

Rapport d'activité

Titre du projet : Etude de la qualité de l'air dans un contexte d'évolution des émissions (naturelles et anthropiques) et de changement climatique.

Numéro du projet DARI : A00901077232

Responsable scientifique : Guillaume Siour

Responsable technique : Adriana Coman

Laboratoire : Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA).

Rappels liés à la demande initiale

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 2 285 kheures cœurs initialement demandées

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 700 kheures cœurs initialement attribuées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 1 705 kheures cœurs initialement demandées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 1 705 kheures cœurs initialement attribuées

Heures complémentaires

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 450 kheures cœurs demandées

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 450 kheures cœurs attribuées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 2 455 kheures cœurs demandées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 2 000 kheures cœurs attribuées

Consommation

TGCC Irene skylake : 755,049 heures le 02/09/2021

TGCC Irene Rome : 2,498,470 heures le 02/09/2021

Le projet déposé en 2020 et suivi d'une demande complémentaire portait sur 6 sous projets :

- Étude de la pollution aux échelles continentales par synergie de la modélisation des observations satellitaires
- Scénarios urbains d'aménagement et de politiques énergétiques
- Modélisation des émissions d'aérosols terrigènes pour les régions semi-arides
- Modélisation d'un nouvel indicateur de l'impact sanitaire des particules, le potentiel oxydant
- Simulation des sources de pollution de l'air en Afrique
- Interaction entre émissions biogéniques et anthropiques

1) Etude de la pollution aux échelles continentales par synergie modélisation/observations satellitaires

L'observation de la composition atmosphérique par des instruments satellitaires s'est fortement développée depuis le début des années 2000 avec des séries de données aujourd'hui disponibles suffisamment longues pour envisager des premières études de tendances (e.g. Dufour et al., 2018, Dufour et al., 2021). Au LISA, nous travaillons sur 3 axes pour exploiter ces données :

- nous développons des produits satellitaires spécifiques pour l'étude de la pollution, notamment pour l'ozone avec les instruments IASI à bord des satellites Metop.
- nous mettons en œuvre le modèle de chimie-transport CHIMERE, co-développé au LISA (Menut et al., 2013 ; Mailler et al., 2017), afin de mieux appréhender les problèmes de qualité de l'air aux échelles continentales et d'interpréter les observations satellitaires.
- nous développons de l'assimilation de données, en particulier l'inversion atmosphérique des sources d'émissions, approches mettant en synergie la modélisation et les observations satellitaires.

Ces activités sont développées au sein de plusieurs projets : ANR PoEASIA pour l'étude de la pollution asiatique, ADEME/PRIMEQUAL AMP'AIR pour l'étude du rôle des émissions agricoles d'ammoniac sur les pics de pollution particulaire en France et en Europe, le projet ANR ARGONAUT pour l'étude des émissions de polluants et CO₂ à haute résolution spatiale en France, les projets CNES/TOSCA IASI, IASI-NG et SURVEYOZON pour le développement d'algorithmes d'analyse des données satellitaires et leur assimilation dans les modèles. Récemment, nous nous intéressons également à l'évaluation des impacts de la crise sanitaire du COVID-19 sur la qualité de l'air en réorientant certains objectifs de projets en cours (ANR ARGONAUT et PoEASIA) ainsi que dans le cadre d'un nouveau projet (ADEME/AQACIA LOCKAIR). Nous présentons ci-dessous le bilan de l'année pour ces différentes activités pour lesquelles nous avons utilisé les ressources du TGCC.

a) Tendances d'ozone avec les instruments IASI

Nous développons au LISA des algorithmes de restitution des profils verticaux de concentrations d'ozone à partir des observations satellitaires issues des sondeurs infrarouges IASI à bord des satellites européens météorologiques Metop. Trois instruments sont actuellement en vol : IASI-A depuis 2006, IASI-B depuis 2012 et IASI-C depuis 2018 (première année complète 2008, 2013 et 2019 rétrospectivement). Les algorithmes développés sont de type « recherche » et non à visée opérationnelle et à ce titre ne sont pas éligibles à une production opérationnelle dans les centres de données nationaux (e.g. AERIS). Cependant, nos produits sont utilisés dans le cadre de nos différents projets ainsi que dans divers grands exercices internationaux comme le rapport sur l'ozone troposphérique (www.igacproject.org/activities/TOAR) auquel nous avons participé (Gaudel et al., 2018, Tarasick et al., 2019) et qui a entamé sa phase 2 en 2021. Dans ce cadre, nous sommes engagés à fournir la dernière version de notre produit (v3.0) pour les grandes régions anthropisées de l'hémisphère nord : la Chine, l'Europe et les États-Unis. Au cours de l'année écoulée, nous avons donc

finalisé le reprocessing des données IASI avec cette nouvelle version pour l'instrument IASI sur le satellite Metop-A (en opération depuis de 2007) pour la Chine et l'Europe (période 2008-2020) et traité pour les mêmes régions les données des instruments IASI-B et IASI-C. Dans le cadre du projet ANR PoEASIA, nous avons utilisé les données traitées de IASI-A pour étudier les tendances d'ozone en Chine et les comparer aux tendances simulées par le modèle global LMDz-INCA. Un très bon accord entre le modèle et les observations est observé. Le modèle a permis d'identifier que la baisse des émissions de NO_x opérées en Chine ces dernières années contrôlait pour moitié les tendances observées. Les résultats de cette étude ont été publiés dans le journal ACP et sont en cours de révision (Dufour et al., 2021).

b) Distribution globale de l'ozone dans la très basse troposphère par restitution multispectrale IASI+GOME2

Le produit satellitaire multispectral IASI+GOME2 offrent une sensibilité accrue à l'ozone de la très basse troposphère. La chaîne de traitement a été déployée centre de données atmosphériques ESPRI du portail AERIS (www.aeris-data.fr) depuis 2017 pour le traitement en temps quasi réel. La série complète de données, incluant les années antérieures à 2017, a été sollicitée par le projet de grande envergure internationale TOAR. Les activités IASI+GOME2 au TGCC correspondent à ce besoin scientifique.

Afin de compléter la série de données entre 2009 et 2016, la chaîne de traitement IASI+GOME2 a été adaptée et déployée sur la partition rome du calculateur Joliot-Curie en 2021. Afin de dimensionner au mieux le traitement la résolution horizontale du produit a été réduite de manière adaptée à ce que celle-ci soit aux besoins du TOAR. Avec cette résolution, un total de 240 heures de traitement permettent d'inverser les données satellitaires acquises pendant 1 an à l'échelle globale. Les processing de 2 ans de mesures est en cours sur les heures attribuées aux activités de IASI+GOME2 lors de l'allocation complémentaire de 2021.

c) Modélisation de la pollution en Chine

Dans le cadre du projet ANR PoEASIA qui s'est terminé en mars 2021, nous avons utilisé le modèle de chimie-transport CHIMERE pour étudier la pollution en Chine (Lachâtre et al., 2019, 2020). En 2019-2020, nous avons profité de la mise à disposition de l'inventaire d'émissions MEIC de la Tsinghua University incluant les réductions récentes des émissions de NO_x et SO₂, suite aux mesures prises par les autorités chinoises pour réduire les niveaux de pollution en Chine, pour réaliser 8 ans de simulations avec CHIMERE couvrant la période 2010-2017 donnée par l'inventaire. Une première étude sur l'évolution des principaux polluants avait été menée l'année dernière dans le cadre d'un stage de M2. Cette année, le stage a été prolongé sur le projet PoEASIA afin d'effectuer une validation détaillée du modèle avec les observations du réseau de qualité de l'air chinois disponible depuis 2014. Cette évaluation a montré les bonnes performances de CHIMERE couplé à l'inventaire MEIC pour reproduire les concentrations à la surface d'ozone, de NO₂ et de PM, en particulier dans la région de la Plaine du nord de la Chine (Figure 1).

Par ailleurs, les sorties de ces simulations ont été fournies en juin 2021 à des collègues chinois du CRAES afin d'être intégrés dans une étude chinoise d'intercomparaison de modèles de qualité de l'air. Les données sont en cours de traitement.

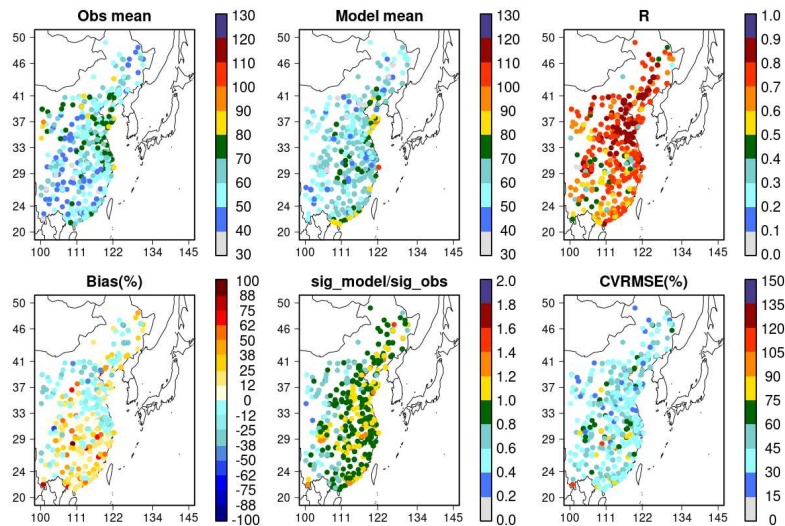


Figure 1 : Comparaison des concentrations d'ozone observées à la surface aux concentrations simulées par CHIMERE pour la période 2014-2017. La corrélation, le biais, le rapport de variabilité et la RMSE relative sont donnés comme indicateurs statistiques de comparaison

d) Modélisation inverse des émissions des précurseurs de la pollution photo-oxydante et particulaire à partir d'observations satellitaires

Les incertitudes sur les émissions de polluants font partie des sources principales d'erreur des modèles de chimie transport et limitent leurs capacités à reproduire certains pics de pollution. Avec les données satellitaires, disponibles depuis une bonne dizaine d'années maintenant et de bonne qualité, leur utilisation pour contraindre les émissions de polluants ouvre une nouvelle ère pour la prescription d'inventaires d'émissions « dynamiques » en entrée des modèles, grâce à leur couverture spatio-temporelle sans précédent. Cette activité de recherche prometteuse est développée depuis plusieurs années au LISA en appliquant soit des approches d'assimilation de données variationnelles pour l'inversion des émissions de NO_x (projets PoLEASIA, ARGONAUT et LOCKAIR), soit des approches simplifiées d'équilibre de masse par exemple pour les émissions agricoles d'ammoniac (projets AMPAIR, LOCKAIR).

- Inversion variationnelle des émissions de NO_x :

Nous avons développé, conjointement avec le LSCE, un premier outil d'assimilation variationnelle PYVAR-CHIMERE pour les gaz réactifs (Fortems-Cheiney et al., 2021). Cependant, des limitations pour gérer la non-linéarité de la chimie (test d'inversion sur les NO_x uniquement) a été relevé. Pour pallier ce problème, nous avons décidé conjointement avec le LSCE de migrer vers un nouvel outil de modélisation inverse, toujours basé sur le modèle de chimie-transport CHIMERE, mais beaucoup plus flexible, l'outil CIF (Community Inversion Framework – développé au LSCE dans le cadre du projet européen VERIFY). L'outil a été installé sur les machines du TGCC en 2020 et est techniquement opérationnel depuis novembre 2020. Nous présentons ici les tests réalisés pour la mise en œuvre du système, les difficultés rencontrées et les premières applications du système dans le cadre des projets ANR PoLEASIA et ARGONAUT.

Mise en œuvre et tests de sensibilité pour l'inversion des émissions de NO_x à l'échelle continentale européenne (cadre thèse CNES/ARGONAUT de Dilek Savas)

Le système a d'abord été testé en utilisant les données satellitaires de NO₂ mesurées par l'instrument OMI. Cet instrument fournit des colonnes troposphériques de NO₂ avec une résolution (taille du pixel 25-35km) et une couverture spatiale moyenne. La convergence du système a été étudiée sur le domaine européen pour différents jours en été 2019 et hiver/printemps 2020 présentant une bonne couverture spatiale. La sensibilité du système et de sa convergence aux paramètres de minimisation du système ainsi qu'aux paramètres liés aux statistiques d'erreur des observations et des émissions a priori utilisées ont été évaluées pour une large gamme de variation de ces paramètres. Une quarantaine de tests de sensibilité a été réalisée et a permis de fixer la configuration adéquate pour l'utilisation des données OMI en Europe.

Une batterie de tests a également été réalisée pour vérifier la meilleure configuration pour appliquer le système sur la Chine. Le système est aujourd'hui opérationnel sur les deux régions pour utiliser les observations de l'instrument OMI.

