

Relations source-récepteur transcontinentales identifiées avec un modèle Lagrangien de dispersion et une analyse en clusters

Transcontinental source-receptor relationships identified with a Lagrangian dispersion model and cluster analysis

Jean-Daniel PARIS*,¹, Andreas STOHL**, Philippe CIAIS*, Michel RAMONET*, Philippe NEDELEC***

Résumé

Le transport des polluants à longue distance peut provoquer une dégradation de la qualité de l'air loin des sources d'émissions. Nous décrivons ici une technique récemment développée pour l'analyse des mesures de polluants, qui permet l'identification systématique de relations source-récepteur à travers un jeu d'observations. Cette technique utilise un modèle lagrangien de dispersion de particules (MLDP). Les MLDP calculent des rétropanaches qui représentent la sensibilité aux émissions potentielles (SEP) pour des mesures individuelles. Les SEP peuvent être regroupées selon leurs ressemblances en utilisant un algorithme de clustering. La classification des SEP peut informer sur l'impact de différents modes de transport à longue distance sur les mesures, et permet de déconvoluer le mélange atmosphérique de l'impact des émissions de surface. Nous appliquons notre méthode à des mesures au-dessus de la Sibérie, et constatons qu'un excès de ~20 ppb de monoxyde de carbone (CO) par rapport aux concentrations de fond est expliqué par le transport à longue distance d'émissions provenant de la combustion de biomasse au Kazakhstan, et que ~10 ppb d'excès de CO sont associés à des émissions européennes. Nous mettons en avant l'avantage de notre méthode par rapport aux méthodes traditionnelles pour l'établissement de relations source-récepteur dans les études du transport à longue distance.

Mots clés

Transport longue distance. Eurasie. Relations source-récepteur. Cluster. Modèles Lagrangiens de dispersions de particules.

Abstract

Long range transport of pollutants has the ability to degrade air quality far from emissions sources. We describe a recently developed technique for the analysis of pollutant's measurements that allows the identification of systematic source-receptor relationship across an observational dataset. This technique uses a Lagrangian particles dispersion model (LPDM). LPDMs calculate retroplumes that represent potential emission sensitivity (PES) for individual measurements. The PESs can be grouped according to their similarities by using a clustering algorithm. Grouping PES can inform about the impact of various patterns of long range transport on the measurements, and has the ability to deconvolve atmospheric mixing from the impact of surface emissions. We apply our method to measurements above Siberia, and found that ~20 ppb excess carbon monoxide (CO) over background is related to long range transport of biomass burning emissions in Kazakhstan, and ~10 ppb excess CO are associated to European emissions. We highlight the advantage of our method over traditional methods for the establishment of source-receptor relationships in long range transport studies.

Keywords

Long-range transport. Eurasia. Source-receptor relationship. Cluster. Lagrangian particle dispersion models.

* Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement – IPSL, CEA-CNRS-UVSQ, CEA Saclay – Orme des Merisiers – 91191 Gif-sur-Yvette – France.

