

**ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES DE L'ENVIRONNEMENT
D'ILE DE France N° 129**

**DOCTORAL SCHOOL OF ENVIRONMENTAL SCIENCES
ILE DE France N° 129**

Proposition de sujet de thèse pour la rentrée 2024

Thesis proposition autumn 2024

Nom du Laboratoire d'accueil : LISA / IPSL

N° UMR : 7583

Nom du Directeur du laboratoire : Patrice Coll

Adresse complète du laboratoire :

Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques, Université Paris Est Créteil, CMC
61, avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil France

Nom du Directeur de thèse **HDR** :

Matthias Beekmann

Téléphone : +33 (0)1 82392096

Mail : beekmann@lisa.ipsl.fr

Nom du co-encadrant de thèse **non HDR** :

Vincent Michoud

Téléphone : 0182392050

Mail : michoud@lisa.ipsl.fr

• Titre de la thèse en Français :

Bilan de voies de formations de polluants secondaires en régime de mélange de précurseurs anthropiques et biogéniques: le cas de l'été 2022, proxy pour un climat futur plus chaud

• Titre de la thèse en Anglais :

Assessment of secondary pollutant formation pathways under mixing of anthropogenic and biogenic pollution mixing conditions: the case of summer 2022, proxy for a future hotter climate

• Résumé Sujet en Français (1 page maximum) :

L'état des connaissances sur les processus d'émissions et les mécanismes chimiques de formation et de dégradation des polluants ne permet pas de prédire, à l'heure actuelle, avec précision l'interaction entre polluants d'origine anthropiques et biogéniques, notamment, et leur dépendance aux conditions climatiques. La campagne ACROSS (*Atmospheric ChemistRy of the Suburban forest*), coordonnée par le LISA, a été déployée sur une multitude de sites à caractère urbain à rural en Ile-de-France en été 2022 ; elle a permis de récolter des observations sans précédent en Europe permettant d'étudier l'interaction des pollutions de type anthropiques et biogéniques. L'été 2022, ponctué par plusieurs vagues de chaleur, est considéré comme représentatif d'un climat futur plus chaud.

La thèse proposée a pour **objectif de dresser un bilan des voies de formation des polluants secondaires (aérosol organique secondaire, ozone)** par précurseurs (Composés Organiques Volatils d'origines

anthropiques et biogéniques) et par voie d'oxydation de ces COV (radicaux OH et NO₃, ozone), et ceci pour l'Ile-de-France et l'été 2022. Evaluer la contribution des émissions anthropiques et biogéniques, et leurs interactions, est un préalable pour mettre en place des stratégies de réduction d'émissions pour réduire la pollution de l'air. Les simulations de qualité de l'air seront effectuées avec le modèle de chimie et transport CHIMERE développé au LMD, au LISA et à l'INERIS (<https://www.lmd.fr/chimere/>, Menut et al., 2021) et qui a été adapté pour inclure des effets de la canopée de forêt (Cholakian et al. 2023). Ces simulations seront confrontées à chaque étape avec les observations très détaillées issues de la campagne ACROSS.

Une première étape vise à évaluer les émissions biogéniques simulées avec le modèle MEGAN (Guenther et al., 2012) des COV à partir d'observation de l'isoprène et des terpènes obtenues sur le site forestier de Rambouillet, surtout pour les conditions extrêmes de température et de sécheresse rencontrées pour une partie de l'été 2022.

L'analyse du bilan des radicaux et sa représentation correcte dans les simulations requerra une attention particulière et profitera d'une panoplie des mesures très détaillées - sans précédent en Europe - obtenues lors de la campagne, à savoir les concentrations des radicaux OH et de NO₃ ainsi que des réactivités intégrées par rapport à ces radicaux dans la canopée forestière et/ ou au-dessus. Cette étape est cruciale, car ces radicaux représentent un des principaux vecteurs de couplage entre composés d'origines anthropiques et biogéniques.

Ces observations et simulations permettront de déterminer le taux instantané de formation des composés secondaires, détaillé par précurseur et voie d'oxydation, en fonction des conditions météorologiques et de type de pollution. Ces analyses seront appliquées aux panaches de pollution exportées de l'agglomération Parisienne et qui ont pu être suivies par mesures aéroportées ou satellitaires. Différents mécanismes chimiques et de formation d'aérosol organique pourront être testés.

