



Année 2019/2020

Rapport de stage de Master 2

**« Pollution Particulaire Chinoise »**

Par  
Axel BENSE

Sous la direction de  
Gaëlle DUFOUR

avec la participation de  
Guillaume SIOUR  
Mathieu LACHATRE

## TABLE DES MATIERES

<b>Le Laboratoire LISA</b>	<b>3</b>
<b>Introduction</b>	<b>4</b>
<b>1. Première partie : contexte, outils et méthodologie</b>	<b>6</b>
1.1. Les polluants étudiés	6
1.1.1. Les polluants primaires inorganiques gazeux	7
1.1.2. Les aérosols inorganiques secondaires	7
1.2. Le modèle CHIMERE	9
1.3. Méthodologie et données	12
1.3.1. Données de sortie du modèle CHIMERE	12
1.3.2. Données de surface	13
1.3.3. Méthodologie d'analyse	15
1.4. Émissions récentes de polluants en Chine	16
<b>2. Deuxième partie : résultats sur l'Est de la Chine</b>	<b>19</b>
2.1. Évaluation du modèle CHIMERE	19
2.1.1. Comparaison des polluants avec des données de stations de surface	19
2.1.2. Comparaison pour l'ammoniac avec les observations du satellite IASI	23
2.2. Évolution des distributions spatiales des concentrations de surface des polluants	25
2.2.1. Diminution des polluants particulaires	25
2.2.2. Effets secondaires de la baisse des polluants primaires principaux	32
2.3. Tendances des concentrations sur des zones géographiques spécifiques	36
2.3.1. Résultats zone par zone	36
2.3.2. Synthèse des zones	41
<b>Conclusion générale.</b>	<b>43</b>
1. Conclusion scientifique	43
2. Conclusion sur le stage	44
<b>Annexes</b>	<b>45</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>47</b>
1. Articles scientifiques	47
2. Sites web	49

# Le Laboratoire LISA

Le Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA) est une unité mixte de l'Université PARIS-EST CRETEIL (UPEC), de l'Université de Paris (UP) et du Centre national de la recherche scientifique (CNRS). Il fait partie de l'Observatoire des Sciences de l'Univers Enveloppes Fluides de la Ville à l'Exobiologie (OSU-EFLUVE) et de la Fédération de recherche Institut Pierre Simon-Laplace (IPSL).

Le directeur du LISA est Patrice COLL. L'annuaire du laboratoire compte 119 personnes partagées entre personnel permanent : maîtres de conférences, professeurs, ingénieurs, techniciens et chargés de recherches ; personnel non permanent parmi lequel doctorants, post doctorants et stagiaires.



Les activités de recherche du LISA sont :

**L'étude des aérosols désertiques**, dont le principal objectif est de mieux comprendre les phénomènes d'émissions et de dépôts des aérosols désertiques pour quantifier leurs impacts sur l'environnement.

**La spectroscopie**, consiste en l'étude de l'interaction matière-rayonnement afin d'interpréter les spectres des molécules observées dans l'atmosphère terrestre ou le milieu interstellaire.

**L'astrochimie et l'exobiologie** a pour objectif l'étude des processus chimiques qui peuvent permettre l'émergence de la vie dans l'Univers.

**L'étude du carbone organique** a pour objectif de comprendre l'évolution et l'impact des multitudes de réactions des composés organiques qui jouent un rôle sur la qualité de l'air.

**L'étude de la pollution photo-oxydante** dans la basse atmosphère. Elle est déclinée selon deux thèmes distincts suivant l'échelle spatiale considérée :

- le thème « Pollution urbaine et impacts sur le patrimoine et la santé », dont l'objectif est de relier les sources de pollutions à leurs impacts sanitaires et environnementaux, par exemple sur les matériaux du patrimoine, puis de proposer des solutions pour en réduire les effets néfastes.

- le thème « Pollution Grande Échelle : observation satellitaire et modélisation ». Ce stage s'inscrit dans ce dernier thème : il s'intéresse à la pollution particulaire en Chine et à son évolution récente.

J'ai choisi ce stage en priorité pour une raison liée à la composante « chimie ». En effet, la physique et la chimie de l'atmosphère m'intéressent et je voulais expérimenter cette thématique.

# Introduction

La qualité de l'air est un problème sociétal majeur : en 2016, 4.2 millions de décès dans le monde sont imputables à la pollution de l'air extérieur selon l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS, 2018). La qualité de l'air est particulièrement critique dans les pays à forte densité de population comme la Chine. En effet, la Chine est le pays le plus peuplé du monde : sa population a augmenté de 40 % depuis les années 1980 pour atteindre 1,4 milliards de personnes en 2017. La Chine s'est rapidement développée depuis la fin de l'époque de Mao Zedong, ce qui a généré une grande pollution d'origine humaine, particulièrement dans les zones les plus peuplées à l'Est de la Chine, avec de nombreux effets néfastes sur la santé humaine et les écosystèmes. Le développement économique et l'urbanisation rapides des dernières décennies en Chine ont conduit à une forte hausse des émissions de polluants et à des concentrations dépassant largement les seuils de pollution recommandés par l'OMS pour les polluants majeurs (ozone,  $PM_{2.5}$  et  $PM_{10}$ ), par exemple d'un facteur 5 à 10 en moyenne ces dernières années pour les particules fines  $PM_{2.5}$  dont le seuil annuel est fixé à  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (OMS, 2020). Pour faire face à l'augmentation de la pollution notamment particulaire, les autorités chinoises ont mis en place des nouvelles réglementations en imposant aux différentes provinces du pays (Figure 1) de réduire progressivement leurs émissions de dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ) depuis 2006 et d'oxydes d'azote ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ) depuis 2010.

Les observations de surface et les observations satellites montrent l'efficacité des réglementations mises en place avec une baisse significative des concentrations dans l'air du  $\text{SO}_2$  (Liu et al., 2018) et du  $\text{NO}_2$  (Liu et al., 2017) généralisée depuis 2013 en Chine. Les observations montrent aussi une diminution des concentrations de particules ces dernières années, de 30 % à 50 % des  $PM_{2.5}$  entre 2013 et 2018 dont 88 % attribuable aux réglementations, le reste à la météorologie (Zhai et al., 2019). Cependant, en contrepartie, une hausse de certains polluants est observée. C'est notamment le cas de l'ozone à la surface qui augmente du fait de la baisse des niveaux de  $\text{NO}_x$  et donc de la titration (dosage) de l'ozone par les  $\text{NO}_x$  dans les régions fortement urbanisées (Dufour et al., 2018). Plus inattendue, une augmentation des concentrations d'ammoniac ( $\text{NH}_3$ ) est également observée. Elle a été mise en évidence par les observations satellitaires de  $\text{NH}_3$  ; seules observations disponibles à l'échelle de la Chine. Lachatre et al. (2019) ont montré que cette augmentation était de 65% entre 2011 et 2015. À l'aide du modèle de chimie-transport CHIMERE, ils ont pu expliquer cette augmentation par la baisse des émissions du  $\text{NO}_2$  et du  $\text{SO}_2$  dont la moindre disponibilité dans l'atmosphère réduit la possibilité de formation de nitrate et du sulfate d'ammonium, déplaçant l'équilibre vers l'ammoniac en phase gazeux.

Pour cette étude, Lachatre et al. (2019) ne disposaient pas d'inventaires d'émissions prenant en compte les réductions d'émissions de polluants des dernières années en Chine. Ils ont alors approximé les émissions de  $\text{SO}_2$  et de  $\text{NO}_2$  pour 2013 et 2015 à l'aide d'observations satellitaires de  $\text{SO}_2$  et de  $\text{NO}_2$ . Depuis, un nouvel inventaire d'émissions chinois couvrant la période 2010-2017 est disponible (Zheng et al., 2018).

L'objectif de mon stage était d'utiliser les dernières simulations du modèle CHIMERE, incluant ce nouvel inventaire, pour évaluer les conséquences de la baisse des émissions de polluants sur les tendances des concentrations de polluants, à l'Est de Chine et dans les régions les plus polluées, et

d'infirmer ou de confirmer les conclusions de l'article de « Lachatre et al., (2019) » sur l'ammoniac et ses dérivés particuliers.

Dans une première partie de ce mémoire, sont présentés les principaux polluants présents en Chine, le modèle numérique CHIMERE, les stations de mesures des polluants et les émissions utilisées en entrée du modèle CHIMERE. Sont également présentées les données de sorties du modèle et la méthodologie développée au cours du stage pour analyser les simulations. La seconde partie commence par l'évaluation du modèle CHIMERE avec les observations de surface des stations et la comparaison avec les observations par satellite de l'instrument IASI. Pour comprendre les effets des baisses d'émissions sur les concentrations de surface des polluants étudiés, notamment l'ammoniac, les résultats issus des données de sortie du modèle traitées pendant la majeure partie du stage sont explicités sur l'ensemble de la Chine de l'Est puis par zones géographiques choisies dans l'Est de la Chine pour leur forte densité de population.



Figure 1 - Les provinces chinoises

# 1. Première partie : contexte, outils et méthodologie

## 1.1. Les polluants étudiés

Les composés atmosphériques peuvent être d'origine naturelle (volcans, déserts, océans, biosphère...), d'origine anthropique (activités humaines) ou à l'interface des deux, d'origine biogénique (champs, plantations). Ils sont appelés des polluants lorsqu'ils induisent une perturbation de la composition atmosphérique en ayant un effet nocif sur la santé des populations, sur les écosystèmes ou sur le climat [à partir de la loi LAURE 1996]. On distingue les polluants primaires des polluants secondaires. Les polluants primaires sont émis directement dans l'environnement comme par exemple les oxydes d'azote, le dioxyde de soufre, l'ammoniac ou certains COVs (Figure 2). Ces polluants peuvent réagir entre eux pour former des polluants dits secondaires ; par exemple des aérosols inorganiques formés par des espèces inorganiques telles le  $\text{SO}_2$ , l'acide nitrique issu des  $\text{NO}_x$  ou le  $\text{NH}_3$  ; des aérosols organiques secondaires (AOS) qui proviennent de l'oxydation des composés organiques volatils (COV). (Figure 2)

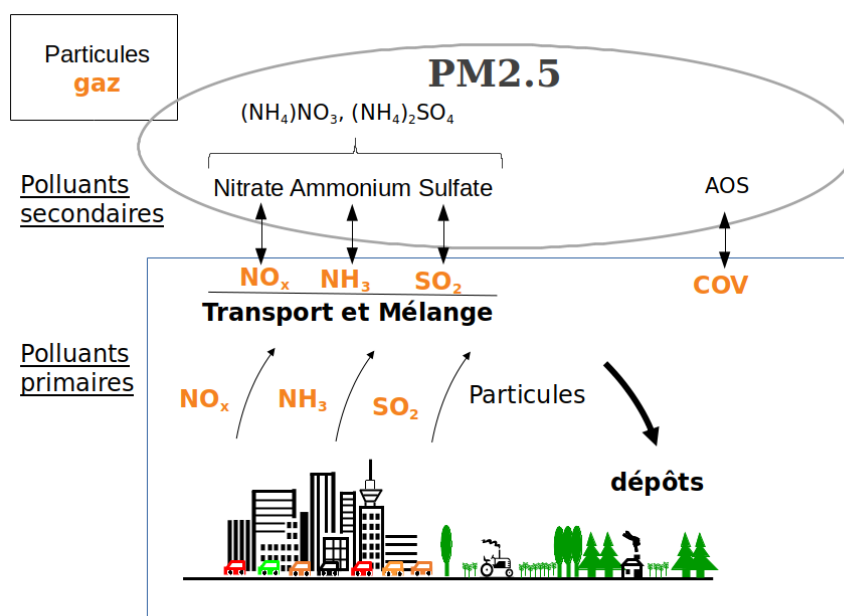
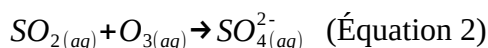


Figure 2 – De l'émission des polluants primaires jusqu'à leur transformation en  $\text{PM}_{2.5}$  secondaires et réciproquement la transformation des  $\text{PM}_{2.5}$  en gaz.

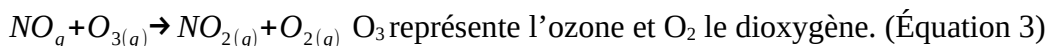
Au cours de mon stage, je me suis principalement intéressé aux polluants gazeux et particulaires suivants :

### 1.1.1. Les polluants primaires inorganiques gazeux

- Le dioxyde de soufre  $SO_2$  est un polluant majeur de l'Asie qui est aussi le plus gros émetteur mondial (Janssens-Maenhout et al., 2015). La source anthropique principale d'émission du  $SO_2$  est la combustion d'énergie fossile. Les deux plus gros contributeurs sont l'industrie et le secteur de l'énergie (Klimont et al, 2013). Le  $SO_2$  peut être émis par des sources naturelles comme l'activité volcanique, ou obtenu par oxydation du Diméthyle sulfure (DMS) émis par la biosphère océanique. Le  $SO_2$  est éliminé principalement par dépôt sec et par réaction en phase aqueuse avec formation de sulfate (Équation 1 et 2). Après oxydation en phase gaz par le radical hydroxyde OH et en présence d'humidité, il peut aussi former de l'acide sulfurique  $H_2SO_4$ . Il réagit principalement en phase aqueuse . Le temps de vie du  $SO_2$  va de 12h en été à 48h en hiver (Lee et al. 2011).



- Les oxydes d'azotes  $NO_x$ , qui regroupent le monoxyde d'azote  $NO$  et le dioxyde d'azote  $NO_2$ . Les principales sources anthropiques sont le transport, l'industrie et le secteur de l'énergie. Ils sont émis par les activités humaines sous forme de  $NO$  principalement (~90%) qui réagit rapidement pour former du  $NO_2$  (Équation 3) ; ce dernier est majoritaire en termes de concentrations. Une partie des  $NO_x$  est émise naturellement par les sols ou provient des orages (Janssens-Maenhout et al., 2015). Les  $NO_x$  sont éliminés par dépôt sec et majoritairement par formation d'acide nitrique  $HNO_3$ , via la réaction avec le radical hydroxyle OH (Équation 4). Le temps de vie des oxydes d'azote est de l'ordre de 24h, ce sont des polluants à courte durée de vie (Seinfeld et Pandis, 2006) qui réagissent près de leur lieu d'émission.



- L'ammoniac  $NH_3$ . La Chine est le plus grand émetteur mondial d'ammoniac, à hauteur de 20 %, avec entre 10 Mt et 15 Mt émises chaque année. Le secteur agricole est responsable de 90 % des émissions de  $NH_3$  (Kang et al., 2016) dont 50 % issues de l'élevage et 40 % issues des fertilisants. Il peut être éliminé par dépôt sec ou se dissoudre dans l'eau pour former des particules d'ammonium en présence de  $SO_2$  et  $HNO_3$  dissous.

### 1.1.2. Les aérosols inorganiques secondaires

Les aérosols, aussi appelés particules atmosphériques ou simplement particules, regroupent l'ensemble des particules liquides ou solides en suspension dans l'air. Ils sont définis par un mélange varié et complexe de toutes les possibilités (taille, forme, ...) offertes par cette définition.

Ils peuvent être ainsi classés selon différents critères. Les aérosols primaires, c'est à dire émis directement dans l'atmosphère sous forme particulaire (suies), sont à distinguer des aérosols secondaires, formés à partir de précurseurs gazeux dans l'atmosphère. On peut aussi distinguer les

aérosols anthropiques, émis par les activités humaines, des aérosols naturels (poussières minérales), ou encore faire la distinction entre les aérosols organiques et ceux inorganiques. La taille des aérosols s'étend sur plusieurs ordres de grandeur, du nanomètre à la dizaine de microns. La taille est un facteur déterminant pour le temps de vie des aérosols dans l'atmosphère (Foret et al., 2006) : elle impacte les distances parcourues par l'aérosol, le type et la vitesse de dépôt. Les aérosols peuvent ainsi être éliminés préférentiellement par dépôt sec ou par dépôt humide selon leur taille. En plus de leur contribution à la baisse de la qualité de l'air, ces composés agissent aussi sur le climat par forçage radiatif. Les réglementations des aérosols font la distinction entre deux classes de tailles : les  $PM_{2.5}$ , espèces particulaires dont le diamètre est inférieur à  $2.5 \mu m$ , et les  $PM_{10}$ , qui ont un diamètre inférieur à  $10 \mu m$ . En Chine, les particules fines ( $PM_{10}$  et les  $PM_{2.5}$ ) proviennent majoritairement des activités humaines et sont très concentrées dans les régions densément peuplées (Lachatre et al., 2020).

Dans le cadre de ce stage, je me suis principalement intéressé à la fraction inorganique des  $PM_{2.5}$  que sont :

- les particules d'ammonium  $NH_4^+(p)$  qui sont issues principalement des réactions de l'ammoniac avec l'acide nitrique (Équation 5) et des réactions de l'ammoniac avec l'acide sulfurique (Équation 6). Elles représentent entre 25 % et 60 % de la masse totale des  $PM_{2.5}$  présente dans l'atmosphère terrestre (Fang et al., 2009) et au moins 40 % dans l'Est de la Chine (Yang et al., 2011).





## 1.2. Le modèle CHIMERE

CHIMERE est un modèle eulérien de chimie-transport qui modélise des processus physiques et chimiques en fonction de l'espace et du temps à partir d'une situation initiale donnée. CHIMERE a été conçu en 1997 par trois laboratoires français : le LISA, le Laboratoire de Météorologie Dynamique LMD (Paris et Palaiseau) rattachés à l'IPSL et l'Institut National de l'Environnement et des Risques Industriels INERIS (Verneuil en Halatte). C'est un modèle libre de droit (licence GNU). Il était utilisé à l'origine pour faire de la prévision à Paris et dans les zones urbaines. À présent il est utilisé à l'échelle européenne (Copernicus, <https://www.copernicus.eu/en>) ; à l'échelle nationale (Prevair, <http://www2.prevair.org/>) et à l'échelle régionale par des associations françaises d'informations publiques sur la qualité de l'air mandatées par l'État (AIRPARIF, <https://www.airparif.asso.fr/>). Une version appelée PolEASIA, du nom du projet ANR qui sous-tend cette configuration, a été mise en place pour les prévisions dans l'Asie de l'Est.

### Aspect spatial

CHIMERE est un modèle eulérien, il discrétise donc l'espace vertical et horizontal en une multitude de mailles telles que représentées sur la Figure 3. Chaque maille représente une portion de l'atmosphère. Tous les paramètres météorologiques et chimiques sont supposés homogènes dans ces mailles. Le modèle, simule les différents processus pris en compte dans chaque boîte (émissions, dépôts, chimie et advection) comme représenté sur la Figure 3. Les résolutions horizontales typiquement utilisées par ce type de modèle vont de la centaine de kilomètres pour la version hémisphérique (Mailler et al., 2017) au kilomètre pour les études d'échelle locale (Markakis et al. 2016). La hauteur des boîtes n'est pas constante et dépend de la pression qui est plus forte au niveau du sol : plus la boîte est proche du sol plus sa hauteur est petite ce qui permet une modélisation plus précise des échanges dans la couche limite.

La version de CHIMERE utilisée au cours de ce stage, est une version dite « off-line », c'est-à-dire que les champs météorologiques sont pré-calculés par le modèle IFS d'ECMWF (<https://www.ecmwf.int/>). Les concentrations de polluants à l'extérieur du domaine, sont issues d'une climatologie du modèle LMDz-INCA (Hauglustaine et al., 2004).

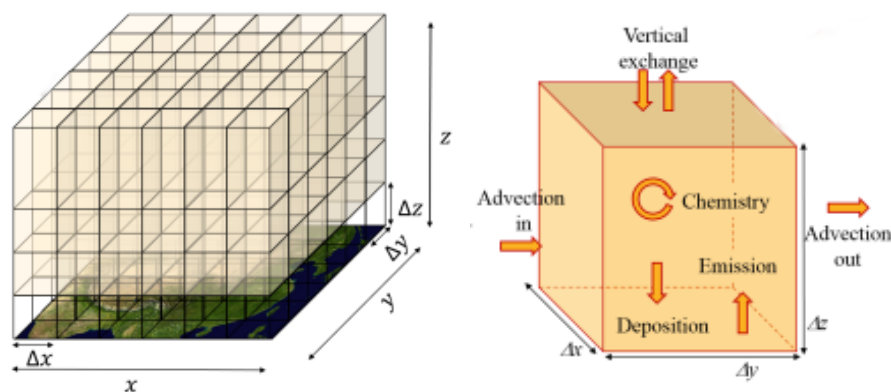


Figure 3 - Schématisation d'un modèle eulérien : à gauche un maillage tridimensionnel et à droite les processus pris en compte dans chaque boîte (Mathieu Lachatre, 2018)

## Les émissions

Dans le modèle CHIMERE, trois types d'émissions sont considérés. Les émissions biogéniques sont calculées en ligne par le modèle MEGAN (Guenther et al., 2006) en fonction des données météorologiques et des bases de données d'entrées du modèle (flux d'émissions, LAI).

Les émissions naturelles (sels marins, aérosols désertiques) sont paramétrées en fonction des données météorologiques et du type de sol.

