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. Milieux et Changements globaux. Sorbonne Université, 2018. Français. NNT : 2018SORUS626 . tel-02914807v2

HAL Id: tel-02914807

https://hal.science/tel-02914807v2

Submitted on 27 Sep 2022

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	Examinateur
M. MATTHIAS BEEKMANN	LISA-OSU	Directeur de thése
M. GILLES FORET	LISA	Co-Directeur de thése

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 :
Laboratoire Inter-Universitaire des Systémes Atmosphériques [CNRS UMR 7583], Université Paris Est Créteil et Université Paris Diderot.

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 Seinfled & 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 1er n'existe plus, mais un 8ème 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 PolEASIA et à GAËLLE DUFOUR, pour les échanges scientifiques, mais aussi les conférences et petits périples 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 [MERCI 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 souçis d'homogéneïté, 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 entrainé 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 même 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 $PM_{2.5}$ 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 pour l'ensemble des jours de printemps, et à Shanghai pour 43 % des jours pollués contre 19 % pour 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 a 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 $PM_{2.5}$ 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] 16
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 20
I.3.1 Définition générale 20
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 26
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 34
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 37
Conlusion 38

II La République populaire de Chine, un contexte particulier 39
II.1 La Chine, un géant mondial 41
II.2 De la Chine impériale à la PRC actuelle, un pays plusieurs fois millénaire. 41
II.2.1 La Chine impériale, société millénaire. 41
II.2.2 Une guerre civile de plus de 30 ans 43
II.2.3 La proclamation de la PRC et le modèle socialiste chinois 43
II.2.4 Une Chine ouverte, une Chine nouvelle. 44
II.2.5 La Chine de Xi Jinping 44
II.3 L'évolution de la position de la Chine dans l'économie mondiale. 45
II.3.1 Une addiction de la Chine à l'égard du charbon 46
II.4 La population chinoise, un cas unique 47
II.4.1 De l'explosion des naissances à une démographie sous contrôle 47
II.4.2 Une urbanisation rapide 48
II.5 La crise environnementale en Chine, une crise globale 49
II.5.1 Un impact global 49
II.5.2 L'action politique chinoise face aux défis environnementaux 51
II.5.3 Mise en place de réglementation : 51
II.5.4 Une implication et une demande de la population 52

III La pollution atmosphérique en Chine 55
III.1 Les tendances des principaux polluants en Chine 57
III.1.1 Le dioxyde de soufre en Chine 57
III.1.2 L'ammoniac en Chine 58
III.1.3 Les oxydes d'azote en Chine 59
III.1.4 Les Composés Organiques Volatils Non Méthaniques en Chine 59
III.1.5 L'Ozone 59
III.1.5.1 Composition, variabilité et évolution des aérosols en Chine 60
III.2 Influence à l'échelle globale de la pollution atmosphérique chinoise 65
III.2.1 Impact radiatif des aérosols et conséquences sur le climat 65
III.2.2 Transport de la pollution jusqu'au Japon et États-Unis 65
Conclusion 66

IV Outils et méthodes : observer et modéliser l'atmosphère 67
IV.1 Les instruments d'observation de l'atmosphère 69
IV.1.1 Les mesures au sol 69
IV.1.2 L'observation depuis l'espace 72
IV.2 La modélisation numérique de la pollution atmosphérique 75
IV.2.1 Généralités 75
IV.2.2 Le modèle CHIMERE 75

IV.2.2.1 Les informations d'entrée du modèle : les forçages externes 76
IV.2.2.2 Discrétisation et principe général de fonctionnement du modèle : . 78
IV.2.2.3 La chimie de la phase gazeuse : 81
IV.2.2.4 Représentation de la physico-chimie des aérosols : 82
IV.2.2.5 La modélisation des émissions de poussières minérales désertiques : 83
IV.2.2.6 La représentation des processus de dépôt et de la re-suspension : . 86

V Evaluation du modèle CHIMERE 89
V.1 Indicateurs statistiques 91
V.2 Evaluation des simulations à partir des mesures de surfaces fournies par le CRAES . 92
V.2.1 Stratégie 92
V.2.2 Résultats des comparaisons 92
V.2.3 Analyse des nuages de points établis par centiles 92
V.3 Evaluation des simulations à partir des mesures des ambassades des États-Unis . . . 96
V.3.1 Résultats des comparaisons 96
V.4 Evaluation des simulations à partir des AOD du réseau AERONET 97
V.4.1 Stratégie 97
V.4.2 Résultats des comparaisons 98
V.5 Evaluation des simulations à partir des observations satellites MODIS 98
V.5.1 Stratégie 98
V.5.2 Résultats des comparaisons 99
V.6 Evaluation des simulations à partir des observations satellitaires OMI 100
V.6.1 Stratégie 100
V.6.2 Résultats des comparaisons 100
V.7 Conclusion 102

VI The unintended consequence of SO_2 and NO_2 regulations over China 103
Résumé de l'article 105
VI.1 Abstract 107
VI.2 Introdution 107
VI.3 Material and method 108
VI.3.1 IASI Satellite observations 108
VI.3.2 The chemistry-transport CHIMERE model and updated NO_X and SO_2 emissions 108
VI.3.3 ISORROPIA 110
VI.3.4 Set-up of the performed sensitivity tests 111
VI.4 Results and Discussion 111
VI.4.1 Impact of meteorological conditions on the NH_3 / NH_4^+ / SO_4^{2-} / NO_3^- system . 111
VI.4.2 Impact of SO_2 and NO_X emission reduction on NH_3 columns and inorganic aerosol 114
VI.4.2.1 Impact of SO_2 and NO_X emission reduction on NH_3 columns . . . 114
VI.4.2.2 Impact of SO_2 and NO_X emission reduction on pSNA production . 114
VI.4.2.3 NH_3 : a key role for the regulation of PM as a limiting reactant . . 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 Evaluation against IASI NH_3 columns observations 118
VI.5 Conclusion 119

VII Air quality degradation by mineral dust over Beijing, Chengdu and Shanghai 125
Résumé de l'article . . . 127
VII.1 Abstract . . . 129
VII.2 Introdution . . . 129
VII.3 Material and method . . . 130
VII.3.1 CHIMERE CTM . . . 130
VII.3.2 Anthopogenic and biogenic aerosols modeling . . . 130
VII.3.3 Mineral dust aerosol modeling . . . 130
VII.3.4 AOD data set and their use for model evaluation comparison methods . . . 131
VII.3.5 Method to determine dust origins in cities . . . 131
VII.3.6 Surface measurements data set and comparison methods . . . 132
VII.3.7 Motivations to focus on Beijing, Chengdu and Shanghai . . . 132
VII.4 Results and discussion . . . 132
VII.4.1 Dust emissions and evaluation . . . 132
VII.4.1.1 Mineral dust emissions and seasonality . . . 132
VII.4.1.2 CHIMERE AOD evaluation in dust emission source areas . . . 133
VII.4.2 Dust contribution to urban Chinese particle pollution . . . 134
VII.4.2.1 PM concentration modelling evaluation . . . 134
VII.4.2.2 Dust contribution to cities' air pollution and dust origin . . . 135
VII.4.2.3 Daily variability of PM_{10} component concentrations . . . 137
VII.4.2.4 Dustcontribution during high pollution episodes . . . 137
VII.5 Conclusion . . . 139

Conclusion 143

Perspectives 145

Table des figures 147

Liste des tableaux 151

Liste des équations et réactions 153

Glossaire 155

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 SO_2 and NO_2 regulations XV

D [Annexe] Air quality degradation by mineral dust over Chinese megacities XXIII

E [Annexe] Participation à différentes conferences **XXVII**

Bibliographie **XXXI**

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 1re 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 1er 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 CO_2 [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. 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].

CHAPITRE

I

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] 16
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 **20**
I.3.1 Définition générale 20
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 26
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 34
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 37
Conlusion **38**

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 décroit 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 décroit 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] :

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

ou P_0 est la pression à $z = 0$, M_{air} représente la masse molaire moyenne de la colonne d'air, g l'accélération de gravité, 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 ou 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

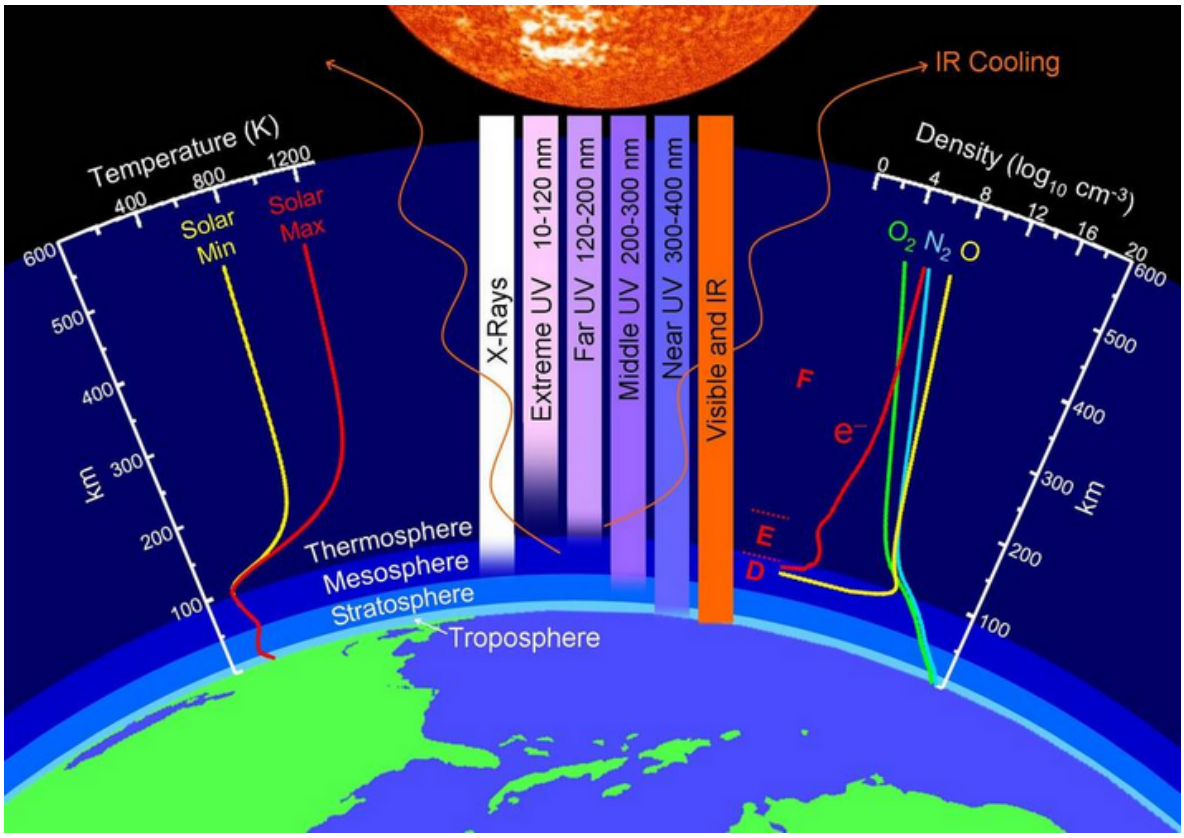

FIGURE I.1 – *Schéma récapitulatif de la structure et des propriétés de l'atmosphère [depuis le site de la NASA, consulté le 03/08/2018].*

[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 [τ_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} en μg.m^{-2}] et le flux de production [P, μg.m^{-2}.s^{-1}] ou d'élimination [R, μg.m^{-2}.s^{-1}] :

$$\tau_i = \frac{M_{col}}{P} = \frac{M_{col}}{M} \tag{I.2}$$

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.

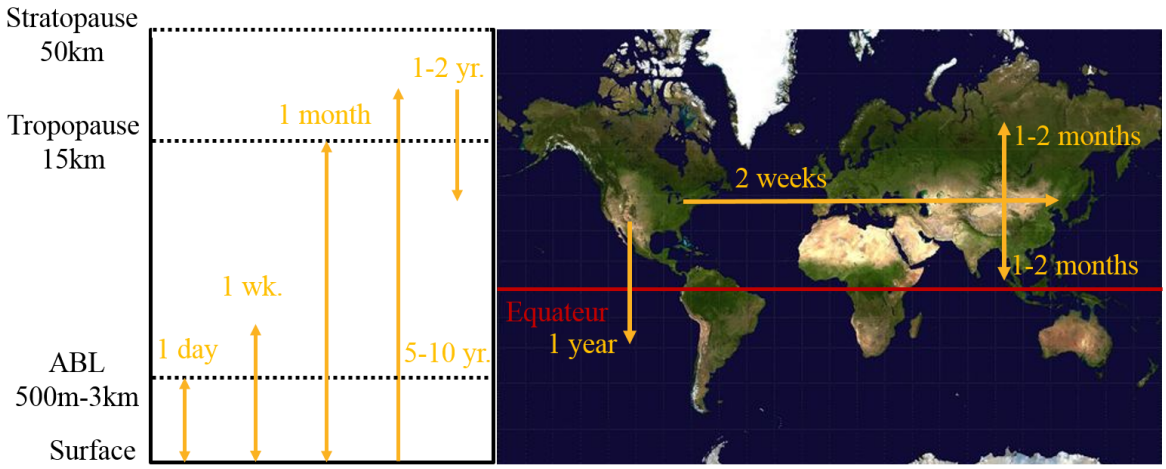

FIGURE I.2 – *Echelle de temps de mélange atmosphérique, à gauche diffusion verticale, à droite diffusion horizontale.*

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 ; τ_{CH_4} = 8 ans] et le dioxyde de carbone [CO_2, ; τ_{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 :

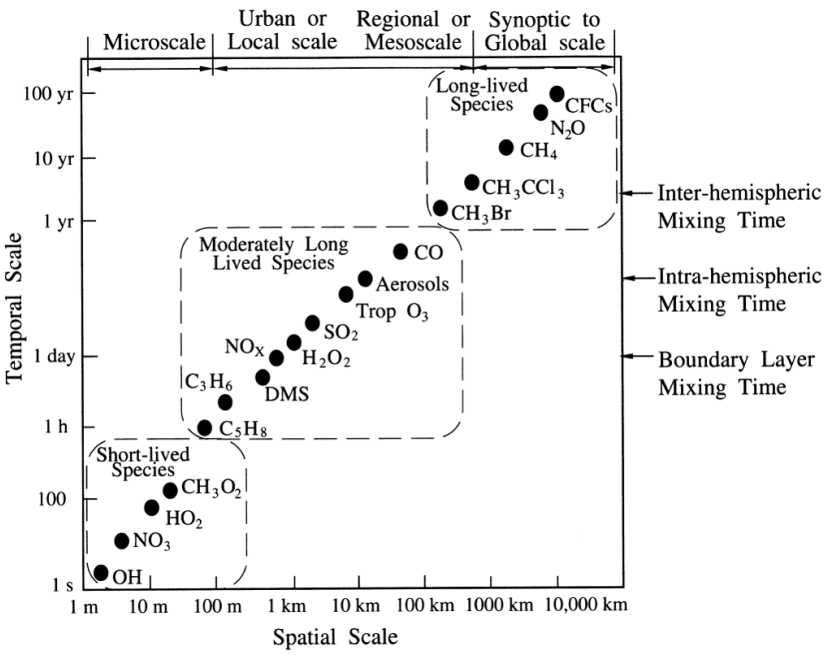

FIGURE I.3 – *Echelles de transport spatial de certains composés atmosphériques en fonction de leur temps de vie, depuis Seinfeld and Pandis [2006].*

$$M + A \xrightarrow{k_{M+A}} B \tag{I.3}$$

Selon l'équation :

$$\tau_{M/A} = \frac{1}{k_{M+A} \times [A]} \tag{I.4}$$

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 O_2 et de O_3 présents en phase gaz. Cette capacité est principalement liée aux différents radicaux hydroxyles [HO_X], OH [hydroxyl] et HO_2 [Hydroperoxyl]. Les radicaux sont des espèces chimiques possédant un ou plusieurs électrons non appariés, ce qui leur procure une importante réactivité. Cette propriété concerne plus spécifiquement OH, premier oxydant de la troposphère, qui est formé à partir de la photodissociation de O_3 [$h\nu < 319$ mn] en présence de H_2O selon :

$$\begin{cases} O_3 + h\nu \longrightarrow O_2 + O(^1D) \\ O(^1D) + H_2O \xrightarrow{k_{I.5}} 2OH \end{cases} \tag{I.5}$$

Mais après la formation de $O(^1D)$ excité dans l'Équation I.5, il est possible que l'atome d'oxygène excité puisse 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 :

$$O(^1D) + M \xrightarrow{k_{I.6}} M + O(^3P) \tag{I.6}$$

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

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

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 :

$$\begin{cases} HCHO + h\nu \longrightarrow H + HCO \\ HCO + O_2 \longrightarrow HO_2 + CO \\ H + O_2 + M \longrightarrow HO_2 + M \end{cases} \tag{I.8}$$

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

$$OH + CO + O_2 \longrightarrow CO_2 + HO_2 \tag{I.9}$$

Ce type de cycle de réactions d'oxydation, transformant OH en HO_2 [et inversement lors de la formation d'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., 2013; Janssens-Maenhout et al., 2015]. LaFigure I.5a nous renseigne sur l'évolution des émissions globale de SO_2, 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

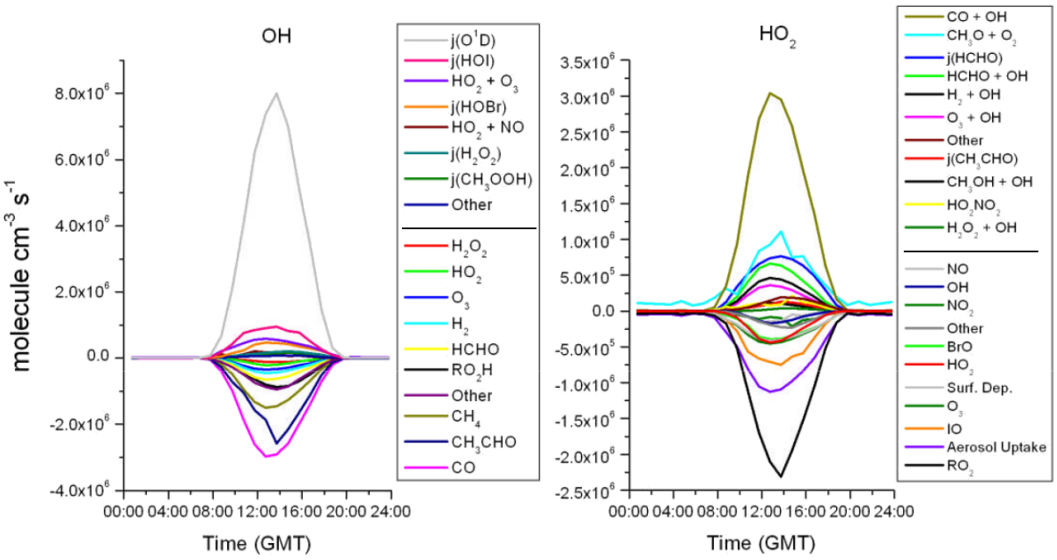

FIGURE I.4 – *Variations diurne des vitesses de réactions de OH [gauche] et HO_2 [droite] pour les principaux mécanismes de production et consommation, depuis Whalley et al. [2010] dans des conditions idéales établies par le modèle MCM [Master Chemical Mechanism] dans Saunders et al. [2003], pour un milieu propre [i.e. marin].*

radical hydroxyle de différents composés soufrés réduits, comme le sulfure d'hydrogène [$H_2S^{(-II)}$] ou le diméthyle sulfure [$CH_3S^{(-II)}CH_3$], 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 [$H_2SO^{(+VI)}_{4(g)}$] par combinaison avec de la vapeur d'eau [Équation I.10].

$$\begin{cases} H_2O_{(aq)} + SO_{2(g)} \leftrightarrows SO_2.H_2O_{(aq)} \\ OH_{(g)} + S^{(+IV)}O_{2(g)} \longrightarrow HOS^{(+V)}O_{2(g)} \\ HOS^{(+V)}O_{2(g)} + O_{2(g)} \longrightarrow S^{(+VI)}O_{3(g)} + HO_{2(g)} \\ S^{(+VI)}O_{3(g)} + HO_{2(g)} \longrightarrow H_2S^{(+VI)}O_{4(g)} \end{cases} \tag{I.10}$$

Les concentrations de SO_2 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 fonction de la saison, d'environ 13 h en été à 48 h en hiver [Lee et al., 2011].

I.2.2 L'ammoniac [NH_3]

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

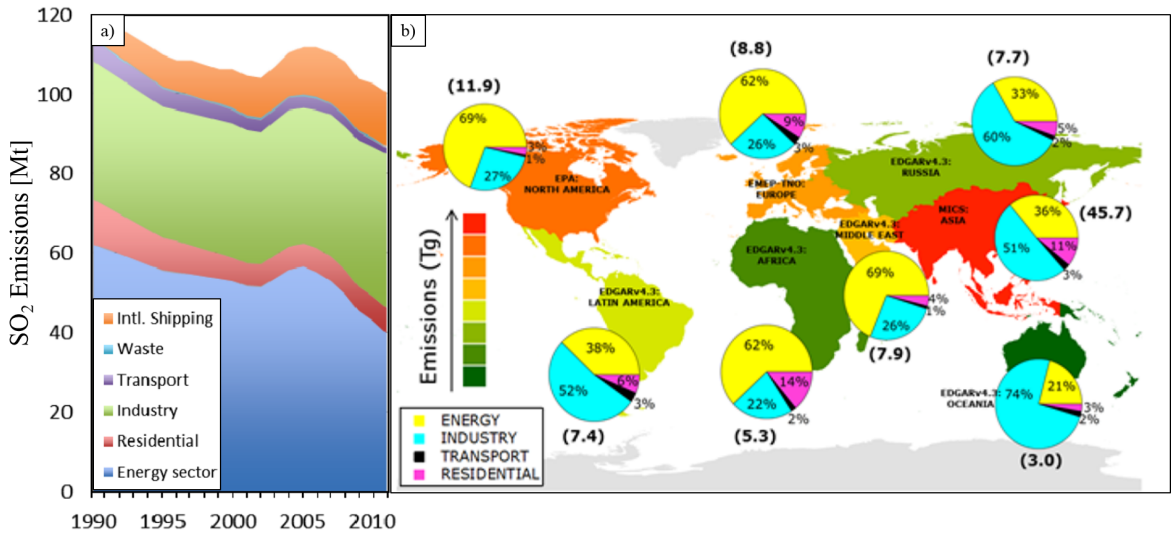

FIGURE I.5 – *a) Répartition des émissions de SO_2 par secteurs d'activités entre 1990 et 2010 pour le monde, depuis Klimont et al. [2013] et distribution des émissions par continent pour 2010, depuis Janssens-Maenhout et al. [2015].*

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. $NH_4CH_3CO_{2(aq)}$; $NH_4NO_{3(aq)}$; $(NH_4)_2SO_{4(aq)}$]. 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 26].

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 [NO_2 + NO] et les composés issus de l'oxydation des NO_X dans l'atmosphère, comme l'acide nitrique [HNO_3], l'acide nitreux [HONO], le pentoxyde d'azote [N_2O_5], les nitrates [NO_3] ou encore le nitrate de peroxyacétyle [$CH_3C[O]OONO_2$; dit PAN]. On retrouve principalement les NO_ysous forme de NO_X et de de HNO_3. 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'amine. 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.

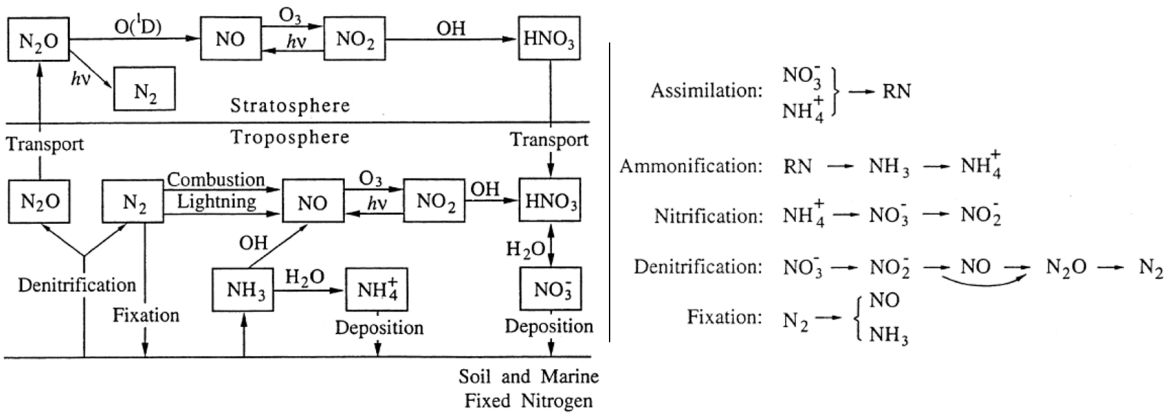

FIGURE I.6 – *À gauche : Réactions et procédés mis en jeu dans le cycle de l'azote atmosphériques. À droite : les processus du cycle de l'azote dans les sols [Seinfeld and Pandis, 2006].*

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 :

$$NO_2 + OH \longrightarrow HNO_{3(g)} \tag{I.11}$$

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 particulaires. 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 $Mt_C.yr^{-1}$, 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 $Mt_C.yr^{-1}$ [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 entrainent 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 longes chaines 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].

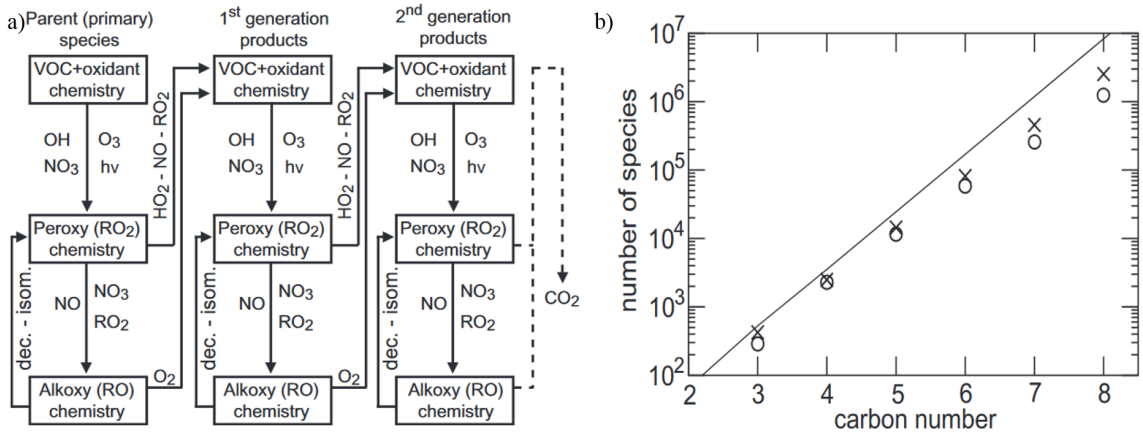

FIGURE I.7 – *a) Schéma de fonctionnalisation des NMVOC et b) nombre de produits associés au nombre de carbone de la molécule considérée au début du cycle de réaction, depuis Aumont et al. [2005].*

I.2.5 L'ozone [O_3]

L'ozone troposphérique est généralement produit par photochimie directement dans l'atmosphère ou transporté depuis la stratosphère. Globalement, environ 4553 $Mt_{O_3}.y^{-1}$ sont formés dans la troposphère, et 656 $Mt_{O_3}.y^{-1}$ 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 chaine radicalaire.

$$\begin{cases} O_3 + h\nu + H_2O \longrightarrow O_2 + 2OH \\ HCHO + h\nu + 2O_2 + M \longrightarrow 2HO_2 + CO + M \\ VOC_i + OH \longrightarrow R_iO_2 + H_2O \end{cases} \tag{I.12}$$

Les HO_2 et R_iO_2 peuvent ensuite transformer le monoxyde d'azote en dioxyde d'azote, qui peut former de l'ozone par photodissociation puis association au dioxygène :

$$\begin{cases} HO_2 + NO \longrightarrow OH + NO_2 \\ RO_2 + NO \longrightarrow RO + NO_2 \\ NO_{2(g)} + h\nu \longrightarrow NO + O \\ O + O_2 + M \longrightarrow O_3 + M \end{cases} \tag{I.13}$$

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

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].

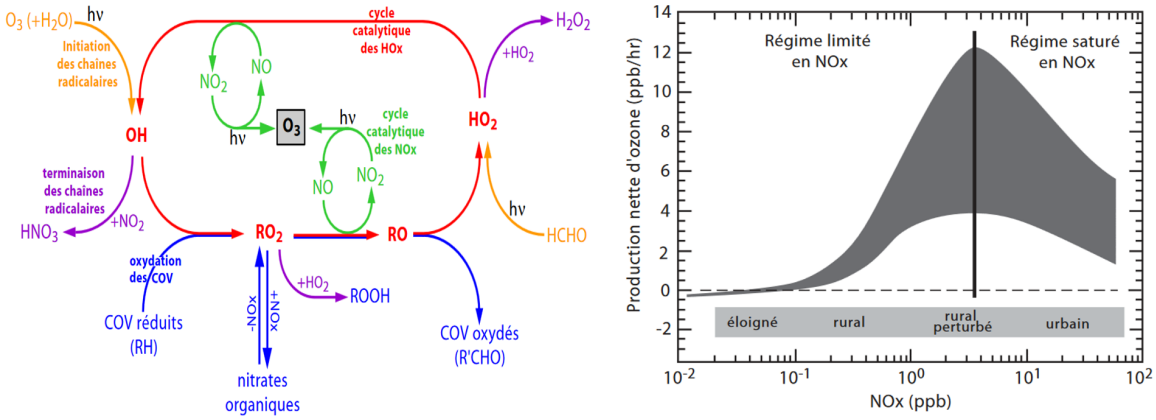

FIGURE I.8 – *à gauche, représentation schématique du cycle de formation de l'ozone. À droite, vitesse de production d'ozone en fonction des concentrations de NO_X. [Figures de Camredon and Aumont [2007]].*

Réactions de terminaison préférentielles en régime limité en NO_X :

$$\begin{cases} HO_2 + HO_2 \longrightarrow H_2O_2 + O_2 \\ RO_2 + HO_2 \longrightarrow RO_2H + O_2 \end{cases} \tag{I.14}$$

Réaction de terminaison préférentielle en régime saturé en NO_X :

$$NO_2 + OH \longrightarrow HNO_3 \tag{I.15}$$

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

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

Régime saturé en NO_X :

$$P_{O_3} = \frac{P_{HO_X} \times \sum_1^i k_{i+OH}[VOC_i]}{k_{(HO_2+NO)} \times [NO_2]} \tag{I.17}$$

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 [$4436\,Mt_{O_3}.y^{-1}$; presque à l'équilibre avec la production] et aussi par dépôt sec [$773\,_{O_3}.y^{-1}$] [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.

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 pro-

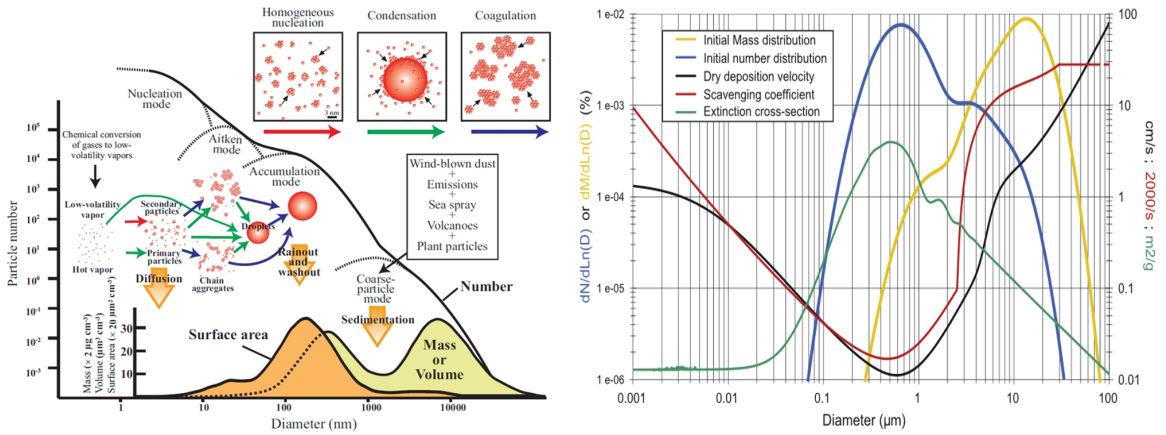

FIGURE I.9 – *à gauche, distribution standard des aérosols en fonction de leur taille et processus physiques de productions et éliminations impliqués dans la dynamique des aérosols, adaptée depuis Buseck and Adachi [2008]. À droite, variation de la vitesse de dépôt [sec et humide] des aérosols en fonction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

cessus 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 entrainés 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 μmm, et les PM_{10}, 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 varient 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 $NaCl_{(p)}$, émis dans les modes d'accumulation et grossier]. Le volume global des émissions de sels marins est estimé autour de 10 000 $Mt.y^{-1}$ 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 de sulfates 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 :

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 suspen-

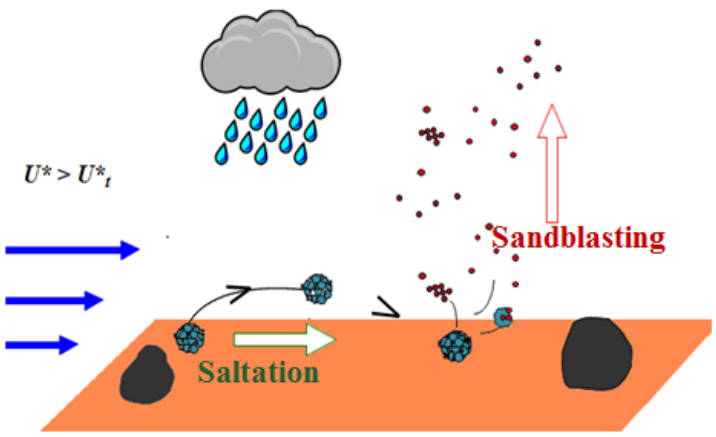

FIGURE I.10 – *Schématisation des processus de saltation et de sandblasting permettant l'émission d'aérosols désertiques issus des aggrégats du sol sous l'action du vent. Image adpatée depuis Laurent [2005].*

sion 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 évènements d'émissions intenses discontinus. L'initiation des émissions est représentée par une vitesse seuil de friction du vent [U_t^*] qui est reliée à différentes propriétés du terrain considéré. L'énergie nécessaire à la mise en mouvement des grains constitutif du sol est fonction de leur granulométrie. Le contenu en eau du sol augmente aussi les forces de cohésions 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 entrainés 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] :

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

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 entrainés dans un mouvement de saltation retombent ensuite et sont susceptibles lors de la percussion du sol de libérer de fin agrégats par dislocation des grains, un phénomène appelé « Sandblasting » [Figure I.10]. Ces fins agrégats peuvent être entrainés 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 85] :

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

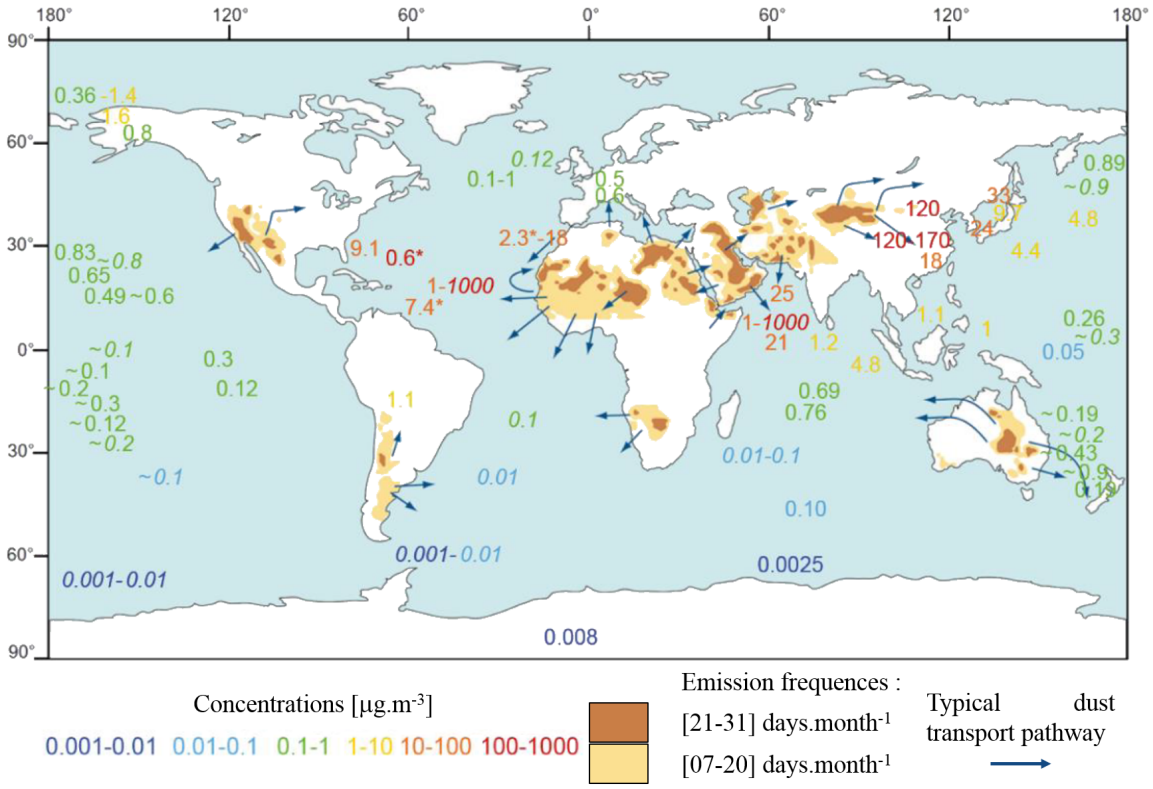

FIGURE I.11 – *Carte des régions sources d'aérosols désertiques [Muhs, 2013 d'après Prospero et al., 2002]. Principales voies de transport de poussières indiquées par les flèches d'après l'interprétation d'images satellites MODIS Terra et Aqua de Muhs [2013], et concentrations typiques mesurées en zones 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 autours 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 dust présente de forte disparités, qui s'étendent sur 6 ordres de grandeurs [de 0.001 μg.m^{-3} à 1000 μg.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 représente 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 Mt$_C$.y^{-1} par Liousse et al. [1996].

Les aérosols organiques primaires [POA, *Primary Organic Aerosols*] sont émis directement dans l'atmosphère majoritairement par les activités humaines [81 Mt$_C$.y^{-1} ; Liousse et al., 1996] mais on retrouve aussi des POA issus de source biogéniques, comme des feux de biomasses [50 Mt$_C$.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 autours de 100 Mt.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'équilibre 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 particulaires 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, NO_3, O_3, O_2 ...] 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-volatil 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 complétement] 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 :

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

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.

$$P_i = \gamma_i \times x_i \times P_{sat} \tag{I.21}$$

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'autre 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, *Extremly 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].

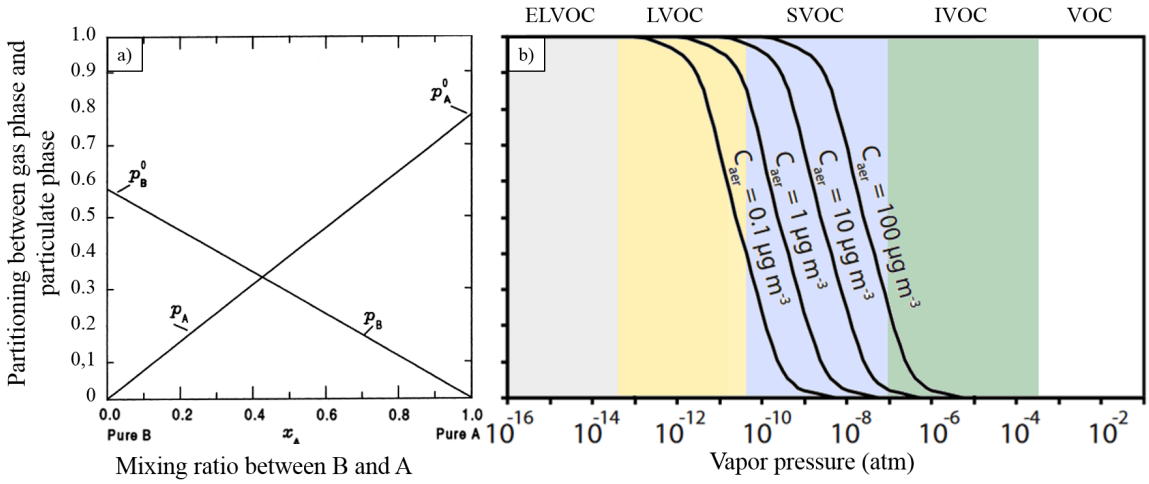

FIGURE I.12 – *Répartition entre la phase gaz et particulaire d'un composé dans l'air a) En fonction de la fraction du composé A [x_A] dans un mélange idéal binaire avec un composé B, selon la loi de Raoult [depuis Seinfeld and Pandis, 2006]. b) En fonction de la pression de vapeur des NMVOC et pour différentes concentrations d'aérosols préexistant dans le système, adapté par Lannuque [2017] depuis Valorso et al. [2011]. ELVOC = Extremly 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 [$SO^{2-}_{4(p)}$], 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] dissouts.

$$H_2O_{(aq)} + SO_{2(g)} \leftrightarrows SO_2.H_2O_{(aq)}[pH < 2] \leftrightarrows HSO^-_{3(aq)}[2 < pH < 7] \leftrightarrows SO^{2-}_{3(aq)}[pH > 7] \quad \text{(I.22a)}$$

$$S^{(+IV)}O^{2-}_{3(aq)} + O_{3(aq)} + 2H^+ \longrightarrow H_2S^{(+VI)}O_{4(aq)} + O_{2(aq)} \quad \text{(I.22b)}$$

$$HS^{(+IV)}O^-_{3(aq)} + H_2O_2 + H^+ \longrightarrow H_2S^{(+VI)}O^-_{4(aq)} + H_2O \quad \text{(I.22c)}$$

Cette voie hétérogène d'oxydation du $SO_{2(g)}$ 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 :

$$NH_{3(g)} + H_2SO_{4(g/aq)} \leftrightarrows NH_4HSO_{4(p)} \tag{I.23}$$

La neutralisation peut s'effectuer en phase gaz ou en phase aqueuse selon l'humidité relative [RH, rapport entre P_{H_2O} et $P^0_{H_2O}$] 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 $(NH_4)_3H(SO_4)_2$, $(NH_4)_2SO_4$, NH_4HSO_4 ou sous forme ionique [NH_4^+, SO_4^{2-}] en phase aqueuse.

