

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 : A0110107232

Responsable scientifique : Maxim Eremenko

Responsable technique : Adriana Coman

Laboratoire : Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA).

Rappels liés à la demande initiale

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 2 085 kheures cœurs initialement demandées

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 2 085 kheures cœurs initialement attribuées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 3 025 kheures cœurs initialement demandées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 3 025 kheures cœurs initialement attribuées

Heures complémentaires

-

Consommation

TGCC Irene skylake : 1,021,575.21 heures le 04/09/2022

TGCC Irene Rome : 1,695,430.43 heures le 04/09/2022

Le projet déposé en 2021 portait sur 5 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 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, 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 : les projets CNES/TOSCA IASI, IASI-NG et SURVEYPOLLUTION pour le développement d'algorithmes d'analyse des données satellitaires et leur assimilation dans les modèles, le projet ANR ARGONAUT pour l'étude des émissions de polluants et CO₂ à haute résolution spatiale en France, le projet CNES/TOSCA ARGOS complémentaire du projet ARGONAUT en proposant l'intercomparaison des inversions avec TROPOMI et OMI, le projet ADEME/AQACIA LOCKAIR pour l'évaluation de l'impact de la crise sanitaire du COVID-19 sur la qualité de l'air. Deux projets se sont terminés en 2021 mais nous continuons à mener des études en lien : le projet ANR PoIEASIA pour l'étude de la pollution asiatique et le projet 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. 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 sondes infrarouges IASI à bord des satellites européens météorologiques Metop. Le programme européen comporte trois instruments IASI opérant sur des périodes différentes : IASI-A de 2006 à 2021 (fin des opérations en novembre 2021), IASI-B depuis 2012 et IASI-C depuis 2018 (première année complète 2008, 2013 et 2019 respectivement). 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 de grands exercices internationaux comme le rapport international 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 processé les données IASI sur la région Etats-Unis sur les périodes 2008-2020 pour IASI-A, 2013-2020 pour IASI-B et 2019-2020 pour IASI-C. Le processing des données pour les deux autres régions avaient été fait précédemment. Une étude d'intercomparaison des données des trois instruments est en cours et devrait conduire à une publication dans le journal Earth System Science Data (Copernicus) d'ici fin 2022. La Figure 1 montre des résultats préliminaires de cette intercomparaison pour la partie est de la Chine.

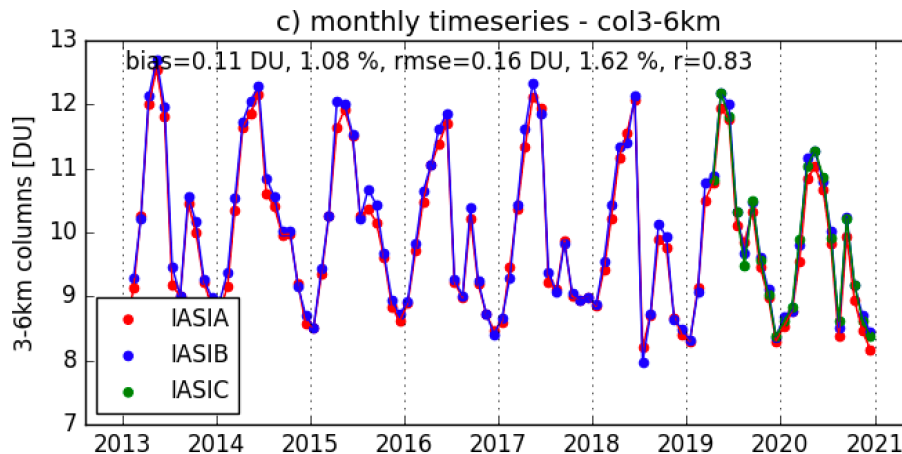


Figure 1 : Séries temporelles mensuelles de la colonne partielle d'ozone entre 3 et 6 km d'altitude observées par les instruments IASI-A, IASI-B et IASI-C sur la région Central East China (CEC). Le biais entre IASI-A et IASI-B est de l'ordre de 1% sur la période 2013-2020.

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

Le produit satellitaire multispectral IASI+GOME2 offre une sensibilité accrue à l'ozone de la très basse troposphère. La chaîne de traitement a été déployée au 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-II. 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 Jolio-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-là soit aux besoins du TOAR-II. Avec cette résolution, un total de 240 heures de traitement permettent d'inverser les données satellitaires acquises pendant 1 an à l'échelle globale. Jusqu'à présent, le traitement de 4 ans de données globales IASI+GOME2 a été effectuée au TGCC pour couvrir la période 2013-2016. Les processing de 1,5 ans de mesures est en cours sur les heures attribuées aux activités de IASI+GOME2.

c) 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 plus d'une dizaine d'années maintenant et de bonne qualité, leur utilisation pour contraindre les émissions de polluants permet d'envisager leur utilisation pour une prescription « dynamique » d'inventaires d'émissions 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 utilisons l'outil d'inversion variationnel CIF (Community Inversion Framework – développé au LSCE (Berchet et al., 2020) et couplé avec le modèle CHIMERE et son adjoint. Une première version du système a été installée sur les machines du TGCC et était opérationnelle depuis novembre 2020. Une version consolidée du système a été installée fin 2021 et a nécessité certains retraitements pour avoir des résultats reproductibles (voir ci-dessous).

Application du système de modélisation inverse pour l'inversion des émissions de NO_x en Chine (suite du projet 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 afin d'étudier les tendances et variabilités de ces émissions dans un contexte de fortes régulations des émissions. Ces activités n'avaient pas pu être menées à bien dans le cadre du projet. Avec le nouveau système d'inversion CIF-CHIMERE, ces activités sont poursuivies, notamment dans le cadre de la thèse de Dilek Savas (financement CNES/ANR). Les émissions des années 2015 et 2019 ont été inversées à l'aide de la dernière version du CIF-CHIMERE et des données OMI. La Figure 2 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 pour les deux années. Ces inventaires ont été évalués en les comparant à l'inventaire chinois MEIC et en comparant les concentrations de NO₂ simulées avec CHIMERE en utilisant les différents inventaires en entrée du modèle aux observations de surface de surveillance de la qualité de l'air chinois. Un article (Savas et al.) est en cours de rédaction pour soumission dans le journal Atmosphere (MDPI) et devrait être soumis début septembre. Ces travaux ont été présentés à la conférence EGU 2022 (Savas et al., 2022)

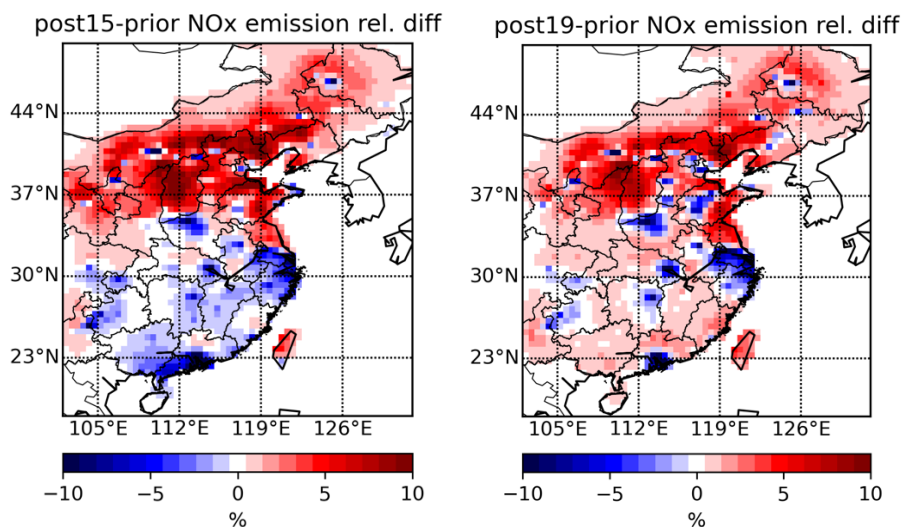


Figure2: Différence relative entre les budgets annuels des émissions de NO_x optimisées par modélisation inverse avec OMI (post) et ceux issus de l'inventaire EDGAR-HTAP-v2.2 (correspondant à l'année 2010) pour l'année 2015 (gauche) et l'année 2019 (droite). Les émissions de NO_x ont diminué entre 2010 et les deux années étudiées sur les grandes régions urbanisées de la Chine, notamment dans la partie sud.

Application du système de modélisation inverse pour l'inversion des émissions de NO_x en Europe (ANR ARGONAUT, CNES/TOSCA ARGOS, ADEME/AQACIA LOCKAIR)

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 (CO_2) 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. Il est complété par le projet CNES/TOSCA ARGOS pour comparer les capacités d'inversion des sources des données satellites TROPOMI et OMI et par le projet ADEME/AQACIA LOCKAIR pour évaluer l'impact des confinements de 2020 sur les émissions et la qualité de l'air.