Tests du système pour le nouvel instrument satellitaire TROPOMI pour des inversions à haute résolution spatiale

Depuis fin 2018, l'instrument européen TROPOMI/Sentinel-5P est en orbite. Il s'agit de la nouvelle génération d'imageurs UV-Vis, successeur de OMI. Il fournit (entre autres) des colonnes troposphériques de NO₂ à haute résolution (3,5 x 5,5 km²) par rapport à OMI. Les informations contenues dans les données TROPOMI sont beaucoup plus riches que celles de son prédécesseur OMI (Figure 2 à gauche). L'augmentation de la quantité de données accroît la dimension du problème inverse à résoudre avec le système d'inversion et augmente les temps de calcul nécessaire pour inverser une journée (quelques heures pour OMI, de l'ordre de la dizaine voir plus pour TROPOMI). Notre objectif avec l'utilisation des données TROPOMI est de réaliser des inversions de NO_x principalement à haute résolution (10 km) sur la France dans le cadre du projets ARGONAUT et LOCKAIR. La stratégie développée consiste en deux étapes. Dans un premier temps, nous testons le système pour une inversion à l'échelle européenne à une résolution moyenne (50 km) en dégradant la résolution de TROPOMI pour se retrouver dans la configuration OMI mais avec une couverture spatiale nettement améliorée (Figure 2 à droite). Dans un deuxième temps, une inversion à 10 km de résolution sur la France est testée. Au cours de la première moitié de 2021, plusieurs tests ont été réalisés sur plusieurs jours. Contrairement à OMI, la convergence du système d'un jour à l'autre est moins stable et il est plus difficile de trouver une configuration unique des paramètres d'inversion assurant la convergence. Nous sommes notamment confrontés à quelques points (quelques unités pour des milliers de pixels) qui agissent comme des attracteurs pendant le processus de minimisation. Nous sommes à la recherche d'une méthode objective pour trier ces attracteurs et être capables de produire des inversions de manière automatique. Par ailleurs, les équipes scientifiques productrices des données satellites de TROPOMI ont récemment (juin 2021) fait part de problèmes identifiés dans les données, dont des biais importants, qui ont été en partie corrigés mais ne sont disponibles que pour les données les plus récentes. Nous n'avons pas encore eu le temps de tester cette nouvelle version des données satellitaires sur des dates récentes. Un reprocessing

des données devrait être réalisé par l'ESA courant 2022, ce qui permettra les dates d'intérêt pour nous (confinement du printemps 2020) mais nous met en difficulté du fait du temps d'attente de ces données.

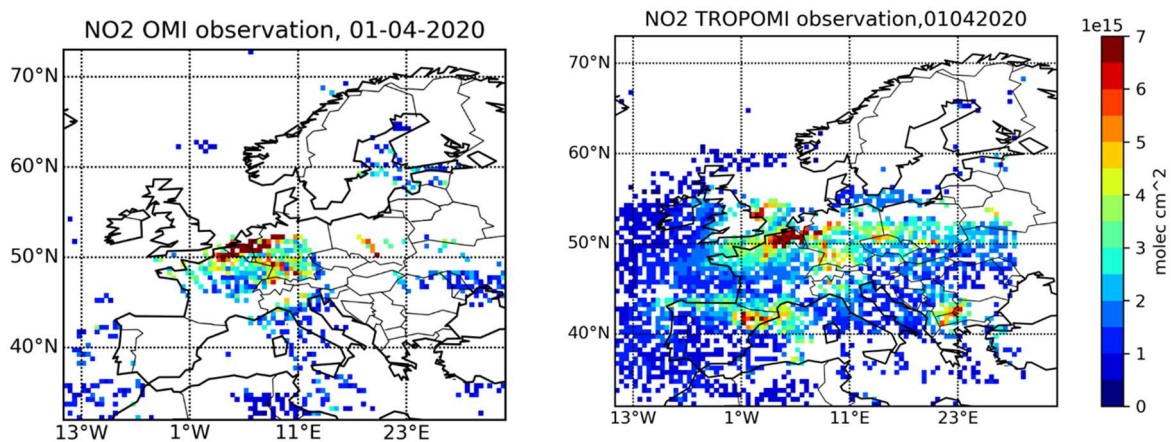


Figure 2 : Colonnes troposphériques de NO₂ observées par OMI (gauche) et TROPOMI (droite) le 1er Avril 2020

Application du système de modélisation inverse pour l'inversion des émissions de NO_x en Chine (ANR PolEASIA)

Les activités de modélisation inverse constituaient un point novateur du projet ANR PolEASIA, dédié à l'étude de la pollution en Asie et plus particulièrement en Chine. Ce projet visait une meilleure quantification de la distribution des polluants en Chine (ozone et aérosols), de leurs sources, de leurs variabilités et de leur évolution récente et future. Dans le cadre de ce projet, le LISA était engagé à fournir des inventaires d'émissions optimisés de NO_x à partir des observations OMI sur la décennie récente (2007-2017) afin d'étudier les tendances et variabilités de ces émissions et les conséquences en termes de qualité de l'air. Compte tenu des difficultés rencontrées avec l'outil de modélisation inverse, ces activités n'ont pas pu avancer autant que nous le souhaitions. Le projet a pris fin en mars 2021 et le système d'inversion a pu être mis en place et calibré pour la Chine (voir plus haut). Afin de valoriser cette avancée, l'année 2015 a été traitée ainsi que la période de confinement (janvier-mars 2020) en Chine dans le cadre de la thèse de Dilek Savas. La Figure 3 montre la différence entre le bilan annuel des émissions de NO_x issu de l'inventaire a priori EDGAR-HTAP-v2.2 et de l'inventaire optimisé. Les résultats sont en cours d'analyse et seront présentés en septembre pendant la conférence IGAC2021.

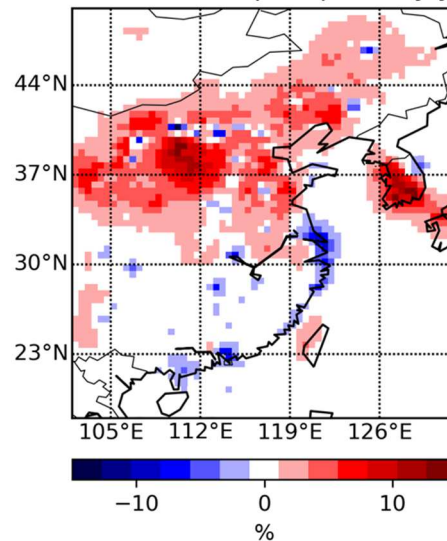
NO_x emission rel. diff, post-prior, by year 2015

Figure 3 : Différence relative entre les budgets annuels des émissions de NO_x optimisées par modélisation inverse avec OMI (post) et ceux issus de l'inventaire EDGAR-HTAP-v2.2 pour l'année 2015

Application du système de modélisation inverse pour l'inversion des émissions de NO_x en Europe (ANR ARGONAUT)

Le projet ANR ARGONAUT (pollutAnts and gReenhouse Gases emissiONs moNitoring from spAce at high resOLUTION) est un projet collaboratif qui regroupe le LISA (porteur), le LSCE, le CEREAs et l'INERIS. L'objectif principal d'ARGONAUT est de fournir des estimations des émissions anthropiques françaises à haute résolution pour les principaux polluants (oxydes d'azote - NO_x, monoxyde de carbone - CO et composés organiques volatils non méthaniques - NMVOCs) et le dioxyde de carbone (CO₂) en s'appuyant sur l'inversion atmosphérique et la nouvelle génération de satellites d'observation de la composition atmosphérique (Sentinel-5P/TROPOMI notamment). Le projet ARGONAUT vise à développer un système d'inversion atmosphérique adapté à l'exploitation de cette imagerie à haute résolution et basé sur le système CIF. Avec la crise sanitaire du COVID, un des nouveaux objectifs du projet est de se focaliser sur la période de confinement du printemps 2020. Nous avons expliqué plus haut les difficultés rencontrées avec le système pour l'inversion atmosphérique avec TROPOMI. Malgré ces difficultés, nous avons commencé à explorer l'impact du confinement à l'échelle de l'Europe à résolution moyenne en utilisant les observations OMI. Un premier bilan des émissions pour le mois d'avril et leurs changements par rapport à l'inventaire a priori (non affecté par le confinement) est montré sur la Figure 4. La couverture spatiale de OMI est souvent insuffisante pour couvrir l'Europe de manière satisfaisante à ces échelles de temps. Quelques tests avec TROPOMI ont récemment été réalisés sur quelques jours à l'échelle européenne. Des différences significatives sont obtenues par rapport à OMI (Figure 4). L'analyse et l'évaluation des résultats sont en cours. Les résultats seront présentés en septembre lors de la conférence EUMETSAT.

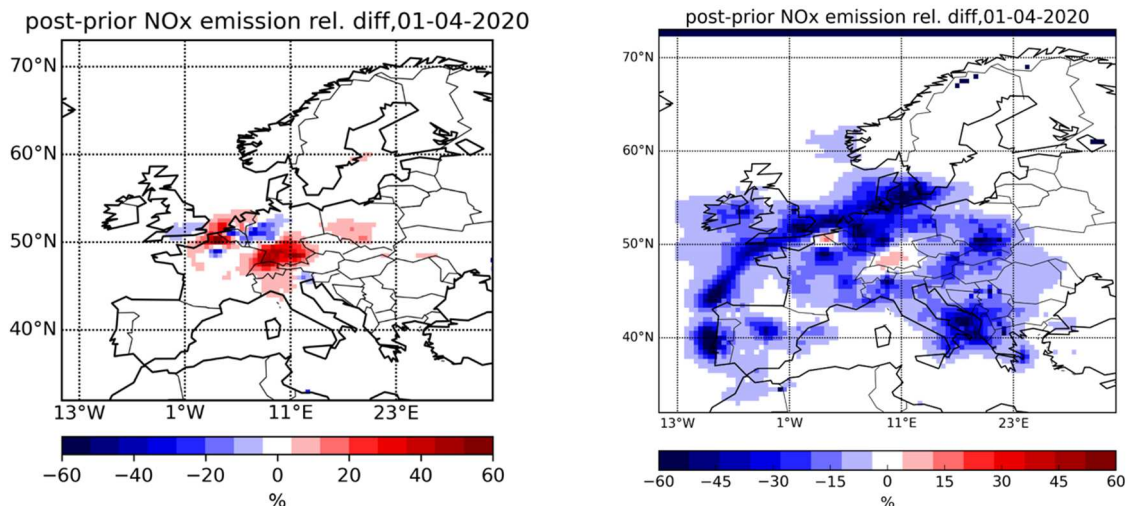


Figure 4 : Différence relative entre les émissions optimisées par OMI (gauche) et par TROPOMI (droite) et les émissions a priori issues de CAMS pour le 1er Avril 2020.

- Inversion des émissions agricoles d'ammoniac par une approche d'équilibre des masses :

Un autre projet dans lequel nous sommes engagés avec des activités de modélisation inverse est le projet ADEME/PRIMEQUAL AMP'AIR. L'objectif du projet est d'améliorer la représentation spatiale et temporelle des émissions agricoles d'ammoniac afin d'améliorer les capacités de simulation et de prédiction des pics de pollution particulaire en France et plus largement en Europe. Plusieurs approches, dont la modélisation inverse, sont développées dans le cadre du projet pour améliorer cette représentation des émissions d'ammoniac. Notre participation à ce projet repose sur l'application d'une approche d'équilibre des masses pour contraindre les émissions de NH_3 à partir des observations de la colonne d'ammoniac par l'instrument satellitaire IASI. Nous avons inversé les émissions journalières d'ammoniac en France pour l'année culturale 2010-2011 (juin à juin) et une résolution spatiale de $0,5 \times 0,25^\circ$ en longitude et latitude. L'inventaire corrigé obtenu a été comparé à deux autres : l'inventaire mécanistique CADASTRE- NH_3 développé par l'INRA et l'inventaire de référence TNO. Les comparaisons des inventaires TNO, NH_3 -SAT et CADASTRE- NH_3 montrent des résultats cohérents en termes de bilan annuel sur la France (différences $< 20\%$) mais de fortes disparités spatiales apparaissent notamment dans le nord/nord-est de la France. Ces travaux ont été publiés (Fortems-Cheiney et al., 2020). La méthode inverse a été appliquée à l'année culturale 2016-2017 en utilisant les colonnes de NH_3 de IASI comme précédemment mais aussi du sondeur infrarouge américain CrIS dans le cadre d'un stage de M2. Les deux instruments ne passent pas à la même heure (environ 10h le matin pour IASI et 13h30 pour CrIS). Les résultats obtenus sont relativement cohérents en termes de temporalité à l'échelle mensuelle et de distribution spatiale, avec toutefois des différences sensibles en termes d'intensité des émissions optimisées. L'utilisation de CrIS conduit à des émissions de NH_3 plus fortes. Pour l'année 2016-2017, nous avons pu bénéficier de observations de surface déployées dans le cadre du projet AMPAIR. Ces observations ont permis d'évaluer les inversions réalisées et de montrer que la contrainte apportée par les observations satellites sur les émissions d'ammoniac permettaient d'améliorer les capacités de simulation de NH_3 du modèle, de l'ordre de 17% pour IASI et de 35% pour CrIS (Figure 5).