Les émissions anthropiques proviennent de bases de données d'entrées. Pour cette étude, nous avons utilisé les émissions de l'inventaire MEIC décrites dans l'article Zheng et al. (2018). Les émissions sont discutées dans le chapitre sur les émissions.

Les émissions CAMS-GLOB-ANT (Granier et al., 2019) ont été utilisées pour les pays autour de la Chine et pour ajouter les émissions issues du transport maritime qui était absent de l'inventaire MEIC.

## La chimie du modèle

Les données analysées durant ce stage ont été calculées avec le mécanisme chimique **SAPRC-07-A**, version réduite du schéma SAPRC-07 développé par Carter en 2010.

La plupart des espèces primaires émises réagissent dans l'atmosphère par des réactions de photo-oxydation. La description complète de toutes les étapes d'oxydation, fait appel à un très grand nombre de réactions, typiquement de l'ordre du million de réactions pour oxyder l'octane en  $\text{CO}_2$  (Aumont et al., 2005). L'implémentation de tels schémas est impensable dans un modèle tridimensionnel. C'est pourquoi la plupart des modèles tridimensionnels font appel à des schémas dits réduits. Le mécanisme chimique **SAPRC-07-A** développé par Carter (2010) a été utilisé dans la version du modèle ayant servi à simuler les données que j'ai utilisées. Il représente la chimie gazeuse atmosphérique à l'aide de 72 espèces chimiques gazeuses et 218 réactions.

CMAQ est un autre exemple de modèle numérique qui utilise SAPRC. CMAQ (<https://zenodo.org/record/1079878>) est un modèle américain libre de droit pour la conduite de simulations sur la qualité de l'air.

L'intérêt de ce schéma chimique est qu'il est mis à jour régulièrement par ses développeurs et qu'il est très souvent confronté aux expériences menées en chambre de simulation (1700 expériences d'après Kukkonen et al. 2011).

## Les aérosols

Dans la version 2017 de CHIMERE (Mailler et al., 2017), la représentation des processus qui affectent les aérosols tels que la nucléation, la coagulation et le dépôt humide ont été améliorés. Ces processus sont très dépendants de la taille des particules.

Dans ce modèle, l'utilisateur peut choisir un nombre N de classes de tailles comprises entre un diamètre minimal et un diamètre maximal à choisir. Le diamètre minimal recommandé est 0.01  $\mu\text{m}$ , le diamètre maximal 40  $\mu\text{m}$ . Selon le nombre N choisi, les tailles intermédiaires se répartissent de manière homogène entre le minimum et le maximum. En prenant  $N \geq 12$  avec les paramètres recommandés, le quotient entre deux tailles successives est toujours inférieur à deux et permet alors une représentation plus réaliste des processus liés aux aérosols.

Il existe différents types d'aérosols utilisés dans CHIMERE résumés dans la Figure 4. Les particules mises en avant dans les analyses de ce stage sont les particules anthropiques inorganiques (AIA). Le reste des aérosols inorganiques (sels de mer et poussières) n'est pas l'aspect principal de cette étude de même que les aérosols organiques (OA).

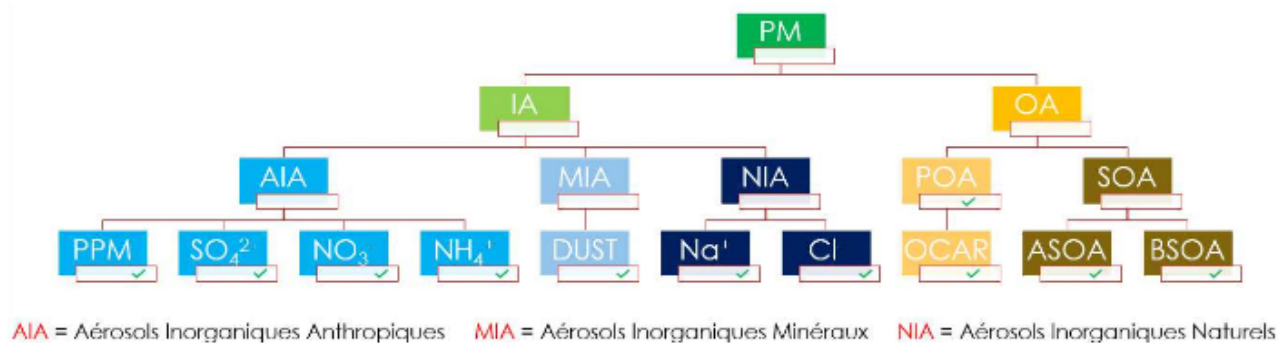


Figure 4 – Classes d'aérosols utilisées dans CHIMERE (M.Vida, 2020)

## 1.3. Méthodologie et données

Les polluants analysés au cours du stage sont le NO<sub>2</sub>, le SO<sub>2</sub>, le NH<sub>3</sub>, les PM<sub>2.5</sub>, les PM<sub>2.5</sub> primaires anthropiques inorganiques, directement émis sous forme particulaire dans l'atmosphère, qui seront notés PPM dans ce rapport et les particules d'ammonium NH<sub>4</sub><sup>+</sup><sub>(p)</sub>.

### 1.3.1. Données de sortie du modèle CHIMERE

Au cours de mon stage, les principales données que j'ai eues à analyser sont les données de sorties du modèle CHIMERE, issues d'une nouvelle simulation sur la Chine couvrant la période du 01/01/2010 au 31/12/2017. Le domaine considéré couvre la Chine (Figure 5) sans inclure les régions les plus à l'Ouest comme le Xinjiang et le Tibet, beaucoup moins peuplées et polluées que les régions à l'Est. Le Japon et la Corée du Sud sont également inclus dans le domaine. La grille est composée de 185 points en longitude (de 100°E à 146°E) ; 121 points en latitude (de 20°N à 50°N) avec une résolution de 0.25x0.25°. Il y a donc 22385 points sur la grille quelle que soit l'espèce étudiée.

Je disposais de fichiers de sorties prétraités : un fichier contenant des données mensuelles incluant 6 variables par polluant gazeux :

- le rapport de mélange en volume des polluants qui est le rapport du nombre de molécules du polluant avec le nombre de molécules d'air contenues dans un volume d'1 cm<sup>3</sup>. Il s'exprime en ppbv ;
- la densité de l'air (airm, en molécules/cm<sup>3</sup>) ;
- l'altitude (hlay) du sommet de la boîte considérée par rapport au sol. Les unités s'expriment en mètres ;
- la longitude et la latitude sont exprimées en degrés ;
- la date, en mois : le premier mois commence en 01/2010 et le dernier (le 96<sup>e</sup>) finit en 12/2017.

Pour les aérosols (espèces particulières), les trois premières variables sont remplacées par la concentration massique (µg/m<sup>3</sup>) de l'espèce classée par taille :

- la fraction de l'espèce dont la taille est inférieure à 2,5 µm ;
- la fraction comprise entre 2,5 µm et 10 µm ;
- l'ensemble des fractions précédentes.

J'ai analysé principalement les concentrations de surface simulées par CHIMERE. Cependant, afin de comparer les concentrations de NH<sub>3</sub> avec celles observées par satellite, il a fallu calculer les colonnes atmosphériques de NH<sub>3</sub> et les moyennner sur l'année. Pour chaque point de grille (i,j,k), il faut intégrer les concentration sur les niveaux d'altitude notés k pour chaque mois notés l :

$$C_{/s}(i, j, l) = \sum_{k=1 \text{ à } 17} C(i, j, k, l) * (hlay(i, j, k, l) - hlay(i, j, k - 1, l)) * airm(i, j, k, l) \quad (\text{Équation 7})$$

Les émissions sont exprimées en flux (molécules/seconde/cm<sup>2</sup>) dans le modèle CHIMERE. Pour le calcul des émissions totales annuelles, il faut convertir les flux par seconde et par maille en émissions annuelles par maille, puis multiplier par la surface de la maille<sup>1</sup> correspondante et additionner l'ensemble.

$$E = \frac{M}{Na} \sum_{\text{mailles}} \sum_{\text{année}} F(i, j, t) * S(i, j) * \delta t$$

avec E les émissions totales annuelles (Mt), M la masse molaire, Na le nombre d'Avogadro (6.02 x 10<sup>23</sup>), F le flux, S la surface et δt la durée. (Équation 8)

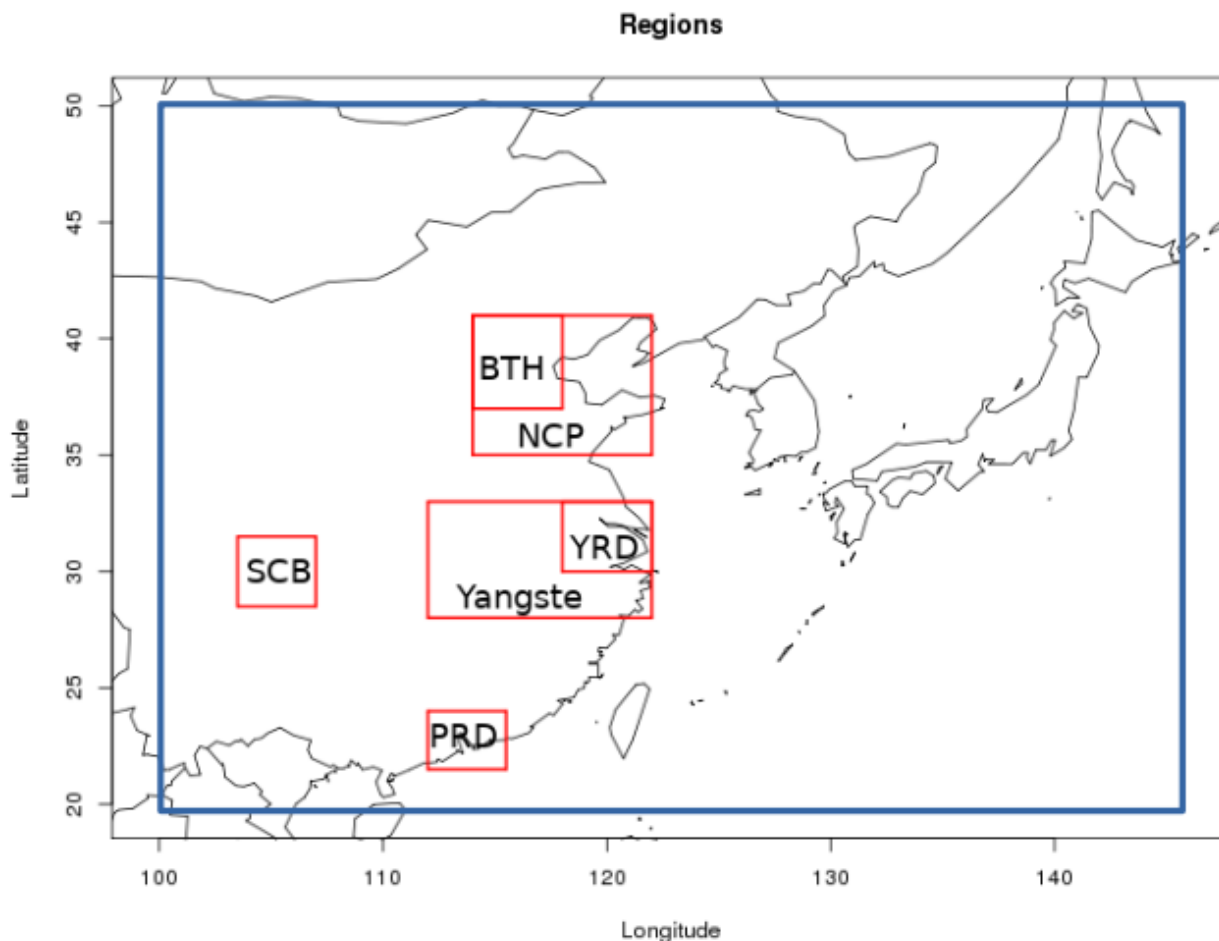


Figure 5 - Carte de l'ensemble du domaine en bleu ; des régions en rouge

### 1.3.2. Données de surface

Les données des stations proviennent du site du ministère Chinois de l'écologie et de l'environnement (MEE, <http://english.mee.gov.cn/>). Le réseau de stations a été installé à partir de 2013 avec 450 stations mises en œuvre (pour la plupart dans les grandes villes) pour atteindre en 2017 1500 stations réparties dans 330 villes. Les stations mesurent les concentrations de l'ensemble des polluants surveillés à savoir le SO<sub>2</sub>, les NO<sub>x</sub>, le monoxyde de carbone CO, l'ozone O<sub>3</sub>, les PM<sub>2.5</sub>

<sup>1</sup> . La superficie dépend du cosinus de la latitude : les mailles situées aux latitudes les plus basses (les plus proches de l'équateur) sont les plus grandes. Pour une latitude donnée toutes les mailles ont la même surface.

et PM<sub>10</sub>. La fréquence d'acquisition des stations est d'une mesure toutes les heures. Nous disposons dans le cadre du stage des données des stations de surface à partir de 2014.

Les stations fixes, placées en divers lieux, sont classées selon le type d'environnement par la méthode de Flemming (Flemming et al., 2005) utilisant l'ozone et son cycle diurne pour analyser la nature des stations. Cette méthode définit 6 catégories de stations en fonction de la variabilité journalière comme suit  $\frac{C_{maxj} - C_{minj}}{C_{moyj}}$  (Équation 9),  $C_{maxj}$  et  $C_{minj}$  les concentrations horaires journalières maximale et minimale et  $C_{moyj}$  la concentration moyenne journalière.

Plus ce quotient est élevé, plus les stations se rapprochent d'un environnement urbain pollué défini par une grande variabilité journalière.

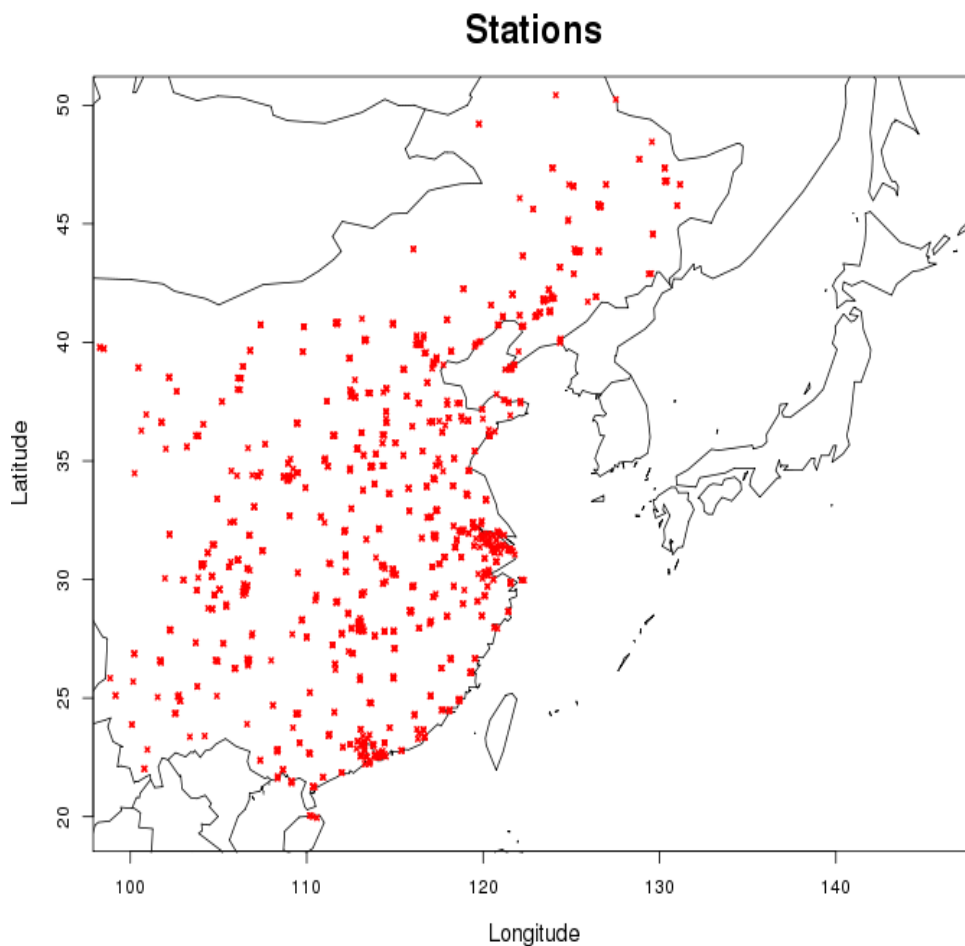


Figure 6 – Stations de mesures du MEE à l'Est de la Chine.

Les différentes classes de stations sont définies comme suit : M pour Montagne ; R pour Rural ; U1 pour péri-urbain ; U2 pour Urbain ; U3 pour Urbain Dense et S pour Street, les stations proches du trafic. Ces discriminations permettent aux stations de représenter l'environnement dans lequel elles se trouvent pour une interprétation plus juste des mesures.

### 1.3.3. Méthodologie d'analyse

Le traitement des données des fichiers de sortie du modèle CHIMERE a été réalisé sous l'environnement R. J'ai développé plusieurs codes (Annexe 1) pour :

- calculer les moyennes annuelles des concentrations de surface sur la grille du modèle. Chaque point de la carte est une concentration mensuelle. Il faut faire la somme des valeurs mensuelles de l'année voulue pour tous les points de la carte indépendamment les uns des autres et moyenner. On répète l'opération pour chacune des huit années.

$$\frac{1}{12} \sum_{m=1}^{12} C(i, j, m) \text{ avec } i \text{ la variable de la longitude, } j \text{ celle de la latitude et } m \text{ le mois. (Équation 10)}$$

- calculer les moyennes spatiales et mensuelles pour plusieurs zones géographiques concernées (forte concentration de population) pour analyser les séries temporelles de l'évolution des polluants sur ces différentes régions (Figure 4). Après avoir défini un périmètre rectangulaire sur la carte pour différentes zones, il faut additionner les concentrations mensuelles de chaque point dans la zone et diviser par le nombre de points dans le rectangle.

$$\frac{1}{i * j} \sum_{i,j}^{i * j} C(i, j, m) \text{ (Équation 11)}$$

- calculer les anomalies mensuelles afin de pouvoir calculer les tendances des concentrations des polluants par régression linéaire. À partir des moyennes spatiales mensuelles il faut calculer la moyenne mensuelle sur les 8 ans pour chaque mois de l'année, à savoir 12 concentrations. Ensuite soustraire leur moyenne respective aux 96 mois de la période. Enfin il faut calculer la régression linéaire (fonction disponible dans R). Cette technique permet de s'affranchir des variations saisonnières.

Les résultats obtenus sous forme de cartes ou de graphiques sont discutés dans la deuxième partie.

Pour évaluer les simulations de CHIMERE, je me suis appuyé sur des scripts déjà existants de comparaison des sorties de CHIMERE aux stations de surface. Les principales grandeurs statistiques qui sont utilisées pour cette évaluation sont :

- Le biais,  $\frac{\sum_{1}^n (y_{PRED} - y_{REF})}{n}$ , les valeurs des stations (référence) sont soustraites aux valeurs du modèle pour les toutes les mesures prises dans l'année. (Équation 12)

- Le coefficient de corrélation, sans unité.

- L'erreur quadratique moyenne RMSE,  $\sqrt{\frac{\sum_{1}^n (y_{PRED} - y_{REF})^2}{n}}$  avec n le nombre d'heures dans une année. (Équation 13)

Ces grandeurs sont calculées à partir des maximums journaliers ou à partir des moyennes journalières, année par année.

## 1.4. Émissions récentes de polluants en Chine

Les **émissions** de polluants correspondent aux quantités de polluants directement rejetées dans l'atmosphère par les activités humaines (cheminées d'usines ou de logements, pots d'échappement, agriculture...) ou par des sources naturelles (volcans, les sols) ou biogéniques (composés émis par la végétation, à l'interface homme-nature) et sont exprimées par exemple en millions de tonnes par an pour un pays comme la Chine. 35 % des émissions de polluants dans le monde sont produits par la Chine (Hoesly et al, 2018). Les principaux polluants émis sont le SO<sub>2</sub> et les NO<sub>x</sub>.

Les données d'entrée de CHIMERE qui concernent les émissions sont issues principalement de dernière version de l'inventaire régional MEIC ; inventaire qui fournit les émissions pour chaque année entre 2010 et 2017 ; qui inclut les diminutions récentes des émissions des principaux polluants. En effet les réglementations chinoises sur les émissions anthropiques (Figure 7) sont nombreuses entre de 2010 à 2017 (Zheng et al.,2018) : les émissions ont diminué de **62 % pour le SO<sub>2</sub>, 17 % pour les NO<sub>x</sub>, 35 % pour les PM<sub>2.5</sub> (primaires)**. Le NH<sub>3</sub> qui n'est pas réglementé est resté stable (+1 % entre 2010 et 2017). La plupart des réductions des émissions ont pris effet à partir de 2012, année où la législation s'est durcit après de nombreuses années de pressions (mobilisations fortes) par la population et les ONG internationales.