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 NO_2 à haute résolution ($3,5 \times 5,5 \text{ km}^2$) par rapport à OMI. 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, ARGOS et LOCKAIR. Le système de modélisation inverse CIF-CHIMERE fonctionne bien avec les données OMI (voir travaux sur la Chine). Concernant l'utilisation des données de l'instrument TROPOMI, nous rencontrons des difficultés de convergence du système. En juin 2021, les équipes scientifiques productrices des données ont informé les utilisateurs de problèmes identifiés dans les données, dont des biais importants. Une nouvelle version des

données est disponible depuis le printemps 2022. Nous avons conduit des tests avec cette nouvelle version des données TROPOMI mais nous sommes toujours confrontés à des problèmes de convergence du système. Des investigations sont en cours pour comprendre d'où viennent ces problèmes.

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

Un autre projet dans lequel nous étions engagés avec des activités de modélisation inverse est le projet ADEME/PRIMEQUAL AMP'AIR qui a pris fin à l'automne 2021. L'objectif du projet était 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, ont été développées dans le cadre du projet pour améliorer cette représentation des émissions d'ammoniac. Notre participation à ce projet reposait 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. Après avoir travaillé sur l'année culturale 2010-2011 (juin à juin) les années précédentes, 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 en 2021 (Quentin Marsal) et d'un nouveau stage de M2 en 2022 (Yoan Carreira). Pour ce dernier, nous avons traité la nouvelle version des données CrIS, qui corrige partiellement certains biais. Cette année, nous avons également pu bénéficier de l'inventaire de l'INRAE, CADASTRE, développer dans le cadre du projet Amp'Air. Les différents inventaires ont été comparés à l'inventaire de référence TNO (Figure 3) et sont en cours d'évaluation. Pour cela, l'année 2016-2017 a été simulée avec CHIMERE en utilisant les inventaires corrigés par IASI et CrIS et l'inventaire CADASTRE respectivement. Les concentrations d'ammoniac de chacune des simulations sont ensuite comparées aux observations de surface déployées pendant le projet Amp'Air. Les résultats sont en cours d'analyse.

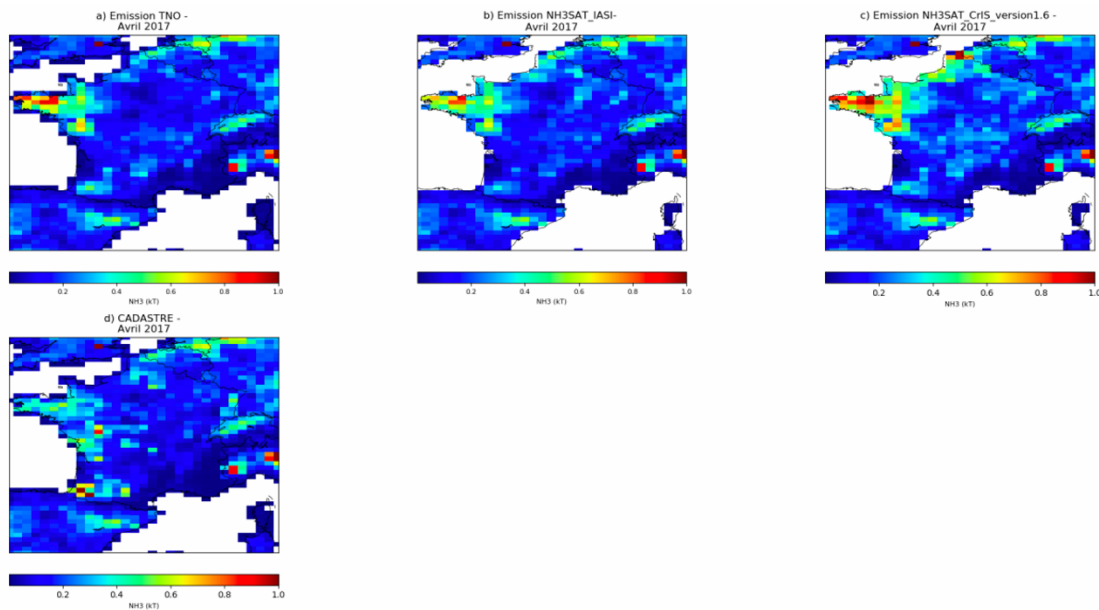


Figure 3 : Distribution des émissions d'ammoniac en France, en avril 2017, donnée par l'inventaire de référence TNO, les inventaires corrigés par les observations satellitaires de IASI (NH3SAT_IASI) et de CrIS (NH3SAT_CrIS) et par l'inventaire CADASTRE développé par l'INRAE et basé sur les déclarations d'épandages agricoles et un modèle mécanistique d'émissions.

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 différents de 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 puis analysés par une plateforme de modélisation urbaine innovante dédiée. 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 en Ile-de-France 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'individus pour les calculs d'exposition. Une thèse portant sur ces travaux a été soutenu récemment et une autre est toujours en cours.

Évaluation de l'exposition à la pollution de l'air des populations d'une mégapole.

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 concentrations de polluants de la région Île-de-France a été réalisée avec le modèle CHIMERE. Une limitation du modèle réside dans le fait qu'il ne représente pas suffisamment le cumul des polluants issus du trafic routier dans les zones les plus urbanisées. En plus des simulations réalisées par le modèle, il nous a fallu raffiner les sorties du modèle CHIMERE dans le but de décrire des expositions de la population aux principaux polluants réglementaires. Cela a nécessité en parallèle un post-traitement des données de simulation pour estimer ces concentrations à fine échelle.

Les simulations météo, émissions et concentrations ont été réalisées pour les années 2009 et 2017, les deux situations choisies dans le cadre de l'étude, sur les partitions ROME et Skylake. Cette approche de correction des simulations CHIMERE nous a permis d'obtenir les résultats présentés dans la [Figure 1](#) (en haut) par rapport aux simulations de l'AASQA Airparif que nous avons considéré comme référence (en bas). Et le même travail présenté pour l'année 2017 dans la [Figure 2](#).

L'application de la correction aux simulations de CHIMERE a permis de diminuer significativement les écarts entre les moyennes annuelles des sites de trafic (entre 30 et 60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les deux polluants), ainsi que les RMSE des simulations (10 à 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en fonction des stations). Deux exemples de sites de trafic sont illustrés dans la [Figure 3](#). Les moyennes annuelles sont représentées par les étoiles blanches sur les boxplots et on remarque l'amélioration des concentrations corrigées par rapport aux concentrations initialement simulées par le modèle.

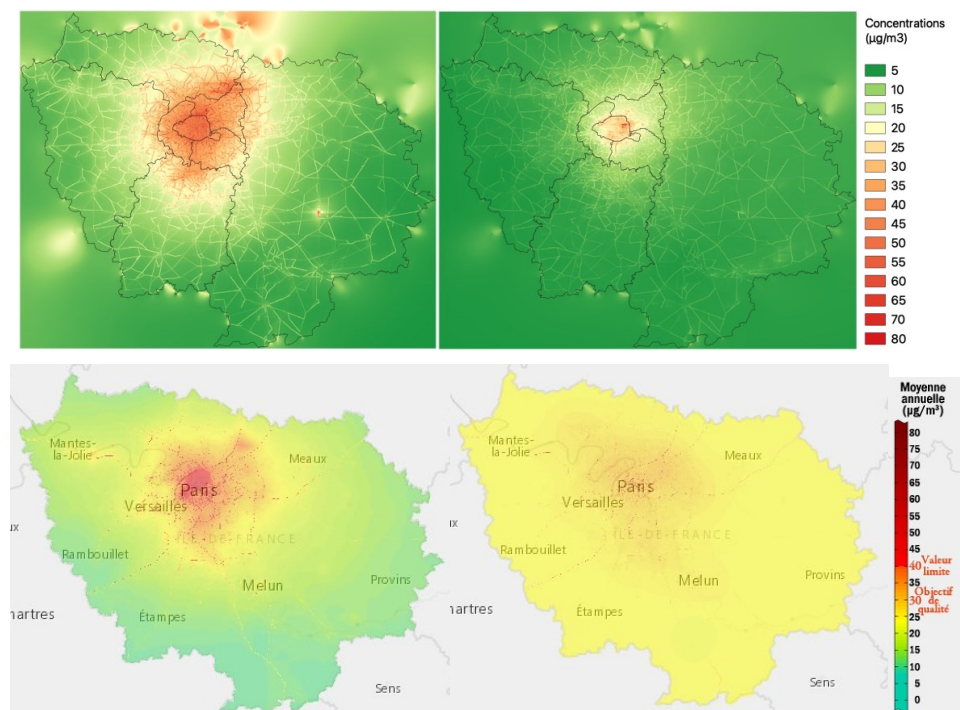


Figure 1 - Comparaison des cartographies annuelles des sorties de la correction statistique de CHIMERE (en haut) et des bilans annuels d'Airparif (en bas) pour NO₂ (à gauche) et les PM₁₀ (à droite) pour l'année 2009.