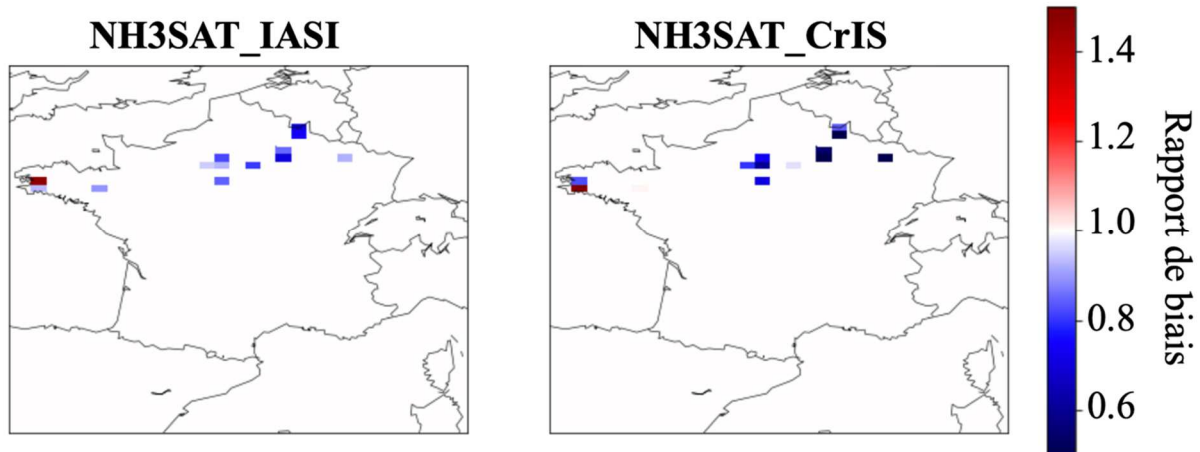


Figure 5 : Rapport de biais entre les concentrations simulées à partir des émissions de NH_3 optimisées par IASI (gauche) et CrIS (droite) et les observations de surface AMPAIR et les concentrations simulées à partir de l'inventaire de référence TNO et les observations de surface sur la période d'épandage d'engrais de Février-Avril 2017. Quand le rapport est inférieur à 1, les émissions optimisées par modélisation inverse améliorent les concentrations simulées de NH_3

e) Assimilation des données IASI/IASI+GOME2

Pour la partie assimilation de données, en utilisant le système CHIMERE-ENKF, un seul changement est à noter, une étude effectuée pour notamment pallier le problème d'assimiler un produit très lissé (sur des mailles de 2° en terme de résolution) pour lequel la matrice de covariance d'erreur R était encore considérée comme diagonale. Pour tenir compte de la corrélation spatiale (après le lissage) entre les données satellitaires utilisées dans l'assimilation et vérifier si dans cette configuration l'assimilation pouvait apporter une amélioration à la simulation de concentrations d'ozone sur l'Asie, nous avons calculé des semi-variogrammes expérimentaux isotropes (sans direction privilégiée). Pour commencer l'analyse variographique proposée, la première étape a consisté à explorer la structure spatiale des données afin de vérifier si celles-ci sont auto-corrélées. L'outil principal permettant cette analyse est le semi-variogramme qui décrit l'évolution de la semi-variance en fonction de la distance entre les mesures (pixels satellitaires) et permet ainsi d'étudier la variabilité des données, compte tenu de la distance à laquelle elles sont situées.

$$\hat{\gamma}(h) = \frac{1}{2|N(h)|} \sum_{N(h)} [z(s_i) - z(s_j)]^2$$

Dans cette formule :

- h correspond à une distance, dans notre cas elle sera mesurée en degrés,
- $z(s_i)$ correspond à la valeur de la variable étudiée au point s_i , ici les colonnes(DU) d'ozone,
- $N(h) = \{(i, j), \text{ tel que } s_i - s_j = h\}$ donc $|N(h)|$ est le nombre de paires distinctes de l'ensemble $N(h)$. Lorsque la distance h augmente, le variogramme (h) peut ou non atteindre un plateau. L'atteinte d'un plateau indique qu'à partir d'une certaine distance, il n'y a plus de dépendance spatiale entre les données. Cette distance est nommée **portée** et le terme **palier** dénote la variance à laquelle le plateau se présente. Un palier ne peut être atteint qu'asymptotiquement. Dans ce cas, la portée réelle est infinie mais une portée pratique est définie par la distance à laquelle le variogramme atteint 95% de la valeur de son palier.

Une fois le variogramme estimé (les points expérimentaux), il convient de le modéliser/fitter par une fonction de référence (modèle exponentiel, sphérique, gaussien, Matern...). Le modèle retenu dans le cas de nos données satellitaires est le modèle sphérique :

$$\gamma(r) = \begin{cases} c_0 + c \left(\frac{3}{2} \frac{r}{a} - \frac{1}{2} \frac{r^3}{a^3} \right) & \text{pour } 0 \leq r \leq a \\ c_0 + c & \text{pour } r > a \end{cases}$$

Où c_0 correspond à l'effet pépité, $c_0 + c$ correspond au palier et a correspond à la portée. Pour exemple, les données satellitaires brutes (exprimées en DU) correspondant à la date de 2015/06/07 ont été représentées dans la Figure 6.

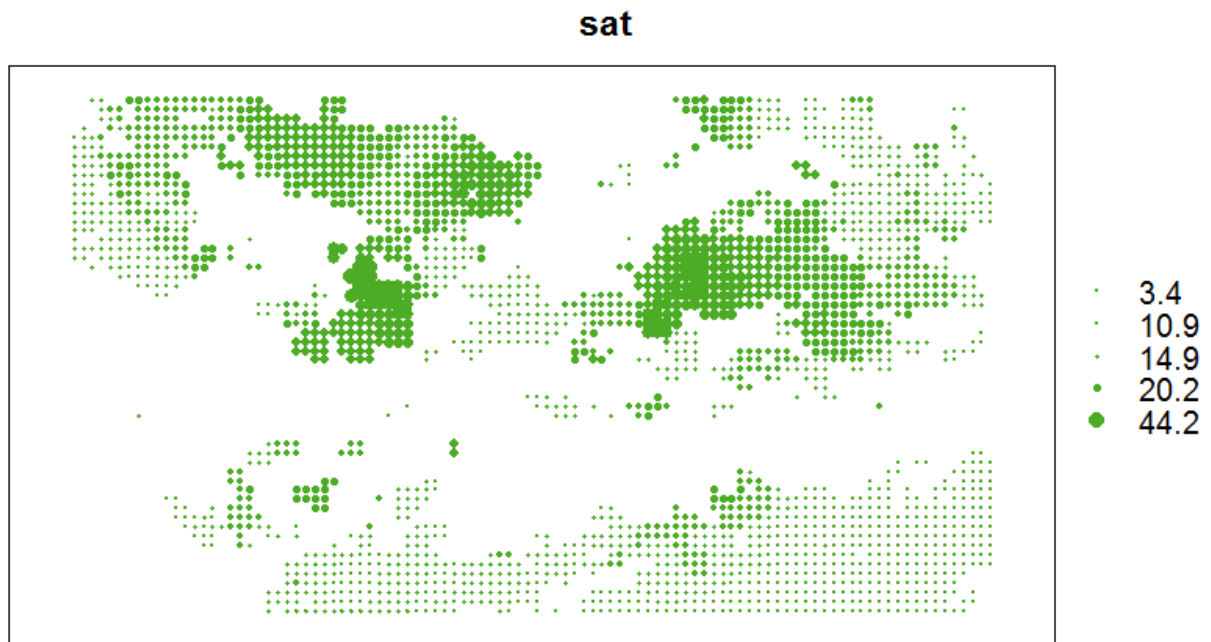


Figure 6 : Variabilité des données satellitaires exprimées en DU pour la date de 7 Juin 2015 sur l'Asie.

Les points sur la Figure 7 représentent la semivariance en fonction de la distance pour la date de 7 Juin 2015. La courbe représente le modèle sphérique ajusté. a est la portée (range ≈ 20) donc la distance horizontale jusqu'à laquelle le variogramme s'étend, c_0 l'effet de pépité est de 0.1 (presque nul) la plupart du temps, mais on observe également des faibles valeurs pour d'autres jours du Juin 2015, notre période d'étude. Le paramètre palier noté ici par c varie plus d'un jour à l'autre (pour le 7 Juin est de presque 60).

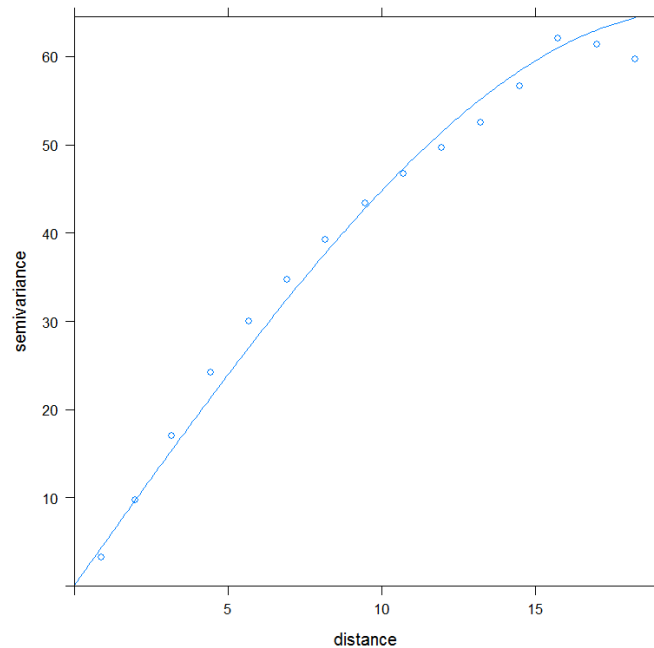


Figure 7 : Variogramme ajusté pour les données du 7 Juin 2015 en utilisant un modèle sphérique. Les distances sont représentées en degrés.

Revenant à la matrice R , matrice de covariance d'erreur des observations, au lieu d'avoir uniquement une matrice diagonale caractérisée par le $R[i,i] \neq 0$, nous allons utiliser par la suite un modèle qui dépend de la distance entre les mailles/pixels, donc des valeurs non-nulles pour le $R[i,j]$ (pour $i \neq j$) estimées en utilisant le modèle sélectionné. Parmi les modèles testés, on trouve que le modèle sphérique est le plus adapté pour les données de IASI- GOME2. A une distance $h > 15$, on observe que les points ne sont pas correctement alignés sur la courbe, le fit n'est donc pas valable à grande distance. La localisation utilisée dans la procédure d'assimilation s'arrête à 200 km de distance de la maille considérée, bien en dessous de 15° (comme dans notre exemple, où le fit du variogramme est plutôt bon).

Pour le moment, les simulations avec la matrice R non-diagonale n'ont pas été lancées. Cette action est prévue pour le mois de septembre 2021, donc il n'y a pas de résultats à présenter pour cette partie. Nous allons essayer d'utiliser les 25 kh demandées l'année dernière dans ce but.

2) Scénarios urbains d'aménagement et de politiques énergétiques

Au cours de la dernière décennie, de nombreuses études épidémiologiques et de toxicologie ont montré que la pollution atmosphérique urbaine liée à la circulation contribuait à dégrader la santé respiratoire et cardiovasculaire dans le cadre d'une exposition à long terme, et pouvait également être associée à une morbidité à court terme. Au LISA, nous travaillons sur plusieurs axes pour évaluer l'ampleur et les inégalités de pollution dans la métropole francilienne :

- En quantifiant les impacts sur la qualité de l'air de différents scénarios urbains de planifications territoriales
- En quantifiant les impacts sur la qualité de l'air de différentes formes d'organisation urbaine (densité et mixité du tissu, transports de personnes et de marchandises)
- En quantifiant les impacts sur la qualité de l'air de la modification des comportements (pratiques de mobilité et de consommation énergétique)

Ces scénarios sont mis en œuvre sur une plateforme de modélisation urbaine innovante dédiée, puis analysés. Cette approche de modélisation permet de relier la structure urbaine à la demande en transport, les impacts énergétiques et les émissions de polluants qui en résultent ainsi que leur impact sur la qualité de l'air à fine échelle.

Ces activités de recherche s'appuient sur un historique de collaborations. L'émergence du LabEx Futurs Urbains a rendu possible la création d'un consortium dédié à la production de scénarios énergétiques prospectifs. Le projet VITE! (Villes et Transition Énergétique, 2014-2018), soutenu par un financement ANR, a permis de mettre en œuvre des scénarios énergétiques contrastés afin de simuler les effets de la mise en œuvre de ces leviers de transition énergétique. Le projet POLL-EXPO, soutenu par un financement de l'ADEME a pour ambition d'évaluer les inégalités d'expositions en lien avec les scénarios de structure urbaine. L'objectif principal du projet est de produire un diagnostic urbain innovant sur l'exposition des populations aux polluants anthropiques gazeux et particulaires primaires (oxydes d'azote et particules fines notamment).

Cette année nous avons réalisé les simulations intégrées de la qualité de l'air, dont des scénarios prospectifs de planification urbaine ainsi que des scénarios de forme urbaines théoriques. Nous finalisons actuellement plusieurs publications en lien avec ces différents scénarios. En parallèle, nous appliquons sur des situations de référence une méthode d'extrapolation statistique des données issues du modèle de chimie-transport CHIMERE pour affiner l'échelle des concentrations fournies par le modèle (kilométrique) à l'échelle de la rue qui est plus représentatif de l'individu pour les calculs d'exposition.