Enfin la modélisation permettra d'intégrer les résultats obtenus précédemment à l'échelle régionale (moitié Nord de la France). L'utilisation des méthodes d'attribution des sources implémentées dans CHIMERE permettra de quantifier la contribution de différents précurseurs aux concentrations des polluants secondaires. Les scénarios croisés de modifications des émissions anthropiques et biogéniques permettront de déceler des effets non-linéaires d'interaction entre ces types d'émissions, dont le mécanisme sera analysé.

• **Résumé Sujet en Anglais (1 page maximum) :**

Our knowledge of emission processes and of the chemical mechanisms by which pollutants are formed and degraded does not yet allow us to accurately predict the interaction between pollutants of anthropogenic and biogenic origin, and in particular the dependence of this interaction on climatic conditions. The ACROSS (Atmospheric ChemistRy of the Suburban foreSt) campaign, coordinated by LISA, was deployed at a multitude of urban to rural sites in the Ile-de-France region during summer 2022, gathering observations of unprecedented detail in Europe on the interaction of anthropogenic and biogenic pollutants. Summer of 2022, punctuated by several heat waves, is considered as representative of a warmer future climate.

The aim of the proposed thesis is to assess the formation pathways of secondary pollutants (secondary organic aerosol, ozone) by volatile organic compound precursors (VOCs of anthropogenic and biogenic origin) and by oxidation pathways of these VOCs (OH and NO₃ radicals, ozone), for the Ile-de-France region and the summer of 2022. Assessing the contribution of anthropogenic and biogenic emissions, and their interactions, is a prerequisite for implementing emission reduction strategies to reduce air pollution.

Air quality simulations will be carried out using the CHIMERE chemistry and transport model developed at LMD, LISA and INERIS (<https://www.lmd.fr/chimere/>, Menut et al., 2021) and adapted to include forest canopy effects (Cholakian et al. 2023). At each stage, these simulations will be compared with the highly detailed observations from the ACROSS campaign.

The first stage of the thesis aims to evaluate biogenic emissions of VOCs simulated with the MEGAN model (Guenther et al., 2012), based on observations of isoprene and terpenes obtained at the Rambouillet forest site, especially for the extreme temperature and drought conditions encountered for part of summer 2022.

Analysis of the radical balance and its correct representation in the simulations will require particular attention, and will benefit from a panoply of highly detailed measurements - unprecedented in Europe - obtained during the campaign, namely OH and NO₃ radical concentrations as well as integrated reactivities with respect to these radicals in the forest canopy and/or above. This step is crucial, as these radicals represent one of the main vectors of coupling between compounds of anthropogenic and biogenic origin.

These observations and simulations will enable us to determine the instantaneous rate of formation of secondary compounds, broken down by precursor and oxidation pathway, as a function of meteorological conditions and pollution type. These analyses will be extended to pollution plumes exported from the Paris conurbation, which have been monitored by airborne or satellite measurements. Different chemical gas-phase mechanisms and organic aerosol formation schemes will be tested.

Finally, modelling will allow integrating the results obtained above on a regional scale (northern half of France). Source attribution methods implemented in CHIMERE will enable to determine the contribution of different precursors to secondary pollutant concentrations. Cross-scenarios of changes in anthropogenic and biogenic emissions will reveal non-linear interaction effects between these types of emissions; the mechanism of such interactions will be analyzed.

Références :

- Cholakian, A.; Beekmann, M.; Siour, G.; Coll, I.; Cirtog, M.; Ormeño, E.; Flaud, P.M.; Perraudin, E.; Villenave, E.: Simulation of organic aerosol, its precursors, and related oxidants in the Landes pine forest in southwestern France: accounting for domain-specific land use and physical conditions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 23(6), pp.3679-3706, <https://doi.org/10.5194/acp-23-3679-2023>, 2023.
- Guenther, A. B., Jiang, X., Heald, C. L., Sakulyanontvittaya, T., Duhl, T., Emmons, L. K., and Wang, X.: The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): an extended and updated framework for modeling biogenic emissions, *Geosci. Model Dev.*, 5, 1471–1492, <https://doi.org/10.5194/gmd-5-1471-2012>, 2012.
- Menuet, L., Bessagnet, B., Briant, R., Cholakian, A., Couvidat, F., Mailler, S., Pennel, R., Siour, G., Tuccella, P., Turquety, S., and Valari, M.: The CHIMERE v2020r1 online chemistry-transport model, *Geosci. Model Dev.*, 14, 6781–6811, <https://doi.org/10.5194/gmd-14-6781-2021>, 2021.