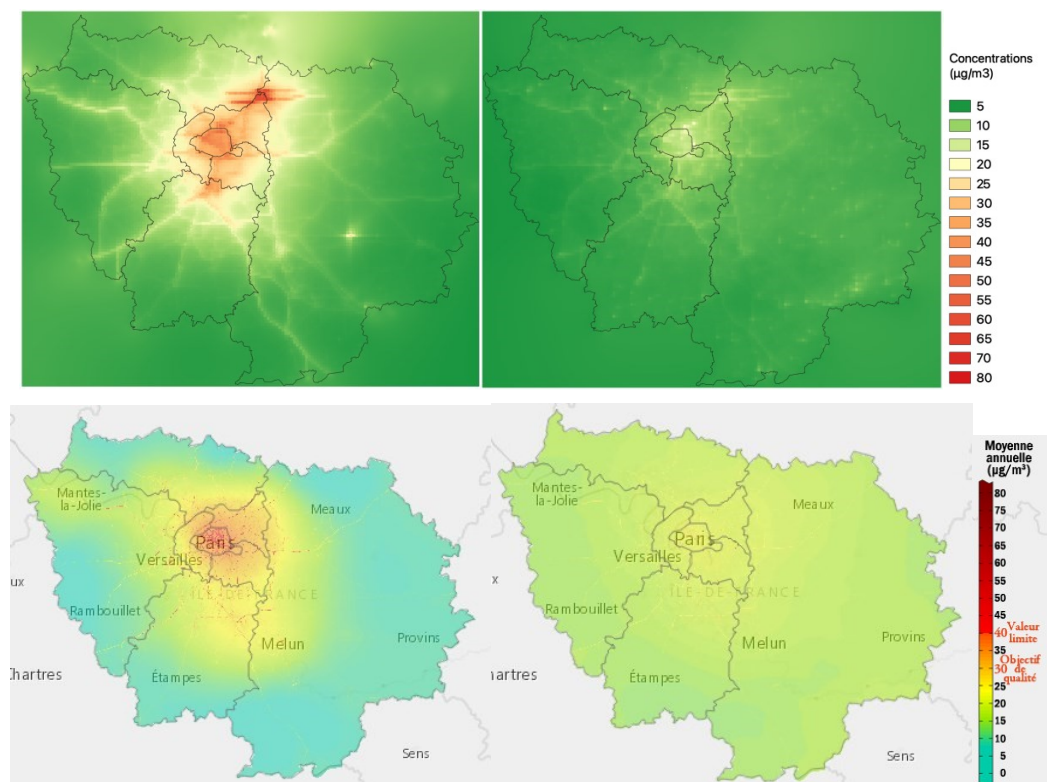


Figure 2 - Comparaison des cartographies annuelles des sorties de la correction statistique de CHIMERE (en haut) et des bilans annuels d'Airparif (en bas) pour NO₂ (à gauche) et les PM₁₀ (à droite) pour l'année 2017.

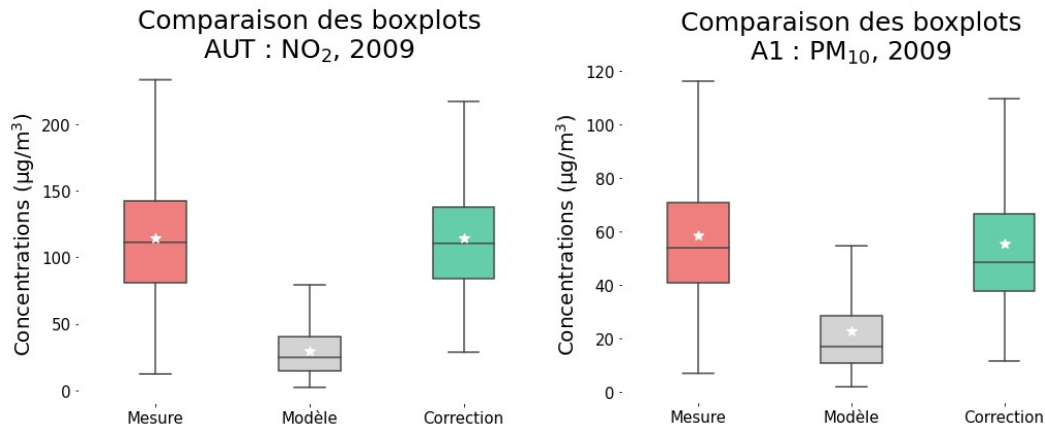


Figure 3 - Boxplots des valeurs annuelles mesurées (en rouge), modélisée par CHIMERE (en gris) et corrigées (en vert) pour deux sites de trafic de NO₂ (à gauche) et de particules (à droite).

b) Estimation de l'exposition dynamique de la population

L'estimation de l'exposition dynamique des populations urbaines a été réalisée par le croisement des trajectoires de mobilité des individus avec les données modélisées de qualité de l'air. Pour estimer ces expositions, nous avons réalisés des simulations hautes résolutions pour une situation de référence pour l'année 2017 (les simulations comprenant la mise en œuvre d'un modèle météo WRF, d'un modèle d'émission emiSURF, du modèle CHIMERE et de l'algorithme de correction).

Ces croisements ont donc été effectués pour la population francilienne et il a été possible de calculer les cumuls d'expositions des individus (exemple dans la [Figure 4](#)) ainsi que les expositions cumulées moyennes au niveau de chaque commune de la région Île-de-France. Il est, entre autre, possible de représenter les données relatives aux déplacements des individus ([Figure 5](#)).

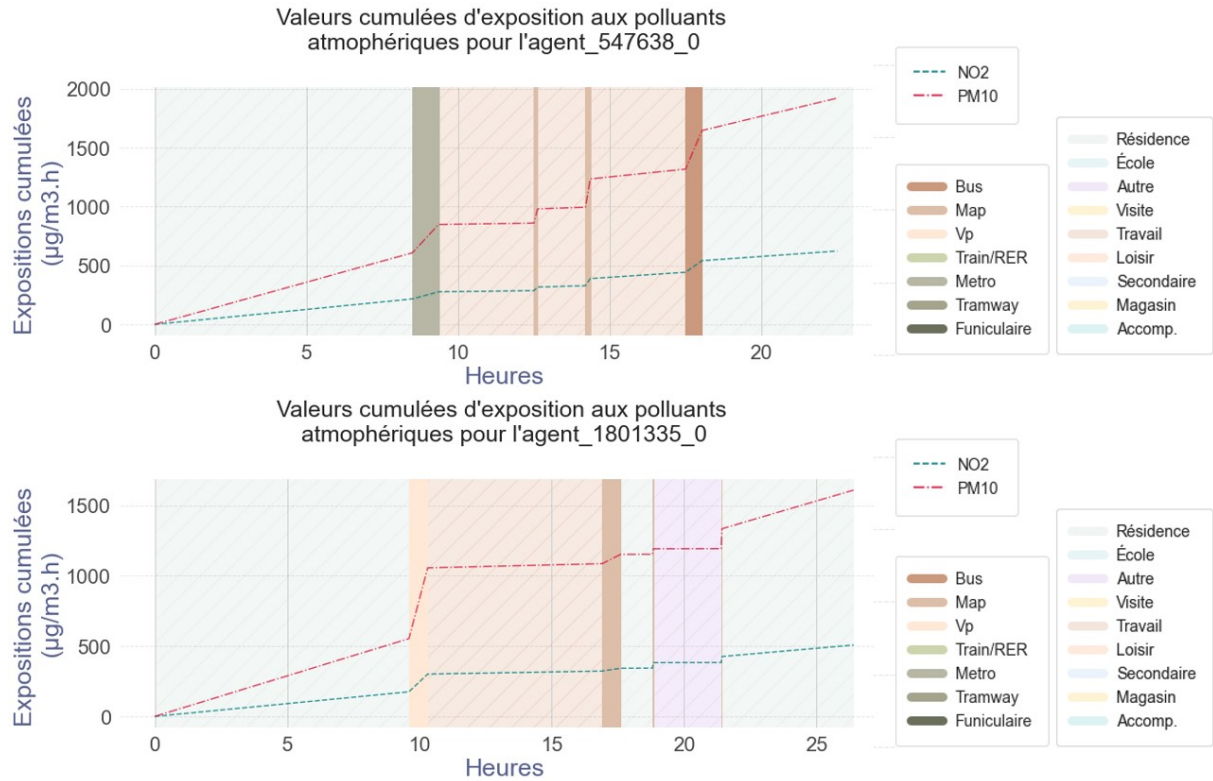


Figure 4 - Cumul des expositions de deux individus le long de leur journée. Les cumuls de NO2 sont représentés en vert pointillés, ceux des PM10 sont en rouge pointillés. Les activités sont représentées en fond de couleur hachurés et les modes de déplacements sont représentés en couleurs unies.