2.1 Caractérisation du rôle de l'aménagement urbain sur les activités, sur les flux de véhicules et sur les émissions

Nous réalisons au LISA des simulations de qualité de l'air aux échelles urbaines pour quantifier les impacts de différents scénarios d'organisation urbaine pensés pour la transition énergétique. Les travaux réalisés jusqu'à présent nous ont permis de simuler une situation de référence pour l'année 2030. Cette simulation intègre les principales hypothèses proposées par le SDRIF (Schéma Directeur Régional d'Île-de-France) à savoir une croissance démographique issue d'un scénario médian (natalité, mortalité, solde migratoire), l'amélioration du réseau de transports, la densification près des pôles de gares. Les choix de mobilité ayant un impact sur les émissions de polluants urbains et in fine sur la qualité de l'air urbain, cette année, nous avons travaillé sur l'impact de planifications urbaines qui incitent un report modal de la voiture vers les transports en commun par le biais de plusieurs sensibilités. (1) Des simulations liées à l'évolution du réseau de transport en commun ont été réalisées afin de quantifier les potentiels gains en termes de qualité de l'air. (2) Des simulations en lien avec des politiques de réduction de déplacements motorisés, dont le covoiturage et télétravail ont également été réalisées. La Figure 8 présente les différences entre plusieurs scénarios pour plusieurs polluants que sont les oxydes d'azote et les particules fines. Les différences observées pour les oxydes d'azotes sont principalement en périphérie de l'agglomération suggérant une augmentation de la part modale de l'automobile en zone péri-urbaine. Ce constat est plus nuancé pour les particules fines principalement parce que le transport n'est pas la principale source d'émissions de particules fines en zone urbaine. Nous travaillons actuellement à la publication de ces travaux dans le cadre d'une double publication à soumettre en automne 2021 (Elessa Etuman et al., 2021).

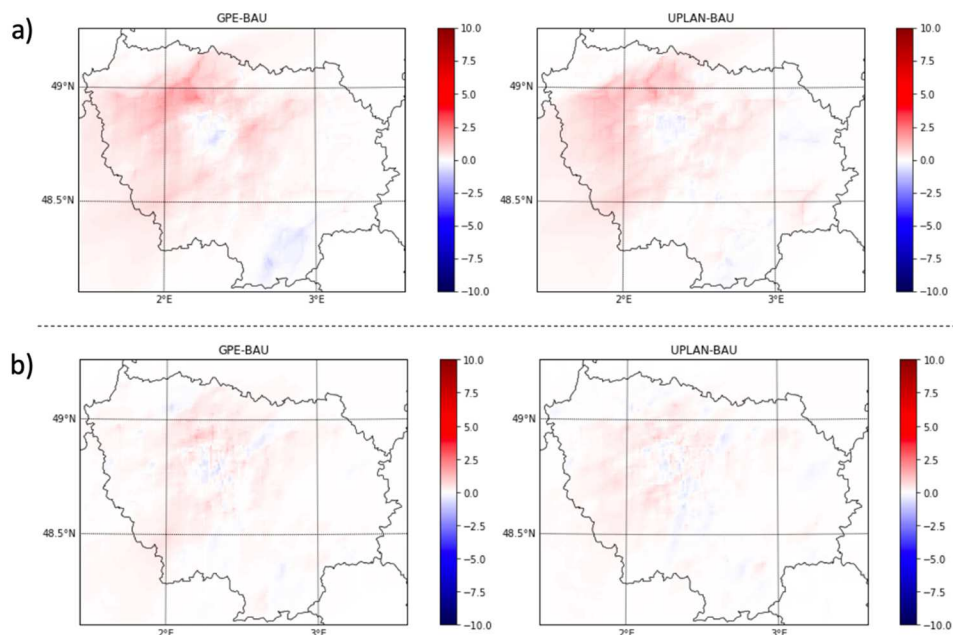


Figure 8 : Différences absolues des concentrations annuelles moyennes pour plusieurs scénarios « Grand Paris Express » (GPE) à gauche, « Urban planification » (UPLAN) à droite et le scénario « Business as Usual » (BAU). (a) NO₂, (b) PM_{2.5}. Les concentrations sont exprimées en $\mu\text{g.m}^{-3}$ et simulées par le modèle CHIMERE avec une résolution horizontale de 1km².

2.2 Caractérisation des liens entre la structure, l'organisation et le fonctionnement de la ville et la qualité de l'air

Dans le cadre de la lutte contre le dérèglement climatique, le modèle de la ville compacte est souvent présenté comme un moyen d'économiser les ressources – par une gestion collective et de proximité des différents réseaux – et donc de réduire notre pression sur l'environnement. Ces travaux visent à étudier les atouts théoriques de différentes formes théoriques simples d'urbanisation : monocentrique, polycentrique ou structurée autour de couloirs de transport. Ils s'inscrivent dans le cadre d'une réflexion sur les paradoxes de la densification des villes où, à population égale, la structure d'un territoire a un impact sur son organisation et son fonctionnement. L'étude des scénarios de morphologies contrastées doit permettre de mettre en évidence l'impact de la structure urbaine sur les émissions de polluants atmosphériques qui sont un paramètre clé de la modélisation de la qualité de l'air.

Nous avons simulé plusieurs scénarios contrastés de structures urbaines :

- Une ville monocentrique classique (COMPACT)
- Une ville basée sur des directions privilégiées pour le transport (CORRIDOR)
- Une ville étalée (SPRAWL)
- Une ville polycentrique (STARS)

Pour simuler ces scénarios nous avons construit quatre jeux différents d'occupation des sols, que nous avons utilisés comme données d'entrées pour la modélisation des émissions et de la qualité de l'air. Toutes les simulations ont été réalisées avec les conditions météorologiques de l'année 2009. Nous avons croisé les données de densité de population et de composition de l'air, dans le but d'observer la distribution de l'exposition dans les différents scénarios. La Figure 9 représente les fréquences d'exposition par classe de concentrations de NO₂ et de particules PM_{2.5} pour les 4 principaux scénarios STARS, SPRAWL, CORRIDOR, COMPACT. Nous avons notamment observé que la configuration COMPACT (en gris) est la seule à imposer des seuils d'exposition au-delà des valeurs réglementaires (40 µg.m⁻³ pour NO₂ et 25 µg.m⁻³ pour les PM_{2.5} en moyenne annuelle). Ces résultats sont discutés dans un ouvrage collectif en cours d'édition (Coll et al., 2021).

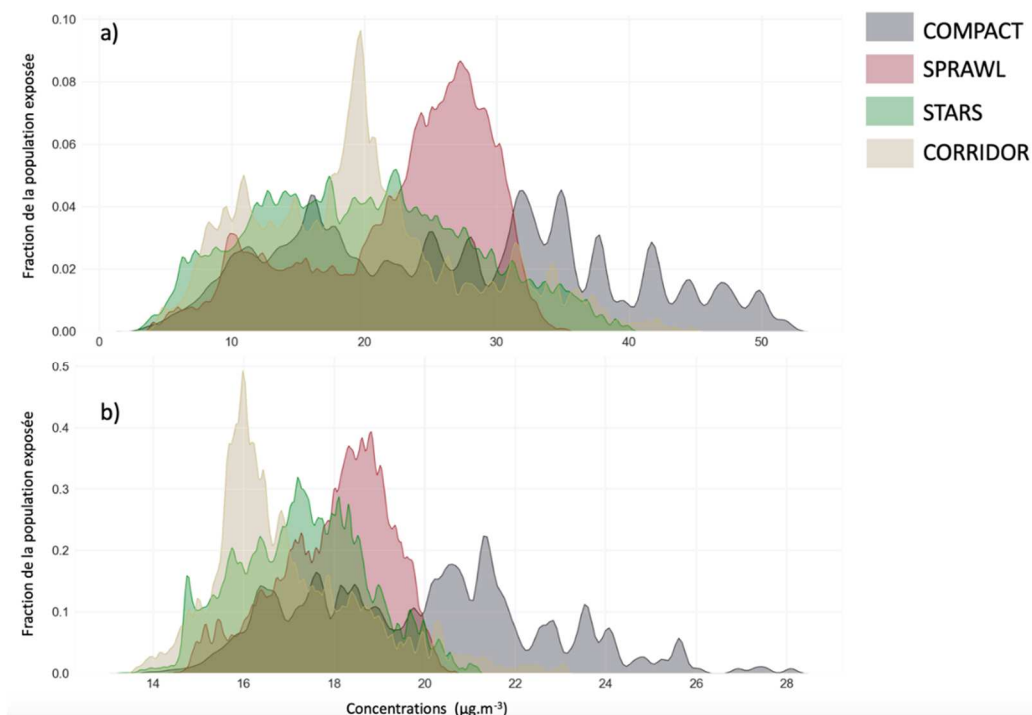


Figure 9 : Fréquence d'exposition des populations par classe de concentration de NO₂ (en haut) et de particules PM_{2.5} (en bas) en µg.m⁻³, simulées par CHIMERE pour 3 scénarios (SPRAWL, CORRIDOR, COMPACT, STARS).

2.3 Couplage de modèles pour estimer la contribution du transport de marchandises à la dégradation de la qualité de l'air en Ile-de-France

Le transport routier est une source majeure d'émissions de polluants, avec des conséquences à la fois pour l'environnement et la santé humaine. Le transport de marchandise en ville (TMV) contribue à près de 50% des émissions du trafic routier. Nous travaillons actuellement à quantifier la contribution du TMV à la dégradation de la qualité de l'air par une approche de modélisation numérique. L'objectif est d'analyser les émissions associées au TMV, leur impact sur la consommation énergétique, les émissions de CO₂, la qualité de l'air ainsi que la contribution du TMV à l'exposition des franciliens à la pollution atmosphérique. Les leviers potentiels concernent des restrictions de localisation pour certaines activités économiques afin de mieux contrôler les origines et les destinations des flux de marchandises. Dans la même logique, l'effet d'une introduction de zones à faibles émissions pour les poids-lourds et véhicules utilitaires est testé. Les scénarios se reposent également sur la mise en place d'incitations tarifaires (péages urbains ou péages de transit pour les poids-lourds) visant à réduire localement les flux de véhicules, à augmenter leurs taux de chargement ou encore à accélérer le rythme de renouvellement de la flotte.

Dans une collaboration avec les laboratoires de recherche SPLOTT et LAET, dont les travaux sont axés sur la logistique urbaine, nous développons une modélisation des scénarios urbains capable d'intégrer l'évolution de la logistique urbaine. Les scénarios réalisés jusqu'à présent ont permis de simuler une situation de référence et de valider les résultats avec des observations. Nous avons pu présenter nos travaux dans le cadre de plusieurs conférences en Juin dernier (Elessa Etuman et al., 2021).

2.4 Modélisation de la pollution à proximité des sources et estimation de l'exposition de la population en considérant sa mobilité quotidienne

a) Modélisation de la pollution de proximité

L'estimation des champs de concentrations de polluants de la région Île-de-France a été réalisée via le modèle CHIMERE, modèle méso-échelle de chimie transport. Une limitation du modèle est le fait qu'il représente de manière insuffisante le cumul et la non-dispersion, à fine échelle, des concentrations de polluants issus du trafic routier en zones confinées. Il y a un besoin de raffinement des sorties du modèle pour que celles-ci puissent être utilisées à des fins d'estimation d'exposition de la population francilienne aux principaux polluants émis par le trafic routier en zones urbaines (le dioxyde d'azote et les particules). Il s'agit, pour cela, d'ajuster les concentrations du modèle par la détermination et l'application de coefficients d'ajustement, calculés statistiquement, représentant (1) le niveau moyen des concentrations et (2) la surémission des polluants liée à la représentation locale des concentrations. Nous avons observé qu'il était fréquent que le modèle CHIMERE ne représente pas correctement les champs de concentrations, en comparaison avec la mesure. Les vitesses de vents, simulées d'une part par le modèle météorologique WRF et utilisées par CHIMERE, ont été le paramètre explicatif de cette problématique. En effet, le modèle utilise une représentation simplifiée de la rugosité de la surface et ne permet pas de refléter l'accumulation des concentrations aux seins des rues (phénomène très fréquent dans les zones urbaines les plus denses). Pour pallier ce problème, une condition sur les vitesses de vents a été ajouté aux deux parties de l'équation de correction. Le développement de l'algorithme de correction a été piloté par la comparaison des concentrations simulées par le modèle CHIMERE avec les données de mesures obtenues par le réseau AIRPARIF (Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air en Île-de-France).

L'étape de développement de l'approche a nécessité différentes simulations réalisées sur la partition ROME (météo, émissions et concentrations) pour l'année 2009 et ont donné les résultats présentés sur la Figure 10 pour NO₂.