À ce système se rajoute un autre composé inorganique issu de précurseurs gazeux anthropique, 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 :

$$NH_{3(g)} + HNO_{3(g)} \leftrightarrows NH_4HNO_{3(p)} \tag{I.24}$$

Le nitrate d'ammonium se retrouve en phase solide ou liquide en cas de fortes humidités relatives, sous forme ionique [NH_4^+ ; 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'HR 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 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

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

Électrolytes	DRH[%]
$(NH_4)_2SO_4$	79.9
$(NH_4)_3H(SO_4)_2$	69.0
NH_4NO_3	61.8
NH_4HSO_4	40.0

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 vies, 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 places 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 Ultraviolet [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 $PM_{2.5}$ a atteint 684 μg.m^{-3} [US Embassy and consulates, 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 μm – 1 μm], proches de l'ordre de grandeur des longueurs d'ondes visibles [0.4 μm – 0.8 μm], est plus efficace [théorie de mie].

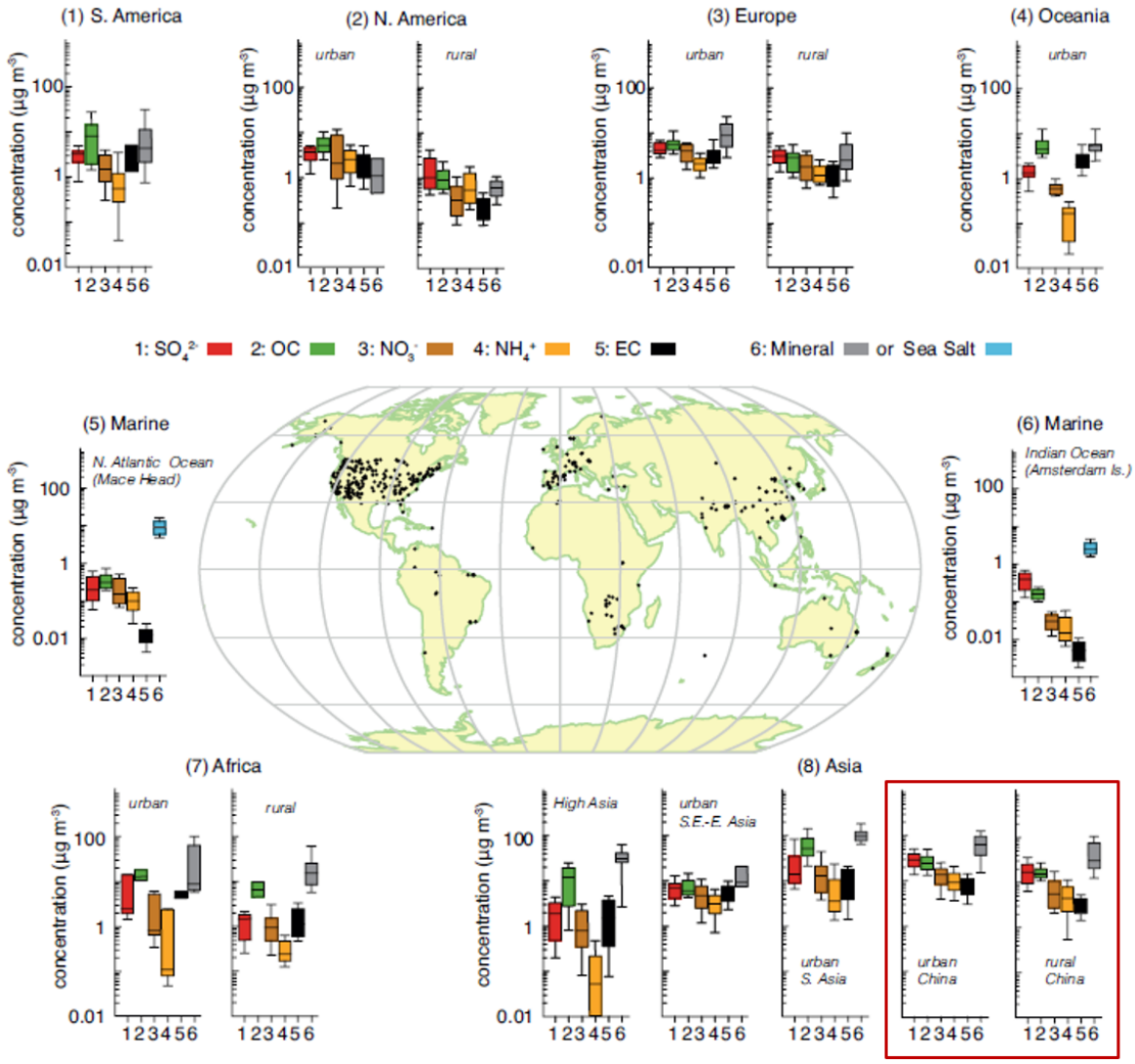

FIGURE I.13 – *Variabilité des concentrations et de la distribution des PM_{10} dans le monde, extrait de IPCC [2013].*

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

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

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

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 Asfouri/Agence France-Presse.*

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 :

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

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.

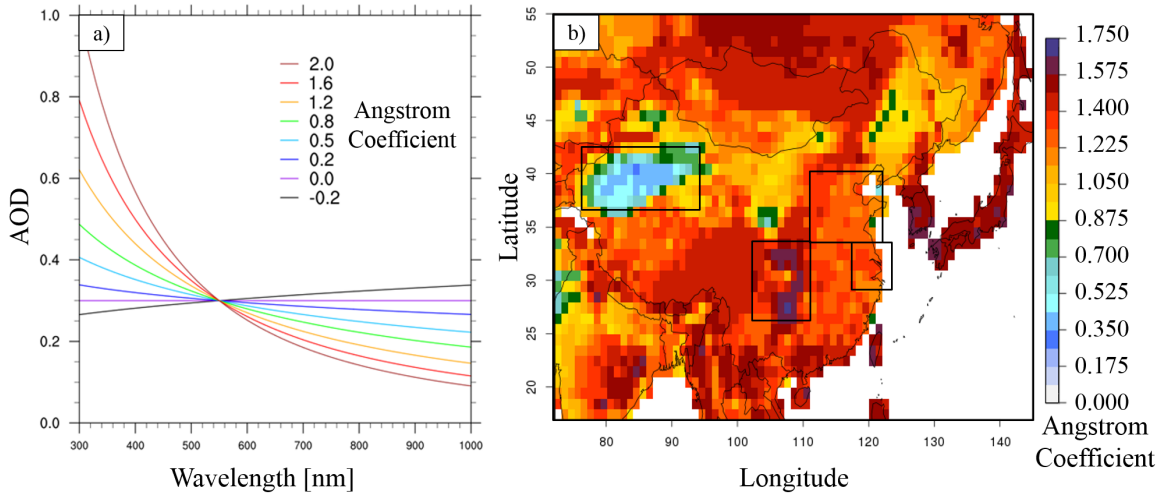

FIGURE I.15 – *a) Variation de l'AOD en fonction de la longueur d'onde pour différents coefficients d'Ångström, depuis Nabat [2014]. b) Observation des colonnes atmosphériques au-dessus de la Chine par le satellite MODIS entre 2001 et 2017. Coefficient d'Ångström. À l'Ouest, le Taklamakan, au Nord-Est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

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 » [W.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 entrainer 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 entrainent un forçage radiatif négatif et par voie de conséquences un refroidissement du système climatique. À l'inverse, l'absorption par les particules des rayonnements entraine 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 dit « indirects », comprenant leurs interactions avec les nuages, qui sont eux aussi

en interactions 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 18ème 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 types 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 forcage radiatif total [Figure I.16], une valeur relativement faible due aux fortes quantités de sulphates 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, entrainant des pertes de production agricole, chiffrées à plusieurs milliards de dollars [Jud et al., 2016].

L'émission d'aérosols minéraux désertiques peut entrainer 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 l'azote peut modifier les équilibres chimiques des milieux aquatiques ou des sols, pouvant entrainer 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 entraine 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 entrainé un encadrement législatif dans la plupart

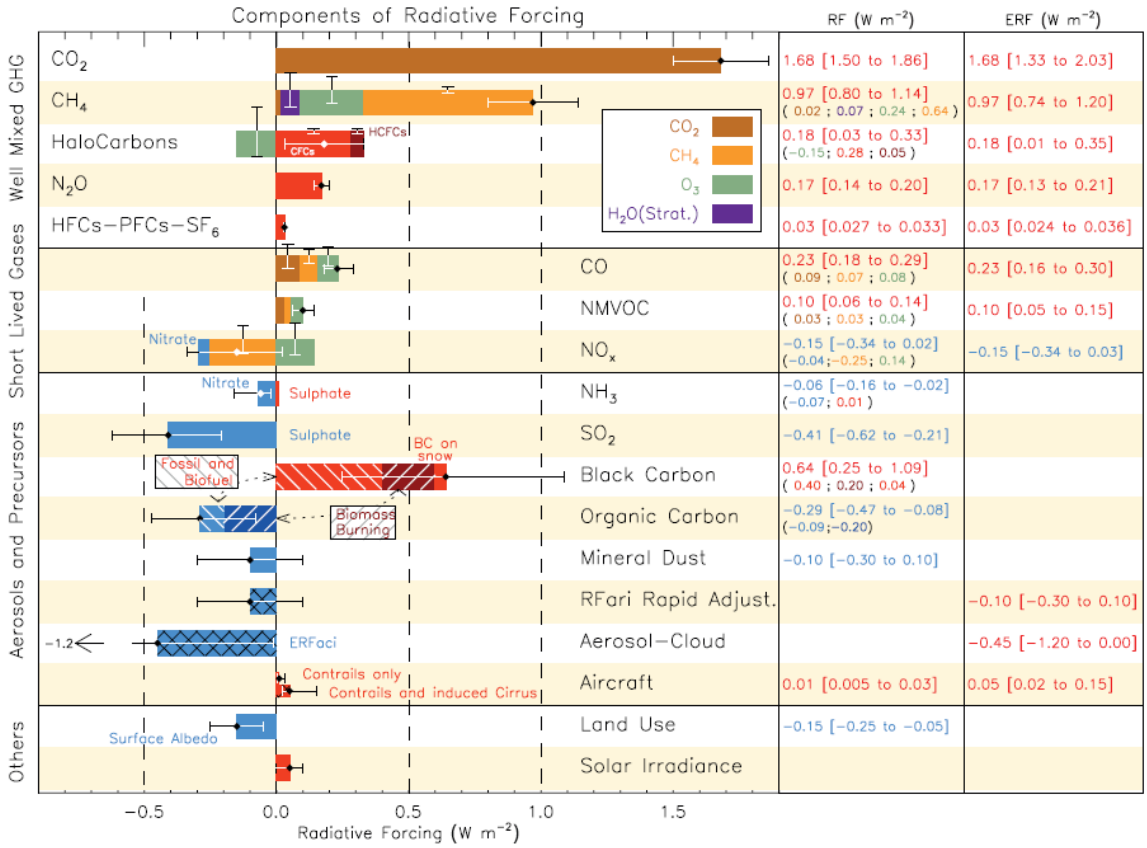

FIGURE I.16 – *a) Bilan radiatif des principaux constituants de l'atmosphère impliqués dans des procédés radiatifs responsables de forcages climatiques, depuis IPCC [2013] et b) Contribution relative de la Chine par constituants [Li et al., 2016].*

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 retrouvant 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].

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 graisseux [Kampa and Castanas, 2008].

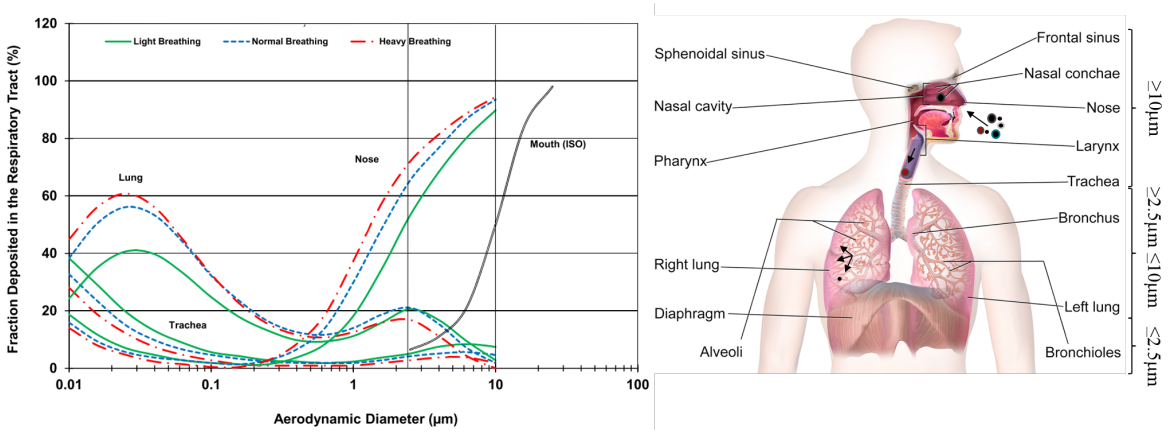

FIGURE I.17 – *à gauche, fraction d'aérosols déposée dans les différents organes du système respiratoire selon leurs granulométrie et pour différents rythmes de respiration, depuis Cao et al. [2013]. À droite, diffusion des aérosols dans les différents organes du systéme respiratoire.*

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 μg.m^{-3} ; PM_{10} : 20 μg.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 aigue 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.

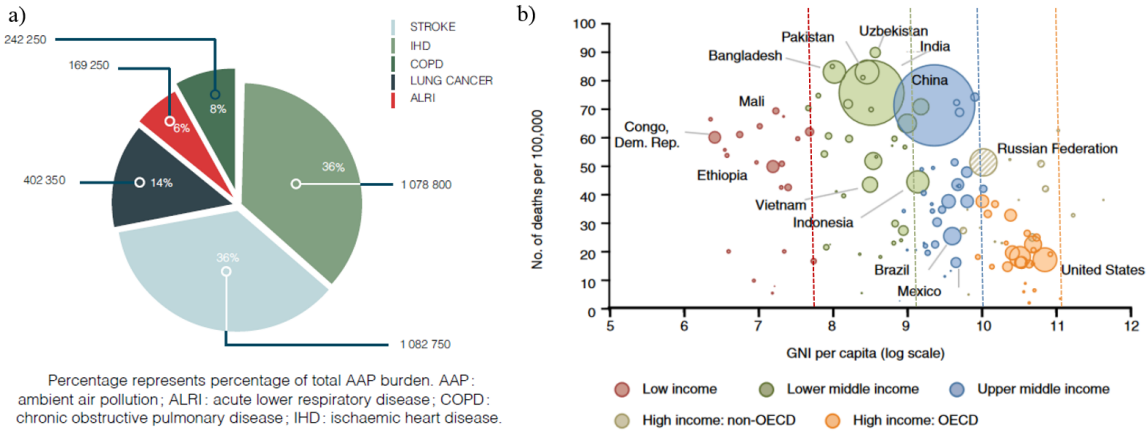

FIGURE I.18 – *Rapport de la WHO, a) Répartition des décès imputables à la pollution atmosphérique par pathologies, [World Health Organization, 2016] b) Répartition des décès, normalisée par rapport à la population, imputables à la pollution atmosphérique par pays en fonction de leurs GNI, la dimension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

Cependant, 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 leurs compositions, 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 entrainent 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'OECD 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].

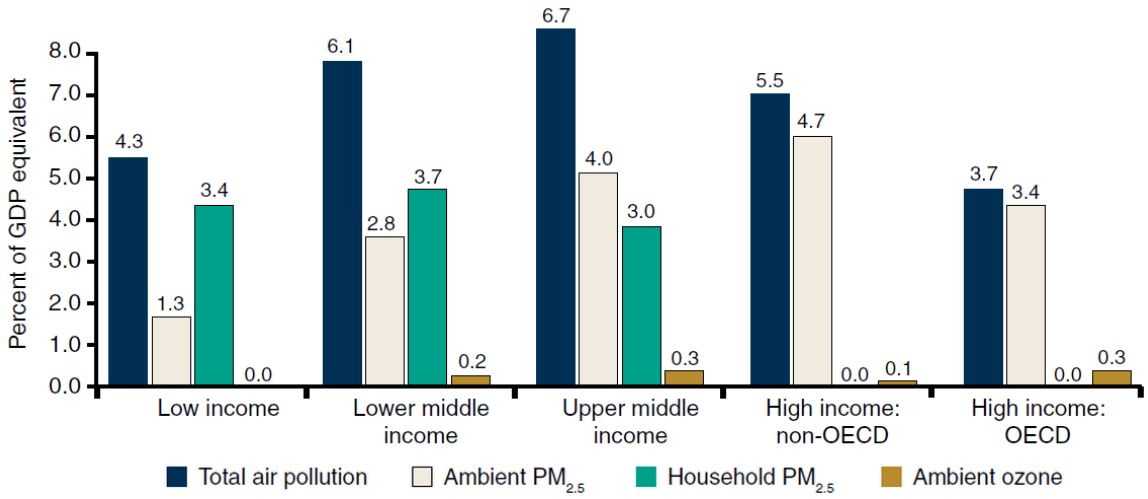

FIGURE I.19 – *Coût sociétal de la pollution atmosphérique exprimé en pourcentage du GDP par groupes de revenus.*

■ 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 mégalopoles, 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.

Conlusion

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.

CHAPITRE

II

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 **41**
II.2 De la Chine impériale à la PRC actuelle, un pays plusieurs fois millénaire. **41**
II.2.1 La Chine impériale, société millénaire. 41
II.2.2 Une guerre civile de plus de 30 ans 43
II.2.3 La proclamation de la PRC et le modèle socialiste chinois 43
II.2.4 Une Chine ouverte, une Chine nouvelle. 44
II.2.5 La Chine de Xi Jinping 44
II.3 L'évolution de la position de la Chine dans l'économie mondiale. **45**
II.3.1 Une addiction de la Chine à l'égard du charbon 46
II.4 La population chinoise, un cas unique **47**
II.4.1 De l'explosion des naissances à une démographie sous contrôle 47
II.4.2 Une urbanisation rapide 48
II.5 La crise environnementale en Chine, une crise globale **49**
II.5.1 Un impact global 49
II.5.2 L'action politique chinoise face aux défis environnementaux 51
II.5.3 Mise en place de réglementation : 51
II.5.4 Une implication et une demande de la population 52

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 20ème 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 km^2, 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 chaine de l'Himalaya et à l'Ouest la chaine 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

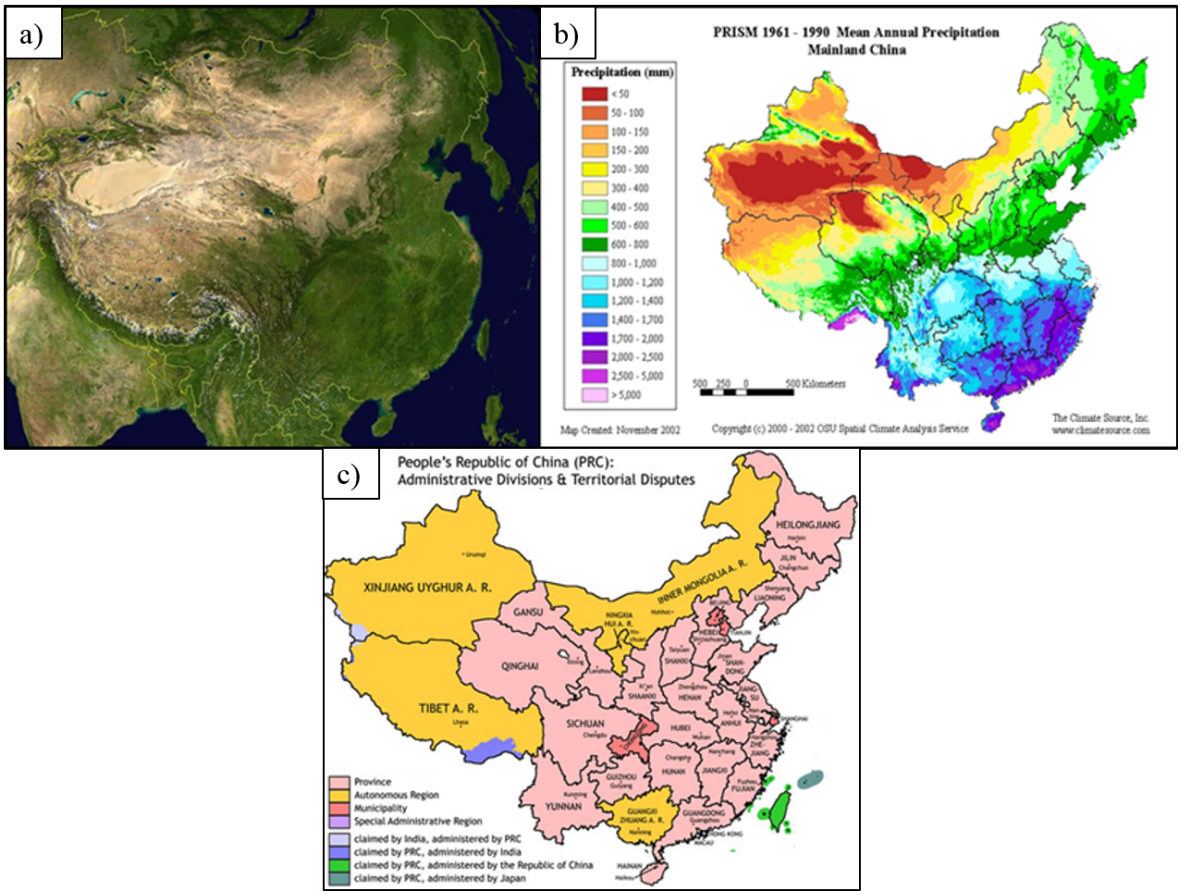

FIGURE II.1 – *a) Vue satellite de la Chine, b) précipitations annuelles moyenne en Chine, c) division administrative de la Chine.*

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 perdurera 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 19ème 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 Xinhan, 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 1er 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 [1ere 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 entraine 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 [2ème 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 $2\,280\times10^9$ US$ en 2015 [soit 36 fois plus], les importations sont passées de 54×10^9 US$ en 1990 à $1\,601\times10^9$ 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 m^2 construit en 1980 à 1800×10^6 m^2 en 2016, soit une évolution de la surface habitable disponible de 7 m^2.habitant^{-1} en 1980 contre 35 m^2.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 [$\sim$0.2 véhicules pour 100 habitants] à 150 millions de véhicules en 2015 [$\sim$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 CO_2 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 5ème 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],

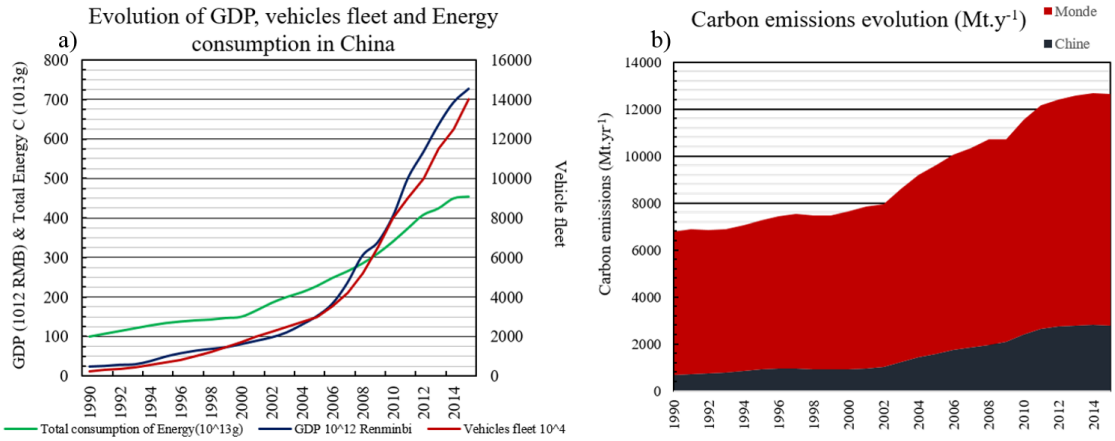

FIGURE II.2 – *a) Évolution du GDP, du parc automobile et de la consommation d'énergie en Chine comparée pour la période 1990 – 2014, b) évolution des émissions de carbone mondiale et chinoise entre 1990 et 2014.*

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 XIXème 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 alourdis 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, ou 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 complétement bouleverser la Chine, qui stagnera entre 1820 et 1952 à une croissance moyenne de $0.22\dot{\%}.y^{-1}$ [contre $1.64\dot{\%}.y^{-1}$ 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 connait 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].

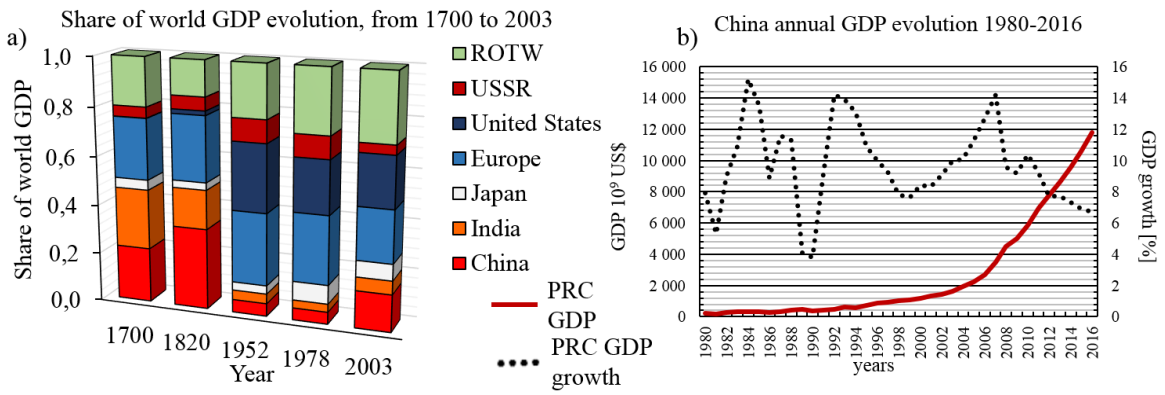

FIGURE II.3 – *a) Évolution du partage du GDP mondial entre les principales puissances économiques entre 1700 et 2003, à partir des informations de Maddison [2007] . b) évolution du GDP nominal chinois et croissance chinoise réelle pour la période 1980 – 2016.*

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 3ème plus conséquentes derrières 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'environs 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 estimées à 3 fois ceux des Etats-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 20ème siècle. Au délà 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 connait alors sont 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 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 entrainer 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].

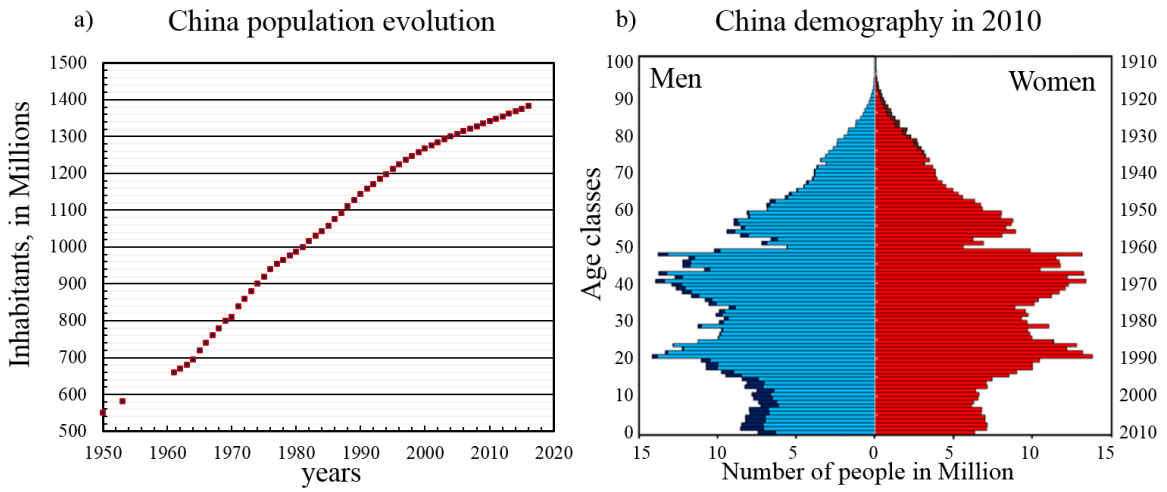

FIGURE II.4 – *a) Evolution de la population chinoise [adaptée depuis Huchet, 2016], b) démographie chinoise en 2010, adaptée depuis [National Bureau of Statistics of China, 2017], les fractions bleues et rouges foncées correspondent au surplus d'hommes ou de femmes par tranche d'âge.*

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 repartie 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 – 2ème 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.

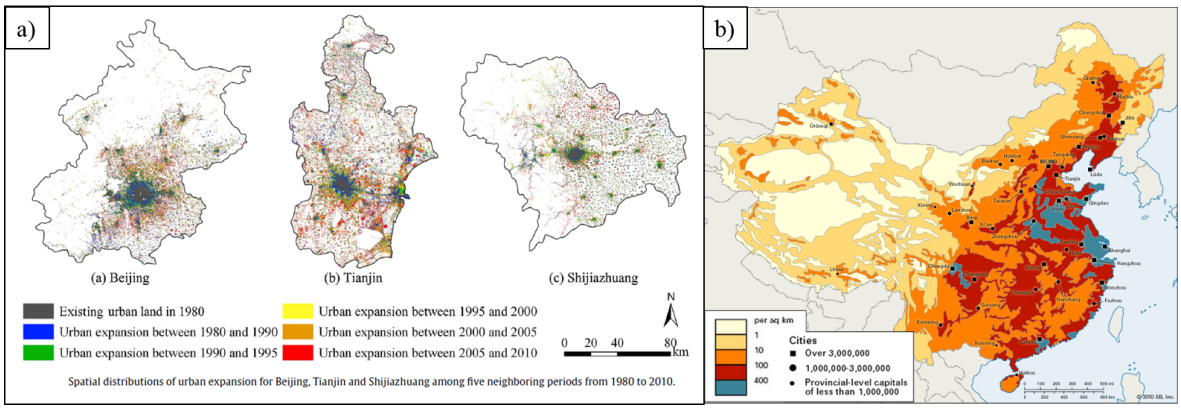

FIGURE II.5 – *a) Expansion urbaine de différentes villes chinoises [Pékin, Tianjin et Shijazhuang, Wu et al., 2015], b) répartition géographique de la population chinoise*

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 entrainé 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 disparaitre 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,

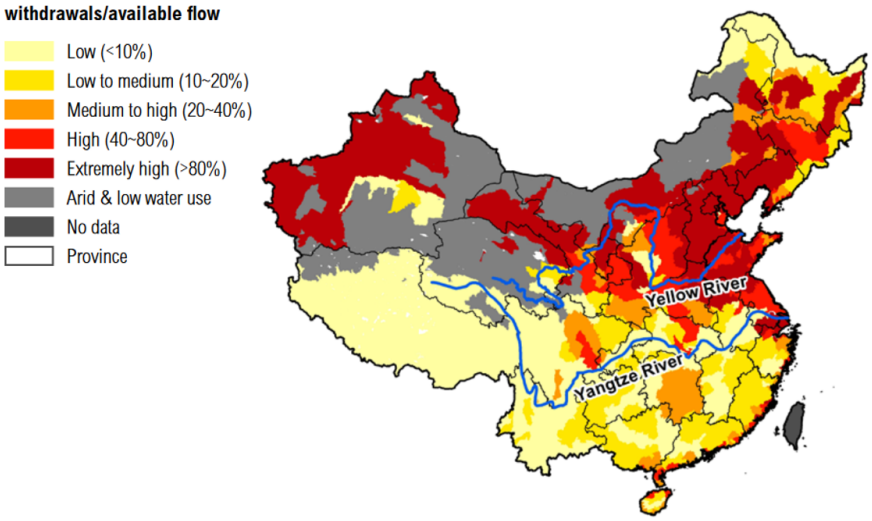

FIGURE II.6 – *Ratio entre les besoins en eau et les ressources en eau disponibles permettant de caractériser le stress hydrique, depuis Wang et al. [2016].*

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 km^2 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'OECD – 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. Ili s'appuie principalement sur le charbon [3ème 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, *Sate council* Figure A.3], la principale autorité exécutive du pays [Qiu and Li, 2009]. Cela à la suite de la volonté de Hu Jintao [4ème 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 étés 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 dangerosités, 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 qualités 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.*

Pollutants	**Period**	**Chinese standards [μg.m^{-3}]** Class 1 [rural env.]	Class 2 [urban env]	**EU standards**
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	
Industry	Flat glass	No standards	GB 26453-2011						
	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 entraine 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 souffre et les PM_{10}. 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 qualités beaucoup plus faible, par exemple une concentration entre $75\mu g.m^{-3}$ et $115\mu g.m^{-3}$ 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 PM_{10} 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.

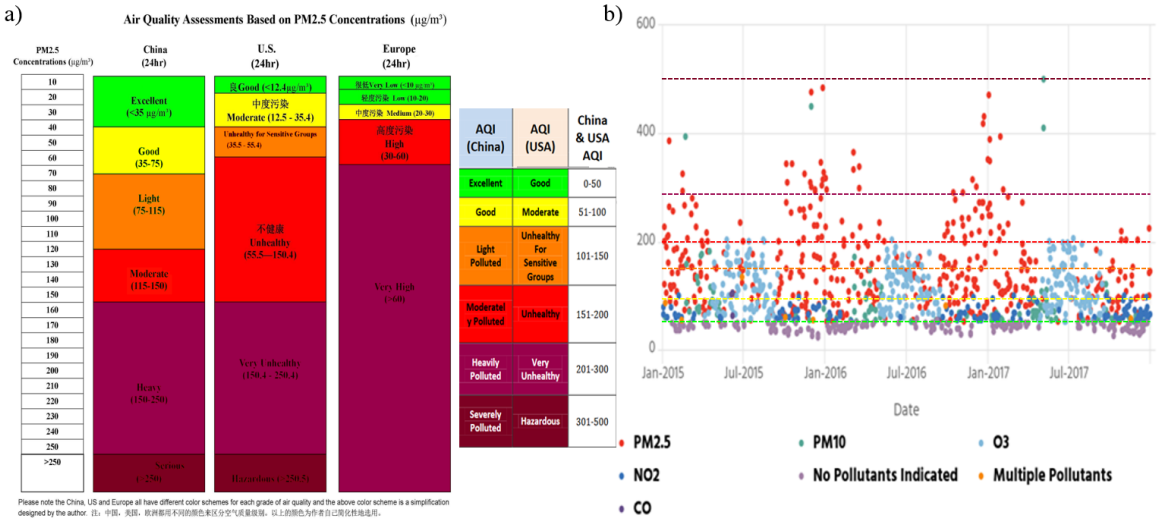

FIGURE II.7 – *a) Echelle de calcul de l'AQI à partir des concentrations en $PM_{2.5}$, pour le système chinois, américain et européen. b) série temporelle AQI et polluants responsables pour la ville de Pékin [MEP].*

CHAPITRE

III

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 **57**
III.1.1 Le dioxyde de soufre en Chine 57
III.1.2 L'ammoniac en Chine 58
III.1.3 Les oxydes d'azote en Chine 59
III.1.4 Les Composés Organiques Volatils Non Méthaniques en Chine 59
III.1.5 L'Ozone 59
III.2 Influence à l'échelle globale de la pollution atmosphérique chinoise **65**
III.2.1 Impact radiatif des aérosols et conséquences sur le climat 65
III.2.2 Transport de la pollution jusqu'au Japon et États-Unis 65
Conclusion **66**

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.

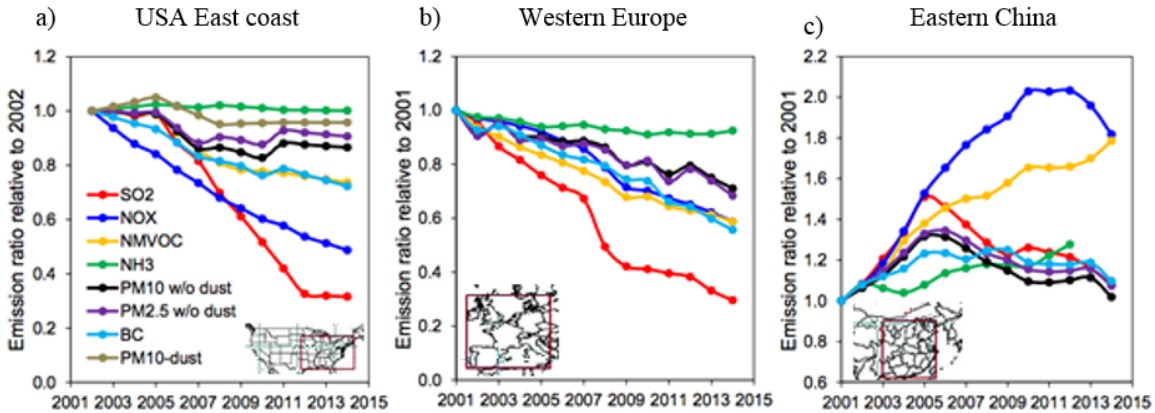

FIGURE III.1 – *Evolution des émissions entre 2001 et 2015 pour les principaux polluants atmosphériques pour a) La côte Est des États-Unis, b) l'Europe de l'Ouest et c) l'Est de la Chine, adapté depuis Zhao et al. [2017].*

En Chine, les émissions de SO_2 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. désulfurisation 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 SO_2 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].

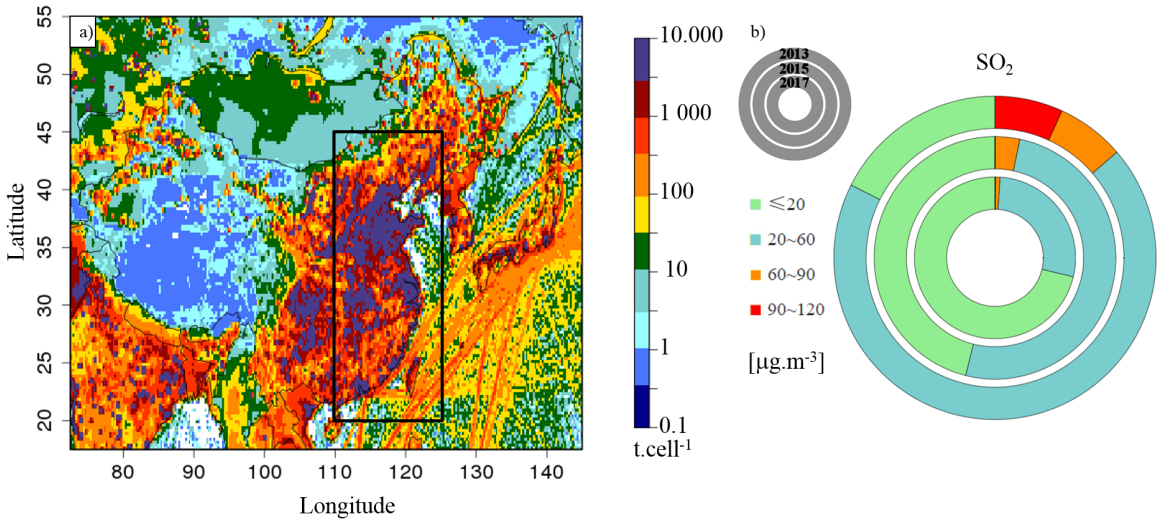

FIGURE III.2 – *a) Distribution spatiale des émissions de SO_2 en Chine selon Janssens-Maenhout et al. [2015]. b) Evolutions entre 2013 et 2015 des distributions des concentrations annuelles de SO_2 dans les villes de Chine. 74 villes sont analysées pour 2013 [cercle extérieur], 338 villes sont analysées 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.

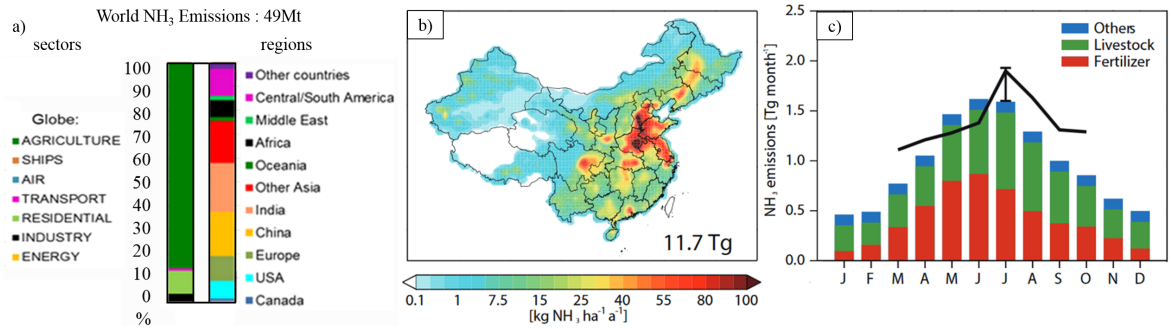

FIGURE III.3 – *a) Répartition par secteurs [gauche] et par régions [droite] des émissions d'ammoniac en 2010.[Janssens-Maenhout et al., 2015], b) distribution spatial edes émissions d'ammoniac en Chine et c) distribution mensuelle des émissions en Chine, adapté depuis Zhang et al. [2018].*

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 apparait grâce à cette comparaison que la diminution des niveaux de NO_2 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 NO_2 est montrée sur la Figure III.4, selon le même modèle que pour le SO_2 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'O_3 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 apparait 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 SO_2 et NO_X, induisant une diminution de la titration de l'ozone par NO et de la consommation de radical hydroxyle par SO_2.