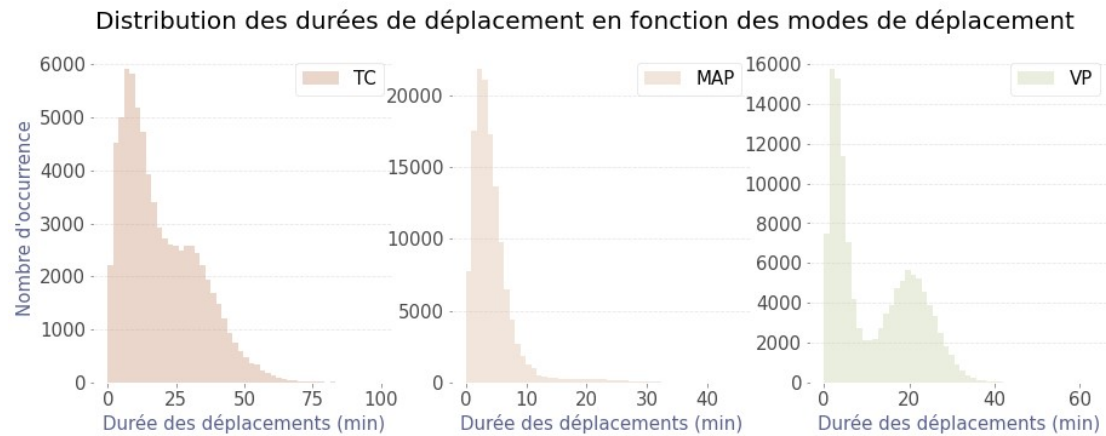


Figure 5 - Représentation des choix modaux en fonction des durées de déplacements en minutes.

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 ont un impact sur les émissions de polluants urbains et in fine sur la qualité de l'air urbain, nous avons cette année, 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 7 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 dans le cœur de l'agglomération. 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 d'ici la fin de l'année 2022 (Elessa Etuman et al., 2022).

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 6 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 en moyenne annuelle). Ces résultats sont discutés dans un ouvrage collectif en cours d'édition (Coll et al., 2021).

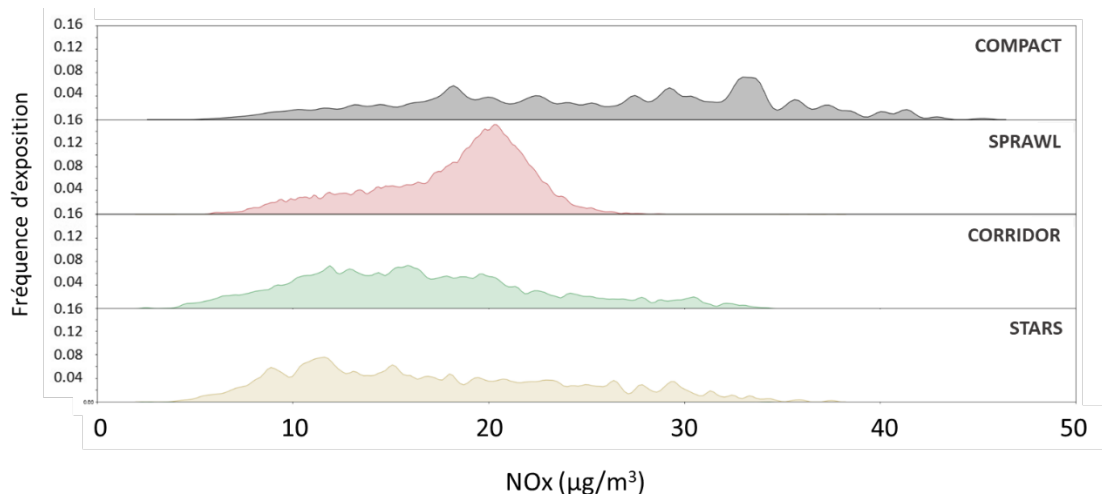


Figure 6 : Fréquence d'exposition des populations par classe de concentration de NO₂ (en µg/m³), simulée par CHIMERE pour les différents scénarios.

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 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. La figure ci-après représente les concentrations annuelles moyennes de différents scénarios urbains où l'organisation logistique de la ville varie.



Figure 7 : concentrations annuelles moyennes pour plusieurs scénarios urbains. (a) NO₂, (b) PM_{2.5}. Les concentrations sont exprimées en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ et simulées par le modèle CHIMERE avec une résolution horizontale de 1km².

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

3.1 Modélisation empirique du potentiel oxydant

La masse des particules d'un diamètre inférieur à 10 μm (PM_{10}) ou à 2,5 μm ($\text{PM}_{2.5}$) 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, les 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 de l'oxygène. L'objectif du projet est d'implanter ce nouvel indicateur dans le modèle CHIMERE (Menut et al., 2021).

L'année passée a permis de mettre en place la modélisation du PO à l'aide de 3 méthodes différentes.

Pour ce faire, le modèle CHIMERE a été utilisé sur un domaine européen centré sur la France avec une résolution horizontale de 9x9 km afin de modéliser le potentiel oxydant durant l'année 2014. Les performances du modèle pour simuler les concentrations massiques de PM_{10} (particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à 10 μm) et leur spéciation chimique (nitrate, sulfate, ammonium, carbone élémentaire, carbone suie ...) ont été évaluée en utilisant respectivement 350 et 13 stations françaises. Les mesures de PM_{10} sont réalisées à hautes fréquences (horaire) par des méthodes de référence (TEOM) et les mesures de spéciation sont obtenues à partir de prélèvement sur filtres journaliers analysés ensuite au laboratoire. Les performances (évaluées par le calcul du biais et du coefficient de corrélation de Pearson) se sont avérées tout à fait satisfaisantes au regard des critères attendus pour ce genre d'outils (Boylan and Russell, 2006 ; Emery et al., 2017). Par ailleurs, dans cette version, l'implémentation du suivi des sources par taggage (PSAT) dans le modèle CHIMERE a été réalisé. Cette méthode permet de suivre l'origine des polluants en fonction de leurs sources (Industrie, trafic, agriculture, traitements des déchets ...). Nous avons pu évaluer qu'il restait quelques améliorations à réaliser sur le taggage de la fraction secondaire de l'aérosol. Ainsi, pour les sulfate, nitrate, et les aérosols organiques secondaires, la masse simulée directement par le modèle est parfois différente de la somme des sources (trafic, agriculture, ...). Cela a été corrigé et une nouvelle version est dorénavant opérationnelle pour les prochaines simulations. Les 3 différentes méthodes de modélisation du PO s'appuient sur cette capacité à suivre la contribution de chaque source.

La première méthode (dite ADHOC) consiste à utiliser les valeurs du PO attribuées à chaque source. Cette connaissance existe et s'appuie sur les travaux de Weber et al. (2021) qui a utilisé les observations de PO et de composition des particules pour attribuer un PO aux sources déterminées par une approche de PMF (Positive Source Factorization). Notre objectif était de modéliser les sources PMF avec les sources du modèle CHIMERE qui sont par nature assez différentes ; une correspondance des sources a dû être effectuée et son évaluation montre qu'il y a des améliorations à faire

sur certaines sources. Mais nous avons pu alors attribuer les PO (dits intrinsèques) obtenus par les observations aux sources PMF modélisées. La modélisation du potentiel oxydant évaluée sur 4 stations françaises est plutôt satisfaisante au vu des corrélations et biais ($r > 0.6$ sauf Grenoble et MFB $< \pm 30\%$ sauf Nogent) même si le nombre de données disponibles est limité (4 stations, 251 données) dont la plupart (123) pour Grenoble, station complexe à modéliser du fait de sa forte densité de population, son orographie et la dynamique particulière des sites de vallée.

Une méthode statistique a également été développée pour modéliser le potentiel oxydant mais dans le but de s'affranchir de la PMF afin d'obtenir les potentiels oxydants intrinsèques des sources du modèle. Pour cela, nous avons simplement réalisé une régression entre PO observés et simulés pour obtenir les PO intrinsèques qui sont les paramètres estimés lors la régression. Cependant, même si les résultats semblent prometteurs (PO intrinsèques semblables aux POⁱ des sources PMF et scores PO^v proches des critères d'objectif), le peu de données utilisé ne permet pas encore d'avoir une robustesse suffisante.