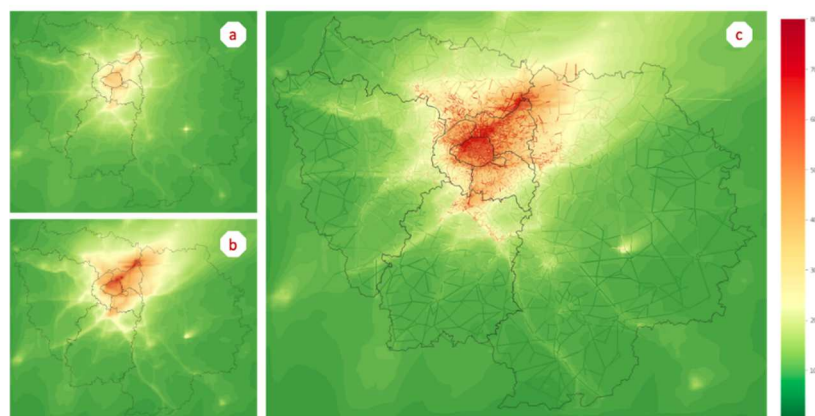


Figure 10 : Comparaison des concentration moyennes annuelles en NO₂ simulées par CHIMERE (a), avec correction sur le fond urbain (b) et avec correction sur le fond urbain et à proximité du trafic (c). Toutes les valeurs sont en µg.m⁻³.

Afin de valider cette approche, nous avons appliqué notre correction statistique à de nouvelles conditions météorologiques. Cette nouvelle simulation a permis, entre autre, de vérifier la pertinence de l'approche lorsqu'elle était confrontée à de nouvelles stations de mesures (mises en service après 2009). Pour cela, de nouvelles simulations des conditions météorologiques (WRF), des émissions (emiSURF) ainsi que des champs de concentrations (CHIMERE) ont été réalisées pour l'année 2017 sur la partition ROME. L'application de la correction aux simulations de CHIMERE ont permis de diminuer les valeurs de RMSE jusqu'à $26 \mu\text{g.m}^{-3}$ pour les stations de trafic de NO_2 et jusqu'à $18 \mu\text{g.m}^{-3}$ pour les stations de trafic mesurant les concentrations de PM_{10} . Les résultats relatifs aux moyennes annuelles obtenues sont représentés sur la Figure 11. On peut voir que l'application de la correction (en rouge) permet d'ajuster les moyennes annuelles initialement simulées par CHIMERE (en gris) par rapport à la mesure (en bleu).

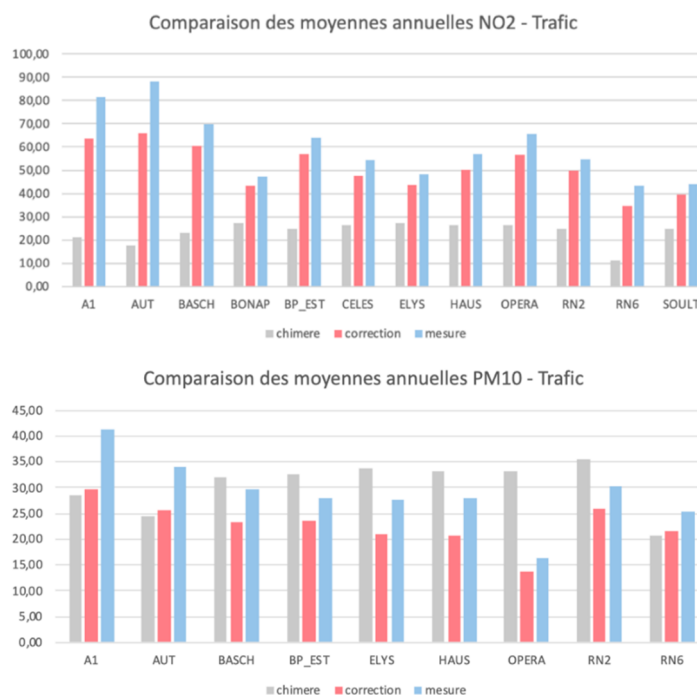


Figure 11 : Comparaison des moyennes annuelles simulées par CHIMERE (gris), via l'application de la correction (rouge) avec la mesure effectuée au niveau des stations de trafic du réseau d'Airparif (bleu). Toutes les valeurs sont en $\mu\text{g.m}^{-3}$.

Cet ajustement (modèle-correction) est moins marqué pour certaines stations mesurant des concentrations de PM_{10} . Nous travaillons actuellement à une meilleure représentation du bruit de fond régional dans l'algorithme de correction. L'apprentissage-validation de l'approche est en cours et donne, jusqu'à présent, des meilleurs résultats pour la phase d'apprentissage.

La généralisation de l'application de l'ajustement est en cours de traitement et permettra d'appliquer une correction à l'ensemble des mailles du domaine afin de cartographier les résultats.

b) Estimation de l'exposition dynamique de la population

Dans un second temps, il a été question de développer une modélisation des trajectoires individuelles des habitants de la région Île-de-France afin de pouvoir représenter leurs déplacements quotidiens ainsi que le temps passé dans chaque microenvironnement visité. Afin d'estimer les niveaux d'exposition de la population francilienne, des simulations hautes résolutions de la qualité de l'air ont été réalisées pour une situation de référence qui est l'année 2017 (WRF, emiSURF, CHIMERE et la descente en échelle). Ces données de qualité de l'air ont ensuite été croisées aux données de mobilité de la population pour estimer leur exposition dynamique cumulée au cours de la journée. Les trajectoires individuelles sont rendues accessibles par l'utilisation du modèle OLYMPUS (modèle de calcul des émissions liées aux déplacements quotidiens ainsi qu'à la demande en énergie du bâti d'une population synthétique qu'il aura aléatoirement généré) (Elessa Etuman et Coll, 2018). OLYMPUS permet, entre autre, d'accéder aux matrices Origine-Destination des individus. Ces matrices récapitulent toutes les informations relatives aux déplacements des individus, notamment les types d'activités, les adresses où ils se trouvent ainsi que les horaires. Il est donc possible d'en déduire le temps passé dans chaque microenvironnement et de croiser cette donnée avec les valeurs de concentrations ambiantes pour calculer les niveaux d'expositions des individus. Une étude bibliographique a été réalisée pour déterminer les niveaux moyens de concentrations dans les différents environnements intérieurs visités par les individus. Le croisement entre concentrations et mobilité a donc pu être effectué pour chaque individu et il a été possible de calculer leurs cumuls d'exposition au cours de la journée pour les deux polluants étudiés. La Figure 12 représente l'exposition cumulée aux concentrations de NO₂ et de PM₁₀ d'un agent de la population d'OLYMPUS. Les lieux et activités qu'il visite/réalise sont représentés en fond coloré et hachuré sur le graphique. Les types de transport qu'il emprunte sont représentés en fond coloré et unis.

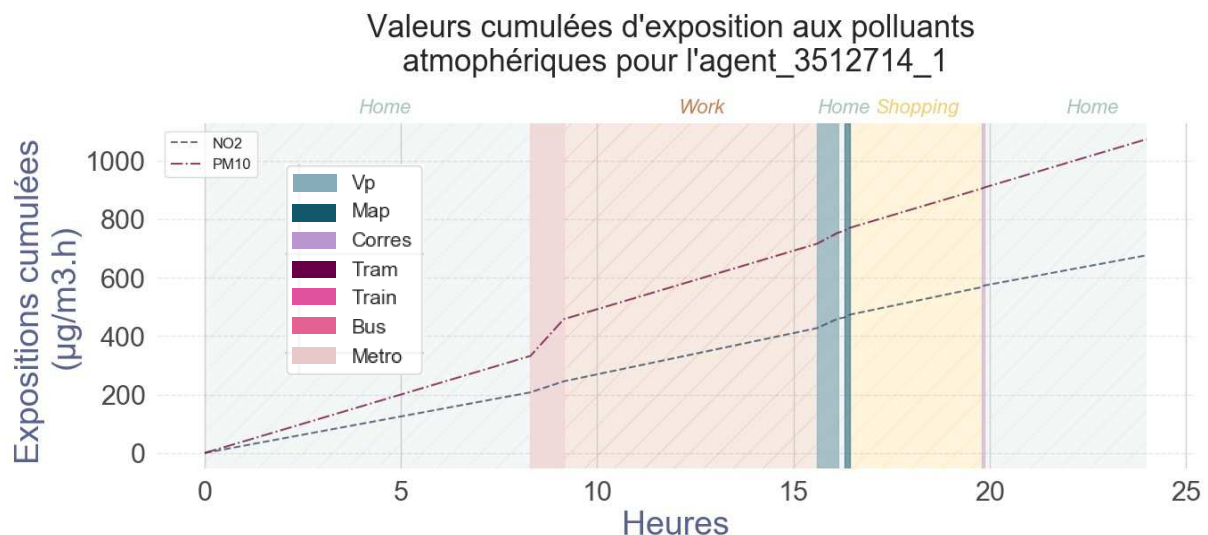


Figure 12 : Exposition cumulée sur la journée de l'agent 3512714_1 en fonction des temps passés dans chaque microenvironnement pour NO₂ (ligne pointillée bleue) et pour les PM₁₀ (ligne pointillée rose). VP : Véhicule Particulier, Map : Marche à pied, Corres : Correspondance.

Il est également possible de récapituler les données relatives aux temps/distances parcourus suivant les modes de transport choisis par l'ensemble de la population généré par OLYMPUS. La Figure 13 représente la durée de déplacement par mode de transport de cet ensemble de population. Ces résultats sont en cours de comparaison avec des données d'enquêtes (Enquête Globale Transport d'Ile de France) pour être validés. Un article scientifique est en cours de rédaction sur ces différents développements.

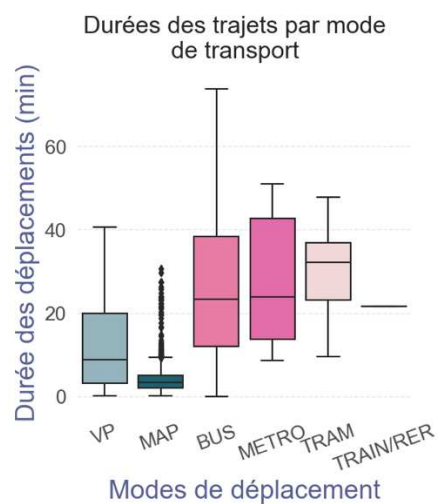


Figure 13: Boxplots des durées de déplacements par mode de transport pour l'ensemble de la population simulée. VP : Véhicule Particulier, Map : Marche à pied, Corres : Correspondance.

3) Modélisation des émissions d'aérosols terrigènes pour les régions semi-arides

Ce sous-projet s'inscrit dans le cadre du projet WIND-O-V (WIND erOsion in presence of sparse Vegetation) financé par l'ANR (<https://www6.inra.fr/anr-window>) et vise à quantifier les émissions d'aérosols terrigènes dans les régions semi-arides.

Les schémas d'émission d'aérosols terrigènes présents dans les modèles climatiques pour prédire le cycle de ces aérosols et leurs impacts locaux à globaux donnent des prévisions différentes les unes des autres en raison de leur mauvaise représentation des vents et de la végétation proche de la surface. Pour surmonter ces limitations, le projet WIND-O-V tente de développer une nouvelle génération de modèles d'érosion éolienne prédisant la quantité et la composition des aérosols terrigènes émis par les surfaces végétalisées nues et clairsemées, typiques des régions semi-arides.

Pour ce faire, de nouvelles paramétrisations ont été et seront mises en place dans le modèle d'érosion éolienne et d'émission d'aérosols terrigènes développé par Marticorena and Bergametti (1995) pour les régions arides et testées à l'échelle régionale grâce au modèle de chimie-transport CHIMERE (Menut et al., 2013). La région modélisée sur la période 2013-2018 est le sud de la Tunisie (entre 30.26°N et 34.31°N et entre 7.442°E et 11.91°E), région pour laquelle nous disposons d'une base de données des caractéristiques de la surface des sols en fonction de leur usage à une résolution horizontale de 10x10 km (Labiadh, 2011). La qualification des développements réalisés est effectuée en utilisant (i) les mesures d'érosion éolienne acquises au cours d'un précédent projet (LEFE, 2014-2015), et (ii) les données de concentration en PM₁₀ (Bouet et al., 2019) et d'épaisseur optique disponibles sur le site de l'Institut des Régions Arides de Médenine depuis 2013.

Pour le moment, 2 configurations ont été testées :

- Simulation 1 : une simulation dans la configuration originale du modèle (base de données décrite dans Laurent et al. (2008)),
- Simulation 2 : une simulation avec la base de données développée par Labiadh (2011) et incluant l'effet du labour (paramétrisations de Kardous et al. (2005a ; b)).

Premiers résultats :

Emissions d'aérosols désertiques

Le Tableau 1 présente les émissions d'aérosols désertiques simulées pour chacune des 6 années étudiées. Quelle que soit l'année considérée, les émissions simulées en utilisant la nouvelle base de données sont bien plus faibles (d'environ un facteur 30) qu'en utilisant la base de données développées par Laurent et al. (2008).

Tableau 1 : Emissions annuelles d'aérosols désertiques (en Tg) simulées sur le sud Tunisien.

Année	Simulation 1	Simulation 2
2013	32,82	1,08
2014	33,98	0,93
2015	26,93	0,90
2016	31,61	0,90
2017	24,89	0,77
2018	29,81	0,98

On voit cependant que des émissions sont simulées sur l'ensemble de la zone considérée avec la nouvelle base de données (Figure 14 droite). Ceci s'explique par le fait qu'il existe des lacunes sur la zone d'étude dans la base de données développée par Laurent et al. (2008).