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		
		GB 26453-2011								
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					

Figure 7 - Réglementations des émissions (Zheng et al . 2018) en Chine par secteurs entre 2010 et 2017.



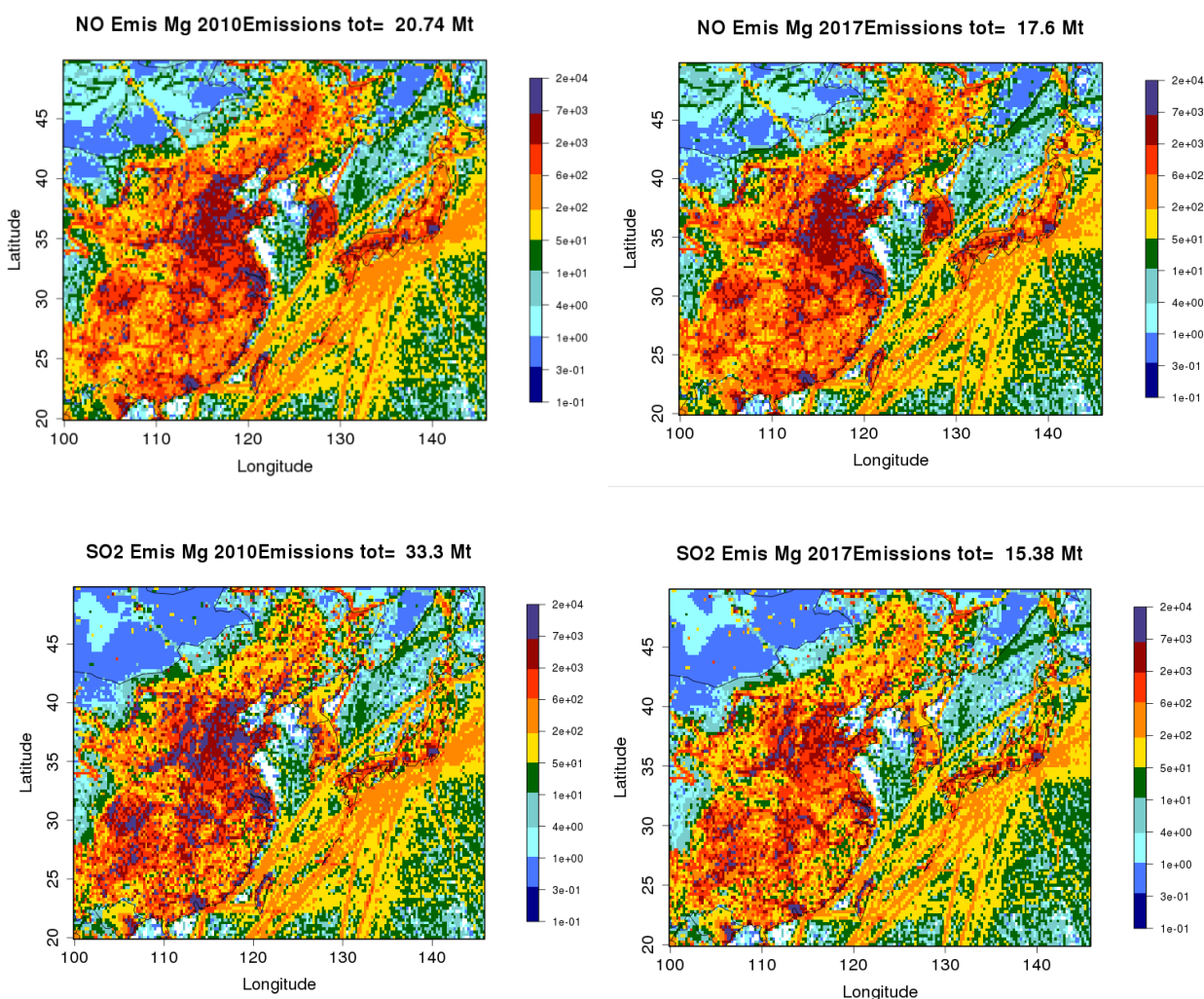
Ci-dessous sont présentées les émissions des polluants ; à savoir le NO, SO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub> pour les gaz et les PM<sub>2.5</sub> primaires pour les particules ; telles que représentées par CHIMERE, entre les années 2010 et 2017. Le domaine représenté (l'Est de l'Asie) est celui de la Figure 5 (couleur bleue).

Les émissions de NO<sub>x</sub> augmentent de 2010 à 2012 puis baissent jusqu'en 2017. Entre 2010 et 2017, les émissions varient de 20.7 Mt à 17.6 Mt (-15 %) pour le NO seul et de 22.5 Mt à 19.1 Mt pour les NO<sub>x</sub> (-15 %). Les mesures prises en 2013 pour le trafic routier et celles prises la même année pour l'industrie ainsi que les mesures de 2016 pour le secteur de l'énergie sont à l'origine de la baisse des NO<sub>x</sub>.

Les émissions du SO<sub>2</sub> passent de 33.3 Mt en 2010 à 15.4 Mt en 2017 (-54 %). Les mesures prises sur la production d'acier en 2012 et les standards stricts de 2016 sur les centrales à charbon ont permis de réduire de moitié les émissions de SO<sub>2</sub>.

Les émissions du NH<sub>3</sub> restent quasiment constantes. Les variations des concentrations d'ammoniac dans l'atmosphère ne peuvent donc pas être attribuées à des changements dans les émissions d'ammoniac.

Les PM<sub>2.5</sub> primaires anthropiques inorganiques (PPM) voient leurs émissions diminuer, passant de 6.7 Mt en 2010 à 4.1 Mt en 2017. La baisse des émissions commence en 2013, année de création des réglementations sur l'ensemble de l'industrie et sur l'ensemble des véhicules ; amélioration de la qualité de l'essence et retrait des véhicules les plus anciens.



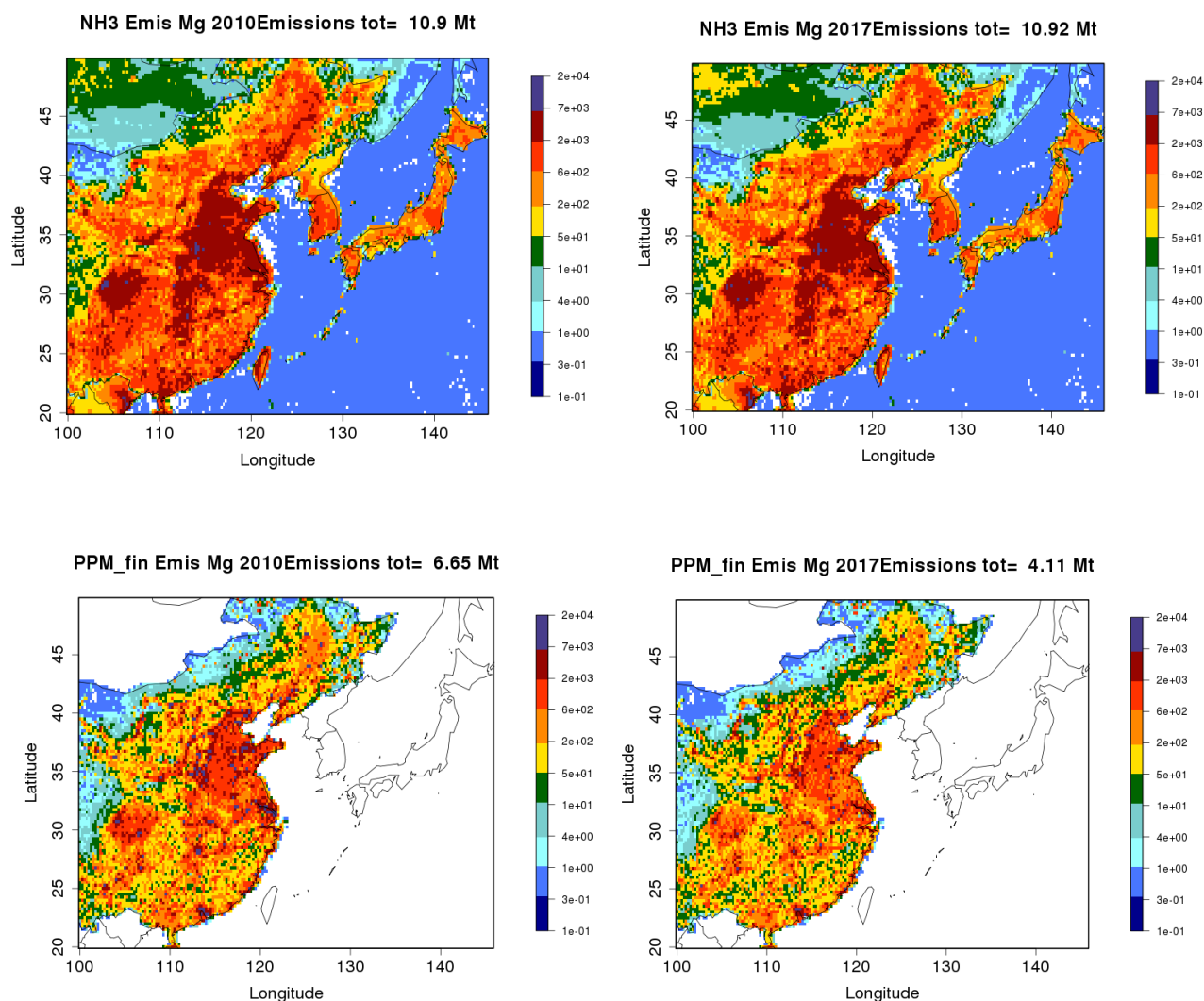


Figure 8 : Les émissions de 2010 (colonne gauche) et celles de 2017 (colonne droite) pour les polluants gazeux en Asie et pour les  $PM_{2.5}$  à l'Est de la Chine. Échelle de type logarithme en tonnes. Les émissions de NO sont majoritaires par rapport au  $NO_2$  ce qui justifie le choix de le montrer en priorité.

## 2. Deuxième partie : résultats sur l'Est de la Chine

### 2.1. Évaluation du modèle CHIMERE

#### 2.1.1. Comparaison des polluants avec des données de stations de surface

Pour évaluer les capacités de la dernière simulation du modèle CHIMERE disponible sur la Chine à reproduire les concentrations des polluants, nous avons comparé les concentrations atmosphériques simulées des principaux polluants – NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> et PM<sub>2.5</sub> – aux concentrations mesurées de l'année 2014 à l'année 2017. Dans un premier temps, nous présentons un tableau récapitulatif selon les années et selon les grandeurs statistiques décrites en première partie (Tableau 1).

Nombre de stations par année	NO <sub>2</sub> (ppb) 459-690-688-715	SO <sub>2</sub> (ppb) 459-690-688-715	PM <sub>2.5</sub> (µg/m <sup>3</sup> ) 460-690-688-714
Biais 2014	7.7 (+21 %)	39.2 (+137%)	10.5 (+19%)
RMSE 2014	26.4 (71 %)	57.8 (201%)	44.8 (80%)
Coeff.cor 2014	0.25	0.34	0.32
Biais 2015	1.7 (+5 %)	21.2 (+83%)	8.5 (+16%)
RMSE 2015	22.1 (67 %)	41.2 (162%)	41.4 (79%)
Coeff.cor 2015	0.31	0.36	0.42
Biais 2016	0.66 (+2%)	15.4 (+70%)	6.9 (+15%)
RMSE 2016	21.5 (65%)	33.7 (154%)	34.8 (75%)
Coeff.cor 2016	0.35	0.36	0.46
Biais 2017	-0.09 (-0.3 %)	12.8 (+69%)	5.35 (+12 %)
RMSE 2017	21.7 (64 %)	27.9 (151%)	35.1 (79%)
Coeff.cor 2017	0.33	0.36	0.41

Tableau 1 – Les Grandeurs statistiques (biais, RMSE et corrélation) établies sur les moyennes de séries de concentrations horaires du NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub> pour toutes les stations de surface de 2014 à 2017 en Chine. Le Biais est calculé dans le sens « modèle - observations ».

Les Biais et les RMSE baissent entre 2014 et 2017 pour tous les polluants tandis que les coefficients de corrélation augmentent : le modèle reproduit mieux les observations pour les années les plus récentes. Cependant, il est difficile de comparer l'année 2014 avec les autres années car le nombre de stations disponible est beaucoup moins important (environ 250 stations de moins que pour les autres années). Pour les autres années, même si un meilleur accord semble se dessiner pour 2017

par rapport à 2015, les grandeurs statistiques restent très similaires avec des biais relativement faibles pour le  $\text{NO}_2$  et les  $\text{PM}_{2.5}$  et beaucoup plus importants pour  $\text{SO}_2$ . Les fortes valeurs pour les RMSE et les faibles valeurs pour les coefficients de corrélation traduisent la difficulté du modèle à reproduire correctement la variabilité journalière.

Les statistiques données dans le Tableau 1 sont calculées sur l'ensemble des stations quel que soit leur type. Cependant, compte tenu de la résolution du modèle ( $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ ), le modèle a plus de mal à reproduire les stations de type S (street) ou urbain dense (U3) par exemple. Le modèle est plus performant pour reproduire les concentrations de type péri-urbain (U1). Les Figures 9 à 11 montrent les concentrations moyennes observées et simulées à chaque station pour la période 2014-2017 ainsi que les indicateurs statistiques présentés dans la première partie pour  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  et  $\text{PM}_{2.5}$  respectivement. Pour les  $\text{PM}_{2.5}$ , on voit nettement que le modèle reproduit mieux les concentrations observées dans la région de la Plaine du Nord en Chine (région Nord-Est incluant Pékin). Cette tendance est un peu moins marquée pour  $\text{NO}_2$  et  $\text{SO}_2$ .

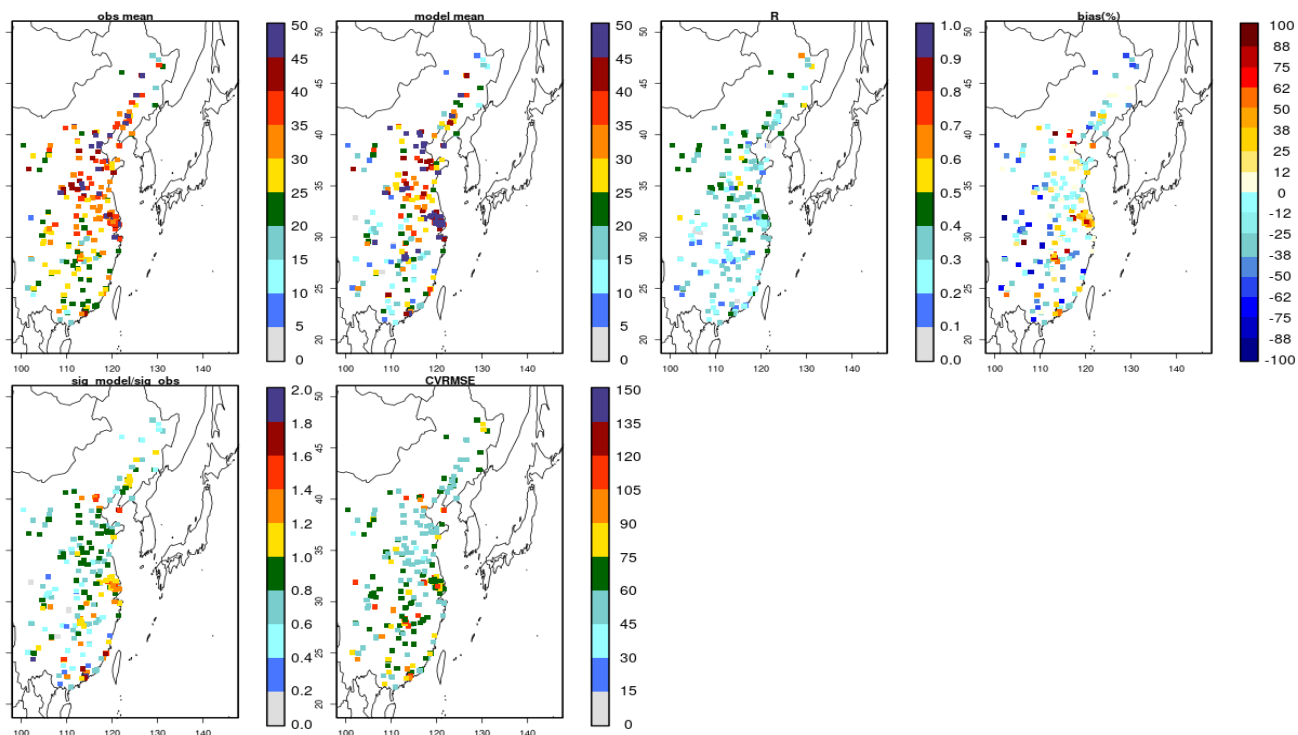


Figure 9 - Statistiques par station de type U1 (péri-urbain) sur la période 2014-2017 pour  $\text{NO}_2$  : moyenne observée, simulée, corrélation, biais, rapport de des écarts-types modèle et observation et RMSE.

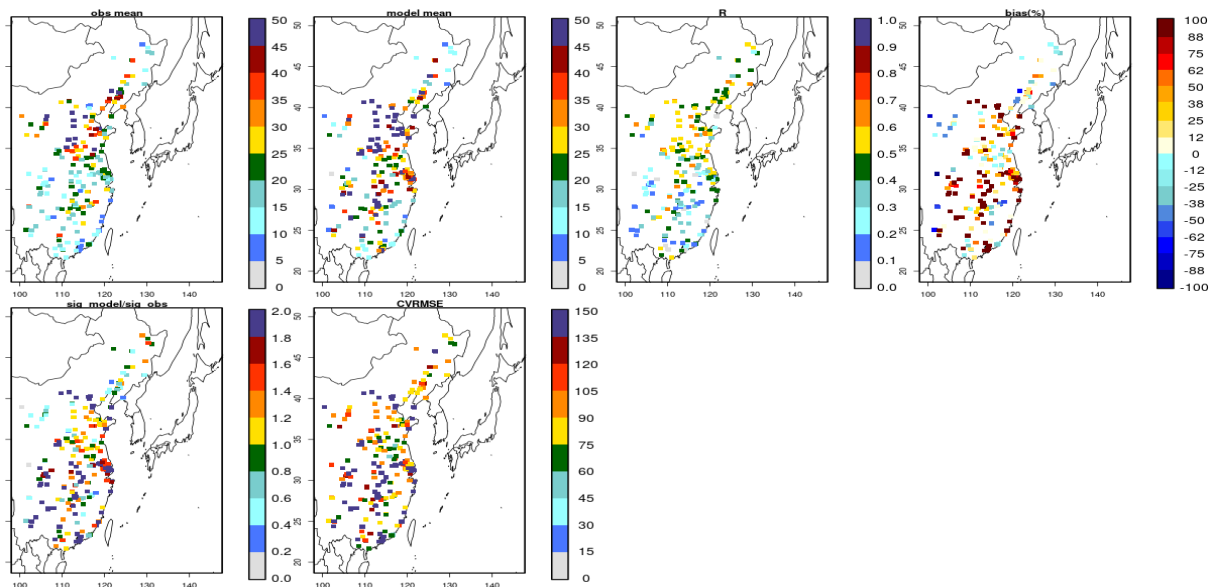


Figure 10 - Statistiques par station de type U1 (péri-urbain) sur la période 2014-2017 pour SO<sub>2</sub> : moyenne observée, simulée, corrélation, biais, rapport de des écarts-types modèle et observation et RMSE.

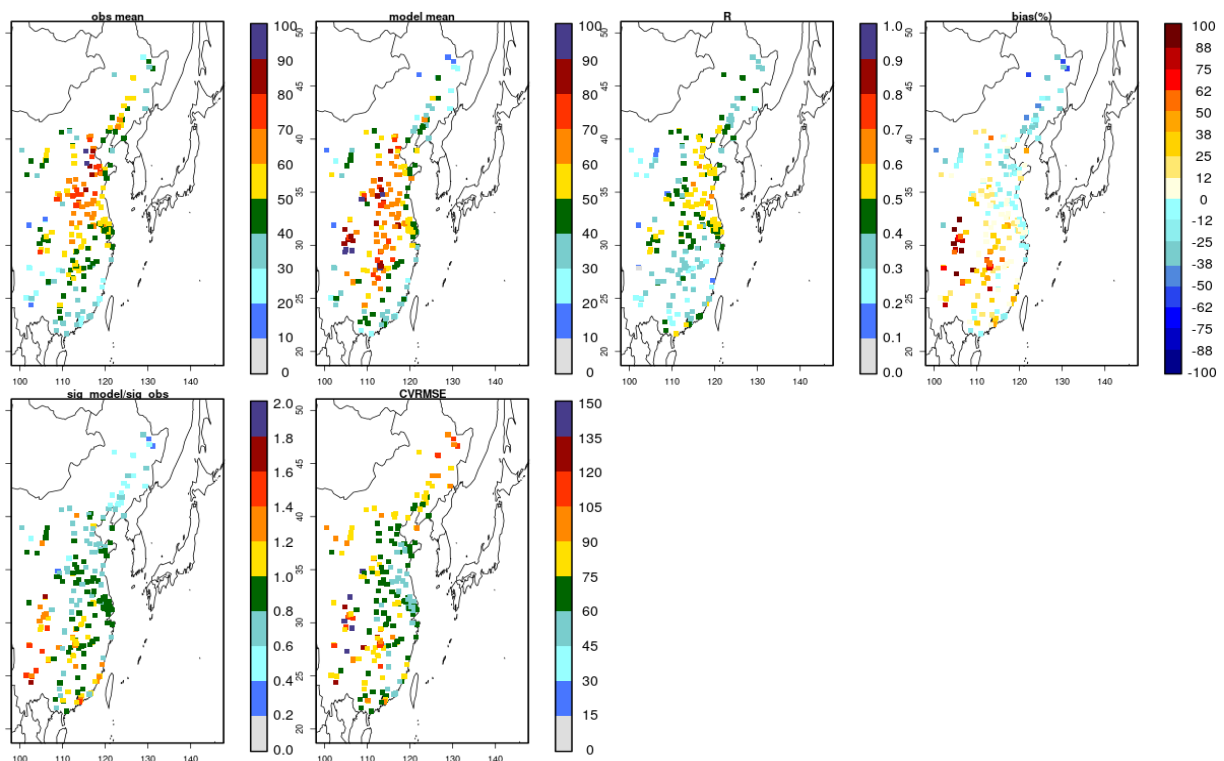


Figure 11 - Statistiques par station de type U1 (péri-urbain) sur la période 2014-2017 pour PM<sub>2.5</sub> : moyenne observée, simulée, corrélation, biais, rapport de des écarts-types modèle et observation et RMSE.