Enfin, la dernière méthode est une reproduction de celle issue des travaux de Daellenbach et al. (2020) qui est au final conceptuellement proche de la première méthode décrite. Les résultats de modélisation du potentiel oxydant sont assez similaires à la première méthode.

La Figure 1 représente les valeurs moyennes des PO simulés sur la France (pour la méthode de l'acide ascorbique, AA) pour l'année 2014 à l'aide de la méthode ADHOC et de la méthode Daellenbach like. Les résultats des deux méthodes sont assez proches en termes de structures spatiales et d'ordre de grandeurs avec notamment un pilotage assez fort par la source trafic. Cependant on observe des gradients plus forts pour la méthode dite Daellenbach-like.

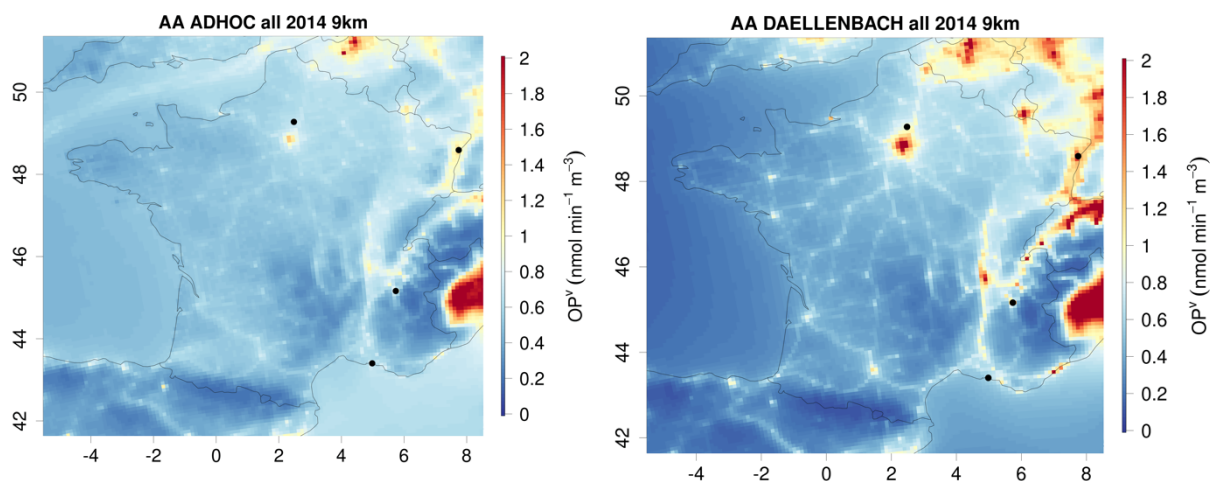


Figure 8 : Modélisation du potentiel oxydant AA (Acide Ascorbique) des PM₁₀ avec la méthode de modélisation des sources PMF (à gauche), dite méthode ADHOC et avec la méthode publiée, dite « DAELLENBACH like » reproduite (à droite) par le modèle CHIMERE à 9 km de résolution horizontale sur l'année 2014.

Au final, face au faible nombre de données, une simulation de 2 années (2013-2014) est envisagée. Ce travail a été valorisé par une présentation orale à la conférence ITM à Barcelone en octobre 2021.

3.2 Vers la modélisation déterministe du potentiel oxydant

Une autre approche est possible pour modéliser le potentiel oxydant. Elle consiste à simuler explicitement la chimie du fluide épithélial pulmonaire en simulant le dépôt des particules dans le système respiratoire et notamment leur fraction redox (Fe, Cu, Mn, SOA, HAP/Quinones) qui va générer la formation des espèces réactives de l'oxygène appelées ERO (OH, H₂O₂, O₂⁻). Ces ERO vont ensuite « consommer » les antioxydants (c'est cette consommation que mesure le PO) et éventuellement conduire à du stress oxydant et de l'inflammation. La première étape est donc de simuler le cycle des métaux impliqués (majoritairement Fe, Cu, Mn) depuis leurs émissions jusqu'à leur dépôt. La deuxième étape permettant de quantifier l'impact sanitaire repose sur l'utilisation des modèles de dépôts pulmonaires et de chimie du fluide épithélial qui pourraient être couplés au modèle CHIMERE.

<https://audio-books.su/7093-lisi-brody-anna-starobinec.html>

Dans le cadre de ce projet, nous nous intéressons à la modélisation de trois métaux de transition, le fer, le cuivre et le manganèse qui semblent jouer un rôle important pour le PO (Shiraiwa et al., 2017) et pour lesquels des inventaires d'émissions ne sont pas nécessairement disponibles (Fe et Mn). Pendant la première année, deux inventaires de fer et de manganèse ont été construits, en examinant les différentes sources de métaux de la manière la plus fine possible. Les grands secteurs d'émission ont été étudiés : la combustion (charbon, biomasse, pétrole), les particules d'abrasion routière, les particules d'abrasion ferroviaire, l'incinération de déchets. Des corrections ont également été faites pour l'inventaire de cuivre, notamment des homogénéisations de méthodes entre différents pays. Ce travail a été fait en collaboration avec le Citepa, qui est l'organisme expert des inventaires d'émission en France. Ces données d'émissions annuelles et par pays ont été spatialisées en utilisant la spatialisation utilisée par EMEP pour la fraction grossière (mode centré sur 4 µm) des PM (Figure 2). Par ailleurs, de premières simulations courtes ont été effectuées avec le modèle CHIMERE v2020r3 (Mailler et al., 2017, Menut et al., 2021) à une résolution assez large (45 km, sur deux mois), et ont montré que les inventaires ne permettaient pas à l'heure actuelle d'expliquer la totalité des concentrations de fer et de manganèse.

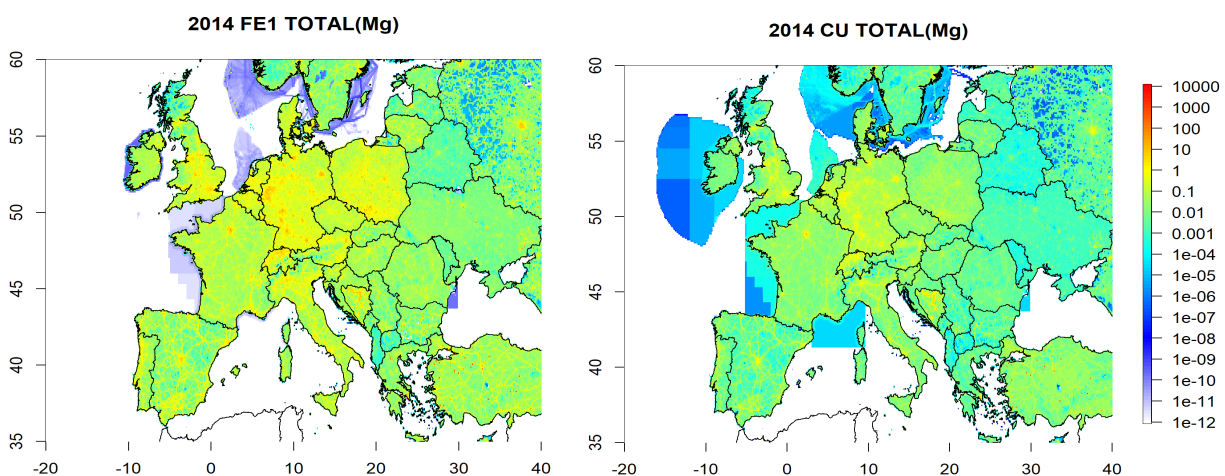


Figure 2. Emissions simulées de fer et de cuivre anthropiques (Mg/an/100km²) sur l'Europe

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

Air quality modeling over East Africa to examine source impacts and evaluate future air pollution mitigation pathways

1. Project Context

Air pollution in the Eastern Africa cities has recently risen to levels of concern to public health. In densely populated and rapidly urbanizing cities of Nairobi in Kenya, Kampala in Uganda and Kigali in Rwanda, regular monitoring of air pollution is yet to be attained. The random short-term campaigns conducted occasionally show compelling evidence of the state of deterioration in air quality within these cities. However, these findings remain inconclusive in terms of explaining the spatial-temporal characteristics, source apportionment, regional transport and potential mitigation pathways. For the first time, we combine synergies of datasets available from ground measurements, satellite, and modeling to advance the knowledge of air quality and examine scenarios which can lead to air pollution reduction in the study area.

