₀ levels are reached during winter, and the lowest ones during spring (for Beijing) or summer (Shanghai and Chengdu). Amplitudes for these daily values are smaller for Shanghai, ranging from 60 µg m⁻³ to 160 µg m⁻³ than for Beijing and Chengdu, ranging between 90 µg m⁻³ to 250 µg m⁻³. These values are particularly high compared to Chinese National Standard GB 3095-2012 for PM₁₀ in an urban environment, i.e., 24 h mean: 150 µg m⁻³ and annual mean: 70 µg m⁻³.

Seasonal differences can be explained by meteorological parameters, as winter presents low temperature, low atmospheric dispersion and low rainfall frequencies and on the contrary, summer presents higher temperature, thicker boundary layer and mainly, during monsoon, higher rainfall. Anthropogenic pollutant emissions slightly increase during winter, but not with as much amplitude as PM concentrations.

The mineral dust contribution to PM₁₀ mean computed for 2011, 2013 and 2015 is 6.6%, 9.5% and 9.3% respectively for Beijing, Chengdu and Shanghai. It can be observed that mineral dust has its highest impact on PM concentrations during spring (with contribution to PM₁₀ for Beijing, Chengdu and Shanghai of 18.9%, 24.1% and 18.3% respectively). The authors of [73], using source apportionment for spring 2009 calculated a dust contribution to PM_{2.5} up to 15% in Chengdu, which is similar to CHIMERE dust contribution to PM_{2.5}, of 12.5% (and 24.1% for PM₁₀). For all cities, a smaller contribution of dust during fall and almost no contribution during winter and summer were simulated. As little emissions are observed during winter from desert areas (5% of annual total), it was expected to have limited contribution to PM₁₀ for this season. The summer period differs, as even if dust emissions are large, only small impact from dust is observed, as already observed in Figure 4 on the distribution of dust related AOD. Summer in China is a particular season, with high rainfall frequencies over East China, because of monsoon. It is likely that atmospheric aerosols will be deposited because of rainfall,

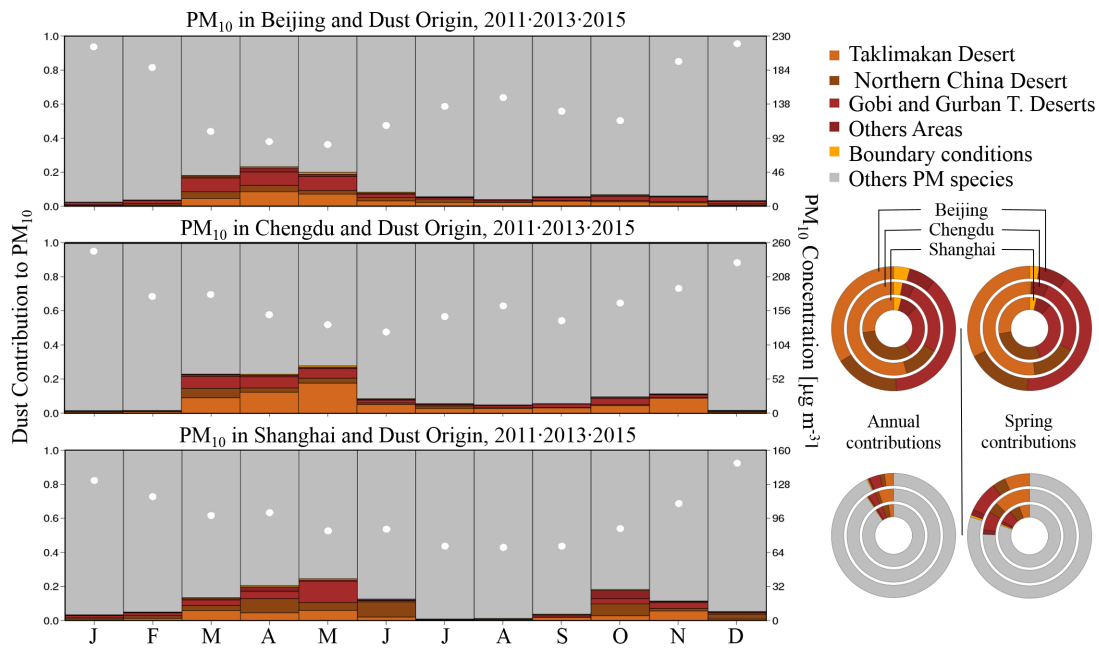


Figure 5. Dust contribution to PM₁₀ pollution in Beijing, Chengdu and Shanghai—Monthly variation calculated from 2011, 2013 and 2015 simulations. Ring plots show annual and spring contributors to PM₁₀ (bottom) and dust origin area (top) for the three cities. White dots variations in monthly PM₁₀ concentrations for the three cities.

before reaching populated areas. Also, southerly monsoon winds are not prone for advecting dust from western to eastern China.

Also, the Ångström median for spring decreases of 10% compared to annual Ångström at the Beijing AERONET station, from 1.19 to 1.07, showing a higher contribution of coarse particulate to pollution during spring. On the opposite, we note highest Ångström values (1.27) in winter which indicate a larger contribution to finer particulate matter in the atmospheric column. This result is consistent with CHIMERE simulations, with Ångström equal to 0.91 during spring and Ångström equal to 1.32 for winter.

It can also be observed that dust origins are similar for Shanghai and Beijing, with mineral dust coming from all of the main dust areas in equivalent proportions. Results are different for Chengdu, localized in central China, with more than 50% of mineral dust coming from Taklimakan, and less impact from Gobi and Northern China deserts than for Beijing and Shanghai. These results show that all considered desert areas have an impact on cities pollution: even if 70% of dust in our model is emitted from Taklimakan, it will represents less than 30% of the dust in Shanghai and Beijing, and about 50% in Chengdu. For these first two cities, the Gobi and Gurban deserts are the largest contributors (about 40%).

Dust load in Chinese cities origin has already been investigated, mostly using retro-trajectories [74, 75], the use of a tagging method from numerical computing provide an additional way to determine dust origins. Using retro-trajectories, the study [75] estimates for Chengdu’s 2013 winter that for 2 days out 90, air pollution is controlled by air masses coming from Xinjiang region (mineral dust from Taklimakan source area)—a statement similar to the very low contribution found for this season in our results as a consequence of mineral dust low emissions.

3.2.3. PM Chemical Composition and Comparison to Observations

Table S2 presents the CHIMERE simulated PM₁₀ composition in Beijing, Chengdu and Shanghai. For the three cities, the main contributor is anthropogenic mineral primary particular (*AMPP*). Nitrates ($\text{NO}_{3(p)}^-$) are second highest contributor, in Beijing and Shanghai, and 4th in Chengdu. In the three cities, ammonium ($\text{NH}_{4(p)}^+$) contributions are similar, but acid-base balances for nitrates and sulfate ($\text{SO}_{4(p)}^{2-}$) are different for Chengdu, compared to Shanghai and Beijing, with more sulfate and acidity in Chengdu. Organic matter (*OM*, includes *POA* and *SOA*) is the third contributor in Beijing and Chengdu, and the fourth contributor in Shanghai to PM₁₀. *BC* in the three cities corresponds to around 6% of PM₁₀ pollution. In addition, sea salt presents a little contribution of 3.3% to Shanghai PM₁₀. It can be noted that evaluating particles components in CHIMERE over China would be of great interest but it is beyond the scope of this paper.

As a consequence, the previous analysis has to be considered as a preliminary semi-quantitative analysis. Here, we will briefly discuss, how our model results correspond to results from observational studies [76–78] even if measurement periods do not exactly correspond. Contributions comparisons are condensed in Table 5 for an easier reading.

Table 5. CHIMERE contribution compared to bibliography.

| Considered Species | CHIMERE | Reference | City |
|--|---------|-------------|----------|
| $BC \subset PM_{2.5}$ | 6.4% | 5%; [76] | Beijing |
| $OM \subset PM_{2.5}$ | 16.0% | 20%; [76] | Beijing |
| $\text{NH}_{4(p)}^+ \subset PM_{2.5}$ | 10.5% | 10%; [76] | Beijing |
| $\text{NO}_{3(p)}^- \subset PM_{2.5}$ | 23.8% | 15%; [76] | Beijing |
| $\text{SO}_{4(p)}^{2-} \subset PM_{2.5}$ | 11.2% | 15%; [76] | Beijing |
| $Dust \subset PM_{2.5}$ | 2.9% | 7.5%; [76] | Beijing |
| $\text{SO}_{4(p)}^{2-} \subset PM_{2.5}$ | 21.3% | 17%; [77] | Chengdu |
| $\text{SO}_{4(p)}^{2-} \subset PM_{10}$ | 17.5% | 17%; [77] | Chengdu |
| $\text{NO}_{3(p)}^- \subset PM_{2.5}$ | 12.9% | 10%; [77] | Chengdu |
| $\text{NO}_{3(p)}^- \subset PM_{10}$ | 10.0% | 10%; [77] | Chengdu |
| $\text{SO}_{4(p)}^{2-} \subset PM_{2.5}$ | 14.6% | 21.7%; [78] | Shanghai |
| $\text{NO}_{3(p)}^- \subset PM_{2.5}$ | 19.6% | 19.6%; [78] | Shanghai |
| $\text{NH}_{4(p)}^+ \subset PM_{2.5}$ | 10.4% | 12.7%; [78] | Shanghai |
| $OM \subset PM_{2.5}$ | 11.1% | 20.2%; [78] | Shanghai |

The authors of [76] study Beijing's PM_{2.5} annual trends and chemical speciation between 2000 and 2015. Considering 2011, 2013 and 2015 observations, the study presents close results to CHIMERE in Beijing for PM_{2.5} speciation, with 5% of *BC* (against 6.4%), 20% of *OM* (against 16%), 10% of $\text{NH}_{4(p)}^+$ (against 10.5%). Results differ slightly between $\text{NO}_{3(p)}^-/\text{SO}_{4(p)}^{2-}$ balance, with about 15% of each in the measures, against 23.8%/11.2% in CHIMERE. Dust represents 7.5% of PM_{2.5} load but is measured as "Soil dust" also includes road and construction dust in addition to mineral desert dust (2.9% in model).

The authors of [77] present Chengdu PM pollution chemical speciation between 2007 and 2013, with its seasonal variability. An increase of $\text{NO}_{3(p)}^-$ between 2007 and 2013 when a decrease of $\text{SO}_{4(p)}^{2-}$ is observed which is also observed in our simulations (2011 to 2015) and better described in [29]. $\text{SO}_{4(p)}^{2-}$ abundances for both PM_{2.5} and PM₁₀ range around 17% (for 2011 and 2013) which is quite similar to modeled abundances (respectively 21.3% and 17.4%). $\text{NO}_{3(p)}^-$ contributions for PM_{2.5} and PM₁₀ range around 10%, when CHIMERE modeled, respectively, 12.9% and 10.0%. Al, Si and Ca represent together about 20% of total PM, with maximum contribution in spring, but this does include anthropogenic and natural crustal elements and cannot be directly compared to our modeling results of desert dust.

The authors of [78] sampled Shanghai $PM_{2.5}$ pollution composition from 2011 to 2013. Results for Shanghai are quite similar to those observed in Beijing, with an underestimation of SO_4^{2-} (14.6% against 21.7%) and OM (11.1% against 20.2%) but good correspondences for NO_3^- (19.6% against 19.6%) and NH_4^+ (10.4% against 12.7%).

3.2.4. Daily Variability of PM_{10} Component Concentrations

PM_{10} components daily concentration distributions for Beijing, Chengdu and Shanghai are displayed in Figure 6. Median values for dust concentrations correspond to few micrograms only, in the three cities, which rank it as one of lowest contributors to PM_{10} pollution in our simulations, as it has been also observed in Table S2, with mean concentration contributions. The additional information provided in the Figure 6 is the daily variability of each component, and it appears that dust presents the largest variability and in the three cities, the highest daily concentration among PM_{10} components is due to dust (i.e., reaching $400 \mu g m^{-3}$, $540 \mu g m^{-3}$ and $350 \mu g m^{-3}$ respectively for Beijing, Chengdu and Shanghai). This particular aspect follows dust emissions dynamics, very localized in time (q.v. Table 1, 5th column), and responsible of very strong pollution events. Thus, it is judicious to focus on dust contribution to PM pollution events in cities rather than the average impact of dust, and this is the key point of our work, exploiting the most original CHIMERE model abilities.

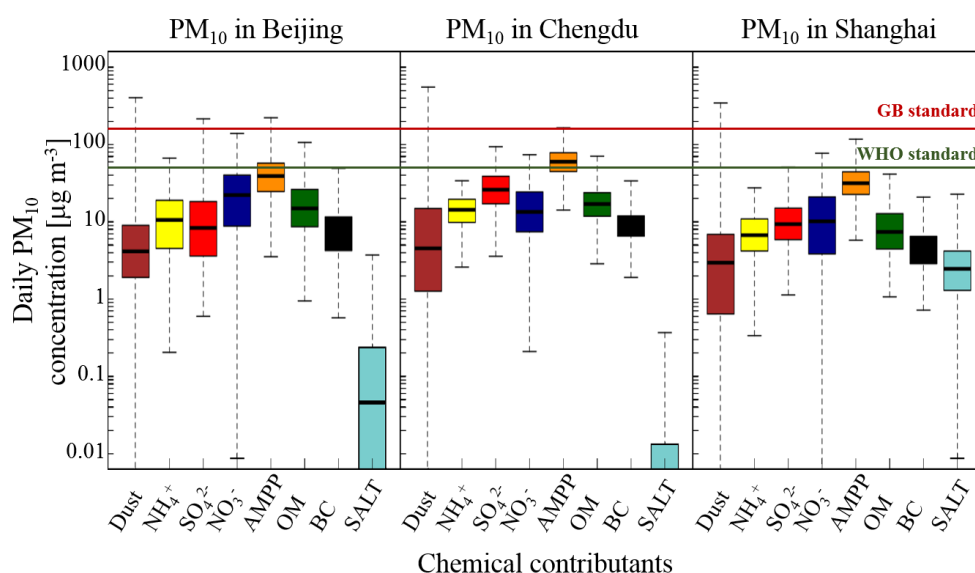


Figure 6. Boxplot distribution for simulated daily concentrations (1095 days considered) of species contributing to PM_{10} . (left) Beijing (center) Chengdu and (right) Shanghai. Model species correspond to: Dust (only representing the desert and natural fraction), NH_4^+ (ammonium), SO_4^{2-} (sulfate), NO_3^- (nitrate), $AMPP$ (Anthropogenic Mineral Primary Particulate matter—including soil dust emitted from anthropogenic activities such as construction), OM (primary and secondary Organic Matter, BC (Black Carbon), from biogenic and anthropogenic sources) and $SALT$ (sea salt). Chinese and WHO standards for daily PM_{10} have been added to evaluate the frequency of overshoot for each species.

3.2.5. Dust Contribution during High Pollution Episodes

From Figure 7 and also Table 6 it can be observed for the whole period, that mineral dust is a minor contributor to PM_{10} and even more to $PM_{2.5}$ concentrations. For instance, for most of the days (between 70% to 75%) for the three cities, the dust contribution to PM_{10} is below 10% (Figure 7), only for 7.2% to 11.0% of days, dust it is more than 25%. When studying the 25% most strongly polluted

days, dust have slightly larger contributions for Chengdu and Shanghai, but not for Beijing. For the first two cities, this means that the dust presence is correlated with pollution events, although it is generally not dominant. On the contrary, for Beijing, PM pollution events occur during winter due to anthropogenic sources, and dust has only little impact on air pollution for this season.

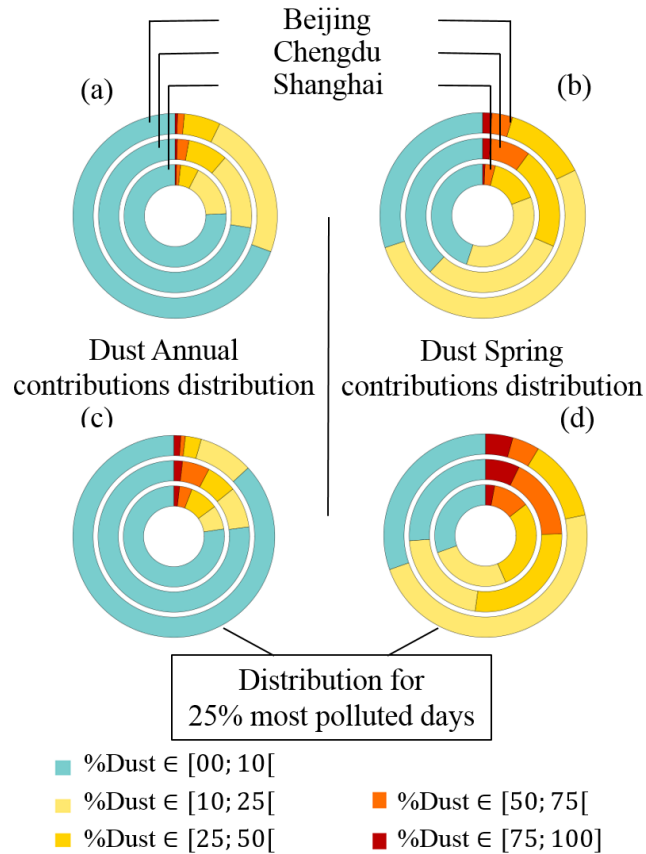


Figure 7. (a) Percentage of days when dust contributes between 0–10%, 10–25%, 25–50%, 50–75% and 75–100% to daily PM₁₀ averages; (b) same as (a), but for spring only; (c) Same as (a), but for the 25% of most polluted days only (in terms of PM₁₀ level); (d) Same as for (c), but for spring only.

If we focus now on spring season, we can identify a larger impact from mineral dust to cities PM pollution, an impact which gets even stronger when selecting the 25% most polluted PM₁₀ days. During spring, PM₁₀ pollution events can frequently be affected by dust in addition to anthropogenic PM pollution sources: the dust contribution is higher than 25% for 22% of days for Beijing, as much as 52% for Chengdu and 43% for Shanghai. To a lesser extent, mineral dust is implied to PM_{2.5} events (Fraction of 9% for Beijing, 19% for Chengdu and 14% for Shanghai).

Table 6. Fraction of days when the dust contributions to daily PM_{2.5} or PM₁₀ are at least 25%. These values were calculated for Beijing, Chengdu and Shanghai, and for various samples: all days in 2011, 2013 and 2015, only for the spring season, for days with the largest pollution (in terms of PM_{2.5} and PM₁₀ respectively), for these latter days, but only during spring. As an example the table reads as follows: For Chengdu, during the 25% most polluted days in spring 2011, 2013 and 2015, 52% of days displayed dust contributions larger than 25%. $P_{75,Year}/P_{75,Spring}$ indicates the PM₁₀ 75th percentiles value. They are threshold values, above which a day is considered as one of the 25% most polluted days. pol. days stands for “polluted days”, with $[PM_x] > P_{75,PM_x}$. F.o.d stands for “Fraction of days”.

| Cities and Species | days year ⁻¹ / days spring ⁻¹ with Dust contrib. > 25% | (Year/Spring) F.o.d with Dust contrib. > 25% | $P_{75,Year}/$ $P_{75,Spring}$ ($\mu\text{g m}^{-3}$) | (Year/Spring) ^{pol. days} F.o.d with Dust contrib. > 25% |
|----------------------------|---|--|---|---|
| Beijing PM _{2.5} | 7.3/7.3 | 0.02/0.08 | 144/97 | 0.02/0.09 |
| Beijing PM ₁₀ | 25.5/16.4 | 0.07/0.18 | 185/123 | 0.04/0.22 |
| Chengdu PM _{2.5} | 14.6/10.1 | 0.04/0.11 | 150/128 | 0.05/0.19 |
| Chengdu PM ₁₀ | 40.1/28.3 | 0.11/0.31 | 206/183 | 0.14/0.52 |
| Shanghai PM _{2.5} | 10.9/04.5 | 0.03/0.05 | 94/84 | 0.06/0.14 |
| Shanghai PM ₁₀ | 29.2/17.3 | 0.08/0.19 | 122/112 | 0.15/0.43 |

Additional information from the AERONET station located in Beijing (see Figure S3 in supplements) shows that the fraction of days with Ångström coefficients below 0.4 (which characterizes a dominant dust contribution to the PM column) is nearly a factor of 2 larger for spring than for the rest of the year. The same increase is observed from simulated Ångström coefficients. In addition, for the 25% of days with the largest AOD values, the Beijing AERONET station shows a larger fraction of days with an Ångström coefficient below 0.4: 0.04 for all seasons, and 0.08 for spring only. These values are somewhat higher than in CHIMERE (respectively 0.02 and 0.06). As a conclusion, also for AOD, the dust contribution is for most of the days not dominant.

4. Conclusions

In this study, we aimed at evaluating the impact of mineral dust on air quality in three Chinese megacities with the regional CHIMERE CTM. Modeled dust emissions average 283 Mt.year⁻¹, with about 70% emitted from Taklimakan area, 23% emitted from the Gobi desert and 6.5% emitted from Northern China desert. MODIS information was used to validate correspondences between CHIMERE AOD and satellite AOD variation, and results appeared to be satisfying, which allows us to then study the dust contribution to cities' air pollution. It has been chosen to focus on Beijing, Chengdu and Shanghai, because of their large population and different geographical locations with respect to emission zones. We have estimated the impact of dust on cities' air pollution: we found average contributions of 10 $\mu\text{g m}^{-3}$ (6.6%), 17 $\mu\text{g m}^{-3}$ (9.5%) and 9 $\mu\text{g m}^{-3}$ (9.3%) to PM₁₀ in Beijing, Chengdu and Shanghai respectively. These values must be taken into account while evaluating Chinese cities air quality, as they represent a significant burden for the cities air quality in regards to the annual WHO threshold of 20 $\mu\text{g m}^{-3}$. The dust contribution is highly seasonally dependent, with highest contributions during spring, when contributions to PM₁₀ reach 22 $\mu\text{g m}^{-3}$ (18.9%), 37.0 $\mu\text{g m}^{-3}$ (24.1%) and 12 $\mu\text{g m}^{-3}$ (18.3%). In Beijing and Shanghai, dust is advected rather equally from all main Chinese deserts, while in Chengdu, it originates mainly from the Taklimakan desert. Analysis for days with enhanced PM₁₀ pollution (above the 75th percentile) especially in the spring season shows that dust is often a main contributor (dust contribution larger than 25%) during PM₁₀ polluted days especially in the spring season: this holds at 22% of the days for Beijing, 52% for Chengdu and 43% for Shanghai. Considering all seasons, the impact on polluted events is smaller, especially during winter, when particulate matter pollution mostly originates from anthropogenic sources. Finally, if mineral dust do not represent a predominant source compared to anthropogenic pollutant on average, mineral dust

alone leads to an exceedance of the daily WHO threshold for PM₁₀ (50 µg m⁻³) in Beijing for 10 days per year, 29 days per year in Chengdu and 13 days per year in Shanghai.

In the future, dust vertical transport modeling should be investigated more deeply and compared to products which contains information on vertical dispersion (CALIOP [69], AEROIASI [59]). In addition, updated emissions inventories should be used and SOA modeling should be improved

Supplementary Materials: The following are available at <http://www.mdpi.com/2073-4433/11/7/708/s1>: Figure S1: 550 nm AOD spatial distribution to 1° × 1° resolution for 2011, 2013 and 2015. Table S1: Spatial correspondences between MODIS 550 nm AOD and CHIMERE 550 nm AOD. Table S2: CHIMERE Model PM₁₀ annual composition for Beijing, Chengdu and Shanghai. Figure S2: Daily PM_{2.5} time series for monitoring stations and CHIMERE simulations. Figure S3: Daily Ångström coefficient distribution at Beijing station. Figure S4: PM₁₀ simulated surface concentration. Figure S5: PM station locations.

Author Contributions: M.L., G.F. and M.B. designed the experiments and M.L. carried them out. G.S. prepared meteorological and emission data. F.M. and W.T. provided data surface measurements from CRAES institution. M.L. adapted the model code and performed the simulations. B.L. developed the database of surface characteristics for Asian deserts. Q.Z., J.C. and G.D. help to the analysis. M.L. prepared the manuscript and all authors contributed to the text, interpretation of the results and reviewed the manuscript. All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

Funding: M. Lachatre was funded by the Sorbonne Université, l'École Doctorale des Sciences de l'Environnement d'Ile de France (ED129) and PolEASIA ANR project under the allocation ANR-15-CE04-0005.

Acknowledgments: This work was granted access to the HPC resources of TGCC under the allocation A0030107232 made by GENCI. We acknowledge the free use of MODIS AOD data from the Terra from (<https://terra.nasa.gov/>, last consulted 25/09/2018). Surface measurements provided by U.S. Department of State Air Quality Monitoring Program, Mission China (www.stateair.net, last consulted 07/10/2018). We also acknowledge the Chinese Research Academy of Environmental Sciences (CRAES) in Beijing, for providing us PM_{2.5} and PM₁₀ surface concentrations data. We also acknowledge the NASA's AERONET network. The development and production of AEROIASI retrievals are supported by the Centre National des Études Spatiales (CNES, the French Space Agency, IASI project/Terre, Océan, Surfaces continentales, Atmosphère) and the Programme National de Télédétection Spatiale (PNTS, <http://programmes.insu.cnrs.fr/pnts>, grant n° PNTS-2013-05, project "SYNAEROZON"). IASI is a joint mission of EUMETSAT and CNES.

Conflicts of Interest: The authors declare no conflict of interest.