La Figure 12 présente les séries temporelles sur la période 2014-2017 pour NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> et PM<sub>2.5</sub> moyenné sur toutes les stations de type U1 (péri-urbain). Ceci nous permet de discuter les

performances du modèle en termes saisonnier et journalier. Comme mentionné précédemment, la comparaison pour l'année 2014 doit être considérée avec précaution car moins de stations sont disponibles et l'ensemble de l'année n'est pas couvert. Pour les autres années, on observe un comportement similaire d'une année à l'autre. Le NO<sub>2</sub> est sous-estimé par le modèle de décembre à mai et surestimé en été (JJAS) ce qui conduit à un biais global relativement faible (~5%). On observe une bonne corrélation journalière en octobre et en novembre. Le SO<sub>2</sub> est surestimé par le modèle de manière assez générale mais de manière plus prononcée en début d'hiver lorsque les concentrations observées sont les plus élevées. La variabilité journalière est également plus forte pour le modèle que pour les observations de surface ce qui se traduit par de fortes RMSE. Les concentrations des PM<sub>2.5</sub> ont un bon accord en hiver entre le modèle et les observations mais sont surestimées pendant l'été ce qui augmente la RMSE sur l'année. Là aussi, les faibles valeurs de biais des PM<sub>2.5</sub> (~10%) s'expliquent en partie par la compensation des valeurs sous-estimées et surestimées par le modèle en fonction des saisons.

Cette différence de performance du modèle en fonction de la saison se retrouve également en Europe. Par exemple, Mailler et al. (2017) montrent que le NO<sub>2</sub> simulé par CHIMERE a un biais négatif en hiver et un biais positif en été, comme dans notre cas. Le SO<sub>2</sub> est globalement surestimé, plus fortement en hiver (32%) qu'en été (14%) comme dans notre cas - l'oxydation du SO<sub>2</sub> en sulfate par CHIMERE comme source potentielle d'erreurs est mentionnée dans Ciarelli et al. (2016) et Bessagnet et al. (2016). Pour les PM<sub>2.5</sub>, la situation est différente en Europe avec un biais positif plus fort en hiver (35%) qu'en été (25%) alors qu'en Chine l'accord est meilleur en hiver qu'en été.

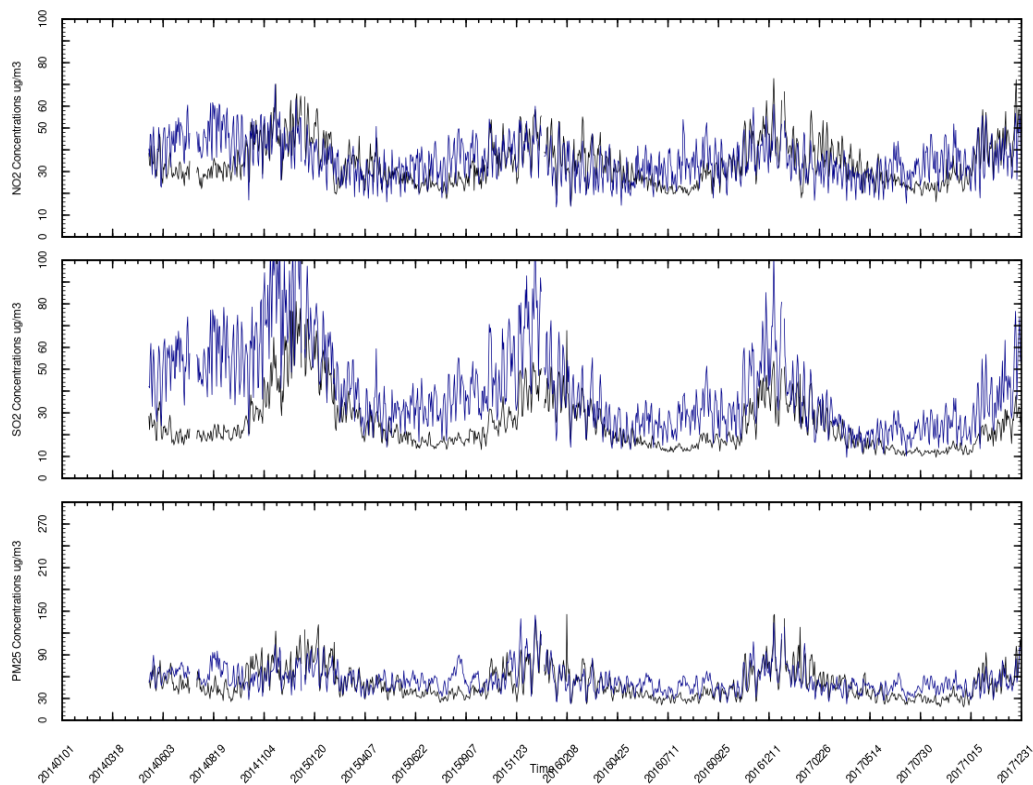


Figure 12 : Séries temporelles observées (noir) et simulées (bleu) de la moyenne journalière sur l'ensemble des stations de type U1 (péri-urbain) entre 2014 et 2017 pour NO<sub>2</sub> en ppb (haut), SO<sub>2</sub> en ppb (milieu) et PM<sub>2.5</sub> en µg/m<sup>3</sup> (bas).

## 2.1.2. Comparaison pour l'ammoniac avec les observations du satellite IASI

Le  $\text{NH}_3$  n'est que rarement mesuré par les réseaux de qualité de l'air. Dans le cas du réseau de stations chinois, aucune mesure du  $\text{NH}_3$  n'est disponible. Afin d'évaluer le modèle pour cette espèce, nous avons comparé les colonnes atmosphériques du modèle avec les observations satellites de l'instrument IASI. Le sondeur infrarouge IASI est embarqué à bord des satellites Metop et fournit 2 mesures quotidiennes du globe terrestre. Il mesure les colonnes de  $\text{NH}_3$  (Van Damme et al, 2017). Même si les erreurs de ces observations sont supérieures à 75 % pour la plupart des mesures, elles sont une source d'informations uniques pour valider le modèle.

La comparaison se fait pour les années 2011, 2013 et 2015 avec nos colonnes atmosphériques à l'Est de la Chine (110-125°E, 20-45°N).

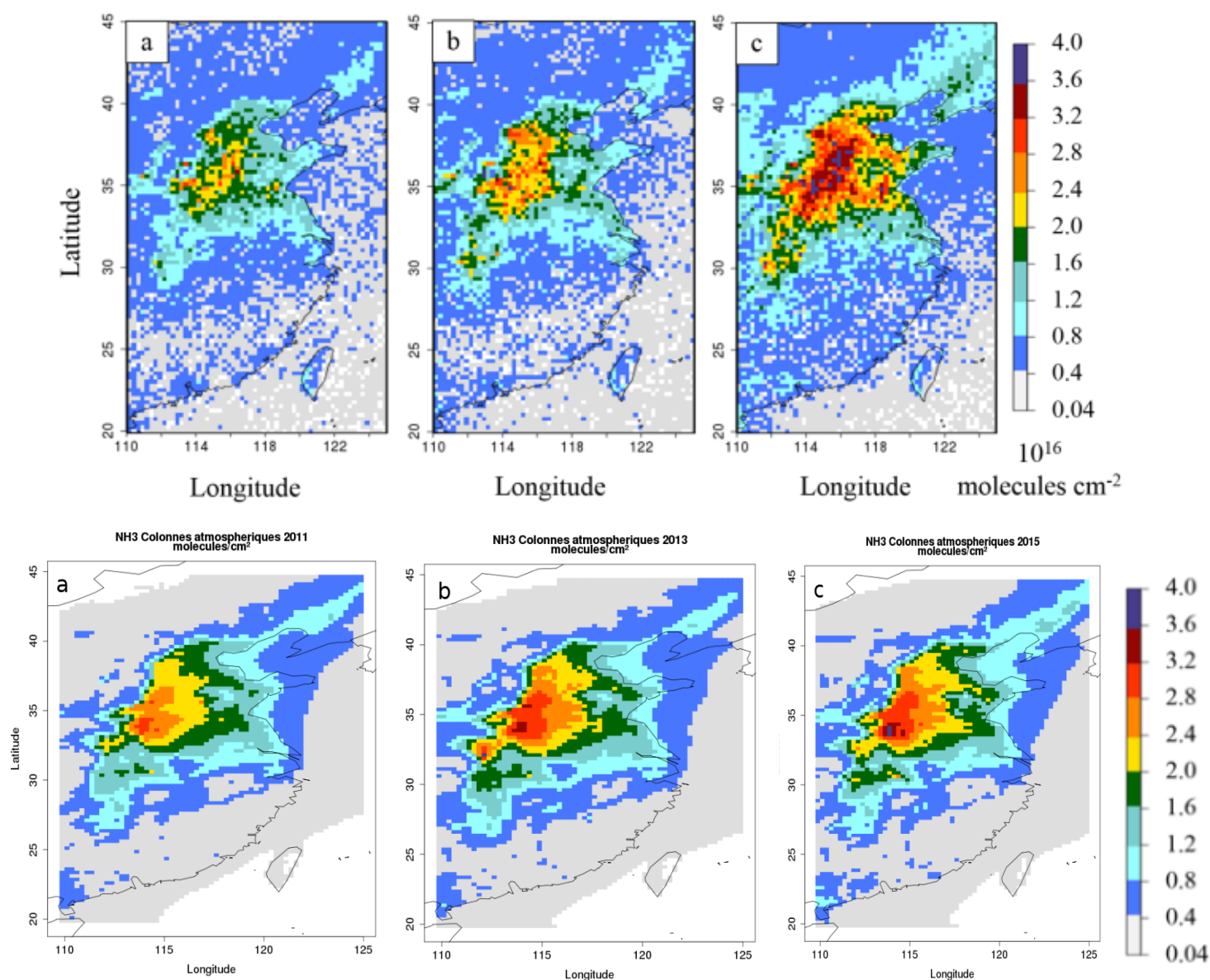


Figure 13 - Colonnes atmosphériques de NH<sub>3</sub> pour l'année 2011 (a), 2013 (b), 2015 (c) ; du satellite IASI provenant de Lachatre et al., 2019 (en haut) et de CHIMERE (en bas).

D'un point de vue qualitatif, les distributions spatiales simulées avec le modèle CHIMERE sont en bon accord avec les observations du satellite IASI. Comme attendu, la distribution spatiale du modèle est plus homogène que celle du satellite qui présente des forts gradients entre des mailles proches.

Colonnes de NH <sub>3</sub> dans l'Est de la Chine	IASI	CHIMERE
2011	<b>4.7 x 10<sup>15</sup></b> molécules/cm <sup>2</sup>	<b>5.3 x 10<sup>15</sup></b> molécules/cm <sup>2</sup>
2013	+15 %	+12 %
2015	+65 %	+15 %
2016	/	+22 %
2017	/	+45 %

Tableau 2 - Comparaison des colonnes atmosphériques annuelles de NH<sub>3</sub> en fonction de l'année 2011 dans l'East China pour le modèle CHIMERE et pour le satellite IASI.

En 2011, la comparaison des moyennes spatiales annuelles montre une plus grande valeur (+15 %) pour le modèle CHIMERE que pour le satellite IASI. En 2013, les augmentations relatives sont proches mais en 2015, l'augmentation est 4 fois plus grande pour le satellite que pour le modèle. Il faut attendre l'année 2017 pour que le modèle simule des augmentations de NH<sub>3</sub> du même ordre que celles observées par IASI.

Bien que les ordres de grandeurs comparés pour l'année 2011 soient proches, nos données sont des moyennes mensuelles qui ne sont pas uniquement basées sur les horaires de passage du satellite, ce qui peut induire une différence entre les résultats du modèle et ceux du satellite.

Il est intéressant de noter qu'une précédente simulation réalisée avec CHIMERE [Lachatre et al., 2019] rend compte de l'augmentation des colonnes de NH<sub>3</sub> de manière plus cohérente avec les observations IASI, avec une augmentation de 49% entre 2011 et 2015. Cependant, les schémas chimiques utilisés et les émissions utilisées pour la simulation réalisée avec la version de [Lachatre et al., 2019] ne sont pas les mêmes que ceux utilisés pour la simulation réalisée avec la version actuelle de CHIMERE. Une étude plus approfondie, externe à ce stage, est nécessaire pour comprendre les détails qui conduisent à ces différences.

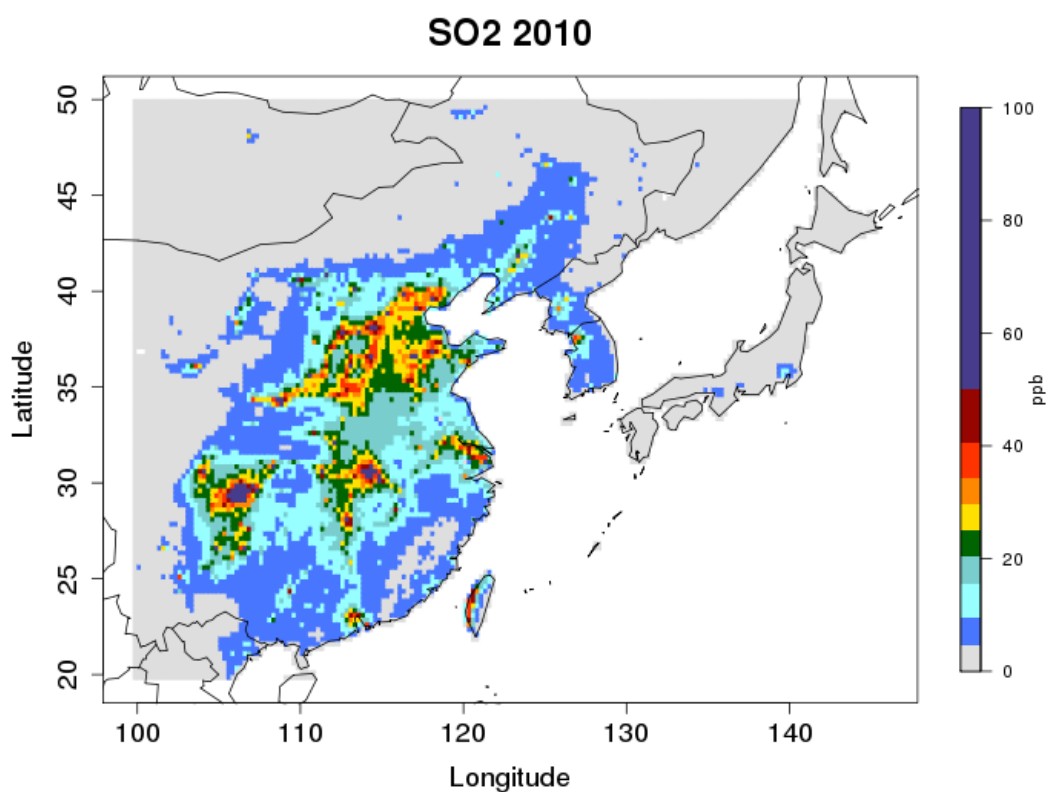


## 2.2. Évolutions des distributions spatiales des concentrations de surface des polluants

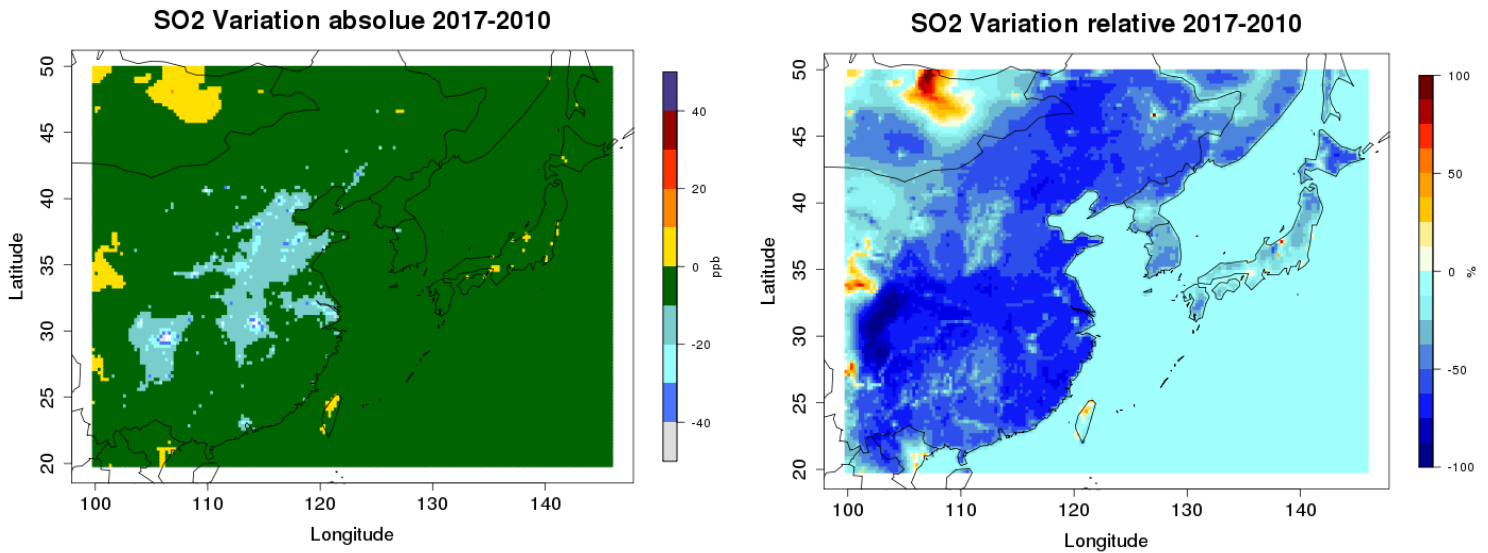
### 2.2.1. Diminution des polluants particuliers

Suite à la baisse des émissions des polluants principaux, NO<sub>2</sub> et SO<sub>2</sub>, je présente ci-dessous leur diminution en termes de concentrations de surface entre 2010 et 2017.

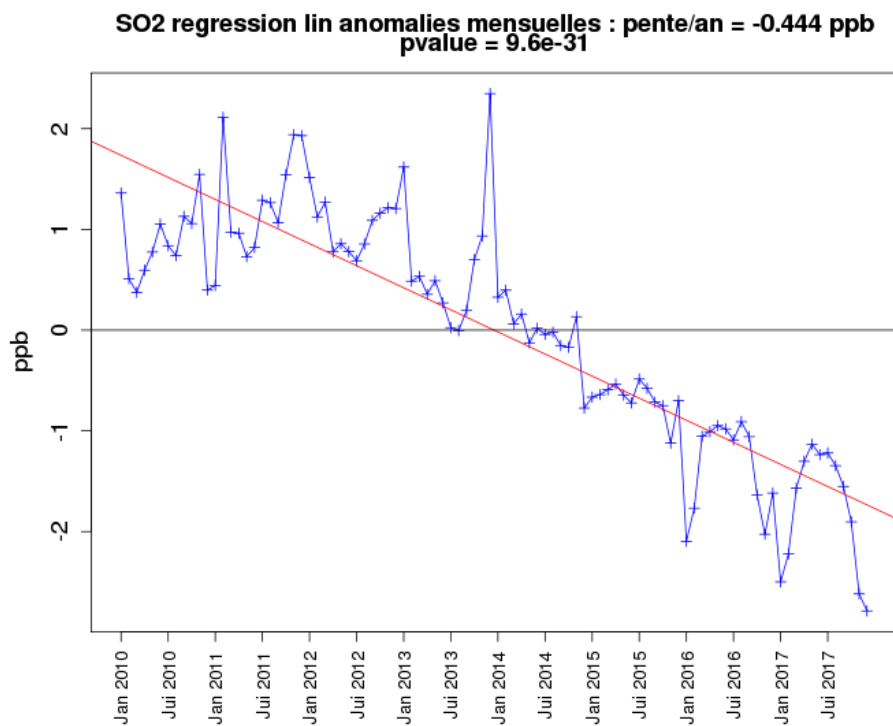
L'OMS ne définit pas de seuil de concentration moyenne annuelle pour le SO<sub>2</sub> mais le seuil journalier fixé à 20 µg/m<sup>3</sup> (soit 8 ppb dans les conditions de pression et température standards) est un bon indicateur de la sévère pollution au SO<sub>2</sub> à l'Est de la Chine en 2010 (Figure 14a), en notant que les seuils annuels (lorsqu'ils existent) sont toujours inférieurs aux seuils journaliers. Les concentrations du SO<sub>2</sub> baissent de l'ordre de 50 % de manière généralisée sur l'ensemble de l'Est de la Chine entre 2010 et 2017 (Figure 14b et 14c). La baisse est effective à partir de 2013 et de l'ordre de 3.5 ppb (85%) sur l'ensemble du domaine entre 2010 et 2017 (Figure 14d). Le SO<sub>2</sub> est le polluant primaire qui diminue le plus. Après les réglementations du secteur de l'industrie en 2013, celles de l'année 2016 appelées « ultra low standards » et qui concernent la production électrique, ont accru la baisse de SO<sub>2</sub> déjà effective.