In this research project, we aim to conduct modelling of air quality, determination of spatial-temporal variability of air pollution, regional transport, sources contribution to observed pollution, and testing different scenarios which can lead to future mitigation of air pollution. For modelling, we use a multi-scale chemistry-transport model, CHIMERE (Menut et al., 2013). The model is fully developed to stimulate air quality at different scales and is currently under application in different research groups globally. The model was recently used to study PM_{2.5} pollution in Nairobi, Kampala, and Addis Ababa in Ethiopia (Mazzeo et al., 2022). CHIMERE was observed to reproduce hourly temporal variabilities of aerosol concentrations with high degree of consistency. However, the concentrations in Kampala was underestimated by a factor of 7.2 $\mu\text{g m}^{-3}$ and overestimated by 3.6 $\mu\text{g m}^{-3}$ and 0.6 $\mu\text{g m}^{-3}$ in Nairobi and Addis Ababa respectively (Mazzeo et al., 2022). While the study established strong background for future research, it only lasted for a period of three weeks over which ambient measurements were available. The short-term model evaluation data lacks robustness which has a likelihood of causing the model to generate inaccurate estimations.

2. Methodology and Preliminary Results

A model simulation domain (14,500 x 12,100 km²) was set up in CHIMERE, extending between the coastal borders of eastern and central Africa, covering 145 by 121 grid-cells of 30 km² horizontal resolution and 20 vertical layers. For parametrization, we adopted a standard model configuration. The model takes metrological and atmospheric emissions data as the input values. Thus, WRF model was run in online mode to generate model metrological inputs (Skamarock et al., 2005). The model anthropogenic emission datasets were derived from global emissions inventory Copernicus Atmospheric Monitoring Services CAMS (Granier et al., 2019). We also used the CAMS-GFAS fire emissions available here (<https://apps.ecmwf.int/datasets/data/cams-gfas/>), to account for emissions emanating from biomass burning.

The model performance at a horizontal resolution of 30 km² grid-cells was evaluated against ground measurements taken at an urban background site, located in the Westlands neighborhoods of Nairobi. The modeled PM_{2.5} tracked the temporal profile of the measurement, however, it displayed distinct working regimes one involving

underestimation and that of overestimation. The statistical scores computed to evaluate the modeled concentrations were mean bias (MB), root mean squared error (RMSE) and Pearson correlation (R), which had values of -6.8, 13.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, and 0.49 respectively. The daily mean concentrations of the measured and the modeled data were 31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ respectively. During the one month testing period, the model reproduced approximately 64 per cent of the measured concentrations. However, the observed underestimation were attributable to misrepresentation of local emissions by existing emission inventories, and anomalies in boundary layer height (BLH) leading to over dilution of modeled concentrations.

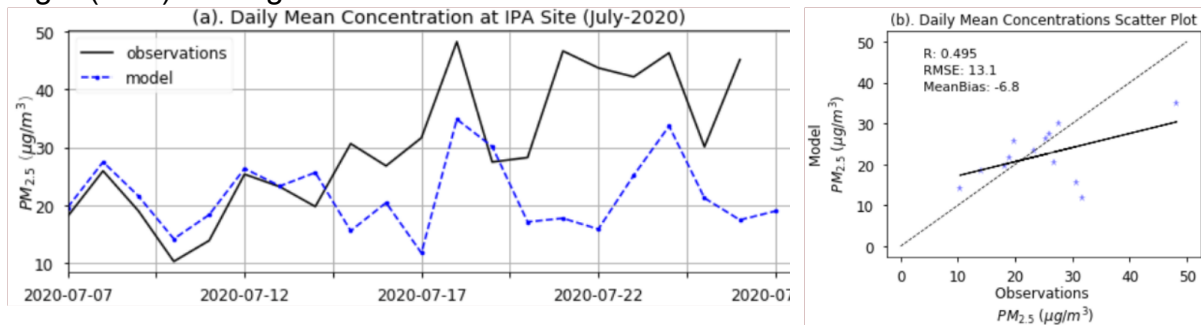


Figure 1. Comparison of time series between the modelled (horizontal resolution 30 km^2) and the measured daily mean $\text{PM}_{2.5}$ concentrations at the IPA offices in Nairobi.

Fig 2. Illustrates the spatial distribution of $\text{PM}_{2.5}$ over the simulation domain, which had a horizontal resolution of 30 km^2 per grid-cell. A hotspot of air pollution was observed in Central Africa. This enhancement could be attributed to vegetation burning due to seasonal wildfires common in that region. Air quality in Kampala was not only impacted by local pollution as well as strong regional sources emanating from neighboring urban areas, and a busy road network which connect the landlocked countries of Uganda and Rwanda to the coastal port of Mombasa through Nairobi.

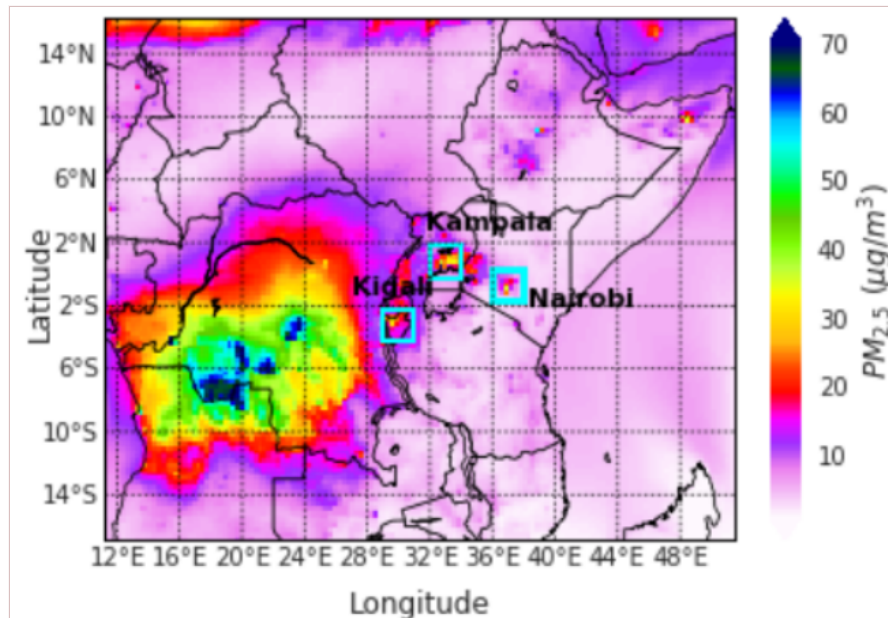


Figure 2. Spatial distribution of the modelled $\text{PM}_{2.5}$ concentrations over model domain for the month of July-2020.

Expected Outputs

- a) **Publication:** Application of Ground-Based Measurements, Satellite Observations and Modeling to Improve Air Quality Estimations and Evaluation of possible Mitigation Scenarios for Nairobi, Kampala and Kigali. (to be ready in March 2023)
- b) **Presentation:** Application of Ground-Based Measurements and Air Quality Model to Improve the Estimations of Air Quality in Nairobi, Kenya (September 2022)

5) Interaction entre émissions biogéniques et anthropiques - impact sur le bilan radiatif de l'aérosol

Les aérosols atmosphériques sont des particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère, dont la taille varie entre quelques dizaines de nanomètres et quelques dizaines de micromètres. L'interaction entre les aérosols et le rayonnement solaire et infrarouge (effets directs et semi-directs des aérosols) et le rôle des aérosols dans la formation et les propriétés des nuages (effet indirect) restent parmi les principales incertitudes dans la compréhension du système climatique. Le dernier rapport IPCC AR6 (IPCC, 2022) attribue une réduction de $-0,22$ $[-0,47$ à $0,04]$ W/m² (ERFari) à cause des interactions aérosol-radiation entre la période 1750-2019. Donc, afin de simuler au mieux l'effet radiatif des aérosols, une reproduction optimale des propriétés optiques spectrales des aérosols (e.g. aerosol optical depth, AOD) est nécessaire. L'AOD dépend à son tour de la masse des aérosols, de leur distribution en taille et de leur composition chimique, ainsi que de l'indice de réfraction. Une incertitude provient de l'attribution correcte de l'indice de réfraction aux aérosols dans les modèles de chimie-transport. En effet, les aérosols peuvent être émis ou formés à partir de sources de nature biogénique ou anthropogénique, et leurs propriétés optiques et l'indice de réfraction changent en fonction de la nature et de la voie de formation (He et al, 2021, Moise et al, 2015). En particulier, notre travail s'inscrit dans le cadre et l'objectif du projet ACROSS, campagne de terrain majeure de la communauté française effectuée en juin-juillet 2022, dont l'objectif principal est d'étudier les effets du mélange entre les aérosols d'origine biogénique et anthropique. L'utilisation des données de la campagne peut non seulement être un moyen de comparer les résultats de la simulation (distribution en taille, masse...), mais aussi servir comme entrée à la simulation. En effet, l'indice de réfraction obtenu par les mesures in-situ (qui sera utilisé pour le calcul de l'AOD) permettra de réduire l'incertitude sur les calculs optiques.