1. Contact : Jean-Daniel.Paris@lsce.ipsl.fr

** Norwegian Institute for Air Research (NILU) – Kjeller – Norvège.

*** Laboratoire d'Aérodynamique – OMP, CNRS-UPS – Toulouse – France.

1. Introduction

Le transport intercontinental des polluants atmosphériques dégrade considérablement la qualité de l'air à travers l'hémisphère Nord [1]. Cette détérioration est principalement associée à l'augmentation des concentrations d'ozone (O_3) et de matières particulaires. L'ozone est un polluant secondaire provenant de précurseurs tels que le monoxyde de carbone (CO), les oxydes d'azote (NO_x) et les composés organiques volatils (COV). Les temps de séjour de l'ozone et des COV dans l'atmosphère, de l'ordre de quelques jours à quelques semaines, rendent ces espèces compatibles avec le transport à longue portée. Il a été récemment observé que l'augmentation des émissions de précurseurs d'ozone en Asie a provoqué, à travers l'export trans-Pacifique, une augmentation de la concentration en O_3 au-dessus des États-Unis d'environ 0,7 ppb/an depuis les années quatre-vingts [2]. Cette augmentation de l'ozone peut être propagée à la couche limite et donc avoir un impact négatif sur la qualité de l'air dans la partie occidentale du pays [3]. De même, en raison du transport intercontinental, il a été calculé qu'une réduction hypothétique de 20 % des émissions nord-américaines permettrait de réduire les concentrations d'ozone sur l'Europe de 0,4 ppb, ce qui équivaut à plus de la moitié d'une réduction équivalente des émissions européennes [4].

L'impact d'une région émettrice sur d'autres régions est quantifié à l'aide de modèles chimie-transport [4]. Toutefois, ces modèles n'ont qu'une résolution limitée, et sont difficiles à comparer à des observations ponctuelles. En outre, ces études « sources-récepteurs » Eulériennes sont limitées par une connaissance *a priori* de la localisation et la

magnitude des émissions considérées. Les modèles Lagrangiens de dispersion de particules (MLDP) offrent la possibilité de surmonter ces limitations.

Les MLDP calculent simultanément un grand nombre de rétro-trajectoires pour représenter la dispersion des masses d'air (Figure 1a). Cela permet une compréhension plus mécanistique du transport intercontinental, et de lier quantitativement les mesures *in-situ* de polluants à l'impact combiné du transport atmosphérique et des sources distantes émettrices de précurseurs. En utilisant des MLDP, l'analyse de grands ensembles de données *in-situ* (tels que les mesures de surface pluriannuelles en continu ou les campagnes avion) peuvent être interprétées en termes de transport à longue distance des polluants.

Une méthode qui permet de déconvoluer l'impact du transport sur les concentrations observées est nécessaire pour identifier et quantifier systématiquement les relations source-récepteur. Par exemple, des clusters de rétro-trajectoires ont permis de mettre en évidence l'impact de l'export européen sur les concentrations d' O_3 au-dessus de la Sibérie [5]. Un classement manuel de rétropanaches pour des données aéroportées avait été utilisé par Traub *et al.* [6], illustrant l'impact du transport atmosphérique sur les mesures. Cette méthode restait toutefois fortement liée à une connaissance *a priori* des régions sources. Nous présentons ici une méthode de partitionnement de rétropanaches indépendante à la fois de la connaissance des régions sources et des observations elles-mêmes. La méthodologie est exposée dans la Sect. 2. Une étude de cas utilisant des mesures avion au-dessus de la Sibérie est présentée dans la Sect. 3. Nous discutons enfin les avantages de cette méthode dans la Sect. 4.