(a)



(b) et (c)

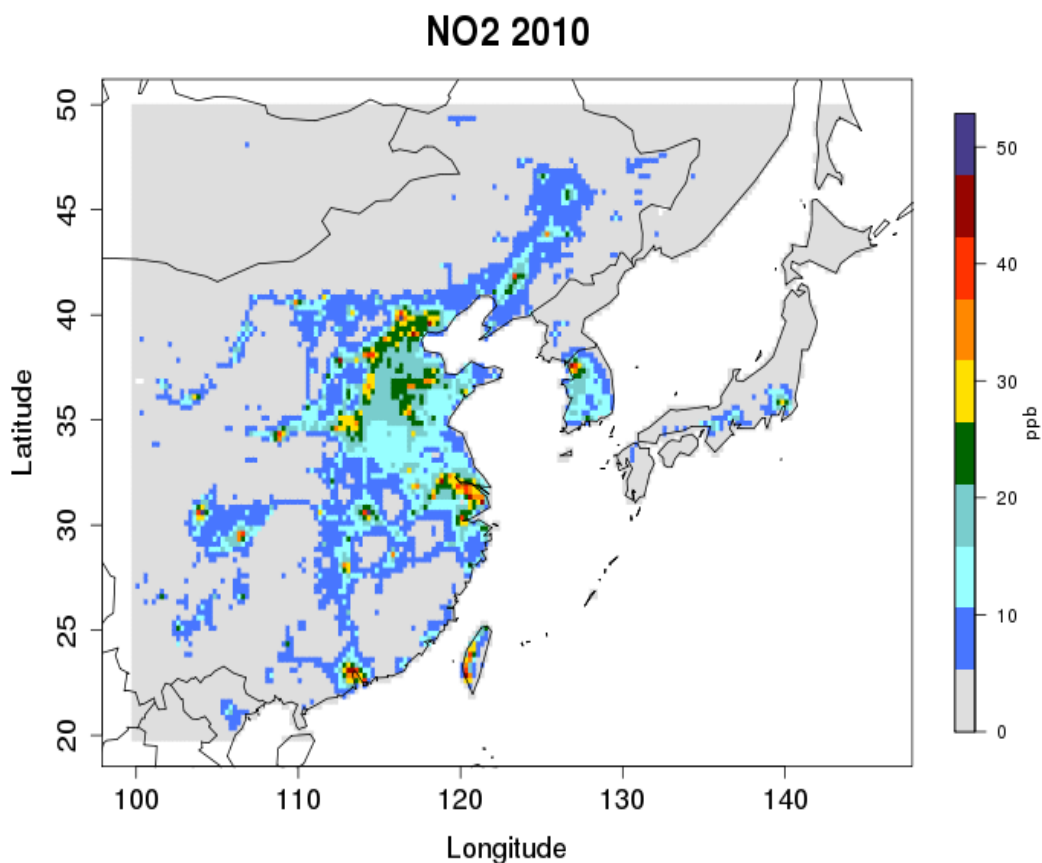


(d)

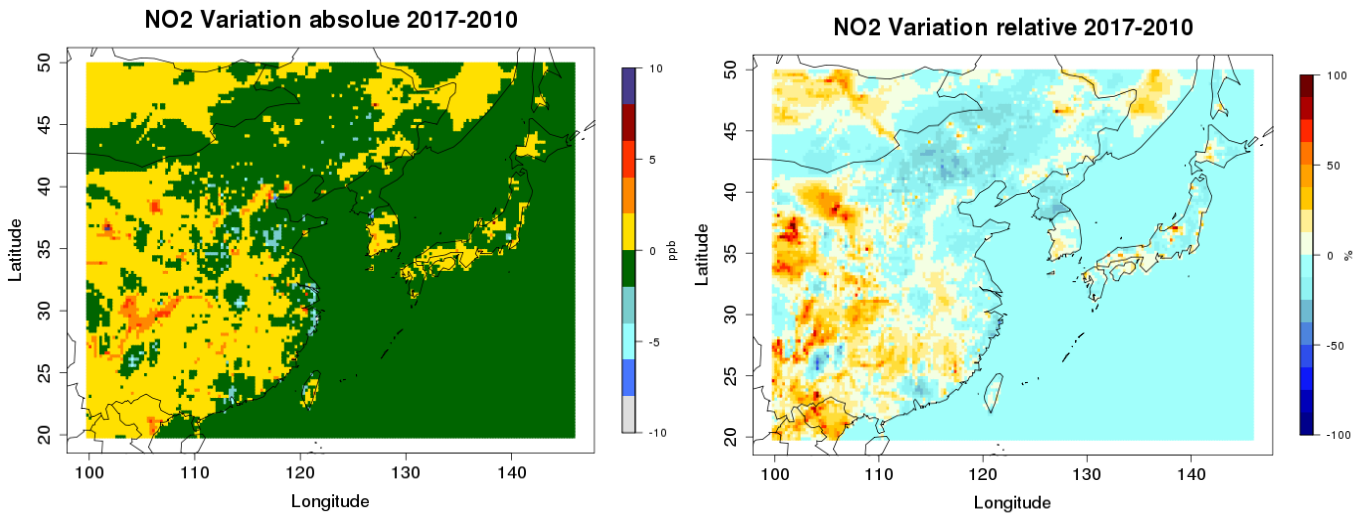
Figure 14 - (a) Concentrations de surface annuelles du  $\text{SO}_2$  en 2010 ; (b) variations absolues et (c) relatives du  $\text{SO}_2$  de l'année 2017 par rapport à l'année 2010 ; (d) anomalies mensuelles et régression linéaire permettant de calculer la tendance des concentrations du  $\text{SO}_2$ .

L'OMS définit une valeur seuil de concentration annuelle de  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  pour le  $\text{NO}_2$  qui correspond à 22 ppb dans les conditions de température et de pression standards : ce seuil est atteint et dépassé dans les zones densément peuplées en Chine en 2010 (Figure 15a). Entre 2010 et 2017, le  $\text{NO}_2$  voit ses concentrations baisser sur la partie est de la Chine dans les régions les plus peuplées (Figure 15b et 15c). Les augmentations observées ont lieu quant à elles dans les régions où les concentrations de

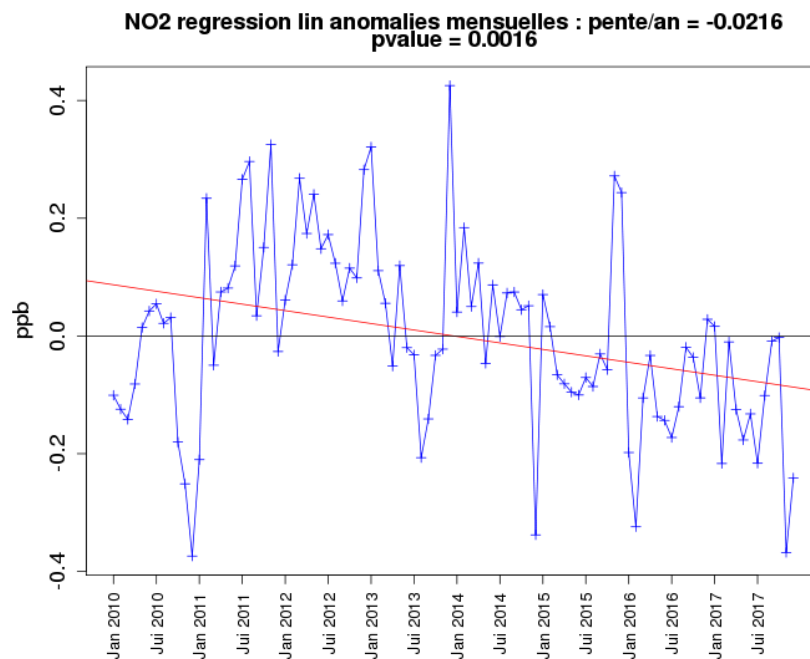
NO<sub>2</sub> sont très faibles et non significatives. Le NO<sub>2</sub> a baissé de 0.02 ppb/an (0.7 %/an) sur l'ensemble du domaine (Figure 15d). Cela peut paraître peu élevé mais ces résultats sont obtenus sur l'ensemble du domaine incluant de nombreuses régions avec de très faibles concentrations de NO<sub>2</sub> (Figure 15a) qui montrent une augmentation. Les évolutions des concentrations de NO<sub>2</sub> dans des zones plus restreintes géographiquement avec une population très dense seront étudiées dans le chapitre suivant. La réduction des concentrations observée fait suite aux réglementations sur les émissions du secteur de l'énergie en 2012 et en 2016 et aux réglementations sur les émissions liées au transport et de l'industrie en 2013 : cette baisse des concentrations n'est pas liée à une décroissance des secteurs en question (Liu et al. 2017) mais bien à l'application des standards d'émission plus stricts.



(a)



(b) et (c)



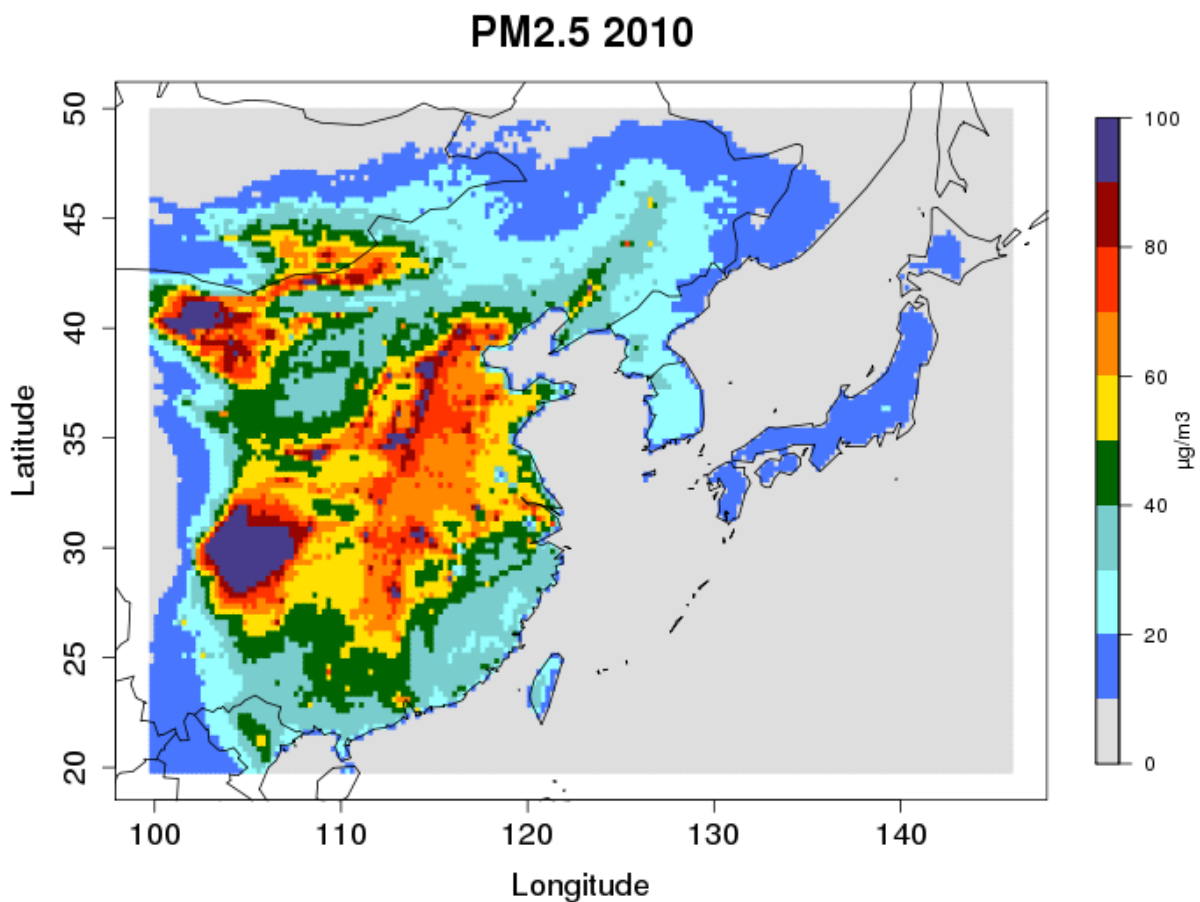
(d)

Figure 15 - (a) Concentrations de surface annuelles du NO<sub>2</sub> en 2010 ; (b) variations absolues et (c) relatives du NO<sub>2</sub> de l'année 2017 par rapport à l'année 2010 ; (d) anomalies mensuelles et régression linéaire permettant de calculer la tendance des concentrations du NO<sub>2</sub>.

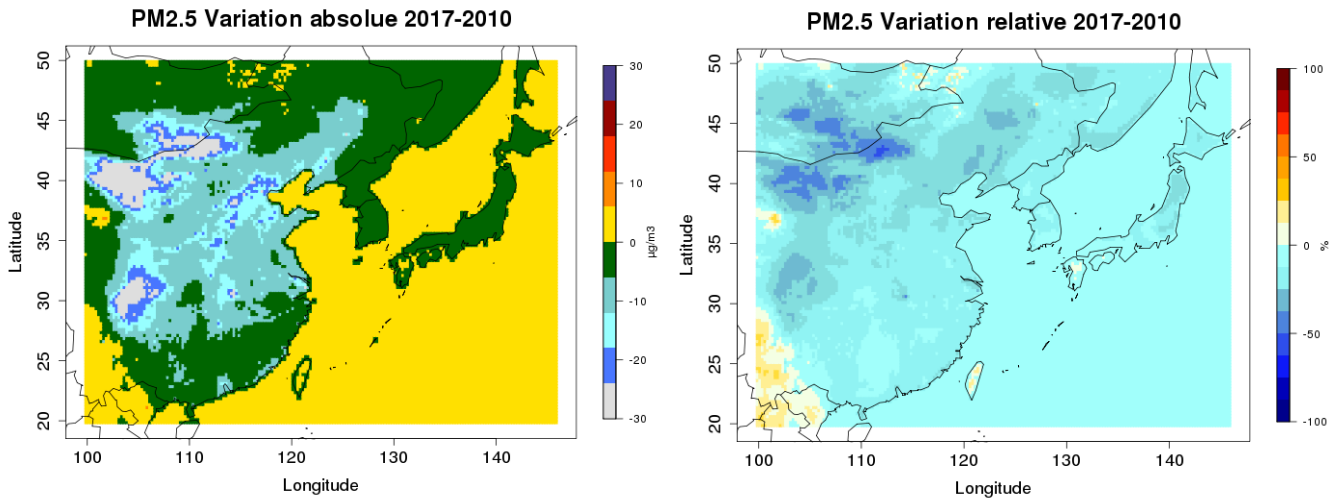
Comme le NO<sub>2</sub> et le SO<sub>2</sub> sont les précurseurs principaux de particules inorganiques, nous nous attendons à une baisse des concentrations des particules fines PM<sub>2.5</sub> qui fait suite aux diminutions des concentrations de ces deux polluants.

En 2010, les concentrations des PM<sub>2.5</sub> (primaires et secondaires) sont extrêmes, elles dépassent le seuil annuel de l'OMS (10 µg/m<sup>3</sup>) dans tout l'Est de la Chine (Figure 16a). Les PM<sub>2.5</sub> voient leur

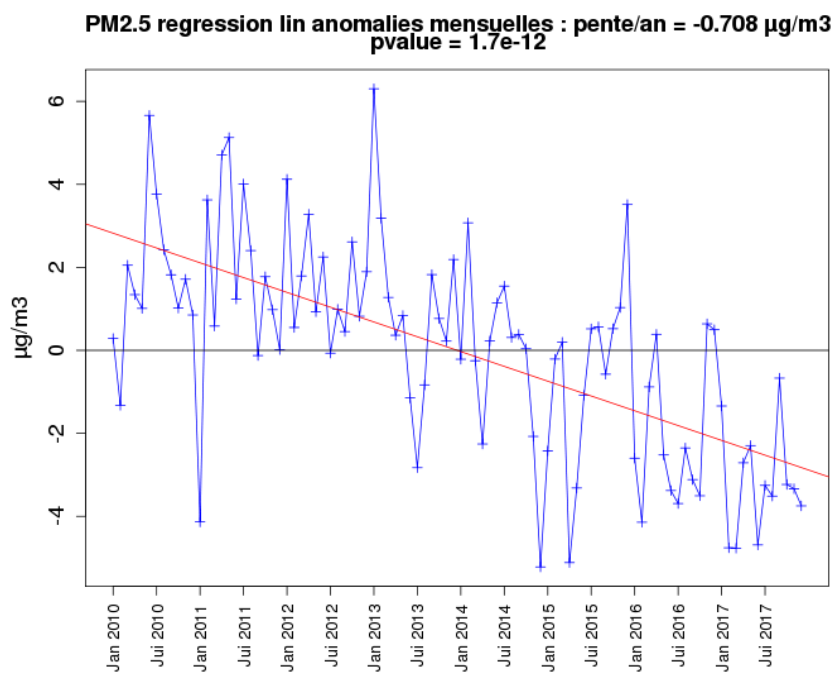
concentration diminuer entre 2010 et 2017 sur toute la Chine (Figure 16b et 16c) : les endroits les plus concentrés à l'Ouest et au Nord (Figure 16a) ont les baisses relatives les plus importantes (baisse de plus de 50%) tandis que le reste du territoire subit des baisses relatives inférieures à 50 %. Entre 2010 et 2017, les concentrations ont baissé de  $5.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (24%) comme montré sur la Figure 16d. Les diminutions des concentrations sont la conséquence de la baisse des émissions anthropiques de particules mais aussi la conséquence de la baisse de la fraction secondaire inorganique des  $\text{PM}_{2.5}$  (voir ci-après). La baisse des concentrations issue des émissions humaines dans les zones peuplées provient des réglementations sur les émissions des véhicules et de l'industrie du charbon. Quant aux baisses plus au Nord, elles sont expliquées par des causes naturelles liées aux aérosols inorganiques minéraux (poussières désertiques). Dans les simulations utilisées pour le stage, les émissions de poussières sont probablement mal représentées : les déserts chinois ne sont pas inclus dans le domaine et des conditions aux limites climatologiques ont été utilisées.