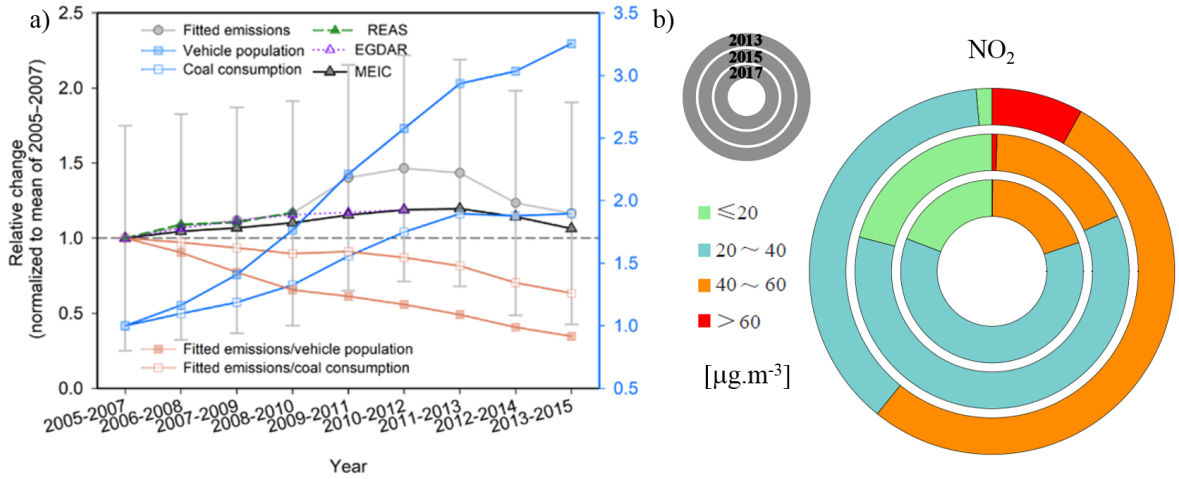

FIGURE III.4 – *a) Evolution relative des émissions de NO_2 [OMI], du parc automobile et de la consommation de charbon en Chine de Liu et al. [2017]. b) Evolutions entre 2013 et 2015 des distributions des concentrations annuelles de surface de NO_2 dans les villes de Chine. 74 Villes sont analysées pour 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].*

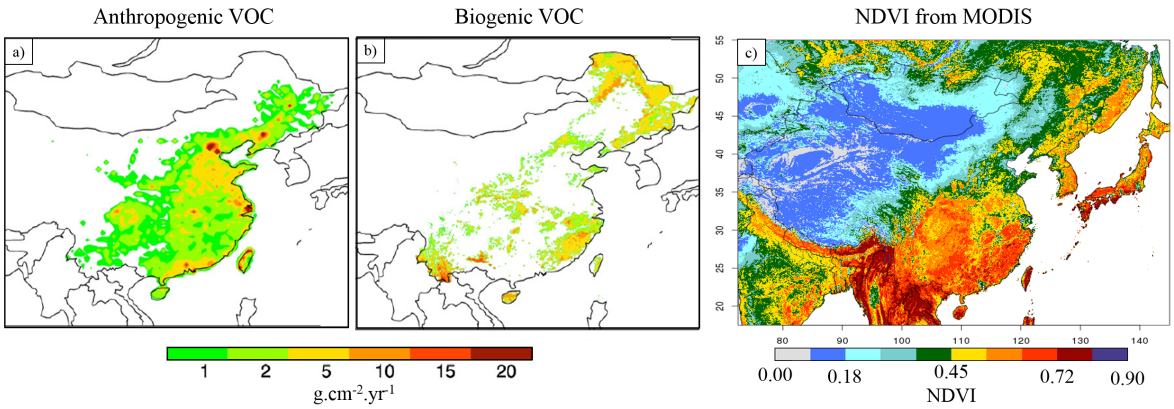

FIGURE III.5 – *Emissions de composés organiques volatils en Chine, depuis les sources a) Anthropique [Tie et al., 2006], b) biogéniques et c) carte des NDVI MODIS entre 2001 et 2017 [Acker and Leptoukh, 2007].*

A l'inverse, les niveaux d'ozone intégrés sur la colonne atmosphérique partielle [0 – 6 km] présentent une tendance négative significative de $-1.2\,\%.y^{-1}$ 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.

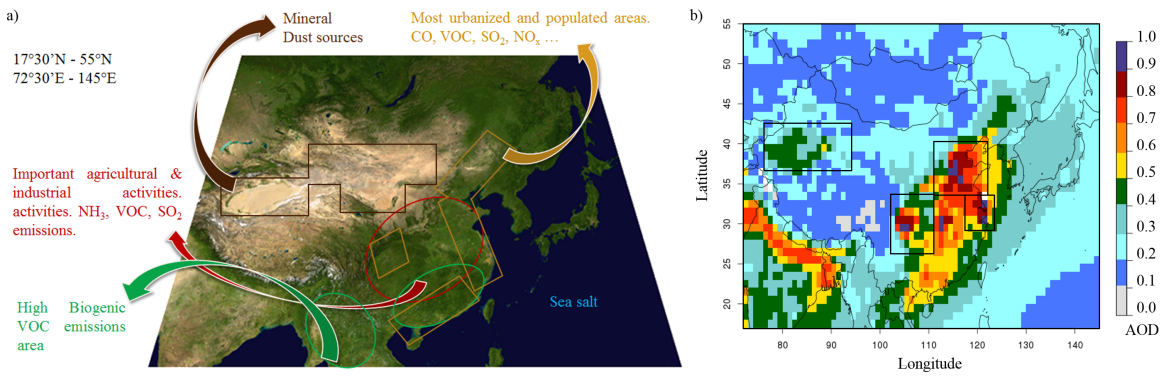

FIGURE III.6 – *a) Localisation des différentes sources de pollution en Chine et b) Observation des épaisseurs optiques à 550 nm des colonnes atmosphériques au-dessus de la Chine par le satellite MODIS entre 2001 et 2017. À l'Ouest, le Taklamakan, au Nord-Est la région North China Plain et à l'Est la région de Shanghai. Données téléchargées depuis la plateforme Giovani, 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 chaine 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 [SO_4^{2-}, NO_3^-, NH_4^+] entre 8 % [Lhasa] et 51 % [Jinan].

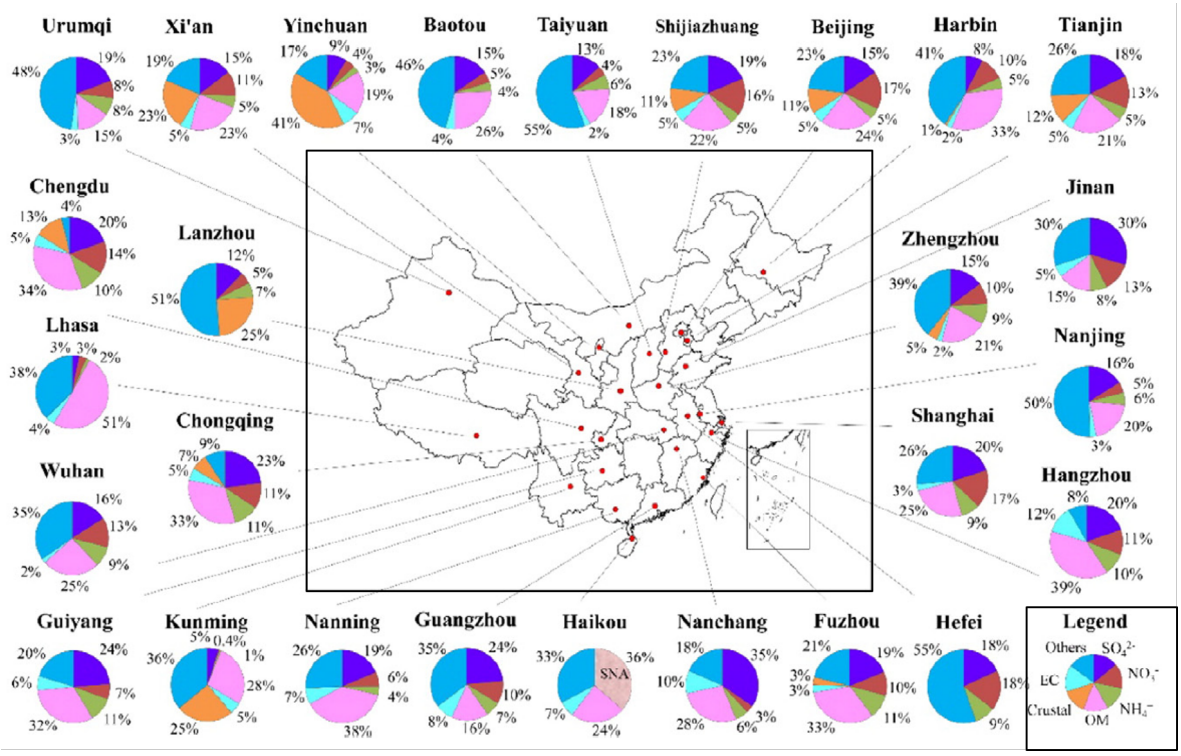

FIGURE III.7 – *Mesure de la composition de l'aérosol pour la fraction $PM_{2.5}$ dans les principales villes Chinoise, figure extraite de Wang et al. [2017].*

■ 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].

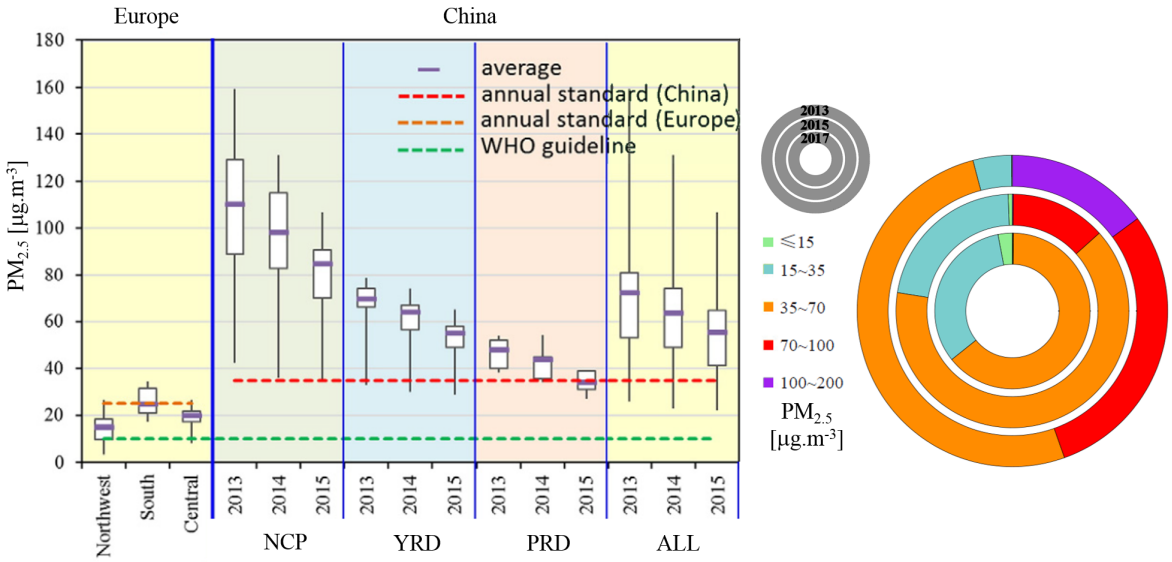

FIGURE III.8 – *A gauche, évolution des distributions des mesures de $PM_{2.5}$ en Chine par région entre 2013 et 2015 [Wang et al., 2017]. À droite, évolutions des distributions des concentrations annuelles de $PM_{2.5}$ dans les villes de Chine. 74 Villes sont analysées pour 2013 [cercle extérieur],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

■ Les poussière 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 spécifiés 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 autours 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 $\mu g.m^{-3}$ et 7.4 $\mu g.m^{-3}$ respectivement, principalement liées à des évènements 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 $Mt_C.y^{-1}$, distribuées spatialement selon la Figure III.10. Il est important de noter que les

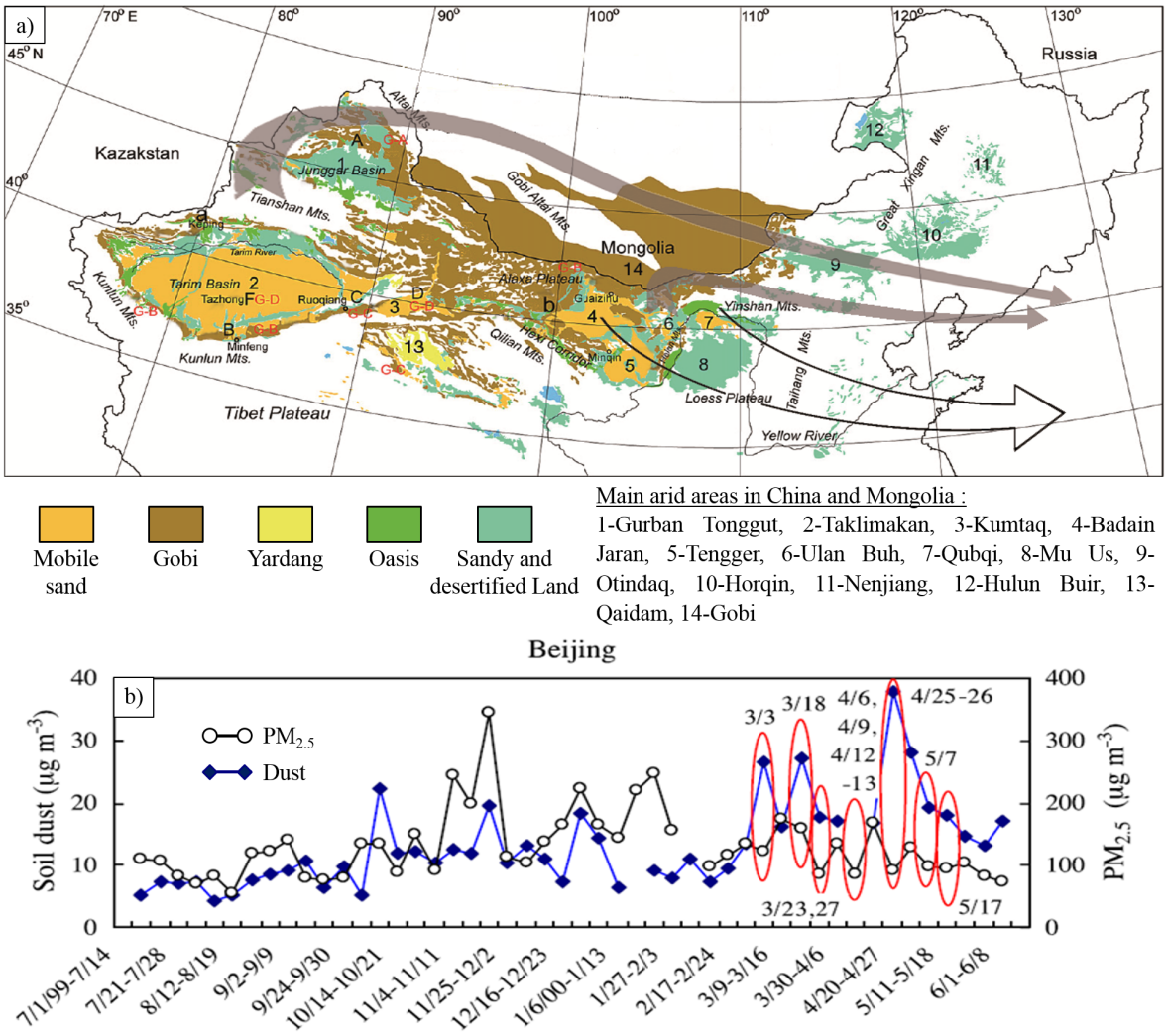

FIGURE III.9 – *a) La figure renseigne la localisation des déserts d'Asie, leurs caractéristiques géomorphologiques ainsi que le transport de poussières depuis les déserts du nord de la Chine. Le transport depuis les déserts se fait à différentes altitudes, le plus souvent supérieures à 5000 m [flèches 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 Liousse 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.

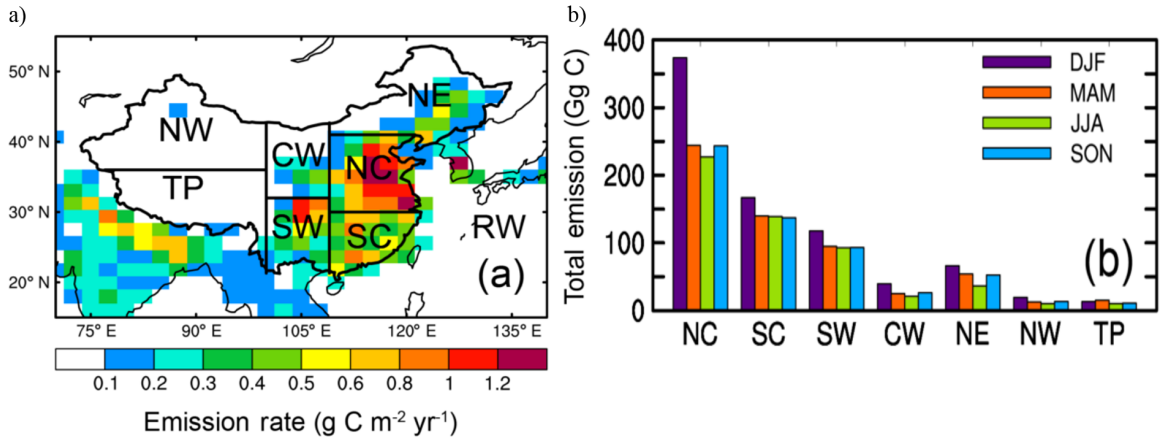

FIGURE III.10 – *a) Distribution des émissions de BC en Chine et b) Variations saisonnières des émissions par régions [Yang et al., 2017].*

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 +0.03DU.y^{-1} entre 2005 et 2010.

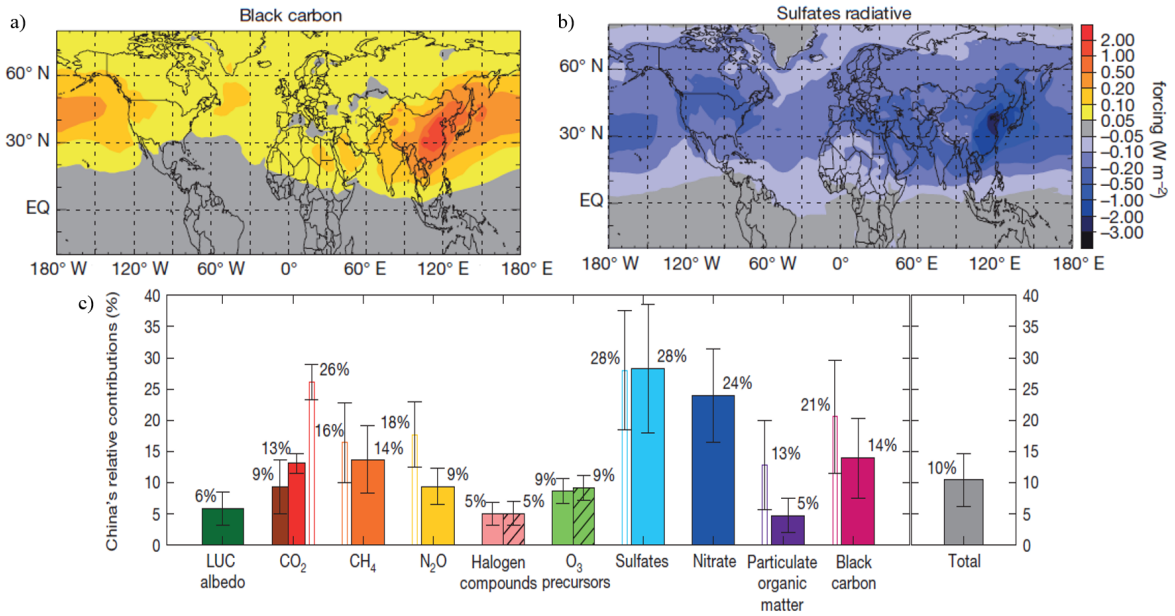

FIGURE III.11 – *Distribution spatiale et impact radiatif d'aérosols émis depuis la Chine en 2010, a) Black carbon et b) Sulfate, adapté depuis [Li et al., 2016]. c) Contribution relative de la PRC au bilan radiatif des principaux constituants de l'atmosphère impliqués dans des procédés radiatifs responsables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

CHAPITRE

IV

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 **69**
IV.1.1 Les mesures au sol 69
IV.1.2 L'observation depuis l'espace 72
IV.2 La modélisation numérique de la pollution atmosphérique **75**
IV.2.1 Généralités 75
IV.2.2 Le modèle CHIMERE 75

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 laquel 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 règlementés, le CO, les NO_X, l'O_3, le SO_2, les $PM_{2.5}$ et les PM_{10}. 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 [PM_{10}, $PM_{2.5}$]. La mesure de la spéciation des différentes composantes de l'aérosol est plus complexe, récente, et nécessite des instruments de mesure plus couteux [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 $12^{éme}$ plan quinquennal Chinois [China's 12th Five-Year Plans ; 2011 – 2015]. Ce réseau compte environs 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 particulaire. 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, SO_2, NO_X, O_3, $PM_{2.5}$ et PM_{10}. 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 connaitre 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 $P50DV$ [médiane relative des variabilités journalière] est calculé selon l'Équation IV.1 :

$$P50DV = \frac{\widetilde{DV}_{O_3}}{[\overline{O_3}]} \tag{IV.1}$$

où $[\overline{O_3}]$ correspond à la concentration moyenne journalière d'ozone, et $\widetilde{DV}_{O_3}$ correspond à la valeur médiane des amplitudes des concentrations horaires d'ozones calculée pour chaque jour $DV_{O_{3,i}}$:

$$DV_{O_{3,i}} = [O_3]_{(max,i)} - [O_3]_{(min,i)} \, \forall i \in [1:n] \, days \tag{IV.2}$$

où $[O_3]_{(max,i)}$ et $[O_3]_{(min,i)}$ représentent respectivement les valeurs des concentrations horaires maximales et minimales pour le jour i, parmis 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 $P50DV_{O_3}$ et $P50DV_{SO_2}$ représentent les centres de classes.*

Type d'environnement	R	U1	U2	U3	S
$P50DV_{O_3}$	0.88	1.27	1.63	1.83	2.02
$P50DV_{SO_2}$	1.19	1.26	1.37	1.58	1.72
Nb de stations $P50DV_{O_3}$	35	4	1	0	0
Nb de stations $P50DV_{SO_2}$	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 $P50DV_{O_3}$ et $P50DV_{SO_2}$ 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 [$P50DV_{O_3}$] et U2 [$P50DV_{SO_2}$] et Wuhan comme U2 [$P50DV_{O_3}$] et U3 [$P50DV_{SO_2}$]. 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.

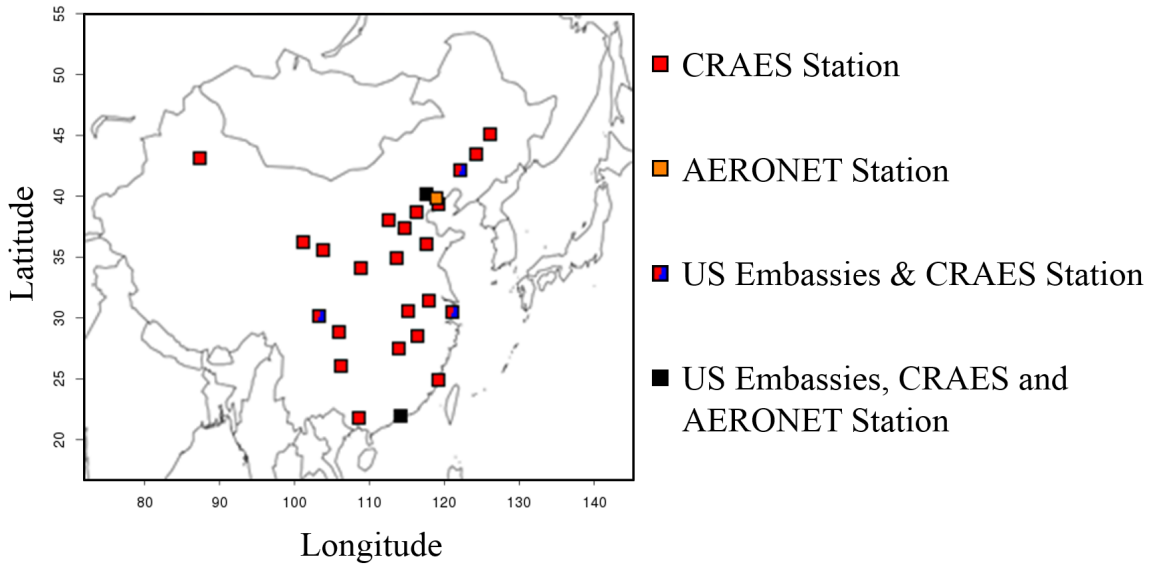

FIGURE IV.1 – *Localisation des différentes stations de mesures au sol pour les différents réseaux.*

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 μm] , 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 nm] et visible [380 – 500 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 km $\times$ 13 km au nadir et 150 km $\times$ 13 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.

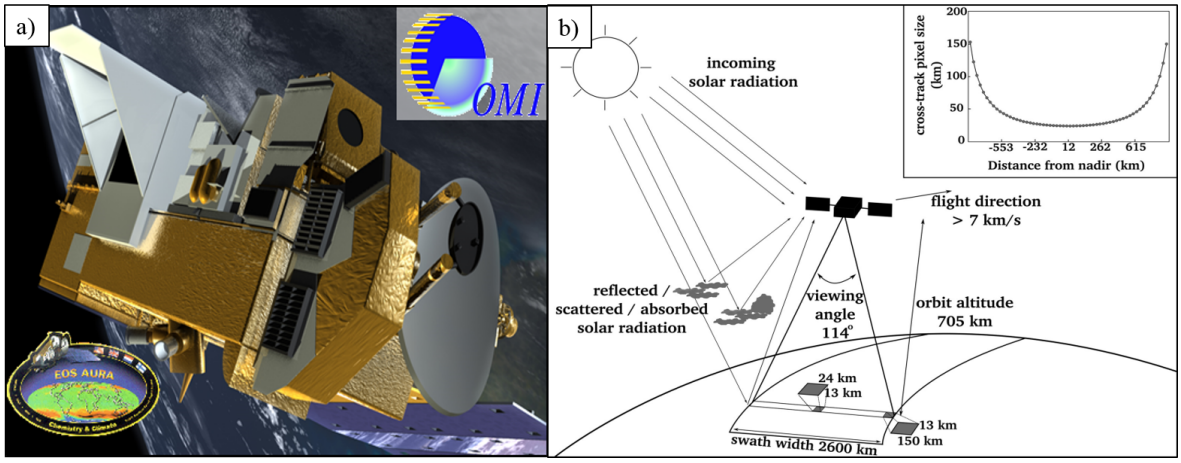

FIGURE IV.2 – *a) Vue d'artiste du satellite AURA et b) schéma d'observation de l'instrument OMI adapté de Levelt et al. [2006]; McCormick et al. [2013].*

.

■ 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 Meteop-A [lancé en 2006] et Metop-B [lancé en 2012] en orbite à 817 km d'altitude, observe l'atmosphère dans le domaine de l'IR [3.7 – 15.5 μm], avec deux mesures quotidiennes de la surface de la Terre. L'instrument balaye la surface de la Terre sur une largeur de 2200km, avec une résolution au nadir des pixels circulaires projetés sur la surface de la Terre de 12km 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° × 0.25° [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.

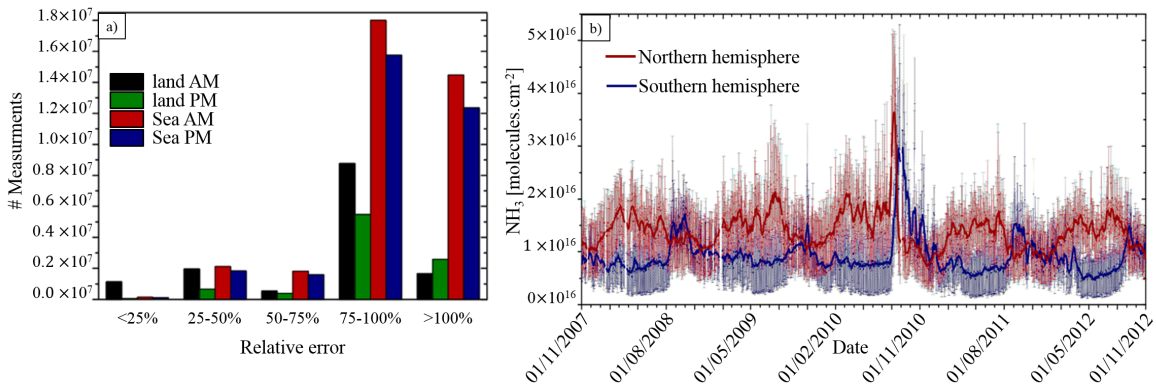

FIGURE IV.3 – *Incertitudes associées aux colonnes d'ammoniac IASI, a) pour l'ensemble des pixels à l'échelle globale [0.25° × 0.25°], selon l'heure de passage du satellite et le type de surface [continent ou océan] et b) incertitudes sur les valeurs journalières d'ammoniac pour l'hémisphère nord et 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 déplace 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.prevair.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'utilisations 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
- C_3H_6
- HNO_3
- O_3
- Alcanes
- CH_4
- NH_3
- OC
- BC
- CO
- NH_4^+
- PAN
- C. Aromatiques
- Formaldéhyde
- NO_2
- SO_2
- C_2H_4
- H_2O_2
- NO_3^-
- SO_4^{2-}

■ 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 :

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

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 le 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 :

$$Variability\,[\%] = \frac{\sigma_{Emis_{monthly}}}{\overline{Emis}_{monthly}} \times 100 \tag{IV.4}$$

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 [Mmol]	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] :

$$\frac{\delta_{c_i}}{\delta_t} = \left(\frac{\delta_{c_i}}{\delta_t}\right)_{advection} + \left(\frac{\delta_{c_i}}{\delta_t}\right)_{emission} + \left(\frac{\delta_{c_i}}{\delta_t}\right)_{deposition} + \left(\frac{\delta_{c_i}}{\delta_t}\right)_{chemistry} \tag{IV.5}$$

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

$$\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t} = \left(\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t}\right)_{advection} + \left(\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t}\right)_{emission} + \left(\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t}\right)_{deposition} + \left(\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t}\right)_{chemistry} \tag{IV.6}$$

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] :

$$\left(\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t}\right)_{emission} = \frac{q_i \times S_{cell}}{V_{cell}} = \frac{q_i}{h_{cell}} \tag{IV.7}$$

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

$$\left(\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t}\right)_{depositon} = \frac{vd_i \times [C_i]}{h_{cell}} \tag{IV.8}$$

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 :

$$\left(\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t}\right)_{chemistry} = R_i \tag{IV.9}$$

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 $[C_i^0]$:

$$\left(\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t}\right)_{advection} = \frac{\Delta_x}{u}\left(C_i^0 - C_i\right) \tag{IV.10}$$

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

$$\frac{\Delta_{c_i}}{\Delta_t} = \frac{\Delta_x}{u}\left(C_i^0 - C_i\right) + \frac{q_i}{h_{cell}} + \frac{vd_i \times [C_i]}{h_{cell}} + R_i \tag{IV.11}$$

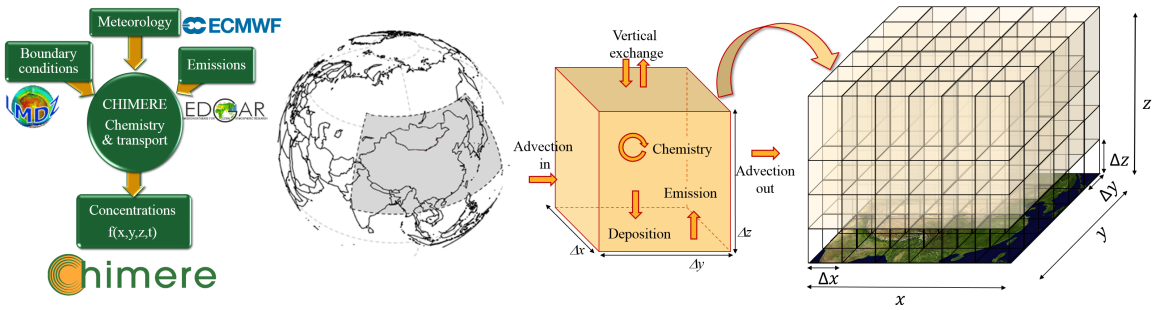

FIGURE IV.4 – *À gauche, schéma du fonctionnement du modèle CHIMERE. Au centre à gauche, le domaine de simulation choisi , au centre à droite, schéma de représentation des différents processus modélisés pour calculer le bilan associé à une espèce et à droite représentation du domaine en découpé en 3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

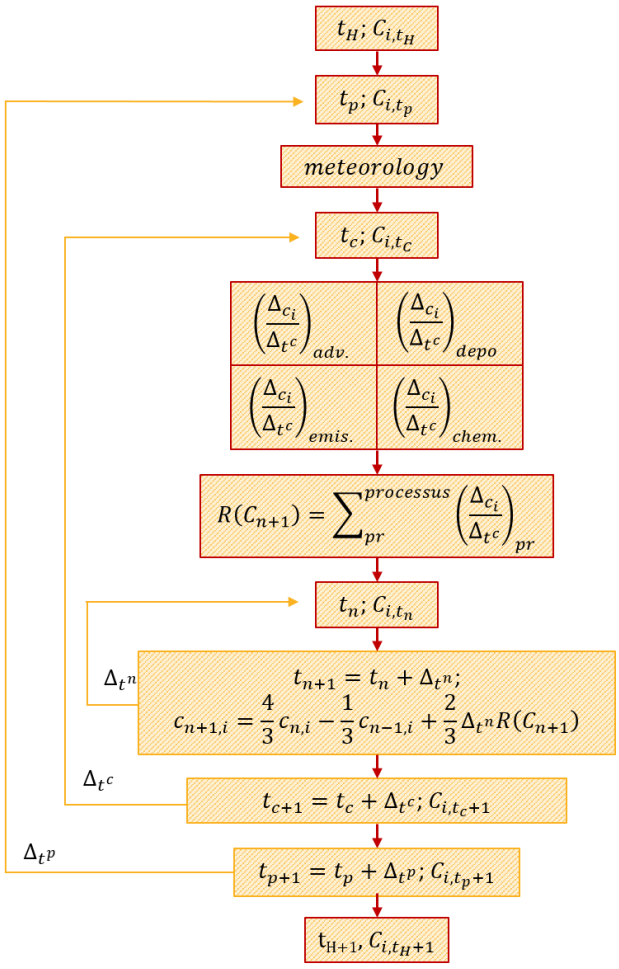

FIGURE IV.5 – *Schéma de fonctionnement du solveur, présentant la méthode de séparation des opérateurs.*

■ 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 résolus indépendamment.

CHIMERE renseigne des champs de concentrations pour chaque heure de la journée [t_H, t_{H+1} ...]. 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 [Δ_{t_p} – Itération grossière, $\sim$ 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 [Δ_{t_c} – Itération fine, $\sim$ 2.5 minutes] imbriqués dans un pas de temps physique.

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°× 0.25° [soit des surface par cellules entre 450 km^2 et 650 km^2] à une représentation haute définition [1″× 1″, ∼1 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 chaine 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

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 [∼1000 – 1500 m d'altitude], positionné entre la chaine de l'Himalaya et la chaine du Karakoram. La municipalité de Chongqing [∼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.

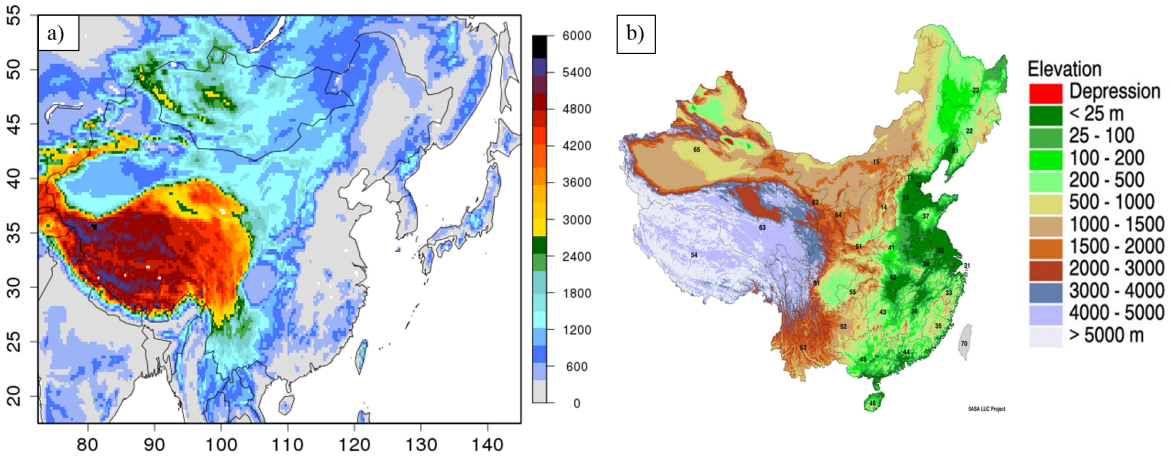

FIGURE IV.6 – *Orographie en Chine a) tel que représenté par CHIMERE à 0.25° × 0.25°, et b) avec une résolution de 1″ × 1″ [EROS data center, Revision 2.0 – Copyright © 2011 by Gerhard K. Heilig. All rights reserved].*

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 leurs 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 $k(t)$ [cm^3.molec^{-1}.s^{-1}] de réaction peuvent être calculées en fonction de la température [T ; 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 ; kJ.mol^{-1}] et d'un facteur

[A ; $cm^3.molec^{-1}.s^{-1}$] propre à la réaction considérée :

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

Les différentes espèces et réactions inclues 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 [NO_3^-], les sulfates [SO_4^{2-}, l'ammonium [NH_{4+}], 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 > PM_{10}]. 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 le 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 :

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

Avec G et Geq [$\mu m.m^{-3}$] 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 $G^K_{(l,eq)}$ 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 entres les espèces sont déterminés à partir de plusieurs variables, pour une gamme de température [entre 260 K – 312 K ; incrément de ΔT = 2.5 K], une gamme d'humidité relative [entre 0.3 – 0.99 ; incrément de ΔRH=0.05], en prenant en considération les quantités totales de nitrates [TN = $NO^-_{3(p)}$ + HNO_3], total de sulfates [TS = $SO^{2-}_{4(p)}$ + 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-chloride-eau pour les différentes espèces inorganiques :

Pour la phase gaz :
NH_3, HNO_3, HCl, H_2O
Pour la phase liquide :
NH^+_4, Na^+, H^+, Cl^-, NO^-_3, SO^{2-}_4, HSO^-_4, OH^-, H_2O, HNO_3, HCl, NH_3, H_2SO_4
Pour la phase solide :
$(NH_3)_2SO_4$, NH_4HSO_4, $(NH_4)_3H(SO_4)_2$, NH_4NO_3, NH_4Cl, $NaNO_3$, $NaHSO_4$, Na_2SO_4

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'entrainement des grains du sol par le vent, puis du phénomène de sandblasting, qui décrit la libération des fin agrégats constitutif 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] :

$$U^*_{t(D_p,Z_0)} = \frac{U^*_{t(D_p)}}{f_{eff(Z_0)}} \tag{IV.14}$$

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

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

Avec $f(R_t) = 0.0123$ et $\gamma = 3\times10^{-4}\,\mathrm{kg.s^{-2}}$. 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 :

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

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

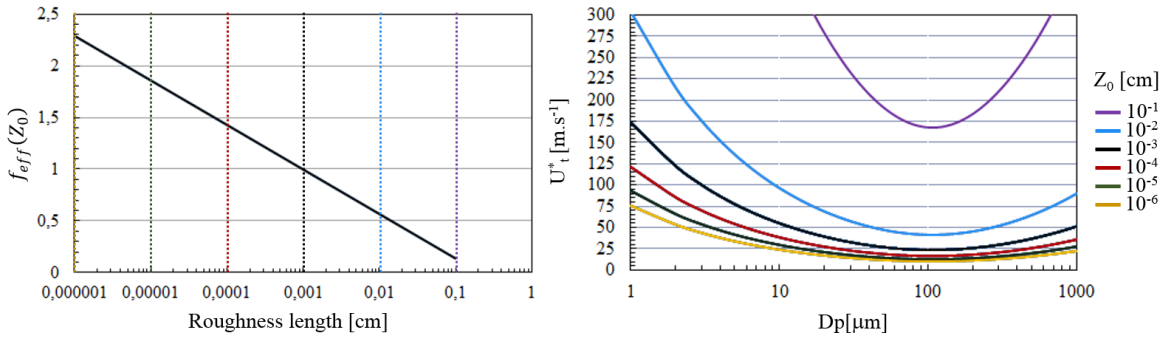

FIGURE IV.7 – *à gauche, variation $f_{eff(Z_0)}$ en fonction de Z_0 et à droite, variation de la vitesse de friction seuil en fonction de taille des grains du sol, pour différentes hauteurs de rugosité.*

La vitesse de friction seuil est minimale pour des grains de sol d'un diamètre proche de 100 μm, 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'entrainement des agrégats du sol à leur distribution granulométrique, selon [Marticorena and Bergametti, 1995] :

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

■ 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 entrainés 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 :

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

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 μm, d_2 = 6.7 μm et d_3 = 14.3 μm], 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 kg.m^2.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 : d1 = 1.5 μm, d2 = 6.7 μm et d3 = 14.3 μm] [Alfaro and Gomes, 2001] :

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

■ 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 kg.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] :

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

où a et b sont des constantes respectivement égales à 4.859×10^{-3} 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 :

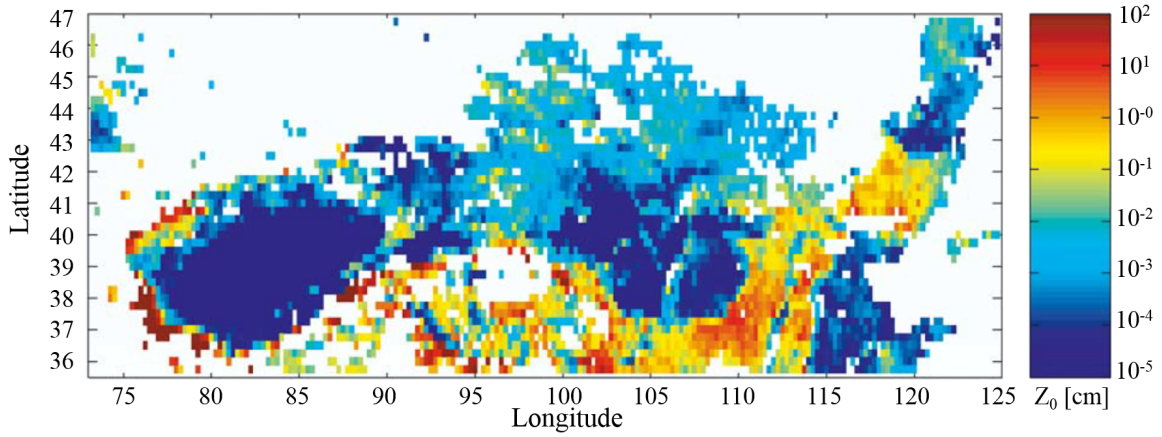

FIGURE IV.8 – *Distribution spatiale de la hauteur de rugosité de surface [cm] à une résolution de 0.25°× 0.25°, depuis Laurent et al. [2005].*

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 :

$$F_{d,i} = -C_i \times v_{d,i} \tag{IV.21}$$

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 :

$$v_{d,i} = \frac{1}{R_a + R_b + R_c} \tag{IV.22}$$

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 :

$$v_{d,i} = \frac{1}{R_a + R_b + R_a R_b v_{s,i}} + v_{s,i} \tag{IV.23}$$

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 » [entrainement 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 :

$$F_{d,i} = Pf(w)U^{*1.43} \tag{IV.24}$$

CHAPITRE

V

Evaluation du modèle CHIMERE

« *Beijing calling.* »

JOE STRUMMER, 1979

Sommaire

V.1 Indicateurs statistiques **91**
V.2 Evaluation des simulations à partir des mesures de surfaces fournies par le CRAES **92**
V.2.1 Stratégie 92
V.2.2 Résultats des comparaisons 92
V.2.3 Analyse des nuages de points établis par centiles 92
V.3 Evaluation des simulations à partir des mesures des ambassades des États-Unis . . **96**
V.3.1 Résultats des comparaisons 96
V.4 Evaluation des simulations à partir des AOD du réseau AERONET **97**
V.4.1 Stratégie 97
V.4.2 Résultats des comparaisons 98
V.5 Evaluation des simulations à partir des observations satellites MODIS **98**
V.5.1 Stratégie 98
V.5.2 Résultats des comparaisons 99
V.6 Evaluation des simulations à partir des observations satellitaires OMI **100**
V.6.1 Stratégie 100
V.6.2 Résultats des comparaisons 100
V.7 Conclusion **102**

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 :

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

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.