A cet effet, en utilisant les heures de l'année précédente, trois simulations (pour tester le modèle sur un cas d'étude pour la période juin-juillet 2019) avec le modèle de chimie-transport CHIMERE, couplé au modèle météorologique à méso-échelle WRF, ont été réalisées avec 3 domaines imbriqués sur la région de l'Île de France (résolutions horizontales de 30, 6 et 2 km respectivement). La première est une simulation de contrôle et exécutée tout au long de la période dont la masse des aérosols (e.g. PM₁₀, PM₂₅) a été validée par des observations in-situ (EEA, Agence européenne pour l'environnement).

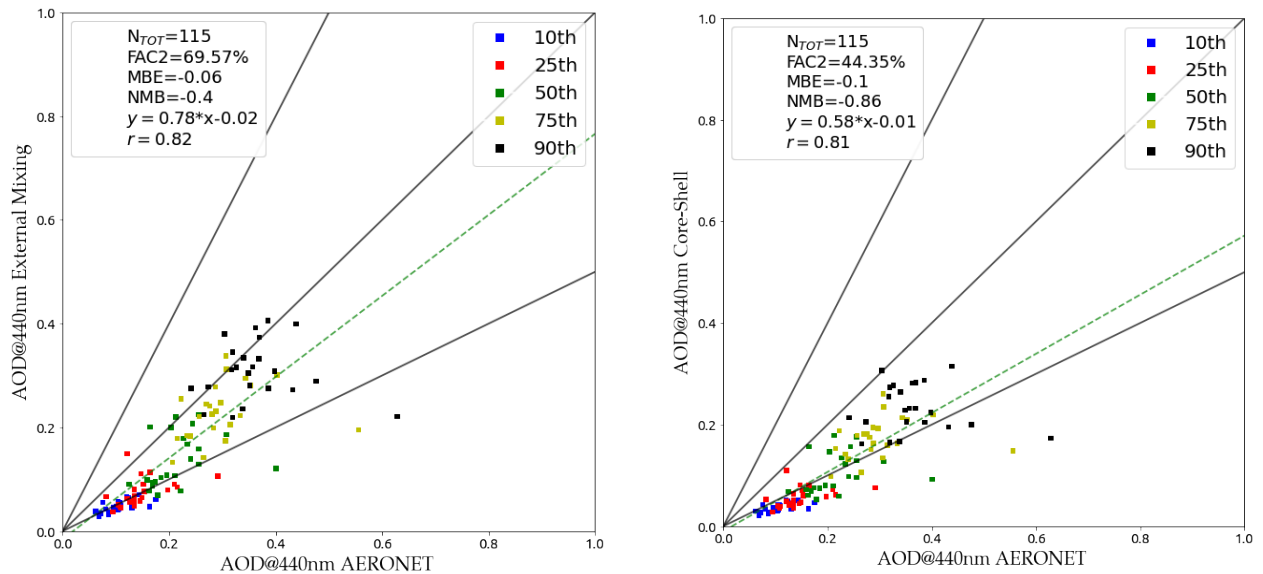


Fig. 1 Validation avec une analyse percentile de l'AOD à 440nm pour la simulation de CTRL pour la période JJ 2019

Les propriétés optiques (e.g. AOD), calculées a posteriori en supposant deux états de mélange différents (externe et interne), ont également été comparées aux observations du réseau AERONET (Fig. 1). La deuxième simulation effectuée, prend en compte le couplage possible entre WRF et CHIMERE et la possibilité d'échanger les champs de paramètres optiques (calculés par CHIMERE) pour les calculs radiatifs (calculés par WRF), ce qui permet d'estimer la rétroaction sur le système (rayonnement, température, vent...) lié à la présence d'aérosols (feedbacks).

La troisième simulation reproduit une atmosphère sans aérosols (AOD=0) pour isoler leur contribution. Grâce à cette possibilité, il est possible d'estimer non seulement les effets directs, mais les effets causés par les rétroactions sur les champs météorologiques. La Fig. 2 représentés une estimation de l'effet direct (DRE) au TOA pour le 27 juin 2019. On estime un DRE journalière pour tous les aérosols de -18.4W/m^2 sur l'Ile de France et de -17.1W/m^2 sur Paris. Enfin, grâce à la simulation d'AOD, il a été possible de calculer la visibilité en (km). Sur la Fig. 2, on peut voir qu'en cas de présence d'aérosols, la visibilité peut être fortement réduite.

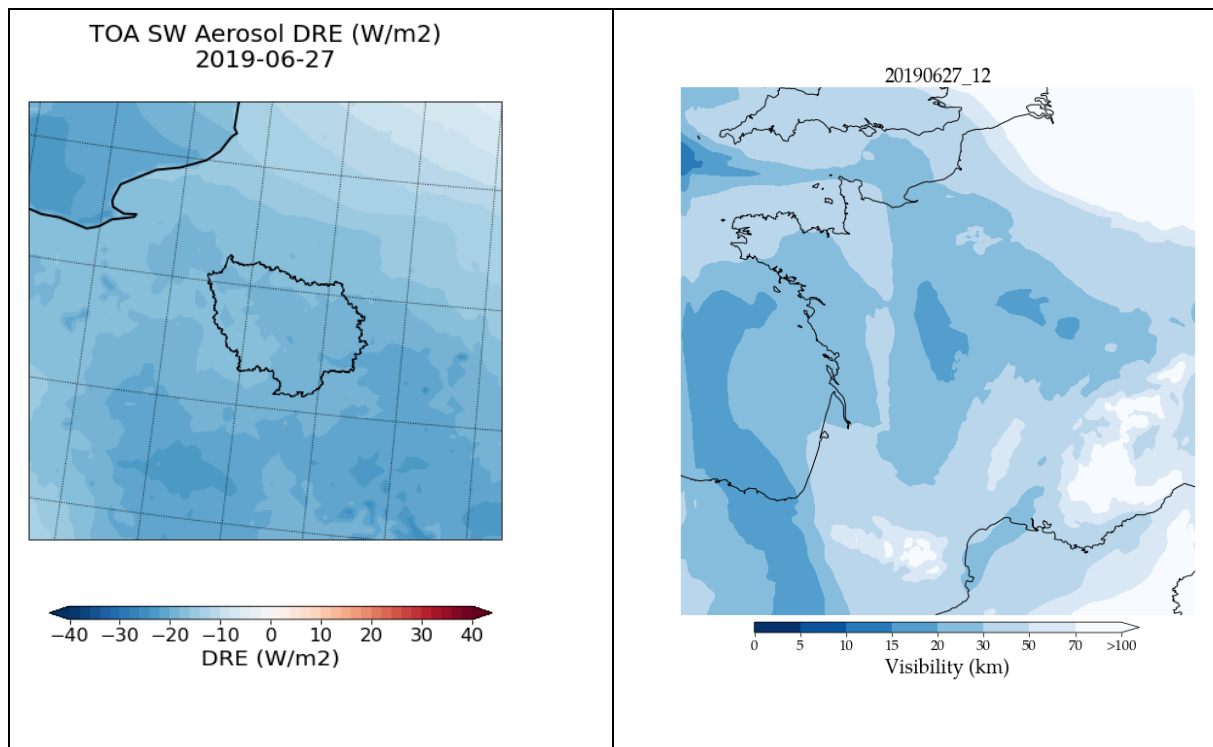


Fig. 2 (gauche) Estimation de l'effet direct au TOA du 27 juin 2019, (droite) Visibilité calculée à partir de l'AOD à 500 nm pour 27 Juin 2019- 12 UTC sur la France, avec une hauteur de couche limite de 2 km.

Les heures restantes seront nécessaires pour tester le modèle en présence d'aérosols absorbants (par exemple, Brown carbon) et pour terminer le cas d'étude en vue de la simulation pour la campagne ACROSS, dont l'ensemble des données collectées jouera un rôle clé dans l'amélioration des simulations et des schèmes dans le modèle.