(a)



(b) et (c)

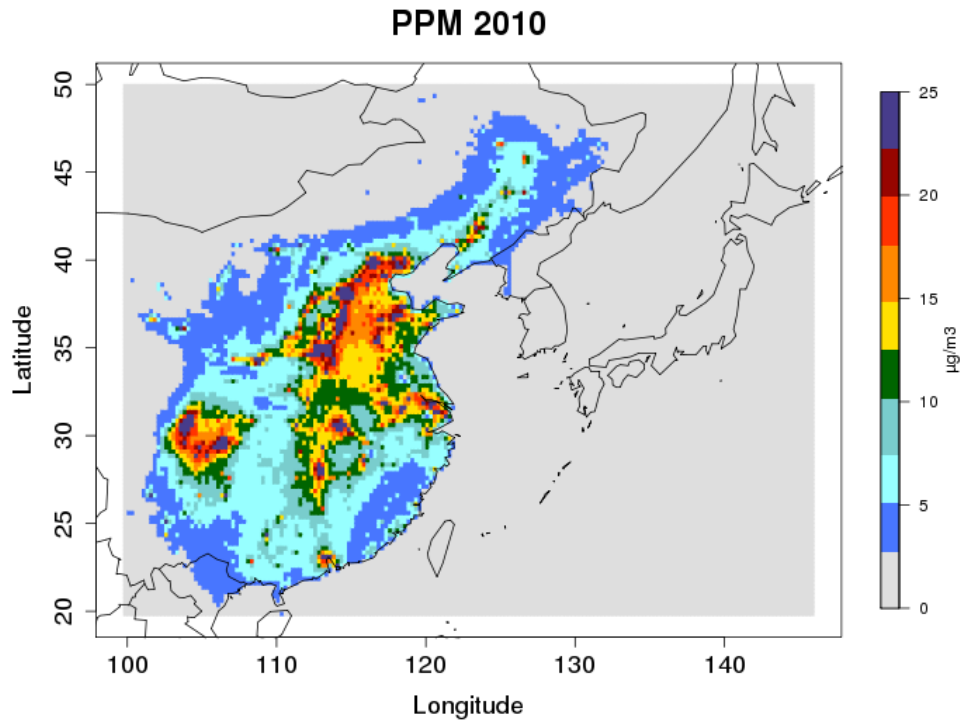


(d)

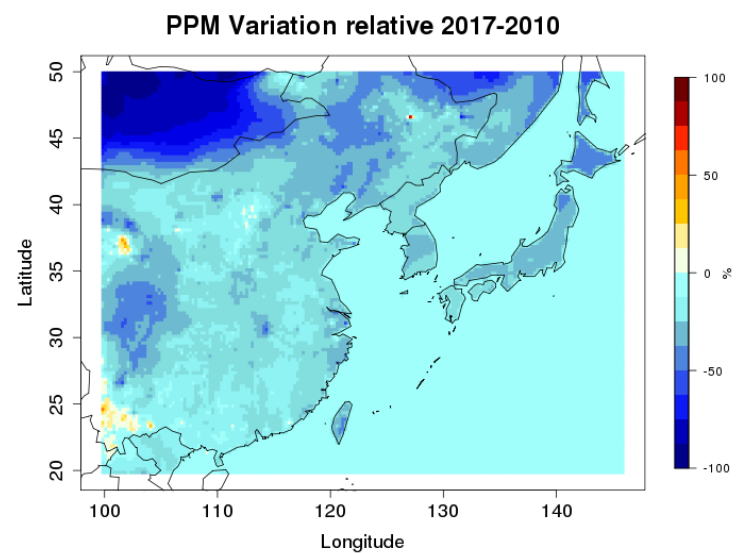
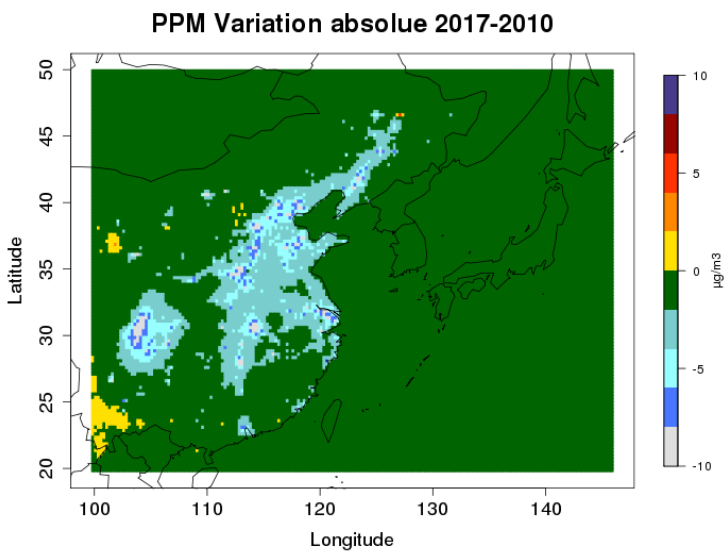
Figure 16 – (a) Concentrations de surface annuelles des  $PM_{2.5}$  en 2010 ; (b) variations absolues et (c) relatives des  $PM_{2.5}$  de l'année 2017 par rapport à l'année 2010 ; (d) anomalies mensuelles et régression linéaire permettant de calculer la tendance des concentrations des  $PM_{2.5}$ .

Afin de montrer leur impact sur les  $PM_{2.5}$ , je présente les évolutions des concentrations des particules primaires anthropiques inorganiques (PPM) dont le diamètre est inférieur à  $2.5 \mu m$ . Les PPM diminuent sur tout le territoire chinois (Figure 17b et 17c). Les baisses de concentrations les plus significatives se font dans les zones peuplées, émettrices de PPM (Figure 17a). Les baisses des

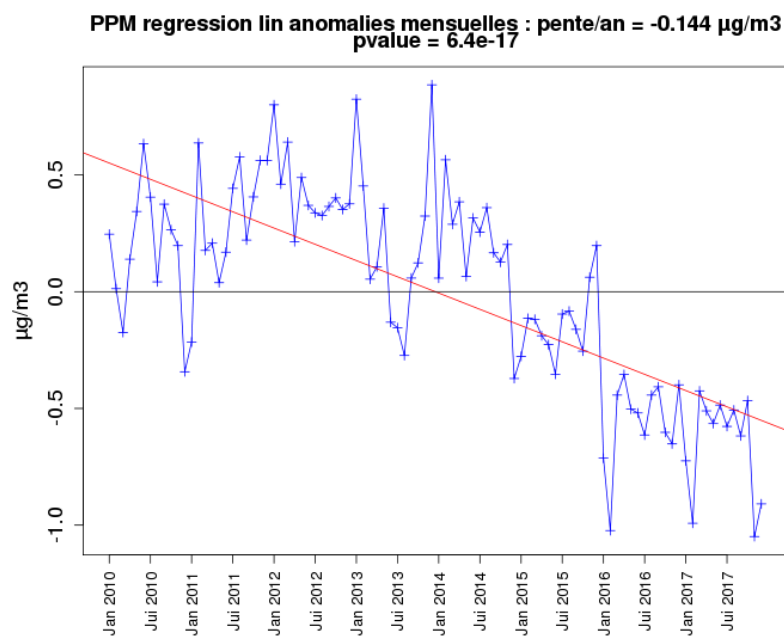
concentrations sont de  $1.12 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (38 %) sur le domaine entre 2010 et 2017 et réellement effectives à partir de 2015 (Figure 17d).



(a)



(b) et (c)



(d)

Figure 17 – (a) Concentrations de surface annuelles des PPM en 2010 ; (b) variations absolues et (c) relatives des PPM de l’année 2017 par rapport à l’année 2010 ; (d) anomalies mensuelles et régression linéaire permettant de calculer la tendance des concentrations des PPM.

La baisse des concentrations des  $\text{PM}_{2.5}$  est donc appuyée par une baisse des concentrations des particules primaires.

## 2.2.2. Effets secondaires de la baisse des polluants primaires principaux

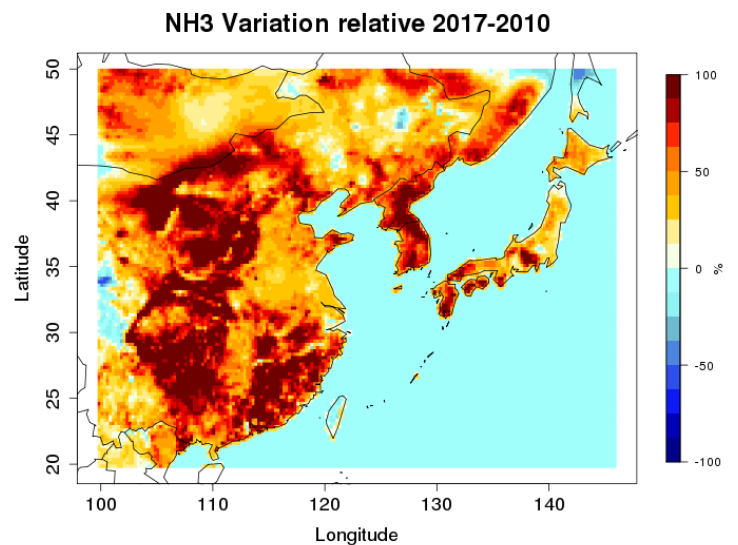
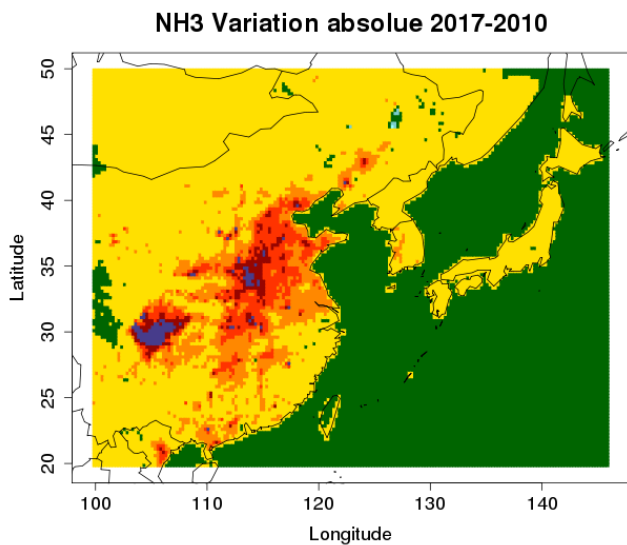
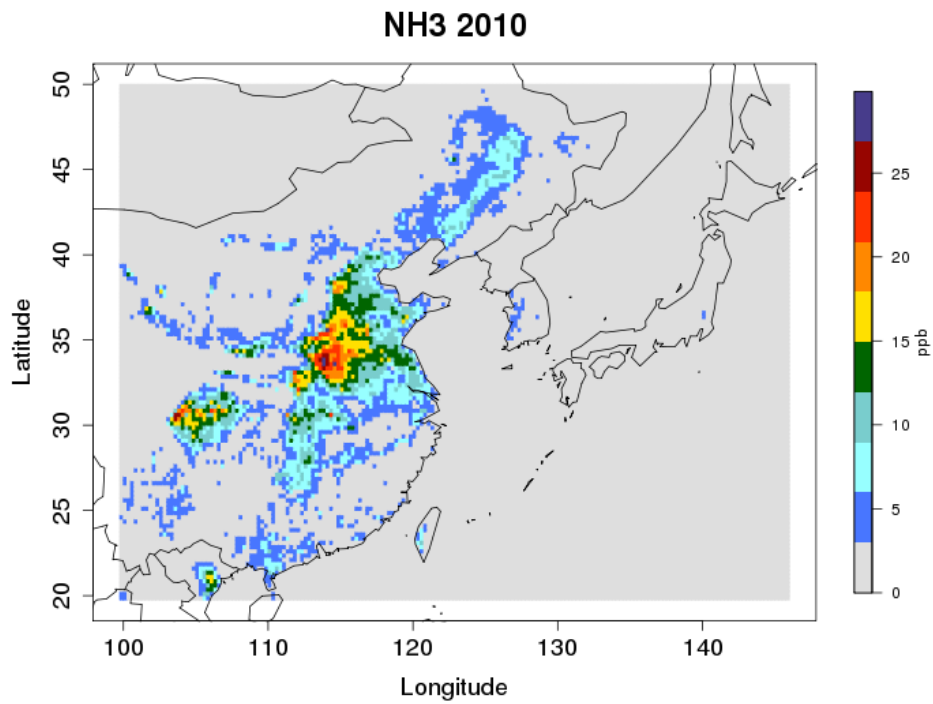
Contrairement aux  $\text{SO}_2$  et  $\text{NO}_2$ , les concentrations de  $\text{NH}_3$  ont augmenté entre 2010 et 2017. Toute la Chine de l’Est est concernée : de 2010 à 2017 les concentrations de  $\text{NH}_3$  les plus fortes sur le territoire augmentent de 25 % à 50 % tandis que certaines, moins élevées en 2010, sont multipliées par 2 (Figure 18a et 18c). La concentration moyenne mensuelle de  $\text{NH}_3$  sur l’ensemble du domaine augmente de 1.2 ppb (65%) sur la toute la période, son augmentation s’accélère à partir de 2013 (Figure 18d).

Les concentrations de surface de  $\text{NH}_3$  augmentent mais il faut rappeler que ses émissions sont constantes. La baisse des polluants primaires principaux que sont le  $\text{NO}_2$  et le  $\text{SO}_2$  a pour conséquence l’augmentation des concentrations de  $\text{NH}_3$  tel que décrit par Lachatre et al. (2019). En effet, du fait de la moindre disponibilité de ces deux précurseurs, l’équilibre entre l’ammoniac en phase gaz et l’ammoniac dans la phase particulaire (lié à la capacité de formation de nitrate et sulfate d’ammonium) est déplacé vers la phase gaz.

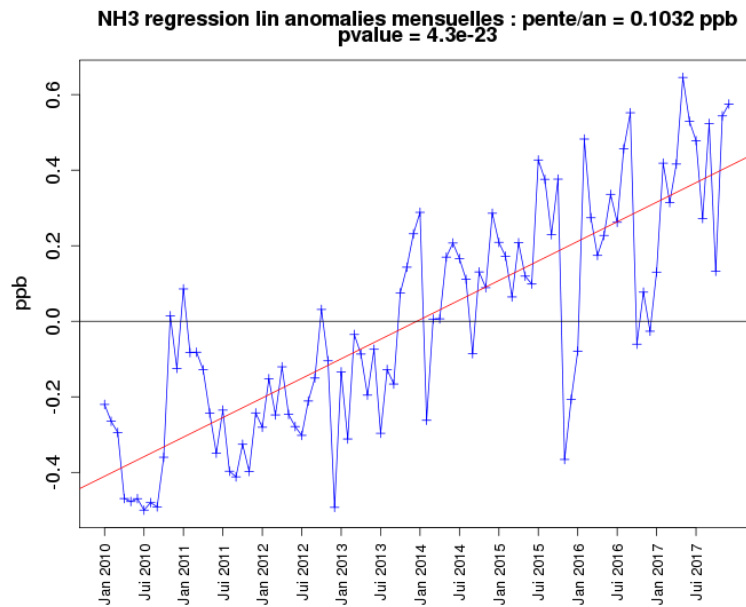
Ceci est effectivement visible avec la diminution des concentrations des  $\text{NH}_4^+_{(p)}$  entre 2010 et 2017 sur l’ensemble de la Chine (Figure 19b et 19c). Les concentrations des  $\text{NH}_4^+_{(p)}$  sont élevées en 2010



dans le Sichuan Bassin (SCB) qui est une zone peuplée, émettrice de NO<sub>x</sub> et de SO<sub>2</sub>, avec une agriculture intensive émettrice de NH<sub>3</sub> (Figure 18a et 19a). Les baisses des concentrations sont de 0.47 µg/m<sup>3</sup> (22%) sur le domaine entre 2010 et 2017 (Figure 19d).

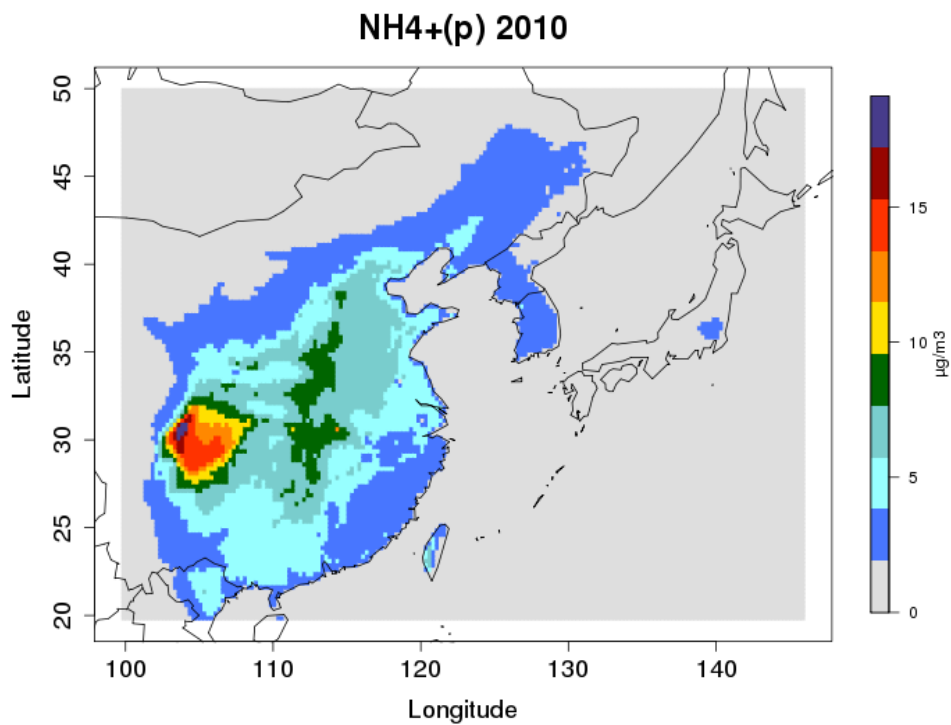


(b) et (c)

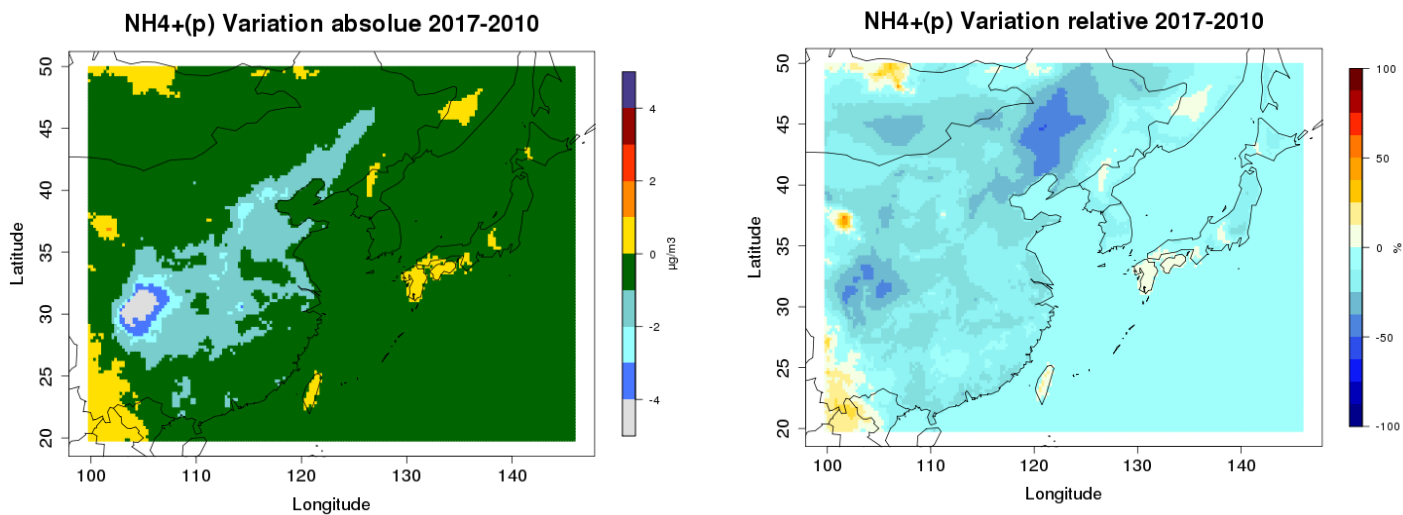


(d)

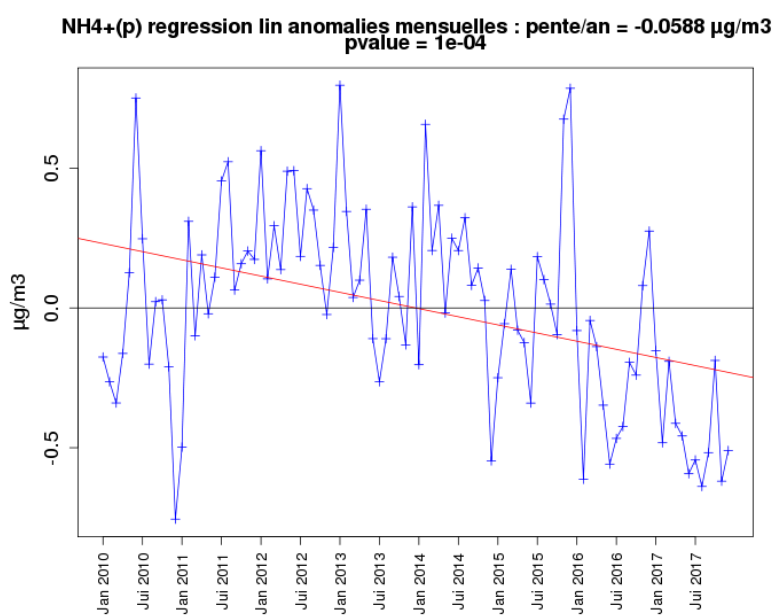
Figure 18 - (a) Concentrations de surface annuelles de NH<sub>3</sub> en 2010 ; (b) variations absolues et (c) relatives de NH<sub>3</sub> de l'année 2017 par rapport à l'année 2010 ; (d) anomalies mensuelles et régression linéaire permettant de calculer la tendance des concentrations de NH<sub>3</sub>.



(a)



(b) et (c)



(d)

Figure 19 - (a) Concentrations de surface annuelles de NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p) en 2010 ; (b) variations absolues et (c) relatives de NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p) de l'année 2017 par rapport à l'année 2010 ; (d) anomalies mensuelles et régression linéaire permettant de calculer la tendance des concentrations de NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p).