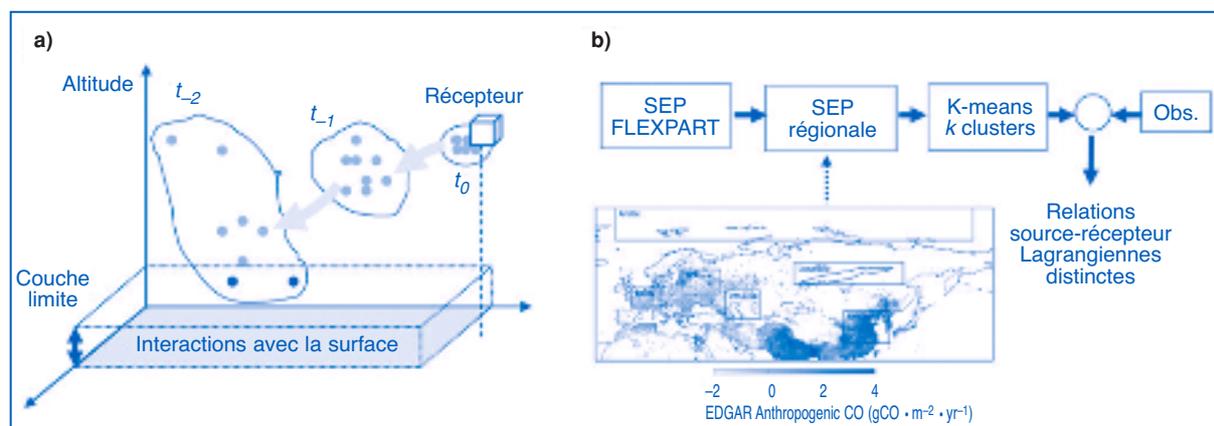


Figure 1.

- a) Schéma de principe des rétropanaches lagrangiennes. Un grand nombre de particules est libéré à l'instant $t = t_0$ à partir d'un point spécifique (« récepteur »). Les particules voyagent dans les champs de vent en temps inversé, avec l'ajout d'une composante stochastique pour la diffusion et la convection. Lorsque les particules approchent de la surface, leurs temps de résidence et leurs positions sont comptabilisés en termes de sensibilité aux émissions potentielles à cet endroit (SEP).
b) Schéma de principe de la technique de *clustering* des SEP.

2. Modèles Lagrangiens et clustering de rétropanaches

2.1. Le modèle Lagrangien FLEXPART

Nous utilisons ici le modèle Lagrangien FLEXPART [7, 8]. FLEXPART calcule les trajectoires d'un grand nombre de particules traceur (Figure 1a) en utilisant les vents moyens interpolés des champs météorologiques analysés (ici, du Centre Européen de Prédiction Météorologique à Moyen Terme, à $0,5^\circ \times 0,5^\circ$ de résolution et avec un pas de temps de trois heures). Un mouvement stochastique paramétré représentant la turbulence et la convection est ajouté à chaque pas de temps pour chaque particule [7]. Les simulations en temps inversé sont utilisées pour analyser les chemins de transport se terminant à la position du récepteur (l'avion). Chaque simulation inverse consiste en 40 000 particules relâchées dès que l'avion s'est déplacé de $0,15^\circ$ en latitude ou en longitude, ou de 10 hPa en altitude. Les particules relâchées sont suivies vingt jours en temps inversé. Nous considérons qu'une masse d'air, représentée par le nuage de particules, peut être affectée par des émissions de surface en remontant le temps quand ses particules sont à moins de 300 m de la surface (Figure 1a). Les positions et les durées des résidences de ces particules à proximité de la surface composent la « sensibilité aux émissions potentielles » (SEP), sous forme d'une carte spatialisée. Il convient de noter que le seuil de 300 m est raisonnable [8] mais que d'autres seuils sont envisageables pour les SEP.

2.2. Analyse en clusters

La modélisation du transport Lagrangien en temps inverse constitue une amélioration sur les rétro-trajectoires en ce qu'elles décrivent mieux l'impact de la diffusion et de la convection sur le transport [9]. Comme les rétro-trajectoires, la modélisation du transport Lagrangien attribue les zones d'influence à une mesure de la composition chimique en un point unique. L'analyse des SEP, comme les rétro-trajectoires, peut être peu efficace dans le cas de grands jeux de données. Un clustering peut être appliqué à un ensemble de SEP (comme cela a été fait précédemment avec les rétro-trajectoires) pour dépasser cette difficulté et relier des mesures individuelles dans un jeu de données à un certain nombre de types de transport et, *in fine*, à des régions source. Un algorithme de clustering réalise un partitionnement du jeu de données (ici, l'ensemble de SEP correspond à des positions successives de l'avion, où la composition est mesurée) en fonction de propriétés communes (ici, le temps de résidence dans chaque élément de grille des SEP). Différents algorithmes de clustering existent, et nous utilisons ici l'algorithme bien connu *K-means* (voir par ex. [10]). Un trop grand nombre d'éléments de grille rendent l'algorithme moins efficace numériquement ; une réduction de dimension est requise avant le clustering (Figure 1b). Une réduction de dimensionnalité peut être obtenue à travers le

moyennage des SEP sur des régions particulières [11] ou par d'autres méthodes (voir Sect. 4). Enfin, l'association de clusters de SEP avec les mesures correspondantes nous informe sur le type de transport, et donc sur la combinaison de régions source potentielles, qui est associée aux masses d'air polluées (Figure 1b).