Au final, ce travail sera valorisé lors de conférences telles que l'EGU ou IAC (International Aerosol Conference)

Publications en préparation

Dufour, G., Eremenko, M., Siour, G., Sellitto, P., Cuesta, J., Perrin, A., Beekmann, M., 24-hour evolution of an exceptional HONO plume emitted by the record-breaking 2019/2020 Australian wildfire tracked from space, to be submitted to *Atmosphere*

Savas, D., Dufour, G., Coman, A., Siour, G., Fortems-Cheiney, A., Pison, I., Berchet, A., Bessagnet, B., Top-down estimations of anthropogenic NO_x emissions over East China using the new inverse modeling system PYCIF, to be submitted to *Atmosphere*

Publications

Fortems-Cheiney, A.; Dufour, G.; Foret, G.; Siour, G.; Van Damme, M.; Coheur, P.-F.; Clarisse, L.; Clerbaux, C.; Beekmann, M. Understanding the Simulated Ammonia Increasing Trend from 2008 to 2015 over Europe with CHIMERE and Comparison with IASI Observations. *Atmosphere* **2022**, *13*, 1101. <https://doi.org/10.3390/atmos13071101>

Conférences et posters

Dufour, G., Hauglustaine, D., Zhang, Y., Cohen, Y., Eremenko, M., Gaudel, A., Lachâtre, M., Siour, G., Bense, A., Bessagnet, B., Cuesta, J., Thouret, V., Ziemke, J., Zheng, B., Recent Chinese O₃ trends as seen from IASI and model simulations: exploring the impact of local precursor emission reductions, IASI conference, 6-10 December 2021, Evian, France

Dufour, G., Eremenko, M., Siour, G., Sellitto, P., Cuesta, J. Perrin, A., Beekmann, M., Tracking HONO during record-breaking 2019/2020 Australian wildfires using IASI and CrIS observations, IASI conference, 6-10 December 2021, Evian, France

Dufour, G., Hauglustaine, D., Eremenko, M., Free tropospheric ozone trends observed by IASI and simulated by LMDZ-OR-INCA between 2008 and 2020 over Central East China, Europe and North America and COVID impact in spring 2020, IGAC conference, 10-15 September 2022, Manchester, UK

Dufour, G., Broquet, G., Bocquet, M., Colette, A., Berchet, A., Coman, A., Descombes, G., Dumont Le Brazidec, J., Farchi, A., Fortems-Cheiney, A., Pison, I., Plauchu, R., Potier, E., Roustan, Y., Savas, D., Siour, G., Vanderbecken, P., French ARGONAUT project: Inferring pollutants (NO_x, CO, NMVOCs) and CO₂ emissions at high resolution over France using Sentinel-5P and the CIF-CHIMERE inversion system, Sentinel-5P Mission: 5 years anniversary, 10-14 October 2022, Taormina, Italy

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. W., Agricultural footprint to French air quality: do IASI and CrIS help to provide improved ammonia emissions and air quality simulations?, IASI conference, 6-10 December 2021, Evian, France

Savas, D., Dufour, G., Coman, A., Siour, G., Fortems-Cheiney, A., Pison, I., Berchet, A., Bessagnet, B., Evaluation of the new 4D-variational inverse modeling system, CIF-CHIMERE: Inversion of NO_x emissions over China using OMI NO₂ observations, EGU conference, May 2022, Vienna, Austria

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

Références

Berchet, A., Sollum, E., Thompson, R. L., Pison, I., Thanwerdas, J., Broquet, G., Chevallier, F., Aalto, T., Berchet, A., Bergamaschi, P., Brunner, D., Engelen, R., Fortems-Cheiney, A., Gerbig, C., Groot Zwaaftink, C. D., Haussaire, J.-M., Henne, S., Houweling, S., Karstens, U., Kutsch, W. L., Lujikx, I. T., Monteil, G., Palmer, P. I., van Peet, J. C. A., Peters, W., Peylin, P., Potier, E., Rödenbeck, C., Saunio, M., Scholze, M., Tsuruta, A., and Zhao, Y.: The Community Inversion Framework v1.0: a unified system for atmospheric inversion studies, *Geosci. Model Dev.*, 14, 5331–5354, <https://doi.org/10.5194/gmd-14-5331-2021>, 2021.

Boylan, J. and Russell, A. : PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models, *Atmos. Environ.*, 40, 4946–4959, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.09.087>, 2006.

ECMWF | CAMS Global Fire Assimilation System. (n.d.). Retrieved July 26, 2022, from <https://apps.ecmwf.int/datasets/data/cams-gfas/>

Daellenbach, K. R., Uzu, G., Jiang, J., Cassagnes, L.-E., Leni, Z., Vlachou, A., Stefanelli, G., Canonaco, F., Weber, S., Segers, A., Kuenen, J. J. P., Schaap, M., Favez, O., Albinet, A., Aksoyoglu, S., Dommen, J., Baltensperger, U., Geiser, M., El Haddad, I., Jaffrezo, J.-L., and Prévôt, A. S. H. : *Sources of particulate-matter air pollution and its oxidative potential in Europe*, *Nature*, 587, 414–419, <https://doi.org/10.1038/s41586-020-2902-8>, 2020.

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.

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.*, 21, 16001–16025, <https://doi.org/10.5194/acp-21-16001-2021>, 2021.

Emery, C., Liu, Z., Russell, A. G., Odman, M. T., Yarwood, G., and Kumar, N. : *Recommendations on statistics and benchmarks to assess photochemical model performance*, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 67, 582–598, <https://doi.org/10.1080/10962247.2016.1265027>, 2017.

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. Ebojje, 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. Rappoe, 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

Granier, C., Darras, S., Denier van Der Gon, H., Jana, D., Elguindi, N., Bo, G., Michael, G., Marc, G., Jalkanen, J.-P., Kuenen, J., Lioussé, C., Quack, B., Simpson, D., & Sindelarova, K. (2019). *The Copernicus Atmosphere Monitoring Service global and regional emissions (April 2019 version)* [Research Report]. Copernicus Atmosphere Monitoring Service. <https://doi.org/10.24380/d0bn-kx16>

He Q, Tomaz S, Li C, et al. Optical Properties of Secondary Organic Aerosol Produced by Nitrate Radical Oxidation of Biogenic Volatile Organic Compounds. *Environ Sci Technol.* 2021;55(5):2878-2889. doi:10.1021/acs.est.0c06838

IPCC, 2022: Climate Change 2022: Impacts, Adaptation, and Vulnerability. Contribution of Working Group II to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [H.-O. Pörtner, D.C. Roberts, M. Tignor, E.S. Poloczanska, K. Mintenbeck, A. Alegría, M. Craig, S. Langsdorf, S. Lössche, V. Möller, A. Okem, B. Rama (eds.)]. Cambridge University Press. In Press.

Mailler S. et al., 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.

Mazzeo, A., Burrow, M., Quinn, A., Marais, E. A., Singh, A., Ng'ang'a, D., Gatari, M. J., & Pope, F. D. (2022). Evaluation of WRF-CHIMERE coupled models for the simulation of PM 2.5 in large East African urban conurbations. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 1–31.

Menut, L., Bessagnet, B., Briant, R., Cholakian, A., Couvidat, F., Mailler, S., Pennel, R., Siour, G., Tuccella, P., Turquety, S., Valari, M., : *The CHIMERE v2020r1 online chemistry-transport model*, *Geosci. Model Dev. (GMD)*, 14, pp. 6781-6811, [10.5194/gmd-14-6781-2021](https://doi.org/10.5194/gmd-14-6781-2021), 2021.

Moise T, Flores JM, Rudich Y. Optical properties of secondary organic aerosols and their changes by chemical processes. *Chem Rev.* 2015 May 27;115(10):4400-39. doi: 10.1021/cr5005259. Epub 2015

Shiraiwa, M., K. Ueda, A. Pozzer, G. Lammel, C. J. Kampf, A. Fushimi, S. Enami, A. M. Arangio, J. Fröhlich-Nowoisky, Y. Fujitani, A. Furuyama, P. S. J. Lakey, J. Lelieveld, K. Lucas, Y. Morino, U. Pöschl, S. Takahama, A. Takami, H. Tong, B. Weber, A. Yoshino, and K. Sato, *Environmental Science & Technology* 51 (23), 13545-13567, DOI: [10.1021/acs.est.7b04417](https://doi.org/10.1021/acs.est.7b04417), 2017.

Skamarock, C., Klemp, B., Dudhia, J., Gill, O., Barker, M., Wang, W., & Powers, G. (2005). *A Description of the Advanced Research WRF Version 2*. <https://doi.org/10.5065/D6DZ069T>

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.

Weber, S., Uzu, G., Favez, O., Borlaza, L. J. S., Calas, A., Salameh, D., Chevrier, F., Allard, J., Besombes, J.-L., Albinet, A., Pontet, S., Mesbah, B., Gille, G., Zhang, S., Pallares, C., Leoz-Garziandia, E., and Jaffrezo, J.-L., : *Source apportionment of atmospheric PM10 oxidative potential: synthesis of 15 year-round urban datasets in France*, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 11353–11378, <https://doi.org/10.5194/acp-21-11353-2021>, 2021.