References

- Geng, G.; Zhang, Q.; Martin, R.V.; van Donkelaar, A.; Huo, H.; Che, H.; Lin, J.; He, K. Estimating long-term PM_{2.5} concentrations in China using satellite-based aerosol optical depth and a chemical transport model. *Remote Sens. Environ.* **2015**, *166*, 262–270, doi:10.1016/j.rse.2015.05.016.
- Huang, R.J.; Zhang, Y.; Bozzetti, C.; Ho, K.F.; Cao, J.J.; Han, Y.; Daellenbach, K.R.; Slowik, J.G.; Platt, S.M.; Canonaco, F.; et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China. *Nature* **2014**, *514*, 2018–222, doi:10.1038/nature13774.
- Liu, Z.; Gao, W.; Yu, Y.; Hu, B.; Xin, J.; Sun, Y.; Wang, L.; Wang, G.; Bi, X.; Zhang, G.; et al. Characteristics of PM_{2.5} mass concentrations and chemical species in urban and background areas of China: Emerging results from the CARE-China network. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18*, 8849–8871, doi:10.5194/acp-18-8849-2018.
- Kaiser, D.P.; Qian, Y. Decreasing trends in sunshine duration over China for 1954–1998: Indication of increased haze pollution? *Geophys. Res. Lett.* **2002**, *29*, 38–1–38–4, doi:10.1029/2002GL016057.
- Xie, R.; Sabel, C.E.; Lu, X.; Zhu, W.; Kan, H.; Nielsen, C.P.; Wang, H. Long-term trend and spatial pattern of PM 2.5 induced premature mortality in China. *Environ. Int.* **2016**, *97*, 180–186, doi:10.1016/j.envint.2016.09.003.
- Wang, Y.; Teter, J.; Sperling, D. China's soaring vehicle population : Even greater than forecasted ? *Energy Policy* **2011**, *39*, 3296–3306, doi:10.1016/j.enpol.2011.03.020.
- Liu, J.; Niu, D.; Song, X. The energy supply and demand pattern of China: A review of evolution and sustainable development. *Renew. Sustain. Energy Rev.* **2013**, *25*, 220–228, doi:10.1016/j.rser.2013.01.061.
- Ma, Z.; Hu, X.; Sayer, A.; Levy, R.; Zhang, Q.; Xue, Y.; Tong, S.; Bi, J.; Huang, L.; Liu, Y. Satellite-Based Spatiotemporal Trends in PM_{2.5} Concentrations: China, 2004–2013. *Environ. Health Perspect.* **2016**, *124*, 184–192, doi:10.1289/ehp.1409481.

9. Liu, F.; Beirle, S.; Zhang, Q.; Van Der A, R.J.; Zheng, B.; Tong, D.; He, K. NO_x emission trends over Chinese cities estimated from OMI observations during 2005 to 2015. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17*, 9261–9275, doi:10.5194/acp-17-9261-2017.
10. IPCC. *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*; Houghton, J.T., Ding, Y., Griggs, D.J., Noguer, M., van der Linden, P.J., Dai, X., Maskell, K., Johnson, C.A., Eds.; Cambridge University Press: Cambridge, UK; New York, NY, USA, 2001; 881pp.
11. Huneeus, N.; Schulz, M.; Balkanski, Y.; Griesfeller, J.; Prospero, J.; Kinne, S.; Bauer, S.; Boucher, O.; Chin, M.; Dentener, F.; et al. Global dust model intercomparison in AeroCom phase I. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, *11*, 7781–7816, doi:10.5194/acp-11-7781-2011.
12. Hamilton, D.S.; Scanza, R.A.; Feng, Y.; Guinness, J.; Kok, J.F.; Li, L.; Liu, X.; Rathod, S.D.; Wan, J.S.; Wu, M.; et al. Improved methodologies for Earth system modelling of atmospheric soluble iron and observation comparisons using the Mechanism of Intermediate complexity for Modelling Iron (MIMI v1.0). *Geosci. Model Dev.* **2019**, *12*, 3835–3862, doi:10.5194/gmd-12-3835-2019.
13. Sokolik, I.N.; Toon, O.B. Incorporation of mineralogical composition into models of the radiative properties of mineral aerosol from UV to IR wavelengths. *J. Geophys. Res. Atmos.* **1999**, *104*, 9423–9444, doi:10.1029/1998JD200048.
14. Li, L.; Sokolik, I.N. The Dust Direct Radiative Impact and Its Sensitivity to the Land Surface State and Key Minerals in the WRF-Chem-DuMo Model: A Case Study of Dust Storms in Central Asia. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2018**, *123*, 4564–4582, doi:10.1029/2017JD027667.
15. Laurent, B.; Marticorena, B.; Bergametti, G.; Mei, F. Modeling mineral dust emissions from Chinese and Mongolian deserts. *Glob. Planet. Chang.* **2006**, *52*, 121–141, doi:10.1016/j.gloplacha.2006.02.012.
16. Gong, S.L.; Zhang, X.Y.; Zhao, T.L.; McKendry, I.G.; Jaffe, D.A.; Lu, N.M. Characterization of soil dust aerosol in China and its transport and distribution during 2001 ACE-Asia: 2. Model simulation and validation. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2003**, *108*, doi:10.1029/2002JD002633.
17. Ginoux, P.; Chin, M.; Tegen, I.; Prospero, J.M.; Holben, B. and Dubovik, O.; Lin, S. Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2001**, *106*, 255–273.
18. Mahowald, N.; Kohfeld, K.; Hansson, M.; Balkanski, Y.; Harrison, S.P.; Prentice, I.C.; Schulz, M.; Rodhe, H. Dust sources and deposition during the last glacial maximum and current climate: A comparison of model results with paleodata from ice cores and marine sediments. *J. Geophys. Res. Atmos.* **1999**, doi:10.1029/1999JD900084.
19. Yang, F.; Ye, B.; He, K.; Ma, Y.; Cadle, S.H.; Chan, T.; Mulawa, P.A. Characterization of atmospheric mineral components of PM_{2.5} in Beijing and Shanghai, China. *Sci. Total Environ.* **2005**, *343*, 221–230, doi:10.1016/j.scitotenv.2004.10.017.
20. Pan, X.; Uno, I.; Zhe, W.; Nishizawa, T.; Sugimoto, N.; Yamamoto, S.; Kobayashi, H.; Sun, Y.; Fu, P.; Tang, X.; et al. Real-time observational evidence of changing Asian dust morphology with the mixing of heavy anthropogenic pollution. *Sci. Rep.* **2017**, *7*, 335, doi:10.1038/s41598-017-00444-w.
21. Yu, Y.; Kalashnikova, O.V.; Garay, M.J.; Notaro, M. Climatology of Asian dust activation and transport potential based on MISR satellite observations and trajectory analysis. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19*, 363–378, doi:10.5194/acp-19-363-2019.
22. Yang, F.; Tan, J.; Zhao, Q.; Du, Z.; He, K.; Ma, Y.; Duan, F.; Chen, G.; Zhao, Q. Characteristics of PM_{2.5} speciation in representative megacities and across China. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, *11*, 5207–5219, doi:10.5194/acp-11-5207-2011.
23. Menut, L.; Bessagnet, B.; Khvorostyanov, D.; Beekmann, M.; Blond, N.; Colette, a.; Coll, I.; Curci, G.; Foret, G.; Hodzic, A.; et al. CHIMERE 2013: A model for regional atmospheric composition modelling. *Geosci. Model Dev.* **2013**, *6*, 981–1028, doi:10.5194/gmd-6-981-2013.
24. Mailler, S.; Menut, L.; Khvorostyanov, D.; Valari, M.; Couvidat, F.; Siour, G.; Turquety, S.; Briant, R.; Tuccella, P.; Bessagnet, B.; et al. CHIMERE-2017: From urban to hemispheric chemistry-transport modeling. *Geosci. Model Dev.* **2017**, *10*, 2397–2423, doi:10.5194/gmd-10-2397-2017.
25. Van Leer, B. Towards the ultimate conservative difference scheme. IV. A new approach to numerical convection. *J. Comput. Phys.* **1977**, *23*, 276–299, doi:10.1016/0021-9991(77)90095-X.
26. Owens, R.G.; Hewson, T. *ECMWF Forecast User Guide*; ECMWF, Reading, UK, 2018. doi:10.21957/m1cs7h.

27. Olivier, W.; Xin, Z.; Michael, J.P. Fast-J: Accurate Simulation of In- and Below-Cloud Photolysis in Tropospheric Chemical Models. *J. Atmos. Chem.* **2000**, doi:10.1023/A:1006415919030.
28. Janssens-Maenhout, G.; Crippa, M.; Guizzardi, D.; Dentener, F.; Muntean, M.; Pouliot, G.; Keating, T.; Zhang, Q.; Kurokawa, J.; Wankmüller, R.; et al. HTAP-v2.2: A mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15*, 11411–11432, doi:10.5194/acp-15-11411-2015.
29. Lachatre, M.; Fortems-Cheiney, A.; Foret, G.; Siour, G.; Dufour, G.; Clarisse, L.; Clerbaux, C.; Coheur, P.F.; Van Damme, M.; Beekmann, M. The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations over China: Increase of ammonia levels and impact on PM_{2.5} concentrations. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19*, 6701–6716, doi:10.5194/acp-19-6701-2019.
30. Zheng, B.; Tong, D.; Li, M.; Liu, F.; Hong, C.; Geng, G.; Li, H.; Li, X. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18*, 14095–14111, doi:doi.org/10.5194/acp-2018-374.
31. Guenther, A.B.; Jiang, X.; Heald, C.L.; Sakulyanontvittaya, T.; Duhl, T.; Emmons, L.K.; Wang, X. Model Development The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): An extended and updated framework for modeling biogenic emissions. *Geosci. Model Dev.* **2012**, 1471–1492, doi:10.5194/gmd-5-1471-2012.
32. Hauglustaine, D.A.; Hourdin, F.; Jourdain, L.; Filiberti, M.A.; Walters, S.; Lamarque, J.F.; Holland, E.A. Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model: Description and background tropospheric chemistry evaluation. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2004**, *109*, n/a–n/a, doi:10.1029/2003JD003957.
33. Hourdin, F.; Musat, I.; Bony, S.; Braconnot, P.; Codron, F.; Dufresne, J.L.; Fairhead, L.; Filiberti, M.A.; Friedlingstein, P.; Grandpeix, J.Y.; et al. The LMDZ4 general circulation model: Climate performance and sensitivity to parametrized physics with emphasis on tropical convection. *Clim. Dyn.* **2006**, *27*, 787–813, doi:10.1007/s00382-006-0158-0.
34. Nenes, A.; Pilinis, C.; Pandis, S. ISORROPIA: A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols. *Aquatic. Geochem.* **1998**, pp. 4:123–152.
35. Derognat, C.; Beekmann, M.; Baeumle, M.; Martin, D.; Schmidt, H. Effect of biogenic volatile organic compound emissions on tropospheric chemistry during the Atmospheric Pollution Over the Paris Area (ESQUIF) campaign in the Ile-de-France region. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2003**, *108*, doi:10.1029/2001JD001421.
36. Pankow, J.F. AN ABSORPTION MODEL OF GAS/PARTICLE PARTITIONING OF ORGANIC COMPOUNDS IN THE ATMOSPHERE. *Atmos. Environ.* **1994**, *28*, 185–188.
37. Kaupp, H.; Umlauf, G. ATMOSPHERIC GAS-PARTICLE PARTITIONING OF ORGANIC COMPOUNDS : COMPARISON OF SAMPLING METHODS. *Atmos. Environ.* **1992**, *26*, 2259–2267, doi:10.1016/0960-1686(92)90357-Q.
38. Ma, S.; Zhang, X.; Gao, C.; Tong, D.Q.; Xiu, A.; Wu, G.; Cao, X.; Huang, L.; Zhao, H.; Zhang, S.; et al. Multimodel simulations of a springtime dust storm over northeastern China: Implications of an evaluation of four commonly used air quality models (CMAQ v5.2.1, CAMx v6.50, CHIMERE v2017r4, and WRF-Chem v3.9.1). *Geosci. Model Dev.* **2019**, *12*, 4603–4625, doi:10.5194/gmd-12-4603-2019.
39. Laurent, B.; Marticorena, B.; Bergametti, G. Simulation of the mineral dust emission frequencies from desert areas of China and Mongolia using an aerodynamic roughness length map derived from the POLDER/ADEOS 1 surface products. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2005**, *110*, 1–21, doi:10.1029/2004JD005013.
40. Menut, L.; Schmechtig, C.; Marticorena, B. Sensitivity of the Sandblasting Flux Calculations to the Soil Size Distribution Accuracy. *J. Atmos. Ocean. Technol.* **2005**, *22*, 1875–1884.
41. Alfaro, S.; Gomes, L. Modeling mineral aerosol production by wind erosion: Emission intensities and aerosol size distributions in source areas. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2001**, *106*, 18075–18084.
42. Shao, Y. A model for mineral dust emission. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2001**, *106*, 20239–20254, doi:10.1029/2001JD900171.
43. Kok, J.F. A scaling theory for the size distribution of emitted dust aerosols suggests climate models underestimate the size of the global dust cycle. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **2011**, *108*, 1016–1021, doi:10.1073/pnas.1014798108.

44. Albani, S.; Mahowald, N.M.; Perry, A.T.; Scanza, R.A.; Zender, C.S.; Heavens, N.G.; Maggi, V.; Kok, J.F.; Otto-Bliessner, B.L. Improved dust representation in the Community Atmosphere Model. *J. Adv. Model. Earth Syst.* **2014**, *6*, 541–570, doi:10.1002/2013MS000279.
45. Alfaro, S.; Gaudichet, A.; Gomes, L.; Maillé, M. Modeling the size distribution of soil aerosol product by sandblasting. *J. Geophys. Res. Atmos.* **1997**, *102*, 11239–11249.
46. Mahowald, N.M.; Muhs, D.R.; Levis, S.; Rasch, P.J.; Yoshioka, M.; Zender, C.S.; Luo, C. Change in atmospheric mineral aerosols in response to climate: Last glacial period, preindustrial, modern, and doubled carbon dioxide climates. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2006**, *111*, doi:10.1029/2005JD006653.
47. Mahowald, N.; Albani, S.; Kok, J.F.; Engelstaeder, S.; Scanza, R.; Ward, D.S.; Flanner, M.G. The size distribution of desert dust aerosols and its impact on the Earth system. *Aeolian Res.* **2014**, *15*, 53–71, doi:10.1016/j.aeolia.2013.09.002.
48. Kok, J.F.; Mahowald, N.M.; Fratini, G.; Gillies, J.A.; Ishizuka, M.; Leys, J.F.; Mikami, M.; Park, M.S.; Park, S.U.; Van Pelt, R.S.; et al. An improved dust emission model – Part 1: Model description and comparison against measurements. *Atmos. Chem. Phys.* **2014**, *14*, 13023–13041, doi:10.5194/acp-14-13023-2014.
49. Foret, G.; Bergametti, G.; Dulac, F.; Menut, L. An optimized particle size bin scheme for modeling mineral dust aerosol. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2006**, *111*, doi:10.1029/2005JD006797.
50. Wang, G.H.; Cheng, C.L.; Huang, Y.; Tao, J.; Ren, Y.Q.; Wu, F.; Meng, J.J.; Li, J.J.; Cheng, Y.T.; Cao, J.J.; et al. Evolution of aerosol chemistry in Xi'an, inland China, during the dust storm period of 2013—Part 1: Sources, chemical forms and formation mechanisms of nitrate and sulfate. *Atmos. Chem. Phys.* **2014**, *14*, 11571–11585, doi:10.5194/acp-14-11571-2014.
51. Fu, X.; Wang, S.X.; Cheng, Z.; Xing, J.; Zhao, B.; Wang, J.D.; Hao, J.M. Source, transport and impacts of a heavy dust event in the Yangtze River Delta, China, in 2011. *Atmos. Chem. Phys.* **2014**, *14*, 1239–1254, doi:10.5194/acp-14-1239-2014.
52. Mikalai, F.; Haowen, Y.; Zhongrong, Z.; Shuwen, Y.; Wei, L.; Yanming, L. Author Correction: Combined use of satellite and surface observations to study aerosol optical depth in different regions of China. *Sci. Rep.* **2019**, doi:10.1038/s41598-019-54734-6.
53. Xin, W.; Jun, L.; Hui Zheng, C.; Fei, J.; Jingjing, L. Spatial and temporal evolution of natural and anthropogenic dust events over northern China. *Sci. Rep.* **2018**, doi:10.1038/s41598-018-20382-5.
54. Seinfeld, J.H.; Pandis, S.N. *ATMOSPHERIC From Air Pollution to Climate Change SECOND EDITION*; Wiley-Interscience: Hoboken, NJ, USA, 2006; pp. 628–674.
55. Zhang, L.; Gong, S.; Padro, J.; Barrie, L. A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmos. Environ.* **2001**, *35*, 549–560, doi:10.1016/S1352-2310(00)00326-5.
56. Zhang, Q.; Laurent, B.; Velay-Lasry, F.; Ngo, R.; Derognat, C.; Marticorena, B.; Albergel, A. An air quality forecasting system in Beijing—Application to the study of dust storm events in China in May 2008. *J. Environ. Sci.* **2012**, *24*, 102–111, doi:10.1016/S1001-0742(11)60733-X.
57. Di Biagio, C.; Formenti, P.; Balkanski, Y.; Caponi, L.; Cazaunau, M.; Pangui, E.; Journet, E.; Nowak, S.; Caqueneau, S.; Andreae, M.O.; et al. Global scale variability of the mineral dust long-wave refractive index: A new dataset of in situ measurements for climate modeling and remote sensing. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17*, 1901–1929, doi:10.5194/acp-17-1901-2017.
58. Cuesta, J.; Eremenko, M.; Flamant, C.; Dufou, G.; Laurent, B.; Bergametta, G.; Höpfner, M.; Orphal, J.; Zhou, D. Three-dimensional distribution of a major desert dust outbreak over East Asia in March 2008 derived from IASI satellite observations. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2015**, 7099–7127, doi:10.1002/2014JD022406.
59. Cuesta, J.; Flamant, C.; Gaetani, M.; Knippertz, P.; Fink, A.H.; Chazette, P.; Eremenko, M.; Dufour, G.; Di Biagio, C.; Formenti, P. Three-dimensional pathways of dust over the Sahara during summertime 2011 as revealed by new IASI observations. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* **2020**, doi:10.1002/qj.3814.
60. Eck, T.F.; Holben, B.N.; Reid, J.S.; Dubovik, O.; Smirnov, A.; O'Neill, N.T.; Slutsker, I.; Kinne, S. Wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban, and desert dust aerosols. *J. Geophys. Res. Atmos.* **1999**, *104*, 31333–31349, doi:10.1029/1999JD900923.
61. Weilin, W.; Suli, Z.; Limin, J.; Michael, T.; Boen, Z.; Gang, X.; Haobo, H. Estimation of PM_{2.5} Concentrations in China Using a Spatial Back Propagation Neural Network. *Sci. Rep.* **2019**, doi:10.1038/s41598-019-50177-1.
62. Flemming, J.; Stern, R.; Yamartino, R.J. A new air quality regime classification scheme for O₃, NO₂, SO₂ and PM₁₀ observations sites. *Atmos. Environ.* **2005**, *39*, 6121–6129, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.06.039.

63. Martini, F.M.S.; Hasenkopf, C.A.; Roberts, D.C. Statistical analysis of PM_{2.5} observations from diplomatic facilities in China. *Atmos. Environ.* **2015**, *110*, 174–185, doi:10.1016/j.atmosenv.2015.03.060.
64. Tan, S.C.; Li, J.; Che, H.; Chen, B.; Wang, H. Transport of East Asian dust storms to the marginal seas of China and the southern North Pacific in spring 2010. *Atmos. Environ.* **2017**, *148*, 316–328, doi:10.1016/j.atmosenv.2016.10.054.
65. Chen, S.; Huang, J.; Qian, Y.; Zhao, C.; Kang, L.; Yang, B.; Wang, Y.; Liu, Y.; Yuan, T.; Wang, T.; et al. An Overview of Mineral Dust Modeling over East Asia. *J. Meteorol. Res.* **2017**, *31*, 633–653.
66. Hou, Z.J.Z. A Simulated Climatology of Asian Dust Aerosol and Its Trans-Pacific Transport . Part I : Mean Climate and Validation. *J. Clim.* **2006**, *19*, 88–104.
67. Proestakis, E.; Amiridis, V.; Marinou, E.; Georgoulias, A.K.; Solomos, S.; Kazadzis, S.; Chimot, J.; Che, H.; Alexandri, G.; Biniotoglou, I.; et al. Nine-year spatial and temporal evolution of desert dust aerosols over South and East Asia as revealed by CALIOP. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18*, 1337–1362, doi:10.5194/acp-18-1337-2018.
68. Ansmann, A.; Bösenberg, J.; Chaikovskiy, A.; Comerón, A.; Eckhardt, S.; Eixmann, R.; Freudenthaler, V.; Ginoux, P.; Komguem, L.; Linné, H.; et al. Long-range transport of Saharan dust to northern Europe: The 11–16 October 2001 outbreak observed with EARLINET. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2003**, *108*, doi:10.1029/2003JD003757.
69. Liu, Z.; Omar, A.; Vaughan, M.; Hair, J.; Kittaka, C.; Hu, Y.; Powell, K.; Trepte, C.; Winker, D.; Hostetler, C.; et al. CALIPSO lidar observations of the optical properties of Saharan dust: A case study of long-range transport. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2008**, *113*, doi:10.1029/2007JD008878.
70. Colette, A.; Favez, O.; Meleux, F.; Chiappini, L.; Haefelin, M.; Morille, Y.; Malherbe, L.; Papin, A.; Bessagnet, B.; Menut, L.; et al. Assessing in near real time the impact of the April 2010 Eyjafjallajökull ash plume on air quality. *Atmos. Environ.* **2011**, *45*, 1217–1221, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.09.064.
71. Boichu, M.; Clarisse, L.; Péré, J.C.; Herbin, H.; Goloub, P.; Thieuleux, F.; Ducos, F.; Clerbaux, C.; Tanré, D. Temporal variations of flux and altitude of sulfur dioxide emissions during volcanic eruptions: Implications for long-range dispersal of volcanic clouds. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15*, 8381–8400, doi:10.5194/acp-15-8381-2015.
72. Boylan, J.W.; Russell, A.G. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models. *Atmos. Environ.* **2006**, *40*, 4946–4959, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.09.087.
73. Tao, J.; Zhang, L.; Engling, G.; Zhang, R.; Yang, Y.; Cao, J. Chemical composition of PM_{2.5} in an urban environment in Chengdu, China : Importance of springtime dust storms and biomass burning. *Atmos. Res.* **2013**, *122*, 270–283, doi:10.1016/j.atmosres.2012.11.004.
74. Wang, Y.; Zhang, X.; Arimoto, R. The contribution from distant dust sources to the atmospheric particulate matter loadings at XiAn, China during spring. *Sci. Total Environ.* **2006**, *368*, 875–883, doi:10.1016/j.scitotenv.2006.03.040.
75. Liao, T.; Wang, S.; Ai, J.; Gui, K.; Duan, B.; Zhao, Q.; Zhang, X.; Jiang, W.; Sun, Y. Heavy pollution episodes, transport pathways and potential sources of PM_{2.5} during the winter of 2013 in Chengdu (China). *Sci. Total Environ.* **2017**, *584–585*, 1056–1065, doi:10.1016/j.scitotenv.2017.01.160.
76. Lang, J.; Zhang, Y.; Zhou, Y.; Cheng, S.; Chen, D.; Guo, X.; Chen, S.; Li, X.; Xing, X.; Wang, H. Trends of PM_{2.5} and Chemical Composition in Beijing, 2000–2015. *Aerosol Air Qual. Res.* **2017**, *17*, 412–425, doi:10.4209/aaqr.2016.07.0307.
77. Shi, G.L.; Tian, Y.Z.; Ma, T.; Song, D.L.; Zhou, L.D.; Han, B.; Feng, Y.C.; Russell, A.G. Size distribution, directional source contributions and pollution status of PM from Chengdu, China during a long-term sampling campaign. *J. Environ. Sci.* **2017**, *56*, 1–11, doi:10.1016/j.jes.2016.08.017.
78. Wang, H.; Qiao, L.; Lou, S.; Zhou, M.; Ding, A.; Huang, H.; Chen, J.; Wang, Q.; Tao, S.; Chen, C.; et al. Chemical composition of PM_{2.5} and meteorological impact among three years in urban Shanghai, China. *J. Clean. Prod.* **2016**, *112*, 1302–1311. doi:10.1016/j.jclepro.2015.04.099.





Conclusion

LE développement économique et industriel de la Chine diffère significativement de ce qu'ont connu les pays européens. En effet, la PRC s'est développée de façon très rapide depuis seulement une quarantaine d'années, sa part dans le GDP mondiale passant de 4.8 % en 1978 à 18.3 % en 2017, ce qui fait de la PRC la seconde puissance économique mondiale. Cette transformation de la société chinoise s'est accompagnée d'une détérioration globale de l'environnement, et notamment de la qualité de l'air, responsable de 1.6 millions de décès prématurés [pour 2014]. La réaction des autorités chinoises pour lutter contre ce phénomène a commencé il y a finalement peu de temps, au milieu des années 2000, et les réglementations appliquées se sont renforcées de façon conséquentes au début des années 2010.

Ces politiques apportent aujourd'hui leurs premiers résultats. En effet, on observe aussi bien une diminution des concentrations de surfaces des différents polluants [concentration annuelle médiane des villes chinoises de $55 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ en 2017 contre $75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ en 2013 pour les $\text{PM}_{2.5}$] que des colonnes atmosphériques observées depuis l'espace. Néanmoins les niveaux de particules auxquels sont exposés les citoyens chinois restent élevés.

L'objectif de ma thèse était d'étudier l'évolution de la pollution atmosphérique Chinoise, en s'appuyant sur des informations de télédétection, ainsi que le rôle des poussières minérales en tant que polluant d'origine naturelle. Pour mener ces études, nous avons utilisé le modèle de chimie-transport CHIMERE, qui simule les différentes composantes de la pollution. Nous avons également eu recours aux observations disponibles, i.e différents produits de télédétection satellitaires et des observations in situ. Ces produits satellitaires nous ont permis de suivre l'évolution, sur plusieurs années et sur un domaine très large, des polluants ciblés, NO_2 , SO_2 , NH_3 et épaisseur optique des aérosols [AOD]. À partir de ces informations il nous a été possible d'ajuster certains paramètres de nos simulations [e.g. émissions] ou d'intercomparer modèles et observations. Les observations des stations de surface [PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, AOD] ont été généralement utilisées pour évaluer les performances du modèle. Nous avons pu montrer que le modèle, plutôt évalué sur le domaine européen jusque-là, permet de reproduire avec une précision acceptable les charges en aérosols observées sur le domaine « chinois ». Avec un biais de -14 % pour les PM_{10} et de +18 pour les $\text{PM}_{2.5}$, pour des coefficients de corrélation respectif de 0.38 et 0.45, sur plus de 130 000 mesures.