Pour valider les résultats obtenus en utilisant 2 bases de données des propriétés de surface différentes, nous allons maintenant comparer les flux d'érosion éolienne, les concentrations et les épaisseurs optiques simulées aux observations disponibles sur la période étudiée.

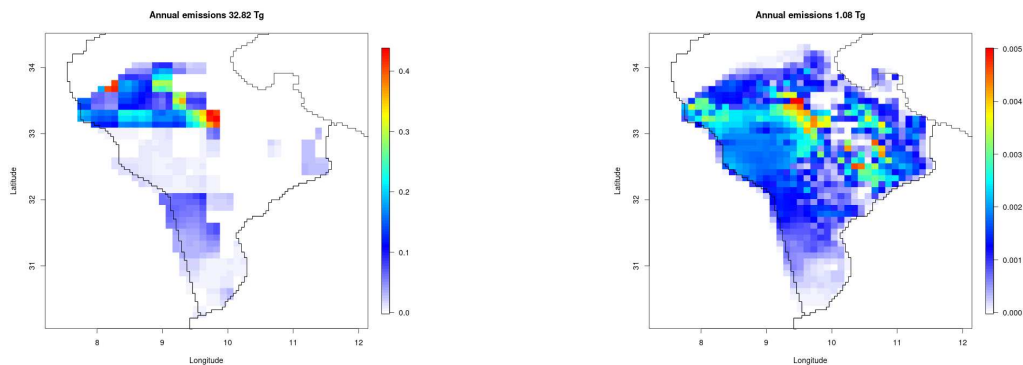


Figure 14 : Flux d'émission annuels simulés pour l'année 2013 pour la simulation 1 (gauche) et la simulation 2 (droite).

Flux d'érosion éolienne

Les Figure 15 (gauche) et Figure 16 présentent pour chaque site de mesures une comparaison entre les flux mesurés et les flux simulés. Aucun flux n'est simulé pour le site de Chammakh (oliveraie) quelle que soit la base de données utilisée.

Les flux simulés à Menzel Habib (parcours sur pénélaine et plateaux) sont nettement sous-estimés par rapport aux flux mesurés (Figure 15 à gauche). Ceci est lié à une sous-estimation de la vitesse du vent en entrée de CHIMERE (Figure 15 à droite) : alors que les vitesses mesurées peuvent dépasser 10 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, le vent utilisé en entrée de CHIMERE ne dépasse que rarement 8 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.

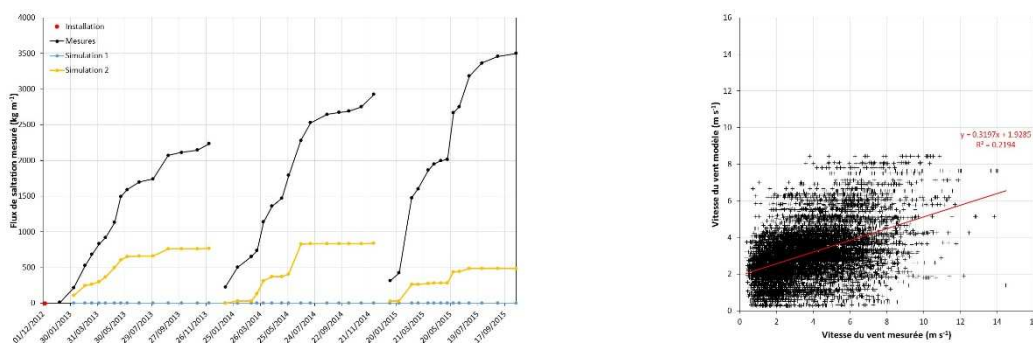


Figure 15 : A gauche le flux de saltation cumulé (en $\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}$) mesuré (courbe noire) et simulé en utilisant la base de données originale (simulation 1 – courbe bleue) ou la nouvelle base de données (simulation 2 – courbe jaune) à Menzel Habib du 07/01/2013 au 13/10/2015. Le point rouge précise la date d'installation du site de mesures. A droite la vitesse du vent horaire (en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) utilisé en entrée de CHIMERE en fonction du vent mesuré (moyenne horaire en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) pour le site de Menzel Habib sur la période du 24/06/2014 13:00 TU au 13/10/2015 09:00 TU. L'équation de la droite de régression linéaire et le coefficient de détermination correspondant sont précisés ($N = 11\ 421$).

Dans la région du Chott, au nord-ouest de la zone simulée, que ce soit pour le site du Chott El Jérid (Figure 16 a) ou pour le pixel d'Atilet (Figure 16 b), les flux simulés en utilisant la nouvelle base de données sont plus proches des flux mesurés. La même tendance est observée pour le site de Nadhour Rouag (Figure 16 c), situé au sud-est de la zone simulée : dans tous les cas, la simulation surestime les flux d'érosion, mais cette surestimation est réduite de plus d'un facteur 2 quand on utilise la nouvelle base de données. Enfin, dans le cas des 2 sites cultivés en orge (Figure 16 d et e), les flux simulés sont toujours supérieurs aux flux mesurés. Le décrochage entre mesures et modèle s'explique par le fait qu'un fort événement d'érosion est simulé au printemps (mars/avril), période à laquelle la végétation sur le champ est à son maximum. Donc, même si la vitesse du vent est forte, la végétation empêche toute érosion au niveau du champ. Ce processus n'est actuellement pas pris en compte dans le modèle.

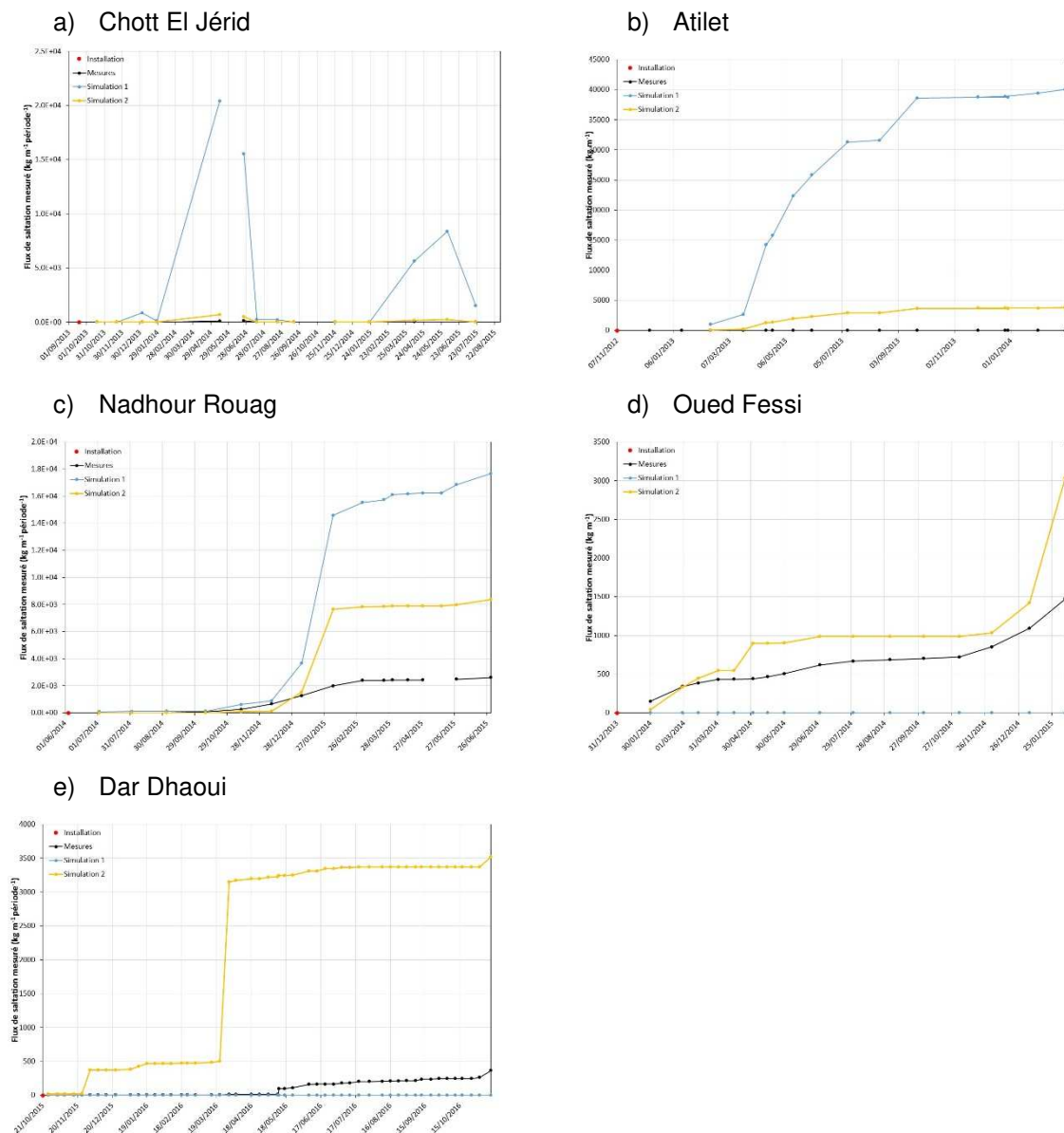


Figure 16 : Flux de saltation (en $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{période}^{-1}$) mesuré (courbe noire) et simulé en utilisant la base de données originale (simulation 1 – courbe bleue) ou la nouvelle base de données (simulation 2 – courbe jaune). Le point rouge précise la date d'installation du site de mesures. a) le Chott El Jérid du 18/10/2013 au 20/01/2016, b) Atilet du 07/11/2012 au 28/02/2014, c) Nadhour Rouag du 03/07/2014 au 24/11/2015, d) Oued Fessi (cultivé en orge) du 30/01/2014 au 06/02/2015, e) Dar Dhaoui (cultivé en orge) du 26/10/2015 au 11/11/2015.

Concentrations en PM_{10} et AOD sur le site de l'IRA

Quelle que soit la base de données des propriétés de surface utilisées en entrée du modèle, ce dernier ne reproduit pas le bruit de fond lié au transport d'aérosols terrigènes depuis les sources éloignées du continent africain car nous avons choisi de ne pas prendre en compte de sources extérieures à la zone d'étude dans la configuration du modèle. En revanche, les pics liés aux émissions locales sont très fortement surestimés par la simulation 1 et, à l'inverse, un peu sous-estimée par la simulation 2 (Figure 17 à gauche). Si on compare l'épaisseur optique en aérosols mesurée à 440 nm à celle simulée à la même longueur d'onde à la station AERONET de l'IRA Médenine (Figure 17 à droite), on constate que la simulation 2 sous-estime très nettement cette grandeur tout au long de la période considérée. Un meilleur accord est observé pour la simulation même si la temporalité ne semble pas reproduite. Cette dernière observation peut s'expliquer par la non-prise en compte dans les simulations d'un aérosol de fond.

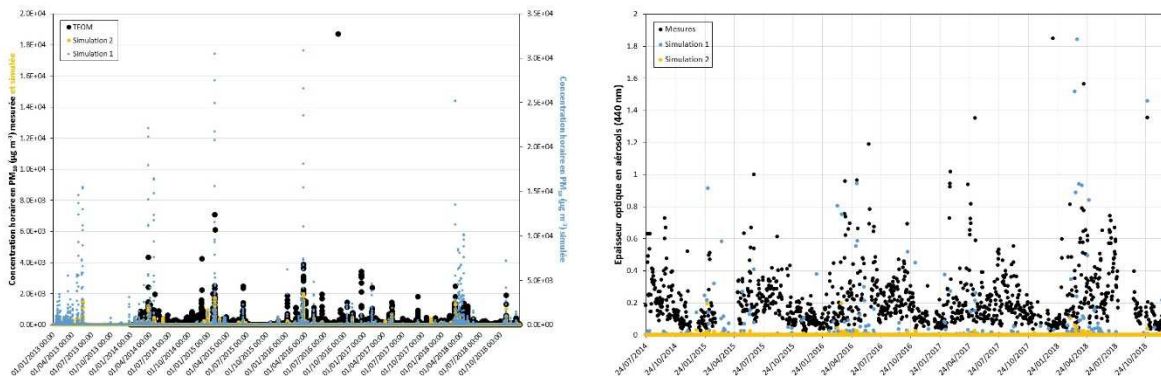


Figure 17 : A gauche, l'évolution temporelle de la concentration en PM_{10} (en $\mu g \cdot m^{-3}$) mesurée (points noirs – échelle de gauche) et simulée (simulation 1 : points bleus – échelle de droite ; simulation 2 : points jaunes – échelle de gauche) à la station installée à l'IRA Médenine du 01/01/2013 au 31/12/2018. A droite l'évolution temporelle l'épaisseur optique en aérosols à 440 nm mesurée (points noirs) et simulée (simulation 1 : points bleus ; simulation 2 : points jaunes) à la station AERONET de l'IRA Médenine du 24/07/2014 au 31/12/2018.

En conclusion, il apparaît que la nouvelle base de données permet de simuler des flux d'érosion éolienne, des concentrations en PM_{10} et des épaisseurs optiques en aérosols plus réalistes comparés aux observations disponibles.