3. Application à des mesures aéroportées sur la Sibérie

3.1. Pourquoi la Sibérie ?

La Sibérie est une région éloignée des principales sources de pollutions de l'Hémisphère Nord, telles que l'Amérique du Nord, l'Europe ou l'Asie orientale. L'essentiel de la pollution anthropique trouvée au-dessus de la Sibérie est donc probablement due au transport à longue distance. Bien que la plupart des trajets d'export intercontinental des polluants atmosphériques soit relativement bien caractérisée [1], l'export des polluants d'Europe à travers l'Eurasie restent peu connus. Basés sur une étude de modélisation, Duncan et Bey [12] prédisent que l'export de l'air de la couche limite européenne est principalement dirigé vers la Sibérie, restant principalement confiné dans la couche limite et dans la basse troposphère. Mais peu d'observations sont disponibles pour confirmer ou infirmer cette prédiction. La Sibérie est également une région où de grands feux de forêts non contrôlés émettent d'importantes quantités de polluants, affectant *in fine* la chimie atmosphérique dans l'Arctique et ailleurs. Dans un effort pour fournir de nouvelles données au-dessus de cette région, des mesures aéroportées de la composition chimique atmosphérique ont été récoltées dans le cadre de l'expérience YAK-AEROSIB [13].

3.2. Analyse en clusters des mesures aéroportées

Cinq campagnes aéroportées à grande échelle ont eu lieu depuis 2006, mesurant plusieurs composés atmosphériques dont le CO et l'ozone. Pour notre étude de cas nous utilisons les données d'un vol sélectionné, le 7 septembre 2006 [11, 13], effectuant des montées et descentes entre 0 et 7 km d'altitude, sur un transect entre Novossibirsk et Myrni. Au cours de ce vol, la concentration moyenne de CO était d'environ 100 ppb, avec une grande variabilité due à la présence de masses d'air avec des origines très différentes. Les valeurs mesurées d'O₃ près de la surface étaient variables, de 30 à 40 ppb, et augmentaient avec l'altitude jusqu'à 50-60 ppb près du plafond de vol à 7 km.

Les concentrations de CO observées montrent des dépassements au-dessus des concentrations de fond en de nombreuses occasions durant le vol. En utilisant des rétropanaches individuels (ou SEP, non montré), la plupart de ces concentrations élevées de

CO peuvent être associées à des masses d'air influencées par une combustion de biomasse au Kazakhstan (ou plus largement entre la mer Caspienne et la mer d'Aral). Au-delà de l'analyse des retropanaches individuels, l'analyse typologique peut expliquer en grande partie la variabilité des émissions de CO en groupes ayant des similitudes dans l'histoire du transport des masses d'air (Figure 2).

L'algorithme attribue la concentration la plus élevée de CO à un cluster particulier (intitulé cluster D dans la Figure 2), avec des concentrations jusqu'à 158 ppb (médiane 121 ppb). Cette concentration est également associée à une concentration d'ozone élevée (médiane de 55 ppb). Les teneurs élevées en CO et O₃ sont susceptibles de refléter la sensibilité du cluster D à la combustion de biomasse détectée dans la région de la Caspienne. Fait intéressant, 39 % des données recueillies lors de ce vol sont associées au cluster D par l'algorithme de clustering, illustrant l'importance du transport à longue distance de la combustion de la biomasse pour ce vol particulier.