Dans la première partie, nous avons pu montrer la forte baisse des émissions de NO_2 et de SO_2 sur la période 2011 – 2015 parallèlement à une augmentation spectaculaire des concentrations troposphériques d'ammoniac [dont les émissions ne semblent pas avoir augmentées sur la même période].

Nous avons pu reproduire ces tendances d'émissions entre 2011 et 2015 pour le dioxyde de soufre et les oxydes d'azote à partir des observations satellitaires en corrigeant l'inventaire EDGAR HTAP disponible pour l'année 2010. Après avoir quantifié l'impact des changements météorologiques sur cette période [qui ne permettent pas d'expliquer les tendances observées], nous avons pu montrer que les effets des politiques de réduction d'émissions du SO_2 et des NO_x ont permis une réduction de 14 % de la formation de sulfate et nitrate d'ammonium à l'Est de la Chine. Une conséquence inattendue qui découle de cette disponibilité réduite des NO_x et du SO_2 pour la formation de nitrate et sulfate d'ammonium est l'importante augmentation des niveaux d'ammoniac dans l'atmosphère. Le modèle CHIMERE et l'instrument IASI s'accordent tous deux sur cette augmentation, la quantifiant respectivement à +49 % et +65 % entre 2011 et 2015, à l'Est de la Chine, zone la plus peuplée du pays. Cette étude a montré à quel point les perturbations anthropiques du système atmosphérique peuvent avoir pour conséquence des ajustements rapides et imprévus. L'ensemble des observations satellitaires et de la modélisation avec CHIMERE ont permis d'obtenir une explication cohérente des évolutions rapides des gaz précurseurs et des particules au-dessus de la Chine.

Notre travail sur les aérosols d'origine désertique nous a ensuite permis de quantifier leur contribution sur la pollution particulaire de 3 grandes villes chinoises. Nous avons utilisé le modèle CHIMERE avec les paramétrisations proposées par [Alfaro and Gomes \[2001\]](#) et [Menut et al. \[2005\]](#). La modélisation des émissions a été évaluée en comparant les épaisseurs optiques observée par MODIS et simulées par CHIMERE au dessus des déserts d'Asie. La comparaison a montré que les épaisseurs optiques présentaient de bonnes correspondances temporelles, avec selon les zones des coefficient de corrélation de Pearson compris entre 0.51 et 0.74. Ainsi nous avons montré que ces aérosols minéraux qui sont une signature spécifique de cette pollution chinoise [peu d'équivalent en Europe ou aux Etats-Unis] participent en moyenne pour un peu moins de 10 % à la charge de particules atmosphériques de 6.6, 9.5 et 9.3 % respectivement pour Pékin, Chengdu et Shanghai. Cependant, la source de dust étant plus forte au printemps lorsque la pollution anthropique est moins forte, leur contribution devient plus forte, atteignant 18.9 %, à Pékin, 24.1 % à Chengdu et 18.3 % à Shanghai. Durant cette saison cette composante fait partie des espèces les plus fréquemment retrouvées les jours les plus pollués [selon l'analyse du 4^{ème} quartile de la distribution des PM]. Néanmoins, cet aspect ne se retrouve pas lorsque l'on considère l'année complète. Les valeurs journalières de pollution les plus élevées se retrouvant pour un grand nombre durant la saison hivernale, période pendant laquelle la pollution est pilotée par des composantes anthropiques.

En conclusion finale, nos simulations appuyées sur les données satellitaires et in situ ont permis de montrer l'impact des réductions récentes d'émissions de précurseurs anthropiques sur la pollution particulaire et plus largement sur la composition chimique de l'atmosphère au-dessus de la Chine. Ils ont en plus mis en avant la contribution importante de la source naturelle des poussières à cette pollution, contribution qui risque d'augmenter de façon relative en parallèle à la baisse de la contribution anthropique.



Perspectives

Il est possible de constater à la lecture de ce document que les émissions des différents polluants atmosphériques en Chine sont en permanente évolution. Afin de représenter correctement la pollution atmosphérique et ses tendances avec le modèle CHIMERE, il est nécessaire de mettre à jour les inventaires d'émissions pour un maximum de composés, comme cela a été entrepris pour les dioxydes de soufre et d'azote dans le chapitre VI. En effet, nous avons pu constater à partir des mesures de $PM_{2.5}$ que la représentation de tendances de ces dernières était de moins en moins précise pour les années s'écartant de l'année de référence des inventaires d'émissions fournies par HTAP [2010]. La modélisation inverse avec l'adjoint de CHIMERE, qui devient actuellement opérationnelle au LISA, permettra de remonter aux émissions de certaines espèces avec une précision accrue [NO_x , SO_2 , NH_3 , peut-être VOC dans le futur].

De plus, un objectif important sur la modélisation de la pollution en Chine sera d'évaluer la composition du mélange particulaire. Depuis 2015, les mesures de spéciations de l'aérosol se développent en Chine, même si leur distribution reste en partie confidentielle. Il sera probablement plus facile d'évaluer le modèle sur des années récentes [i.e. à partir de 2015], pour lesquelles des séries de mesures de plus en plus complètes devraient être disponibles. Cependant, la représentation de ces années sera plus délicate et un important travail préalable de mise à jour des émissions sera nécessaire.

Une attention particulière pourrait être portée sur la modélisation des aérosols organiques et leurs interactions avec la phase gaz, qui est un aspect important de la modélisation de la pollution atmosphérique en ce moment. Cela permettrait, dans la continuité de l'évaluation de l'impact des dust, de qualifier l'importance de la fraction d'origine naturelle, mais aussi anthropique, de l'aérosol organique dans la pollution atmosphérique chinoise.

La représentation du modèle des niveaux d'ozone en journée apparaît comme satisfaisant, notamment pour la région du Nord de la Chine. Il est donc possible d'analyser les niveaux d'ozone en se concentrant sur les maximums journaliers. Les produits satellitaires d'observation de l'ozone qui sont développés au LISA autoriseront une confrontation des simulations du modèle à des mesures d'ozone avec une représentativité spatiale plus large que les données de surface [Dufour et al., 2018]. Ces analyses et les simulations associées permettront également de suivre les panaches de pollution photochimiques lors de leur export sur l'océan pacifique.

Enfin, d'autres produits satellitaires, vont permettre de mieux évaluer la modélisation des poussières minérales. En effet, le produit AEROIASI [Cuesta et al., 2015], permet de suivre les épisodes de dust, notamment en intégrant la description de la distribution verticale des particules. Il sera donc possible d'évaluer la représentation du transport horizontal et en altitude des dust par le modèle. Des comparaisons entre les simulations CHIMERE et les observations AEROIASI pour l'année 2011 sont actuellement en cours. Ces études permettront encore d'affiner le transport à longue distance des dust et leur impact sur la composition atmosphérique.



Table des figures

| | | |
|-------|---|----|
| I.1 | <i>Structure et des propriétés de l'atmosphère.</i> | 12 |
| I.2 | <i>Echelle de temps de mélange atmosphérique.</i> | 13 |
| I.3 | <i>Diffusion spatiales de certains composés selon leurs temps de vie.</i> | 14 |
| I.4 | <i>Variations diurnes des vitesses de réactions de OH et HO₂.</i> | 16 |
| I.5 | <i>Répartition des émissions de SO₂ par secteurs d'activités</i> | 17 |
| I.6 | <i>Réactions et procédés mis en jeu dans le cycle de l'azote</i> | 18 |
| I.7 | <i>Schéma de fonctionnalisation des NMVOC</i> | 19 |
| I.8 | <i>Représentation schématique du cycle de formation de l'ozone</i> | 20 |
| I.9 | <i>Distribution standard des aérosols en fonction de leur taille.</i> | 22 |
| I.10 | <i>Schématisation des processus de saltation et de sandblasting.</i> | 24 |
| I.11 | <i>Carte des régions sources d'aérosols désertiques.</i> | 25 |
| I.12 | <i>Répartition entre la phase gaz et particulaire d'un composé dans l'air.</i> | 28 |
| I.13 | <i>Variabilité des concentrations et de la distribution des PM₁₀.</i> | 31 |
| I.14 | <i>Extinction du rayonnement solaire et réduction de la visibilité.</i> | 32 |
| I.15 | <i>Variation de l'AOD en fonction de la longueur d'onde.</i> | 33 |
| I.16 | <i>Bilan radiatif des principaux constituants de l'atmosphère.</i> | 35 |
| I.17 | <i>Fraction d'aérosols déposée dans les différents organes du système respiratoire.</i> | 36 |
| I.18 | <i>Rapport de la WHO</i> | 37 |
| I.19 | <i>Coût sociétal de la pollution atmosphérique</i> | 38 |
| II.1 | <i>Vue satellite de la Chine.</i> | 44 |
| II.2 | <i>Évolution du GDP, du parc automobile et de la consommation d'énergie.</i> | 47 |
| II.3 | <i>Évolution du partage du GDP mondial entre les principales puissances.</i> | 48 |
| II.4 | <i>Evolution de la population chinoise</i> | 50 |
| II.5 | <i>Expansion urbaine de différentes villes chinoises</i> | 51 |
| II.6 | <i>Ratio entre les besoins en eau et les ressources en eau.</i> | 52 |
| II.7 | <i>Echelle de calcul de l'AQI à partir des concentrations en PM_{2,5}</i> | 56 |
| III.1 | <i>Evolution des émissions entre 2001 et 2015.</i> | 59 |
| III.2 | <i>Distribution spatiale des émissions de SO₂.</i> | 60 |
| III.3 | <i>Emissions d'ammoniac en Chine.</i> | 61 |
| III.4 | <i>Evolution relative des émissions de NO₂.</i> | 62 |

| | | |
|--------|--|-----|
| III.5 | <i>Emissions de VOC en Chine.</i> | 62 |
| III.6 | <i>Localisation des différentes sources de pollution en Chine.</i> | 63 |
| III.7 | <i>Mesure de la composition de l'aérosol pour la fraction $PM_{2.5}$</i> | 64 |
| III.8 | <i>Distributions des mesures de $PM_{2.5}$ en Chine.</i> | 65 |
| III.9 | <i>Localisation des déserts d'Asie.</i> | 66 |
| III.10 | <i>Distribution des émissions de BC en Chine.</i> | 67 |
| III.11 | <i>Distribution spatiale et impact radiatif d'aérosols émis depuis la Chine.</i> | 68 |
| | | |
| IV.1 | <i>Localisation des différentes stations de mesures au sol.</i> | 74 |
| IV.2 | <i>Le satellite AURA et l'instrument OMI.</i> | 75 |
| IV.3 | <i>Incertitudes associées aux colonnes d'ammoniac IASI.</i> | 76 |
| IV.4 | <i>Le modèle CHIMERE.</i> | 81 |
| IV.5 | <i>Schéma de fonctionnement du solveur.</i> | 82 |
| IV.6 | <i>Orographie en Chine.</i> | 83 |
| IV.7 | <i>Influence des propriétés de surface.</i> | 86 |
| IV.8 | <i>Distribution spatiale de la hauteur de rugosité de surface.</i> | 88 |
| | | |
| V.1 | <i>Nuages de points par centiles, données du CRAES</i> | 96 |
| V.2 | <i>Comparaison des mesures journalières de $PM_{2.5}$.</i> | 99 |
| V.3 | <i>Épaisseurs optiques MODIS et CHIMERE.</i> | 101 |
| V.4 | <i>Nuage de points par centiles AOD.</i> | 101 |
| V.5 | <i>Colonnes de dioxyde d'azote en Chine OMI et CHIMERE.</i> | 103 |
| V.6 | <i>Nuage de points par centiles NO_2.</i> | 103 |
| | | |
| VI.1 | <i>IASI instrument NH_3 total columns over East China [$110^\circ E - 125^\circ E$; $20^\circ N - 45^\circ N$].</i> | 111 |
| VI.2 | <i>EDGAR-HTAP-v2.2 emissions for the year 2010.</i> | 112 |
| VI.3 | <i>Annual differences between HTAP inventories and corrected emissions from OMI.</i> | 113 |
| VI.4 | <i>Ammonia columns and changes for meteorological sensitivity test.</i> | 115 |
| VI.5 | <i>Gaseous and particulate inorganic species variation for the East China region.</i> | 115 |
| VI.6 | <i>Monthly variation of NH_3 compared to meteorological parameter changes</i> | 116 |
| VI.7 | <i>Ammonia columns and changes for emission sensitivity test.</i> | 117 |
| VI.8 | <i>Ammonium columns and changes for emission sensitivity test.</i> | 117 |
| VI.9 | <i>Gaseous and particulate inorganic species variation for the East China region.</i> | 118 |
| VI.10 | <i>Partial column Cations/Anions ratio and changes for emission sensitivity test.</i> | 119 |
| VI.11 | <i>Evolution of NO_x, SO_2, NH_3 and HNO_3 tropospheric columns.</i> | 120 |
| VI.12 | <i>Ammonia columns evolution for IASI [top] and CHIMERE.</i> | 121 |
| | | |
| VII.1 | <i>Mean annual dust emissions from the main arid areas in Asia, simulated with CHIMERE.</i> 135 | |
| VII.2 | <i>CHIMERE seasonal AOD.</i> | 136 |
| VII.3 | <i>AROIASI and CHIMERE AOD frequencies comparison.</i> | 137 |
| VII.4 | <i>Dust contribution to PM_{10}.</i> | 141 |
| VII.5 | <i>Boxplot distribution for PM_{10} contribuant concentrations.</i> | 143 |
| VII.6 | <i>Daily dust contribution to PM_{10} frequencies.</i> | 144 |
| | | |
| A.1 | <i>Photo de gardes rouges devant Tiananmen</i> | IV |
| A.2 | <i>Fresque historique simplifiée de la Chine</i> | V |
| A.3 | <i>Organigramme du PCC et PRC</i> | VI |

Table des figures

| | | |
|-----|-------------------------|------|
| E.1 | <i>Poster</i> | XXX |
| E.2 | <i>Poster</i> | XXXI |



Liste des tableaux

| | | |
|-------|--|-----|
| I.1 | <i>Humidité relative de déliquescence de différents électrolytes</i> | 30 |
| II.1 | <i>Standards de qualité de l'air en Chine</i> | 54 |
| II.2 | <i>Chronologies des implémentations des différentes réglementations.</i> | 55 |
| IV.1 | <i>Classification des stations par la méthode Flemming et al. [2005].</i> | 73 |
| IV.2 | <i>Émissions annuelles [Mt] issues de HTAP pour la sous-région de l'Est de la Chine.</i> | 80 |
| V.1 | <i>Résultats des comparaisons entre les mesures des polluants et les simulations</i> | 95 |
| V.2 | <i>Résultats statistiques des comparaisons nuage de points</i> | 97 |
| V.3 | <i>Résultats statistiques des comparaisons entre les mesures $PM_{2.5}$</i> | 98 |
| V.4 | <i>Comparaison des AOD AERONET et CHIMERE</i> | 100 |
| V.5 | <i>Résultats statistique des comparaisons des AOD MODIS et CHIMERE.</i> | 102 |
| V.6 | <i>Résultats statistique des comparaisons des colonnes de NO_2 OMI et CHIMERE.</i> | 104 |
| VI.1 | <i>Annual budgets of the EDGAR-HTAP-v2.2 inventory and of emissions corrected.</i> | 112 |
| VI.2 | <i>Description of the different experiments performed by CHIMERE.</i> | 114 |
| VI.3 | <i>Daily $PM_{2.5}$ comparison between model and measurements.</i> | 120 |
| VII.1 | <i>Mineral dust emissions from the different source regions.</i> | 134 |
| VII.2 | <i>Temporal correspondences between MODIS and CHIMERE AOD.</i> | 136 |
| VII.3 | <i>CHIMERE Model PM_{10} composition.</i> | 137 |
| VII.4 | <i>CHIMERE Model PM_{10} and $PM_{2.5}$ comparison to hourly measurements.</i> | 139 |
| VII.5 | <i>CHIMERE dust concentration vertical profiles.</i> | 139 |
| VII.6 | <i>CHIMERE contribution compared to bibliography.</i> | 142 |
| VII.7 | <i>Dust contribution to PM pollution episode.</i> | 145 |
| B.1 | <i>Liste des espèces du schéma chimique MELCHIOR2</i> | IX |
| B.2 | <i>Schéma chimique MELCHIOR2</i> | X |
| B.3 | <i>Paramètres provenant des modèles météorologiques</i> | XIV |



Liste des équations et réactions

| | | |
|------|--|----|
| I.1 | Calcul de la pression atmosphérique en fonction de l'altitude <i>a</i> I.1 | 11 |
| I.2 | Calcul du temps de vie d'une espèce I.2 | 13 |
| I.3 | Réaction type I.3 | 14 |
| I.4 | Calcul du temps de vie d'une espèce pour une réaction spécifique I.4 | 14 |
| I.6 | Formation de radicaux OH I.5 | 15 |
| I.6 | Perte de radicaux OH I.6 | 15 |
| I.7 | Vitesse de production de radicaux OH I.7 | 15 |
| I.9 | Formation de radicaux HO ₂ I.8 | 15 |
| I.9 | Formation de radicaux HO ₂ à partir de OH I.9 | 15 |
| I.10 | Oxydation du SO ₂ I.10 | 16 |
| I.11 | Production de HNO ₃ I.11 | 18 |
| I.12 | Réactions d'initiations du cycle O ₃ I.12 | 19 |
| I.13 | Formation de O ₃ I.13 | 19 |
| I.14 | Réaction de terminaison régime limité en NO _x I.14 | 20 |
| I.15 | Réaction de terminaison régime saturé en NO _x I.15 | 20 |
| I.16 | Vitesse production O ₃ , régime limité en NO _x I.16 | 20 |
| I.17 | Vitesse production O ₃ , régime saturé en NO _x I.17 | 20 |
| I.18 | Expréssion du flux de saltation selon White [1986] I.18 | 25 |
| I.19 | Expréssion du flux de sandblasting IV.19 | 25 |
| I.20 | calcul de la pression de vapeur saturante I.20 | 27 |
| I.21 | calcul de la pression de vapeur I.21 | 27 |
| I.22 | Équilibre du SO ₂ en phase aqueuse I.22 | 29 |
| I.23 | Neutralisation du NH ₃ par H ₂ SO ₄ I.23 | 29 |
| I.24 | Neutralisation du NH ₃ HNO ₃ I.24 | 29 |
| I.25 | Expression de l'AOD I.25 | 32 |
| I.26 | Calcul du coefficient d'Ångström I.26 | 32 |
| IV.1 | Calcul de P50DV IV.1 | 73 |
| IV.2 | Calcul de DVO3 IV.2 | 73 |
| IV.3 | Calcul des émissions de composés biogéniques IV.3 | 79 |
| IV.4 | Estimation des variabilités mensuelles des émissions par espèces IV.4 | 80 |
| IV.5 | Calcul de la variation de concentration d'une espèce dans CHIMERE IV.5 | 80 |
| IV.6 | Calcul discrétisé de la variation de concentration IV.5 | 81 |

| | | |
|-------|---|-----|
| IV.7 | Calcul de la variation de concentration liée aux émissions IV.7 | 81 |
| IV.8 | Calcul de la variation de concentration liée aux dépôt IV.8 | 81 |
| IV.9 | Calcul de la variation de concentration liée à la chimie IV.9 | 81 |
| IV.10 | Calcul de la variation de concentration liée au transport IV.10 | 81 |
| IV.11 | Calcul de la variation de concentration IV.11 | 81 |
| IV.12 | Équation d'Arrhenius IV.12 | 84 |
| IV.13 | Equation du calcul du coefficient d'absorption moyen IV.13 | 84 |
| IV.14 | Estimation de la vitesse de friction seuil IV.14 | 85 |
| IV.15 | Estimation de la vitesse de friction seuil pour une surface lisse IV.15 | 86 |
| IV.16 | Calcul de l'influence de la hauteur de rugosité IV.16 | 86 |
| IV.17 | Expréssion du flux de saltation IV.17 | 86 |
| IV.18 | Calcul de l'énergie cinétique des grains en saltation IV.18 | 87 |
| IV.19 | Expréssion du flux de sandblasting IV.19 | 87 |
| IV.20 | Détermination de la hauteur de rugosité IV.20 | 87 |
| IV.21 | Calcul du dépôt IV.21 | 88 |
| IV.22 | Calcul de la vitesse de dépôt IV.22 | 88 |
| IV.23 | Calcul de la vitesse de dépôt IV.23 | 89 |
| IV.24 | Calcul du dépôt IV.24 | 89 |
| V.1 | Calcul du coefficient de Pearson V.1 | 93 |
| V.2 | Calcul du biais normalisé V.2 | 93 |
| V.3 | Calcul de l'écart quadratique moyen normalisé V.3 | 93 |
| V.4 | Calcul du biais fractionnaire V.4a | 93 |
| V.4 | Calcul de l'erreur fractionnaire V.4b | 93 |
| V.5 | Calcul de l'épaisseur optique à 550 nm V.4b | 99 |
| VI.0 | Update of emissions VI.1 | 105 |
| VI.0 | NH_3/NH_4^+ equilibriums VI.2 | 105 |
| VI.0 | SO_2 oxydation reactions in gas phase VI.3 | 105 |
| VI.0 | SO_2 oxydation reactions in aqueous phase VI.4 | 105 |
| VI.0 | NH_3 reaction with HNO_3 VI.5 | 105 |
| VI.0 | C/A_{ratio} formula VI.6 | 105 |
| VII.0 | Saltation flux VII.1 | 125 |
| VII.0 | Sandblasting flux VII.2 | 125 |
| VII.0 | Calcul of desert contributions VII.3 | 125 |
| VII.0 | Calcul of MFB VII.4 | 125 |
| VII.0 | Calcul of MFE VII.5 | 125 |



Glossaire

| | | |
|------------------|--|---|
| AASQA : | <i>Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l’Air</i> | |
| ABL : | <i>Atmospheric Boundary Layer</i> | <i>Couche de mélange Atmosphérique</i> |
| ACSM : | <i>Aerosol Composition Speciation Monitor</i> | |
| ADEOS : | <i>Advanced Earth Observing Satellite</i> | |
| AERONET : | <i>AERosol RObotic NETwork</i> | |
| ALRI : | <i>Acute Lower Respiratory Disease</i> | |
| AOD : | <i>Aerosol Optical Depth</i> | <i>Épaisseur Optique</i> |
| AQI : | <i>Air Quality Index</i> | <i>Indice de Qualité de l’Air</i> |
| BC : | <i>Black Carbon</i> | |
| BRI : | <i>Belt and Road Initiative</i> | <i>Nouvelle route de la soie</i> |
| CCN : | <i>Cloud Condensation Nuclei</i> | <i>Noyau de condensation</i> |
| CNES : | <i>Centre national d’Études Spatiales</i> | |
| CNRS : | <i>Centre national de la Recherche Scientifique</i> | |
| COPD : | <i>Chronic Obstructive Pulmonary Disease</i> | |
| CRAES : | <i>Chinese Research Academy of Environmental Sciences</i> | |
| CTM : | <i>Chemistry Transport Model</i> | <i>Modèle de Chimie – Transport</i> |
| CVA : | <i>CerebroVascular accident</i> | |
| DRH : | <i>Deliquescence Relative Humidity</i> | <i>Humidité Relative de Déliquescence</i> |
| EC : | <i>Elementary Carbon</i> | <i>Carbone Élémentaire</i> |
| ECMWF : | <i>European Centre for Medium-Range Weather Forecasts</i> | |
| ELVOC : | <i>Extremly Low Volatile Organic C.</i> | <i>C. Org. Extrêmement peu Volatils</i> |
| EPLC : | <i>Environmental Protection Leadership Commission</i> | |
| ERH : | <i>Efflorescence Relative Humidity</i> | <i>Humidité Relative d’efflorescence</i> |

| | | |
|-------------------------------------|--|--|
| GB : | <i>Guobiao standards</i> | |
| GDP : | <i>Gross Domestic Product</i> | <i>Produit Intérieur Brut</i> |
| GNI : | <i>Gross National Income</i> | <i>Revenu National Brut</i> |
| GHG : | <i>Greenhouse Gases</i> | <i>Gas à effet de serre</i> |
| GOCART : | <i>Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport</i> | |
| IASI : | <i>Infrared Atmospheric Sounding Interferometer</i> | |
| ICN : | <i>Ice Condensation Nuclei</i> | <i>Noyau de condensation</i> |
| IHD : | <i>Ischemic Heart Disease</i> | |
| IPCC : | <i>Intergovernmental Panel on Climate Change</i> | |
| IR : | <i>Infra Red</i> | <i>Infra Rouge</i> |
| LAI : | <i>Leaf Area Index</i> | <i>Indice de Surface Foliaire</i> |
| LMDZ-INCA : | <i>Laboratoire de Météorologie Dynamique Zoom</i> | |
| LVOC : | <i>Low Volatile Organic C.</i> | <i>C. Organiques faiblement Volatils</i> |
| MEGAN-v2 : | <i>Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature-v2</i> | |
| MEP : | <i>Ministry of Ecology and Environment the People's Republic of China</i> | |
| MFB : | <i>Mean Fractional Bias</i> | <i>Biais Fractionnaire Moyen</i> |
| MFE : | <i>Mean Fractional Error</i> | <i>Erreur Fractionnaire Moyenne</i> |
| MODIS : | <i>Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer</i> | |
| NDVI : | <i>Normalized Difference Vegetation Index</i> | |
| NASA : | <i>National Aeronautics and Space Administration</i> | |
| NH₄⁺ : | <i>Ammonium</i> | |
| NMVOOC : | <i>Non-Methane Volatile Organic Compound</i> | |
| NO_x : | <i>Nitrogen Oxydes</i> | <i>Oxydes d'azotes</i> |
| NO₃⁻ : | <i>Nitrates</i> | |
| NPC : | <i>National People's Congress</i> | <i>Assemblée nationale populaire</i> |
| OC : | <i>Organic Carbon</i> | <i>Carbone Organique</i> |
| OECD : | <i>Organisation for Economic Co-operation and Development</i> | |
| OMI : | <i>Ozone Monitoring Instrument</i> | |
| PHOTON : | <i>PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire</i> | |
| PM₁₀ : | <i>Particule en suspension d'un diamètre inférieur à 10 µm</i> | |
| PM_{2.5} : | <i>Particule en suspension d'un diamètre inférieur à 2.5 µm</i> | |
| POLDER : | <i>POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances</i> | |
| PolEASIA : | <i>POLLution in Eastern ASIA</i> | |
| POA : | <i>Primary Organic Aerosol</i> | <i>Aérosol Organique Primaire</i> |

| | | |
|--------------------------------------|---|--|
| PPM : | <i>[anthropogenic] Primary Particle Matter</i> | |
| PPP : | <i>Purchasing Power Parity</i> | <i>Parité de pouvoir d'achat</i> |
| PRC : | <i>People's Republic of China</i> | <i>République populaire de Chine</i> |
| RMSE : | <i>Root Mean Square Error</i> | <i>Écart quadratique moyen</i> |
| SC : | <i>State council of PRC</i> | <i>Conseil des Affaires de l'État</i> |
| SNAP : | <i>Standardized Nomenclature for Air Pollutants</i> | |
| SO₂ : | <i>Sulfure dioxyde</i> | <i>Dioxyde de soufre</i> |
| SO₄²⁻ : | <i>Sulfates</i> | |
| SVOC : | <i>Semi - Volatile Organic Compounds</i> | <i>Composés Organiques Semi - Volatils</i> |
| TEOM : | <i>Tapered Element Oscillating Monitor</i> | |
| VOC : | <i>Volatile Organic Compounds</i> | <i>Composés Organiques Volatils</i> |
| WHO : | <i>World Health Organization</i> | <i>Organisation Mondiale de la Santé</i> |

ANNEXE

A

Quelques marqueurs de l’histoire récente de la République populaire

Cette section présente succinctement divers marqueurs essentiels de l’histoire récente de la PRC, ainsi que leurs empreintes sur la société et sur certaines figures majeures de la PRC. Ces précisions permettent une approche plus complète de l’évolution et des spécificités de la société chinoise, mais ne traitent pas le problème en des termes reliés aux sciences environnementales.