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

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.

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

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.

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

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

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 avions 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 1er centile pour les mesures représente la valeur de la moyenne de l'ensemble des 1 % de mesures les plus faibles. La valeur moyenne du 1er centile pour le modèle représente la moyenne des valeurs du modèle correspondant à l'ensemble des 1 % de mesures utilisées pour calculer le 1er 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 régions, et n_H le nombres de mesures horaires disponible pour la région.*

Indicators	**Regions**	PM_{10}	$PM_{2.5}$	O_3	NO_2	SO_2
$\mathbf{n}_C$	**All**	24	24	24	24	24
	Northern	8	8	8	8	8
	Eastern	6	6	6	6	6
	Central	4	4	4	4	4
$\mathbf{n}_H$	**All**	129493	139118	136552	138115	129940
	Northern	42228	45140	44280	45117	43296
	Eastern	31207	34057	33618	34069	32428
	Central	22030	23305	22865	23062	22082
$\mathbf{x}_{meas}$ $[\mu\mathbf{g.m}^{-3}]$	**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
$\mathbf{x}_{model}$ $[\mu\mathbf{g.m}^{-3}]$	**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 $PM_{2.5}$, O_3, NO_2 et SO_2 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 μg.m^{-3}] supérieurs à 0. Il apparait que le modèle surestime les valeurs les plus basses de

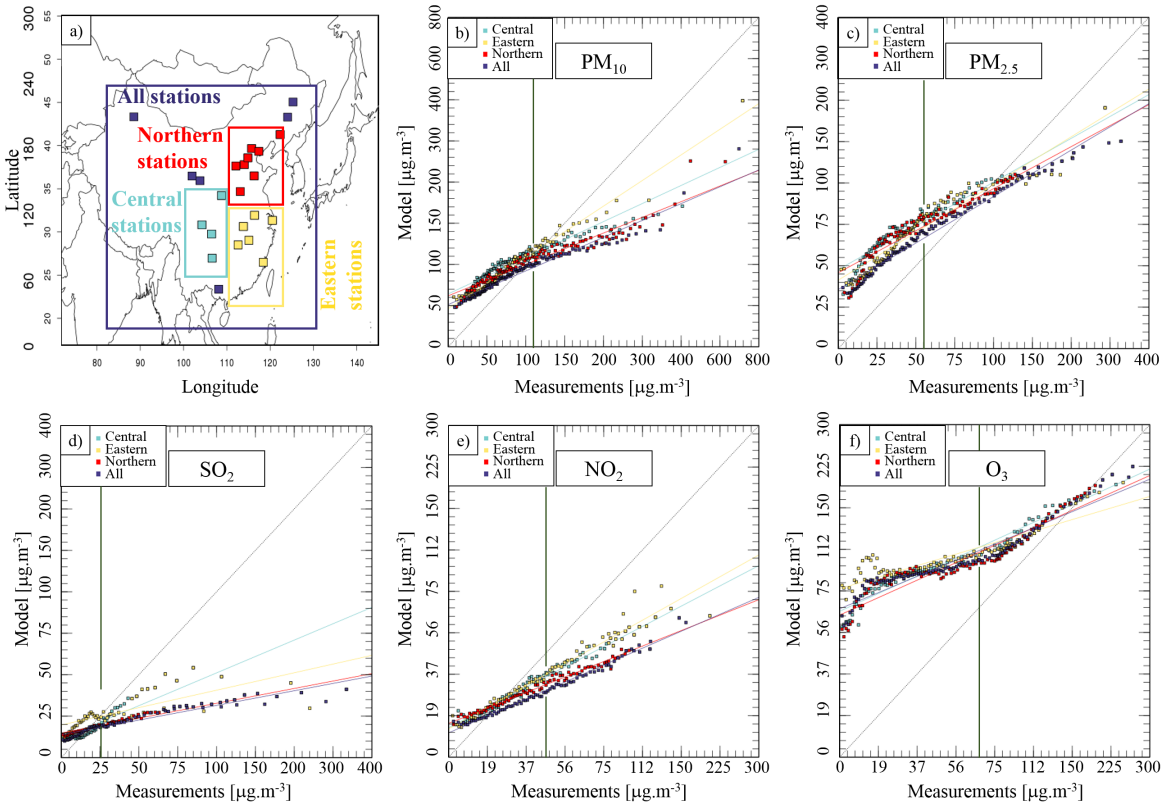

FIGURE V.1 – *a) Localisation des stations de mesures et découpage des régions. Nuages de points par centiles pour b) PM_{10} c) $PM_{2.5}$, d) SO_2, e) NO_2 et f) O_3. La barre verticale verte représente la moyenne des séries de mesures. N.D.A. les échelles utilisées pour ces graphiques ne sont pas 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 apparait 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 NO_2 contre −50 % pour le SO_2]. 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
$\mathbf{b_1}$	**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 apparait 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 $200\mu g.m^{-3}$ 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 [Bias2015− Bias2013], 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, ou 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 [μg.m^{-3}]	92.3	83.8	47.6	55.3	74.0
Model [μg.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

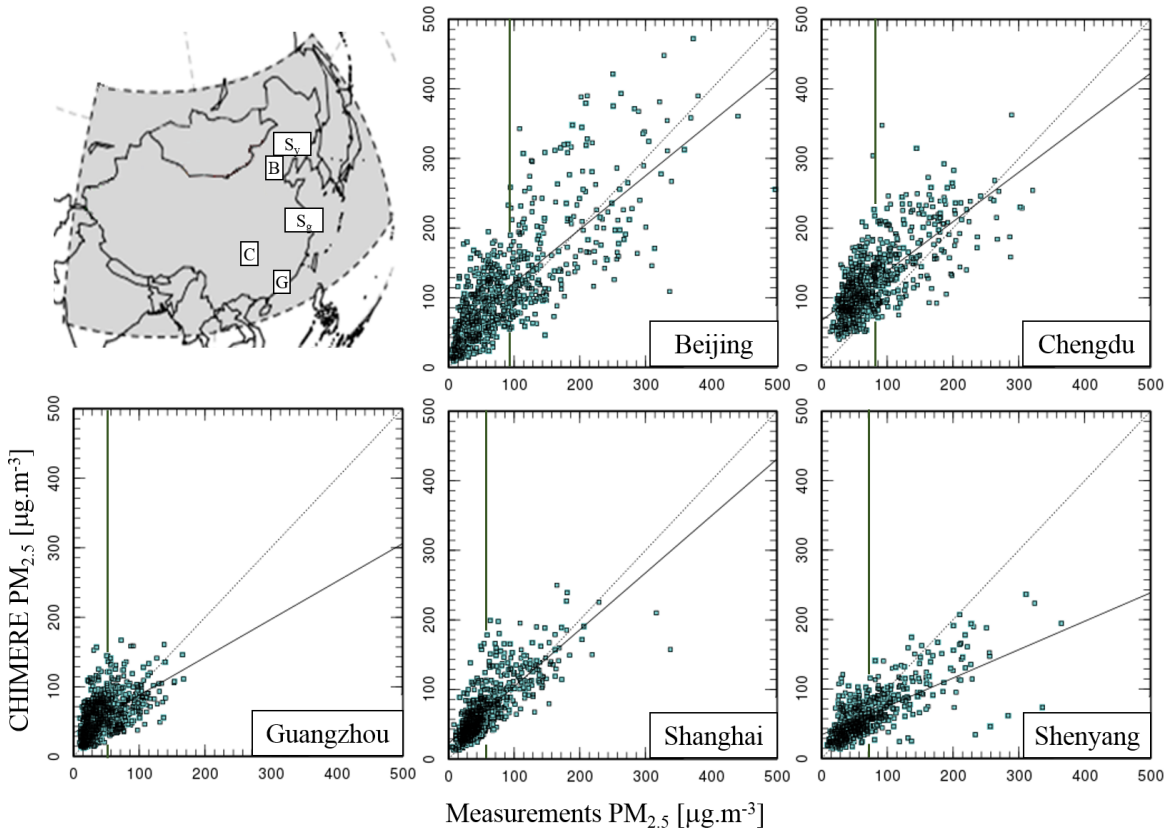

FIGURE V.2 – *Comparaison des mesures journalières de $PM_{2.5}$ des stations aux ambassades américaines avec le modèle CHIMERE, pour 2013 et 2015. La barre verticale verte indique la valeur moyenne des stations de mesures. Les séries temporelles correspondant aux stations de Pékin, Chengdu et Shanghai 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 $\overline{\alpha}$ [i.e. calculé avec plusieurs longueurs d'ondes] :

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

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 CHMERE 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, 203 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 Estl].

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

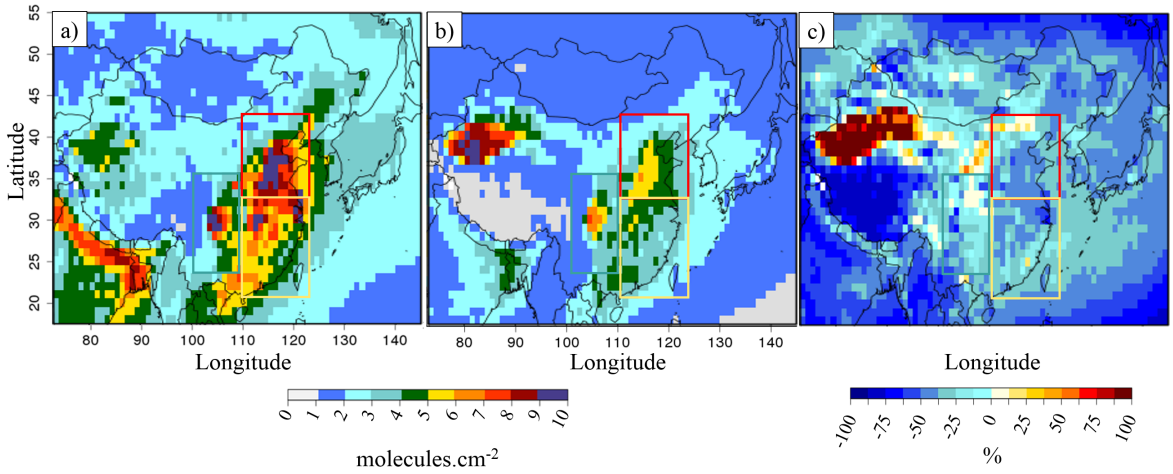

FIGURE V.3 – *Épaisseurs optiques moyennes à 550 nm en Chine pour 2011,2013 et 2015, avec a) MODIS, b) CHIMERE, c) et les différences relatives aux observations.*

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 exploités 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].

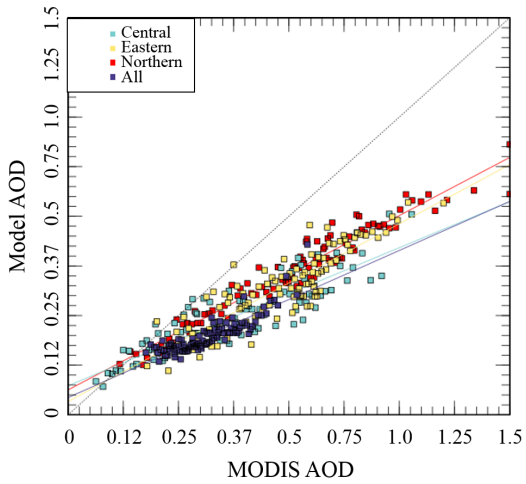

FIGURE V.4 – *Nuage de point par centiles pour les séries temporelles journalières épaisseurs optiques à 550 nm du satellite MODIS et CHIMERE. N.D.A. les échelles utilisées pour ce graphique ne sont pas régulières et ont été choisies pour permettre une visualisation optimale des données.*

TABLE V.5 – *Résultats statistique des comparaisons des AOD MODIS et des AOD CHIMERE. n représente le nombre cellules de dimension 1° × 1° avec une information MODIS renseignée par région [parte 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° × 0.25°, 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].

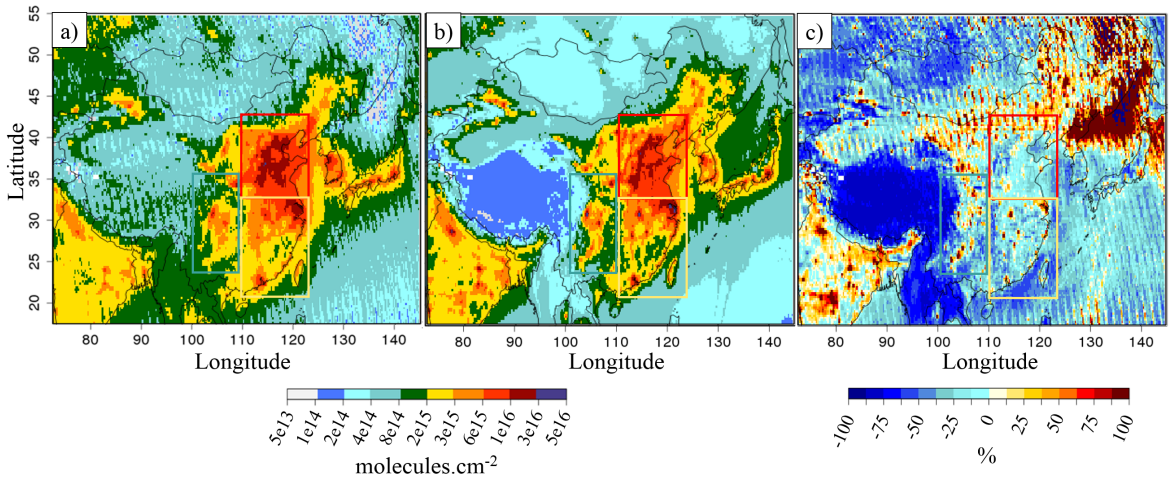

FIGURE V.5 – *Colonnes de dioxyde d'azote en Chine pour 2011, 2013 et 2015, avec a) les sondages OMI, b) les simulations CHIMERE, en molecules.cm^{-2} c) et les différences relatives.*

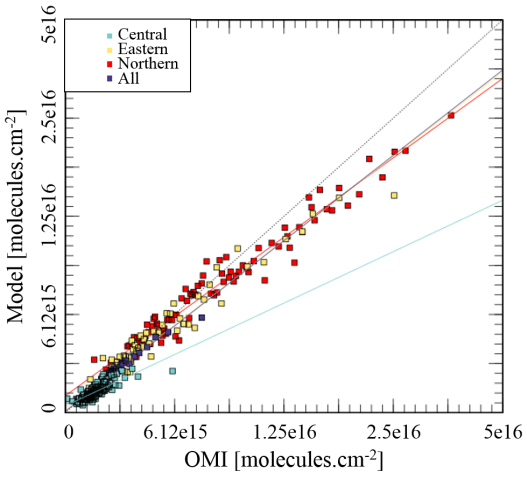

FIGURE V.6 – *Nuage de points par centiles pour les colonnes de dioxyde d'azote du satellite OMI et CHIMERE. N.D.A. les échelles utilisées pour ce graphique ne sont pas régulières et ont été choisies pour permettre une visualisation optimale des données.*

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 apparait que la partie supérieure de la distribution est légèrement sous-estimée, pour les trois régions.

Les comparaisons des colonnes de NO_2 font apparaitre 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° × 0.25° avec une information OMI renseignée par région [parte 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 $PM_{2.5}$, aux alentours de Pékin et Shanghai. La validation de Boylan and Russell [2006] est respectée par l'ensemble des jeux de données de PM.

CHAPITRE

VI

The unintended consequence of SO_2 and NO_2 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 **105**
VI.1 Abstract **107**
VI.2 Introdution **107**
VI.3 Material and method **108**
VI.3.1 IASI Satellite observations 108
VI.3.2 The chemistry-transport CHIMERE model and updated NO_X and SO_2 emissions 108
VI.3.3 ISORROPIA 110
VI.3.4 Set-up of the performed sensitivity tests 111
VI.4 Results and Discussion **111**
VI.4.1 Impact of meteorological conditions on the NH_3 / NH_4^+ / SO_4^{2-} / NO_3^- system 111
VI.4.2 Impact of SO_2 and NO_X emission reduction on NH_3 columns and inorganic aerosol 114
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 Evaluation against IASI NH_3 columns observations 118
VI.5 Conclusion **119**

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 polices 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 SO_2], ce qui entraine une diminution de la production d'aérosols secondaires inorganiques à partir de l'ammoniac.

L'article est soumis et sera bientôt disponible sur ACPD.

The unintended consequence of SO_2 and NO_2 regulations over China: increase of ammonia levels and impact on $PM_{2.5}$ concentrations

Mathieu Lachatre[1], Audrey Fortems-Cheiney[1], Gilles Forêt[1], Guillaume Siour[1], Gaëlle Dufour[1], Lieven Clarisse[3], Cathy Clerbaux[2,3], Pierre-François Coheur[3], Martin Van Damme[3], and Matthias Beekmann[1]

[1]Laboratoire Inter-Universitaire des Systèmes Atmosphériques [LISA], UMR CNRS 7583, Université Paris Est Créteil et Université Paris Diderot, Institut Pierre Simon Laplace, Créteil, France.
[2]LATMOS/IPSL, Sorbonne Université, UVSQ, CNRS, Paris, France.
[3]Université libre de Bruxelles [ULB], Spectroscopie Atmosphérique, Service de Chimie Quantique et Photophysique, Brussels, Belgium.

Correspondence: Mathieu Lachatre [Mathieu.lachatre@lisa.u-pec.fr]

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 the last years, in particular IASI observations reveal an increase of these columns by 15 % and 65 % from 2011 to 2013 and 2015, respectively, over Eastern China. In this paper we have performed model simulations for 2011, 2013 and 2015 in order to understand the origin of this increase, and in particular to quantify the link between ammonia and the inorganic components of particles: $NH^+_{4(p)}$ / $SO^{2-}_{4(p)}$ / $NO^-_{3(p)}$. Interannual change of meteorology can be excluded as a reason: year 2015 meteorology leads to enhanced sulphate production over Eastern China which increases the ammonium and decreases the ammonia content which is contrary to satellite observations. Reductions in SO_2 and NO_X emission between 2011 and 2015 of respectively −37.5 and −21 %, as constrained from satellite data, lead to decreased inorganic matter [by 14 % for $NH^+_{4(p)}$ + $SO^{2-}_{4(p)}$ + $NO^-_{3(p)}$]. 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 SO_2, NO_X and NH_3 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]. IASI satellite observations [Van Damme et al., 2017] also show an increase expense of $NH_{3(g)}$ column over China between 2011 and 2015, with a sharper trend between 2013 and 2015. Several factors could explain this enhancement: it could be an increase of $NH_{3(g)}$ Chinese emissions, due to agricultural activities representing 80-90 % of total ammonia emissions in China [Kang et al., 2016]. However, ammonia emissions appear to have reached a maximum in 2005 and been almost constant since then [Kang et al., 2016]. Another study [Zhang et al., 2018] estimates a 7 % increase of NH_3 emissions between 2011

and 2015, much lower than the observed trends. Additional 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.

Likewise, the rise of ammonia concentrations over China could be explained by increased $NH_{3(g)}$ exhaled 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 NH_4NO_3 and nitric acid HNO_3.

Finally, a decrease in sulphate and total nitrate availability caused by SO_X [SO_2 + $SO^{2-}_{4(p)}$] and NO_X [NO + NO_2], 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 SO_2 emissions also occurred over China since 2011 [Koukouli et al., 2018]. Its impact on atmospheric ammonia concentrations has not been quantified yet. Wang et al. [2013] examined the change of Chinese sulphate-nitrate-ammonium aerosols due to anthropogenic emission changes of SO_2 and NO_X from 2000 to 2015. However, they assumed an augmentation of NO_X emissions from 2006 to 2015, and not the large decrease currently observed. A very recent study by [Liu et al., 2018, in discussion] suggests that ammonia increase comes from SO_2 emission policies, but does not take into account NO_X emissions, nor a comparison to observed NH_3 observations.

Our goal here is to understand the factors controlling atmospheric ammonia concentrations over China for recent years. In order to identify the drivers of $NH_{3(g)}$ variability over China, we ran different sensitivity studies with a regional chemistry-transport model, isolating the impacts of i) meteorological conditions and ii) decrease of anthropogenic SO_2 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 NH_3 column and surface PM observations. Section 3 gives the results of the sensitivity tests and shows the impacts of meteorological conditions and of 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 inter-annual variability is compared to the one 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 IASI instrument [Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, operating between 3.7 - 15.5 µm] on board the Metop-A European satellite [Clarisse et al., 2009; Van Damme et al., 2018]. The algorithm used to retrieve NH_3 columns from the radiance spectra is described in Whitburn et al. [2016] and Van Damme et al. [2017]. For this study we used the 'climate' dataset ANNI-NH3-v2.2R-I, relying on ERA-Interim ECMWF meteorological input data rather than the operationally provided Eumetsat IASI Level 2 [L2] data used for the standard near-real-time version, that is coherent in time [excepted for the cloud coverage flag] and can therefore be used to study interannual $NH_{3(g)}$ variability over East China between 2011 and 2015 [Figure 1]. We used the daily satellite information from morning orbits [at ∼9.30 am 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 $0.25° \times 0.25°$ resolution of CHIMERE]. The annual gridded means of Figure 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 4.7×10^{15} molecules.cm^{-2} is observed for East China, increasing to 5.36×10^{15} molecules.cm^{-2} in 2013 [+15 %], and 7.76×10^{15} molecules.cm^{-2} in 2015 [+65 %].

2.2 The chemistry-transport CHIMERE model and updated NO_X and SO_2 emissions

CHIMERE [2014b version] is a 3D chemistry-transport regional model [Menut et al., 2013; Mailler et al., 2017, www.lmd.polytechnique.fr/chimere/, last consulted 09/15/18] run here over a $0.25° \times 0.25°$ regular grid, on a domain integrally covering China's territory [72°30′E - 145°E; 17°30′N - 55°N]. The domain includes 290 [longitude] × 150 [latitude] grid cells and 17 vertical layers, with altitude going from the ground to 200 hPa [about 12 km], with 8 layers within the first two kilometers. Meteorological fields are provided by ECMWF meteorological forecasts [Owens and Hewson, 2018]. To prescribe atmospheric boundaries and initial composition, climatological values are used from 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 MEIC inventory developed by Tsinghua University, the

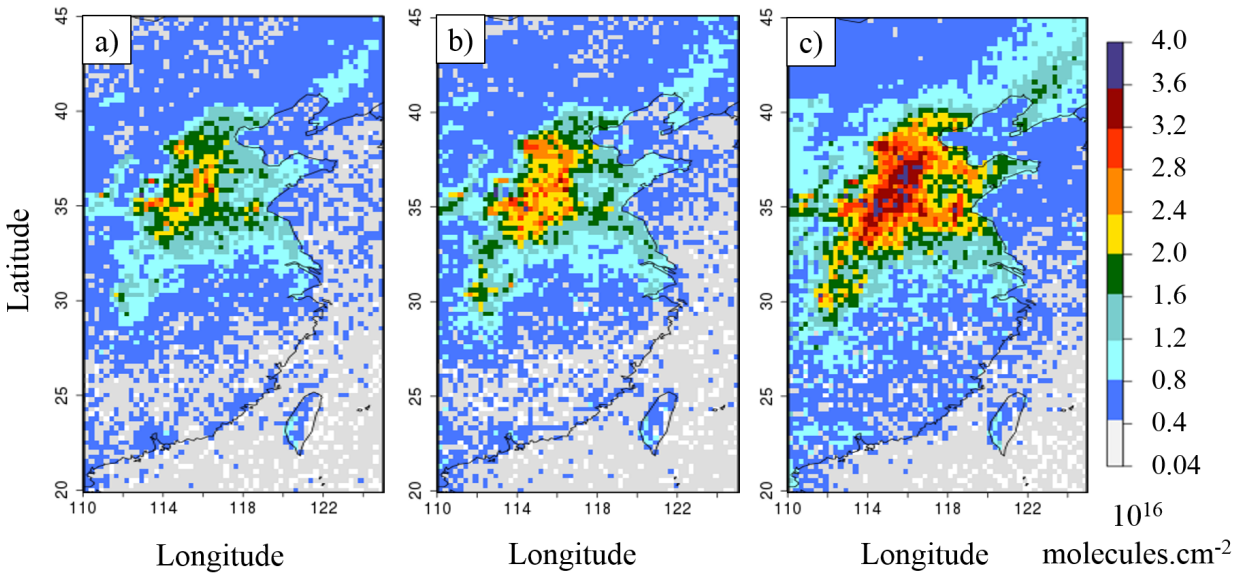

Figure 1. IASI instrument $NH_{3(g)}$ total columns over East China [110°E - 125°E; 20°N - 45°N], in 10^{16} molecules.cm^{-2} for a) 2011, b) 2013 and c) 2015. In this figure, the available observations have been averaged on a 0.25° × 0.25° grid.

$NH_{3(g)}$ emission inventory from Peking University [Huang et al., 2012], and the REAS inventory [Kurokawa et al., 2013] to fill the remaining gaps. The respective total annual emissions of SO_2, NO and $NH_{3(g)}$ for 2010 are 42.4 Mt, 25.2 Mt, and 20.3 Mt [Table 1] and the spatial distributions of these emissions are represented in Figure 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, for 2011, OMI and CHIMERE NO_2 columns have been compared, we obtained a daily variation of the Pearson correlation coefficient of 0.78 and an annual mean bias of –7 %. To understand the impact of the NO_X and SO_2 emissions reduction observed over China in 2013 and 2015, emissions need to be updated and the observed variability of satellite columns has been used to update emissions, as in Palmer et al. [2006]. Here NO, NO_2 and SO_2 emissions have been updated following the variability observed by OMI between 2011, 2013 and 2015. We assume that NO_2 variation are piloted 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 SO_2, NO and NO_2 emissions. H_2SO_4 emissions represent only a small fraction of SOx [1 %] and, consequently, are not updated here. Equation 1 has been applied for each pixel of our regional grid for 2015 and 2013, where i can be SO_2, NO_2 or NO and j the pixel number:

$$Emis_{(year,i,j)} = Emis_{(2010,i,j)} \times \left(\frac{Col_{(year,i,j)}}{Col_{(2011,i,j)}} \right) \quad (1)$$

$Emis_{(2010)}$ represents the "reference" HTAP emission inventory, $Col_{(2011)}$ and $Col_{(year)}$ the respective OMI satellite observation values for 2011 and 2015 [or 2013]. Correction for the emission inventory are shown on Figure 3. Values of derived emissions have been limited to 500 % of initial values, to avoid generating some outliers values located in North Korea.

It should be noted that our annual average based update does not modify the seasonal cycle for NO_X and SO_2 [with a maximum in winter, see Figure A1a]. In the model, spatial distributions for NO_X and SO_2 emissions appear to have similar structure [see Figure 2]. Ammonia emissions present 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 SO_2 and NO_X emissions, except in summer when $NH_{3(g)}$ emissions are in excess compared to SO_2 alone [Figure A1b].

When applying Equation 1, the temporal evolution of OMI NO_2 columns leads to a decrease in NO_X emissions [Figure A3 and A4], 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 SO_2 with the DECSO v5 inventories calculated with an inverse modelling method based on an extended Kalman Filter [Mijling and Zhang, 2013; Ding et al., 2017, www.globemission.eu/, last consulted 07/04/2018]. For DECSO, the a priori NO_X anthro-

Table 1. Annual budgets of the EDGAR-HTAP-v2.2 inventory and of emissions corrected from the OMI instrument [this work], for SO_2, NO and NO_2, over Asia and over East China, in Mt. The "Asian" domain corresponds to our full domain [72°30′E - 145°E; 17°30′N - 55°N], and the "East China" domain corresponds to a smaller domain [110°E - 125°E; 20°N - 45°N], displayed by a dark rectangle in Figure 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 %
East 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 %

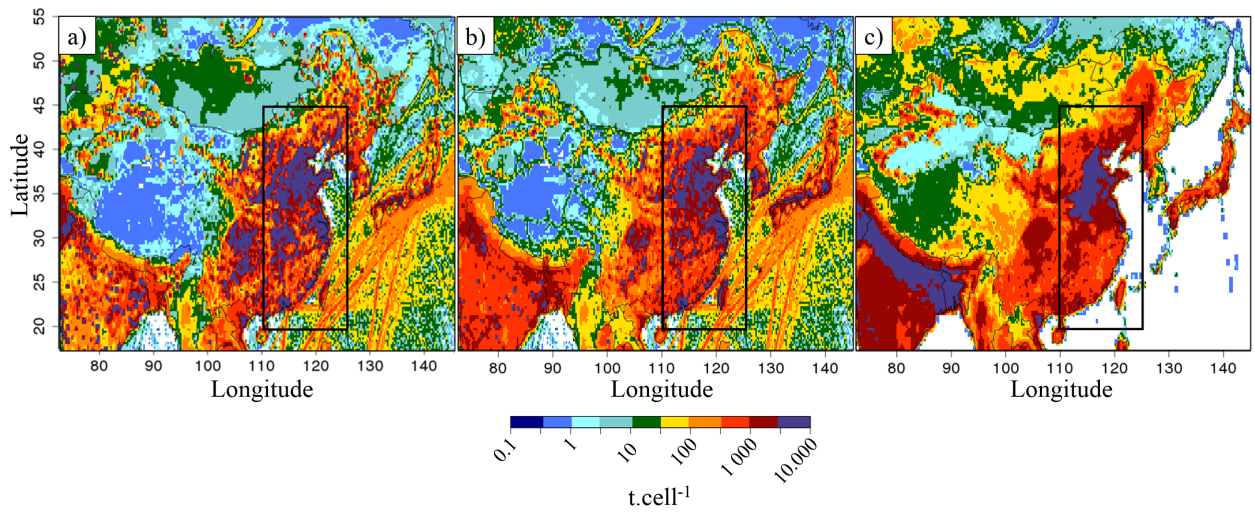

Figure 2. EDGAR-HTAP-v2.2 emissions for the year 2010 for a) SO_2, b) NO and c) NH_3. Units are in t.cell^{-1} [cell size of 0.25° × 0.25°]. The black rectangle represents the so-called East China domain.

pogenic 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 on [Figure A2]. Our annual evolutions are consistent with DECSO trend estimates [+1 % in 2013 and −14 % in 2015, compared to DECSO in 2011].

The OMI SO_2 trends imply [following Equation 1] a continuous decrease of SO_2 emissions from 2011 to 2015 [−24 % in 2013 and −37 % in 2015 compared to 2011, see Table 1 and Figure 2a]. This decreasing trend is consistent with trend estimates of the SO_2 DECSO, −11 % in 2013 and the −25 % in 2014 compared to 2011. Nevertheless, our total SO_2 emissions in 2013 seem to be underestimated compared to the DECSO annual estimates, [−15 % in 2011, −25 % in 2013]. It should be noted here that our method to update emissions has some limitations. Indeed 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 a rather good consistency. We then consider that our estimated emission inventories are realistic enough to conduct sensitivity tests.

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., 1998]. The CHIMERE CTM calculates the thermodynami-

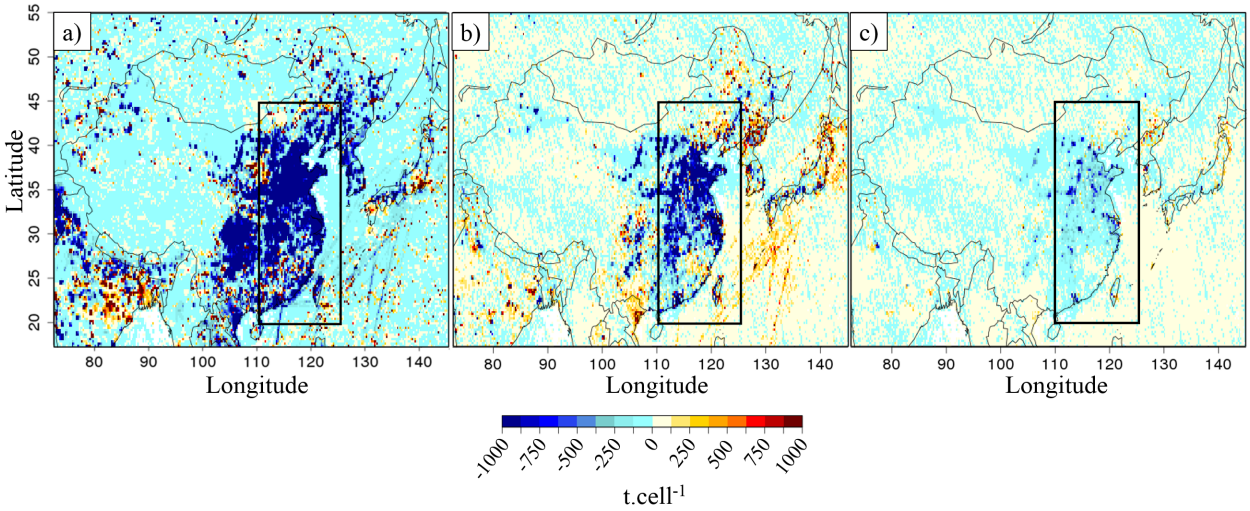

Figure 3. Annual differences between the EDGAR-HTAP-v2.2 inventories for the year 2010 and the emissions corrected from OMI for the year 2015, for a) SO_2, b) NO and c) NO_2. Units are in t.cell^{-1} [cell size of 0.25° × 0.25°].

cal equilibrium of the system: sulphate-nitrate-ammonium-water for a given temperature [in a range [260 K-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 [TN = $NO^-_{3(p)}$ + HNO_3; Total nitrates], TA [TA = $NH^+_{4(p)}$ + $NH_{3(g)}$; Total ammonia] and TS [TS = $SO^{2-}_{4(p)}$ + H_2SO_4; Total Sulphates] the gas to particle partitioning of $NH^+_{4(p)}$ / $NH_{3(g)}$ and $HNO_{3(g)}$ / $NO^-_{3(p)}$ are calculated using tabulated values. Depending on equilibrium calculation, both absorption and desorption of ammonia are represented in 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 $NH_{3(g)}$ at the expense of $NH^+_{4(p)}$ [Petetin et al., 2016].

2.4 Set-up of the performed sensitivity tests

Six experiments have been performed to discriminate factors that control the ammonia atmospheric budget over China during the 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 "A" labelled simulations are used to quantify influence of meteorological parameters, the "B" labelled simulation to quantify influence of SO_2 emissions variations, and "C" labelled simulations to quantify the influence of both SO_2 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 SO_2 emission giving information on the role of Chinese SO_2 emissions reduction on the $NH_{3(g)}$ atmospheric content. Finally, the simulation 2015C uses the same meteorology than the 2015A one, but using both SO_2 and NO_X emissions corrected with 2015 OMI observations [see Table 2].

As the 2013 updated NO_X emissions are similar to the initial EDHAR-HTAP-v2.2 ones used for the 2011 reference simulation, we expect similar results with the 2013B and 2013C simulations. Consequently, the 2013B simulation has not been conducted. 2013C and 2015C are then the key simulations of our study showing the combined effect of SO_2 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/sulphate/nitrate system

Three scenario simulations using the same emissions but different meteorological conditions [2011A, 2013A and 2015A] have been performed to understand the role of meteorology for ammonia atmospheric concentrations. As our study uses satellite observations giving tropospheric trace gas columns for different purposes, also model results will be generally presented as vertical columns [reaching from ground to 12 km height]. However, most of the column content can

Table 2. Description of the different experiments performed by 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 2010s	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 2010s	Sensitivity to SO_2 emission reduction
2015C	ECMWF 20115	Deduced from OMI for 2015	Deduced from OMI for 2015	Sensitivity to SO_2 and NO_X emission reduction

generally be found within first 2.5 km, close to the ground [more than 90 % of $NH_{3(g)}$ is located within 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 for meteorological parameters for a height, which should be representative for conditions where pollutants are located.

Figure 4 shows $NH_{3(g)}$ columns in 2011 [Figure 4a], and simulated variations depending on meteorological conditions for 2013 [Figure 4 b] and 2015 [Figure 4c]. It can be observed that the so-called "East China" area includes regions with the highest $NH_{3(g)}$ values [except India Gangetic valley]. Over the East 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 south China area [see black rectangle in Figure 4 b-c] that ammonia decreases for 2013 and 2015. Figure 5 shows that ammonia changes caused by meteorological variations are opposite to sulphate and ammonium changes, in both cases, for 2013 and 2015. Indeed, meteorological conditions in 2015 [displayed on Figure A5] promoted the formation of ammonium and sulphates [+6 % and +12 % respectively] in 2015A compared to 2011A, and a decrease of nitrates [–13 %; Figure 5]. For 2013, changes of $NH_{3(g)}$ are opposite to ammonium [–7 %] and sulphates [–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 $SO^{2-}_{4(p)}$ changes. This can be explained from well-known neutralisation reactions in the gas [Reaction R1] or aqueous phase [Reaction R2 and R3]:

$$2NH_{3(g)} + H_2SO_{4(g)} \rightleftharpoons (NH_4)_2SO_{4(p)} \quad \text{(R1)}$$

$$NH_{3(aq)} + H_2SO_{4(aq)} \rightleftharpoons NH^+_{4(aq)} + HSO^-_{4(aq)} \quad \text{(R2)}$$

$$NH_{3(aq)} + HSO^-_{4(aq)} \rightleftharpoons NH^+_{4(aq)} + SO^{2-}_{4(aq)} \quad \text{(R3)}$$

SO_2 oxidation to $SO^{2-}_{4(p)}$ can happen in gas phase, from process Reaction R5, in which OH is the oxidant, produced from Reaction R4 reaction that is linked to humidity:

$$O(^1D) + H_2O_{(g)} \rightarrow 2OH \quad \text{(R4)}$$

$$OH + S^{(+IV)}O_{2(g)} \rightarrow H_2S^{(+VI)}O_{4(g)} \quad \text{(R5)}$$

Sulphate production can also occur in the aqueous phase, by $SO_{2(aq)}$ oxidation with O_3 or H_2O_2, yielding sulfuric acid which then can be neutralised to form ammonium sulphate [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 [$SO_2.H_2O_{(aq)}$]:

$$SO_{2(aq)} + H_2O_{(aq)} \rightleftharpoons SO_2.H_2O_{(aq)} \quad \text{(R6)}$$

$$SO_2.H_2O_{(aq)} + O_{3(aq)} \rightarrow HSO^+_{4(aq)} + H^+ + O_2 \quad \text{(R7)}$$

While the aqueous phase pathway is globally dominant, the gas phase pathway can be also major 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 of them, RH increase favours $SO^{2-}_{4(p)}$ production, or through increased production of OH radicals in the gaseous phase [for a given temperature, so that also specific humidity increases], either through a larger cloud liquid water content [Hedegaard et al., 2008].

In 2013, annual mean temperature and annual mean RH have respectively increased by +0.7 K and decreased by –0.9 % compared to 2011, also cloud liquid water relative variation shows a decrease of –7 %. In 2015, temperature and annual mean RH have respectively increased by 1 K and increased by +1.3 % compared to 2011, and cloud liquid water relative variation presents an increase of +20 %. Accordingly, the total sulphate-nitrate-ammonium [called pSNA hereafter] production is promoted, +7 % in 2015A compared to 2011A, explaining thus the decrease in the $NH_{3(g)}$ columns by –7 %.

