

Sujet de thèse

Rôle des radicaux HOx dans la chimie urbaine: lien entre polluants émergents et production d'ozone et de particules ultra fines (PUF)

Résumé

Le projet de thèse est centré sur des mesures long terme caractérisant la capacité oxydante en phase gazeuse de l'atmosphère. Ces mesures seront réalisées grâce à un instrument reposant sur la technique FAGE (Fluorescence Assay by Gas Expansion) sensible et sélective, développée au PC2A. Ce type d'instrument, développé et utilisé par environ 10 groupes dans le monde, permet la caractérisation fine du cycle d'oxydation au coeur de la formation de l'ozone troposphérique et des aérosols organiques secondaires, source de particules ultra fines (PUF), par la quantification des radicaux OH, HO₂ et RO₂ mais également la réactivité de OH (l'inverse de son temps de vie, représentative de la somme des pertes par réaction chimique). La mesure de ces paramètres au fil des saisons sur la plateforme instrumentée ATOLL (ATmospheric Observatory of LiLle) de l'université de Lille, labellisée dans le cadre du réseau ACTRIS-FR (composante française de l'infrastructure européenne dédiée à l'observation et l'exploration des aérosols, des nuages et des gaz réactifs et de leurs interactions) permettra de renforcer les mesures sur la phase gazeuse. Ces travaux entrent en adéquation avec un projet ADEME AQACIA : projet ECOZONE en partenariat avec l'IMT Nord Europe, dans lequel des mesures de composés organiques volatils (COV) et d'autres gaz seront également réalisées afin d'identifier les déterminants de la formation d'ozone en environnement urbain et d'identifier le rôle potentiel de polluants dits «émergents» (liés aux bâtiments, aux activités humaines, ...) dont le poids dans les émissions est en constante augmentation en milieu urbain. Ce projet s'inscrit dans le contexte du changement climatique susceptible d'augmenter la fréquence de vagues de chaleur et de conditions anticycloniques stables favorables aux pics d'ozone, déjà nombreux dans la métropole lilloise. L'ozone étant à la fois néfaste comme gaz à effet de serre et pour les végétaux mais également irritant pour le système respiratoire et les PUF ayant des effets sanitaires négatifs et un rôle encore mal défini sur le climat, le suivi long terme de la chimie radicalaire s'avère particulièrement innovant et pertinent car il permet d'identifier la variabilité saisonnière et d'étudier la récurrence de différents types d'évènements (pic d'ozone, formation de PUF). Il n'existe à l'heure actuelle qu'une seule station de mesure long terme de ce type mais elle est en atmosphère rurale (en Allemagne, à Hohenpeißenberg). Une double approche expérimentale et de modélisation permettra d'identifier les processus majoritaires et les espèces chimiques clés responsables de la formation d'ozone et de particules fines.

Encadrement de la thèse

Direction: Laure Pillier (CR CNRS, HDR, PC2A) – laure.pillier@univ-lille.fr

Thesis topic

Role of HO_x radicals in urban chemistry: link between emerging pollutants and the production of ozone and ultrafine particles (UFPs)

Abstract

The thesis project focuses on long-term measurements characterising the oxidising capacity of the atmosphere in the gas phase. These measurements will be carried out using an instrument based on the sensitive and selective FAGE (Fluorescence Assay by Gas Expansion) technique, developed at PC2A. This type of instrument, developed and used by around 10 groups worldwide, enables detailed characterisation of the oxidation cycle at the heart of tropospheric ozone and secondary organic aerosol formation, a source of ultrafine particles (UFPs), by quantifying OH, HO₂ and RO₂ radicals, as well as the reactivity of OH (the inverse of its lifetime, representative of the sum of losses due to chemical reactions). Measuring these parameters over the seasons on the ATOLL (ATmospheric Observatory of Lille) instrumented platform at the University of Lille, certified as part of the ACTRIS-FR network (the French part of the European infrastructure dedicated to the observation and exploration of aerosols, clouds and reactive gases and their interactions), will strengthen measurements on the gas phase. This work is in line with an ADEME AQACIA project: the ECOZONE project in partnership with IMT Nord Europe, in which measurements of volatile organic compounds (VOCs) and other gases will also be carried out in order to identify the determinants of ozone formation in urban environments and to identify the potential role of so-called ‘emerging’ pollutants (linked to buildings, human activities, etc.), whose share of emissions is constantly increasing in urban areas. This project is part of the context of climate change, which is likely to increase the frequency of heat waves and stable anticyclonic conditions conducive to ozone peaks, which are already numerous in the Lille metropolitan area. Ozone is harmful both as a greenhouse gas and to plants, but it also irritates the respiratory system. PUFs have negative health effects and a still poorly defined role in the climate, long-term monitoring of radical chemistry is particularly innovative and relevant as it allows seasonal variability to be identified and the recurrence of different types of events (ozone peaks, PUF formation) to be studied. There is currently only one long-term measuring station of this type, but it is located in a rural atmosphere (in Hohenpeißenberg, Germany). A dual experimental and modelling approach will identify the main processes and key chemical species responsible for the formation of ozone and fine particles.

Thesis supervision

Supervisor: Laure Pillier (CR CNRS, HDR, PC2A) – laure.pillier@univ-lille.fr