Les **perspectives** de ce travail sont :

- d'intégrer la saisonnalité de la végétation dans la simulation : saisonnalité de l'orge et dynamique de la végétation des parcours,
- d'intégrer les paramétrisations du fractionnement minéralogique en utilisant grâce à la base de données mise au point par Journet et al. (2014),
- développer un masque inondation pour inhiber l'érosion éolienne et les émissions d'aérosols terrigènes depuis les zones de Chott lorsque celles-ci sont inondées.

4) Modélisation d'un nouvel indicateur de l'impact sanitaire des particules, le potentiel oxydant

La masse des particules d'un diamètre inférieur à 2,5 µm (PM_{2.5}) a été traditionnellement utilisée comme indicateur de l'impact de la pollution particulaire sur la santé. Néanmoins, il est reconnu que l'impact sanitaire de l'aérosol dépend de sa taille et de sa spéciation chimique. En particulier, des espèces carbonées à fort pouvoir oxydant et certains métaux de transition peuvent exercer ou favoriser un stress oxydant sur les cellules, et entraîner des réactions inflammatoires. Le potentiel oxydant (PO) mesure de façon intégrative cette capacité des particules à apporter ou produire des espèces réactives oxydantes. L'objectif du projet qui fait l'objet de la précédente demande était d'implanter ce nouvel indicateur dans le modèle CHIMERE (Menut et al., 2013 ; Mailler et al. 2017).

L'année passée a permis de mettre en place et d'évaluer la simulation des particules à l'échelle d'une année. Les performances du modèle sont suffisamment bonnes pour passer à l'étape suivante qui vise à simuler les sources des particules par la méthode du « taggage » qui consiste à ajouter des traceurs spécifiques pour chaque espèce (particulaire ou gazeuse) et pour chaque source primaire (trafic routier, feux de bois, industrie ...). Nous avons utilisé une centaine de traceurs pour simuler les 14 sources du modèle. Les premiers résultats montrent que la reconstruction des concentrations de particules par la somme des sources n'est pas assurée pour les espèces secondaires ce qui nécessite d'améliorer notre « taggage ». Il sera donc nécessaire de réaliser des tests de simulation aux modifications apportées et de refaire une simulation annuelle « propre ». Ensuite nous pourrons utiliser ces sources du modèle pour reconstruire les sources obtenues à partir d'une PMF et assigner un potentiel oxydant aux particules pour le cartographier.

Nous avons commencé, dans le cadre de la thèse de Matthieu Vida (débutée en Octobre 2020 suite à son stage de 5 mois), à développer cette modélisation du PO. L'objectif est de modéliser le PO sur une période d'un an (année 2014). Différents tests de sensibilité à la résolution et aux émissions ont été réalisés afin de simuler le plus précisément possible les concentrations des particules. Nous avons finalement choisi d'utiliser un domaine européen de 9 km de résolution pour forcer un domaine français de 3 km en utilisant les émissions EMEP (www.ceip.at) spatialisées avec les émissions de l'Inventaire National Spatialisé (emissions-air.developpement-durable.gouv.fr).

Durant cette première année de thèse, nous avons simulé les concentrations de PM₁₀ sur l'Europe en intégrant une technique de suivi des sources par taggage des espèces à l'émission (PSAT : Particulate Source Apportionment Technology). Nous avons pu évaluer cette simulation à l'aide de plusieurs paramètres statistiques sur 350 stations françaises. La Figure 18 représente la carte des corrélations entre les concentrations journalières de PM₁₀ mesurées et simulées à ces stations. Si l'on observe une mauvaise corrélation dans les vallées alpines, les corrélations sur les autres stations sont relativement bonnes (supérieur à 0,6). La spéciation de l'aérosol a également été étudiée en comparaison avec quelques stations en France. Les résultats furent très convaincants mais nous avons noté une surestimation de la fraction inorganique (nitrate d'ammonium) et un événement de pollution début décembre non observé dans les mesures. Plusieurs améliorations du modèle sont envisagées nécessitant quelques tests mensuels. Concernant le suivi des sources (PSAT), nous avons constaté

quelques problèmes de taggage sur les espèces secondaires créant ainsi une sous-estimation de la contribution de ces espèces dans les différentes sources classées par secteur d'activité. Pour certaines espèces, les problèmes sont identifiés mais nécessitent également des tests mensuels afin d'évaluer l'amélioration. La méthodologie concernant la simulation du potentiel oxydant par source du modèle est en cours de finalisation et sera présenté à la conférence ITM en Octobre 2021.

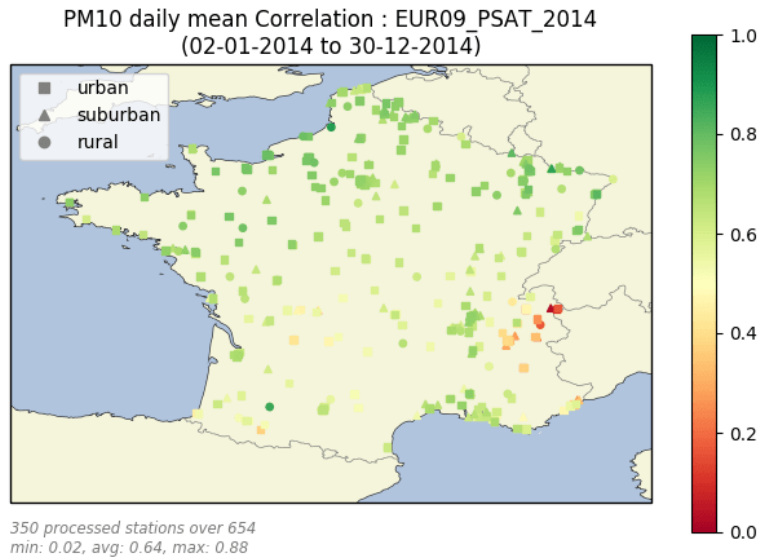


Figure 18 : Corrélation entre les données journalière PM_{10} simulées par le modèle CHIMERE à 9 km de résolution horizontale et celles issues des 350 stations de mesures en France sur l'année 2014.

5) Simulation des sources de pollution de l'air en Afrique

5.1 Simulation des sources de pollution de l'air en Afrique de l'Est

L'objectif de cette contribution était de simuler numériquement la qualité de l'air pour plusieurs mégapoles d'Afrique de l'Est (Nairobi, Kampala, Kigali) afin d'identifier les principaux contributeurs à la pollution atmosphérique (trafic, combustions résidentiels, feux de biomasse, poussières désertiques, ...). Un deuxième objectif était de réaliser des simulations long terme (décennales) pour estimer la qualité de l'air future sous différents scénarios de développement économique et pour des scénarios dits de mitigation.

Malheureusement, nous n'avons pas pu débiter ces travaux en 2020/2021, dû au retard du début de la thèse Waiguru Ezekiel Njaga pour diverses raisons administratives indépendantes de notre volonté. Le début de thèse est maintenant prévue pour le 1 septembre 2021, et le programme de travail sera reproposé pour la période 2020/2021.

5.1 Simulation des sources de pollution de l'air en Afrique du Sud

L'Afrique du Sud possède une économie développée avec des activités industrielles intensives concentrées dans la région de Highveld du Vaal Triangle, définie par les recherches par satellite les plus modernes comme l'un des « hot spots » mondiaux de la pollution atmosphérique. Les autres régions sources majeures comprennent les grandes zones urbaines de Johannesburg, Le Cap, Rustenburg, Richards Bay, Durban et Port Elizabeth, où la densité de la population, leurs pratiques domestiques et l'omniprésence du trafic routier contribuent à maintenir des concentrations élevées de polluants. En outre, le brûlage saisonnier de la végétation génère ponctuellement des densités optiques très élevées, affectant le climat et contribuant à une dégradation majeure de la qualité de l'air locale. Pour s'attaquer à ces problèmes, il est fondamental de bien décrire et quantifier les problématiques propres à la région.

Nous développons ces travaux au LISA dans le cadre de la thèse de Sunny Kumar (début octobre 2020), financée par l'Ecole Universitaire de Recherche LIVE de l'UPEC portant sur les vulnérabilités environnementales, et en collaboration avec le Pr Stuart Pikheth (North-West University of South Africa, Unit for Environmental Sciences and Management).

La première année de thèse a permis de définir le positionnement des domaines de calcul, et d'identifier / récupérer / travailler les données nécessaires pour la modélisation. Le travail de réalisation des simulations n'a pu être entamé en fin de printemps comme prévu, car le travail nécessaire sur les données d'entrée a été plus important que prévu et n'a pu être achevé avant l'été. En outre, le contexte sanitaire a fortement impacté le planning de travail, le doctorant ayant été absent plus d'un mois au printemps suite à une contamination covid éprouvante.

6) Interaction entre émissions biogéniques et anthropiques

L'aérosol organique demeure l'une des composantes de l'aérosol les plus difficiles à simuler, compte tenu de la multitude de molécules et des processus de formation et d'évolution mis en jeu. Si la simulation de la masse d'aérosol organique secondaire (AOS) est devenue plus réaliste suite à l'utilisation de nouveaux schémas prenant en compte l'oxydation successive de composés organiques semi-volatils (SVOC, schémas volatility basis set VBS), la distinction des voies de formations de l'aérosol organique à partir de différents précurseurs anthropiques et biogéniques et oxydants reste un enjeu important. Les mesures très détaillées de précurseurs d'AOS (terpènes, isoprène) et d'oxydants (OH, O₃, NO₃) obtenues lors de la campagne LANDEX (LANDes EXperiment, en étés 2017 et 2018) dans l'environnement assez homogène des Landes fournissent un ensemble de données complet et très original pour évaluer les modules d'aérosols organiques dans les modèles de transport chimique (CTM, ici CHIMERE). Les observations de la campagne intensive ACROSS (Atmospheric chemistry of the Suburban Forest) prévues en été 2022 en Ile-de-France dans le cadre d'un projet « Make our Planet great again » du même nom seront également précieuses dans ce cadre.

Durant la période 2020/2021, les simulations de la campagne 2021 avec le schéma standard d'aérosol organique de CHIMERE montrent que la réaction isoprène + OH représente la voie de formation de l'AOS la plus importante (Figure 19). Même si ce résultat ne peut pas être directement confronté aux observations de la campagne LANDEX, cette voie semble moins prépondérante dans les observations ou le flux des réactions des sesquiterpènes avec l'ozone est en revanche très élevé. Par ailleurs, les pics d'AOS simulés avec le schéma standard surestiment les observations d'un facteur environ deux. Pour cette raison, il a été décidé d'effectuer des nouvelles simulations avec un schéma VBS tenant compte de la fonctionnalisation et fragmentation continue des SVOC, comme ce type de schéma a montré des résultats déjà satisfaisants pour la simulation de la campagne ChArMEx (Cholakian et al., 2018).

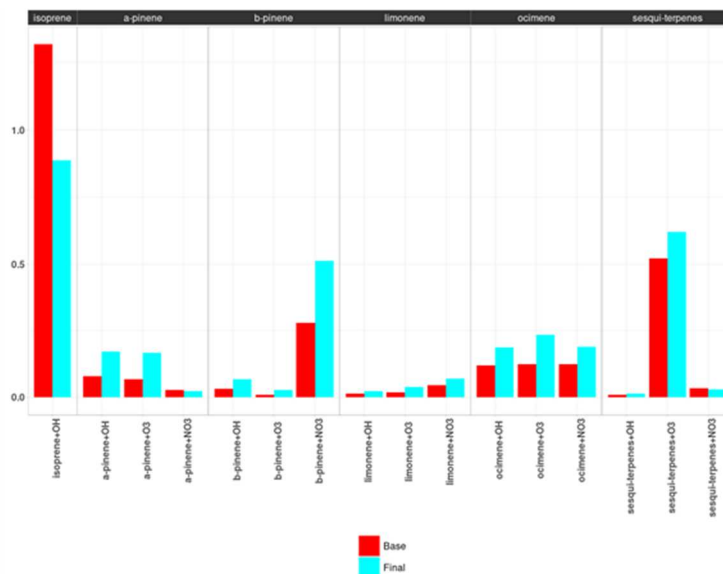


Figure 19 : Contribution des réactions d'oxydation des COV biogéniques menant à la formation de SOA pour deux configurations de CHIMERE, en rouge la version de référence et en bleu une configuration optimisée pour le projet LANDEX.

Dans le cadre de sa thèse débuté en décembre 2020, Ludovico di Antonio a adapté la configuration de CHIMERE mise en place pour les Landes pour pouvoir simuler les observations de la future campagne ACROSS en Ile-de-France. Il a mis en place une double imbrication d'échelle (Figure 20), pour obtenir une résolution de 2km sur l'Ile-de-France. Pour une période de test en été 2019 comportant deux périodes de canicules (fin juin et fin juillet 2019), le schéma d'aérosol organique VBS montre un bon accord (différences < 30%) avec les observations (mesures $PM_{2.5}$ des réseaux de qualité de l'air). L'objectif de la campagne est d'étudier les interactions entre émissions anthropiques et biogéniques dans la formation des polluants secondaires. L'objectif spécifique de la thèse est d'évaluer l'impact de l'aérosol organique et autre formé à partir de ces interactions sur le bilan radiatif. Cela implique en particulier une prise en compte de la partie absorbante de l'aérosol organique.