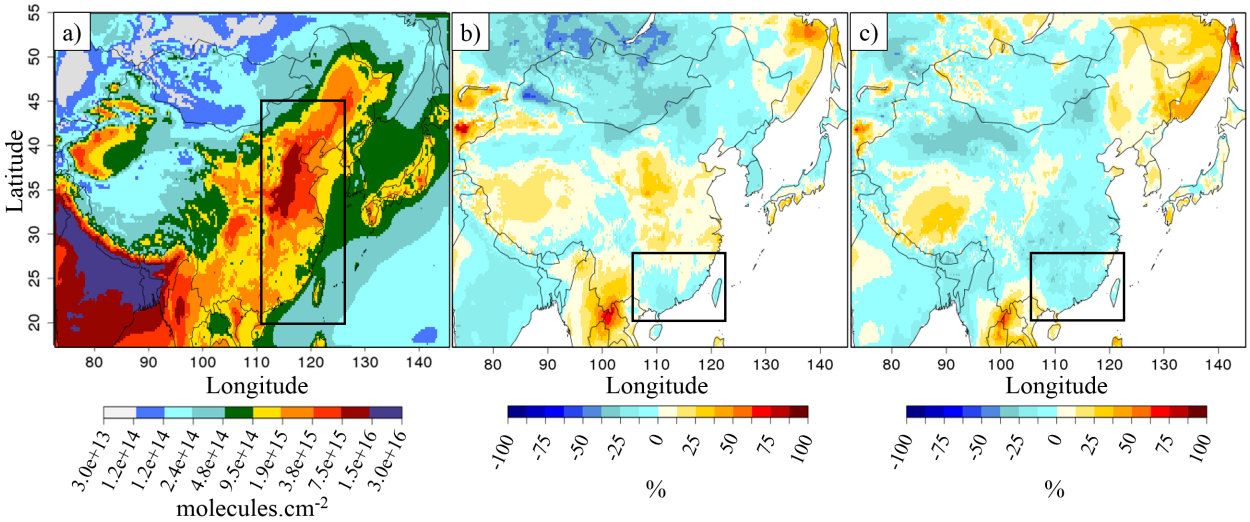

Figure 4. a) Ammonia columns [molec.cm^{-2}] for the simulation 2011A; b) relative differences [%] of ammonia columns between 2013A and 2011A; c) relative differences between 2015A and 2011A. Note that as values over the sea mostly represent only small variations, we do not show them here and in the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

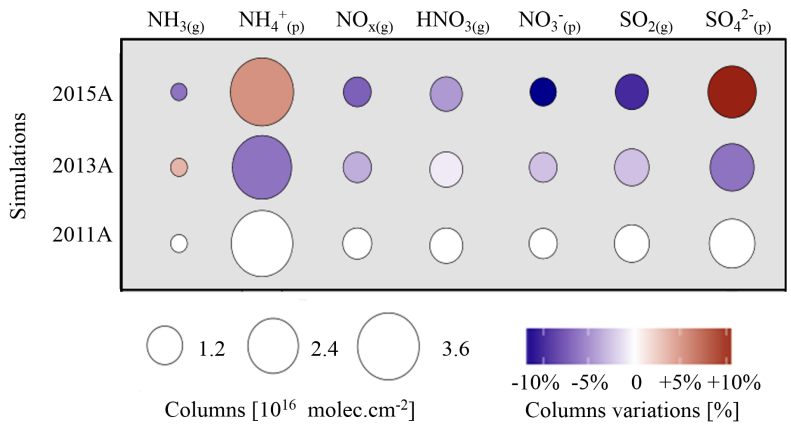

Figure 5. Gaseous and particulate inorganic species variation for the East China region. Disk surfaces are proportional to columns amount [molec.cm^{-2}] and colors indicate relative evolutions compared to 2011A [%].

On the contrary, meteorological conditions in 2013 [decrease of RH and liquid water] decreased the formation of pSNA [Figure 5]. Consequently, its production was lower by about 6 % in 2013A than in 2011A, and $NH_{3(g)}$ columns larger by +4 %.

These relationships between meteorological parameters and $NH_{3(g)}$ columns can also be documented by correlation statistics [Figure 6]. Indeed, an inverse correlation between monthly RH and $NH_{3(g)}$ column variations over the previously defined East China domain is shown in Figure 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 [Figure 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. It also should be noted that decreases of ammonia and am-

monium are observed over areas presenting an increase of rainfall frequencies [see Figure A6] in 2015 and 2013 [in the south of China, Guangxi, Guan-Dong provinces - see the black box in Figure 4]. On the contrary, with rainfall frequencies lower than 90 days.yr^{-1} [for rainfall above 1 mm.day^{-1}], and small changes in rainfall frequencies over North China Plain for 2011 and 2013, changes in wet deposition do not seem to impact significantly ammonia levels. Indeed, low correlation is found between monthly rainfall frequencies variations and monthly ammonia variations over East 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 SO_2 and NO_X emission reduction on NH_3 columns and inorganic aerosol

3.2.1 Impact of SO_2 and NO_X emission reduction on NH_3 columns

Figure 7b represents the impact of the SO_2 emission reduction on $NH_{3(g)}$ columns for the 2015B simulations. For year 2013, the comparison is made from the 2013C simulation [see Table 1, and Figure A7], since NO_X emissions between 2011 and 2013 are similar. The SO_2 emission reduction [–24 % for 2013 and –37 % for 2015 as compared to 2011] strongly affects $NH_{3(g)}$ columns: they increase by +10 % over East China in the 2013C simulation compared to 2013A and by about +36 % in the 2015B simulation compared to 2015A. Thus, the effect of SO_2 reduction on $NH_{3(g)}$ columns appears to be non-linear, because $NH_{3(g)}$ interactions are not limited to SO_2. It should be noted that the column change is mainly controlled by changes between the surface and the first kilometres of altitude, as much of column content [>95 %] is located between the surface and 2.5 km of altitude, but as IASI and OMI satellite provide full column information, we present the CHIMERE entire 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 %, Figure 7b], where $NH_{3(g)}$ values are initially low [Figure 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 East China [with the 2015C simulation, compared to 2015B]. The additional increase of ammonia columns in the simulation 2015C, is about 15 % compared to the simulation 2015B [SO_2 emission decrease only] in the northern part of East China subdomain.

Figure 8b represents the impact of the SO_2 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 "East China" where the decrease is most pronounced Figure 8c. In addition, we have observed that ammonium columns have decreased by about 2 % over East 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 SO_2 emission reduction impacts on $NH_{3(g)}$ and $NH^+_{4(p)}$ columns can differ depending on the areas [see Figure A8]. In the 2015B simulation the ammonium production decreases most strongly in Sichuan province-Chongqing municipality [Black rectangle, Figure 8b], and there is a large scale decrease around SO_2 sources [Figure 2a]. In the 2015C simulation, we can observe a larger decrease in North China region [red rectangle, Figure 8c], where ammonium nitrate is produced with freshly formed $HNO_{3(g)}$, following Reaction R8:

$$NH_{3(g)} + HNO_{3(g)} \rightleftharpoons NH_4NO_{3(p)} \qquad \text{(R8)}$$

These relationships between sources and impacted regions are explained by the time needed for $SO^{2-}_{4(p)}$ and $NO^-_{3(p)}$ formation from SO_2 and NO_X precursors, respectively several days and several hours to one day. Thus SO_2 to H_2SO_4 oxidation is more a large scale process [unless it happens in the aqueous phase], whereas nitrate formation proceeds closer to the sources. However, in case of lower atmospheric dispersion or high water content, as for example in Sichuan province-Chongqing municipality, which present particular geographic situation [i.e. located into an orographic depression], allowing sulphates to be formed close to sources, and largely contributing to PM as high as 32 % in column [compared to 23 % over East China, $SO^{2-}_{4(p)}$ columns are displayed Figure A8a].

3.2.2 Impact of SO_2 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 SO_2 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 sulphuric acid [Reaction R1, R2, R3], and more $NH_{3(g)}$ remains in the gas phase [+36 % for 2015B; +51 % for 2015C; see Figure 9 and A9]. These higher $NH_{3(g)}$ levels trigger a larger conversion [Reaction R8] of gaseous nitric acid into particulate $NO^-_{3(p)}$[+33 %; Figure 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 East China.

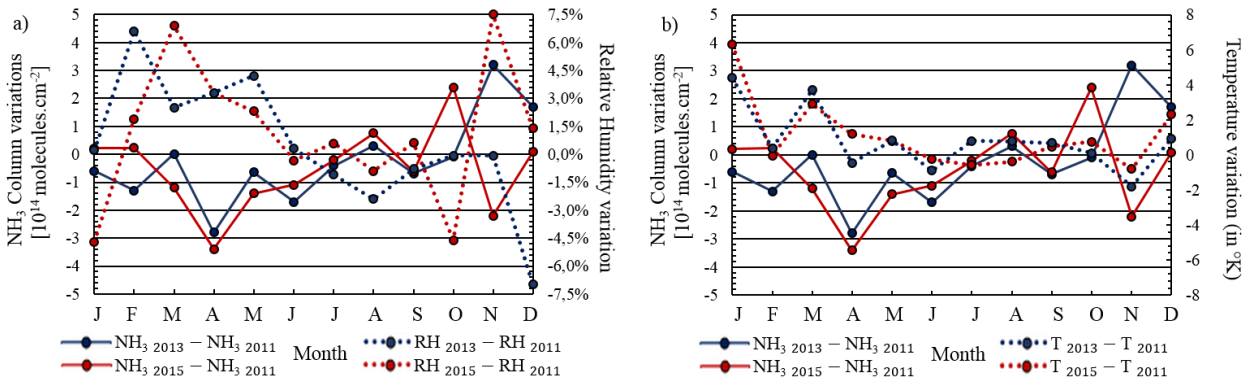

Figure 6. a) Monthly variation of $NH_{3(g)}$ partial columns and relative humidity in 2013 and 2015 compared to 2011, b) monthly variation of $NH_{3(g)}$ partial columns and temperature in 2013 and 2015 compared to 2011.

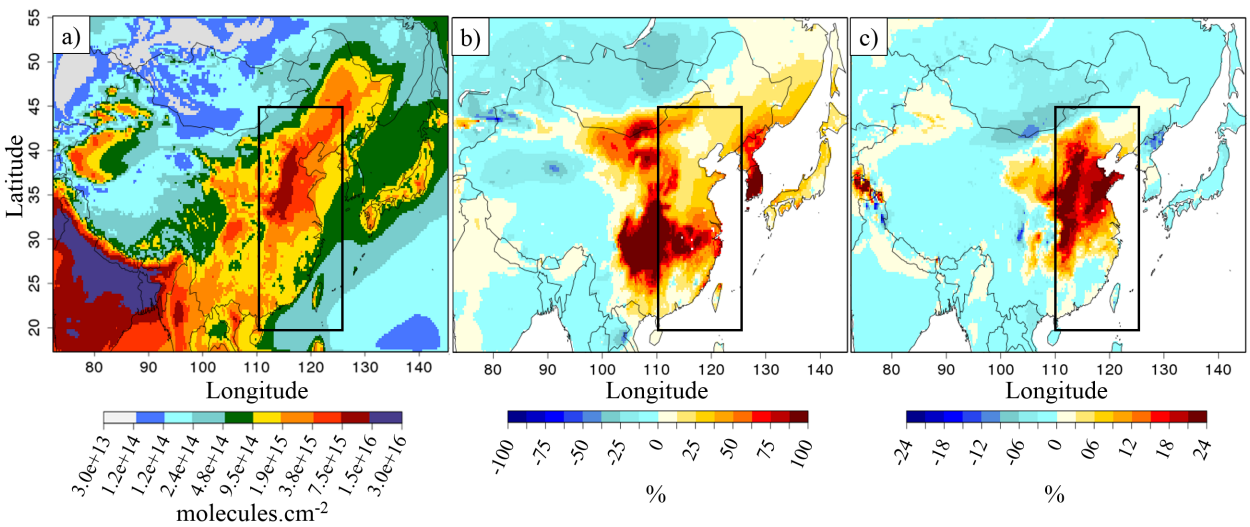

Figure 7. a) Ammonia columns in molec.cm^{-2} for the simulation 2015A, b) relative differences of ammonia columns between the simulations from 2015B and 2015A, in % and c) additional relative differences of ammonia columns between the simulations from 2015C minus 2015B compared to 2015A, in %. The black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

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 SO_2 emissions. Among PM components, a decrease of the sulphate molar fraction is observed [from 32 % to 29 %] and the $NO^-_{3(p)}$ fraction increases, from 12 % to 15 % while $NH^+_{4(p)}$ 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 [Figure A9]. 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 for 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-dimensionnal distribution is displayed in Figure A10]. A negative value of the G_{ratio} indicates that TA low availability is strongly limiting nitrate production in competition to sulphate production, while a value between [0-1] indicates a TA

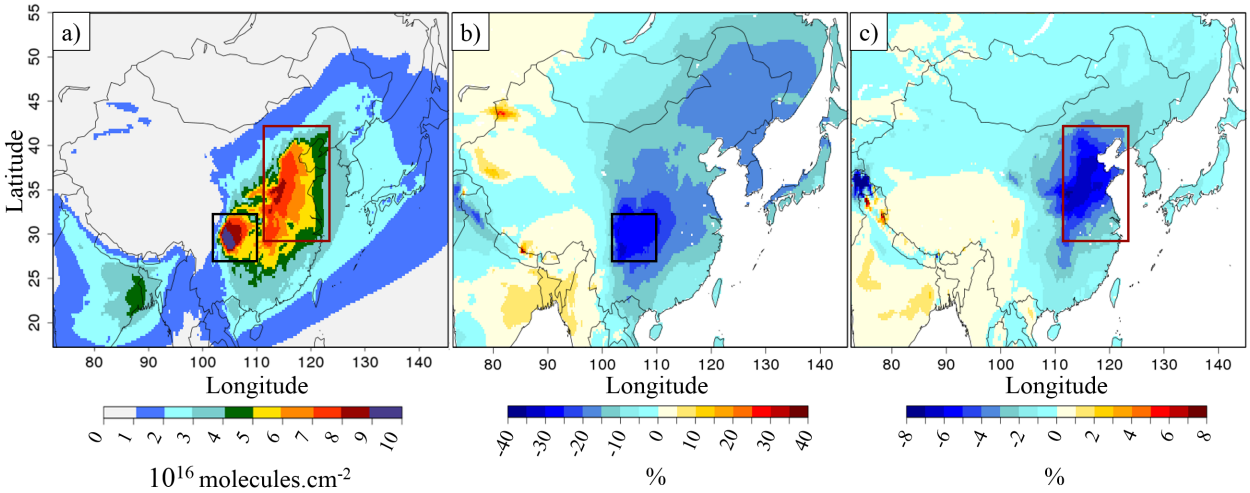

Figure 8. a) Ammonium columns in molec.cm^{-2} for the simulation 2015A, b) relative differences of ammonium columns between the simulations from 2015B and 2015A, in % and c) additional relative differences of ammonium columns between the simulations from 2015C minus 2015B compared to 2015A, in %. The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

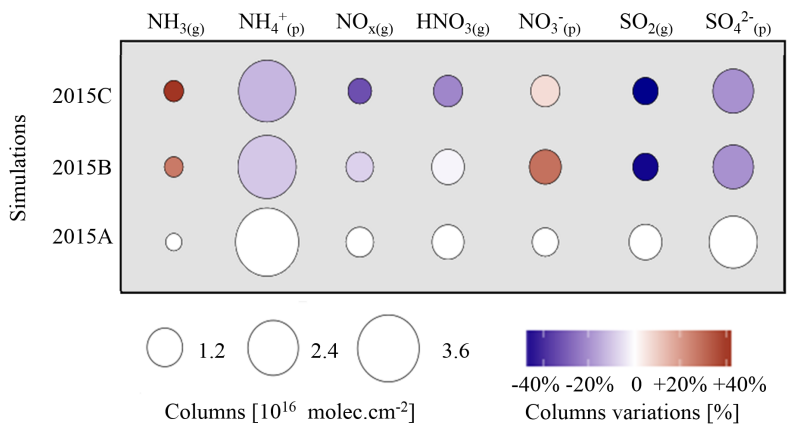

Figure 9. Gaseous and particulate inorganic species variation for the East China region. Disk surfaces are proportional to columns amount [molec.cm^{-2}] and colours indicate relative evolutions compared to 2015A [%].

limitant 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 cations/anions ratio [C/A_{ratio}], easier to interpret with no negative values, as follows:

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

where TA=[$NH_{3(g)}$]+[$NH^+_{4(p)}$] is the total ammonia reservoir and TN=[$HNO_{3(g)}$]+[$NO^-_{3(p)}$] is the total nitrate reservoir. When the C/A_{ratio} is between [0-1] $mol_C.mol_A^{-1}$, we are in a cation limited regime, and when C/A_{ratio} is larger than 1 $mol_C.mol_A^{-1}$, 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 Figure 10. It should be noted that the ratio has an important month-to-month variability [normalized standard deviation of 10 %] as displayed in Figure 10d for the East Asia region. Note that $NH^+_{4(p)}$ is the only cation considered here, the potential role of other cations is discussed below. Figure 10d presents C/A_{ratio} for the simula-

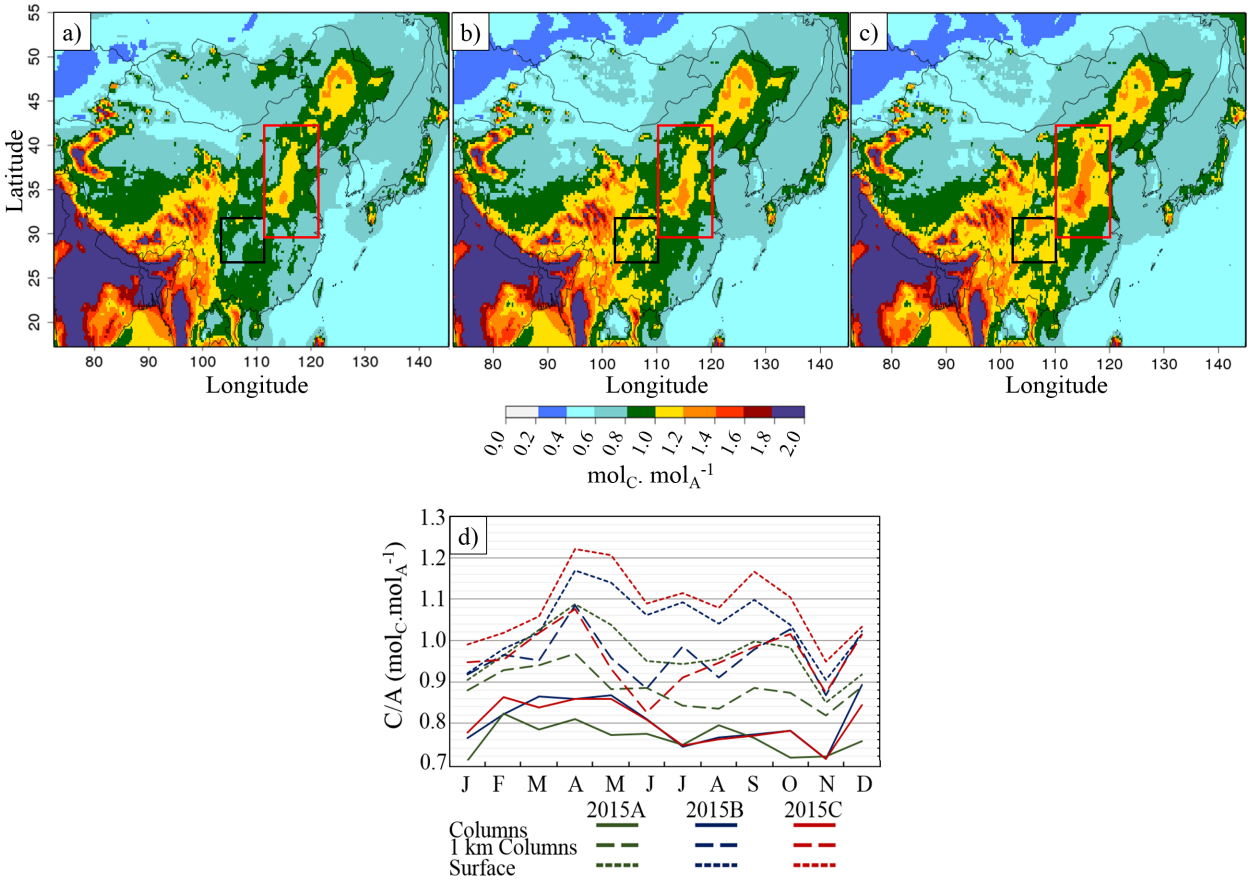

Figure 10. a) Partial column [0-1 km] Cations/Anions ratio [$mol_C.mol_A^{-1}$] over China, for the simulations a) 2015A, b) 2015B, c) 2015C, d) monthly variation of C/A$_{ratio}$ over East China. Full lines represent ratios derived from columns [up to 12 km], dashed lines represent ratios derived from 0-1 km column, and dot lines ratios derived from surface concentrations. Black rectangles represent central China and red rectangles Northern China.

tions considering several altitudes, at the surface, the 0-1 km column and the CHIMERE total column. C/A$_{ratio}$ is highly variable depending on considered vertical layer, with significantly lower C/A$_{ratio}$ considering a total column than a reduced layer close to surface, a statement also observable in Paulot et al. [2016]. Close to sources [surface] more ammonium will be present, leading often in 2015B and 2015C scenario to a cation exceeding regime. If we consider vertical columns, as 0-1 km for example [which corresponds roughly to the atmospheric mixing layer], the ratio is for most of the months below 1 [anions limited regime]. 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 at surface. Besides, 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 [Figure A1b]. Then, for July and August, the cations to anions ratio drops. This change is not explained by a change in emissions, because these months display emissions close to June ones. 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, which allow both more OH radical [July and August OH levels are the highest and and twice the annual mean] to form [from O_3 photolysis] and second, more $SO_{2(g)}$ dissolution in aqueous phase. Both factors, then induce more $SO^{2-}_{4(p)}$ formation [Stockwell and Calvert, 2016] decreasing by this way the C/A$_{ratio}$.

C/A$_{ratio}$ two-dimensional distributions are shown in Figure 10 for the 0 - 1 km column. The atmosphere is mainly cation limited over East 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 with the 2015C

and 2015B simulations than in 2015A simulation, as for example in the Sichuan province-Chongqing municipality [Black Square on Figure 10b] and North China regions [Red rectangle on Figure 10c]. Reductions of SO_2 and NO_X emissions led to C/A$_{ratio}$ increase and change in the limitation regime close to $NH_{3(g)}$ sources areas [Figure 10a and 10].In the future, emissions reductions for NH_3 and anions precursors should lead to less $NH_4NO_{3(p)}$ and $(NH_4)_2SO_{4(p)}$ formation, reducing observed PM levels.

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 $NH^+_{4(p)}$ 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 lowest $NH^+_{4(p)}$ concentrations are met, the $NH^+_{4(p)}$ content [about 0.5 µmol.m^{-3}] still exceeds three times the [Ca^{2+} + Mg^{2+}] amount [about 0.15 µmol.m^{-3}]. Another recent study measuring soluble ions of $PM_{2.5}$ in Beijing shows a large excess, of $NH^+_{4(p)}$ 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 cations species can lead to simulate cations-limited situations instead of a cations-excess situation for restricted timse of the year and areas, when ratio reaches values close to 1.

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

Combined impacts of meteorology and emission reductions on gaseous and particulate species are shown in Figure 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 [Figure A11 presents two-dimensionnal distribution of pSNA changes] and the positive changes in $NH_{3(g)}$ due to emission reductions. As a result in our simulations, $NH_{3(g)}$ columns increased by as much as +14 % in 2013 and by 41 % in 2015 over East China, as compared to 2011, combining both meteorological and emission changes.

3.4 Evaluation against $PM_{2.5}$ surface measurements

The evolution of surface $PM_{2.5}$, induced by changes in SO_2 and NO_X emissions in our simulations, is evaluated here against independent daily $PM_{2.5}$ surface measurements. Scores for normalized bias, normalized RMSE, ratios of model and observed variability, and Pearson correlation coefficients are displayed in Table 3. We used data from U.S. Embassy and consulates over China [e.g., in Beijing, Chengdu, Guangzhou, Shanghai and Shenyang, www.stateair.net, last consulted 10/05/2018], 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 [simulation 2013C and 2015C]. We also present changes, between 2013A/2015A and 2013C/2015C simulations in Table 3.

The $PM_{2.5}$ values measured in Chinese cities show large amplitudes, ranging from 0 to 500 µg.m^{-3}, and CHIMERE correctly represents both these amplitudes and the strong day-to-day variability of $PM_{2.5}$ surface concentrations, as illustrated by good correlation coefficients [Pearson 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 $PM_{2.5}$ concentrations for 4 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 $PM_{2.5}$ means [–4.3 µg.m^{-3}; –2.2 µg.m^{-3}; –1.1 µg.m^{-3}; –11.5 µg.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 µg.m^{-3}], slightly deteriorate the already negative bias. The strongest improvement is observed in Chengdu [central China], an area where inorganic PM mainly depends on sulphate and ammonium. $PM_{2.5}$ observations show, between 2013 and 2015, a decrease for Beijing, Chengdu, Guangzhou and Shanghai respectively of –19 %, –20 %, –30 % and –15 % and an increase for Shenyang of +18 %. These changes are not fully reproduced by CHIMERE, possibly, as emissions have been modified for NO_X and SO_2 only, not considering organic or other inorganic species. In CHIMERE, $PM_{2.5}$ decreases are calculated for Beijing and Chengdu [respectively of –3.6 % and –10 %], no significant change is simulated for Guangzhou and increases are modelled for Shanghai and Shenyang [respectively of +12.5 % and +3.7 %]. All changes are calculated filtering simulation results according to measurements availability. Increase in Shenyang can be explained due to lacking data sampling periods between 2013 and 2015 [229 days available against 341]. In Shanghai, the modelled increase is not explained by $PM_{2.5}$ inorganic components, which present a +1 % trend at surface, but due to meteorological condition effects on $PM_{2.5}$ others components present larger increases.

3.5 Evaluation against IASI $NH_{3(g)}$ columns observations

Data retrieved from IASI instrument allow us to compare satellite observations to simulations and to verify the consistency of simulated trends. Figure 12 shows the spatial dis-

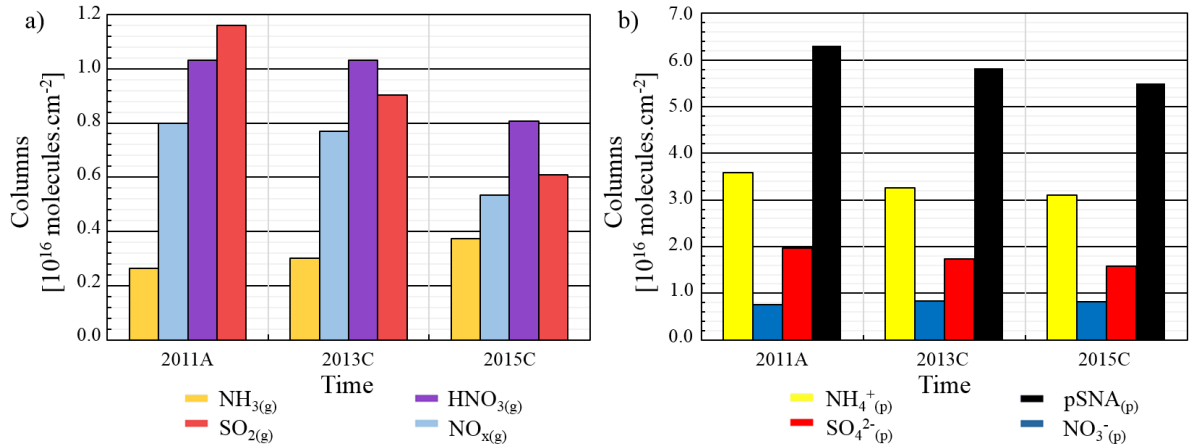

Figure 11. a) Evolution of $NO_{X(g)}$, $SO_{2(g)}$, $NH_{3(g)}$ and $HNO_{3(g)}$ tropospheric columns in molecules.cm^{-2}, for 2011A, 2013C and 2015C over East China domain, b) evolution of $NH^{+}_{4(p)}$, $SO^{2-}_{4(p)}$, $NO^{-}_{3(p)}$ and pSNA tropospheric columns in molecules.cm^{-2} from 2011 to 2015 over East China domain.

Table 3. Daily $PM_{2.5}$ comparison between model and measurements for 2013C and 2015C. "Changes" corresponds to differences between 2013C and 2015C comparisons on one hand and 2013A and 2015A ones on the other. 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. Green colour indicates positive evolution in $PM_{2.5}$ simulations when updating emissions [decreasing bias], while the contrary is true for red colour.

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[%]	$\frac{\sigma_{CHIMERE}}{\sigma_{obs}}$	R / Changes	n
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
Guangzho	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

tributions of ammonia over China for IASI and CHIMERE for 2011, 2013 and 2015, presenting a similar spatial pattern and a good correlation [$\sim R_{IASI-CHIMERE} = 0.91$ over East China] and an acceptable daily correlation [$\sim R_{IASI-CHIMERE} = 0.55$]. Nevertheless, simulations underestimate ammonia levels with a bias of –39 %, mainly because of comparison over sea area. As described above, IASI observations show a +65 % increase between 2011 and 2015. Interestingly, our model results between 2011A and 2015C, thus 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 for 2013C scenario [again sampled on IASI observations]. On the contrary, simulations with unmodified emissions only show small changes for both years [+6 % in 2013A; –3 % in 2015A]. [Liu et al., 2018, in discussion] estimated a +33 % NH_3 columns increase over the North China Plain, between 2011 and 2015, taking account of SO_2 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, to a large part, explained by changes in atmospheric chemistry induced by SO_2 but also by NO_X emissions 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

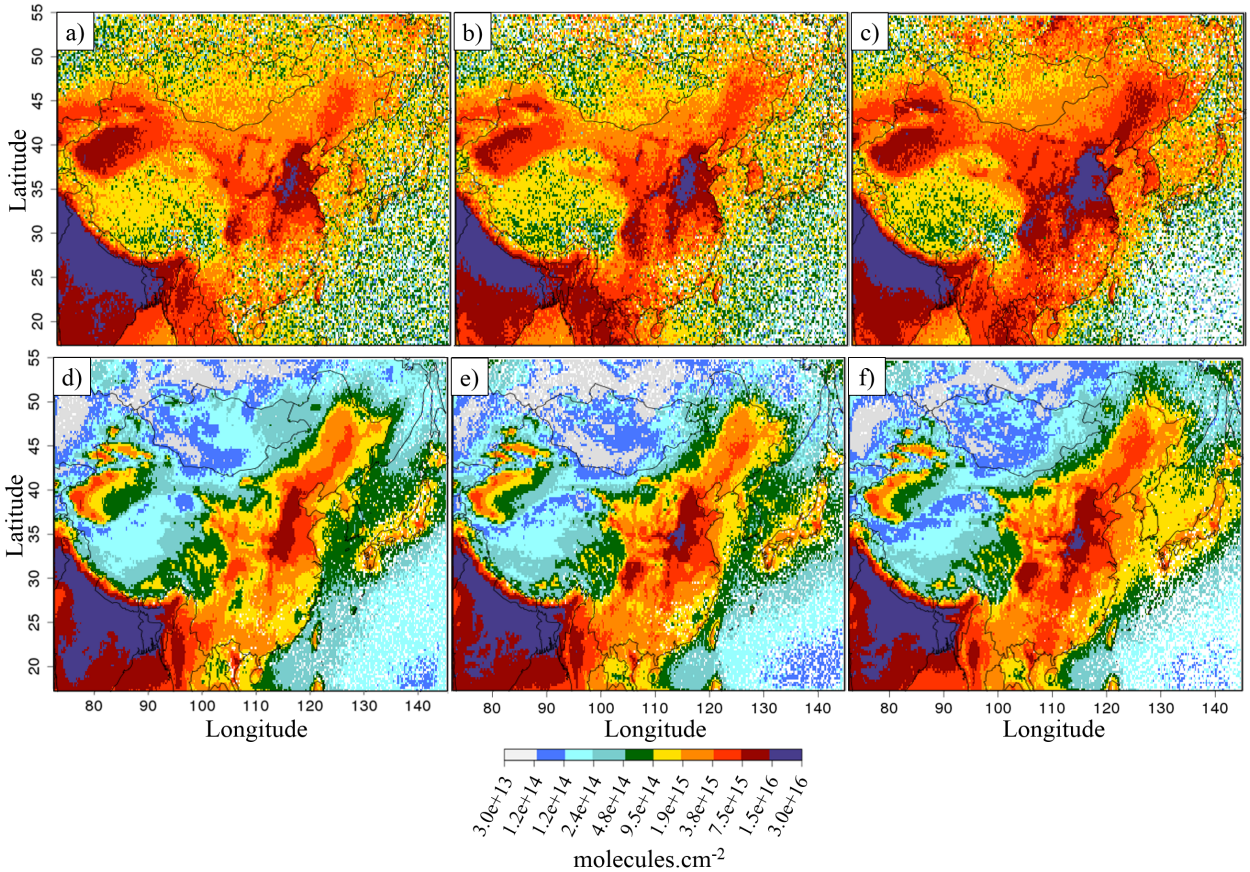

Figure 12. Ammonia columns evolution for IASI [top] and CHIMERE [bottom] a) 2011, b) 2013, c) 2015., d) 2011A, e) 2013C and f) 2015C in molecules.cm^{-2}.

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 SO_2 emissions, and to a lesser extent, to a reduction of anthropogenic NO_X emissions and to interannual changes in meteorological conditions. Indeed, with SO_2 emissions reduced by 24 % between 2011 and 2013 and by –37.5 % between 2011 and 2015, with an additional NO_X emissions reduction of –21 % between 2011 and 2015, CHIMERE reproduces an increase of $NH_{3(g)}$ atmospheric content 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 NH_3 emissions have remained constant in our scenarios, as no precise information on NH_3 emission changes was available to us but Zhang et al. [2018] suggested a 7 % increase between 2011 and 2015 what could partly explain the difference between IASI and CHIMERE increases. SO_2 and NO_X emission reductions have been inferred from OMI satellite observations, so our study is to a large degree constrained by observations. Simulations allow then to state that observed SO_2 and NO_X columns decreases and NH_3 increases are mutually consistent.

The cation to anion ratio shows an interesting height dependence. It is below unity for total columns, above unity for surface, and near unity for the first km of the atmosphere. The latter is probably most relevant for inorganic aerosol formation affecting air quality. Thus it appears that in addition to SO_2 and NO_X reductions, also NH_3 emission reductions would be efficient to reduce inorganic aerosol formation. The reduction of SO_2 and NO_X emissions also leads to a decrease of inorganic pSNA production [–14 % in the tropospheric columns between 2011 and 2015] which is highly contributing to the $PM_{2.5}$ concentrations [about 50 % of surface $PM_{2.5}$, and 33 % of column PM]. A shift from sulphate to nitrate is simulated, due to stronger SO_2 than NO_X reductions, and also more ammonia available for nitrate formation.

Finally, from our work, it appears that the evolution of gaseous precursors must be updated each year to understand

the PM evolution. Current bottom-up inventories are not updated quickly enough. The method we used to derived inventories for 2013 and 2015 from satellite data provides an interesting first estimation but presents uncertainties when pollutants are transported or eliminated. Consequently, 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 SO_2 emissions. Inverse modelling systems could also be used to quantify NH_3 emissions, as IASI space-based NH_3 observations indeed proved its considerable potential to inform about the high spatio-temporal variability of NH_3 emissions [Fortems-Cheiney et al., 2016].

Authors contributions

M.L. and A.F.-C. designed the experiments and M.L. carried them out. L.C., C.C., P.-F.C. and M.V.D. were responsible for the satellite retrieval algorithm development and the processing of the IASI NH_3 dataset. G.S. prepared meteorological and emission data. A.F.-C. prepared emission update and satellite data. M.L. adapted the model code and performed the simulations. M.L. prepared the manuscript and all authors contributed to the text, interpretation of the results and reviewed the manuscript.

Acknowledgements. We acknowledge the free use of tropospheric NO_2 column data from the OMI sensor from www.temis.nl. The thesis of M. 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 provided by 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/] for providing access to the IASI Level-2 NH_3 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].

References

Ansari, A. S. and Pandis, S. N.: Prediction of multicomponent inorganic atmospheric aerosol behavior, Atmospheric Environment, 33, 745–757, 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, Atmospheric Chemistry and Physics, 13, 11 675–11 693, https://doi.org/10.5194/acp-13-11675-2013, https://www.atmos-chem-phys.net/13/11675/2013/, 2013.

Bauer, S. E., Tsigaridis, K., and Miller, R.: Significant atmospheric aerosol pollution caused by world food cultivation, Geophysical Research Letters, 43, 5394–5400, https://doi.org/10.1002/2016GL068354, https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/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, 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.

Clarisse, L., Clerbaux, C., Dentener, F., Hurtmans, D., and Coheur, P. F.: Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations, Nature Geoscience, 2, 479–483, https://doi.org/10.1038/ngeo551, http://dx.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, http://dx.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 NOx reduction goals from the twelfth Five-Year Plan., Scientific Reports, 6, 35 912, https://doi.org/10.1038/srep35912, 2016, 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, Atmospheric Chemistry and Physics, 17, 10 125–10 141, https://doi.org/10.5194/acp-17-10125-2017, https://www.atmos-chem-phys.net/17/10125/2017/, 2017.

Fortems-Cheiney, A., Dufour, G., Hamaoui-Laguel, 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, Geophysical Research Letters, 43, 5475–5482, https://doi.org/10.1002/2016GL069361, https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/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 NOX Emissions Reduction in East China, Environmental Science and Technology Letters, 4, 221–227, https://doi.org/10.1021/acs.estlett.7b00143, 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), Atmospheric Chemistry and Physics, 6, 3181–3210, https://doi.org/10.5194/acp-6-3181-2006, https://www.atmos-chem-phys.net/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, Atmospheric Chemistry and Physics, 8, 3337–3367, https://doi.org/10.5194/acp-8-3337-2008, https://www.atmos-chem-phys.net/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., Flagan, 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, Atmospheric Chemistry and Physics, 16, 1693–1712, https://doi.org/10.5194/acp-16-1693-2016, https://www.atmos-chem-phys.net/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 Biogeochemistry Cycles, 26, 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, Atmospheric Chemistry and Physics, 15, 11 411–11 432, https://doi.org/10.5194/acp-15-11411-2015, 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, Atmospheric Chemistry and Physics, 16, 2043–2058, https://doi.org/10.5194/acp-16-2043-2016, 2016.

Koukouli, M. E., Theys, N., Ding, J., Zyrichidou, I., Mijling, B., Balis, D., and van der A, R. J.: Updated SO_2 emission estimates over China using OMI/Aura observations, Atmospheric Measurement Techniques, 11, 1817–1832, https://doi.org/10.5194/amt-11-1817-2018, https://www.atmos-meas-tech.net/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, Atmospheric Chemistry and Physics, 13, 11 019–11 058, 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., Breysse, 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, 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, socioeconomic, and neighborhood factors?, Applied Geography, 38, 1–10, https://doi.org/10.1016/j.apgeog.2012.11.004, http://dx.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, Atmospheric Chemistry and Physics, 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., and Zhu, T.: Rapid SO_2 emission reductions significantly increase tropospheric ammonia concentrations over the North China Plain, Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2018, 1–19, https://doi.org/10.5194/acp-2018-880, https://www.atmos-chem-phys-discuss.net/acp-2018-880/, 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, Geoscientific Model Development, 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, Geoscientific Model Development, 6, 981–1028, https://doi.org/10.5194/gmd-6-981-2013, http://www.geosci-model-dev.net/6/981/2013/, 2013.

Mijling, B. and Zhang, Q.: Regional nitrogen oxides emission trends in East Asia observed from space, pp. 12 003–12 012, 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, Aquatic Geochem, pp. 4:123–152, 1998.

Owens, R. G. and Hewson, T.: ECMWF Forecast User Guide, Reading, https://doi.org/10.21957/m1cs7h, https://software.ecmwf.int/wiki/display/FUG/Forecast+User+Guide, Replaces previous editions that were available as PDF documents. , 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, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 111, https://doi.org/10.1029/2005JD006689, https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/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, Atmospheric Chemistry and Physics, 16, 1459–1477, https://doi.org/10.5194/acp-16-1459-2016, https://www.atmos-chem-phys.net/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, Atmospheric Chemistry and Physics, 16, 10 419–10 440, https://doi.org/10.5194/acp-16-10419-2016, http://www.atmos-chem-phys.net/16/10419/2016/, 2016.

Pinder, R. W., Gilliland, A. B., and Dennis, R. L.: Environmental impact of atmospheric NH ₃ emissions under present and future conditions in the eastern United States, Geophysical Research Letters, 35, n/a–n/a, https://doi.org/10.1029/2008GL033732, http://doi.wiley.com/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, Atmospheric Chemistry and Physics, 17, 12 813–12 826, https://doi.org/10.5194/acp-17-12813-2017, https://www.atmos-chem-phys.net/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, https://www.biogeosciences.net/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, Atmospheric Chemistry and Physics, 4, 857–874, https://doi.org/10.5194/acp-4-857-2004, https://www.atmos-chem-phys.net/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., Herndon, S. C., Roscioli, J. R., and Eilerman, S. J.: Interannual variability of ammonia concentrations over the United States: sources and implications, Atmospheric Chemistry and Physics, 16, 12 305–12 328, https://doi.org/10.5194/acp-16-12305-2016, https://www.atmos-chem-phys.net/16/12305/2016/, 2016.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N.: ATMOSPHERIC From Air Pollution to Climate Change SECOND EDITION, 2006.

Stockwell, W. R. and Calvert, J. G.: The mechanism of the HO-SO_2 reaction, Atmospheric Environment (1967), 17, 2231–2235, 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, Atmospheric Environment, 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, Atmospheric Measurement Techniques, 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, accepted in Nature, 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, Atmospheric Chemistry and Physics, 13, 2635–2652, https://doi.org/10.5194/acp-13-2635-2013, https://www.atmos-chem-phys.net/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, Geophysical Research Letters, 44, 2875–2884, https://doi.org/10.1002/2016GL072305, https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/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, Geophysical Research Letters, 43, 11,007–11,014, 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, Atmospheric Chemistry and Physics, 18, 11 623–11 646, https://doi.org/10.5194/acp-18-11623-2018, https://www.atmos-chem-phys.net/18/11623/2018/, 2018.

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.