Des masses d'air arctiques peuvent également atteindre la Sibérie. Le cluster A (14 % des données) est clairement associé à une masse d'air transitant depuis l'Arctique vers le sud dans la couche limite (Figure 2a). Les observations regroupées dans ce cluster ont une faible teneur en CO et O₃ (valeurs médianes 103 ppb et 34 ppb de CO et O₃ respectivement ; Figure 2b). Ce cluster est généralement rencontré à basse altitude (typiquement 1 km) dans la couche limite et se compose d'air humide. Les résultats de FLEXPART indiquent que les temps de résidence totaux au-dessus de l'Arctique ont été de

cinq jours ou plus au cours des dix derniers jours pour la majorité des données dans le cluster A, et que le transport vers la Sibérie centrale s'est produit dans la couche limite. Les faibles concentrations de CO suggèrent un fort isolement des sources de pollution dans l'histoire des masses d'air. Pendant les cinq jours de transport méridien de l'Arctique, le dépôt de surface sur la végétation de haute latitude doit aussi avoir contribué à de faibles valeurs de concentration d'ozone.

Le cluster C (4 % seulement des données) reflète l'advection des masses d'air en contact avec des émissions (potentielles) européennes. La masse d'air européenne (cluster C) a une concentration médiane relativement élevée de CO de 110 ppb, soit un excès au-dessus des teneurs de fond d'environ 10 ppb (Figure 2b) à une altitude moyenne de 5 km. Les données regroupées dans le cluster C illustrent un cas particulier de l'exportation vers l'Est de la pollution atmosphérique européenne dans la moyenne troposphère. Ceci suggère que les exportations européennes vers la Sibérie ne suivent pas nécessairement la voie générale d'advection dans la couche limite décrit par les études de modélisation [12, 14, 15]. Aucune influence significative par les émissions européennes n'a été retrouvée dans la couche limite à travers notre jeu de données.

Les données regroupées au sein du cluster B (43 % ; Figure 2b) sont principalement associées à l'écoulement zonal dans la troposphère libre, avec très peu de sensibilité à des émissions de surface potentielles.