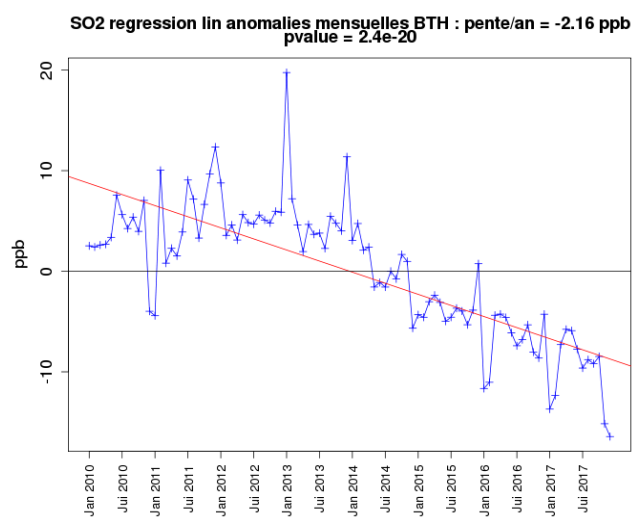
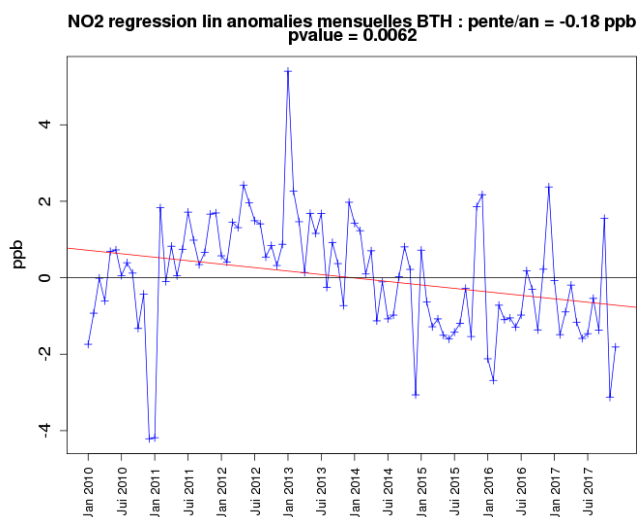
## 2.3. Tendances des concentrations sur des zones géographiques spécifiques

### 2.3.1. Résultats zone par zone

Dans cette partie, seules les séries temporelles des anomalies et les régressions linéaires associées sont montrées pour l'étude des polluants. Les zones choisies sont au nombre de six. Elles permettent de faire le lien avec la mise en place des réglementations selon les endroits. Le  $\text{NH}_3$  est présenté à part car ses évolutions selon les zones sont sensiblement les mêmes.

#### 2.3.1.1. Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) :

Les baisses de  $\text{SO}_2$  sont intenses avec 17.6 ppb entre 2010 et 2017 : le  $\text{SO}_2$  augmente jusqu'en 2012 (+5 ppb), stagne en 2013 puis baisse jusqu'en 2017 (-15 ppb). La baisse du  $\text{NO}_2$  sur toute la période est de 1.5 ppb : il augmente jusqu'en 2012 (+2 ppb) puis baisse jusqu'en 2015 (-3 ppb) et enfin stagne jusqu'en 2017. La baisse des  $\text{PM}_{2.5}$  est élevée avec  $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moins sur toute la période. Les  $\text{PM}_{2.5}$  augmentent de 2010 à 2012 puis diminuent jusqu'en 2017. En termes de concentrations, 10 % de la baisse des  $\text{PM}_{2.5}$  est attribuable aux  $\text{NH}_4^+(\text{p})$  et un tiers aux PPM..



(a) et (b)

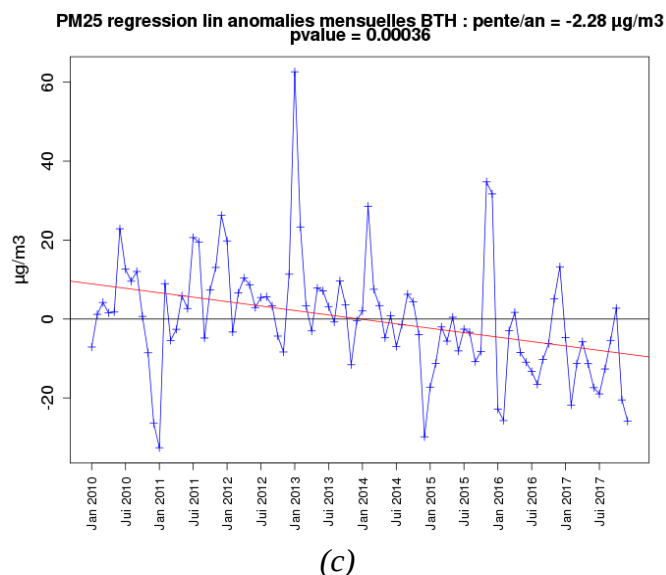
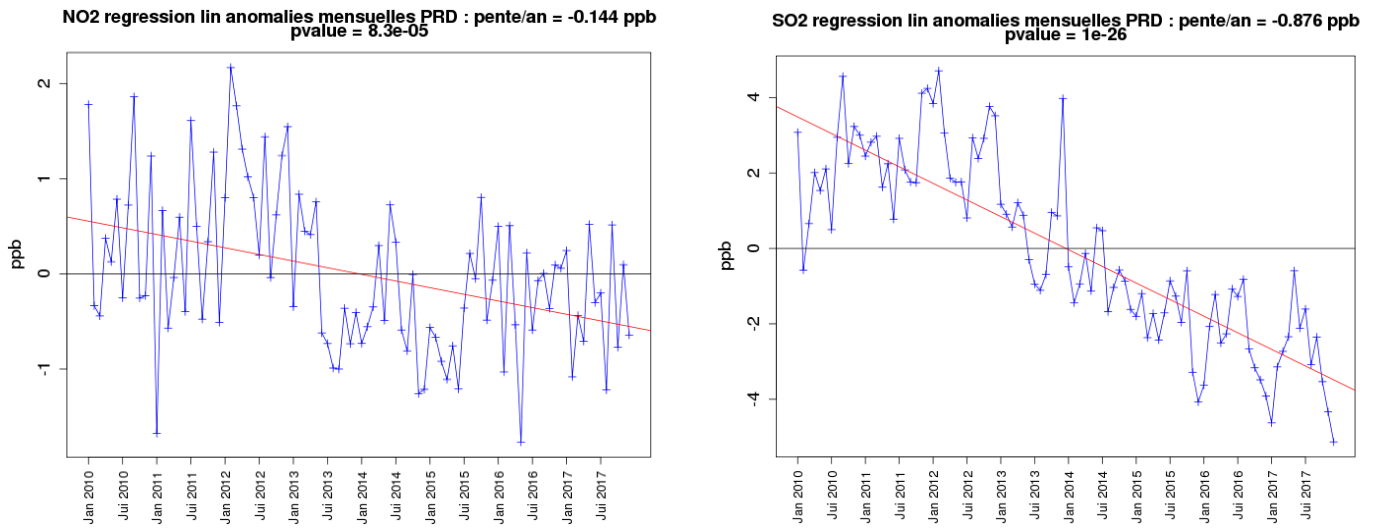


Figure 20 - Régression linéaire des anomalies mensuelles dans le BTH entre 2010 et 2017 pour : (a)  $\text{NO}_2$  ; (b)  $\text{SO}_2$  ; (c)  $\text{PM}_{2.5}$  .

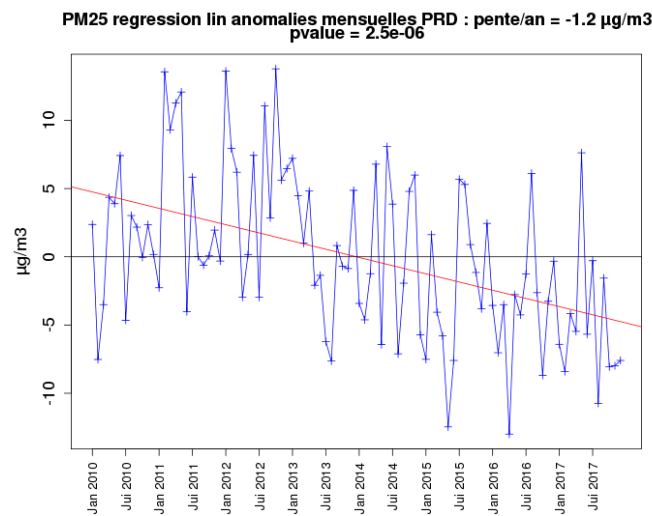
Les profils de polluants dans le North China Plain (NCP) sont sensiblement les mêmes que pour le BTH (Tableau 3).

### 2.3.1.2. Le Pearl River Delta (PRD) :

Les tendances des concentrations baissent pour le  $\text{SO}_2$  (-7 ppb) et le  $\text{NO}_2$  (-1.1 ppb). Le  $\text{SO}_2$  augmente de 2010 à 2012 et diminue ensuite. L'évolution de  $\text{NO}_2$  est plus complexe : une diminution des concentrations la première année, une augmentation l'année suivante (+1 ppb) puis une baisse brutale de 2012 à 2014 (-2 ppb), un plateau de 2014 à 2015 et enfin une augmentation les deux dernières années (+1 ppb). Les  $\text{PM}_{2.5}$  augmentent de 2010 à 2013 (+10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) puis diminuent jusqu'en 2017 (-20  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) pour une baisse de 9.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  sur toute la période. Les diminutions des concentrations des  $\text{NH}_4^+(\text{p})$  (-1.1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) et des PPM (-1.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) correspondent ensemble à un tiers de la baisse des  $\text{PM}_{2.5}$  sur toute la période.



(a) et (b)

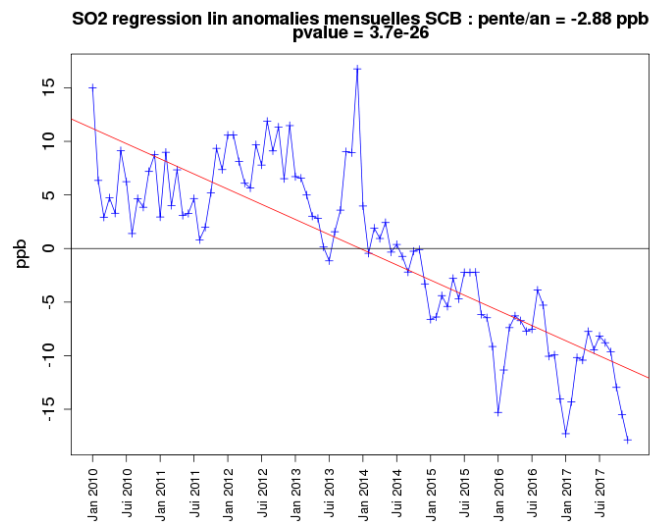
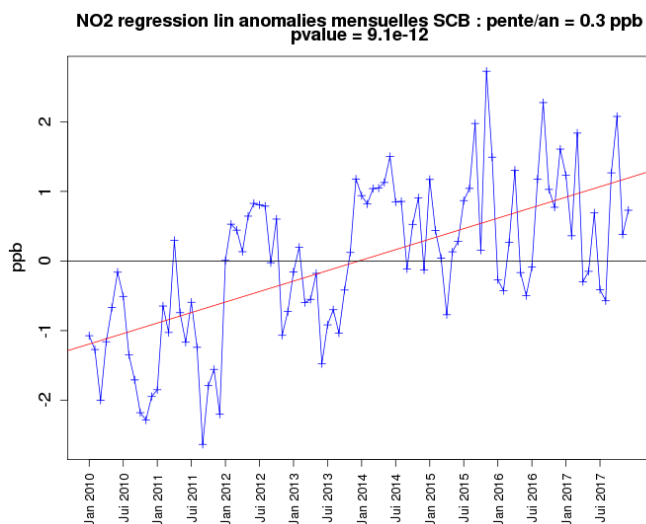


(c)

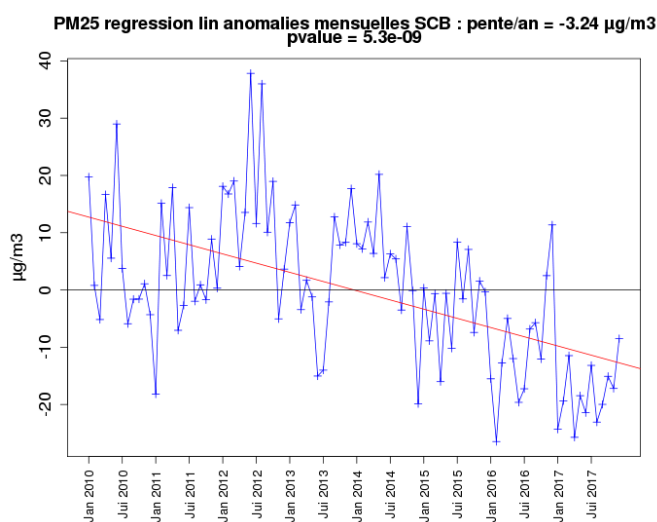
Figure 21 - Régression linéaire des anomalies mensuelles dans le PRD entre 2010 et 2017 pour : (a)  $\text{NO}_2$  ; (b)  $\text{SO}_2$  ; (c)  $\text{PM}_{2.5}$ .

### 2.3.1.3. Le Sichuan Bassin (SCB) :

Entre 2010 et 2017, les concentrations de  $\text{NO}_2$  augmentent (+2.4 ppb) dans le SCB contrairement aux autres régions. Cependant il diminue (-1 ppb) au cours des deux dernières années. Le  $\text{SO}_2$  diminue à partir de 2013 suite aux réglementations de 2012 sur l'industrie de l'acier et celles la même année sur les centrales thermiques. Sa baisse est très intense puisque il diminue de plus de 20 ppb. Les  $\text{NH}_4^+$  baissent de 4.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  sur toute la période et les PPM de 5.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  soit une fraction cumulée correspondant à 40 % des baisses des  $\text{PM}_{2.5}$ . Les  $\text{PM}_{2.5}$  diminuent à partir de 2013 pour arriver à des anomalies négatives en 2015.



(a) et (b)

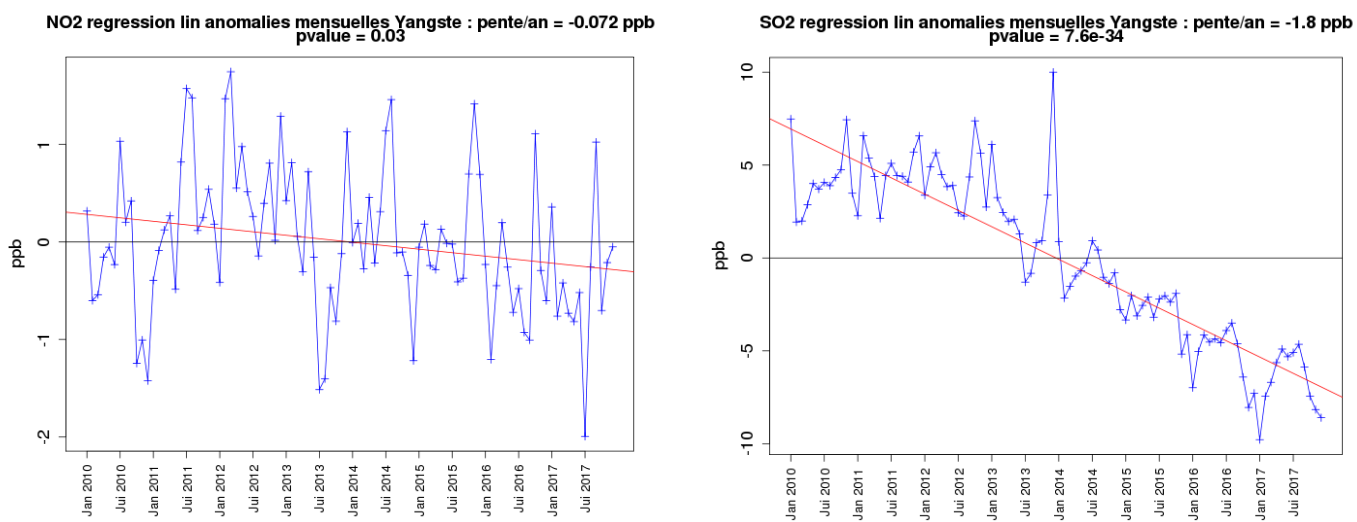


(c)

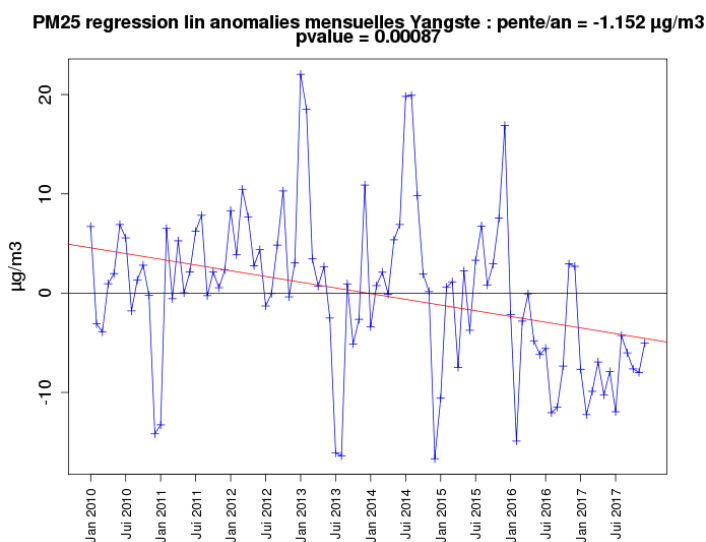
Figure 22 - Régression linéaire des anomalies mensuelles dans le BTH entre 2010 et 2017 pour : (a) NO<sub>2</sub> ; (b) SO<sub>2</sub> ; (c) PM<sub>2.5</sub>.

### 2.3.1.4. Le Yangste :

La tendance du NO<sub>2</sub> baisse de 0.6 ppb dans le Yangste sur toute la période, les concentrations commencent à baisser partir de 2012. Le SO<sub>2</sub> stagne jusqu'en 2013 puis diminue fortement : sur toute la période, sa diminution est de 14 ppb. Les PM<sub>2.5</sub> diminuent de 9.2 µg/m<sup>3</sup> entre 2010 et 2017 ; la diminution commence en 2013 ; cette baisse des concentrations est attribuée pour 1.1 µg/m<sup>3</sup> aux NH<sub>4</sub><sup>+</sup><sub>(p)</sub> (12%) et pour 3.7 µg/m<sup>3</sup> aux PPM (40 %).



(a) et (b)



(c)

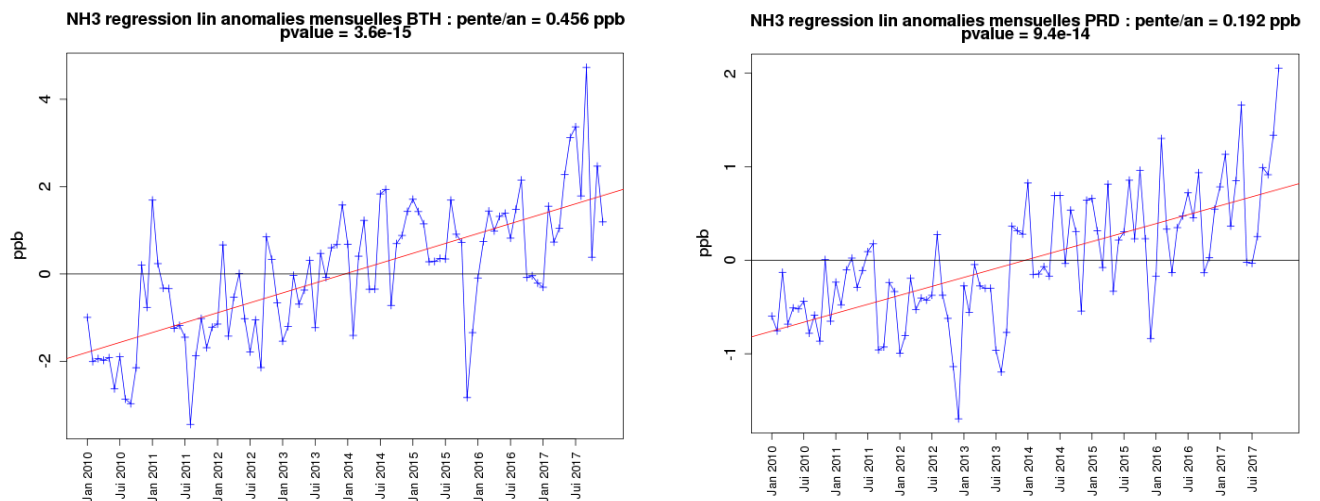
Figure 23 - Régression linéaire des anomalies mensuelles dans le Yangste entre 2010 et 2017 pour : (a)  $\text{NO}_2$  ; (b)  $\text{SO}_2$  ; (c)  $\text{PM}_{2.5}$ .

Les variations et tendances du YRD sont semblables à celles du Yangste (Tableau 3).