A.1 La guerre civile [1927 – 1950] et ses mythes

La Guerre civile chinoise oppose le Kuomintang, le parti nationaliste chinois, au Parti Communiste Chinois, de 1927 à 1950. Elle est la suite de la rupture violente d’une alliance conclue au début du siècle entre le Kuomintang et le CCP. Une association qui est établie dans le but d’unifier le gouvernement de la République populaire de Chine, face aux seigneurs de guerres regroupés sous le gouvernement de Beiyang et contrôlant la partie Nord du pays. En 1927, le chef du Kuomintang, Tchang Kai-chek [1887 – 1975], défait les seigneurs de guerre du Nord de la Chine, mais se retrouve en conflit avec la branche « à gauche » de son propre parti. Il parvient néanmoins à imposer sa vision et son gouvernement, lequel sera basé à Nankin, en 1927. Tchang Kai-chek est à l’origine de la scission entre nationaliste et communistes, et poursuit les affrontements entre les deux factions politiques de 1927 à 1937. Durant cette période, les troupes du CCP sont plusieurs fois prises en défaut par les avancées des troupes nationalistes, et sont contraintes à des mouvements de retraite, à l’image du périple dit de la « La Longue Marche » qui s’étend du 15 octobre 1934 au 19 octobre 1935. Pendant cette année, les factions de l’armée rouge en retraite parcourent 12 000 km, et voient leurs effectifs se réduire à 20 000/30 000 individus, contre environ 120 000 soldats au départ. Cet épisode marque l’ascension de Mao à une position dominante dans la direction du CCP. Durant le conflit entre le Japon et la République de Chine de 1937 à 1945, dans le cadre de la Seconde Guerre mondiale, les nationalistes et communistes s’unissent en réponse aux ambitions expansionnistes du Japon [Accords de Xi’an].

Le conflit qui oppose nationalistes et communistes reprend rapidement à la fin de la Seconde Guerre Mondiale et de la capitulation du Japon. Les troupes communistes s’étendent dans les campagnes alors que les dirigeants du Kuomintang se regroupent dans les villes, laissant les communistes rallier de plus en plus de soldats à leur armée. A partir de 1947 les troupes communistes progressent sensiblement, et prennent la ville de Pékin au début de l’année 1949. La République populaire de Chine est proclamée le 1^{er} Octobre depuis le balcon de Tiananmen par Mao, et la PRC termine sa conquête de la Chine continentale en 1950, Tchang Kai-chek et le gouvernement de la République de Chine se replie sur l’île de Taiwan.

La Chine actuelle est donc issue de ce conflit et de la victoire du CCP, avec une première longue période de gouvernance Maoïste [1949 – 1976], puis à l’arrivée de Deng Xiaoping [1978 – 1989] qui façonnera la Chine telle qu’elle se présente aujourd’hui.

A.2 La grande révolution culturelle prolétarienne



FIGURE A.1 – À gauche : photo de gardes rouges devant Tiananmen [photo de Weng Naiqiang, vers 1966], à droite : « The Chinese People's Liberation Army is the great school of Mao Zedong Thought » Image de propagande durant la période de la révolution culturelle.

Face à l'échec du « Grand Bond en Avant » et devant ses conséquences, Mao doit démissionner de son poste de Président de la PRC et Liu Shaoqi est élu pour le remplacer. Mao et Liu, les deux figures principales du pays, l'un en tant que premier ministre du CCP et le second en tant que Président de la PRC, sont rapidement en conflit. Liu Shaoqi souhaite adopter un modèle plus modéré et moderne que celui que Mao préconise. Ce dernier se retrouve peu à peu éloigné des cercles de décisions, qui incombent à une élite restreinte plus modérée, parmi laquelle on retrouve Deng Xiaoping.

La révolution culturelle marque un affrontement ouvert entre Mao et Liu Shaoqi, qui débute en 1966. La révolution est souvent symbolisée par le « petit livre rouge », un recueil de citations du Grand Timonier, et par les gardes rouges, qui sont à l'initiative des actions et violences de la révolution culturelle. Son objectif affirmé est de mettre fin à ce que Mao nomme les « 4 vieilleries » : les vieilles idées, la vieille culture, les vieilles coutumes et les vieilles habitudes. Les gardes rouges ont été l'instrument qui a permis la mise en œuvre des ambitions politiques de Mao et de ses proches [Lin Biao 1907 – 1971 ; la Bande des quatre...], en soumettant les personnes suspectées de pensées « contre révolutionnaires » à des séances d'autocritique – dans le but d'humilier et de réformer la pensée de la victime. Cette période de trouble permet à Mao de retrouver une position forte et d'évincer une partie de ces rivaux politiques, en les discréditant et en les éloignant du pouvoir, comme Deng Xiaoping et Liu Shaoqi, qui décédera en prison en 1969.

La Chine est entraînée dans une guerre civile latente, et Mao se résout à faire appel à l'armée régulière de la PRC afin de contenir les gardes rouges dans leurs dissensions politiques et exactions à l'encontre de la population. Entre 1967 à 1978, près de 17 millions de jeunes chinois urbains instruits, dont 4.7 millions de gardes rouges sont envoyés à la campagne sous la contrainte, soit une personne sur deux appartenant à cette génération. En 1969, l'actuel président de la PRC Xi Jinping est envoyé parmi le mouvement d'envois des zhiqing [terme chinois pour « instruits »] à la campagne, pour servir le peuple des paysans et ouvriers, il vit alors dans la province du Shaanxi pendant 7 ans, entre ses 15 ans et 22 ans. Un épisode qui est aujourd'hui exploité dans la communication politique construite autour de la personnalité du président de la PRC, il est d'ailleurs possible de visiter la cave troglodyte qui l'a accueilli durant cette période.

La révolution culturelle se termine au décès de Mao le 15 juin 1976. Pour une courte période, Hua Guofeng [1921 – 2008] le successeur désigné de Mao, prend sa suite à la tête du CCP et de l'État. Un rapprochement s'opère alors entre les cadres purgés durant les années de la révolution culturelle et ceux toujours en place au sein du CCP, et Hua Guofeng perd de l'influence au sein du parti et est remplacé dès 1978 aux postes de Président de la PRC et de Président du CCP par des proches de Deng Xiaoping. Deng n'occupera officiellement que le poste de président de la Commission militaire centrale, mais sera, dans les faits, le véritable dirigeant du régime à partir de 1978 [2nd Génération de dirigeants Chinois], signifiant la fin de la direction par l'idéologie Maoïste de la Chine.

A.3 Historique des dirigeants et évènements marquants

La Fresque présentée sur la Figure A.2 regroupe les principaux évènements marquants du 20^{ème} siècle chinois, ainsi que les principaux gouvernants qui se sont succédés durant cette période.

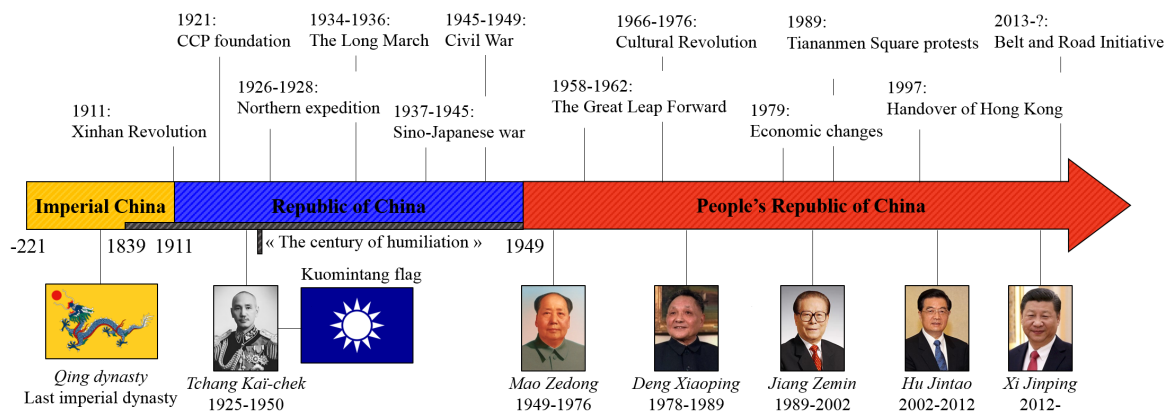


FIGURE A.2 – Fresque historique simplifiée de la Chine

A.4 L'organisation de la République populaire de Chine

L'organisation de la République populaire de Chine est représentée sur la Figure A.3 ainsi que la structure du Parti Communiste Chinois. Bien que le parti [qui compte 87 millions de membres en 2015] ne soit pas considéré comme une institution officielle de l'état, l'ensemble des membres des strates les plus élevées du parti [Membre du Politburo, du comité central ou délégués du congrès] sont assignés à l'ensemble des fonctions les plus importantes au sein des institutions de l'état, et le CCP dirige de facto la république. L'exemple le plus significatif est celui de l'actuel président de la PRC, Xi Jinping, qui est à la fois secrétaire général du CCP, président de la Commission militaire centrale ainsi que président de la République populaire de Chine. Aussi, 2119 des 2980 membres de l'Assemblée nationale populaire [NPC, *National People's Congress*], qui représente la pouvoir législatif de la PRC, sont issus des rangs du CCP.

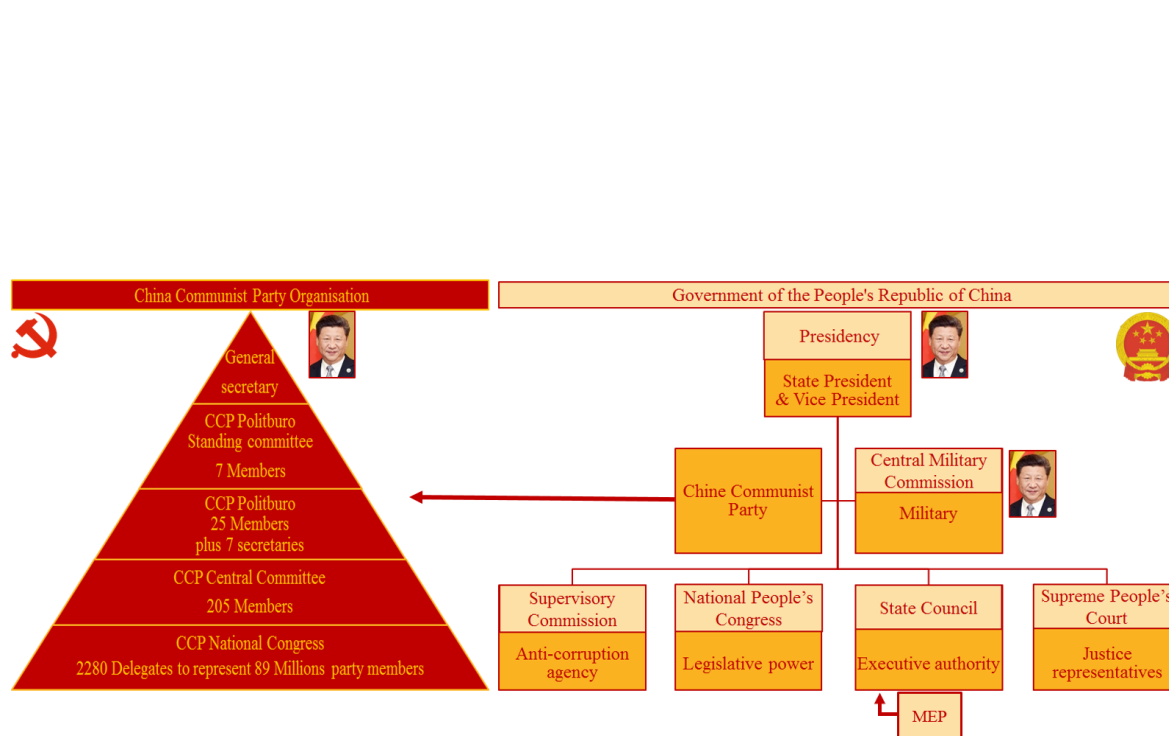


FIGURE A.3 – À gauche : organigramme du Parti Communiste Chinois, à droite : organigramme du gouvernement de la République populaire de Chine, 2018.

ANNEXE

B

Description de CHIMERE

Je remercie GUILLAUME SIOUR pour m'avoir fourni les documents ayant permis la réalisation de cet annexe, depuis [Siour \[2012\]](#).

B.1 Les schémas chimiques

TABLE B.1 – Liste des espèces du schéma chimique MELCHIOR2

| Espèce modèle | Nom | Espèce modèle | Nom |
|---------------------------------|-----------------------|----------------------------------|--|
| Composés inorganiques | | | |
| O ₃ | Ozone | CH ₃ CHO | Acétaldehyde |
| H ₂ O ₂ | Péroxyde d'hydrogène | CH ₃ COE | Méthyle éthyle cétone |
| OH | Radical hydroxyle | GLYOX | Glyoxal |
| HO ₂ | Radical hydroperoxyde | MGLYOX | Méthyle glyoxal |
| NO | Oxyde d'azote | CH ₃ COY | Diméthyle glyoxal |
| NO ₂ | Dioxyde d'azote | MEMALD | Dicarbonyles insaturés réagissant comme le 4-oxo-2-pentanal |
| NO ₃ | Radical nitrate | MVK | Méthyle Vinyle Cétone |
| N ₂ O ₅ | Pentoxyde de diazote | MAC | Methacroléine |
| HONO | Acide nitreux | Nitrates Organiques | |
| HNO ₃ | Acide nitrique | PAN | Péroxyacétyle nitrate |
| CO | Monoxyde de carbone | CARNIT | Carbonyle nitrate pris comme α -nitroxy actéone |
| SO ₂ | Dioxyde de soufre | ISNI | Nitrates insaturés produits par C ₅ H ₈ |
| H ₂ SO ₄ | Acide Sulfurique | Péroxydes organiques | |
| Hydrocarbures | | | |
| CH ₄ | Méthane | CH ₃ O ₂ H | Hydroperoxyde de méthyle |
| C ₂ H ₆ | Éthane | PPA | Acide péacétique |
| NC ₄ H ₁₀ | n-butane | Radicaux Peroxyle | |
| C ₂ H ₄ | Éthène | CH ₃ O ₂ | Radical méthyle peroxyde |
| C ₃ H ₆ | Propène | CH ₃ COO | Radical peroxyde actéthyle |
| OXYL | o-xylène | Opérateurs chimiques | |
| C ₅ H ₈ | Isoprène | oRO ₂ | Radical peroxyde produit par OH+COV |
| APINEN | α -pinène | oROOH | Radical hydroperoxyde produit par oRO ₂ |
| BPINEN | β -pinène | obio | Radical peroxyde biogénique produit par OCIMEN, APINEN, BPINEN, LIMONE, TERPEN, HUMULE et C ₅ H ₈ |
| LIMONE | Limonène | obioH | Radical hydroperoxyde biogénique produit par obio |
| TERPEN | Terpènes lumpés | oPAN | Représente les analogues des PAN |
| HUMULE | Humulène lumpé | PANH | Produit par oPAN+HO ₂ |
| OCIMEN | Ocimène lumpé | toPAN | Produit par oPAN+NO ₂ |
| Carbonyles | | | |
| HCHO | Formaldéhyde | oRN1 | Nitrates organiques produit par C ₂ H ₄ , C ₃ H ₆ , C ₅ H ₈ , APINEN, BPINEN, LIMONE, TERPEN, HUMULE, OCIMEN et ISNI |

TABLE B.2 – Schéma chimique MELCHIOR2

| Réaction | Constante cinétique |
|--|---|
| Chimie Inorganique | |
| O3+NO→NO2 | $k(T)=\exp^{(-B/T)}$, A=1.8e-12, B=1370 |
| O3+NO2→NO3 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=1.2e-13, B=2450 |
| O3+OH→HO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=1.9e-12, B=1000 |
| O3+HO2→OH | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=1.4e-14, B=600 |
| NO+HO2→OH+NO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=3.7e-12, B=-240 |
| NO2+OH+M→HNO3 | $k(T,M)=\text{mtroe}(3.4e-30,0,3,2,4.77e-11,0,1.4,0.30)$ |
| HO2+OH→H2O | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=4.8e-11, B=-250 |
| H2O2+OH→HO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=2.9e-12, B=160 |
| HNO3+OH→NO3 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=5.5e-15, B=-985 |
| CO+OH→HO2+CO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}(300/T)**N$, A=2e-13, B=0, N=1 |
| HO2+HO2→H2O2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=2.2e-13, B=-740 |
| HO2+HO2+H2O→H2O2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=4.52e-34, B=-2827 |
| NO3+HO2→NO2+OH | $k=4e-12$ |
| NO3+H2O2→HNO3+HO2 | $k=2e-15$ |
| NO3+NO→2*NO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=1.8e-11, B=-110 |
| NO2+NO3→NO+NO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=4.5e-14, B=1260 |
| NO2+NO3+M→N2O5 | $k(T,M)=\text{troe}(2.7e-30,0,3,4,2e-12,0,-0.2,0.33)$ |
| N2O5+M→NO3+NO2 | $k(T,M)=\text{troe}(1e-3,11000,3,5,9.7e14,11080,-0.1,0.33)$ |
| NO+OH+M→HONO | $k(T,M)=\text{troe}(7.e-31,0,2,6,1.5e-11,0,0.5,0.6)$ |
| HONO+OH→NO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=1.8e-11, B=390 |
| NO+NO+O2→2*NO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=3.30E-39, B=-530.0 |
| N2O5+H2O→2*HNO3 | $k=2.6e-22$ |
| N2O5+H2O+H2O→2*HNO3 | $k=2e-39$ |
| Réaction de surface, Aumont et al. [2003] | |
| NO2→HONO+NO2 | $k_s=0.5*\text{depo}(\text{NO}_2)$ |
| Chimie des SO_X | |
| SO2+CH3O2→H2SO4+HCHO+HO2 | $k=4e-17$ |
| SO2+OH+M→H2SO4+HO2 | $k(T,M)=\text{troe}(4e-31,0,3,3,2e-12,0,0,0.45)$ |
| Opérateurs des COV Biogéniques | |
| obio+NO→0.86*NO2+0.78*HO2+0.14*ISNI | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=1.6e-11, B=180 |
| obio+HO2→obioH | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=2.7e-13, B=-1000 |
| obio+NO3→NO2+HO2 | $k=1.2e-12$ |
| CH3O2+obio→0.8*HO2+0.5*HCHO | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=2.44e-11, B=223 |
| CH3COO+obio→0.5*HCHO+1.5*HO2+0.7*CO2 | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=1.18e-11, B=127 |
| obioH+OH→OH | $k=8e-11$ |
| Opérateur oRO₂ | |
| oRO2+NO→NO2+HO2 | $k=4e-12$ |
| oRO2+HO2→oROOH | $k(T)=A\exp^{(-B/T)}$, A=2.7e-13, B=-1000 |
| oRO2+oRO2→1.3*HO2 | $k=6.4e-14$ |
| oRO2+NO3→NO2+HO2 | $k=1.2e-12$ |

à suivre...

| Réaction | Constante cinétique |
|---|--|
| <i>suite</i> | |
| $\text{CH}_3\text{O}_2 + \text{oRO}_2 \rightarrow 0.65 * \text{HCHO} + 0.8 * \text{HO}_2 + 0.35 * \text{CH}_3\text{OH}$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=1.5e-13, B=-220$ |
| $\text{CH}_3\text{COO} + \text{oRO}_2 \rightarrow 0.8 * \text{CH}_3\text{O}_2 + 0.8 * \text{CO}_2 + 0.8 * \text{HO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=8.6e-13, B=-260$ |
| $\text{oROOH} + \text{OH} \rightarrow 0.8 * \text{OH} + 0.2 * \text{oRO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=4.35e-12, B=-455$ |
| Opérateur PAN | |
| $\text{MAC} + \text{OH} \rightarrow 0.5 * \text{CH}_3\text{COE} + 0.5 * \text{CO}_2 + 0.5 * \text{oPAN}$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=1.86e-11, B=-175$ |
| $\text{oPAN} + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{HO}_2$ | $k=1.4e-11$ |
| $\text{oPAN} + \text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{HO}_2$ | $k=4e-12$ |
| $\text{oPAN} + \text{HO}_2 \rightarrow \text{PANH}$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=2.7e-13, B=-1000$ |
| $\text{PANH} + \text{OH} \rightarrow 0.2 * \text{oPAN}$ | $k=1.64e-11$ |
| $\text{oPAN} + \text{CH}_3\text{O}_2 \rightarrow \text{HCHO} + 0.5 * \text{HO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=7.9e-12, B=-140$ |
| $\text{oPAN} + \text{CH}_3\text{COO} \rightarrow \text{CH}_3\text{O}_2 + \text{CO}_2 + \text{HO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=5.6e-12, B=-530$ |
| $\text{oPAN} + \text{NO}_2 + \text{M} \rightarrow \text{toPAN}$ | $k(T, M) = \text{troe}(2.7e-28, 0, 7.1, 1.2e-11, 0, 0.9, 0.3)$ |
| $\text{toPAN} + \text{M} \rightarrow \text{oPAN} + \text{NO}_2$ | $k(T, M) = \text{troe}(4.9e-3, 12100, 0, 5.4e16, 13830, 0, 0.3)$ |
| $\text{toPAN} + \text{OH} \rightarrow \text{NO}_3 + \text{CO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=3.25e-13, B=-500$ |
| Opérateur nitrates | |
| $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{NO}_3 \rightarrow 0.5 * \text{CARNIT} + \text{HCHO} + \text{oRN1}$ | $k=2e-16$ |
| $\text{C}_3\text{H}_6 + \text{NO}_3 \rightarrow 0.5 * \text{CARNIT} + 1.5 * \text{HCHO} +$ | ... |
| $0.5 * \text{CH}_3\text{CHO} + 0.5 * \text{HO}_2 + \text{oRN1}$ | $k=9.45e-15$ |
| $\text{ISNI} + \text{OH} \rightarrow \text{oRN1} + 0.95 * \text{CH}_3\text{CHO} + 0.475 * \text{CH}_3\text{COE} +$ | ... |
| $0.475 * \text{MGLYOX} + 0.05 * \text{ISNI} + 0.05 * \text{HO}_2$ | $k=3.4e-11$ |
| $\text{C}_5\text{H}_8 + \text{NO}_3 \rightarrow \text{oRN1} + 0.85 * \text{ISNI} + 0.1 * \text{MAC} +$ | ... |
| $0.05 * \text{MVK} + 0.15 * \text{HCHO} + 0.8 * \text{HO}_2$ | $k=7.8e-13$ |
| $\text{oRN1} + \text{NO} \rightarrow 1.5 * \text{NO}_2$ | $k=4e-11$ |
| $\text{oRN1} + \text{NO}_3 \rightarrow 1.5 * \text{NO}_2$ | $k=1.2e-12$ |
| $\text{oRN1} + \text{HO}_2 \rightarrow \text{X}$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=2.7e-13, B=-1000$ |
| Oxydation des hydrocarbures avec le radical OH | |
| $\text{CH}_4 + \text{OH} \rightarrow \text{CH}_3\text{O}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=2.3e-12, B=1765$ |
| $\text{C}_2\text{H}_6 + \text{OH} \rightarrow \text{CH}_3\text{CHO} + \text{oRO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=7.9e-12, B=1030$ |
| $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{OH} + \text{M} \rightarrow 2 * \text{HCHO} + \text{oRO}_2$ | $k(T, M) = \text{troe}(7e-29, 0, 3.1, 9e-12, 0, 0, 0.7)$ |
| $\text{C}_3\text{H}_6 + \text{OH} + \text{M} \rightarrow \text{HCHO} + \text{CH}_3\text{CHO} + \text{oRO}_2$ | $k(T, M) = \text{troe}(8e-27, 0, 3.5, 3e-11, 0, 0, 0.5)$ |
| $\text{NC}_4\text{H}_{10} + \text{OH} \rightarrow 0.9 * \text{CH}_3\text{COE} + 0.1 * \text{CH}_3\text{CHO} +$ | ... |
| $0.1 * \text{CH}_3\text{COO} + 0.9 * \text{oRO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T) (300/T) ** N, A=1.36e-12, B=-190, N=-2$ |
| $\text{OXYL} + \text{OH} \rightarrow \text{MEMALD} + \text{MGLYOX} + \text{oRO}_2$ | $k=1.37e-11$ |
| Oxydation des carbonyles et peroxydes avec le radical OH | |
| $\text{HCHO} + \text{OH} \rightarrow \text{CO} + \text{HO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=8.6e-12, B=-20$ |
| $\text{CH}_3\text{CHO} + \text{OH} \rightarrow \text{CH}_3\text{COO}$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=5.6e-12, B=-310$ |
| $\text{MEMALD} + \text{OH} \rightarrow \text{GLYOX} + \text{MGLYOX} + \text{oRO}_2$ | $k=5.6e-11$ |
| $\text{CH}_3\text{COE} + \text{OH} \rightarrow \text{CH}_3\text{COY} + \text{oRO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T) (300/T) ** N, A=2.92e-13, B=-414, N=-2$ |
| $\text{GLYOX} + \text{OH} \rightarrow 2 * \text{CO} + \text{HO}_2$ | $k=1.1e-11$ |
| $\text{MGLYOX} + \text{OH} \rightarrow \text{CH}_3\text{COO} + \text{CO}$ | $k=1.5e-11$ |
| $\text{MVK} + \text{OH} \rightarrow 0.266 * \text{MGLYOX} + 0.266 * \text{HCHO} + 0.684 * \text{CH}_3\text{CHO} +$ | ... |
| $0.684 * \text{CH}_3\text{COO} + 0.05 * \text{ISNI} + 0.95 * \text{oRO}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=4.1e-12, B=-453$ |
| $\text{CH}_3\text{O}_2\text{H} + \text{OH} \rightarrow \text{CH}_3\text{O}_2$ | $k(T) = A \exp(-B/T), A=1.9e-12, B=-190$ |