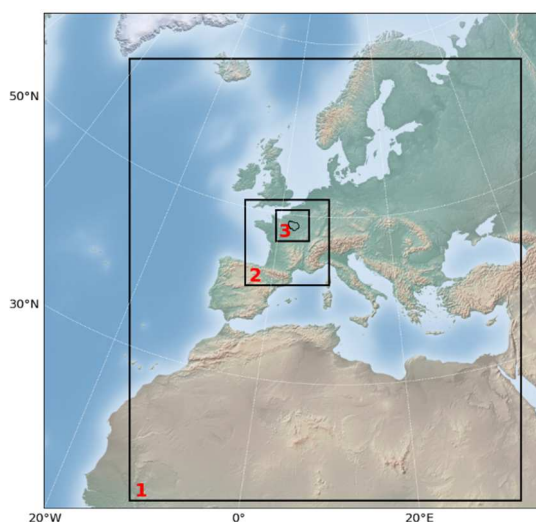


Figure 20 : Configuration des domaines utilisés pour simuler la campagne ACROSS : 1 - 30x30 km², 2 - 6x6 km², 3 - 2x2 km².

Publications en préparation

Cholakian, A. Beekmann M., Siour G., Coll I., Flaud P.M, Perraudin E., Villenave E., Simulation of organic aerosol, precursors, and oxidants in the Landes pine forest in south-western France: need to account for domain specific land-use and physical conditions, prepared for ACP

Coll I., Elessa Etuman A., Viguié V., Coulombel N., Planification spatiale, consommation d'énergie et qualité de l'air en ville, Chapitre 7 de l'ouvrage « Vers une Île-de-France post-carbone ? Freins et leviers d'une transition énergétique régionale », sous la direction de Caroline GALLEZ et Olivier COUTARD, Collection Critiques et Cités, Editions L'OEil d'Or, (à paraître).

G. Dufour, M. Eremenko, G. Siour, P. Sellitto, J. Cuesta, A. Perrin, and M. Beekmann: First quantification of in-plume HONO during the record-breaking 2019-2020 Australian wildfires using infrared satellite sounders: implication for heterogeneous photo-induced HONO production, prepared for GRL.

A. Elessa Etuman, I. Coll., V. Viguié and N. Coulombel, Simulating the impact of urban planning on air quality: application to Greater Paris. Part 1: Reproducing the base case (prêt à soumettre)

A. Elessa Etuman, I. Coll., V. Viguié and N. Coulombel, Simulating the impact of urban planning on air quality: application to Greater Paris. Part 2: Urban planning scenarios (relecture) to be submitted to Atmospheric Environment

Publications

Dufour, G., Hauglustaine, D., Zhang, Y., Eremenko, M., Cohen, Y., Gaudel, A., Siour, G., Lachatre, M., Bense, A., Bessagnet, B., Cuesta, J., Ziemke, J., Thouret, V., and Zheng, B.: Recent ozone trends in the Chinese free troposphere: role of the local emission reductions and meteorology, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* [preprint], <https://doi.org/10.5194/acp-2021-476>, in review, 2021.

Fortems-Cheiney, A., Pison, I., Broquet, G., Dufour, G., Berchet, A., Potier, E., Coman, A., Siour, G., and Costantino, L.: Variational regional inverse modeling of reactive species emissions with PYVAR-CHIMERE-v2019, *Geosci. Model Dev.*, 14, 2021.

Fortems-Cheiney, A., Dufour, G., Dufossé, K., Couvidat, F., Gilliot, J.-M., Siour, G., Beekmann, M., Foret, G., Meleux, F., Clarisse, L., Coheur, P.-F., Van Damme, M., Clerbaux, C., and Génernont, S.: Do alternative inventories converge on the spatiotemporal representation of spring ammonia emissions in France?, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 13481–13495, <https://doi.org/10.5194/acp-20-13481-2020>, 2020.

Conférences et posters

A. Cholakian, M. Beekmann, I. Coll, E. Perraudin, P.M. Flaud and E. Villenave: Simulation of SOA formation in the Landes pine forest in south-western France, relative weight of initial ozone, NO₃ and OH attack? EGU 2020 General Assembly, 4-8 May 2020.

Dufour G., D. Hauglustaine, Y. Zhang, Y. Cohen, M. Eremenko, A. Gaudel, M. Lachâtre, G. Siour, A. Bense, B. Bessagnet, J. Cuesta, V. Thouret, J. Ziemke, Recent Chinese ozone trends as seen from space and models: exploring the impact from local

precursor emissions reductions, IGAC conference, 12-18 september 2021, virtual edition.

Dufour G., D. Hauglustaine, Y. Zhang, Y. Cohen, M. Eremenko, A. Gaudel, M. Lachâtre, G. Siour, A. Bense, B. Bessagnet, J. Cuesta, V. Thouret, J. Ziemke, B. Zheng, Recent Chinese ozone trends as seen from IASI and model simulations: exploring the impact from local precursor emissions reductions?, 5th IASI conference, 6-10 December 2021, Evian, France.

A. Elessa Etuman, M. Koning and M. Gardrat, Couplage de modèles pour estimer la contribution du transport de marchandises à la dégradation de la qualité de l'air en Ile-de-France, Rencontres Francophones Transport Mobilité (RFTM), 2-4 Juin 2021, conférence en ligne.

A. Elessa Etuman, M. Koning and M. Gardrat, The external environmental cost of road freight transport: New evidence from the Paris region using the Olympus multi-agents model, International Transport Economics Association (ITEA) Annual Conference 24-26 Juin 2021, Online conference.

Fortems-Cheiney, A., Dufour, G., Marsal, Q., Siour, G., Beekmann, M., Foret, G., Générumont, S., Gilliot, J.-M., Couvidat, F., Meleux, F., Crunaire, S., Van Damme, M., Clarisse, L., Coheur, P.-F., Dammers, E., Cady-Pereira, K., Shephard, M., Agricultural footprint to French air quality: do IASI and CRIS help to provide improved ammonia emissions and air quality simulations?, 5th IASI conference, 6-10 December 2021, Evian, France.

Fortems-Cheiney, A., Broquet, G., Pison, I., Saunois, M., Potier, E., Berchet, A., Dufour, G., Siour, G., Denier van der Gon, H., Dellaert, S., and Boersma, F.: Analysis of the anthropogenic and biogenic NO_x emissions over 2008-2017: assessment of the trends in the 30 most populated urban areas in Europe, EGU General Assembly 2021, online, 1930 Apr 2021, EGU21-4566, <https://doi.org/10.5194/egusphere-egu21-4566>, 2021.

Savas, D., Dufour, G., Coman, A., Siour, G., Fortems-Cheiney, A., Pison, I., Berchet, A., Evaluating the impacts of COVID-19 shutdown on NO_x emissions in Europe using inverse modelling and satellite observations, EUMETSAT Meteorological Satellite Conference 2021, 20-24 september 2021, virtual edition

Savas, D., Dufour, G., Coman, A., Siour, G., Fortems-Cheiney, A., Pison, I., Berchet, A., Bessagnet, B., Evaluation of new 4D-variational inverse modeling system, CIF-CHIMERE: Inversion of NO_x emissions over China using NO₂ OMI observations, IGAC conference, 12-18 september 2021, virtual edition.

M. Vida, M., G. Foret, M. Beekmann, G. Siour, G. Uzu, J.-L. Jaffrezo, S. Weber, and O. Favez, Oxydative Potential Modeling: an health risk indicator of particulate matter, ITM, Barcelona, October 2021.

Références

Bouet, C., Labiadh, M. T., Rajot, J. L., Bergametti, G., Marticorena, B., Henry des Tureaux, T., Ltifi, M., Sekrafi, S., Féron, A.: Impact of desert dust on air quality: What is the meaningfulness of daily PM standards in regions close to the sources? The example of southern Tunisia, *Atmosphere*, 10, 452, 2019.

Cholakian, A., Beekmann, M., Colette, A., Coll, I., Siour, G., Sciare, J., Marchand, N., Couvidat, F., Pey, J., Gros, V., Sauvage, S., Michoud, V., Sellegri, K., Colomb, A., Sartelet, K., Langley DeWitt, H., Elser, M., Prévot, A. S. H., Szidat, S., Dulac, F.: Simulation of fine organic aerosols in the western Mediterranean area during the ChArMEX 2013 summer campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 7287-7312, 2018.

Dufour, G., M. Eremenko, M. Beekmann, J. Cuesta, G. Foret, A. Fortems-Cheiney, M. Lachâtre, W. Lin, Y. Liu, X. Xu, and Y. Zhang, 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, 2018.

Elessa Etuman, A. and Coll, I.: OLYMPUS v1.0: development of an integrated air pollutant and GHG urban emissions model – methodology and calibration over greater Paris, *Geosci. Model Dev.*, 11, 5085–5111, <https://doi.org/10.5194/gmd-11-5085-2018>, 2018.

Gaudel, A., O. R. Cooper, G. Ancellet, B. Barret, A. Boynard, J. P. Burrows, C. Clerbaux, P. -F. Coheur, J. Cuesta, E. Cuevas, S. Doniki, G. Dufour, F. Ebojie, G. Foret, O. Garcia, M. J. Granados Muños, J. W. Hannigan, F. Hase, G. Huang, B. Hassler, D. Hurtmans, D. Jaffe, N. Jones, P. Kalabokas, B. Kerridge, S. S. Kulawik, B. Latter, T. Leblanc, E. Le Flochmoën, W. Lin, J. Liu, X. Liu, E. Mahieu, A. McClure-Begley, J. L. Neu, M. Osman, M. Palm, H. Petetin, I. Petropavlovskikh, R. Querel, N. Rappaport, A. Rozanov, M. G. Schultz, J. Schwab, R. Siddans, D. Smale, M. Steinbacher, H. Tanimoto, D. W. Tarasick, V. Thouret, A. M. Thompson, T. Trickl, E. Weatherhead, C. Wespes, H. M. Worden, C. Vigouroux, X. Xu, G. Zeng and J. Ziemke, Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day distribution and trends of tropospheric ozone relevant to climate and global atmospheric chemistry model evaluation, *Elem Sci Anth*, 6(1), p.39, 2018

Journet, E., Balkanski, Y., & Harrison, S. P.: A new data set of soil mineralogy for dust-cycle modeling, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(8), 3801–3816, 2014.

Kardous, M., Bergametti, G., & Marticorena, B.: Aerodynamic roughness length related to non-aggregated tillage ridges, *Ann. Geophys.*, 23(10), 3187–3193, 2005a.

Kardous, M., Bergametti, G., & Marticorena, B.: Wind tunnel experiments on the effects of tillage ridge features on wind erosion horizontal fluxes, *Ann. Geophys.*, 23(10), 3195–3206, (2005b).

Labiadh, M. T.: Quantification de l'érosion éolienne sur des surfaces anthropisées : simulations des flux en masse à l'échelle des zones arides Tunisiennes, Thèse de doctorat de l'Université Paris Diderot - Paris 7, France, 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 SO₂ and NO₂ regulations over China: increase of ammonia levels and impact on PM_{2.5} 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*, 11, 708, 2020.

Laurent, B., Marticorena, B., Bergametti, G., Léon, J. F., & Mahowald, N. M.: Modeling mineral dust emissions from the Sahara desert using new surface properties and soil database, *J. Geophys. Res.*, 113(D14218), <https://doi.org/10.1029/2007JD009484>, 2008.

Mailler, S., L. Menut, D. Khvorostiyarov, M. Valari, F. Couvidat, G. Siour, S. Turquety, R. Briant, P. Tuccella, B. Bessagnet, A. Colette, and F. Meleux, CHIMERE-2017: from urban to hemispheric chemistry-transport modeling, *Geosci. Model Dev.*, 10, 2397-2423, 2017.

Marticorena, B., & Bergametti, G.: Modeling the atmospheric dust cycle: 1. Design of a soil-derived dust emission scheme, *J. Geophys. Res.*, 100(D8), 16415–16430, 1995.

Menut, L., B. Bessagnet, D. Khvorostyanov, M. Beekmann, N. Blond, A. Colette, I. Coll, G. Curci, G. Foret, A. Hodzic, S. Mailler, F. Meleux, J.-L. Monge, I. Pison, G. Siour, S. Turquety, M. Valari, R. Vautard, and M. G. Vivanco, CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modeling, *Geosci. Model Dev.*, 6, 981–1028, 2013.

Tarasick, D., Galbally, I. E., Cooper, O. R., Schultz, M. G., Ancellet, G., Leblanc, T., Wallington, T. J., Ziemke, J., Liu, X., Steinbacher, M., Staehelin, J., Vigouroux, C., Hannigan, J. W., García, O., Foret, G., Zanis, P., Weatherhead, E., Petropavlovskikh, I., Worden, H., Osman, M., Liu, J., Chang, K.-L., Gaudel, A., Lin, M., Granados-Muñoz, M., Thompson, A. M., Oltmans, S. J., Cuesta, J., Dufour, G., Thouret, V., Hassler, B., Trickl, T., and Neu, J. L.: Tropospheric Ozone Assessment Report: Tropospheric ozone from 1877 to 2016, observed levels, trends and uncertainties, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 7, <https://doi.org/10.1525/elementa.376>, 2019.