CHAPITRE

VII

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 Introdution **129**
VII.3 Material and method **130**
VII.3.1 CHIMERE CTM 130
VII.3.2 Anthopogenic and biogenic aerosols modeling 130
VII.3.3 Mineral dust aerosol modeling 130
VII.3.4 AOD data set and their use for model evaluation comparison methods . . 131
VII.3.5 Method to determine dust origins in cities 131
VII.3.6 Surface measurements data set and comparison methods 132
VII.3.7 Motivations to focus on Beijing, Chengdu and Shanghai 132
VII.4 Results and discussion **132**
VII.4.1 Dust emissions and evaluation 132
VII.4.2 Dust contribution to urban Chinese particle pollution 134
VII.5 Conclusion **139**

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, d'importants déserts sont présents en Chine associés à de fortes émissions de poussières désertiques dans l'atmosphère. Cette source naturelle peut impacter les concentrations de particules observées dans les zones fortement peuplées, et de ce fait, doit être documentée pour établir des politiques efficaces de réduction de la pollution. Dans cet article, le modèle CHIMERE est utilisé pour représenter les émissions de poussières minérales désertiques 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 simulées est de 283 $Mt.yr^{-1}$, une valeur en accord avec celles produites par d'autres récentes études [i.e. 293 $Mt.yr^{-1}$, Huneeus 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 donc 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 1ère populations des aires urbaines chinoises. Les comparaisons journalières [données du modèle filtrées selon la disponibilité des données de mesures] des $PM_{2.5}$ 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 $PM_{2.5}$ 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 $PM_{2.5}$ 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 apparait que les aérosols désertiques ne participent pas significativement plus aux évènements de pollution [en considérant les 25 % journaliers les plus pollués] 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 évènements les plus importantes étant principalement contrôlés par la pollution d'origine anthropique. Cependant, en considérant l'unique saison du printemps, il apparait que les « dust » pilotent de façon plus significative les évènements 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 apparait 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 %, 53 % et 43 % des évènements respectivement pour Pékin, Chengdu et Shanghai.

L'article sera prochainement soumis sur la revue ACP.

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

Mathieu Lachatre[1], Matthias Beekmann[1], Juan Cuesta[1], Gaëlle Dufour[1], Gilles Forêt[1], Benoit Laurent[1], Fan Meng[2], Guillaume Siour[1], and Wei Tang[2]

[1]Laboratoire Inter-Universitaire des Systèmes Atmosphériques [LISA], UMR CNRS 7583, Université Paris Est Créteil et Université Paris Diderot, Institut Pierre Simon Laplace, Créteil, France
[2]Chinese Research Academy of Environmental Sciences Atmospheric Environment Institute

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

Abstract. Air pollution in Chinese megacities has reached extremely hazardous levels. Human activities are responsible for the emission or production of large amounts of particulate matter [PM] [Lv et al., 2016]. 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 attempt to model dust emissions and analyse the degradation of air quality by mineral dust over Beijing, Chengdu and Shanghai megacities using the chemistry transport model CHIMERE. In the first part of our work, we evaluate dust emissions using MODIS satellite observations of aerosol optical depth over source areas. PM simulation is also evaluated compared to surface monitoring stations. Then, mineral dust emissions and their impacts on particle composition of several Chinese megacities are analysed.. Dust emission and transport over Asia are simulated during three years [2011, 2013 and 2015]. The annual mean dust emission is 283 Mt.y^{-1}, with maxima occurring during spring season each year [about 50 % of annual total emissions]. Dust contributions to the PM_{10} budget over Beijing, Chengdu and Shanghai have been evaluated respectively to 6.6 %, 9.5 % and 9.3 %. Dust outbreaks largely contribute to numerous events of poor air quality during springtime, but this aspect is less notable on a annual basis as compared to anthropogenic PM pollution.

1 Introduction

Chinese urban and regional pollution is a major health problem, reaching hazardous level during haze pollution events [Huang et al., 2014]. People's Republic of China has seen its population exposed to increasing pollution levels between 2000 and 2010. This led to growth in health effects, as premature mortality went up from 0.9 million in 2000 to more than 1.2 million in 2010 [Xie et al., 2016], while population increased only by 6 % in the same time. China has observed an important growth in several economic sectors such as traffic [From 24 M vehicles in 2003 to 78 M vehicles in 2010 Wang et al., 2011], energy production [Increase of 250 % between 2000 and 2010. Liu et al., 2013], construction and others sectors. On the other hand, China presents large arid areas, as the Taklimakan desert [270×10^3 km^2], or the Gobi desert [1.3×10^6 km^2]. As a result, Chinese air pollution is a mix of various pollutants that come from a multitude of sources that will differently affect Chinese cities depending on their locations, seasons and meteorological situations.

Mineral dust aerosol represents about 40 % of total aerosol mass emitted each year into the atmosphere [IPCC, 2011]. Global dust emission estimates range from 1000 Mt.y^{-1} to 2150 Mt.y^{-1} [Zender et al., 2004], a recent study compiling several models estimates a global emissions median value up to 1572 Mt.y^{-1} [Huneeus et al., 2011]. It is thus the most important aerosol component in term of mass for the global atmosphere. It is characterized by a very high spatial and temporal variability, due to specifity of emission processes and associated to particular meteorological conditions like surface wind speed or rainfall, impacting emissions and transport. A previous study [Laurent et al., 2006] has estimated the Asian desert dust emissions as 240 Mt.y^{-1} [+/- 130 Mt.y^{-1}] in contributing between 10 to 25 % to global dust emissions. Mineral dust lifetime in the atmosphere can vary from few hours to several days, [Ginoux et al.,

2001; Mahowald et al., 1999] depending on meteorological conditions, and mineral dust particles can impact Chinese cities' air quality. A one-year study from Yang et al. [2005] for 2000, measured dust in $PM_{2.5}$ year average of about 13 µg.m^{-3} in Beijing and 7 µg.m^{-3} in Shanghai [corresponding to about 12 % of $PM_{2.5}$ in both cities]. It shows high variabilities in observations depending on seasons, mineral dust presenting higher impacts in spring season, with dust content maximum daily average reaching 40 µg.m^{-3} in Beijing and 30 µg.m^{-3} in Shanghai. In this work, we have simulated mineral dust aerosols emissions from Asian deserts and their transport onto Chinese territory to study their impact on Chinese cities PM levels as compared to anthropogenic pollutions. Three years are simulated [2011, 2013 and 2015] to study inter-annual variability and seasonal variations. In this study we first have evaluated the model dust emissions quality, using satellite AOD over source regions, then, we evaluate the regional PM modelling with in situ measurements, and finally investigate dust global impact onto cities pollution and dust contribution to pollution events.

In this paper, first are described the CHIMERE model and observation set, then dust emissions are presented and evaluated. After this, PM modelling for several Chinese cities is evaluated, to finally present dust contributions to their air quality with a special focus on pollution events.

2 Material and method

2.1 CHIMERE CTM

In this work, we use the 3D regional chemistry transport model CHIMERE [2014b version; Menut et al., 2013; Mailler et al., 2017] run over a 0.25° × 0.25° 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]. The domain is composed by 290 [longitude] × 150 [latitude] grid cells and 17 vertical layers, from the ground to 200 hPa. Vertical layer thicknesses are increasing with altitude, 8 layers lie between the first 2 km of altitude. Meteorological forcing is generated by ECMWF meteorological forecasts [Owens and Hewson, 2018].

In CHIMERE, aerosols are distributed in a 10 size-classes [also known as bins] distribution, from 0.05 µm to 40 µm. 6 are dedicated to $PM_{2.5}$ description, 2 classes to describe PM between 2.5 µm and 10 µm, and finally 2 to describe PM coarser than 10 µm.

2.2 Anthopogenic and biogenic aerosols modeling

EDGAR-HTAP V2.2 emission inventories [Janssens-Maenhout et al., 2015] based on 2010 are used to generate the anthropogenic emissions [gaseous species and particulate matter]. Biogenic emissions are generated by the MEGAN-v2 model [Guenther et al., 2012]. Climatological boundary and initial conditions for dust are obtained from the GOCART global model [Ginoux et al., 2001] and from the LMDZ-INCA global model for others species [Hauglustaine et al., 2004; Hourdin et al., 2006].

Composition and phase state of inorganic aerosol is tabulated by using the ISORROPIA V2006 module [Nenes et al., 1998]. It calculates the partitioning of $NH_{3(g)}$ / $NH^+_{4(p)}$ and $HNO_{3(g)}$ / $NO^-_{3(p)}$ from gaseous precursors content [H_2SO_4, HNO_3, NH_3], including $H_2SO_{4(p)}$ / $HSO^-_{4(p)}$ / $SO^{2-}_{4(p)}$ and meteorological conditions [temperature, relative humidity]. Organic species gas-phase chemistry is decribed with reduced MELCHIOR2 mechanism [Derognat et al., 2003], and equilibrium for organic species between gas and particle phase is calculated using Pankow [1994]; Kaupp and Umlauf [1992].

In this study, PM chemical speciation is divided in 8 different species: Dust, $NH^+_{4(p)}$ [ammonium], SO^{2-}_4 [sulphate], $NO^-_{3(p)}$ [nitrate], PPM [anthropogenic Primary Particulate Matter], BC [Black Carbon], OM [primary and secondary Organic Matter, from biogenic and anthropogenic sources] and SALT [sea salt].

2.3 Mineral dust aerosol modeling

Mineral dust emissions are a threshold phenomenon, which occurs when wind friction force exercised on soil particle aggregates is higher than forces maintaining aggregates on the ground. When threshold wind friction velocity is exceeded, the wind kinetic energy will mobilize soil aggregates into a horizontal flux, in 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 Laurent et al. [2006] for China. Saltation fluxes are defined in Menut et al. [2005] 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 $g = 9.8\,\mathrm{m.s^{-2}}$.

The sandblasting process and vertical emission fluxes are calculated in CHIMERE from a parameterization by Alfaro and Gomes [2001], which calculates the emission fluxes for a given aerosol size distribution, following the Equation 2 [Menut et al., 2005]:

Table 1. Mineral dust emissions from the different source regions, annual average calculated from 2011, 2013 ad 2015 simulations

Areas	Mean emissions [Mt.y^{-1}] / Contribution	Standard dev. [Mt]	Emis / Surf [10^{-3}t.km^{-2}]	% of mass emitted in 5 % strongest days	% of mass emitted in 20 % strongest days
Taklimakan desert	198.0 Mt / 69.9 %	14.6 Mt	135	62 %	94 %
Mongolian Gobi desert	65.2 Mt / 23.0 %	7.2 Mt	50	53 %	90 %
Northern China desert	18.5 Mt / 6.5 %	6.4 Mt	71	82 %	99 %
Total domain	283 Mt	27.8 Mt	-	54 %	87 %

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

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 have incorporated an optimization of emissions modelling, by adding a criteria on meteorological conditions. When the precipitation rate is greater than 0.01 kg.m^{-2}.h^{-1}, we assume an increase of biding energies in the soil that will inhibit the dust emissions for the next two hours. In addition, the dust emission size distribution has been changed for sandy deserts [Taklimakan and Northern China deserts] so that they emit more aerosol in a medium mode [between 2.5 µm and 10 µm].

In our study, simulations are performed for 2011, 2013 and 2015, when numerous dust events have been observed. this allows to study inter annual variability of dust emissions.

2.4 AOD data set and its use for model evaluation

Satellite based information from the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer [MODIS] instrument, based on NASA' Terra satellite, has been used to constrain simulated dust emissions. The MODIS instrument provides a global sampling of the Earth once a day, passing around 10:30 AM at local time. It provides information on atmospheric column content as a combined Dark Target and Deep Blue 550nm Aerosol Optical Depth [AOD] product, on a 1°×1° resolution grid.

We first focused on dust emissions areas, to evaluate the simulated emissions. We verified that modifications on dust emission inhibition by rainfall have positively influenced correspondences between MODIS AOD observations and CHIMERE computed AOD over the Chinese deserts. It has been considered that for the 4 arid sub regions, 550 nm AOD [from MODIS and CHIMERE] would be mostly controlled by mineral dust, as mineral dust emissions represent more than 90 % of total emissions mass for all of 4 sub regions.

The large dust emitting areas have been devided 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 Chineses deserts [Northern China desert, Ulan Buh desert, Qubqi desert, Mu Us sandy land], and is called hereafter Northern China desert. This separation of arid areas into smaller areas is necessary because of their heterogeneity [based on emissions frequencies], which complicate comparison of these large areas with observations. The delimited sub-regions contain most of dust emission, in our case, ∼98 % of total dust emissions in our domain. The sub regions are different with respect to their emissions/surface ratio [Table 1]. Taklimakan is the main dust source region with 1 460×10^3 km^2. The Northern China desert region is the smallest area [260×10^3 km^2], but is located closer to China East coast, and then to densely populated areas. The Mongolian Gobi desert is the largest area [1 630×10^3 km^2], but is split into two areas, the Gurban Tunggut desert [211×10^3 km^2] [Called Gurban desert hereafter] and the main part of the Mongolian Gobi desert [1 104×10^3 km^2]. It has been necessary to split up the Mongolian Gobi Desert, as the temporality in dust emissions for the considered sub domains is distinct.

The AERONET network [AErosol RObotic NETwork, aeronet.gsfc.nasa.gov last consulted 09/302018] distributes observations of AOD for several wavelength, and Ångström coefficients, with a 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 caracterized by lower Ångström coefficients and vice-versa. A value below 0.4 characterizes coarse particles such as dust.

2.5 Method to determine dust origins in cities

To determine the contribution of each area to dust load in target cities, we have successively inhibited dust emissions from the various arid areas [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 simulations

computed while inhibiting arid areas emissions, i pixel locations and t timestep. Simulations have been performed inhibiting areas at a time, and and additional simulation has been conducted while removing dust coming from outside the domain [i.e boundary conditions] to evaluate their impact. This method will lead to some error indeposition process modelling, because deposition processes are non linear and depend on interactions between particles [including dust particles from different deserts]. The resulting underestimation for the dust contribution of 9 % for Beijing, 8 % for Chengdu and 13 % for Shanghai and is considered as still acceptable.

2.6 Surface measurements data set and comparison methods

CHIMERE PM modelling in populated areas is also evaluated against $PM_{2.5}$ and PM_{10} measurements from background stations close to cities, during spring periods and full years. We first want to assure that CHIMERE correctly models particulate pollution levels and variability in populated areas of select cities in which PM comparisons are the best.

A comparison between model and measurements was performed from $PM_{2.5}$ and PM_{10} spring season hourly measurements from Chinese monitoring stations, for 2013 [March-April] and 2015 [March-April-May]. We have focused our comparisons on these periods, because of the availability of data and because the dust impact was expected to be the strongest in spring. Data are from 40 stations, located in 25 cities.

We also used data from U.S. Embassy and consulates over 3 cities [e.g., in Beijing, Chengdu and Shanghai] to evaluate the $PM_{2.5}$ correspondences over a larger period [2011, 2013 and 2015].

We first have used a method to evaluate monitoring stations representativeness, from Flemming et al. [2005] which uses relative diurnal variability of SO_2 or O_3, in order to evaluate if the considered stations are representative of rural, suburban, urban or traffic environment. Results suggest that 35 stations were located in a rural environment, 3 were located in a suburban environment and 2 stations were located in an urban environnement. The 2 stations located in an urban environment have been removed from comparisons. Doing so, our dataset has been reduced to 38 stations located in 24 cities.

Model versus measurements comparisons have been conducted on an hourly basis, sampling model output depending on measurements' availability. Simulated model concentrations are bi-linearly interpolated at stations' coordinates. We have conducted comparisons over the spring period due to data availability and because dust emissions are expected to be higher during this season.

Longer measurements versus model comparisons have been conducted over 3 cities [Beijing, Chengdu and Shanghai] using US embassy and consulates data, for 2011, 2013 and 2015. It has to be noted that 2011 measurements are available only for Beijing. Comparison methods applied are the same as 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 RMSE and correlation mean are presented in Tables 3 and 4 for spring seasons in 2011, 2013 and 2015 and in Figure B1 and B2.

2.7 Motivations to focus on Beijing, Chengdu and Shanghai

Beijing, Chengdu and Shanghai are respectively the 2nd, 6th and 1st most populated cities in China, with 22.5, 14.5 and 24.5 millions of inhabitants. These 3 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]. This induces different exposure to mineral dust pollution from sources mainly located in Western and Northern China [Cities location displayed on Figure 2].

3 Results and discussion

3.1 Dust emissions and evaluation

3.1.1 Mineral dust emissions and seasonality

Dust emissions for each desert areas are displayed in Table 1 and Figure 1a. The Taklimakan is the main dust source region with 198 $Mt.y^{-1}$ emissions, and presents a high emissions/surface ratio [135×10^{-3} $t.km^{-2}$]. We simulate 18.5 $Mt.y^{-1}$ dust emissions from The Northern China Desert [71×10^{-3} $t.km^{-2}$]. From the Mongolian Gobi desert 65.2 $Mt.y^{-1}$ have been emitted [50×10^{-3} $t.km^{-2}$]. On average, total emissions reach about 283 $Mt.y^{-1}$, 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 Huneeus et al. [2011], who indicate a median value of 294 $Mt.y^{-1}$ for Asia, obtained from an ensemble with 15 models. About 18 % of dust emissions are distributed into $PM_{2.5}$, 60 % are distributed into the coarse fraction of PM_{10} excluding $PM_{2.5}$, finally, 22 % are distributed into a PM fraction with a diameter larger 10 µm. 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.

The standard deviation of annual dust emissions equals 27.8 Mt, which corresponds to about 10 % of annual mean emissions. Mean spring emissions for the 3 selected years are 145 Mt, slightly higher than in Hou [2006] with 120 Mt [1960– 2003 average], and lower than in Laurent et al. [2006] and Tan et al. [2017], with values respectively of 182 Mt

[1996 – 2001 average] and 2013 Mt [2006 and 2010 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 Laurent et al. [2006]. For our simulation domain, total dust emissions are consequently higher than anthropogenic emissions in CHIMERE, such as SO_2, NO_X, NH_3, butane or black carbon, of respectively 27.4 Mt.y^{-1}, 18.2 Mt.y^{-1}, 8.3 Mt.y^{-1}, 13.8 Mt.y^{-1} and 1.8 Mt.y^{-1}.

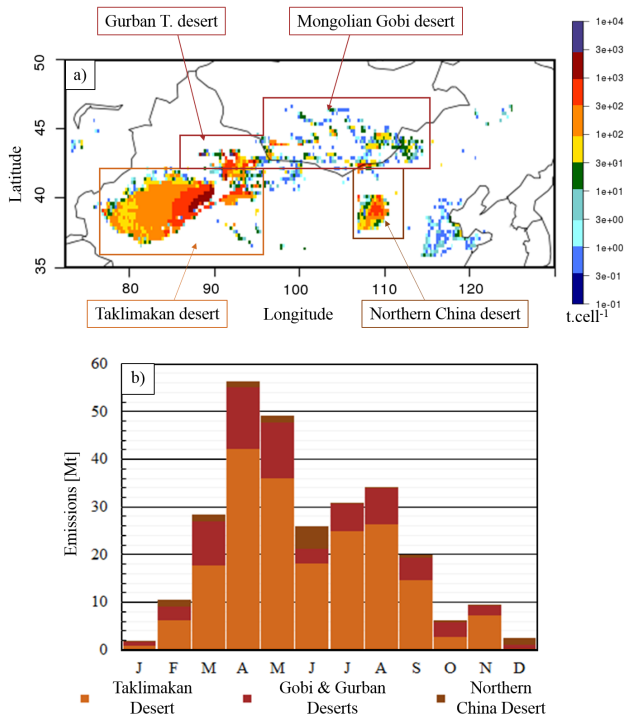

Figure 1. a) Mean annual dust emissions from the main arid areas in Asia, simulated with CHIMERE for 2011, 2013 and 2015, in t.cell^{-1} b) Monthly emissions for the main arid areas in Mt.

Figure 2 presents dust related AOD over China [from ground to 200hPa], for each season and, calculated from an 2011, 2013 and 2015 average. The largest dust$_{AOD}$ values near emissions areas occur during spring, and are efficiently transported over China and overseas [Figure 2b]. During summer season [Figure 2c] 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, dust emissions modelled are low, and thus dust related AODs are low over emissions areas.

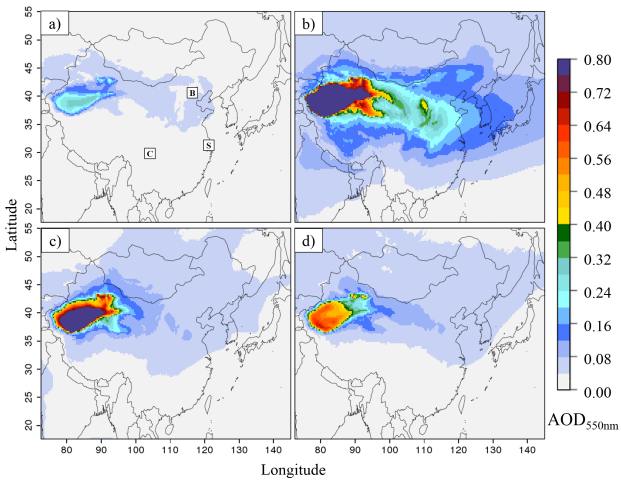

Figure 2. CHIMERE dust$_{AOD}$ over China for the 4 seasons, a) winter, b) spring, c) summer and d) fall. 2011, 2013 and 2015 average. Beijing (B), Chengdu (C) and Shanghai (S) locations are presented on Figure 2a.

3.1.2 CHIMERE AOD evaluation in dust emission source areas

Comparisons of CHIMERE AOD against MODIS AOD are gathered in Table 2, left part of the table shows spatial correspondences and right part the temporal correspondences. We proceed to a spatial comparison over the different areas for 2011, 2013 and 2015, filtering model data depending on MODIS data availability. Daily comparisons have also been conducted, calculating mean daily AOD for each sub domain with MODIS and CHIMERE outputs, still sampling CHIMERE data on available MODIS pixels. A daily subdomain average has been accepted if at least 40 % of data were available. Statistical information has been calculated on time series [Bias(%), RMSE(%) and Pearson correlation coefficient (r)] to estimate correspondences between model and satellite observations.

Figure 3 represents the 550 nm AOD spatial distributions in a 1° × 1° resolution for 2011, 2013 and 2015, as measured by the MODIS instrument and modelled by CHIMERE. 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 area, where AOD is overestimated [$bias = +50\%$].

Indeed, CHIMERE AOD mainly overestimates MODIS AOD for the 2 most dust emitting areas, but a good daily cor-

relation 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.

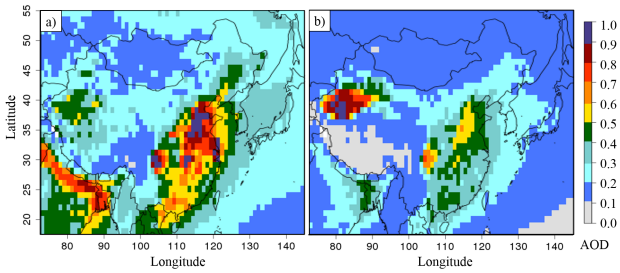

Figure 3. 550 nm AOD spatial distribution to 1° × 1° resolution for 2011, 2013 and 2015. a) MODIS observations b) CHIMERE simulations.

3.2 Dust contribution to urban Chinese particle pollution

3.2.1 Evaluation of PM concentration modelling

CHIMERE simulation results compared to measurements for PM_{10} and $PM_{2.5}$ during 2013 and 2015 springs are displayed in Figure B1 [appendix] and Table 3. Model evaluation with surface measurements is necessary to quantify model skills and limits. As China is a very large country with various pollution sources, evaluation of surface concentrations also provides information to determine which cities present lower uncertainties to evaluate impact of dust on PM pollution. Figure B1 a-d show that for spring period, 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, normalized RMSE is smaller than over northern areas [Figure B1 b-e]. The $PM_{2.5}$ daily variation is better represented than PM_{10}, with higher Pearson correlation coefficents [Figure B1 c-f].

Normalized mean bias, RMSE and correlation are presented in Table 3, for three selected cities and for all stations. "All stations" rows, considering data availability for each stations to calculate mean values. Normalized mean errors have also been calculated for $PM_{2.5}$ and PM_{10}, estimated respectively to 21 % and 31 %. Boylan and Russell [2006] suggest to evaluate PM modelling performances based on mean fractional bias and error statistical indicators, expressed as in Equation 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 station for the considered time period. Boylan and Russell [2006] suggest that model performances for PM is fairly good for the considered period if MFB is lower than 0.3 and MFE lower than 0.5. Both criteria are met for $PM_{2.5}$[-0.002 and 14] and PM_{10}[-0.21 and 0.24] for MFB and MFE respectively.

We then evaluated $PM_{2.5}$ over 2011, 2013 and 2015 for these 3 cities, from US embassy data. CHIMERE vs US embassy $PM_{2.5}$ comparisons results for 2011, 2013 and 2015 are shown in Table 4 and daily time series for Beijing, Chengdu and Shanghai are displayed in Figure B2. 2011 measurements are available only for the Beijing station. Annual mean measurement highest value is found in Beijing [92.2 µg.m^{-3}], and the lowest in Shanghai [55.3 µg.m^{-3}]. $PM_{2.5}$ measurements show for all of the 3 stations a seasonal cycle, with highest pollution levels in winter and lowest pollution levels in summer. It has been observed on 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. Daily variation is correctly represented in CHIMERE with Pearson correlation coefficients of 0.75, 0.72 and 0.76 in Beijing, Chengdu and Shanghai respectively. CHIMERE $PM_{2.5}$ 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 with 2010 based inventories [Lachatre et al., 2018, submitted]. CHIMERE also satisfies $PM_{2.5}$ modelling performance suggested by Boylan and Russell [2006], with a MFB and MFE of 0.19 for the 3 stations for the considered period.

In appendix Figure B3 presents the normalized Taylor diagram gathering all PM comparisons. Standard deviation and RMSE values are normalized with measurements standard deviations[σ_{ref}]. From Figure B3 we can visually identify Beijing and Shanghai as the stations where the PM concentrations simulated by the CHIMERE model are the most consistent with measurements. modelled $PM_{2.5}$ for Chengdu is overestimated [+52 %] while bias of PM_{10} is -10 %. PM_{10} and $PM_{2.5}$ present a satisfaying time correlaton [0.69 for both].

Table 2. Spatial [left] and temporal [right] correspondences between MODIS 550 nm AOD and CHIMERE 550 nm AOD, for 2011, 2013 and 2015 over main arid areas. n [left] indicates number of $1^\circ \times 1^\circ$ cells and n [right] indicates number of daily mean value for sub domain.

Areas	Bias [%]	NRMSE[%]	r	n	Bias [%]	NRMSE[%]	r	n
Taklimakan desert	41 %	93 %	0.66	126	50 %	159 %	0.74	1014
Mongolian Gobi desert	–31 %	36 %	0.42	92	–31 %	60 %	0.51	897
Gurban desert	66 %	83 %	0.44	18	64 %	161 %	0.54	937
Northern China desert	–9 %	27 %	0.48	30	–10 %	–65 %	0.66	862

Table 3. CHIMERE Model PM_{10} 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}	+5 %	47 %	0.69	2704
All stations PM_{10}		–26 %	85 %	0.38	70722
Beijing $PM_{2.5}$	77.3 µg.m^{-3}	–6 %	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
All stations $PM_{2.5}$		0 %	74 %	0.48	76502

but both $PM_{2.5}$ and present satisfying time correlation and better modelling of PM_{10}, with a –10 % bias.

3.2.2 Dust contribution to cities' air pollution and dust origin

Figure 4 shows the monthly variability of dust contributions to PM_{10} in 3 Chinese cities, Beijing, Chengdu and Shanghai. The specific desert are dust is originating from is also displayed on Figure 4.

It can be observed for the 3 cities, that highest PM_{10} are reached during winter, and lowest during spring [for Beijing] or summer [Shanghai and Chengdu]. PM_{10} concentration amplitudes are smaller for Shanghai, ranging from 60 µg.m^{-3} to 160 µg.m^{-3} than for Beijing and Chengdu, about between 90 µg.m^{-3} to 250 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, air dispersion 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 PM_{10} 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 PM_{10} for Beijing, Chengdu and Shanghai of 18.9 %, 24.1 % and 18.3 % respectively]. Tao et al. [2013] using source apportionment for spring 2009 calculated 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 PM_{10}]. For all cities, a smaller contribution of dust during fall and almost no contribution during winter and summer are simulated. As little emissions are observed during winter from desert areas [5 % of annual total], it was expected to have limited contribution to PM_{10} 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 2 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, 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 the 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 also found into CHIMERE simulations, with Ångström equal to 0.91 during spring and Ångström equal to 1.32 for winter.

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

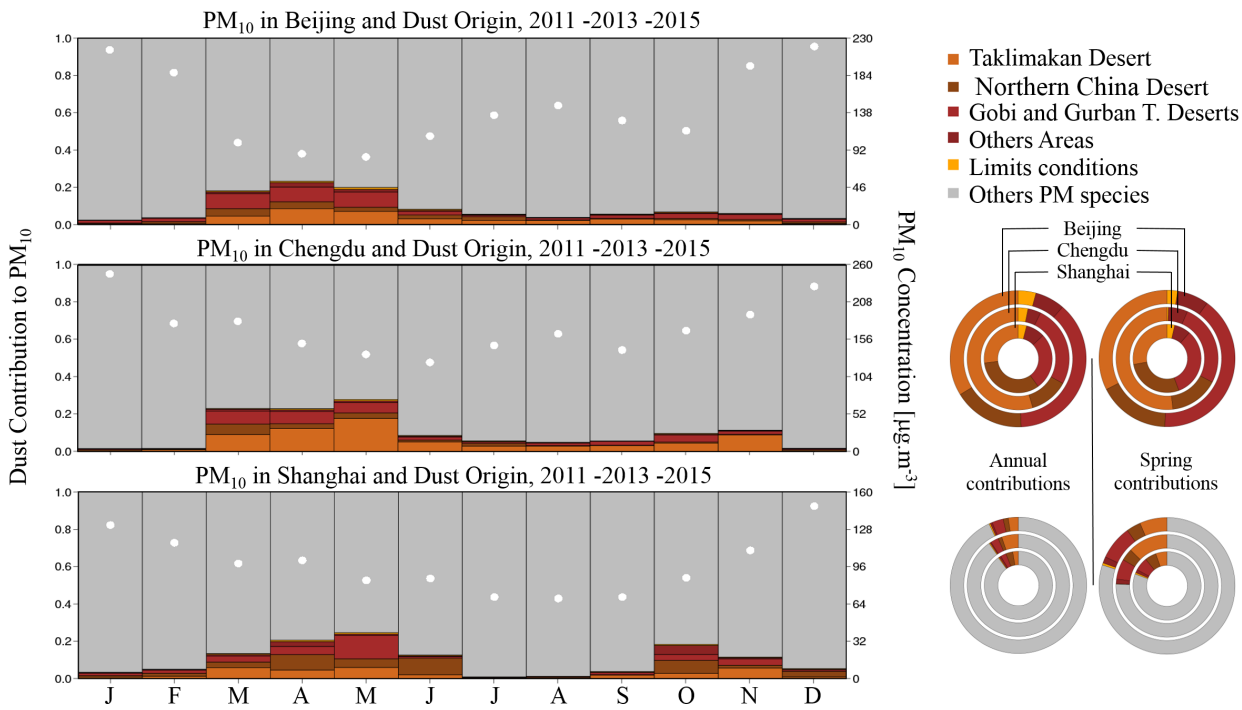

Figure 4. Dust contribution to PM_{10} pollution in Beijing, Chengdu and Shanghai - Monthly variation calculated from 2011, 2013 and 2015 simulations. Ring plots show annual and spring contributors to PM_{10} [bottom] and dust origin area [up] for the 3 cities. White dots variations in monthly PM_{10} concentrations for the 3 cities.

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.

Table 5 presents the CHIMERE simulated PM_{10} composition in Beijing, Chengdu and Shanghai. For the 3 cities, the main contributor is anthropogenic primary matter [PPM]. Nitrates [$NO^{-}_{3(p)}$] are second highest contributor, in Beijing and Shanghai, and 4th in Chengdu. In the 3 cities, ammonium [$NH^{+}_{4(p)}$] contributions are similar, but acid-base balances for nitrates and sulphate [$SO^{2-}_{4(p)}$] are different for Chengdu, compared to Shanghai and Beijing, with more 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 PM_{10}. BC in the three cities correspond to around 6 % of PM_{10} pollution. In addition, sea salt presents a little contribution of 3.3 % to Shanghai PM_{10}. It can be noted that evaluating particles components in CHIMERE over China would be of great interrest but it is beyond the scope of this paper.As a consequence, the previous analysis has to be considered as a preliminary quantitative analysis.

Table 5. CHIMERE Model PM_{10} annual composition for Bejing, Chengdu and Shanghai. $NH^{+}_{4(p)}$ represents ammonium, $SO^{2-}_{4(p)}$ represents sulphate, $NO^{-}_{3(p)}$ represents nitrate, PPM represents anthopogenic primary particulate matter; BC represents black carbon matter and OM represents sum of organic aerosols.

Cities	Dust	$NH^{+}_{4(p)}$	$SO^{2-}_{4(p)}$	$NO^{-}_{3(p)}$	PPM	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 %

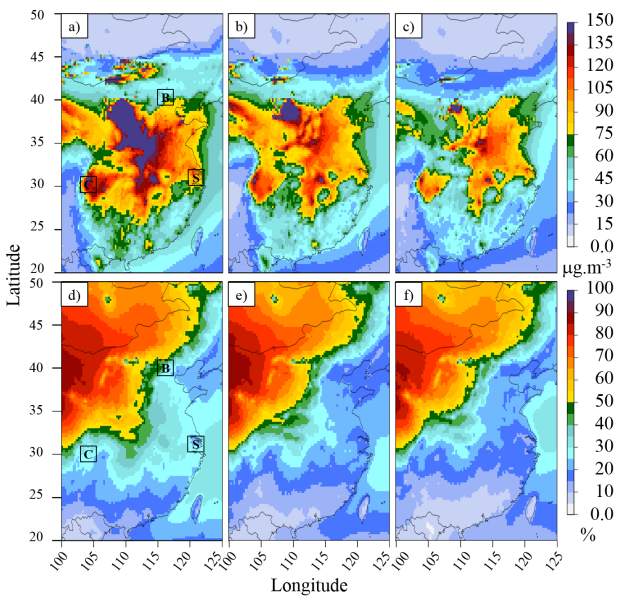

Figure 5. PM_{10} simulated surface concentration for year a) 2011, b) 2013, c) 2015 and simulated dust fraction for year d) 2011, e) 2013 and f) 2015.

Figure 5 presents PM_{10} and respective dust contributions for 2011, 2013 and 2015 spring seasons to PM_{10}. 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 that absolute PM_{10}values also decrease between 2011 and 2015, indicating the evolution of the anthropogenic contribution.

3.2.3 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 3 cities, which rank it as one of lowest contributors to PM_{10} pollution in our simulations, as it has been also observed in Table 5, 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 3 cities, the highest daily concentration for PM_{10} components is due to dust [i.e. reaching 400 µg.m^{-3}, 540 µg.m^{-3} and 350 µg.m^{-3} respectively for Beijing, Chengdu and Shanghai]. This particular aspect follows dust emissions dynamics, very localized in time, and responsible of very strong pollution events, it is then judicious to focus on dust contribution to PM pollution events in cities.

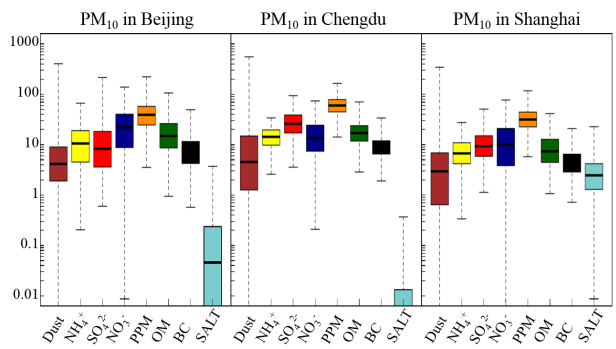

Figure 6. Boxplot distribution for simulated daily concentrations of PM_{10} contributants a) Beijing b) Chengdu and c) Shanghai.

3.2.4 Dust contribution during high pollution episodes

From Figure 7 and also Table 6 it can be observed for the whole 2011, 2013 and 2015 three year period, that mineral

Table 6. Fraction of days when the dust contributions to daily PM_{25} or PM_{10} are at least 25 %. These values have been 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_{25} and PM_{10} 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 PM_{10} 75 % percentiles. They are threshold values, above which a day is considered as one of the 25 % most polluted days.

Cities and species	$P_{75,Year}$ / $P_{75,Spring}$ [µg.m^{-3}]	[Year] Frac. of days with dust contrib. > 25 %	[Year]$_{polluted\,days}$ Frac. of days with dust contrib. > 25 %	[Spring] Frac. of days with dust contrib. > 25 %	[Spring]$_{polluted\,days}$ Frac. of days with dust contrib. > 25 %
Beijing $PM_{2.5}$	144 / 97	0.02	0.02	0.08	0.09
Beijing PM_{10}	185 / 123	0.07	0.04	0.18	0.22
Chengdu $PM_{2.5}$	150 / 128	0.04	0.05	0.11	0.19
Chengdu PM_{10}	206 / 183	0.11	0.14	0.31	0.52
Shanghai $PM_{2.5}$	94 / 84	0.03	0.06	0.05	0.14
Shanghai PM_{10}	122 / 112	0.08	0.15	0.19	0.43

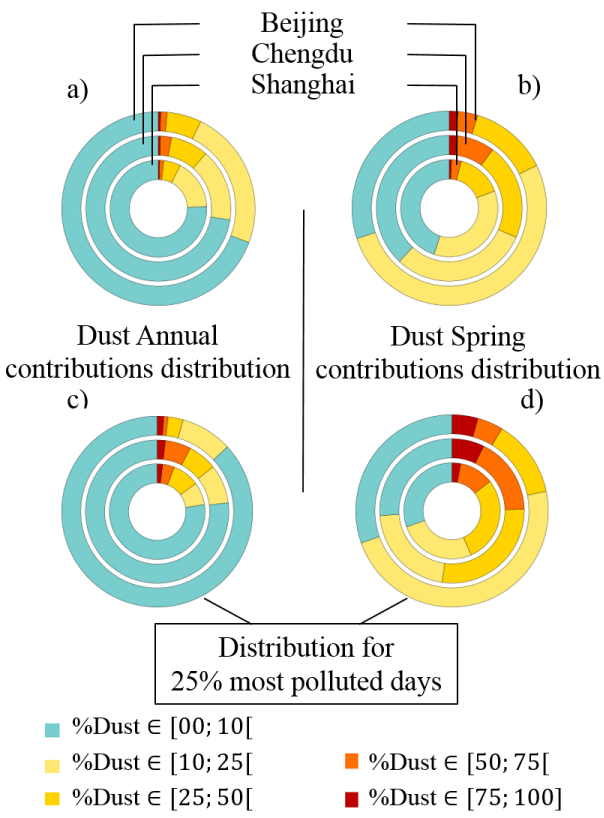

Figure 7. a) percentage of days when dust contributes between 0 – 10, 10 – 25, 25 – 50, 50 – 75, and 75 – 100 % to daily PM_{10} averages, b) same as a), but for spring only c) Same as a, but for the 25 % of most polluted days only [in terms of PM_{10} level] d) Same as for c), but for spring only.

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

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 while selecting the 25 % most polluted PM_{10} days. During spring, PM_{10} 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 will also be implied to $PM_{2.5}$ events [Fraction of 9 % for Beijing, 19 % for Chengdu and 14 % for Shanghai].

Additional information from the AERONET station located in Beijing shows that the fraction of days with Ångström coefficients below 0.4 [which characterises a dominant dust contribution to the PM column] is nearly a factor 2 smaller for spring than for the whole 2011, 2013 and 2015 [Figure C1]. The same increase is observed from simulated Ångström coefficients. For the 25 % of days with the largest AOD values, the Beijing AERONET station shows 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 Conclusion

In this study, we aimed at evaluating the impact of mineral dust to air quality and PM pollution in Chinese megacities. Modelled dust emissions average 283 Mt.y^{-1}, with about 70 % emitted from Taklimakan area, 23 % emitted from the Gobi desert and 6.5 % emitted from Nothern China desert. MODIS information has been 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' pollutions. It has been chosen to focus on Beijing, Chengdu and Shangai, because of their population and geographical locations. Then, we have estimated the degradation due to dust on cities air pollution: we found global contributions of 10 µg.m^{-3} [6.6 %], 17 µg.m^{-3} [9.5 %] and 9 µg.m^{-3} [9.3 %] to PM_{10} in Beijing, Chengdu and Shanghai respectively. In addition, the dust contribution is highly seasonnally dependent, with highest contributions during spring, when contributions to PM_{10} reach 22 µg.m^{-3} [18.9 %], 37.0 µg.m^{-3} [24.1 %] and 12 µg.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. Moreover, it has been found that dust is often a main contributor [dust contribution larger than 25 %] during PM_{10} 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 strongly polluted events is smaller, especially during winter, when particulate matter pollution mostly originates from anthropogenic sources.

Authors contributions

M.L. 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. M.L. prepared the manuscript and all authors contributed to the text, interpretation of the results and reviewed the manuscript.

Acknowledgements. M. Lachatre was funded by the Université Pierre et Marie Curie, l'Ecole Doctorale des Sciences de l'Environnement d'Ile de France [ED129] and 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. We acknowledge the free use of MODIS AOD data from the Terra from [https://terra.nasa.gov/, last consulted 09/25/2018]. 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 PM_{10} surface concentrations data. We also acknowledge the NASA's AERONET network.

References

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.

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.

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, 108, https://doi.org/10.1029/2001JD001421, 2003.

Flemming, J., Stern, R., and Yamartino, R. J.: A new air quality regime classification scheme for O3, NO2, SO2and PM10 observations sites, Atmospheric Environment, 39, 6121–6129, https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.06.039, 2005.

Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B. adn Dubovik, O., and Lin, S.: Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, Journal of Geophysical Research : Atmospheres, 2001.

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.

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, n/a–n/a, https://doi.org/10.1029/2003JD003957, http://doi.wiley.com/10.1029/2003JD003957, 2004.

Hou, Z. J. Z.: A Simulated Climatology of Asian Dust Aerosol and Its Trans-Pacific Transport . Part I : Mean Climate and Validation, pp. 88–104, 2006.

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.

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., Zotter, P., Wolf, R., Pieber, S. M., and Bruns, E. A.: High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China, https://doi.org/10.1038/nature13774, 2014.

Huneeus, 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, https://www.atmos-chem-phys.net/11/7781/2011/, 2011.

IPCC: CLIMATE CHANGE 2011 the scientific basis :, 2011.

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.

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, 1992.

Lachatre, M., Fortems-Cheiney, A., Foret, G., Siour, G., Dufour, G., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Van Damme, M., and Beekmann, M.: The unintended consequence of SO_2 and NO_2 regulations over China: increase of ammonia levels and impact on $PM_{2.5}$ concentrations, Atmospheric Chemistry and Physic Discussion, 2018.

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.