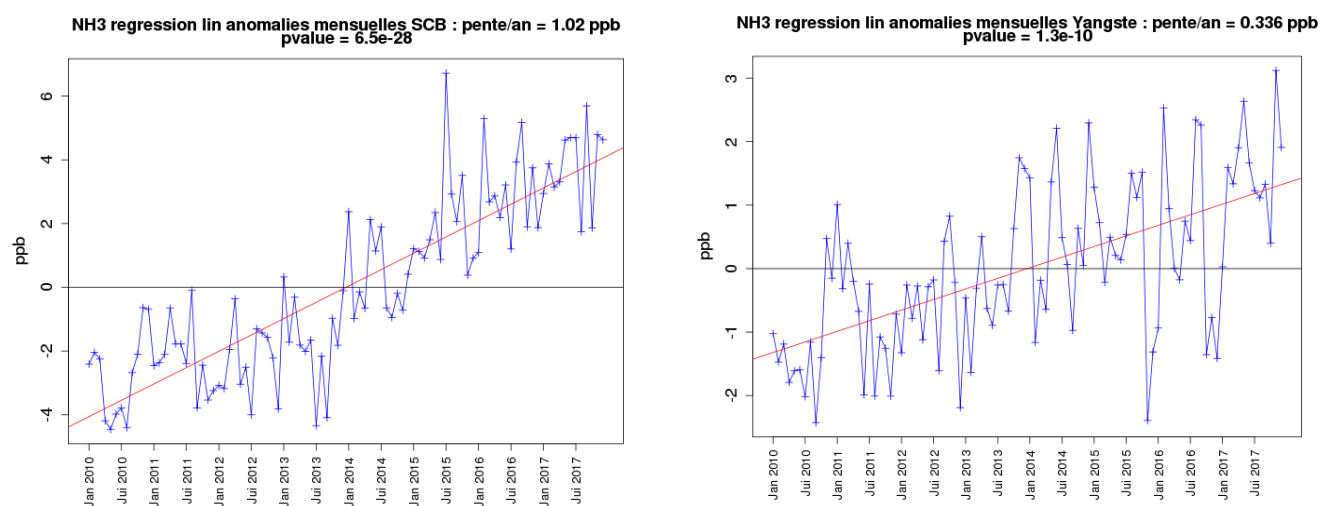
### 2.3.1.5. L'ammoniac $\text{NH}_3$

Bien que le BTH est une région très urbanisée, elle est située dans les zones agricoles du North China Plain (NCP) : les augmentations de  $\text{NH}_3$  de 2010 à 2017 sont donc importantes (+3.6 ppb). Dans le SCB, les augmentations de  $\text{NH}_3$  sur toute la période sont fortes (+8.2 ppb) car c'est également une zone agricole émettrice de  $\text{NH}_3$ .





(a) et (b)



(c) et (d)

Figure 24 - Régression linéaire des anomalies mensuelles de NH<sub>3</sub> entre 2010 et 2017 dans (a) BTH ; (b) PRD ; (c) SCB ; (d) Yangste.

### 2.3.2. Synthèse des zones

L'analyse de l'évolution des polluants montre que les réglementations ne sont pas appliquées au même moment selon les régions, par exemple le SCB met plus de temps à les appliquer que les autres régions ce qui se traduit par un impact plus modéré sur le NO<sub>2</sub>. Les autres régions montrent un comportement assez semblable pour toutes les espèces avec une diminution marquée à partir de 2012-2013 excepté pour le NH<sub>3</sub> qui augmente dans toutes les régions.

Le tableau 3 synthétise les différences de concentration des polluants entre 2010 et 2017. Alors que les concentrations du NO<sub>2</sub> augmentent dans la région SCB, l'augmentation du NH<sub>3</sub> en parallèle tend à montrer que c'est la diminution du SO<sub>2</sub> qui pilote en grande partie l'augmentation du NH<sub>3</sub>.

Polluants	NO <sub>2</sub> en ppb	SO <sub>2</sub> en ppb	NH <sub>3</sub> en ppb	PM <sub>2.5</sub> en µg/m <sup>3</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> <sub>(p)</sub> en µg/m <sup>3</sup>	PPM en µg/m <sup>3</sup>
BTH	-1.5	-17.6	+3.6	-18	-1.8	-5.9
NCP	-2.0	-16.1	+3.4	-14.3	-1.4	-5.1
PRD	-1.1	-7.0	+1.5	-9.6	-1.1	-1.9
SCB	+2.4	-22.6	+8.2	-25.7	-4.6	-5.6
YANGSTE	-0.6	-14.0	+2.6	-9.2	-1.1	-3.7
YRD	-1.2	-14.1	+1.7	-8.5	-0.9	-4.3

*Tableau 3 - Récapitulatif des variations absolues de concentrations entre 2010 et 2017 dans les six zones.*

# Conclusion générale

## Conclusion Scientifique

Le développement économique et industriel de la Chine a été fulgurant depuis les années 1980. En effet, sa part dans le PIB mondial est passé de 4.8 % en 1978 à 18.3 % en 2017 ce qui fait d'elle la seconde puissance économique mondiale. Ce développement s'est accompagné d'une détérioration globale de la qualité de l'air, avec les taux de  $PM_{2.5}$  les plus élevés au monde, 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 pour aboutir au renforcement et à la création de nouvelles réglementations au début des années 2010. Ces politiques apportent aujourd'hui leurs premiers résultats. Nous avons en effet montré qu'avec l'utilisation d'un inventaire d'émissions incluant ces nouvelles réglementations, le modèle CHIMERE simulait une diminution de l'ordre de 85 %, 5.6 % et 24 % pour  $SO_2$ ,  $NO_2$  et  $PM_{2.5}$  sur l'ensemble de la Chine avec des diminutions plus marquées dans les régions les plus peuplées. Les résultats dans les zones spécifiques fortement peuplées confirment l'aspect majoritairement anthropique des variations de concentrations des polluants et permettent de visualiser le délai de la mise en place des réglementations propre à chaque zone. Néanmoins les niveaux de particules auxquels sont exposés les citoyens chinois par rapport aux citoyens du reste du monde restent élevés.

En parallèle, nous avons pu observer une augmentation importante des colonnes atmosphériques d'ammoniac à l'Est de la Chine, à la fois observée par l'instrument IASI et simulée par le modèle CHIMERE. Nous avons aussi pu observer une augmentation des concentrations d'ammoniac de surface, sur la période de 2010 à 2017, parallèlement à des émissions constantes d'ammoniac et à une baisse des émissions de  $NO_2$  et de  $SO_2$ . Suite aux baisses d'émissions des polluants primaires gazeux et particulaires, nous avons aussi observé une baisse de formation des sulfates d'ammonium et des nitrates d'ammonium. Nous obtenons des conclusions similaires à celles de Lachatre et al. (2019) sur le déplacement vers la phase gaz de l'équilibre gaz/particule pour l'ammoniac associé aux diminutions de  $SO_2$  et  $NO_x$ .

En conclusion, les simulations par la version récente de CHIMERE, incluant la meilleure description des émissions chinoises à ce jour, appuyées par des stations de surface et des instruments embarqués sur satellite m'ont permis de caractériser l'impact des réglementations des émissions des polluants primaires sur les polluants en général et sur l'ammoniac en particulier.

Ce travail pourra contribuer à la fois aux conclusions du projet ANR PolEASIA dédié à l'étude de l'évolution des polluants en Chine et à la préparation de la campagne ballon TRANSPAC dédiée à l'étude de l'export des polluants de la Chine vers le Pacifique, en fournissant une bonne caractérisation de la région source.

## Conclusion sur le stage

Les contraintes de ce stage liées aux effets du Coronavirus ont eu pourtant des avantages : calme, absence de transport et horaires personnalisés. Elles ont aussi été surprenantes, puisque je ne suis pas allé une seule fois au LISA pour ce travail. Il a donc fallu mettre en œuvre une communication sur messagerie en ligne (Slack) très bien faite et pratique et aussi mettre sur pied une réunion « visio » à raison d'une fois par semaine, en suivant un parcours digne d'un aérosol organique, de Zoom jusqu'à Tixeo, le logiciel ultra sécurisé du CNRS. Fait important qui n'est pas des moindres, j'ai pu accéder, après inscription, aux serveurs du LISA pour traiter les données directement en ligne avec le logiciel R et ses bibliothèques installées et ainsi enregistrer graphiques et cartes.

Comme une sorte d'application pratique, le confinement a d'ailleurs permis un changement brutal de la qualité de l'air en France et dans le monde ; dans les zones urbaines notamment. J'ai pu bénéficier de toute l'expertise de mes encadrants, dans leurs domaines respectifs, quand j'en avais besoin, pour comprendre ce changement. Je les remercie également pour leur disponibilité et leur sympathie.

# Annexes

## 1.3. Méthodologie

### Codes des moyennes mensuelles :

```
#Moyenne annuelle de surface
```

```
ntime<-dim(NH3)[4] #recupération du nombre de mois
time_ini<-seq(1,ntime,12) #sequence de 1 à ntime par pas de 12
time_end<-seq(12,ntime,12) #sequence de 1 à ntime par pas de 12
nbyear<-ntime/12
nlon<-dim(NH3)[1]
nlat<-dim(NH3)[2]
nlev<-dim(NH3)[3]
conc_annuelle<-numeric(nlon*nlat*nlev*nbyear)
dim(conc_annuelle)<-c(nlon,nlat,nlev,nbyear)
iyear ← 1

for (y in seq(time_end)) {
  for (i in seq(nlon)) {
    for (j in seq(nlat)) {
      conc_annuelle[i,j,1,iyear] = sum(NH3[i,j,1,time_ini[iyear]:time_end[iyear]])/12
    } }
  iyear<-iyear+1
}
```

### Codes des moyennes spatiales :

```
#Moyenne spatiale
```

```
nmois = ntime/8
conc_spatiale = numeric(nmois*nbyear)
dim(conc_spatiale) = c(nmois,nbyear)
NCP = c(57,89,61,85,"NCP")
Yangste = c(49,89,33,53,"Yangste")
SCB = c(15,29,35,47,"SCB")
BTH = c(57,73,69,85,"BTH")
PRD = c(49,63,07,17,"PRD")
YRD = c(73,89,41,53,"YRD")
region_mat = matrix(ncol=5,byrow=T,data=c(NCP,Yangste,SCB,BTH,PRD,YRD))
xmois = c("Jan","Fev","Mar","Avr","Mai","Jun","Jui","Aout","Sep","Oct","Nov","Dec")
xannee = character(ntime)

for ( i in seq(nrow(region_mat)) ) {
  region = region_mat[i,]
```

```

domlon = seq(region[1],region[2])
domlat = seq(region[3],region[4])
nptslon = length(domlon)
nptslat = length(domlat)
mois = 1 ; varan= 2010
for(y in seq(nbyear)) {
for(m in seq(nmois)) {conc_spatiale[m,y] = sum(var[domlon,domlat,1,mois])/(nptslon*nptslat) ;
mois = mois+1 }
xannee[time_ini[y]:time_end[y]] = varan
varan = varan+1 }
xlabel96 = paste(xmois,xannee)
rm(mois,varan)

```

## Codes des anomalies mensuelles :

```

#moyenne tt annees selon le mois
conc_ally_month = numeric(nlon*nlat*nmois)
dim(conc_ally_month) = c(nlon,nlat,1,nmois)
for (m in seq(nmois)) {
time_m<-seq(m,ntime,12)
for (i in seq(nlon)) {
for (j in seq(nlat)) {
conc_ally_month[i,j,1,m] = sum(var[i,j,1,time_m])/nbyear } } }

```

```

#anomalie
ano_annee = numeric(nlon*nlat*ntime)
dim(ano_annee) = c(nlon,nlat,1,ntime)
mois = 1
for(y in seq(nbyear)) {
for(m in seq(nmois)) { ano_annee[,1,mois] = var[,1,mois] – conc_ally_month[,1,m] ;
mois = mois+1 } }
rm(mois)

```

```

#moyenne sur toute la carte pr les 96 mois
moy_ano_annee = numeric(ntime)
for (m in seq(ntime)){
moy_ano_annee[m] = sum(ano_annee[,1,m])/(nlon*nlat) }

```

# Bibliographie

Source principale : Thèse de Mathieu Lachatre

## 1. Articles scientifiques :

B. Aumont, Sophie Szopa, S. Madronich. Modelling the evolution of organic carbon during its gas-phase tropospheric oxidation: development of an explicit model based on a self generating approach. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, European Geosciences Union, 2005, 5 (1), pp.703-754. ([hal-00327814](#))

Bertrand Bessagnet, Guido Pirovano, Mihaela Mircea, Cornelius Cuvelier, Armin Aulinger, et al.. Presentation of the EURODELTA III intercomparison exercise - evaluation of the chemistry transport models' performance on criteria pollutants and joint analysis with meteorology. *Atmospheric Chemistry and Physics*, European Geosciences Union, 2016, 16, pp.12667-12701. ([10.5194/acp-16-12667-2016](#)). ([ineris-01863109](#))

Cao, J., Chow, J.C., Lee, F.S. and Watson, J.G. (2013). Evolution of PM<sub>2.5</sub> Measurements and Standards in the U.S. and Future Perspectives for China. *Aerosol Air Qual. Res.* 13: 1197-1211. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2012.11.0302>

Carter, W.: Development of a condensed SAPRC-07 chemical mechanism, *Atmos. Environ.*, 44, 5336–5345, 2010b

Ciarelli, G., Aksoyoglu, S., Crippa, M., Jimenez, J.-L., Nemitz, E., Sellegri, K., Äijälä, M., Carbone, S., Mohr, C., O'Dowd, C., Poulain, L., Baltensperger, U., and Prévôt, A. S. H.: Evaluation of European air quality modelled by CAMx including the volatility basis set scheme, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10313–10332, <https://doi.org/10.5194/acp-16-10313-2016>, 2016.

Dufour, G., Eremenko, M., Beekmann, M., Cuesta, J., Foret, G., Fortems-Cheiney, A., Lachâtre, 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, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 16439–16459, <https://doi.org/10.5194/acp-18-16439-2018>, 2018.

Fang, M., Chan, C. K., and Yao, X. H.: Managing air quality in a rapidly developing nation: China, *Atmos. Environ.*, 43, 79–86, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.09.064, 2009.

Flemming, J., Stern, R., and Yamartino, R. J. : A new air quality regime classification scheme for O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> and PM<sub>10</sub> observations sites, *Atmospheric Environment*, 39, 6121–6129, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.06.039>, 2005.

Foret, G., Bergametti, G., Dulac, F., and Menut, L. (2006), An optimized particle size bin scheme for modeling mineral dust aerosol, *J. Geophys. Res.*, 111, D17310, doi:10.1029/2005JD006797.

Granier, C., S. Darras, H. Denier van der Gon, J. Doubalova, N. Elguindi, B. Galle, M. Gauss, M. Guevara, J.-P. Jalkanen, J. Kuenen, C. Lioussé, B. Quack, D. Simpson, K. Sindelarova, The

- Copernicus Atmosphere Monitoring Service global and regional emissions (April 2019 version), Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) report, 2019, doi:10.24380/d0bn-kx16.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P., and Geron, C. (2006). Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). *Atmos. Chem. Phys.*, 6:3181–3210.
- Hauglustaine, D. A., Hourdin, F., Jourdain, L., Filiberti, M.-A., Walters, S., Lamarque, J.-F., and Holland, E. A. (2004). Interactive chemistry in the Laboratoire de Meteorologie Dynamique general circulation model: Description and background tropospheric chemistry evaluation. *Journal of Geophysical Research*, 109(D04314). doi:10.1029/2003JD003,957
- Hoesly, R. M., Smith, S. J., Feng, L., Klimont, Z., Janssens-Maenhout, G., Pitkanen, T., Seibert, J. J., Vu, L., Andres, R. J., Bolt, R. M., Bond, T. C., Dawidowski, L., Kholod, N., Kurokawa, J. I., Li, M., Liu, L., Lu, Z., Moura, M. C. P., O'Rourke, P. R., and Zhang, Q.: Historical (1750–2014) anthropogenic emissions of reactive gases and aerosols from the Community Emissions Data System (CEDS), *Geosci. Model Dev.*, 11, 369–408, doi:10.5194/gmd-11-369-2018, 2018.
- 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, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2043–2058, <https://doi.org/10.5194/acp-16-2043-2016>, 2016.
- Klimont, Z., Smith, S. J., and Cofala, J. : The last decade of global anthropogenic sulfur dioxide : 2000–2011 emissions, *ENVIRONMENTAL RESEARCH LETTERS*, <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1748-9326/8/1/014003/meta#artAbst>, 2013.
- J. Kukkonen, T. Balk, D. M. Schultz, A. Baklanov, T. Klein, A. I. Miranda, A. Monteiro, M. Hirtl, V. Tarvainen, M. Boy, V. H. Peuch, A. Poupkou, I. Kioutsioukis, S. Finardi, M. Soev, R. Sokhi, K. Lehtinen, K. Karatzas, R. San JosÃ©, M. Astitha, G. Kallos, M. Schaap, E. Reimer, H. Jakobs, et K. Eben. Operational, regional-scale, chemical weather forecasting models in europe. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11(2) :59856162, 2011.
- 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<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> regulations over China: increase of ammonia levels and impact on PM<sub>2.5</sub> concentrations, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 6701–6716, <https://doi.org/10.5194/acp-19-6701-2019>, 2019.
- Lachatre, M.; Foret, G.; Laurent, B.; Siour, G.; Cuesta, J.; Dufour, G.; Meng, F.; Tang, W.; Zhang, Q.; Beekmann, M. Air Quality Degradation by Mineral Dust over Beijing, Chengdu and Shanghai Chinese Megacities. *Atmosphere* 2020, 11, 708.



Liu, F., Beirle, S., Zhang, Q., van der A, R. J., Zheng, B., Tong, D., and He, K.: NO<sub>x</sub> emission trends over Chinese cities estimated from OMI observations during 2005 to 2015, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 9261–9275, <https://doi.org/10.5194/acp-17-9261-2017>, 2017.

Liu, F., Choi, S., Li, C., Fioletov, V. E., McLinden, C. A., Joiner, J., Krotkov, N. A., Bian, H., Janssens-Maenhout, G., Darmenov, A. S., and da Silva, A. M.: A new global anthropogenic SO<sub>2</sub> emission inventory for the last decade: a mosaic of satellite-derived and bottom-up emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 16571–16586, <https://doi.org/10.5194/acp-18-16571-2018>, 2018.

Mailler, S., Menut, L., Khvorostyanov, D., Valari, M., Couvidat, F., Siour, G., Turquety, S., Briant, R., Tuccella, P., Bessagnet, B., Colette, A., Létinois, L., Markakis, K., and Meleux, F.: CHIMERE-2017: from urban to hemispheric chemistry-transport modeling, *Geosci. Model Dev.*, 10, 2397–2423, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-2397-2017>, 2017.

Markakis, K., Valari, M., Engardt, M., Lacressonniere, G., Vautard, R., and Andersson, C.: Mid-21st century air quality at the urban scale under the influence of changed climate and emissions – case studies for Paris and Stockholm, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 1877–1894, <https://doi.org/10.5194/acp-16-1877-2016>, 2016.

Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N. (2006) *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. 2nd Edition, John Wiley & Sons, New York.

Van Damme, M., Whitburn, S., Clarisse, L., Clerbaux, C., Hurtmans, D., and Coheur, P. F. : Version 2 of the IASI NH<sub>3</sub> 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.

Yang, F., Tan, J., Zhao, Q., Du, Z., He, K., Ma, Y., Duan, F., Chen, G., and Zhao, Q.: Characteristics of PM<sub>2.5</sub> speciation in representative megacities and across China, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 5207–5219, <https://doi.org/10.5194/acp-11-5207-2011>, 2011.

Zhai, S., Jacob, D. J., Wang, X., Shen, L., Li, K., Zhang, Y., Gui, K., Zhao, T., and Liao, H.: Fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) trends in China, 2013–2018: separating contributions from anthropogenic emissions and meteorology, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 11031–11041, <https://doi.org/10.5194/acp-19-11031-2019>, 2019.

Zheng, B., Tong, D., Li, M., Liu, F., Hong, C., Geng, G., Li, H., Li, X., Peng, L., Qi, J., Yan, L., Zhang, Y., Zhao, H., Zheng, Y., He, K., and Zhang, Q.: Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 14095–14111, <https://doi.org/10.5194/acp-18-14095-2018>, 2018.

## 2. Sites web :

Le site du laboratoire LISA : <http://www.lisa.u-pec.fr>

Le site ACP où de nombreux articles sur l'atmosphère sont disponibles en accès libre : <https://www.atmospheric-chemistry-and-physics.net/index.html>

La documentation du modèle CHIMERE 2017 :

<https://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/docs/CHIMEREdoc2017.pdf>

Les seuils de l’OMS pour les polluants :

<http://www.airparif.asso.fr/reglementation/recommandations-oms>

[https://www.who.int/fr/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/fr/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health)

L’adresse de la carte des provinces chinoises :

<https://www.marketingtochina.com/wp-content/uploads/2015/01/provinces.png>

Aide mémoire pour le logiciel R : <http://www.duclert.org/>

<http://www.lisa.u-pec.fr/~siour/R.php>