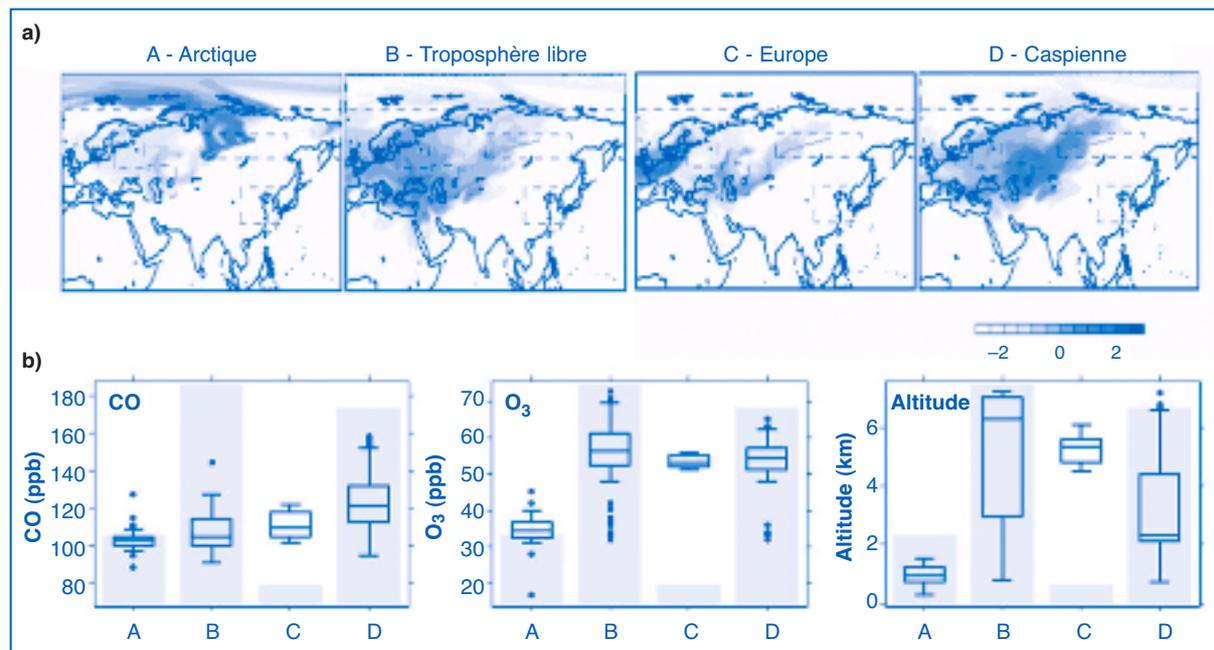


Figure 2.

a) SEP moyenne dans chaque cluster.

L'association des clusters à une région source se fait par l'analyse du poids géographique maximum du cluster (A : Arctique, B : troposphère libre, C : Europe et D : mer Caspienne), en échelle logarithmique (s).

b) Concentrations moyennes de CO et O₃, et altitude, associées à chaque cluster.

Les boîtes à moustache indiquent la médiane et l'intervalle interquartile.

Les barres en bleu clair indiquent la proportion relative de chaque cluster.

4. Discussion

Notre étude de cas illustre le potentiel de l'analyse en cluster des SEP pour déconvoluer les effets de mélange dans l'atmosphère sur les dépassements de concentration de polluants observés. Cela peut être appliqué à tout type d'observation pour étudier le transport à longue distance, avec des avantages méthodologiques sur diverses techniques existantes.

4.1. Comparaison des approches Lagrangienne et Eulérienne en modélisation du transport des polluants

Dans les études de relation source-récepteur pour le transport intercontinental, les simulations de traceurs marqués ("*tagged*") régionalement sont souvent utilisées [1, 3, 4, 12]. Ces traceurs marqués ont l'avantage de pouvoir rendre compte de la non-linéarité des réactions chimiques, ce qui est important pour l'O₃, produit en partie photochimiquement au cours du transport atmosphérique. Les études de suivi de traceurs marqués sont également en mesure de décrire l'impact intégré des sources à distance comme, par exemple, la moyenne saisonnière, ou comme le dépassement de certains seuils de qualité de l'air. Toutefois, ces simulations ont deux inconvénients majeurs que les modèles Lagrangiens peuvent surmonter.

Premièrement, la résolution limitée de ces simulations rend la comparaison avec les mesures *in situ* souvent difficile. Pour la plupart des gaz à l'état de trace, l'évaluation de l'accord entre les concentrations simulées et observées est délicate, et peut conduire à des interprétations biaisées. Par exemple, un bon accord du modèle avec les observations peut sembler satisfaisant, alors qu'en fait un léger biais dans le transport ou dans les sources pourrait refléter une grande erreur sur l'origine du traceur. En revanche, un MLDP peut être exécuté en temps inversé directement à partir d'une mesure ponctuelle et peut, en principe, résoudre des structures atmosphériques de toute taille. Les modèles lagrangiens sont capables de capter les caractéristiques présentes dans les ensembles de données de haute résolution temporelle comme les structures verticales fines et la redistribution frontale des gaz à l'état de trace, qui sont des observations récurrentes dans la plupart des mesures *in situ* continues.

Deuxièmement, les simulations eulériennes de traceurs marqués couplent étroitement transport et émissions à la distribution spatiale prédéfinie. Les incertitudes associées à ces émissions se propagent à l'attribution géographique de la région source pour le traceur concerné. Pour l'O₃, qui n'a pas d'émissions de surface, les simulations eulériennes ne peuvent être utilisées sans une bonne connaissance des sources de précurseurs et un ensemble complexe de réactions chimiques, alors que les simulations lagrangiennes inversées et une analyse en cluster peuvent attribuer la variabilité observée assez simplement à des régions ou à des processus cohé-

rents. Les simulations des MLDP sont totalement indépendantes de la distribution des sources car le modèle est exécuté sans aucune source d'information sur ces sources. Les MLDP établissent des relations source-récepteur plus objectives.