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, http://dx.doi.org/10.1016/j.rser.2013.01.061, 2013.

Lv, B., Zhang, B., and Bai, Y.: A systematic analysis of PM2.5in Beijing and its sources from 2000 to 2012, Atmospheric Environment, 124, 98–108, https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.09.031, 2016.

Mahowald, N., Kohfeld, K., Hansson, M., Balkanski, Y., Harrison, S. P., Prentice, I. C., Schulz, M., and 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, Journal of Geophysical Research : Atmospheres, 1999.

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.

Marticorena, B. and Bergametti, G.: Modeling the atmospheric dust cycle: Design of a soil-derived dust emission scheme, 1995.

Menut, L., Schmechtig, C., and Marticorena, B.: Sensitivity of the Sandblasting Flux Calculations to the Soil Size Distribution Accuracy, pp. 1875–1884, 2005.

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, http://www.geosci-model-dev.net/6/981/2013/, 2013.

Nenes, A., Pilinis, C., and Pandis, S.: ISORROPIA: A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols, Aquatic Geochem, pp. 4:123–152, 1998.

Owens, R. G. and Hewson, T.: ECMWF Forecast User Guide, Reading, https://doi.org/10.21957/m1cs7h, https://software.ecmwf.int/wiki/display/FUG/Forecast+User+Guide, Replaces previous editions that were available as PDF documents. , 2018.

Pankow, J. F.: AN ABSORPTION MODEL OF GAS / PARTICLE PARTITIONING OF ORGANIC COMPOUNDS IN THE ATMOSPHERE, 28, 0–3, 1994.

Tan, S.-c., Li, J., Che, H., Chen, B., and Wang, H.: Transport of East Asian dust storms to the marginal seas of China and the southern North Paci fi c in spring 2010, Atmospheric Environment, 148, 316–328, https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.10.054, http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.10.054, 2017.

Tao, J., Zhang, L., Engling, G., Zhang, R., Yang, Y., and Cao, J.: Chemical composition of PM 2 . 5 in an urban environment in Chengdu , China : Importance of springtime dust storms and biomass burning, Atmospheric Research, 122, 270–283, https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2012.11.004, http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2012.11.004, 2013.

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, http://dx.doi.org/10.1016/j.enpol.2011.03.020, 2011.

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, https://doi.org/10.1016/j.envint.2016.09.003, 2016.

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, 343, 221–230, https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2004.10.017, 2005.

Zender, C., Miller, R., and Tegen, I.: Quantifying Mineral Dust Mass Budgets: Terminology, Constraints, and Current Estimates, Eos, pp. 509–512, 2004.

Appendix A: Statistical results from CHIMERE against MODIS 550AOD comparisons

Appendix B: Statistical results from CHIMERE against Measurements comparisons for PM

Appendix C: Daily Ångström coefficient distribution at Beijing station

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 μg.m^{-3} en 2017 contre 75 μg.m^{-3} en 2013 pour les $PM_{2.5}$] 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}, $PM_{2.5}$, 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 $PM_{2.5}$, 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 troposhériques 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'équivalents 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 pout 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 4ème 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 mix 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 apparait 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 est 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 *Structure et des propriétés de l'atmosphére.* 12
I.2 *Echelle de temps de mélange atmosphérique.* 13
I.3 *Diffusion spatiales de certains composés selon leurs temps de vie.* 14
I.4 *Variations diurne des vitesses de réactions de OH et HO_2.* 16
I.5 *Répartition des émissions de SO_2 par secteurs d'activités* 17
I.6 *Réactions et procédés mis en jeu dans le cycle de l'azote* 18
I.7 *Schéma de fonctionnalisation des NMVOC* 19
I.8 *Représentation schématique du cycle de formation de l'ozone* 20
I.9 *Distribution standard des aérosols en fonction de leur taille.* 22
I.10 *Schématisation des processus de saltation et de sandblasting.* 24
I.11 *Carte des régions sources d'aérosols désertiques.* 25
I.12 *Répartition entre la phase gaz et particulaire d'un composé dans l'air.* 28
I.13 *Variabilité des concentrations et de la distribution des PM_{10}.* 31
I.14 *Extinction du rayonnement solaire et réduction de la visibilité.* 32
I.15 *Variation de l'AOD en fonction de la longueur d'onde.* 33
I.16 *Bilan radiatif des principaux constituants de l'atmosphère.* 35
I.17 *Fraction d'aérosols déposée dans les différents organes du système respiratoire.* 36
I.18 *Rapport de la WHO* 37
I.19 *Coût sociétal de la pollution atmosphérique* 38

II.1 *Vue satellite de la Chine.* 42
II.2 *Évolution du GDP, du parc automobile et de la consommation d'énergie.* 45
II.3 Évolution du partage du GDP mondial entre les principales puissances. 46
II.4 *Evolution de la population chinoise* 48
II.5 Expansion urbaine de différentes villes chinoises 49
II.6 *Ratio entre les besoins en eau et les ressources en eau.* 50
II.7 *Echelle de calcul de l'AQI à partir des concentrations en $PM_{2.5}$* 54

III.1 *Evolution des émissions entre 2001 et 2015.* 57
III.2 *Distribution spatiale des émissions de SO_2.* 58
III.3 *Emissions d'ammoniac en Chine.* 59
III.4 Evolution relative des émissions de NO_2. 60

III.5 *Emissions de VOC en Chine.* 60
III.6 *Localisation des différentes sources de pollution en Chine.* 61
III.7 *Mesure de la composition de l'aérosol pour la fraction $PM_{2.5}$* 62
III.8 *Distributions des mesures de $PM_{2.5}$ en Chine.* 63
III.9 *Localisation des déserts d'Asie.* 64
III.10 *Distribution des émissions de BC en Chine.* 65
III.11 *Distribution spatiale et impact radiatif d'aérosols émis depuis la Chine.* 66

IV.1 *Localisation des différentes stations de mesures au sol.* 72
IV.2 *Le satellite AURA et l'instrument OMI.* 73
IV.3 *Incertitudes associées aux colonnes d'ammoniac IASI.* 74
IV.4 *Le modèle CHIMERE.* 79
IV.5 *Schéma de fonctionnement du solveur.* 80
IV.6 *Orographie en Chine.* 81
IV.7 *Influence des propriétésde surface.* 84
IV.8 *Distribution spatiale de la hauteur de rugosité de surface.* 86

V.1 *Nuages de points par centiles, données du CRAES* 94
V.2 *Comparaison des mesures journalières de $PM_{2.5}$.* 97
V.3 *Épaisseurs optiques MODIS et CHIMERE.* 99
V.4 *Nuage de points par centiles AOD.* 99
V.5 *Colonnes de dioxyde d'azote en Chine OMI et CHIMERE.* 101
V.6 *Nuage de points par centiles NO_2.* 101

VI.1 *IASI instrument NH_3 total columns over East China [110°E - 125°E; 20°N - 45°N].* . . . 109
VI.2 *EDGAR-HTAP-v2.2 emissions for the year 2010.* 110
VI.3 *Annual differences between HTAP inventories and corrected emissions from OMI.* . . . 111
VI.4 *Ammonia columns and changes for meteorological sensitivity test.* 113
VI.5 *Gaseous and particulate inorganic species variation for the East China region.* 113
VI.6 *Monthly variation of NH_3 compared to meteorological parameter changes* 115
VI.7 *Ammonia columns and changes for emission sensitivity test.* 115
VI.8 *Ammonium columns and changes for emission sensitivity test.* 116
VI.9 *Gaseous and particulate inorganic species variation for the East China region.* 116
VI.10 *Partial column Cations/Anions ratio and changes for emission sensitivity test.* 117
VI.11 *Evolution of NO_X, SO_2, NH_3 and HNO_3 tropospheric columns.* 119
VI.12 *Ammonia columns evolution for IASI [top] and CHIMERE.* 120

VII.1 *Mean annual dust emissions from the main arid areas in Asia, simulated with CHIMERE.* 133
VII.2 *CHIMERE dust AOD over China for the 4 seasons.* 133
VII.3 *550 nm AOD spatial correspondences between MODIS and CHIMERE AOD.* 134
VII.4 *Dust contribution to PM_{10}.* 136
VII.5 *CHIMERE surface PM_{10} and dust contribution.* 137
VII.6 *Boxplot distribution for PM_{10} contributant concentrations.* 137
VII.7 *Daily dust contribution to PM_{10} frequencies.* 138

A.1 *Photo de gardes rouges devant Tiananmen* IV
A.2 *Fresque historique simplifiée de la Chine* V
A.3 *Organigramme du PCC et PRC* VI

C.1 *Emissions monthly profile for East China from HTAP 2010.* XVI
C.2 *SO_2 and NO_X emission inventories comparison.* XVI
C.3 *SO_2 columns evolution from OMI satellite, from 2008 to 2016.* XVII
C.4 *NO_2 columns evolution from OMI satellite, from 2008 to 2016.* XVIII
C.5 *Annual mean temperature and changes – annual mean RH and changes.* XIX
C.6 *Annual rainfall frequencies and changes.* XIX
C.7 *Ammonia columns for the simulation 2013A and 2013C.* XX
C.8 *Inorganic PM [$NO^-_{3(p)}$ / $NH^+_{4(p)}$ / $SO^{2-}_{4(p)}$] columns content* XX
C.9 *Molar partitioning between gas and the particulate phases over East China.* XXI
C.10 *Annual G_{ratio} mean and changes.* XXI
C.11 *Annual $PM_{2.5}$[pSNA] columns and change.* XXI

E.1 *Poster* XXVIII
E.2 *Poster* XXIX

Liste des tableaux

I.1 *Humidité relative de déliquescence de différents électrolytes* 30

II.1 *Standards de qualité de l'air en Chine* 52
II.2 *Chronologies des implémentations des différentes réglementations.* 53

IV.1 *Classification des stations par la méthode Flemming et al. [2005].* 71
IV.2 *Émissions annuelles [Mt] issues de HTAP pour la sous-région de l'Est de la Chine.* . . . 78

V.1 *Résultats des comparaisons entre les mesures des polluants et les simulations* 93
V.2 *Résultats statistiques des comparaisons nuage de points* 95
V.3 *Résultats statistiques des comparaisons entre les mesures* $PM_{22.5}$ 96
V.4 *Comparaison des AOD AERONET et CHIMERE* 98
V.5 *Résultats statistique des comparaisons des AOD MODIS et CHIMERE.* 100
V.6 *Résultats statistique des comparaisons des colonnes de* NO_2 *OMI et CHIMERE.* 102

VI.1 *Annual budgets of the EDGAR-HTAP-v2.2 inventory and of emissions corrected.* 110
VI.2 *Description of the different experiments performed by CHIMERE.* 112
VI.3 *Daily* $PM_{2.5}$ *comparison between model and measurements.* 119

VII.1 *Mineral dust emissions from the different source regions.* 131
VII.2 *Spatial and temporal correspondences between MODIS and CHIMERE AOD.* 135
VII.3 *CHIMERE Model* PM_{10} *and* $PM_{2.5}$ *comparison to hourly measurements.* 135
VII.4 *CHIMERE Model* $PM_{2.5}$ *comparison to daily measurements.* 136
VII.5 *CHIMERE Model* PM_{10} *composition.* 137
VII.6 *CHIMERE Model* $PM_{2.5}$ *comparison to daily measurements.* 138

B.1 *Liste des espèces du schéma chimique MELCHIOR2* IX
B.2 *Schéma chimique MELCHIOR2* X
B.3 *Paramètres provenant des modèles météorologiques* XIV

Liste des équations et réactions

I.1 *Calcul de la pression atmosphérique en fonction de l'altitude a 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* 24
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_2SO_4 I.23* 29
I.24 *Neutralisation du NH_3 HNO_3 I.24* 29
I.25 *Expression de l'AOD I.25* 31
I.26 *Calcul du coefficient d'Ångström I.26* 32
IV.1 *Calcul de P50DV IV.1* 71
IV.2 *Calcul de DVO3 IV.2* 71
IV.3 *Calcul des émissions de composés biogéniques IV.3* 77
IV.4 *Estimation des variabilités mensuelles des émissions par espéces IV.4* 78
IV.5 *Calcul de la variation de concentration d'une espèce dans CHIMERE IV.5* 78
IV.6 *Calcul discrétisé de la variation de concentration IV.5* 79

IV.7 *Calcul de la variation de concentration liée aux émissions IV.7* 79
IV.8 *Calcul de la variation de concentration liée aux dépôt IV.8* 79
IV.9 *Calcul de la variation de concentration liée à la chimie IV.9* 79
IV.10 *Calcul de la variation de concentration liée au trasnport IV.10* 79
IV.11 *Calcul de la variation de concentration IV.11* 79
IV.12 *Équation d'Arrhenius IV.12* 82
IV.13 *Equation du calcul du coefficient d'absorption moyen IV.13* 82
IV.14 *Estimation de la vitesse de friction seuil IV.14* 83
IV.15 *Estimation de la vitesse de friction seuil pour une surface lisse IV.15* 84
IV.16 *Calcul de l'influence de la hauteur de rugosité IV.16* 84
IV.17 *Expréssion du flux de saltation IV.17* 84
IV.18 *Calcul de l'énergie cinétique des grains en saltation IV.18* 85
IV.19 *Expréssion du flux de sandblasting IV.19* 85
IV.20 *Détermination de la hauteur de rugosité IV.20* 85
IV.21 *Calcul du dépôt IV.21* 86
IV.22 *Calcul de la vitesse de dépôt IV.22* 86
IV.23 *Calcul de la vitesse de dépôt IV.23* 87
IV.24 *Calcul du dépôt IV.24* 87
V.1 *Calcul du coefficient de Pearson V.1* 91
V.2 *Calcul du biais normalisé V.2* 91
V.3 *Calcul de l'ecart quadratique moyen normalisé V.3* 91
V.4 *Calcul du biais fractionnaire V.4a* 91
V.4 *Calcul de l'erreur fractionnaire V.4b* 91
V.5 *Calcul de l'épaisseur optique à 550 nm V.4b* 97
VI.0 *Update of emissions VI.1* 103
VI.0 NH_3/NH_4^+ *equilibriums VI.2* 103
VI.0 SO_2 *oxydation reactions in gas phase VI.3* 103
VI.0 SO_2 *oxydation reactions in aqueous phase VI.4* 103
VI.0 NH_3 *reaction with* HNO_3 *VI.5* 103
VI.0 C/A_{ratio} *formula VI.6* 103
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 :	*Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air*	
ABL :	*Atmospheric Boundary Layer*	*Couche de mélange Atmosphérique*
ACSM :	*Aerosol Composition Speciation Monitor*	
ADEOS :	*Advanced Earth Observing Satellite*	
AERONET :	*AErosol RObotic NETwork*	
ALRI :	*Acute Lower Respiratory Disease*	
AOD :	*Aerosol Optical Depth*	*Épaisseur Optique*
AQI :	*Air Quality Index*	*Indice de Qualité de l'Air*
BC :	*Black Carbon*	
BRI :	*Belt and Road Initiative*	*Nouvelle route de la soie*
CCN :	*Cloud Condensation Nuclei*	*Noyau de condensation*
CNES :	*Centre national d'Études Spatiales*	
CNRS :	*Centre national de la Recherche Scientifique*	
COPD :	*Chronic Obstructive Pulmonary Disease*	
CRAES :	*Chinese Research Academy of Environmental Sciences*	
CTM :	*Chemistry Transport Model*	*Modèle de Chimie – Transport*
CVA :	*CerebroVascular accident*	
DRH :	*Deliquescence Relative Humidity*	*Humidité Relative de Déliquescence*
EC :	*Elementary Carbon*	*Carbone Élémentaire*
ECMWF :	*European Centre for Medium-Range Weather Forecasts*	
ELVOC :	*Extremly Low Volatile Organic C.*	*C. Org. Extrêmement peu Volatils*
EPLC :	*Environmental Protection Leadership Commission*	
ERH :	*Efflorescence Relative Humidity*	*Humidité Relative d'efflorescence*

GB :	*Guobiao standards*	
GDP :	*Gross Domestic Product*	*Produit Intérieur Brut*
GNI :	*Gross National Income*	*Revenu National Brut*
GHG :	*Greenhouse Gases*	*Gas à effet de serre*
GOCART :	*Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport*	
IASI :	*Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*	
ICN :	*Ice Condensation Nuclei*	*Noyau de condensation*
IHD :	*Ischemic Heart Disease*	
IPCC :	*Intergovernmental Panel on Climate Change*	
IR :	*Infra Red*	*Infra Rouge*
LAI :	*Leaf Area Index*	*Indice de Surface Foliaire*
LMDZ-INCA :	*Laboratoire de Météorologie Dynamique Zoom*	
LVOC :	*Low Volatile Organic C.*	*C. Organiques faiblement Volatils*
MEGAN-v2 :	*Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature-v2*	
MEP :	*Ministry of Ecology and Environment the People's Republic of China*	
MFB :	*Mean Fractional Bias*	*Biais Fractionnaire Moyen*
MFE :	*Mean Fractional Error*	*Erreur Fractionnaire Moyenne*
MODIS :	*Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer*	
NDVI :	*Normalized Difference Vegetation Index*	
NASA :	*National Aeronautics and Space Administration*	
$\mathbf{NH_4^+}$:	*Ammonium*	
NMVOC :	*Non-Methane Volatile Organic Compound*	
$\mathbf{NO_X}$:	*Nitrogen Oxydes*	*Oxydes d'azotes*
$\mathbf{NO_3^-}$:	*Nitrates*	
NPC :	*National People's Congress*	*Assemblée nationale populaire*
OC :	*Organic Carbon*	*Carbone Organique*
OECD :	*Organisation for Economic Co-operation and Development*	
OMI :	*Ozone Monitoring Instrument*	
PHOTON :	*PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire*	
$\mathbf{PM_{10}}$:	*Particule en suspension d'un diamètre inférieur à 10 µm*	
$\mathbf{PM_{2.5}}$:	*Particule en suspension d'un diamètre inférieur à 2.5 µm*	
POLDER :	*POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances*	
PolEASIA :	*POLlution in Eastern ASIA*	
POA :	*Primary Organic Aerosol*	*Aérosol Organique Primaire*

PPM :	*[anthropogenic] Primary Particle Matter*	
PPP :	*Purchasing Power Parity*	*Parité de pouvoir d'achat*
PRC :	*People's Republic of China*	*République populaire de Chine*
RMSE :	*Root Mean Square Error*	*Écart quadratique moyen*
SC :	*Sate council of PRC*	*Conseil des Affaires de l'État*
SNAP :	*Standardized Nomenclature for Air Pollutants*	
$\mathbf{SO_2}$:	*Sulfure dioxyde*	*Dioxyde de soufre*
$\mathbf{SO_4^{2-}}$:	*Sulfates*	
SVOC :	*Semi - Volatile Organic Compounds*	*Composés Organiques Semi - Volatils*
TEOM :	*Tapered Element Oscillating Monitor*	
VOC :	*Volatile Organic Compounds*	*Composés Organiques Volatils*
WHO :	*World Health Organization*	*Organisation Mondiale de la Santé*

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 Kaï-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 Kaï-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 mouvement 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 retraites 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 soldat 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 1er Octobre depuis le balcon de Tiananmen par Mao, et la PRC termine sa conquête de la Chine continentale en 1950, Tchang Kaï-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 entrainée 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 20ème siècle chinois, ainsi que les principaux gouvernants qui se sont succédés durant cette période.

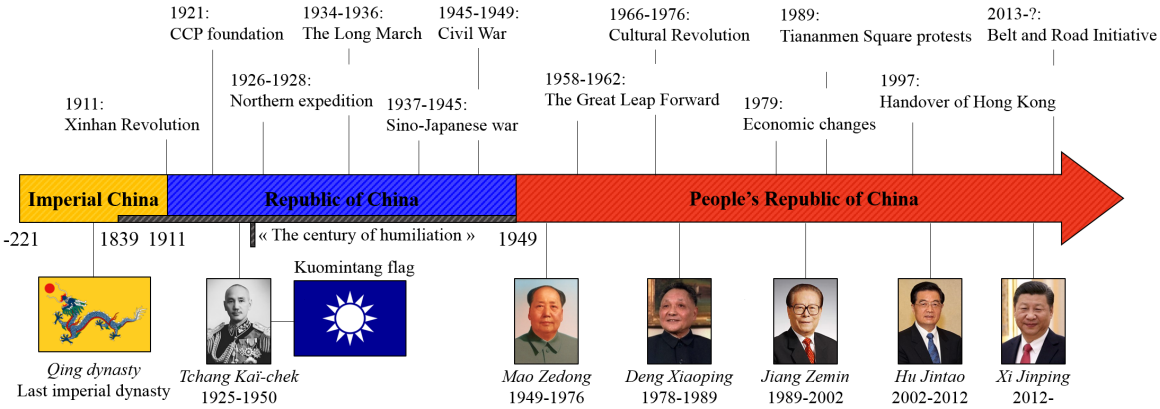

FIGURE A.2 – *Fresque historique simplifiée de la Chine*

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.

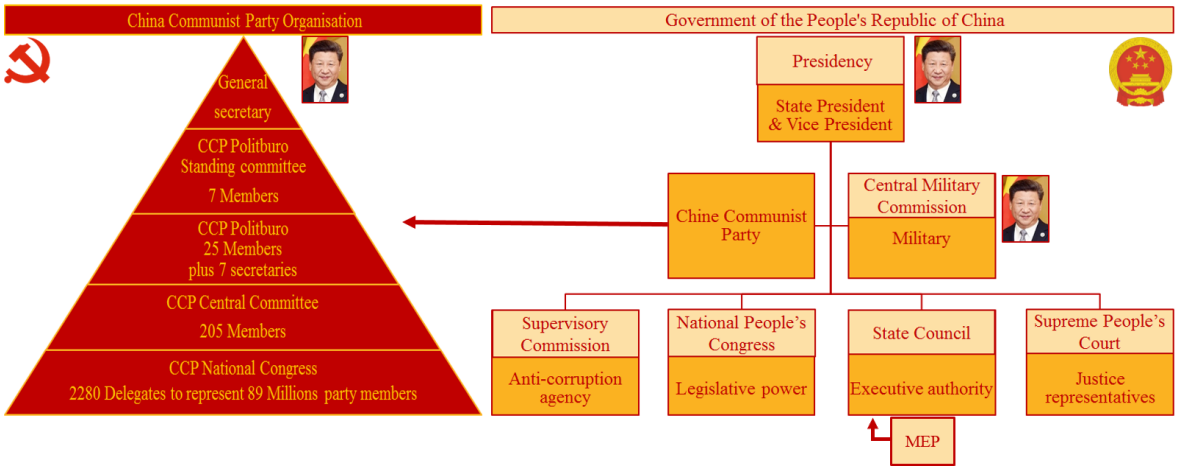

FIGURE A.3 – *À gauche : organigramme du Parti Communiste Chinois, à droite : organigramme du gouvernement de la République populaire de Chine, 2018.*

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
Composés inorganiques	
O_3	Ozone
H_2O_2	Péroxyde d'hydrogène
OH	Radical hydroxyle
HO_2	Radical hydropéroxyle
NO	Oxyde d'azote
NO_2	Dioxyde d'azote
NO_3	Radical nitrate
N_2O_5	Pentoxyde de diazote
HONO	Acide nitreux
HNO_3	Acide nitrique
CO	Monoxyde de carbone
SO_2	Dioxyde de soufre
H_2SO_4	Acide Sulfurique
Hydrocarbures	
CH_4	Méthane
C_2H_6	Éthane
NC_4H_{10}	n-butane
C_2H_4	Éthène
C_3H_6	Propène
OXYL	o-xylène
C_5H_8	Isoprène
APINEN	α-pinène
BPINEN	β-pinène
LIMONE	Limonène
TERPEN	Terpènes lumpés
HUMULE	Humulène lumpé
OCIMEN	Ocimène lumpé
Carbonyles	
HCHO	Formaldhéyde
CH_3CHO	Acétaldehyde
CH_3COE	Méthyle éthyle cétone
GLYOX	Glyoxal
MGLYOX	Méthyle glyoxal
CH_3COY	Diméthyle glyoxal
MEMALD	Dicarbonyles insaturés réagissant comme le 4-oxo-2-pentanal
MVK	Méthyle Vinyle Cétone
MAC	Methacroléine
Nitrates Organiques	
PAN	Péroxyacétyle nitrate
CARNIT	Carbonyle nitrate pris comme α-nitroxy actéone
ISNI	Nitrates insaturés produits par C_5H_8
Péroxydes organiques	
CH_3O_2H	Hydropéroxyde de méthyle
PPA	Acide péacétique
Radicaux Peroxyle	
CH_3O_2	Radical méthyle péroxyle
CH_3COO	Radical péroxyle actéthyle
Opérateurs chimiques	
oRO_2	Radical péroxyle produit par OH+COV
oROOH	Radical hydropéroxyle produit par oRO_2
obio	Radical péroxyle biogénique produit par OCIMEN, APINEN, BPINEN, LIMONE,TERPEN, HUMULE et C_5H_8
obioH	Radical hydropéroxyle biogénique produit par obio
oPAN	Représente les analogues des PAN
PANH	Produit par oPAN+HO_2
toPAN	Produit par oPAN+NO_2
oRN1	Nitrates organiques produit par C_2H_4,C_3H_6, C_5H_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)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.2e-13,B=2450
O3+OH→HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.9e-12,B=1000
O3+HO2→OH	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.4e-14,B=600
NO+HO2→OH+NO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=3.7e-12,B=-240
NO2+OH+M→HNO3	k(T,M)=mtroe(3.4e-30,0,3.2,4.77e-11,0,1.4,0.30)
HO2+OH→H2O	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=4.8e-11,B=-250
H2O2+OH→HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=2.9e-12,B=160
HNO3+OH→NO3	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=5.5e-15,B=-985
CO+OH→HO2+CO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$(300/T)**N,A=2e-13,B=0,N=1
HO2+HO2→H2O2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=2.2e-13,B=-740
HO2+HO2+H2O→H2O2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,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)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.8e-11,B=-110
NO2+NO3→NO+NO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=4.5e-14,B=1260
NO2+NO3+M→N2O5	k(T,M)=troe(2.7e-30,0,3.4,2e-12,0,-0.2,0.33)
N2O5+M→NO3+NO2	k(T,M)=troe(1e-3,11000,3.5,9.7e14,11080,-0.1,0.33)
NO+OH+M→HONO	k(T,M)=troe(7.e-31,0,2.6,1.5e-11,0,0.5,0.6)
HONO+OH→NO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.8e-11,B=390
NO+NO+O2→2*NO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,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	ks=0.5*depo(NO2)
Chimie des SO_X	
SO2+CH3O2→H2SO4+HCHO+HO2	k=4e-17
SO2+OH+M→H2SO4+HO2	k(T,M)=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)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.6e-11,B=180
obio+HO2→obioH	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=2.7e-13,B=-1000
obio+NO3→NO2+HO2	k=1.2e-12
CH3O2+obio→0.8*HO2+0.5*HCHO	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=2.44e-11,B=223
CH3COO+obio→0.5*HCHO+1.5*HO2+0.7*CO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.18e-11,B=127
obioH+OH→OH	k=8e-11
Opérateur oRO_2	
oRO2+NO→NO2+HO2	k=4e-12
oRO2+HO2→oROOH	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,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
suite	*suite*
CH3O2+oRO2→0.65*HCHO+0.8*HO2+0.35*CH3OH	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.5e-13,B=-220
CH3COO+oRO2→0.8*CH3O2+0.8*CO2+0.8*HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=8.6e-13,B=-260
oROOH+OH→0.8*OH+0.2*oRO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=4.35e-12,B=-455
Opérateur PAN	
MAC+OH→0.5*CH3COE+0.5*CO2+0.5*oPAN	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.86e-11,B=-175
oPAN+NO→NO2+HO2	k=1.4e-11
oPAN+NO3→NO2+HO2	k=4e-12
oPAN+HO2→PANH	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=2.7e-13,B=-1000
PANH+OH→0.2*oPAN	k=1.64e-11
oPAN+CH3O2→HCHO+0.5*HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=7.9e-12,B=-140
oPAN+CH3COO→CH3O2+CO2+HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=5.6e-12,B=-530
oPAN+NO2+M→toPAN	k(T,M)=troe(2.7e-28,0,7.1,1.2e-11,0,0.9,0.3)
toPAN+M→oPAN+NO2	k(T,M)=troe(4.9e-3,12100,0,5.4e16,13830,0,0.3)
toPAN+OH→NO3+CO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=3.25e-13,B=-500
Opérateur nitrates	
C2H4+NO3→0.5*CARNIT+HCHO+oRN1	k=2e-16
C3H6+NO3→0.5*CARNIT+1.5*HCHO+	...
0.5*CH3CHO+0.5*HO2+oRN1	k=9.45e-15
ISNI+OH→oRN1+0.95*CH3CHO+0.475*CH3COE+	...
0.475*MGLYOX+0.05*ISNI+0.05*HO2	k=3.4e-11
C5H8+NO3→oRN1+0.85*ISNI+0.1*MAC+	...
0.05*MVK+0.15*HCHO+0.8*HO2	k=7.8e-13
oRN1+NO→1.5*NO2	k=4e-11
oRN1+NO3→1.5*NO2	k=1.2e-12
oRN1+HO2→X	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=2.7e-13,B=-1000
Oxydation des hydrocarbures avec le radical OH	
CH4+OH→CH3O2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=2.3e-12,B=1765
C2H6+OH→CH3CHO+oRO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=7.9e-12,B=1030
C2H4+OH+M→2*HCHO+oRO2	k(T,M)=troe(7e-29,0,3.1,9e-12,0,0,0.7)
C3H6+OH+M→HCHO+CH3CHO+oRO2	k(T,M)=troe(8e-27,0,3.5,3e-11,0,0,0.5)
NC4H10+OH→0.9*CH3COE+0.1*CH3CHO+	...
0.1*CH3COO+0.9*oRO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$(300/T)**N,A=1.36e-12,B=-190,N=-2
OXYL+OH→MEMALD+MGLYOX+oRO2	k=1.37e-11
Oxydation des carbonyles et péroxydes avec le radical OH	
HCHO+OH→CO+HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=8.6e-12,B=-20
CH3CHO+OH→CH3COO	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=5.6e-12,B=-310
MEMALD+OH→GLYOX+MGLYOX+oRO2	k=5.6e-11
CH3COE+OH→CH3COY+oRO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$(300/T)**N,A=2.92e-13,B=-414,N=-2
GLYOX+OH→2*CO+HO2	k=1.1e-11
MGLYOX+OH→CH3COO+CO	k=1.5e-11
MVK+OH→0.266*MGLYOX+0.266*HCHO+0.684*CH3CHO+	...
0.684*CH3COO+0.05*ISNI+0.95*oRO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=4.1e-12,B=-453
CH3O2H+OH→CH3O2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.9e-12,B=-190

à suivre...

Réaction	Constante cinétique
suite	*suite*
PPA+OH→CH3COO	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.9e-12,B=-190
CH3O2H+OH→HCHO+OH	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.e-12,B=-190
Oxydation avec le radical NO_3	
HCHO+NO3→CO+HNO3+HO2	k=5.8e-16
CH3CHO+NO3→CH3COO+HNO3	k=2.8e-15
CH3O2+NO3→HCHO+HO2+NO2	k=1.2e-12
CH3COO+NO3→CH3O2+NO2+CO2	k=4e-12
Ozonolyse	
C2H4+O3→HCHO+0.12*HO2+0.13*H2+0.44*CO	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=9.1e-15,B=2580
C3H6+O3→0.53*HCHO+0.5*CH3CHO+0.31*CH3O2+	...
0.28*HO2+0.15*OH+0.065*H2+0.4*CO+0.7*CH4	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=5.5e-15,B=1880
C5H8+O3→0.67*MAC+0.26*MVK+0.55*OH+0.07*C3H6+	...
0.8*HCHO+0.06*HO2+0.05*CO+0.3*O3	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.2e-14,B=2013
MAC+O3→0.8*MGLYOX+0.7*HCHO+0.215*OH+	...
0.275*HO2+0.2*CO+0.2*O3	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=5.3e-15,B=2520
MVK+O3→0.82*MGLYOX+0.8*HCHO+0.04*CH3CHO+	...
0.08*OH+0.06*HO2+0.05*CO+0.2*O3	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=4.3e-15,B=2016
Convertion des radicaux organiques	
CH3O2+NO→HCHO+NO2+HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=4.2e-12,B=-180
CH3COO+NO→CH3O2+NO2+CO2	k=2e-11
Recombinaison des radicaux organiques	
CH3O2+HO2→CH3O2H	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=4.1e-13,B=-790
CH3COO+HO2→0.67*PPA+0.33*O3	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=4.3e-13,B=-1040
CH3O2+CH3O2→1.35*HCHO+0.7*HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=1.13e-13,B=-356
CH3COO+CH3O2→0.5*CH3O2+0.5*CO2+	...
HCHO+0.5*HO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=3.34e-12,B=-400
CH3COO+CH3COO→2.*CH3O2+2.*CO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=2.8e-12,B=-530
Nitrates organiques	
CH3COO+NO2+M→PAN	k(T,M)=troe(2.7e-28,0,7.1,1.2e-11,0,0.9,0.3)
PAN+M→CH3COO+NO2	k(T,M)=troe(4.9e-3,12100,0,5.4e16,13830,0,0.3)
PAN+OH→HCHO+NO3+CO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=9.5e-13,B=650
CARNIT+OH→CH3CHO+CO+NO2	k(T)=Aexp$^{(-B/T)}$,A=5.6e-12,B=-310
Réactions de photolyses	
O3→2*OH	J(T,Z,H2O)=photorate(O3)
NO2→NO+O3	J(Z)=photorate(NO2)
NO3→NO	J(Z)=photorate(NO3-1)
NO3→NO2+O3	J(Z)=photorate(NO3-2)
H2O2→2*OH	J(Z)=photorate(H2O2)
HNO3→NO2+OH	J(Z)=photorate(HNO3)
HONO→NO+OH	J(Z)=photorate(HONO)
HCHO→CO+2*HO2	J(Z)=photorate(HCHO-1)
HCHO→CO+H2	J(Z)=photorate(HCHO-2)
CH3CHO→CH3O2+HO2+CO	J(Z)=photorate(CH3CHO)

à suivre...

Réaction	**Constante cinétique**
suite	*suite*
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	$kg.m^{-2}.h^{-1}$
lspc	Précipitation de grande échelle	2D	$kg.m^{-2}.h^{-1}$
	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

ANNEXE

C

The unintended consequence of SO_2 and NO_2 regulations

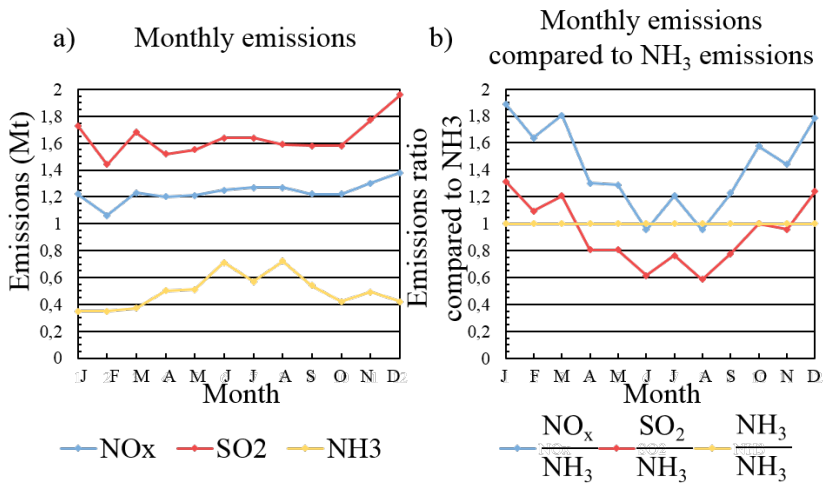

Figure A1. a) Emissions monthly profile for East China from HTAP 2010, in Mt b) emissions monthly profile molar ratio compared to NH_3 emissions, from HTAP 2010.

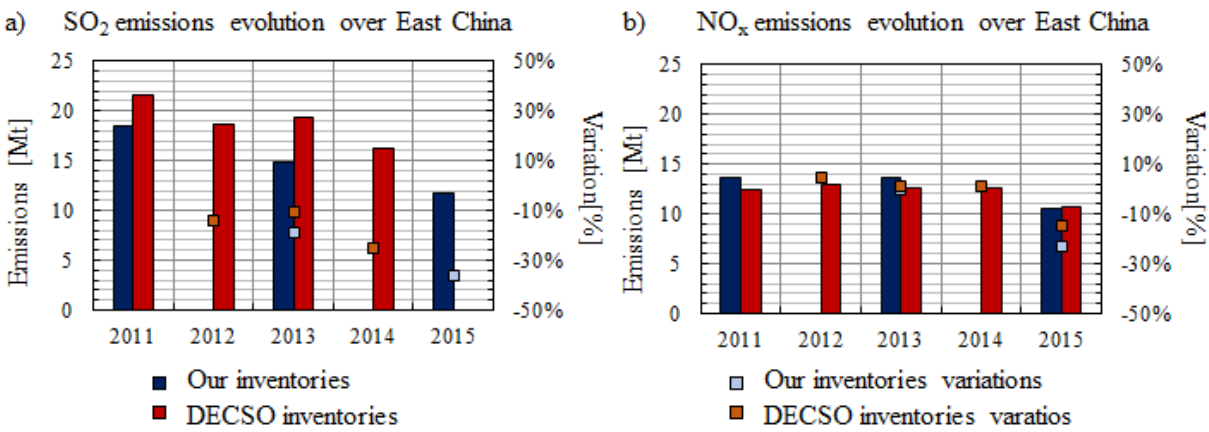

Figure A2. a) SO_2 and b) NO_X emission inventories comparison between our updated inventory and DECSO inventory, Over East China, not including maritime traffic.

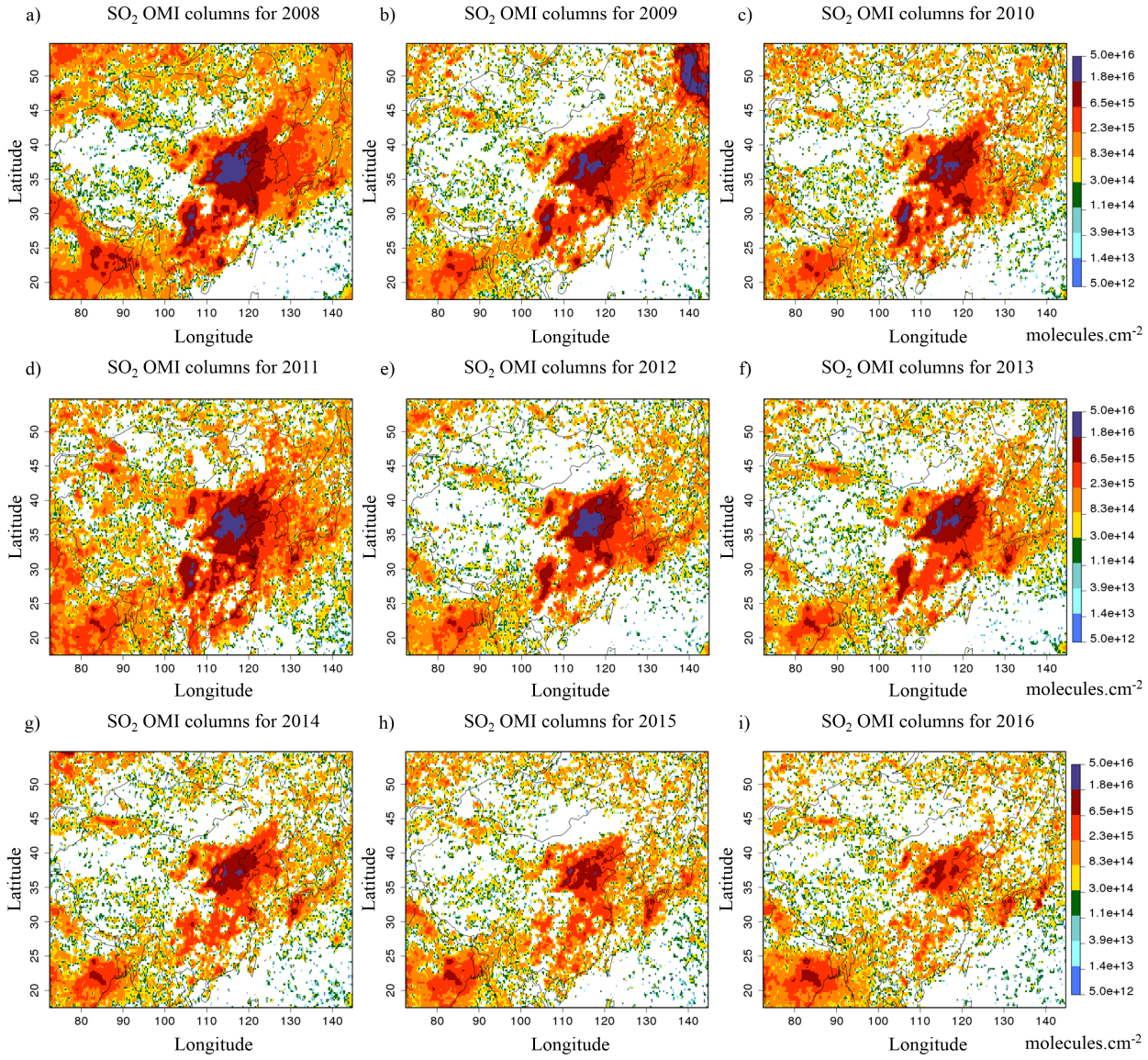

Figure A3. SO_2 columns evolution from OMI satellite, from 2008 to 2016, in molecules.cm^{-2}.