à suivre...

| Réaction | Constante cinétique |
|--|---|
| <i>suite</i> | |
| PPA+OH→CH3COO | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=1.9e-12, B=-190 |
| CH3O2H+OH→HCHO+OH | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=1.e-12, B=-190 |
| Oxydation avec le radical NO₃ | |
| HCHO+NO ₃ →CO+HNO ₃ +HO ₂ | k=5.8e-16 |
| CH3CHO+NO ₃ →CH3COO+HNO ₃ | k=2.8e-15 |
| CH3O ₂ +NO ₃ →HCHO+HO ₂ +NO ₂ | k=1.2e-12 |
| CH3COO+NO ₃ →CH3O ₂ +NO ₂ +CO ₂ | k=4e-12 |
| Ozonolyse | |
| C ₂ H ₄ +O ₃ →HCHO+0.12*HO ₂ +0.13*H ₂ +0.44*CO | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=9.1e-15, B=2580 |
| C ₃ H ₆ +O ₃ →0.53*HCHO+0.5*CH ₃ CHO+0.31*CH ₃ O ₂ + 0.28*HO ₂ +0.15*OH+0.065*H ₂ +0.4*CO+0.7*CH ₄ | ... |
| C ₅ H ₈ +O ₃ →0.67*MAC+0.26*MVK+0.55*OH+0.07*C ₃ H ₆ + 0.8*HCHO+0.06*HO ₂ +0.05*CO+0.3*O ₃ | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=5.5e-15, B=1880 |
| MAC+O ₃ →0.8*MGLYOX+0.7*HCHO+0.215*OH+ 0.275*HO ₂ +0.2*CO+0.2*O ₃ | ... |
| MVK+O ₃ →0.82*MGLYOX+0.8*HCHO+0.04*CH ₃ CHO+ 0.08*OH+0.06*HO ₂ +0.05*CO+0.2*O ₃ | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=1.2e-14, B=2013 |
| | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=5.3e-15, B=2520 |
| | ... |
| | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=4.3e-15, B=2016 |
| Conversion des radicaux organiques | |
| CH ₃ O ₂ +NO→HCHO+NO ₂ +HO ₂ | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=4.2e-12, B=-180 |
| CH ₃ COO+NO→CH ₃ O ₂ +NO ₂ +CO ₂ | k=2e-11 |
| Recombinaison des radicaux organiques | |
| CH ₃ O ₂ +HO ₂ →CH ₃ O ₂ H | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=4.1e-13, B=-790 |
| CH ₃ COO+HO ₂ →0.67*PPA+0.33*O ₃ | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=4.3e-13, B=-1040 |
| CH ₃ O ₂ +CH ₃ O ₂ →1.35*HCHO+0.7*HO ₂ | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=1.13e-13, B=-356 |
| CH ₃ COO+CH ₃ O ₂ →0.5*CH ₃ O ₂ +0.5*CO ₂ + HCHO+0.5*HO ₂ | ... |
| CH ₃ COO+CH ₃ COO→2.*CH ₃ O ₂ +2.*CO ₂ | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=3.34e-12, B=-400 |
| | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=2.8e-12, B=-530 |
| Nitrates organiques | |
| CH ₃ COO+NO ₂ +M→PAN | $k(T,M)=\text{troe}(2.7e-28,0,7.1,1.2e-11,0,0.9,0.3)$ |
| PAN+M→CH ₃ COO+NO ₂ | $k(T,M)=\text{troe}(4.9e-3,12100,0,5.4e16,13830,0,0.3)$ |
| PAN+OH→HCHO+NO ₃ +CO ₂ | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=9.5e-13, B=650 |
| CARNIT+OH→CH ₃ CHO+CO+NO ₂ | $k(T)=A\exp(-B/T)$, A=5.6e-12, B=-310 |
| Réactions de photolyses | |
| O ₃ →2*OH | J(T,Z,H ₂ O)=photorate(O ₃) |
| NO ₂ →NO+O ₃ | J(Z)=photorate(NO ₂) |
| NO ₃ →NO | J(Z)=photorate(NO ₃ -1) |
| NO ₃ →NO ₂ +O ₃ | J(Z)=photorate(NO ₃ -2) |
| H ₂ O ₂ →2*OH | J(Z)=photorate(H ₂ O ₂) |
| HNO ₃ →NO ₂ +OH | J(Z)=photorate(HNO ₃) |
| HONO→NO+OH | J(Z)=photorate(HONO) |
| HCHO→CO+2*HO ₂ | J(Z)=photorate(HCHO-1) |
| HCHO→CO+H ₂ | J(Z)=photorate(HCHO-2) |
| CH ₃ CHO→CH ₃ O ₂ +HO ₂ +CO | J(Z)=photorate(CH ₃ CHO) |
| <i>à suivre...</i> | |

| Réaction | Constante cinétique |
|---|---|
| <i>suite</i> | <i>suite</i> |
| CH3COY → 2*CH3COO | J(Z)=photorate(CH3COY) |
| MGLYOX → CH3COO+HO2+CO | J(Z)=photorate(MGLYOX) |
| GLYOX → 0.6*HO2+2*CO+1.4*H2 | J(Z)=photorate(GLYOX) |
| MEMALD → 0.5*MVK+0.5*MALEIC+0.5*oPAN+ 0.5*HCHO+0.5*HO2 | ... J(Z)=photorate(MEMALD) |
| CH3COE → CH3COO+CH3CHO+oRO2 | J(Z)=photorate(CH3COE) |
| N2O5 → NO2+NO3 | J(Z)=photorate(N2O5) |
| CH3O2H → HCHO+OH+HO2 | J(Z)=photorate(CH3O2H) |
| PPA → CH3O2+CO2+OH | J(Z)=photorate(PPA) |
| PAN → CH3COO+NO2 | J(Z)=photorate(PAN) |
| PANH → OH+HO2 | J(Z)=photorate(PANH) |
| oROOH → OH+HO2 | J(Z)=photorate(oROOH) |
| obioH → OH+HO2 | J(Z)=photorate(obioH) |
| Chimie des Biogéniques | |
| APINEN+NO3 → CH3CHO+CH3COE+oRN1 | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.19e-12, B=-490 |
| BPINEN+NO3 → CH3CHO+CH3COE+oRN1 | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.19e-12, B=-490 |
| LIMONE+NO3 → CH3CHO+CH3COE+oRN1 | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.19e-12, B=-490 |
| OCIMEN+NO3 → CH3CHO+CH3COE+oRN1 | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.19e-12, B=-490 |
| TERPEN+NO3 → CH3CHO+CH3COE+oRN1 | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.19e-12, B=-490 |
| HUMULE+NO3 → CH3CHO+CH3COE+oRN1 | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.19e-12, B=-490 |
| APINEN+OH → 0.8*CH3CHO+0.8*CH3COE+obio | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.21e-11, B=-444 |
| BPINEN+OH → 0.8*CH3CHO+0.8*CH3COE+obio | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.21e-11, B=-444 |
| LIMONE+OH → 0.8*CH3CHO+0.8*CH3COE+obio | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.21e-11, B=-444 |
| OCIMEN+OH → 0.8*CH3CHO+0.8*CH3COE+obio | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.21e-11, B=-444 |
| TERPEN+OH → 0.8*CH3CHO+0.8*CH3COE+obio | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.21e-11, B=-444 |
| HUMULE+OH → 0.8*CH3CHO+0.8*CH3COE+obio | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.21e-11, B=-444 |
| APINEN+O3 → 1.27*CH3CHO+0.53*CH3COE+0.14*CO+ 0.62*oRO2+0.42*HCHO+0.85*OH+0.1*HO2 | ... k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.0e-15, B=736 |
| BPINEN+O3 → 1.27*CH3CHO+0.53*CH3COE+0.14*CO+ 0.62*oRO2+0.42*HCHO+0.85*OH+0.1*HO2 | ... k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.0e-15, B=736 |
| LIMONE+O3 → 1.27*CH3CHO+0.53*CH3COE+0.14*CO+ 0.62*oRO2+0.42*HCHO+0.85*OH+0.1*HO2 | ... k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.0e-15, B=736 |
| TERPEN+O3 → 1.27*CH3CHO+0.53*CH3COE+0.14*CO+ 0.62*oRO2+0.42*HCHO+0.85*OH+0.1*HO2 | ... k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.0e-15, B=736 |
| OCIMEN+O3 → 1.27*CH3CHO+0.53*CH3COE+0.14*CO+ 0.62*oRO2+0.42*HCHO+0.85*OH+0.1*HO2 | ... k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.0e-15, B=736 |
| HUMULE+O3 → 1.27*CH3CHO+0.53*CH3COE+0.14*CO+ 0.62*oRO2+0.42*HCHO+0.85*OH+0.1*HO2 | ... k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=1.0e-15, B=736 |
| C5H8+OH → 0.32*MAC+0.42*MVK+0.74*HCHO+obio | k(T)=Aexp ^(-B/T) , A=2.55e-11, B=-410 |

B.2 Les paramètres météorologiques

TABLE B.3 – Paramètres provenant des modèles météorologiques

| Name | Variable | Dimension | Unité |
|-----------------------|--|-----------|----------------------------------|
| winz | Composante zonale du vent | 3D | m.s^{-1} |
| winm | Composante méridionale du vent | 3D | m.s^{-1} |
| temp | Température | 3D | K |
| sphu | Humidité spécifique | 3D | kg.kg^{-1} |
| alti | Altitude | 3D | m |
| pres | Pression | 3D | Pa |
| cliq | Contenue en eau des nuages | 3D | kg.kg^{-1} |
| tem2 | Température à 2m | 2D | k |
| copc | Précipitation convective | 2D | $\text{kg.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ |
| lspc | Précipitation de grande échelle | 2D | $\text{kg.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ |
| Variables optionelles | | | |
| rain | Pluies ¹ | 3D | kg.kg^{-1} |
| cice | Glaces ¹ | 3D | kg.kg^{-1} |
| sshf | Flux de chaleur sensible ² | 2D | W.m^{-2} |
| slhf | Flux de chaleur latent ² | 2D | W.m^{-2} |
| u* | Vitesse de friction ² | 2D | m.s^{-1} |
| hght | Hauteur de couche limite ² | 2D | m |
| lowc | Hauteur de la fraction basse des nuages ¹ | 2D | m |
| medc | Hauteur de la fraction moyenne des nuages ¹ | 2D | m |
| higc | Hauteur de la fraction haute des nuages ¹ | 2D | m |

1. Utilisé pour l'atténuation des taux de photolyses

2. Peut être recalculé par le modèle

C

The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations

Cette section présente les figures supplémentaires associées au Chapitre VI "The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations over China", page 105.

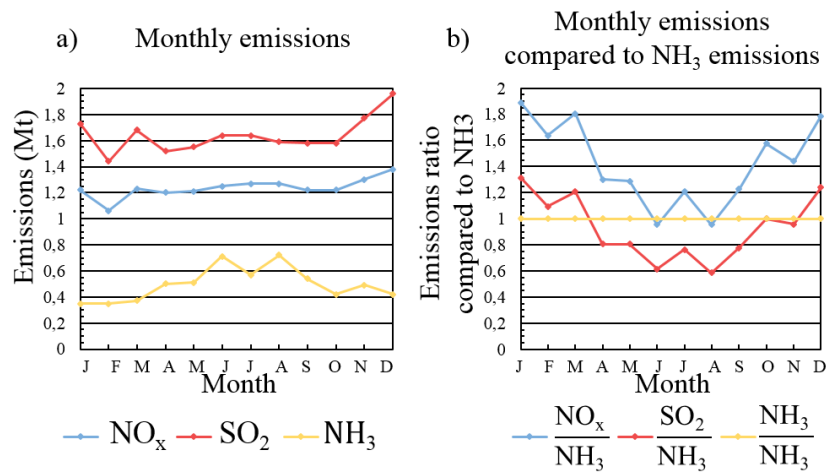


Figure S1. a) Emissions monthly profile for East China from HTAP 2010, in Mt b) emissions monthly profile molar ratio compared to NH₃ emissions, from HTAP 2010.

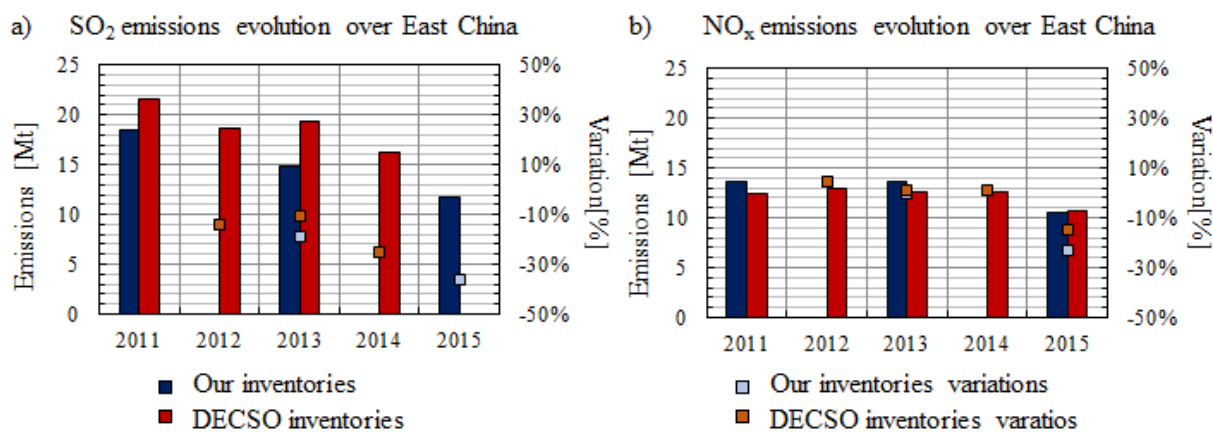


Figure S2. a) SO₂ and b) NO_x emission inventories comparison between our updated inventory and DECSO inventory, Over East China, not including maritime traffic.

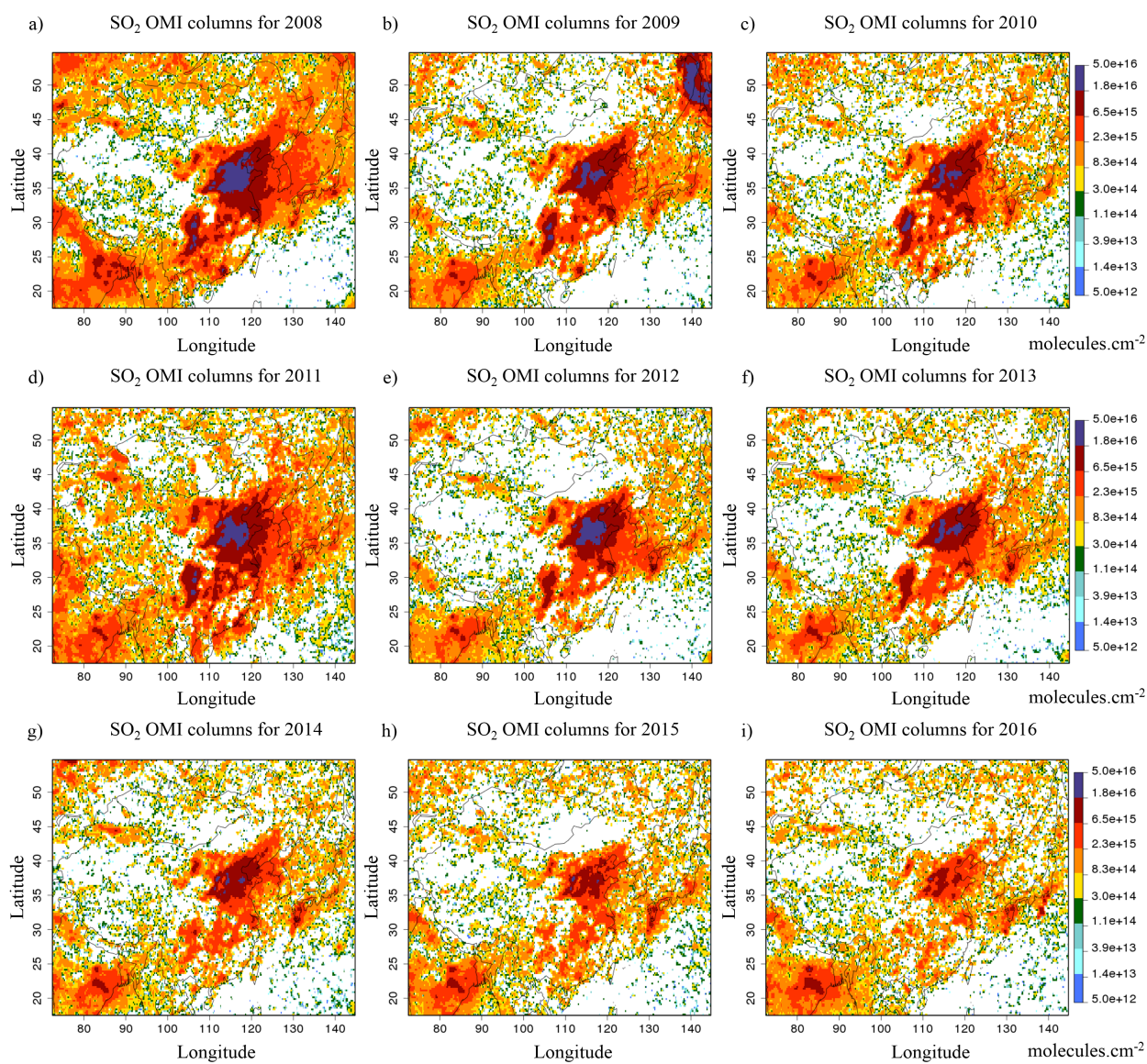


Figure S3. SO₂ columns evolution from OMI satellite, from 2008 to 2016, in molecules.cm⁻².

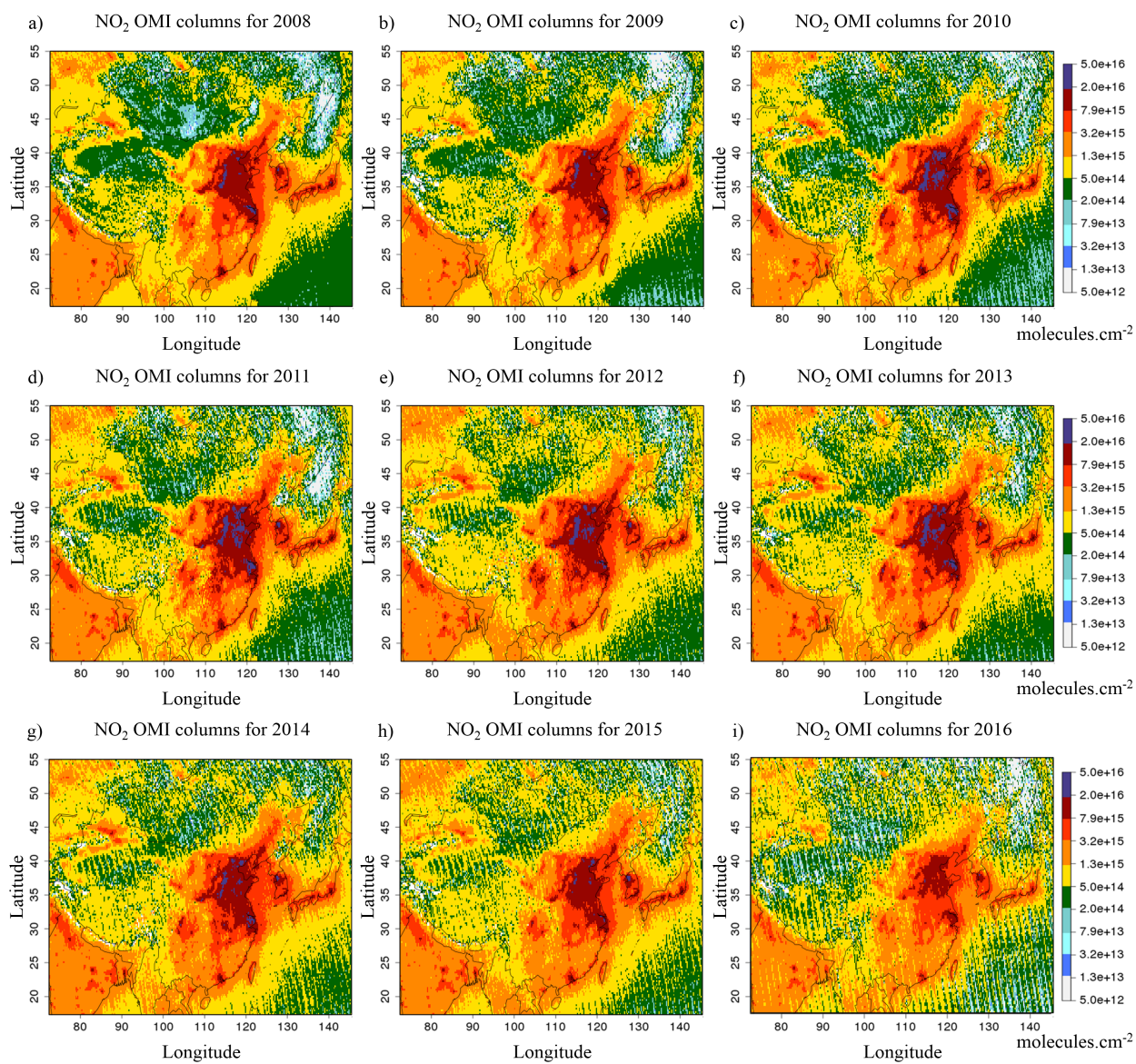


Figure S4. NO₂ columns evolution from OMI satellite, from 2008 to 2016, in molecules.cm⁻².

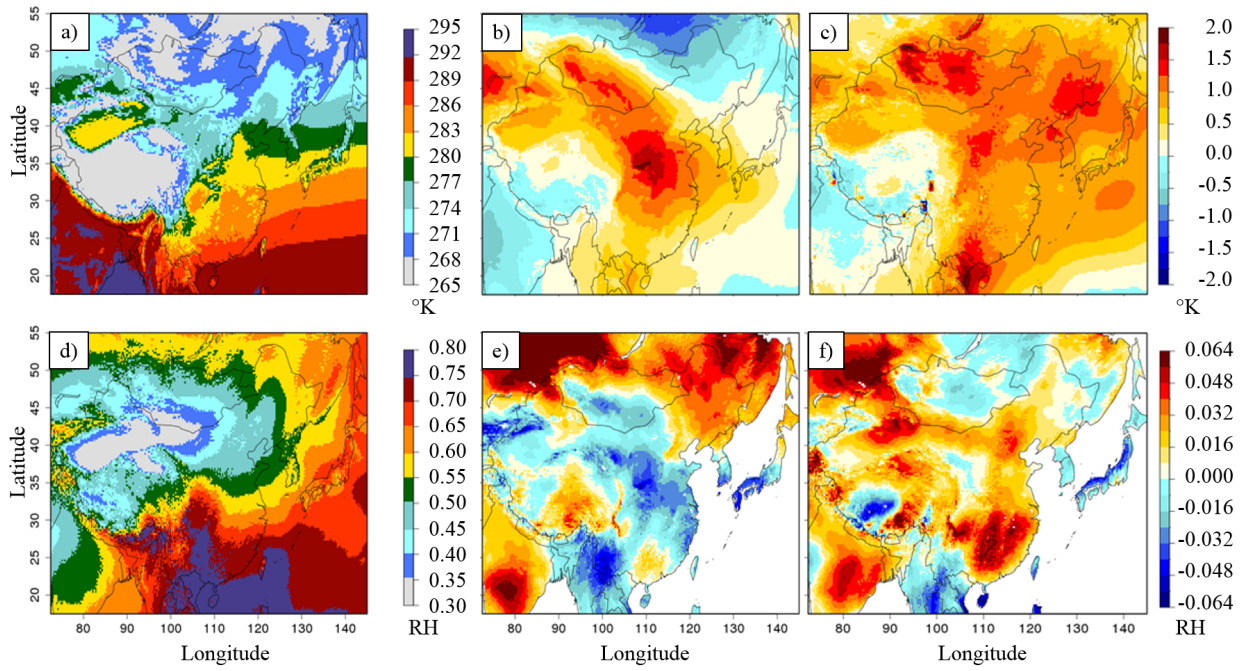


Figure S5. a) Annual mean temperature for 2011, b) annual mean temperature differences (2013-2011), c) annual mean temperature differences (2015-2011), d) annual mean RH for 2011, e) annual mean RH differences (2013-2011), f) annual mean RH differences (2015-2011).