4.2. Avantages du clustering des SEP

Le clustering des SEP est utile pour identifier les sources (et les puits) là où l'amplitude et la répartition spatiale des sources ne sont pas bien connus. Dans notre étude de cas en Sibérie, il y a une grande incertitude sur la distribution et l'importance de la combustion de biomasse à ciel ouvert (feux agricoles ou feux de forêt) en raison d'une quantité limitée d'information disponible sur ce sujet. En conséquence les espèces secondaires comme l'ozone, produites de manière photochimique dans les panaches, sont difficiles à modéliser. Les émissions anthropiques ne sont pas bien connues. Notre méthode de classification sépare avantageusement le transport des émissions réelles.

Quand un grand nombre de mesures est collecté, la classification des données est nécessaire avant l'analyse. L'analyse en clusters est une méthode reconnue et efficace pour la classification des données. Elle est utilisée dans de nombreuses études pour le clustering de rétro-trajectoires depuis la première tentative faite par Moody et Galloway [16]. Notre méthode est dans la continuité de ces études, mais en utilisant des sorties de MLDP, qui (1) sont plus quantitatives que les positions d'une unique trajectoire et (2) incluent également une représentation de la turbulence et de la convection, que les rétro-trajectoires classiques ignorent. Soulignons que le regroupement se fait en fonction de la sensibilité aux émissions potentielles (SEP), et non sur la contribution des sources effectives ou sur des concentrations de traceur. Ainsi, la méthode maximise les différences entre les types de transport, chacun avec un impact régional différent.

4.3. Améliorations à la méthode de réduction de la dimension objective

Le clustering ne peut pas être appliqué à l'ensemble des SEP car la distribution géographique entière, élément de grille par élément de grille, représente un trop grand nombre de dimensions devant être traité par l'algorithme. Par conséquent, la dimensionnalité des SEP est réduite, ici, en faisant la moyenne du SEP sur certaines régions d'intérêt. L'utilisation de régions d'intérêt est l'une des limites de notre méthode. Une analyse en composantes principales (ACP) des SEP (qui sont des cartes 2D) pourrait constituer une réduction du nombre des dimensions véritablement objectives de la SPE. Nous avons tenté une réduction de la dimensionalité par ACP en utilisant les quatre premières composantes principales. Cela n'a pas été montré ici car le mouvement de l'avion induit, de loin, la plus grande variabilité des modes de l'ACP. Toutefois, pour les mesures fixes (observatoire au sol) cela s'avèrerait la solution la

plus objective pour l'identification des sources dans le contexte d'une distribution spatiale des sources inconnue.

5. Conclusions

Notre méthode de classification comble une lacune méthodologique, entre le clustering des rétro-trajectoires (qui ne sont pas assez quantitatives) et la sensibilité aux émissions potentielles (SEP) spatialement explicitée calculée par les MLDP (pour lesquelles aucun critère objectif de classification n'existait). La méthode s'est révélée être en mesure de déconvoluer le transport atmosphérique à partir des concentrations mesurées, et donc de pouvoir établir des relations source-récepteur au sein d'un large ensemble de données. Des applications plus quantitatives ne sont pas développées dans ce papier, mais sont réalisables et devraient être mises en œuvre prochainement. Il convient de noter également que cette méthode a un grand potentiel pour l'analyse des

grands ensembles de données, tel que le programme MOZAIC de mesures au sein d'avions de ligne, où une étude de simulations eulériennes taggées de grande envergure serait difficile voire impossible à appliquer et à interpréter.