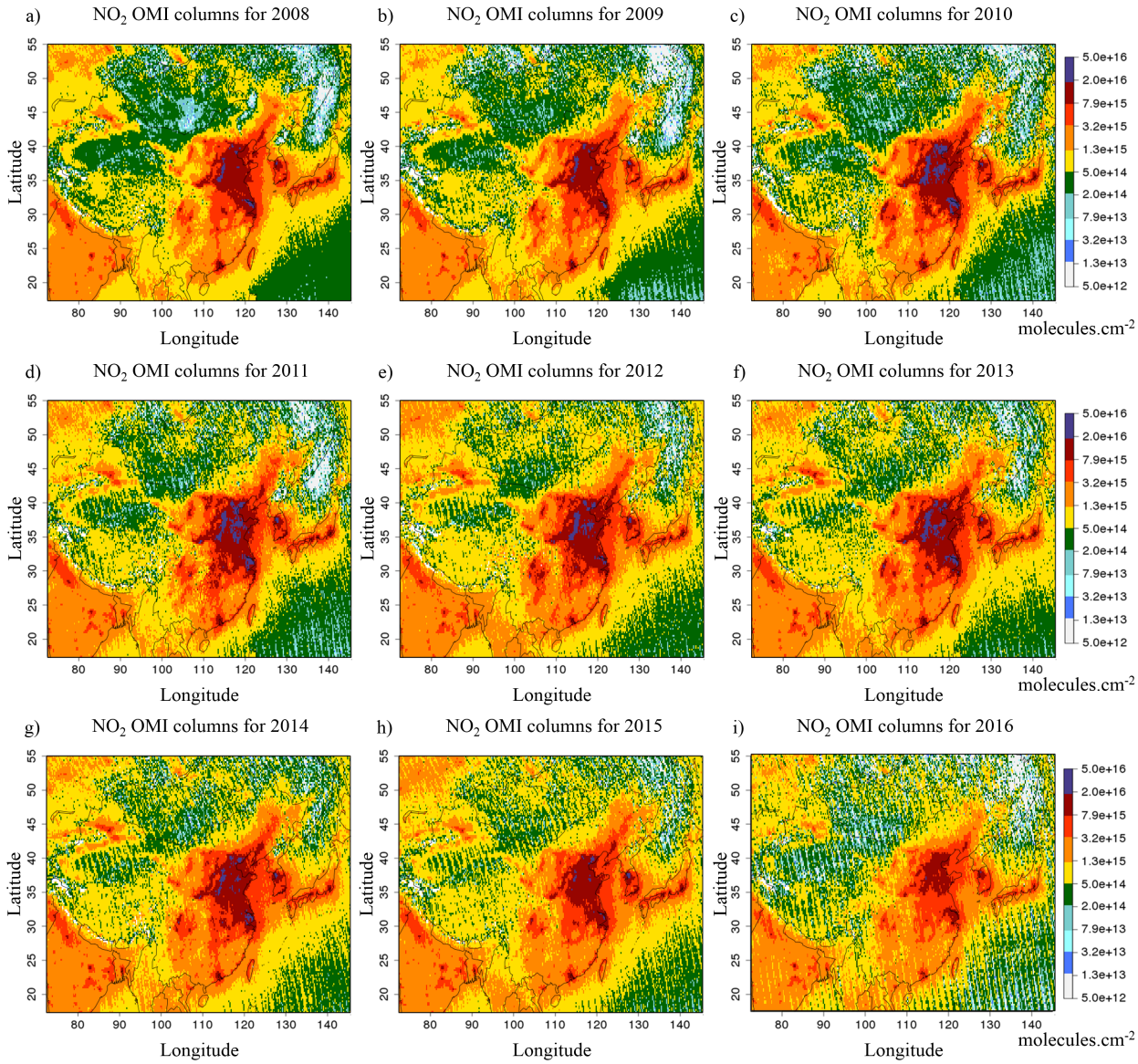

Figure A4. NO_2 columns evolution from OMI satellite, from 2008 to 2016, in molecules.cm^{-2}.

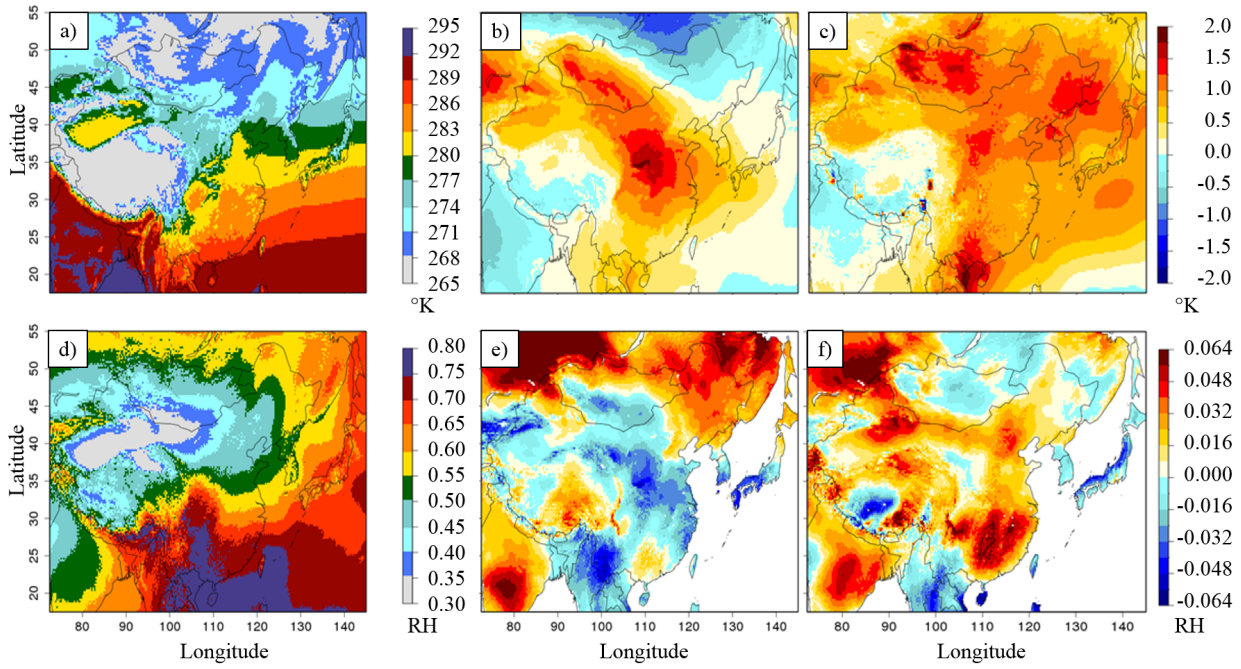

Figure A5. a) Annual mean temperature for 2011, b) annual mean temperature differences [2013-2011], c) annual mean temperature differences [2015-2011], d) annual mean RH for 2011, e) annual mean RH differences [2013-2011], f) annual mean RH differences [2015-2011].

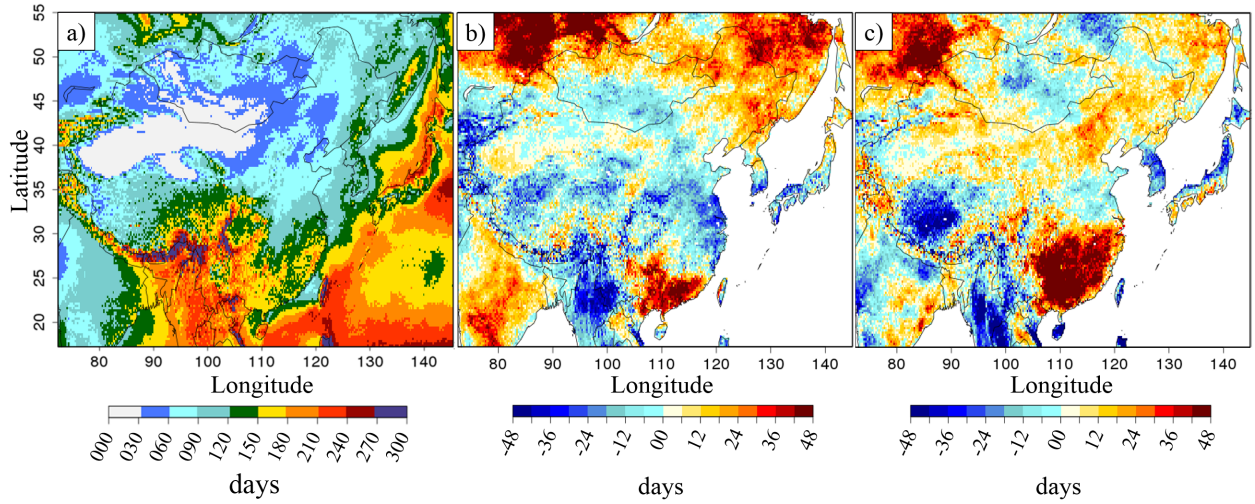

Figure A6. a) Annual rainfall frequencies [Rainfal>1mm.day^{-1}] for 2011, b) annual rainfall frequencies differences [2013-2011], c) annual rainfall frequencies differences [2015-2011].

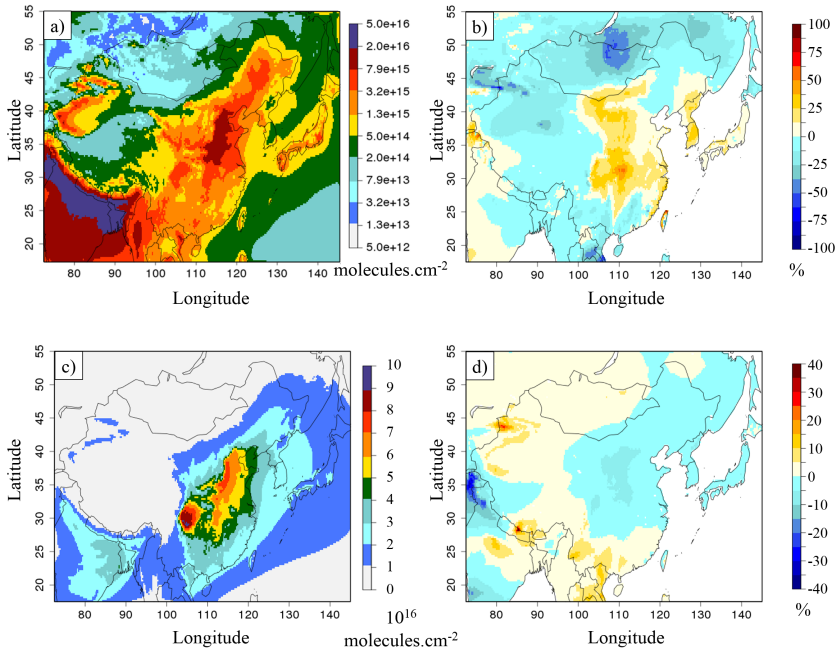

Figure A7. a) Ammonia columns in molecules.cm^{-2} for the simulation 2013A, b) relative differences of ammonium columns between the simulations from 2013C and 2013A, in % c) ammonium columns in molecules.cm^{-2} for the simulation 2013A and d) relative differences of ammonium columns between the simulations from 2013C and 201CA, in %.

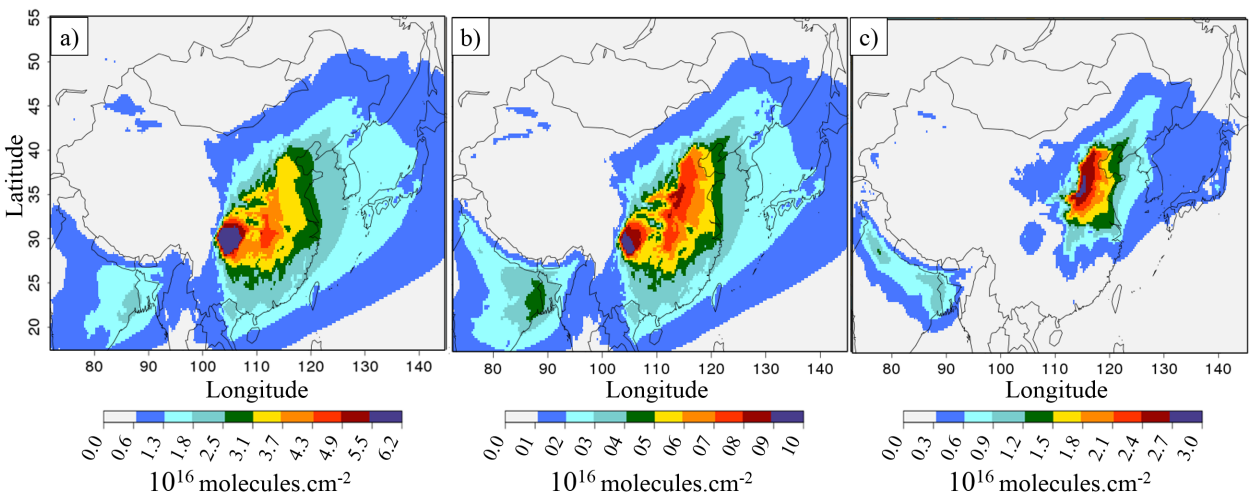

Figure A8. a) 2015A annual mean $SO^{2-}_{4(p)}$ columns, b) 2015A annual mean $NH^{+}_{4(p)}$ columns, c) 2015A annual mean $NO^{-}_{3(p)}$ columns. Units in molecules.cm^{-2}.

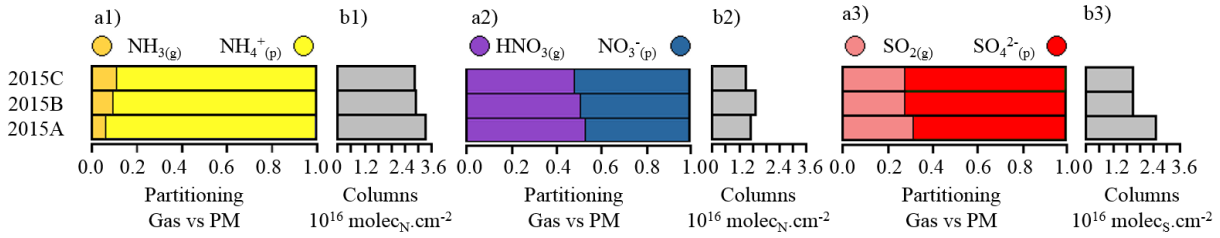

Figure A9. a) Molar partitioning between gas and the particulate phases over East China b) column means over East China in 10^{-9} molecules.cm^{-2}.1) TA, 2) TN, 3) TS.

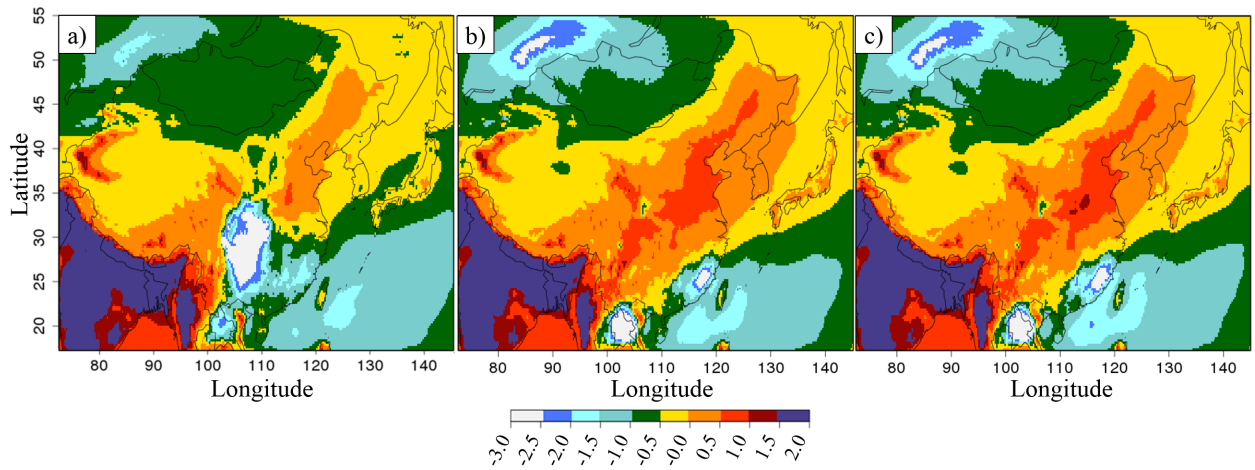

Figure A10. a) Annual G_{ratio} mean for 2015A, b) annual G_{ratio} mean for 2015B, c) annual G_{ratio} mean for 2015C.

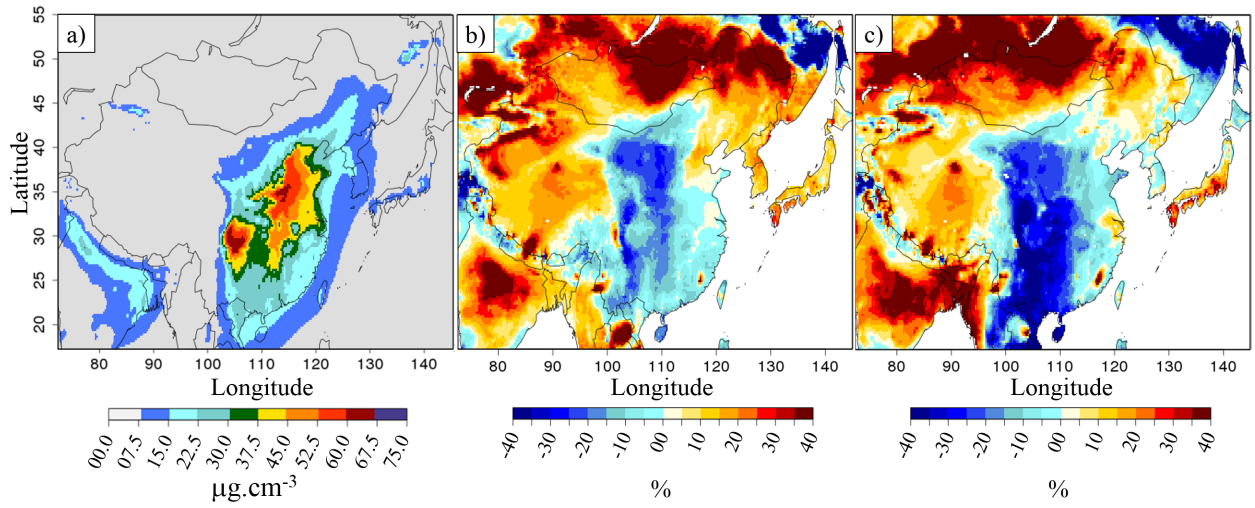

Figure A11. a) $PM_{2.5}$[pSNA] columns in µg.cm^{-2} for 2011A b) relative differences of $PM_{2.5}$[pSNA] columns between 2013C and 2011A, in % and c) relative differences of $PM_{2.5}$[pSNA] columns between 2015C and 2011A, in %.

ANNEXE

D

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

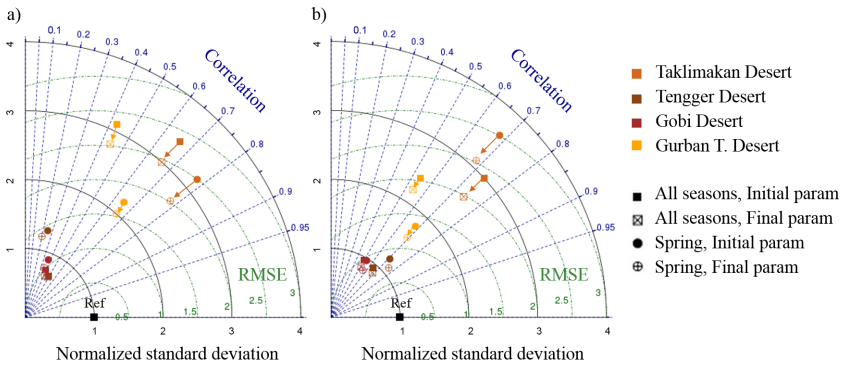

Figure A1. Changes of CHIMERE vs MODIS comparison between initial parametrization and dust inhibitionby rainfall parametrization, for full year and spring period [2011, 2013 and 2015]. a) Normalized Taylor diagram for CHIMERE vs MODIS spatial comparisons b) Normalized Taylor diagram for CHIMERE vs MODIS time comparisons.

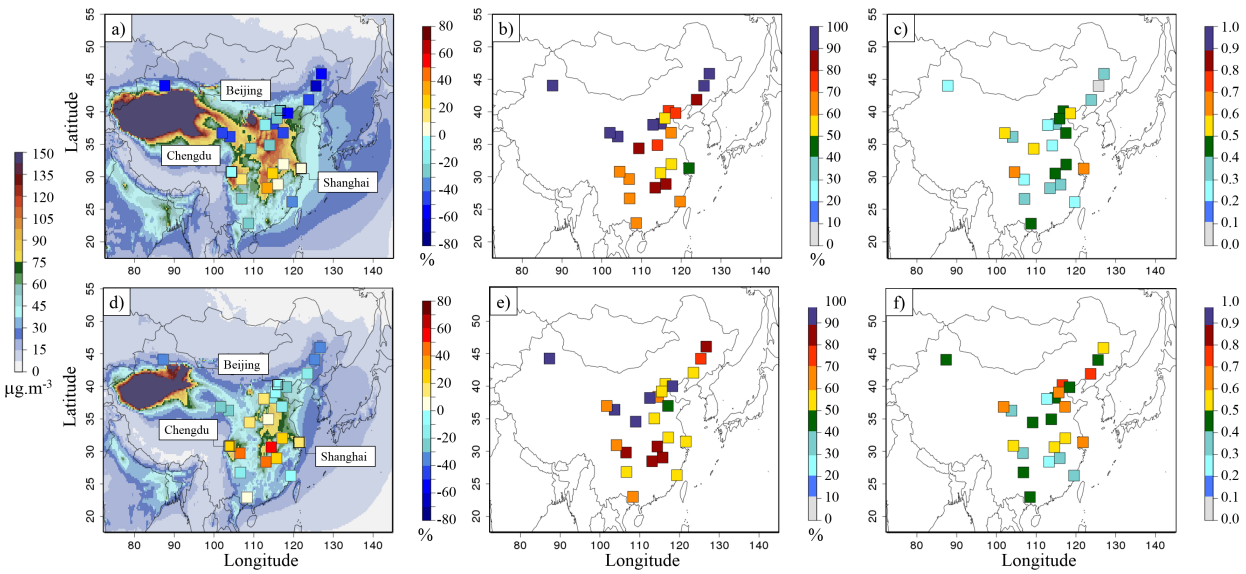

Figure B1. Statistical results from CHIMERE against Measurements comparisons for PM_{10} [a, b and c]. $PM_{2.5}$ [e, f and d]. Normalized Bias [a and d], Normalized RMSE [b and e] and Pearson correlation coefficient [c and f] are displayed. Total PM_{10} and $PM_{2.5}$ concentrations spatial distribution are plotted respectively on a and d.

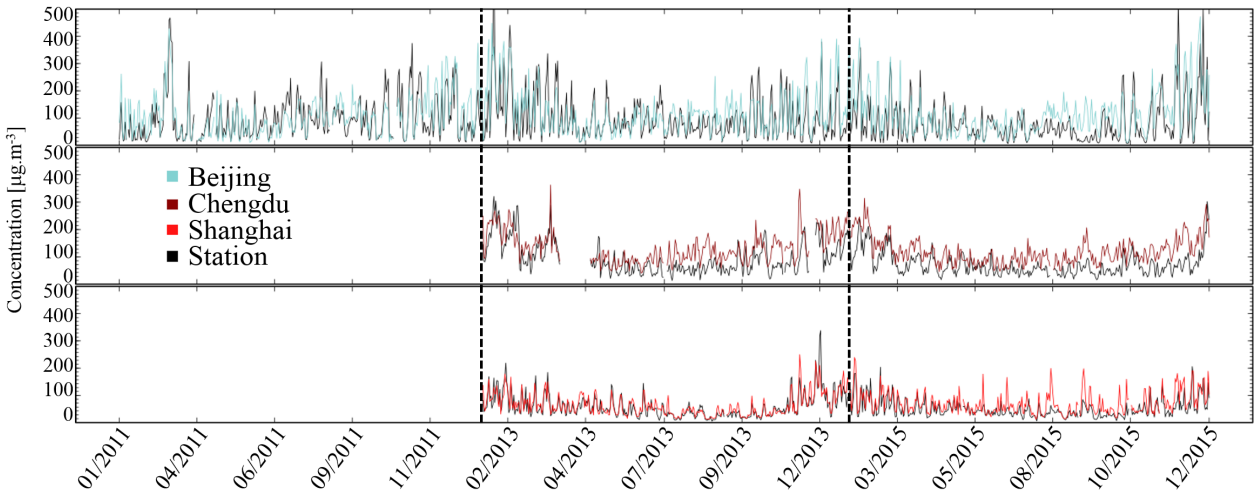

Figure B2. Daily $PM_{2.5}$ time series for monitoring stations and CHIMERE simulations for 2011,2013 and 2015. Up) Beijing, Middle) Chengdu and down) Shanghai. Black lines correspond to stations measurements, colored lines to CHIMERE simulation.

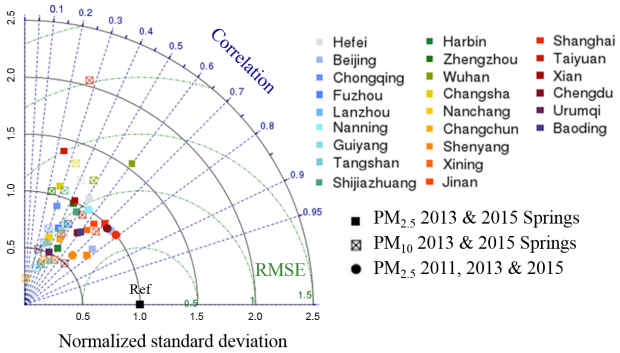

Figure B3. Normalized Taylor diagram for CHIMERE vs measurments comparisons. Results are displayed for 2013 and 2015 spring [$PM_{2.5}$] and [PM_{10}] and for full year [$PM_{2.5}$].

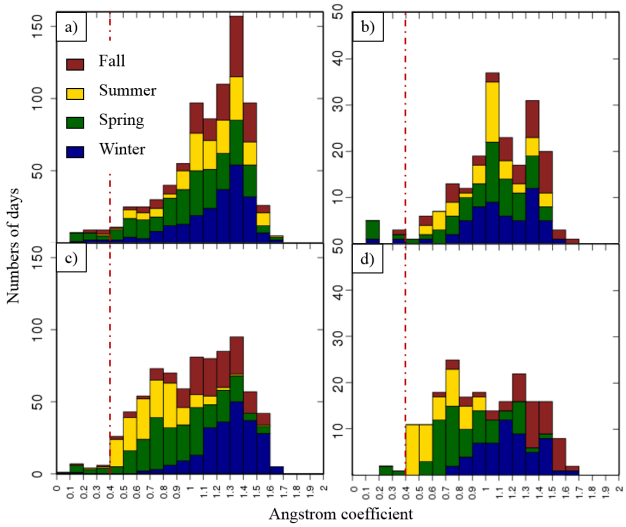

Figure C1. Daily Ångström coefficient distribution at Beijing station, for 2011, 2013 and 2015. a) AERONET station, b) CHIMERE, c) AERONET for 25% highest daily AOD for each seasons and d) CHIMERE for 25% highest daily AOD for each seasons.

ANNEXE

E

Participation à différentes conferences

2015 :
Participation à l'École d'été "The Second Sino-European School on Atmospheric Chemistry" 2015, Shanghai, RPC.

2016 :
Participation à la conference 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 conference 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 conference 6th Sino-French Joint Workshop on Atmospheric Environment, Orléans, France.

Présentation orale : "The unintended consequence of SO_2 and NO_2 regulations over China : increase of ammonia levels and impact on PM2.5 concentrations".

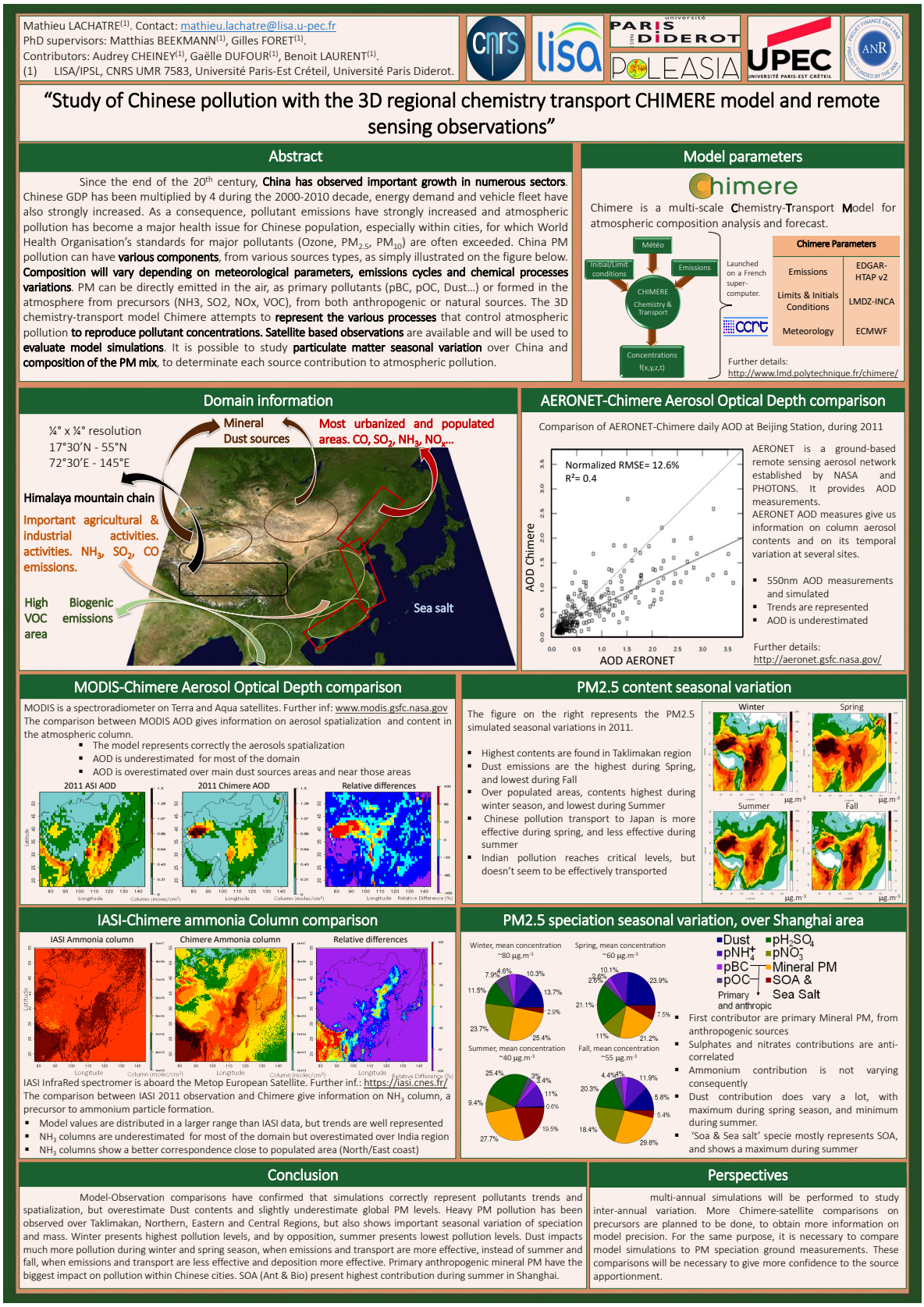

FIGURE E.1 – *Poster : "Study of Chinese pollution with the 3D regional chemistry transport CHIMERE model and remote sensing observations" [5th SFJWE, Xi'an 2016]*

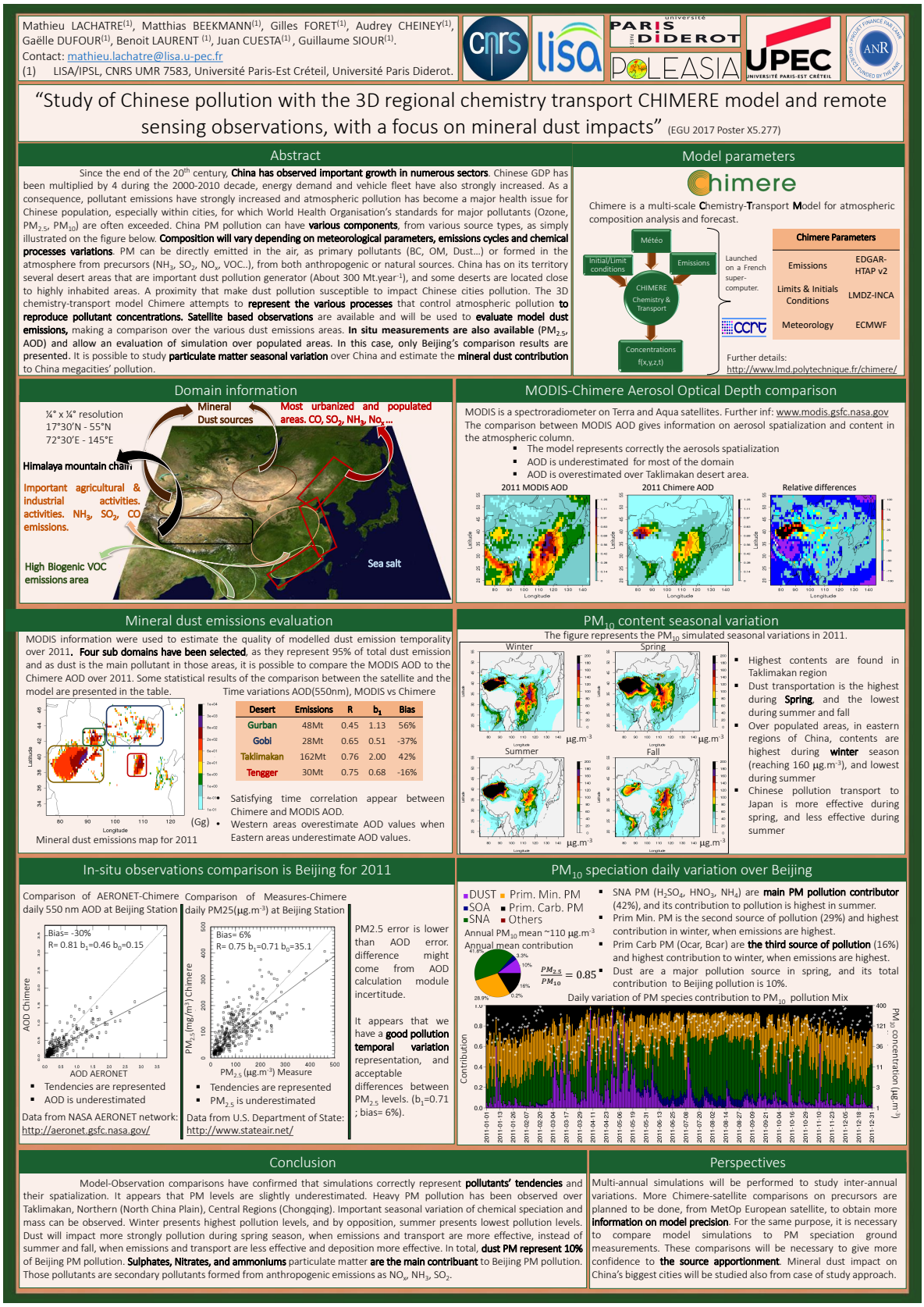

FIGURE E.2 – *Poster : "Study of Chinese pollution with the 3D regional chemistry transport CHIMERE model and remote sensing observations, with a focus on mineral dust impacts" [EGU 2017 Poster X5.277]*

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, 60, 61

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. 73

Aïchi, L. : Rapport SENAT NÂ° 610, Tech. Rep. 1, SENAT, 2015. 37

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, 84, 85, 144

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. 84

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. 70

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/1680-7324/acp/2005-5-2497, 2005. 19

Boden, T., Marland, G., and Andres, R. : National CO_2 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 NO 2 from OMI, Atmospheric Chemistry and Physics, 7, 2103–2118, https ://doi.org/10.5194/acp-7-2103-2007, 2007. 73

Bougon, F. : Dans la tÃªte de Xi Jinping, solin, 2017. 44

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. 91, 95, 96, 102

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. 50

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. : ModÃ©lisation de l'ozone et des photooxydants tropospheÃ©riques. i - l'ozone tropospheÃ©rique : production, consommation et rÃ©gimes chimiques., Pollution AtmospheÃ©rique, 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. 63

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. 47

Couvidat, F., Bessagnet, B., Garcia-Vivanco, M., Real, E., Menut, L., and Colette, A. : Development of an inorganic and organic aerosol model (CHIMERE 2017β 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. 91, 92

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. 72, 145

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. 49

de Foy, B., Lu, Z., and Streets, D. : Satellite NO2 retrievals suggest China has exceeded its NOx reduction goals from the twelfth Five-Year Plan., Scientific Reports, 6, 35 912, https ://doi.org/10.1038/srep35912,2016, 2016. 59

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. 81

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. 72

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. 59, 60, 145

Ecology, M. O. and Environment : 2013 Report on the State of the Ecology and Environment in China, 2014. 58, 60, 62, 63

Ecology, M. O. and Environment : 2015 Report on the State of the Ecology and Environment in China, 2016. 58, 60, 62, 63

Ecology, M. O. and Environment : 2017 Report on the State of the Ecology and Environment in China, 2018. 58, 60, 62, 63

Economie Intelligence Unit : The Economist Group, URL "https://www.eiu.com/home.aspx". 44

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. 86

Flemming, J., Stern, R., and Yamartino, R. J. : A new air quality regime classification scheme for O_3, NO_2, SO_2 and PM_{10} observations sites, Atmospheric Environment, 39, 6121–6129, https ://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.06.039, 2005. 71, 92, 151

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 O 3 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. 59

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. 71, 91, 95

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, 1980. 82

Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B. adn Dubovik, O., and Lin, S. : Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, Journal of Geophysical Research : Atmospheres, 2001. 77

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. 50

Gu, D., Wang, Y., Smeltzer, C., and Boersma, K. F. : Anthropogenic emissions of NOx 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. 77

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. 77

Guermond, Y. : La Chine, Belin, 2007. 41

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. 30

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 MÃ©tÃ©orologie 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. 77

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. 75

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. 77

Huchet, J.-F. : La crise environnementale en Chine, SciencePo Les presses, 2016. 44, 48, 49, 50, 52

Huneeus, 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. 15, 17, 57, 58, 59, 77

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. 35

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, 58

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, 1992. 83

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, 57

Konovalov, 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. 91

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 SO 2 and NO 2 pollution changes from 2005 to 2015, Atmospheric Chemistry and Physics, pp. 4605–4629, https ://doi.org/10.5194/acp-16-4605-2016, 2016. 58

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. 82

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, 1987. 18

Lannuque, V. : L'aérosol organique secondaire dans les modélesde 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 Ã 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, 64

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. 85, 86

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, 63, 85

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. : SO 2 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. 16

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. 73

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, 65, 66

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. 65

Liousse, 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, 19 411–19 432, https ://doi.org/10.1029/95JD03426, 1996. 26, 64

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. 59, 60

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. 44

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. 60

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. 58, 62

Maddison, A. : Chinese Economic Performance in the Long run Second Edition, Revised and updated 960-2030 AD, OECD, 2007. 46

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. 78

Marticorena, B. and Bergametti, G. : Modeling the atmospheric dust cycle : Design of a soil-derived dust emission scheme, Journal of Geophysical Research, 1995. 25, 83, 84

Marticorena, B., Chazette, P., Bergametti, G., Dulac, F., and Legrand, M. : Mapping the aerodynamic roughness length of desert surfaces from the P OLDER/ADEOS bi- directional reflectance product, Int. J. Remote Sensing, 25, 603–626, 2004. 85

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. 73

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. 46, 48

McNeill, J. : Something New Under the Sun : An Environmental History of the Twentieth-Century World (The Global Century Series), 2001. 50

Menut, L., Schmechtig, C., and Marticorena, B. : Sensitivity of the Sandblasting Flux Calculations to the Soil Size Distribution Accuracy, pp. 1875–1884, 2005. 144

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. 78

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. 91

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, URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/096016869090077Z, 1990. 78

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. 47, 48

Nenes, A., Pilinis, C., and Pandis, S. : ISORROPIA : A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols, Aquatic Geochem, pp. 4 :123–152, 1998. 83

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, Replaces previous editions that were available as PDF documents. , 2018. 76

Pankow, J. F. : An absorption model of gas / particle partitioning of organic compounds in the atmosphere, Atmospheric Environment, 28, 0–3, 1994. 83

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. 51

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. 70

Robinson, A. L., Donahue, N. M., Shrivastava, M. K., Weitkamp, E. A., Sage, Amy M. ans 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. 18

Rodgers, C. : ATMOSPHERIC From Air Pollution to Climate Change SECOND EDITION, https ://doi.org/10.1016/B978-0-122-08450-8.X5001-2, 1977. 72

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. 85

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, Envrionmental Modelling & Software, 21, 547–558, https ://doi.org/10.1016/j.envsoft.2004.12.002, 2006. 75

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, 2003. 23

Singer, L. E. and Peterson, D. : International Energy Outlook 2016, vol. 0484, 2016. 57

Siour, G. : Modélisation et évaluation de l'impact multi-échelles des mégapoles européennes, Thèse de doctorat, Université de Paris-Est Créteil, 2012. 81, 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. 91

Sun, J. : Provenance of loess material and formation of loess deposits on the Chinese Loess Plateau, Earth Planet. Sci. Lett., 203, 845–859, 2002. 64

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. 77

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 NO_2 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. 77

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., Stavrakou, T., Bauduin, S., Clarisse, L., Li, C., Krotov, N., Yu, H., Brenot, H., and Van Roozendael, 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. 73

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. 59, 60

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. 74

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, Atmospheric Measurement Techniques, 10, 4905–4914, https ://doi.org/10.5194/amt-10-4905-2017, 2017. 74

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. 65

Verwer, J. G. : Gauss-Seidel iteration for stiff ODEs from chemical-kinetics, Siam Journal on Scientific Computing, 15, 1243–1250, 1994. 80

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. 59

Wang, J., Zhong, L., and Long, Y. : Technical Note Baseline Water Stress : China, World Resources Institute Technical Note, pp. 1–16, 2016. 50

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. 62, 63

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. 50

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. 44

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. 60

Wesely, M. : Parameterization of Surface Resistances to Gaseous Dry Deposition in Regional-Scale Numerical Models, Atmospheric Environment, 23, 1293–1304, 1989. 86

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 HO 2 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, 84, 153

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. 36, 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. 48, 49

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. 64

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. 57

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. 63, 64

Yang, J. : Stèles, La Grande famine en Chine, 1958-1961, Seuil,, 2012. 43, 47

Yang, Y., Wang, H., Smith, S. J., Ma, P.-l., 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. 63, 64, 65

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. 49

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. 58, 59

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. 57

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. 52, 53

Zheng, J. : Monitoring network to be further expanded, China Daily, URL http://www.chinadaily.com.cn/china/2017-04/07/content_28827498.htm, 2017. 69

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. 60