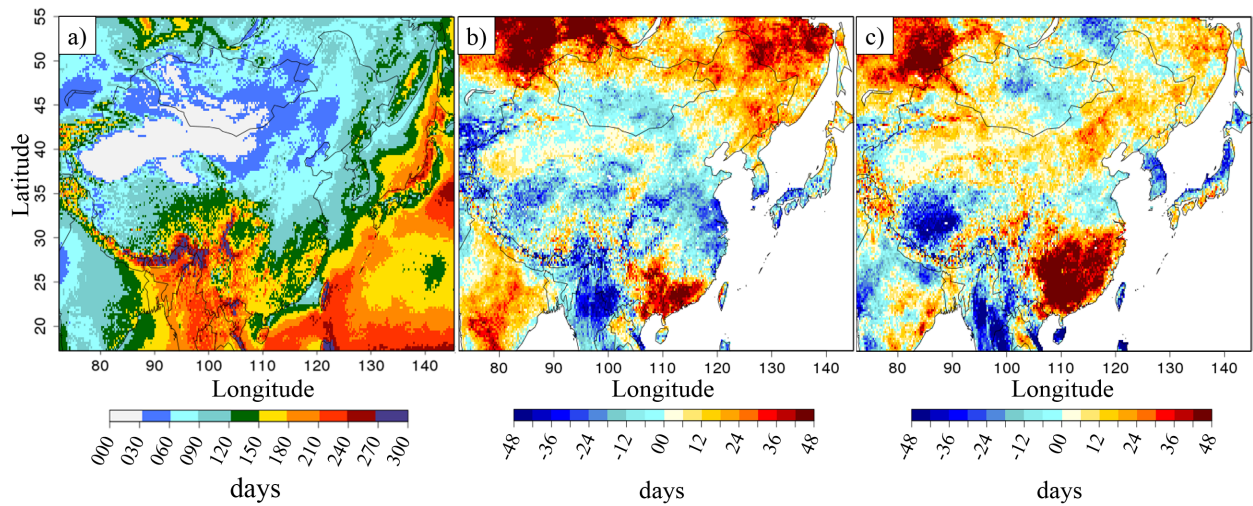


Figure S6. a) Annual rainfall frequencies ($\text{Rainfall} > 1\text{mm}\cdot\text{day}^{-1}$) for 2011, b) annual rainfall frequencies differences (2013-2011), c) annual rainfall frequencies differences (2015-2011).

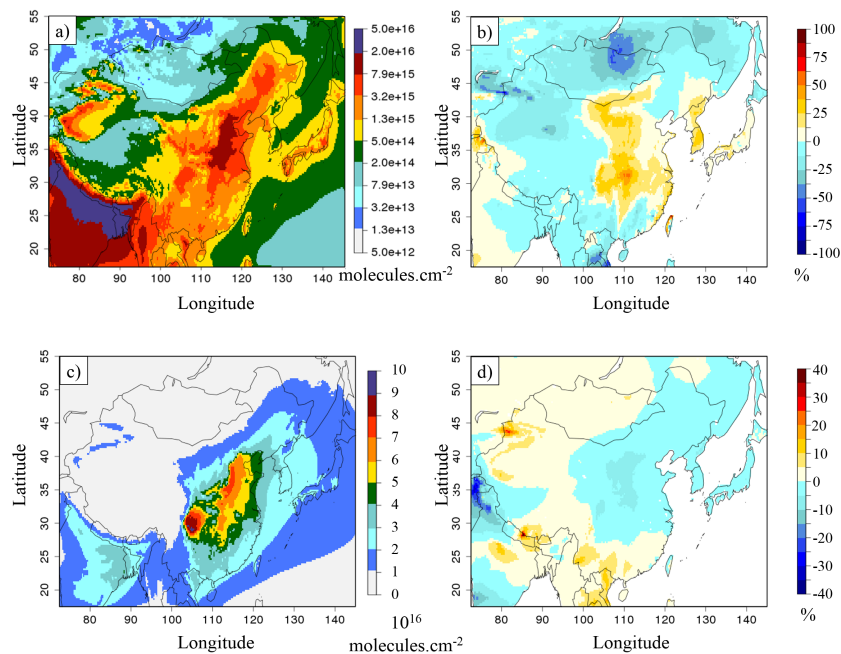


Figure S7. a) Ammonia columns in molecules.cm^{-2} for the simulation 2013A, b) relative differences of ammonium columns between the simulations from 2013C and 2013A, in % c) ammonium columns in molecules.cm^{-2} for the simulation 2013A and d) relative differences of ammonium columns between the simulations from 2013C and 201CA, in %.

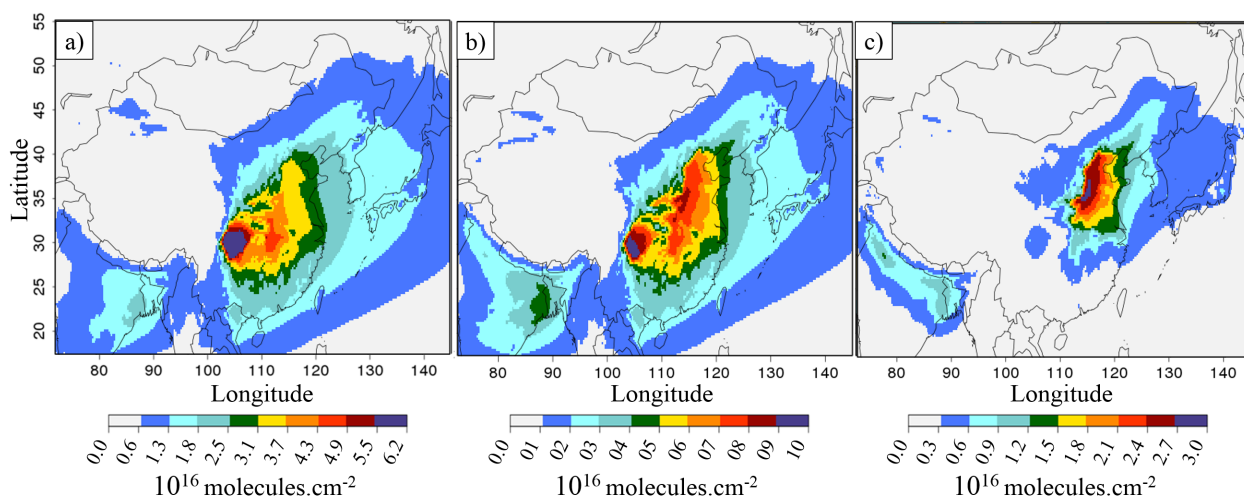


Figure S8. a) 2015A annual mean SO_4^{2-} columns, b) 2015A annual mean NH_4^+ columns, c) 2015A annual mean $\text{NO}_3^-(p)$ columns. Units in molecules.cm^{-2} .

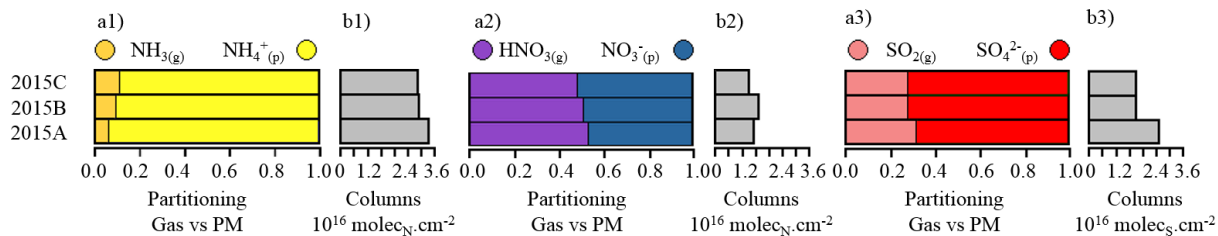


Figure S9. a) Molar partitioning between gas and the particulate phases over East China b) column means over East China in 10^{-9} molecules. cm^{-2} . 1) TA, 2) TN, 3) TS.

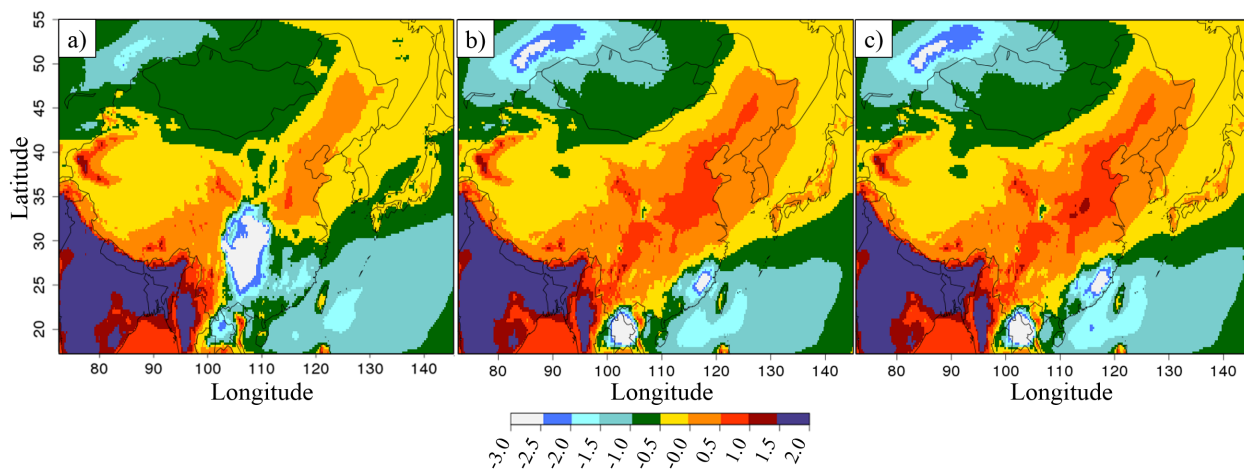


Figure S10. a) Annual G_{ratio} mean for 2015A, b) annual G_{ratio} mean for 2015B, c) annual G_{ratio} mean for 2015C.

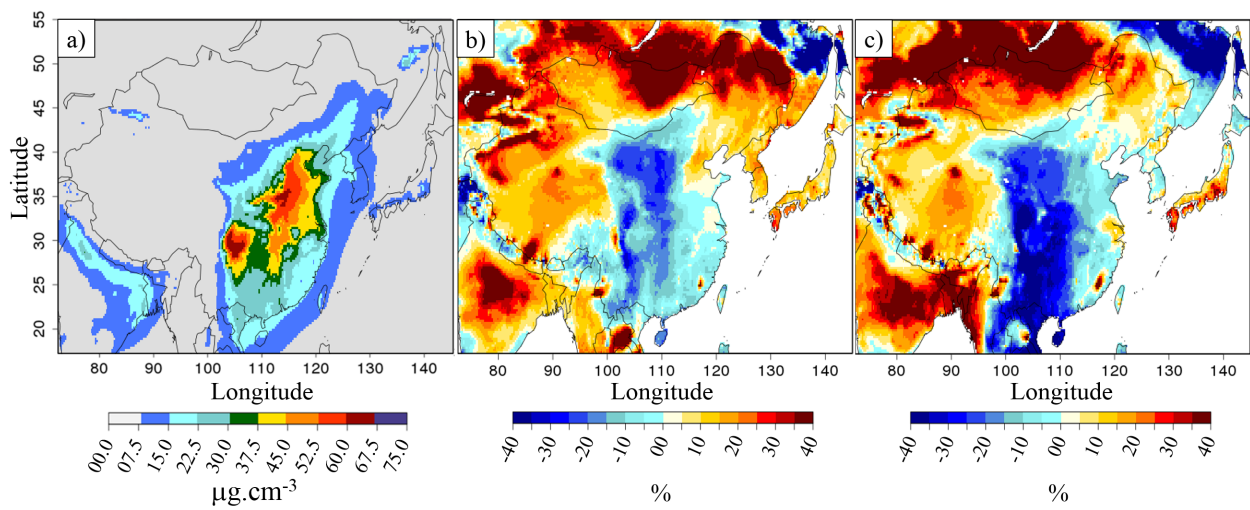


Figure S11. a) PM_{2.5}(pSNA) columns in $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ for 2011A b) relative differences of PM_{2.5}(pSNA) columns between 2013C and 2011A, in % and c) relative differences of PM_{2.5}(pSNA) columns between 2015C and 2011A, in %.

D

Air quality degradation by mineral dust over Beijing, Chengdu and Shanghai Chinese megacities

Cette section présente les figures supplémentaires associées au Chapitre VII " Air quality degradation by mineral dust over Beijing, Chengdu and Shanghai", page 125.

1. MODIS product comparison to CHIMERE simulations

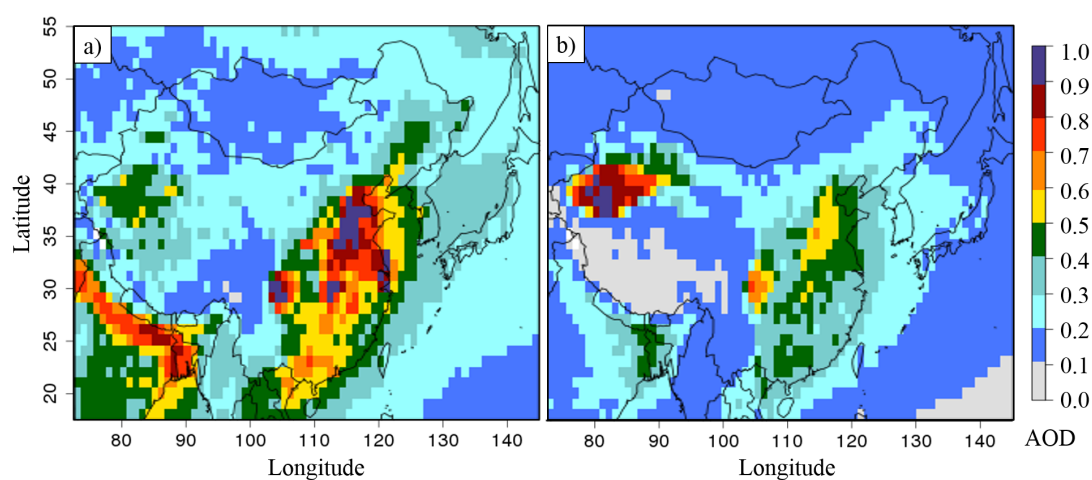


Figure S1. 550 nm AOD spatial distribution to $1^\circ \times 1^\circ$ resolution for 2011, 2013 and 2015. a) MODIS observations b) CHIMERE simulations.

Table S1. Spatial (left) correspondences between MODIS 550 nm AOD and CHIMERE 550 nm AOD, for 2011, 2013 and 2015 over main arid areas. *n* indicates number of $1^\circ \times 1^\circ$ cells.

| Areas | Bias (%) | NRMSE(%) | r | n |
|-----------------------|----------|----------|------|------|
| Full area | -40 % | 60 % | 0.68 | 2662 |
| Taklimakan desert | 41 % | 93 % | 0.66 | 126 |
| Mongolian Gobi desert | -31 % | 36 % | 0.42 | 92 |
| Gurban desert | 66 % | 83 % | 0.44 | 18 |
| Northern China desert | -9 % | 27 % | 0.48 | 30 |

2. Statistical results from CHIMERE against Measurements comparisons for PM.

Table S2. CHIMERE Model PM₁₀ annual composition for Beijing, Chengdu and Shanghai. $NH_{4(p)}^+$ represents ammonium, $SO_{4(p)}^{2-}$ represents sulphate, $NO_{3(p)}^-$ represents nitrate, *AMPP* represents anthropogenic primary mineral aerosol; *BC* represents black carbon matter and *OM* represents sum of organic aerosols.

| Cities | Dust | $NH_{4(p)}^+$ | $SO_{4(p)}^{2-}$ | $NO_{3(p)}^-$ | AMPP | BC | OM | SALT |
|----------------------------|------|---------------|------------------|---------------|-------|------|-------|--------|
| Beijing PM ₁₀ | 6.6% | 8.9% | 9.8% | 19.5% | 33.2% | 6.9% | 14.9% | 0.2% |
| Chengdu PM ₁₀ | 9.5% | 8.7% | 17.4% | 10.0% | 37.0% | 5.8% | 11.5% | < 0.1% |
| Shanghai PM ₁₀ | 9.3% | 8.2% | 11.7% | 15.1% | 37.2% | 5.3% | 9.8% | 3.3% |
| Beijing PM _{2.5} | 2.9% | 10.5% | 11.2% | 23.8% | 29.1% | 6.4% | 16.0% | 0.1% |
| Chengdu PM _{2.5} | 3.4% | 10.8% | 21.3% | 12.9% | 33.0% | 5.5% | 13.2% | < 0.1% |
| Shanghai PM _{2.5} | 4.0% | 10.4% | 14.6% | 19.6% | 34.3% | 5.0% | 11.1% | 1.0% |

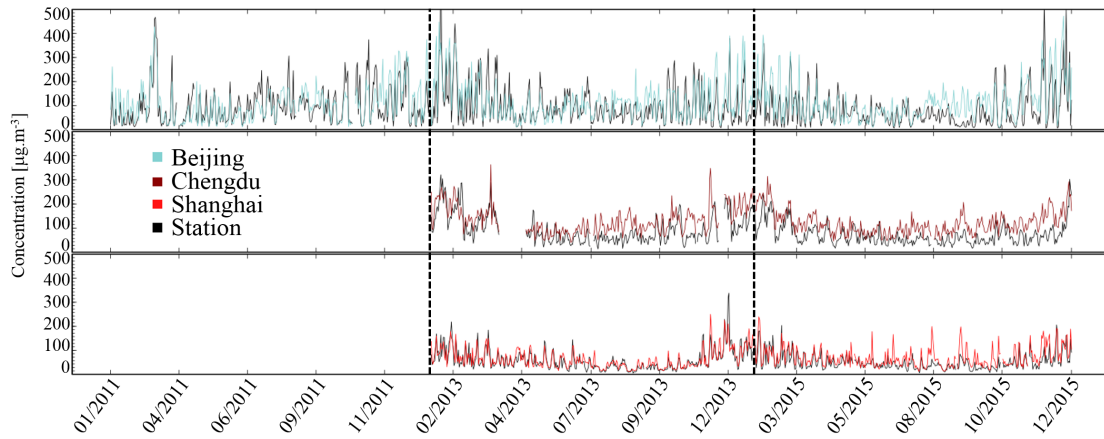


Figure S2. Daily PM_{2.5} time series for monitoring stations and CHIMERE simulations for 2011, 2013 and 2015. Top) Beijing, Middle) Chengdu and Bottom) Shanghai. Black lines correspond to stations measurements, colored lines to CHIMERE simulation.

3. Daily Ångström coefficient distribution at Beijing station

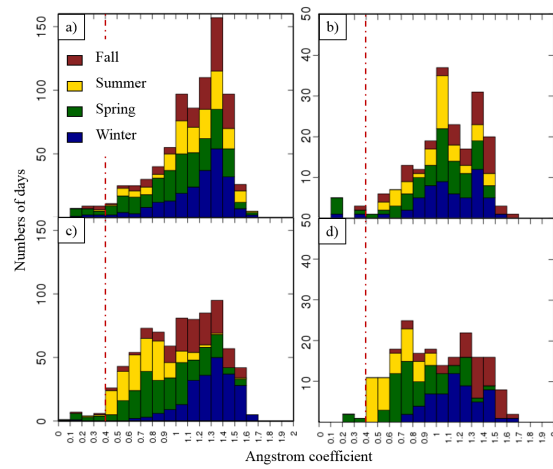


Figure S3. Daily Ångström coefficient distribution at Beijing station, for 2011, 2013 and 2015. a) AERONET station, b) CHIMERE, c) AERONET for 25% highest daily AOD for each seasons and d) CHIMERE for 25% highest daily AOD for each seasons.

4 © 2020 by the authors. Submitted to *Atmosphere* for possible open access publication
5 under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC BY) license
6 (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

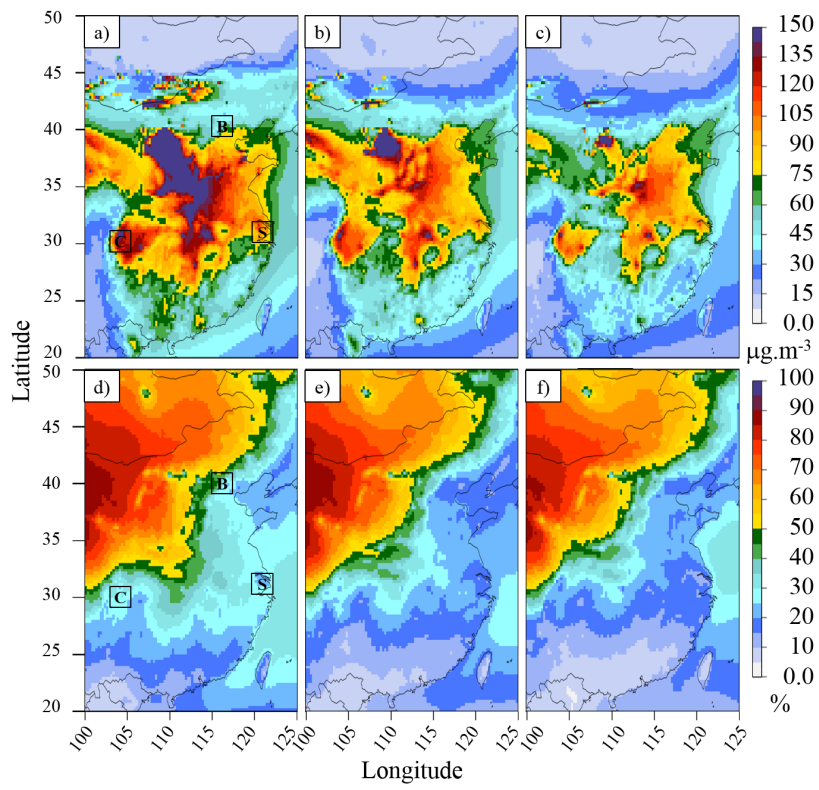


Figure S4. PM₁₀ simulated surface concentration for year a) 2011, b) 2013, c) 2015 and simulated dust fraction for year d) 2011, e) 2013 and f) 2015.

Participation à différentes conférences

2015 :

Participation à l'École d'été "The Second Sino-European School on Atmospheric Chemistry" 2015, Shanghai, RPC.

2016 :

Participation à la conférence 5th Sino-French Joint Workshop on Atmospheric Environment, Xi'an, RPC.

Présentation du Poster : "Study of Chinese pollution with the 3D regional chemistry transport CHIMERE model and remote sensing observations".

2017 :

Participation à la conférence European Geoscience Union 2017, Vienne, Autriche.

Présentation du Poster : "Study of Chinese pollution with the 3D regional chemistry transport CHIMERE model and remote sensing observations".

2018 :

Participation à la conférence 6th Sino-French Joint Workshop on Atmospheric Environment, Orléans, France.

Présentation orale : "The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations over China : increase of ammonia levels and impact on PM_{2.5} concentrations".