Remerciements

Sabine Eckhardt du NILU a fourni des routines de lectures des sorties FLEXPART. Merci aux collègues des campagnes de terrain, dont Mikhail Arshinov, Boris Belan et de nombreux autres à l'Institut d'Optique Atmosphérique de Tomsk, en Russie. Merci à Bastien Sauvage, Jean-Pierre Cammas et d'autres au Laboratoire d'Aérodologie de Toulouse, pour leur intérêt envers cette méthode et plusieurs discussions constructives. Les campagnes sont soutenues financièrement par le CNRS, le CEA, le Ministère des affaires étrangères, l'ANR, ainsi que l'Académie des Sciences de Russie et la fondation russe RFBR.

References

- [1] Hemispheric Transport of Air Pollution (HTAP). Interim Report. United Nations Press, New York City, USA, 2007 : 165 p.
- [2] Cooper OR, Parrish DD, Stohl A *et al.* Increasing springtime ozone mixing ratios in the free troposphere over western North America. *Nature* 2010 ; 463 : 344-8.
- [3] Jacob DJ, Logan JA, Murti PP. Effect of rising Asian emissions on surface ozone in the United States. *Geophys Res Lett* 1999 ; 26 : 2175-8.
- [4] Fiore AM, Dentener FJ, Wild O *et al.* Multimodel estimates of intercontinental source-receptor relationships for ozone pollution. *J Geophys Res-Atmos* 2009 ; 114 : D04301, doi:10.1029/2008JD010816.
- [5] Pochanart P, Akimoto H, Kajii Y, Potemkin VM, Khodzher TV. Regional background ozone and carbon monoxide variations in remote Siberia/East Asia. *J Geophys Res-Atmos* 2003 ; 108(D1), doi:10.1029/2001JD001412.
- [6] Traub M, Fischer H, de Reus M *et al.* Chemical characteristics assigned to trajectory clusters during the MINOS campaign. *Atmos Chem Phys* 2003 ; 3 : 459-68.
- [7] Stohl A, Forster C, Frank A, Seibert P, Wotawa G. Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmos Chem Phys* 2005 ; 5 : 2461-74.
- [8] Seibert P, Frank A. Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode. *Atmos Chem Phys* 2004 ; 4 : 51-63.
- [9] Han YJ, Holsen TA, Hopke PK, Yi SM. Comparison between back-trajectory based modeling and Lagrangian backward dispersion modeling for locating sources of reactive gaseous mercury. *Environ Sci Technol* 2005 ; 39 (10) : 3887.
- [10] Wilks DS. Statistical methods in the atmospheric sciences. Academic Press, Amsterdam, Boston, 2006 : 627 p.
- [11] Paris JD, Stohl A, Ciais P *et al.* Source-receptor relationships for airborne measurements of CO₂, CO and O₃ in the troposphere above Siberia: A cluster-based approach. *Atmos Chem Phys* 2010 ; 10 : 1671-87.
- [12] Duncan BN, Bey I. A modeling study of the export pathways of pollution from Europe: Seasonal and inter-annual variations (1987-1997). *J Geophys Res-Atmos* 2004 ; 109 (D8).
- [13] Paris JD, Ciais P, Nédélec P *et al.* The YAK-AEROSIB transcontinental aircraft campaigns: New insights on the transport of CO₂, CO and O₃ across Siberia. *Tellus B* 2008 ; 60 (4) : 551-68.
- [14] Wild O, Pochanart P, Akimoto H. Trans-Eurasian transport of ozone and its precursors. *J Geophys Res-Atmos* 2004 ; 109 : D11302, doi:10.1029/2003JD004501.
- [15] Stohl A, Eckhardt S, Forster C, James P, Spichtinger N. On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport. *J Geophys Res-Atmos* 2002 ; 107 (D23) : 4684.
- [16] Moody JL, Galloway JN. Quantifying the relationship between atmospheric transport and the chemical composition of precipitation on Bermuda. *Tellus B* 1988 ; 40 (5) : 463-79.