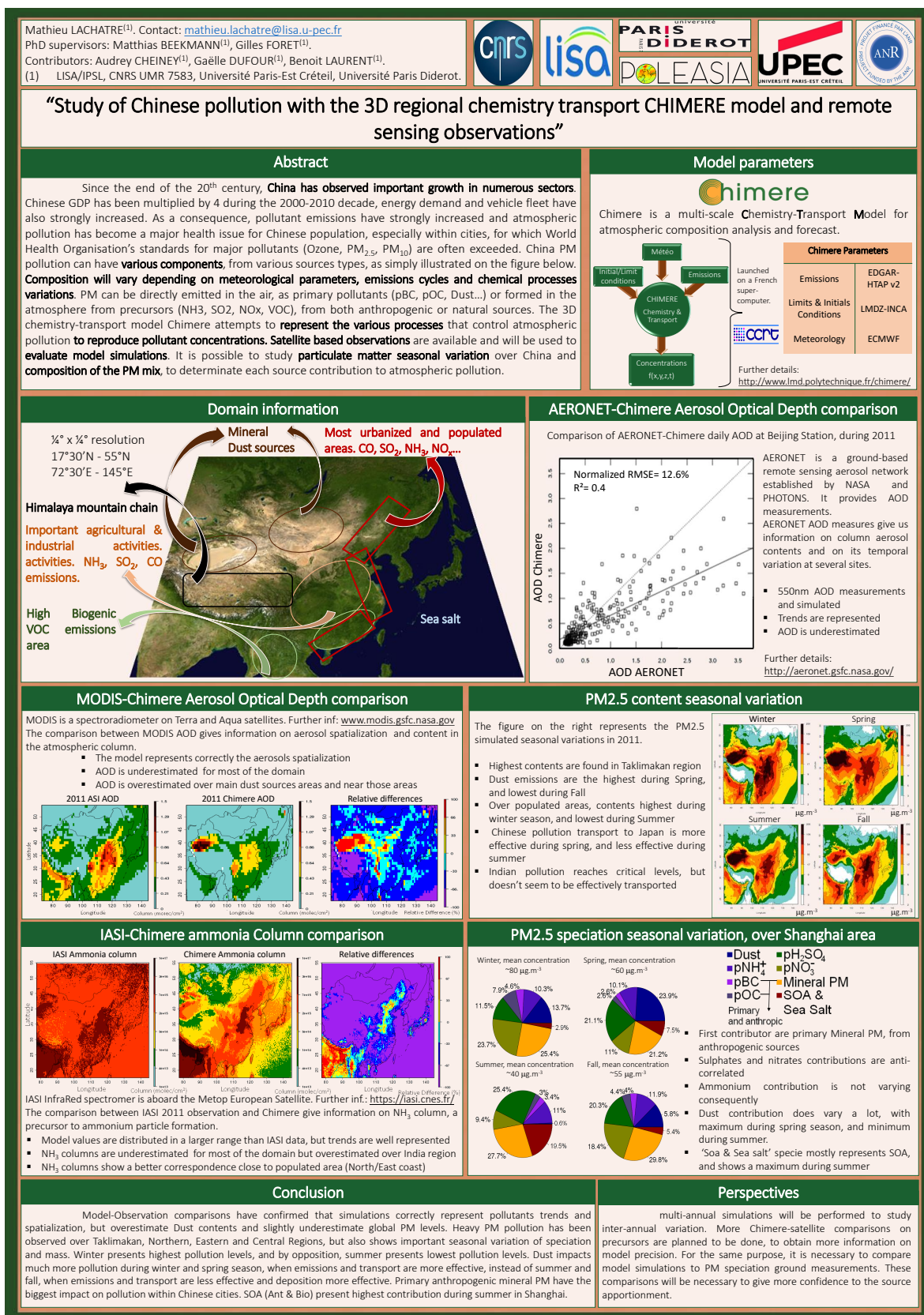
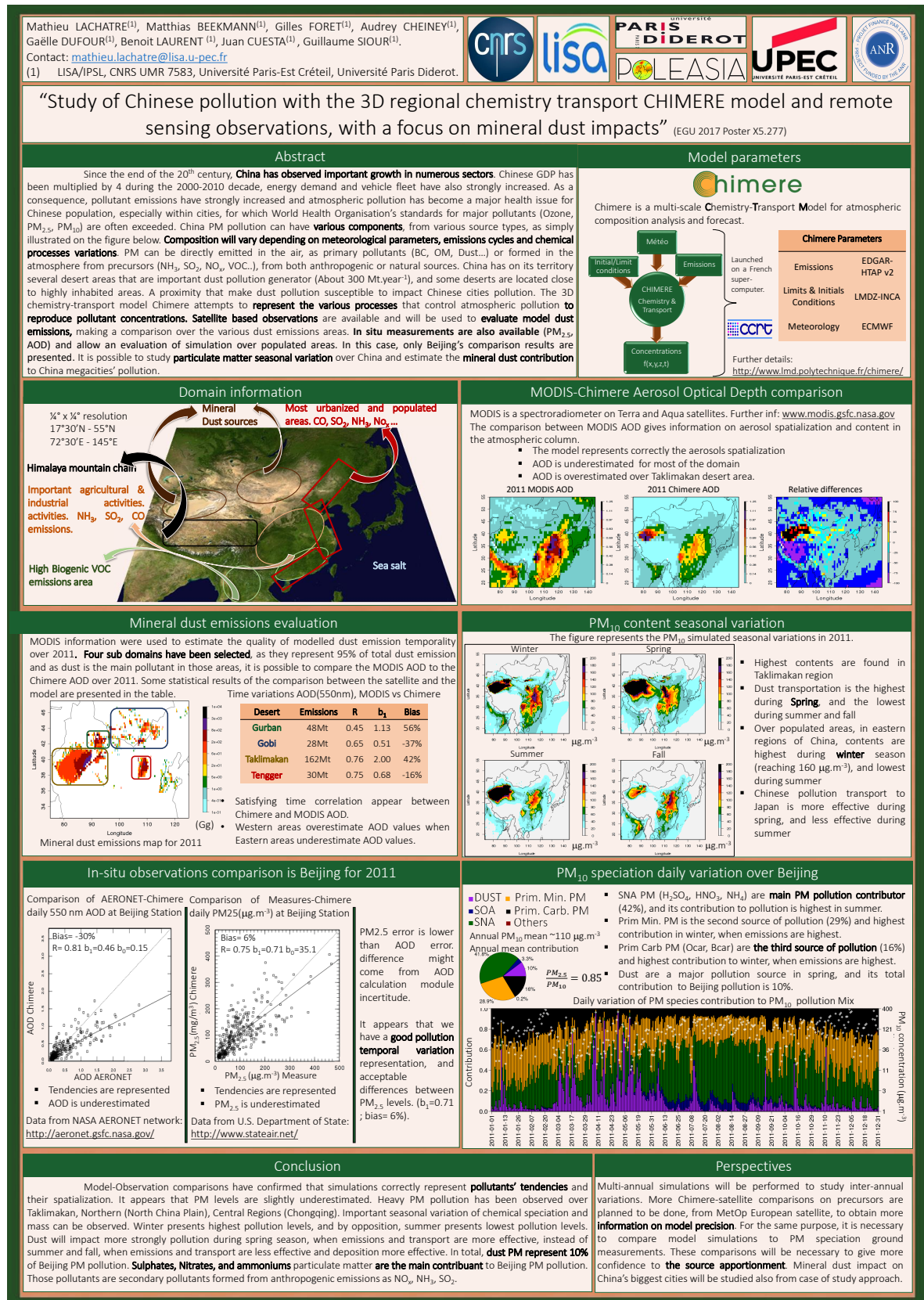


FIGURE E.1 – Poster : "Study of Chinese pollution with the 3D regional chemistry transport CHIMERE model and remote sensing observations" [5th SFJWE, Xi'an 2016]





Bibliographie

- Acker, J. G. and Leptoukh, G. : Online analysis enhances use of NASA Earth Science Data, *Eos, Trans. AGU*, 88, 14–17, <https://doi.org/10.1029/2007EO020003>, 2007. 33, 62, 63
- Ahmad, S. P., Levelt, P. F., Bhartia, P. K., Hilsenrath, E., Leppelmeier, G. W., and Johnson, J. E. : Atmospheric Products from the Ozone Monitoring Instrument (OMI), *Proceedings of SPIE Conference on Earth Observing Systems VIII*, <https://doi.org/10.1117/12.50604>, 2003. 75
- Aïchi, L. : Rapport SENAT NÂ° 610, Tech. Rep. 1, SENAT, 2015. 38
- Alfaro, S. and Gomes, L. : Modeling mineral aerosol production by wind erosion : Emission intensities and aerosol size distributions in source areas, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106, 18 075–18 084, 2001. 25, 86, 87, 152
- Alfaro, S., Gaudichet, A., Gomes, L., and Maillé, M. : Mineral aerosol production by wind erosion : Aerosol particle sizes and binding energies, *Geophysical Research Letters*, 25, 991–994, <https://doi.org/10.1029/98GL00502>, URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/98GL00502>, 1998. 86
- Andrews, S. Q. : China’s air pollution reporting is misleading, *chinadialogue*, URL <https://www.chinadialogue.net/article/show/single/en/6856-China-s-air-pollution-reporting-is-misleading/>, 2014. 72
- Aumont, B., Chervier, F., and Laval, S. : Contribution of HONO sources to the NO_X/HO_X/O_X chemistry in the polluted boundary layer, *Atmospheric Environment*, 37, 487–498, 2003. X
- Aumont, B., Szopa, S., and Madronich, S. : Modelling the evolution of organic carbon during its gas-phase tropospheric oxidation : development of an explicit model based on a self, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 2497–2517, <https://doi.org/10.1029/1680-7324/acp/2005-5-2497>, 2005. 19
- Boden, T., Marland, G., and Andres, R. : National CO₂ Emissions from Fossil-Fuel Burning, Cement Manufacture, and Gas Flaring, https://doi.org/10.3334/CDIAC/00001_V2017, 2017. 7
- Boersma, K. F., Eskes, H. J., Veefkind, J. P., Brinksma, E. J., Sneep, M., Oord, G. H. J. V. D., Levelt, P. F., Stammes, P., Gleason, J. F., Boersma, K. F., Eskes, H. J., Veefkind, J. P., and Brinksma, E. J. : Near-real time retrieval of tropospheric NO₂ from OMI To cite this version : HAL Id : hal-00296205

- and Physics Near-real time retrieval of tropospheric NO₂ from OMI, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 2103–2118, <https://doi.org/10.5194/acp-7-2103-2007>, 2007. 75
- Bougon, F. : Dans la t^âte de Xi Jinping, solin, 2017. 46
- Boylan, J. W. and Russell, A. G. : PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models, *Atmospheric Environment*, 40, 4946–4959, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.09.087>, 2006. 93, 97, 98, 104
- Brooks, A. L., Wang, S., and Jambeck, J. R. : The Chinese import ban and its impact on global plastic waste trade, *SCIENCE ADVANCES*, 4, 1–8, 2018. 52
- Buseck, P. R. and Adachi, K. : Nanoparticles in the atmosphere, *Elements*, 4, 389–394, <https://doi.org/10.2113/gselements.4.6.389>, 2008. 21, 22
- Camredon, M. and Aumont, B. : Mod^âlisat^âion de l'ozone et des photooxydants troposph^âriques. i - l'ozone troposph^ârique : production, consommation et r^âgimes chimiques., *Pollution Atmosph^ârique*, 193, 2007. 20
- Cao, J., Chow, J. C., Lee, F. S. C., and Watson, J. G. : Evolution of PM_{2.5} Measurements and Standards in the U . S . and Future Perspectives for China, *Aerosol and Air Quality Research*, pp. 1197–1211, <https://doi.org/10.4209/aaqr.2012.11.0302>, 2013. 36
- Chen, R., Cheng, J., Lv, J., and Wu, L. : Comparison of chemical compositions in air particulate matter during summer and winter in Beijing , China, *Environmental Geochemistry and Health*, 39, 913–921, <https://doi.org/10.1007/s10653-016-9862-9>, 2017. 65
- Chester, R. : The role of air-sea exchange in geochemical cycling, *The marine mineral aerosol*, in P. Buat-Menard (Ed.), Reidel, pp. 443–476, 1986. 25, 26
- Cohen, A. : Learning from China : A Blueprint for the Future of Coal in Asia, *pacific energy forum*, 2014. 49
- Couvidat, F., Bessagnet, B., Garcia-Vivanco, M., Real, E., Menut, L., and Colette, A. : Development of an inorganic and organic aerosol model (CHIMERE 2017 β v1.0) : seasonal and spatial evaluation over Europe, *Geoscientific Model Development*, 11, 165–194, <https://doi.org/10.5194/gmd-11-165-2018>, URL <https://www.geosci-model-dev.net/11/165/2018/>, 2018. 93, 94
- Cuesta, J., Eremenko, M., Flamant, C., Dufour, G., Laurent, B., Bergametta, G., Höpfner, M., Orphal, J., and Zhou, D. : Three-dimensional distribution of a major desert dust outbreak over East Asia in March 2008 derived from IASI satellite observations Juan, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, pp. 7099–7127, <https://doi.org/10.1002/2014JD022406>, 2015. 74, 153
- Currell, M., Cartwright, I., Bradley, D. C., and Han, D. : Recharge History and Controls on Groundwater Quality in the Yuncheng Basin, North China, *Journal of Hydrology*, 2010. 51
- de Foy, B., Lu, Z., and Streets, D. : Satellite NO₂ retrievals suggest China has exceeded its NO_x reduction goals from the twelfth Five-Year Plan., *Scientific Reports*, 6, 35912, <https://doi.org/10.1038/srep35912>, 2016. 61

- Derognat, C., Beekmann, M., Baeumle, M., Martin, D., and Schmidt, H. : Effect of biogenic volatile organic compound emissions on tropospheric chemistry during the Atmospheric Pollution Over the Paris Area (ESQUIF) campaign in the Ile-de-France region, *Journal of Geophysical Research*, 108, <https://doi.org/10.1029/2001JD001421>, 2003. 83
- Duce, R. : Sources, distributions, and fluxes of mineral aerosols and their relationship to climate, in *Aerosol Forcing of Climate*, R.J. Charlson, J. Heintzenberg (Eds.), Wiley, New-York, pp. 43–72, 1995. 25
- Dufour, G., Eremenko, M., Griesfeller, A., Barret, B., and Leflochmo, E. : Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra using ozonesondes, *Atmospheric Measurements Techniques*, pp. 611–630, <https://doi.org/10.5194/amt-5-611-2012>, 2012. 74
- Dufour, G., Eremenko, M., Beekmann, M., Cuesta, J., Foret, G., Fortems-Cheiney, A., Lachatre, M., Lin, W., Liu, Y., Xu, X., and Zhang, Y. : Lower tropospheric ozone over the North China Plain : variability and trends revealed by IASI satellite observations for 2008-2016, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018. 61, 62, 153
- Ecology, M. O. and Environment : 2013 Report on the State of the Ecology and Environment in China, 2014. 60, 62, 64, 65
- Ecology, M. O. and Environment : 2015 Report on the State of the Ecology and Environment in China, 2016. 60, 62, 64, 65
- Ecology, M. O. and Environment : 2017 Report on the State of the Ecology and Environment in China, 2018. 60, 62, 64, 65
- Economie Intelligence Unit : The Economist Group, URL "<https://www.eiu.com/home.aspx>". 46
- Erisman, J. W., van Pul, A., and Wyers, P. : Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone, *Atmospheric Environment*, 28, 2595–2607, 1994. 88
- Flemming, J., Stern, R., and Yamartino, R. J. : A new air quality regime classification scheme for O₃, NO₂, SO₂ and PM₁₀ observations sites, *Atmospheric Environment*, 39, 6121–6129, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.06.039>, 2005. 73, 94, 159
- Foret, G., Bergametti, G., Dulac, F., and Menut, L. : An optimized particle size bin scheme for modeling mineral dust aerosol, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111, <https://doi.org/10.1029/2005JD006797>, URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2005JD006797>, 2006. 22
- Gao, W., Tie, X., Xu, J., Huang, R., and Mao, X. : Science of the Total Environment Long-term trend of O₃ in a mega City (Shanghai), China : Characteristics , causes , and interactions with precursors, *Science of the Total Environment*, 603-604, 425–433, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.06.099>, URL <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.06.099>, 2017. 61
- Gaubert, B., Coman, A., Foret, G., Meleux, F., Ung, A., Rouil, L., Ionescu, A., Candau, Y., and Beekmann, M. : Regional scale ozone data assimilation using an ensemble Kalman filter and the CHIMERE chemical transport model, *Geoscientific Model Development*, 7, 283–302, <https://doi.org/10.5194/gmd-7-283-2014>, URL <https://www.geosci-model-dev.net/7/283/2014/>, 2014. 73, 93, 97

- Gelbard, F. and Seinfeld, J. H. : Simulation of Multicomponent Aerosol Dynamics, *Journal of Colloid and Interface Science*, 78, [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(80\)90587-1](https://doi.org/10.1016/0021-9797(80)90587-1), 1980. 84
- Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B. and Dubovik, O., and Lin, S. : Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 2001. 79
- Gong, S. L. and Lazare, M. : Canadian Aerosol Module (CAM) : A size-segregated simulation of atmospheric aerosol processes for climate and air quality models 2 . Global sea-salt aerosol and its budgets, *Journal of Geophysical Research*, 107, 1–14, <https://doi.org/10.1029/2001JD002004>, 2002. 23
- Greenpeace : Basel action network, pp. 1–3, 2004. 52
- Gu, D., Wang, Y., Smeltzer, C., and Boersma, K. F. : Anthropogenic emissions of NO_x over China : Reconciling the difference of inverse modeling results using GOME-2 and OMI measurements, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119, 7732–7740, <https://doi.org/10.1002/2014JD021644>, URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2014JD021644>, 2014. 79
- Guenther, A., Nicholas, C., Fall, R., Klinger, L., McKay, W. A., and Scholes, B. : A global model of natural volatile organic compound emissions s Triangle Exposure Assessment Science and These inventories, *J. Geophys. Res.*, <https://doi.org/10.1029/94JD02950>, 1995. 18
- Guenther, A. B., Jiang, X., Heald, C. L., Sakulyanontvittaya, T., Duhl, T., Emmons, L. K., and Wang, X. : Model Development The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2 . 1 (MEGAN2 . 1) : an extended and updated framework for modeling biogenic emissions, *Geoscientific Model Development*, pp. 1471–1492, <https://doi.org/10.5194/gmd-5-1471-2012>, 2012. 79
- Guermond, Y. : La Chine, Belin, 2007. 43
- Han, S., Bian, H., Zhang, Y., Wu, J., Wang, Y., Tie, X., Li, Y., Li, X., and Yao, Q. : Effect of Aerosols on Visibility and Radiation in Spring 2009 in Tianjin , China, *Aerosol and Air Quality Research*, pp. 211–217, <https://doi.org/10.4209/aaqr.2011.05.0073>, 2012. 31
- Hauglustaine, D. A., Hourdin, F., Jourdain, L., Filiberti, M.-A., Walters, S., Lamarque, J.-F., and Holland, E. A. : Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model : Description and background tropospheric chemistry evaluation, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109, <https://doi.org/10.1029/2003JD003957>, URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2003JD003957>, 2004. 79
- Honoré, C., Rou, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J.-m., Malherbe, L., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.-H., and Poisson, N. : Predictability of European air quality : Assessment of 3 years of operational forecasts and analyses by the PREV AIR system, *Journal of Geophysical Research*, 113, <https://doi.org/10.1029/2007JD008761>, 2008. 77
- Hourdin, F., Musat, I., Bony, S., Braconnot, P., Codron, F., Dufresne, J. L., Fairhead, L., Filiberti, M. A., Friedlingstein, P., Grandpeix, J. Y., Krinner, G., LeVan, P., Li, Z. X., and Lott, F. : The LMDZ4 general circulation model : Climate performance and sensitivity to parametrized physics

- with emphasis on tropical convection, *Climate Dynamics*, 27, 787–813, <https://doi.org/10.1007/s00382-006-0158-0>, 2006. 79
- Huchet, J.-F. : La crise environnementale en Chine, SciencePo Les presses, 2016. 46, 50, 51, 52, 54
- Huneus, N., Schulz, M., Balkanski, Y., Griesfeller, J., Prospero, J., Kinne, S., Bauer, S., Boucher, O., Chin, M., Dentener, F., Diehl, T., Easter, R., Fillmore, D., Ghan, S., Ginoux, P., Grini, A., Horowitz, L., Koch, D., Krol, M. C., Landing, W., Liu, X., Mahowald, N., Miller, R., Morcrette, J.-J., Myhre, G., Penner, J., Perlwitz, J., Stier, P., Takemura, T., and Zender, C. S. : Global dust model intercomparison in AeroCom phase I, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 7781–7816, <https://doi.org/10.5194/acp-11-7781-2011>, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/11/7781/2011/>, 2011. 127
- IPCC : CLIMATE CHANGE 2011 the scientific basis :, Tech. rep., UNO, 2011. 24
- IPCC : Climate Change 2013 : The Physical Science Basis, Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Tech. rep., UNO, 2013. 17, 29, 31, 35
- Janssens-Maenhout, G., Crippa, M., Guizzardi, D., Dentener, F., Muntean, M., Pouliot, G., Keating, T., Zhang, Q., Kurokawa, J., Wankmüller, R., Denier Van Der Gon, H., Kuenen, J. J. P., Klimont, Z., Frost, G., Darras, S., Koffi, B., and Li, M. : HTAP-v2.2 : A mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 11 411–11 432, <https://doi.org/10.5194/acp-15-11411-2015>, 2015. 16, 17, 59, 60, 61, 79
- Jia, Y.-y., Wang, Q., and Liu, T. : Toxicity Research of PM 2.5 Compositions in Vitro, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, <https://doi.org/10.3390/ijerph14030232>, 2017. 37
- Jud, W., Fischer, L., Canaval, E., Wohlfahrt, G., Tissier, A., and Hansel, A. : Plant surface reactions : an opportunistic ozone defence mechanism, *Atmospheric Chemistry and Physics*, pp. 277–292, <https://doi.org/10.5194/acp-16-277-2016>, 2016. 34
- Kampa, M. and Castanas, E. : Human health effects of air pollution, *Science Direct, Environmental Pollution*, 151, 362–367, <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2007.06.012>, 2008. 36
- Kang, Y., Liu, M., Song, Y., Huang, X., Yao, H., Cai, X., Zhang, H., Kang, L., Liu, X., Yan, X., He, H., Zhang, Q., Shao, M., and Zhu, T. : High-resolution ammonia emissions inventories in China from 1980 to 2012, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 2043–2058, <https://doi.org/10.5194/acp-16-2043-2016>, 2016. 17, 60
- Kaupp, H. and Umlauf, G. : ATMOSPHERIC GAS-PARTICLE PARTITIONING OF ORGANIC COMPOUNDS : COMPARISON OF SAMPLING METHODS, *Atmospheric Environment*, 26, 2259–2267, [https://doi.org/10.1016/0960-1686\(92\)90357-Q](https://doi.org/10.1016/0960-1686(92)90357-Q), 1992. 85
- Kiehl, J. and Rodhe, H. : Modeling geographical and seasonal forcing due to aerosols, in *Aerosol Forcing of Climate*, *Climate*, R. J. Charlson and J. Heintzenberg (eds.), Wiley, New York,, pp. 281 – 296, 1995. 23, 26
- Klimont, Z., Smith, S. J., and Cofala, J. : The last decade of global anthropogenic sulfur dioxide : 2000 – 2011 emissions, *ENVIRONMENTAL RESEARCH LETTERS*, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/8/1/014003>, URL stacks.iop.org/ERL/8/014003{%}0AAbstract, 2013. 15, 17, 59

- Kononov, I., Elanskii, N., Zvyagintsev, A., Belikov, I., and Beekmann, M. : Validation of Chemistry Transport Model of the Lower Atmosphere in the Central European Region of Russia Using Ground-based and Satellite Measurement Data, *Russian Meteorology and Hydrology*, 34, 236–242, <https://doi.org/10.3103/S1068373909040062>, 2008. 93
- Krotkov, N. A., McLinden, C. A., Li, C., Lamsal, L. N., Celarier, E. A., Marchenko, S. V., Swartz, W. H., Bucsela, E. J., Joiner, J., Duncan, B. N., Boersma, K. F., Veefkind, J. P., Levelt, P. F., Fioletov, V. E., and Dickerson, R. R. : Aura OMI observations of regional SO₂ and NO₂ pollution changes from 2005 to 2015, *Atmospheric Chemistry and Physics*, pp. 4605–4629, <https://doi.org/10.5194/acp-16-4605-2016>, 2016. 60
- Kulmala, M., Laaksonen, A., and Pirjola, L. : Parameterizations for sulfuric acid/water nucleation rates, *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 103, 8301–8307, <https://doi.org/10.1029/97JD03718>, 1998. 84
- Lamb, B., Guenther, A., Gay, D., and Westberg, H. : A national inventory of biogenic hydrocarbon emissions, *Atmospheric Environment*, 21, 1695 – 1705, [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(87\)90108-9](https://doi.org/10.1016/0004-6981(87)90108-9), 1987. 18
- Lannuque, V. : L'aérosol organique secondaire dans les modèles de qualité de l'air : développement d'une paramétrisation sur la base de simulations explicites, Thèse de doctorat, Université de Paris-Est Créteil, 2017. 28
- Laurent, B. : Simulation des émissions d'aérosols désertiques à l'échelle continentale : Analyse climatologique des émissions du nord-est de l'Asie et du nord de l'Afrique, Thèse de doctorat, Université de Paris-Est Créteil, 2005. 24
- Laurent, B. : Mémoire présenté pour l'obtention du diplôme d'Habilitation à Diriger des Recherches : Études régionales des émissions et dépôts des aérosols désertiques, Hdr, Université de Paris Diderot, CNRS, 2018. 25, 66
- Laurent, B., Marticorena, B., and Bergametti, G. : Simulation of the mineral dust emission frequencies from desert areas of China and Mongolia using an aerodynamic roughness length map derived from the POLDER // ADEOS 1 surface products, *Journal of Geophysical Research*, 110, 1–21, <https://doi.org/10.1029/2004JD005013>, 2005. 87, 88
- Laurent, B., Marticorena, B., Bergametti, G., and Mei, F. : Modeling mineral dust emissions from Chinese and Mongolian deserts, *Global and Planetary Change*, 52, 121–141, <https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2006.02.012>, 2006. 26, 65, 87
- Laurent, B., Marticorena, B., Bergametti, G., and Le, J. F. : Modeling mineral dust emissions from the Sahara desert using new surface properties and soil database, *Journal of Geophysical Research*, 113, 1–20, <https://doi.org/10.1029/2007JD009484>, 2008. 26
- Lee, C., Martin, R. V., Donkelaar, A. V., Lee, H., Dickerson, R. R., Hains, J. C., Krotkov, N., Richter, A., Vinnikov, K., and Schwab, J. J. : SO₂ emissions and lifetimes : Estimates from inverse modeling using in situ and global, space – based (SCIAMACHY and OMI) observations, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116, 1–13, <https://doi.org/10.1029/2010JD014758>, 2011. 17

- Levelt, P. F., van den Oord, G. H. J., Dobber, M. R., Malkki, A., Visser, H., de Vries, J., Stammes, P., Lundell, J. O. V., and Saari, H. : The ozone monitoring instrument, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44, 1093–1101, <https://doi.org/10.1109/TGRS.2006.872333>, 2006. 75
- Li, B., Gasser, T., Ciais, P., Piao, S., Tao, S., Balkanski, Y., Hauglustaine, D., Boisier, J.-p., Chen, Z., Huang, M., Li, L. Z., Li, Y., Liu, H., Liu, J., and Peng, S. : climate forcing, *Nature*, 531, 357–361, <https://doi.org/10.1038/nature17165>, URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature17165>, 2016. 34, 35, 67, 68
- Lin, M., Fiore, A., Horowitz, L., Cooper, O., Naik, V., Holloway, J., Johnson, B., Middlebrook, A., Oltmans, S., Pollack, I., Ryerson, T., Warner, J., Wiedinmyer, C., Wilson, J., and Wyman, B. : Transport of Asian ozone pollution into surface air over the western United States in spring, *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH*, 117, 1–20, <https://doi.org/10.1029/2011JD016961>, 2012. 67
- Lioussé, C., Penner, J., Chuang, C., Walton, J., Eddleman, H., and Cachier, H. : A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols, *Journal of Geophysical Research*, 101, 19411–19432, <https://doi.org/10.1029/95JD03426>, 1996. 26, 66
- Liu, F., Beirle, S., Zhang, Q., Van Der A, R. J., Zheng, B., Tong, D., and He, K. : NO_x emission trends over Chinese cities estimated from OMI observations during 2005 to 2015, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17, 9261–9275, <https://doi.org/10.5194/acp-17-9261-2017>, 2017. 61, 62
- Liu, J., Niu, D., and Song, X. : The energy supply and demand pattern of China : A review of evolution and sustainable development, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 25, 220–228, <https://doi.org/10.1016/j.rser.2013.01.061>, URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.rser.2013.01.061>, 2013a. 46
- Liu, Q., Lam, K., Jiang, F., Wang, T., Xie, M., Zhuang, B., and Jiang, X. : A numerical study of the impact of climate and emission changes on surface ozone over South China in autumn time in 2000 – 2050, *Atmospheric Environment*, 76, 227 – 237, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.01.030>, 2013b. 62
- Lowsen, D. H. and Conway, G. A. : Air Pollution in Major Chinese Cities : Some Progress, But Much More to Do, *J. Environ Prot (Irvine, Calif)*, 7, 2081–2094, <https://doi.org/10.4236/jep.2016.713162>. Air, 2017. 60, 64
- Maddison, A. : Chinese Economic Performance in the Long run Second Edition, Revised and updated 1960-2030 AD, OECD, 2007. 48
- Mailler, S., Menut, L., Khvorostyanov, D., Valari, M., Couvidat, F., Siour, G., Turquety, S., Briant, R., Tuccella, P., Bessagnet, B., Colette, A., Létinois, L., Markakis, K., and Meleux, F. : CHIMERE-2017 : From urban to hemispheric chemistry-transport modeling, *Geoscientific Model Development*, 10, 2397–2423, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-2397-2017>, 2017. 80
- Martcorena, B. and Bergametti, G. : Modeling the atmospheric dust cycle : Design of a soil-derived dust emission scheme, *Journal of Geophysical Research*, 1995. 25, 85, 86
- Martcorena, B., Chazette, P., Bergametti, G., Dulac, F., and Legrand, M. : Mapping the aerodynamic roughness length of desert surfaces from the POLDER/ADEOS bi-directional reflectance product, *Int. J. Remote Sensing*, 25, 603–626, 2004. 87

- McCormick, B. T., Edmonds, M., Mather, T. A., Campion, R., Hayer, C. S. L., Thomas, H. E., and Carn, S. A. : Volcano monitoring applications of the Ozone Monitoring Instrument, Geological Society, London, Special Publications, 380, 259–291, <https://doi.org/10.1144/SP380.11>, URL <http://sp.lyellcollection.org/content/380/1/259>, 2013. 75
- McKinsey Global Institute : Global growth : Can productivity save the day in an aging world?, McKinsey & Company, URL <https://www.mckinsey.com/{~}/media/McKinsey/FeaturedInsights/EmploymentandGrowth/Canlongtermglobalgrowthbesaved/MGI{ }Global{ }growth{ }Full{ }report{ }February{ }2015pdf.ashx>, 2015. 48, 50
- McNeill, J. : Something New Under the Sun : An Environmental History of the Twentieth-Century World (The Global Century Series), 2001. 52
- Menut, L., Schmechtig, C., and Marticorena, B. : Sensitivity of the Sandblasting Flux Calculations to the Soil Size Distribution Accuracy, pp. 1875–1884, 2005. 152
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, a., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, a., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J.-L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., and Vivanco, M. G. : CHIMERE 2013 : a model for regional atmospheric composition modelling, *Geoscientific Model Development*, 6, 981–1028, <https://doi.org/10.5194/gmd-6-981-2013>, URL <http://www.geosci-model-dev.net/6/981/2013/>, 2013a. 80
- Menut, L., Tripathi, O., Colette, A., Vautard, R., Flaounas, E., and Bessagnet, B. : Evaluation of regional climate simulations for air quality modelling purposes, *Climate Dynamics*, 40, 2515–2533, <https://doi.org/10.1007/s00382-012-1345-9>, 2013b. 93
- Metzger, K. B., Tolbert, P. E., Klein, M., Peel, J. L., Flanders, W. D., Todd, K., Mulholland, J. A., Ryan, P. B., and Frumkin, H. : Ambient Air Pollution and Cardiovascular Emergency Department Visits, *epidemiology*, 15, 46–56, <https://doi.org/10.1097/01.EDE.0000101748.28283.97>, 2004. 37
- Middleton, P., Stockwell, W. R., and Carter, W. P. : Aggregation and analysis of volatile organic compound emissions for regional modeling, *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 24, 1107 – 1133, [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0960-1686\(90\)90077-Z](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0960-1686(90)90077-Z), URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/096016869090077Z>, 1990. 80
- Muhs, D. R. : Aeolian Research The geologic records of dust in the Quaternary, *Aeolian Research*, 9, 3–48, <https://doi.org/10.1016/j.aeolia.2012.08.001>, 2013. 25
- Murray, L., Mickley, L., Kaplan, J., Sofen, E., Pfeiffer, M., and Alexander, B. : Factors controlling variability in the oxidative capacity of the troposphere since the Last Glacial Maximum, *Atmospheric Chemistry and Physics*, pp. 3589–3622, <https://doi.org/10.5194/acp-14-3589-2014>, 2014. 19, 20
- Nabat, P. : INTERACTIONS AEROSOLS-RAYONNEMENT-NUAGES ET VARIABILITE CLIMATIQUE EN MEDITERRANEE - APPROCHE PAR LA MODELISATION REGIONALE COUPLEE Ecole, Thèse de doctorat, Université de Toulouse, 2014. 33
- NASA : Atmosphere description, URL <https://www.nasa.gov/topics/solarsystem/sunearthsystem/atmospheric-layers.html>. 12
- National Bureau of Statistics of China : China Statistical Year Book, Tech. rep., National Bureau of Statistics of China, URL <http://www.stats.gov.cn/tjsj/ndsj/2017/indexeh.htm>, 2017. 49, 50

BIBLIOGRAPHIE

- Nenes, A., Pilinis, C., and Pandis, S. : ISORROPIA : A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols, *Aquatic Geochem*, pp. 4 :123–152, 1998. 85
- Owens, R. G. and Hewson, T. : ECMWF Forecast User Guide, Reading, <https://doi.org/10.21957/m1cs7h>, URL <https://software.ecmwf.int/wiki/display/FUG/Forecast+User+Guide>, <p> Replaces previous editions that were available as PDF documents.</p>, 2018. 78
- Pankow, J. F. : An absorption model of gas / particle partitioning of organic compounds in the atmosphere, *Atmospheric Environment*, 28, 0–3, 1994. 85
- Peixoto, M. S., de Oliveira Galvao, M. F., and Batistuzzo de Medeiros, S. R. : Cell death pathways of particulate matter toxicity *Chemosphere* Cell death pathways of particulate matter toxicity, *Chemosphere*, 188, 32–48, <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2017.08.076>, URL <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2017.08.076>, 2017. 37
- Priestley, C. H. B. : *Turbulent Transfer in the Lower Atmosphere*, University of Chicago Press, p. 130pp, 1959. 24
- Prospero, J. M., Ginoux, P., Torres, O., Nicholson, S. E., and Gill, T. E. : Environmental characterization of global sources of atmospheric soil dust identified with the Nimbus 7 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) absorbing aerosol product, *Rev. Geophys.*, 40, <https://doi.org/10.1029/2000RG000095>, 2002. 25
- Qiu, X. and Li, H. : *China’s Environmental Super Ministry Reform : Background, Challenges, and the Future* by, Environmental Law Institute, 55, 10 152–10 163, 2009. 53
- Roberts, D. : Opinion : How the US Embassy Tweeted to Clear Beijing’s Air, *Wired*, URL <https://www.wired.com/2015/03/opinion-us-embassy-beijing-tweeted-clear-air/>, 2013. 72
- Robinson, A. L., Donahue, N. M., Shrivastava, M. K., Weitkamp, E. A., Sage, Amy M. and Grieshop, A. P., Lane, T. E., Pierce, J. R., and Pandis, S. N. : Rethinking organic aerosols : Semivolatile emissions and photochemical aging, *Science*, 315, 1259–1262, 1995. 19
- Rodgers, C. : *ATMOSPHERIC From Air Pollution to Climate Change SECOND EDITION*, <https://doi.org/10.1016/B978-0-122-08450-8.X5001-2>, 1977. 74
- Rohde, R. A. and Muller, R. A. : Air Pollution in China : Mapping of Concentrations and Sources, *PLOS ONE*, 10, 1–14, <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0135749>, URL <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0135749>, 2015. 7, 38
- Roujean, J.-L., Leroy, M., and Deschamps, P.-Y. : A Bidirectional Reflectance Model of the Earth’s Surface for the Correction of Remote Sensing Data, *Journal of Geophysical Research*, 97, 20 455–20 468, 1992. 87
- Saunders, S. M., Jenkin, M. E., Derwent, R. G., and Pilling, M. J. : Protocol for the development development of the Master Chemical Mechanism , MCM v3 (Part A) : tropospheric degradation of non-aromatic volatile organic compounds, *Atmospheric Chemistry and Physics, and Physics Protocol for the d*, 3, 161–180, 2003. 16
- Schlink, U., Herbarth, O., Richter, M., Dorling, S., Nunnari, G., Cawley, G., and Pelikan, E. : Statistical models to assess the health effects and to forecast ground-level ozone, *Environmental Modelling & Software*, 21, 547–558, <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2004.12.002>, 2006. 77

- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. : *ATMOSPHERIC From Air Pollution to Climate Change SECOND EDITION*, 2006. 11, 14, 16, 18, 20, 23, 28
- Shindell, D. T., Schmidt, G. A., Miller, R. L., and Mann, M. E. : Volcanic and solar forcing of climate change during the preindustrial era, *Journal of Climate*, 16, 4094–4107, [https://doi.org/10.1175/1520-0442\(2003\)016<4094:VASFOC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(2003)016<4094:VASFOC>2.0.CO;2), 2003. 23
- Singer, L. E. and Peterson, D. : *International Energy Outlook 2016*, vol. 0484, 2016. 59
- Siour, G. : *Modélisation et évaluation de l'impact multi-échelles des mégapoles européennes*, Thèse de doctorat, Université de Paris-Est Créteil, 2012. 83, VII
- Solazzo, E., Hogrefe, C., Colette, A., Garcia-Vivanco, M., and Galmarini, S. : Advanced error diagnostics of the CMAQ and Chimere modelling systems within the AQMEII3 model evaluation framework, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17, 10 435–10 465, <https://doi.org/10.5194/acp-17-10435-2017>, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/17/10435/2017/>, 2017. 93
- Sun, J. : Provenance of loess material and formation of loess deposits on the Chinese Loess Plateau, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 203, 845–859, 2002. 66
- Szopa, S., Foret, G. and Menut, L., and Cozic, A. : Impact of large scale circulation on European summer surface ozone : consequences for modeling, *Atmospheric Environment*, 43, 1189–1195, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.10.039>, 2008. 79
- Tanaka, T. Y. and Chiba, M. : A numerical study of the contributions of dust source regions to the global dust budget, *Global and Planetary Change*, 52, 88–104, <https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2006.02.002>, 2006. 24, 26
- Tang, W., Cohan, D. S., Lamsal, L. N., Xiao, X., and Zhou, W. : Inverse modeling of Texas NO_x emissions using space-based and ground-based NO₂ observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 11 005–11 018, <https://doi.org/10.5194/acp-13-11005-2013>, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/13/11005/2013/>, 2013. 79
- Tegen, I., Werner, M., Harrison, S., and Kohfeld, K. : Relative importance of climate and land use in determining present and future global soil dust emission, *Geophys. Res. Lett.* 31, <https://doi.org/10.1029/2003GL019216>, 2004. 24
- The World Bank, and Institute for Health Metrics and Evaluation , and : *The Cost of Air Pollution Strengthening the Economic Case for Action*, URL <https://openknowledge.worldbank.org/bitstream/handle/10986/25013/108141.pdf?sequence=4&isAllowed=y>, 2016. 36, 37, 38
- Theys, N., De Smedt, I., van Gent, J., Danckaert, T., Wang, T., Hendrick, F., Stavrou, T., Bauduin, S., Clarisse, L., Li, C., Krotov, N., Yu, H., Brenot, H., and Van Roozendaal, M. : Sulfur dioxide vertical column DOAS retrievals from the Ozone Monitoring Instrument : Global observations and comparison to ground-based and satellite data N., *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, pp. 2470–2491, <https://doi.org/10.1002/2014JD022657>, 2015. 75
- Tie, X., Li, G., Ying, Z., Guenther, A., and Madronich, S. : Biogenic emissions of isoprenoids and NO in China and comparison to anthropogenic emissions, *Science of The Total Environment*, 376, 238–251, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2006.06.025>, 2006. 61, 62

- Valorso, R., Aumont, B., Camredon, M., Ng, N. L., and Seinfeld, J. H. : Explicit modelling of SOA formation from α -pinene photooxidation : sensitivity to vapour pressure estimation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, pp. 6895–6910, <https://doi.org/10.5194/acp-11-6895-2011>, 2011. 28
- Van Damme, M., Clarisse, L., Heald, C. L., Hurtmans, D., Ngadi, Y., Clerbaux, C., and Dolman, A. J. : Global distributions , time series and error characterization of atmospheric ammonia (NH_3) from IASI satellite observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 2905–2922, <https://doi.org/10.5194/acp-14-2905-2014>, 2014. 76
- Van Damme, M., Whitburn, S., Clarisse, L., Clerbaux, C., Hurtmans, D., and Coheur, P. F. : Version 2 of the IASI NH_3 neural network retrieval algorithm : Near-real-time and reanalysed datasets, *Atmospheric Measurement Techniques*, 10, 4905–4914, <https://doi.org/10.5194/amt-10-4905-2017>, 2017. 76
- Verstraeten, W. W., Neu, J. L., Williams, J. E., Bowman, K. W., Worden, J. R., and Boersma, K. F. : Rapid increases in tropospheric ozone production and export from China, *Nature Geoscience*, 8, 690–695, <https://doi.org/10.1038/ngeo2493>, 2015. 67
- Verwer, J. G. : Gauss-Seidel iteration for stiff ODEs from chemical-kinetics, *Siam Journal on Scientific Computing*, 15, 1243–1250, 1994. 82
- Wang, H., Wu, Q., Liu, H., Wang, Y., Cheng, H., Wang, R., Wang, L., Xiao, H., and Yang, X. : Sensitivity of biogenic volatile organic compound emissions to leaf area index and land cover in Beijing, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 9583–9596, <https://doi.org/10.5194/acp-18-9583-2018>, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/18/9583/2018/>, 2018. 61
- Wang, J., Zhong, L., and Long, Y. : Technical Note Baseline Water Stress : China, World Resources Institute Technical Note, pp. 1–16, 2016. 52
- Wang, J., Zhao, B., Wang, S., Yang, F., Xing, J., Morawska, L., Ding, A., Kulmala, M., Kerminen, V.-m., Kujansuu, J., Wang, Z., Ding, D., Zhang, X., Wang, H., Tian, M., Petäjä, T., Jiang, J., and Hao, J. : Science of the Total Environment Particulate matter pollution over China and the effects of control policies, *Science of the Total Environment*, 584-585, 426–447, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.01.027>, URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.01.027>, 2017. 64, 65
- Wang, T. : A Study on Spatial-temporal Changes of Sandy Desertified Land During Last 5 Decades in North China, *Acta Geographica Sinica*, 59, 203–212, 2004. 52
- Wang, Y., Teter, J., and Sperling, D. : China ’ s soaring vehicle population : Even greater than forecasted?, *Energy Policy*, 39, 3296–3306, <https://doi.org/10.1016/j.enpol.2011.03.020>, URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.enpol.2011.03.020>, 2011. 46
- Wang, Y., Shen, L., Wu, S., Mickley, L., He, J., , and Hao, J. : Sensitivity of surface ozone over China to 2000–2050 global changes of climate and emissions, *Atmospheric Environment*, 75, 374 – 382, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.04.045>, 2013. 62
- Wesely, M. : Parameterization of Surface Resistances to Gaseous Dry Deposition in Regional-Scale Numerical Models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293–1304, 1989. 88
- Whalley, L. K., Furneaux, K. L., Goddard, A., Lee, J. D., Mahajan, A., Oetjen, H., Read, K. A., and Kaaden, N. : and Physics The chemistry of OH and HO₂ radicals in the boundary layer over the tropical Atlantic Ocean, *Atmospheric Chemistry and Physics*, pp. 1555–1576, 2010. 16

- White, B. R. : Encyclopedia of fluid mechanics, Gulf Publishing, Houston, TX, USA, 1986. 24, 86, 161
- World Factbook, C. I. A. : The World Factbook 2015, URL <https://www.cia.gov/library/publications/the-world-factbook/index.html>, 2016. 7
- World Health Organization : Ambient Air Pollution : A global assessment of exposure and burden of disease, World Health Organization, pp. 1–131, <https://doi.org/9789241511353>, URL www.who.int.org, 2016. 37, 38
- Wu, W., Zhao, S., Zhu, C., and Jiang, J. : Landscape and Urban Planning A comparative study of urban expansion in Beijing , Tianjin and Shijiazhuang over the past three decades, Landscape and Urban Planning, 134, 93–106, <https://doi.org/10.1016/j.landurbplan.2014.10.010>, URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.landurbplan.2014.10.010>, 2015. 50, 51
- X., W., Xia, D., Wang, T., Xue, X., and Li, J. : Dust sources in arid and semiarid China and southern Mongolia : Impacts of geomorphological setting and surface materials, Geomorphology, 97, 583–600, 2008. 66
- Xia, Y., Zhao, Y., and Nielsen, C. P. : Bene fi ts of China ’ s efforts in gaseous pollutant control indicated by the bottom-up emissions and satellite observations 2000 e 2014, Atmospheric Environment, 136, e871–e873, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.04.013>, URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.04.013>, 2016. 59
- Xie, R., Sabel, C. E., Lu, X., Zhu, W., Kan, H., Nielsen, C. P., and Wang, H. : Long-term trend and spatial pattern of PM_{2.5} induced premature mortality in China, Environment International, <https://doi.org/10.1016/j.envint.2016.09.003>, 2016. 7
- Yang, F., Ye, B., He, K., Ma, Y., Cadle, S. H., Chan, T., and Mulawa, P. A. : Characterization of atmospheric mineral components of PM_{2.5} in Beijing and Shanghai , China, Science of the Total Environment, 343, 221–230, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2004.10.017>, 2004. 65, 66
- Yang, J. : Stèles, La Grande famine en Chine, 1958-1961, Seuil,, 2012. 45, 49
- Yang, Y., Wang, H., Smith, S. J., Ma, P.-I., and Rasch, P. J. : Source attribution of black carbon and its direct radiative forcing in China, Atmospheric Chemistry and Physics, 17, 4319–4336, <https://doi.org/10.5194/acp-17-4319-2017>, 2017. 65, 66, 67
- Young, P., Archibald, A., Bowman, K., Lamarque, J.-F., Naik, V., Stevenson, D., Tilmes, S., Voulgarakis, A., Wild, O., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Cionni, I., Collins, W., Dalsøren, S., Doherty, R., Eyring, V., Faluvegi, G., Horowitz, L., Josse, B., Lee, Y., MacKenzie, I., Nagashima, T., Plummer, D., Righi, M., Rumbold, S., Skeie, R., Shindell, D., Strode, S., Sudo, K., Szopa, S., and Zeng, G. : Pre-industrial to end 21st century projections of tropospheric ozone from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), Atmospheric Chemistry and Physics, 13, 2063–2090, <https://doi.org/10.5194/acp-13-2063-2013>, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/13/2063/2013/>, 2013. 19
- Zender, C., Bian, H., and Newman, D. : Mineral dust entrainment and deposition (DEAD) model : description and 1990s dust climatology, J. Geophys. Res., 108, 4416, <https://doi.org/10.1029/2002JD002775>, 2003. 24

- Zhang, C. and Luna, L. : One tenth of groundwater deserves top grade, admit Chinese officials, URL <https://www.chinadialogue.net/blog/6092-One-tenth-of-groundwater-deserves-top-grade-admit-Chinese-officials/en>, 2013. 51
- Zhang, L., Chen, Y., Zhao, Y., Henze, D. K., Zhu, L., Song, Y., Paulot, F., and Liu, X. : Agricultural ammonia emissions in China : reconciling bottom-up and top-down estimates, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 339–355, <https://doi.org/10.5194/acp-18-339-2018>, 2018. 60, 61
- Zhao, B., Jiang, J. H., Gu, Y., Diner, D., Worden, J., Liou, K.-n., and Su, H. : Decadal-scale trends in regional aerosol particle properties and their linkage to emission changes Decadal-scale trends in regional aerosol particle properties and their linkage to emission changes, *Environ. Res. Lett.*, 12, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aa6cb2>, 2017. 59
- Zheng, B., Tong, D., Li, M., Liu, F., Hong, C., Geng, G., Li, H., and Li, X. : Trends in China ' s anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmospheric Chemistry and Physics* DIs., pp. 1–27, <https://doi.org/doi.org/10.5194/acp-2018-374>, 2018. 54, 55
- Zheng, J. : Monitoring network to be further expanded, *China Daily*, URL http://www.chinadaily.com.cn/china/2017-04/07/content_28827498.htm, 2017. 71
- Zhou, L., Tucker, C. J., Kaufmann, R. K., Slayback, D., Shabanov, N. V., and Myneni, R. B. : Variations in northern vegetation activity inferred from satellite data of vegetation index during 1981 to 1999, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106, 20 069–20 083, <https://doi.org/10.1029/2000JD000115>, URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2000JD000115>, 2001. 26
- Zhu, J. and Liao, H. : Future ozone air quality and radiative forcing over China owing to future changes in emissions under the Representative Concentration Pathways (RCPs), *Journal of Geophysical Research*, 121, 1978 – 2001, <https://doi.org/10.1002/2015JD023926>, 2016. 62

ABSTRACT

As a result of its significant economic development, Chinese society has transformed itself and today faces a global environmental crisis. In everyday life, China's big cities are covered with a thick smog of gas and particles, which is responsible for more than 1.6 million premature deaths, making China the most affected country by air pollution, along with its neighbor, India.

In China, there are many sources of air pollution linked to human activities [traffic, industry, agriculture, energy production, construction], but also various natural sources of pollutants, in particular emissions of mineral dust from the deserts of Asia, in western China.

The People's Republic of China has begun to regulate activities that may affect air quality. The effectiveness of such actions is conditioned by the detailed knowledge of the anthropogenic contribution to this pollution and the complex relationship between primary and secondary pollutants.

In this thesis, we have investigated, on the one hand, the impact of primary pollutant reduction policies on ammonia concentrations and more generally inorganic aerosols, and on the other hand, the contribution of desert aerosol to the particulate matter load in Chinese urban agglomerations. To do so, we combined data sources and tools such as satellite observations and numerical modelling. We use the CHIMERE regional chemistry-transport model to study and characterize air pollution in China.

First, we carried out a detailed evaluation of the simulations performed with a configuration of the CHIMERE model set up for China. For this, we relied on satellite observations, remote sensing, and in-situ measurements of particulate concentrations and gaseous [inorganic] precursors. The results obtained show that the model works satisfactorily according to criteria given in the literature.

Regarding the impact of emission reduction policies - especially for sulfur and nitrogen oxides, long term measurements with the OMI instrument aboard the AURA satellite show a sharp decrease in the atmospheric sulfur dioxide and nitrogen dioxide columns. From these observations, it was possible to derive corrected emissions [compared to the available 2010 inventory] for the years 2013 and 2015 for NO_x and SO_2 . The derived emission trends were then used to study the impacts on atmospheric composition, particularly on the formation of inorganic particles and associated gases such as ammonia, whose concentrations appeared to strongly increase in recent years. Simulations showed that the sharp decrease in SO_2 and NO_2 emissions between 2011 and 2015 led to an overall 14 % decrease in nitrate, sulphate and ammonium aerosol concentrations, as well as an increase of nearly 50 % of ammonia column levels, a value corroborated by the IASI observations that indicate an increase in ammonia columns of +65 % under the same conditions.

In a second step, the objective was to evaluate the contribution of desert aerosol to the particulate matter load in several Chinese cities. Dust emission modeling by Asian desert regions was first evaluated using remote sensing observations. Then, we verified the model's ability to represent $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} concentrations in Chinese megacities by comparing measurements of ground based observation networks. The study focuses mainly on three of the most populated PRC cities with different geographic locations, Beijing, Chengdu and Shanghai. It appears that mineral dust impacts these 3 cities for 6.6 % [Beijing], 9.5 % [Chengdu] and 9.3 % [Shanghai] PM_{10} on an annual average. The frequencies of dust participation in particulate pollution [i.e. when dust contributes more than 25 % to the daily averages of >25 % of the mass of PM_{10}] have been determined for all spring days, as well as for the 25 % of the most polluted spring days. It appears that, over this season, dust contributes more significantly to pollution events : in Beijing it accounts for 22 % of polluted days compared to 18 % for all spring days, in Chengdu for 52 % of polluted days compared to 31 % for all spring days, and in Shanghai for 43 % of polluted days compared to 19 % for all spring days. On the contrary, for all seasons combined and especially for peaks of particulate pollution in winter, the anthropogenic origin of pollution is highlighted.



