

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 : A0130107232

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) : 2 620 kheures cœurs initialement demandées

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 2 620 kheures cœurs initialement attribuées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 1 600 kheures cœurs initialement demandées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 1 600 kheures cœurs initialement attribuées

Heures complémentaires

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

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

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

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

Consommation

TGCC Irene Skylake : 2,340,353.69 heures le 29/08/2023

TGCC Irene Rome : 1,012,277.11 heures le 29/08/2023

Le projet déposé en 2022 portait sur 5 sous projets :

- Etude de la pollution aux échelles continentales par synergie modélisation/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 – impact de l'aérosol sur le bilan radiatif

1) Étude 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. Nous présentons ci-dessous le bilan de l'année pour ces différentes activités pour lesquelles nous avons utilisé les ressources du TGCC.

a) Tendances d'ozone avec les instruments IASI

Nous développons au LISA des algorithmes de restitution des profils verticaux de concentrations d'ozone à partir des observations satellitaires issues des sondeurs infrarouges IASI à bord des satellites européens météorologiques Metop. 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. La phase active de ce programme international a débuté en 2022. Une Community Special Issue est ouverte depuis le printemps jusqu'au printemps 2024, dans les journaux Copernicus, pour collecter les contributions de l'ensemble de la communauté. 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 minimum jusqu'à 2022, voire 2023. Au cours de l'année écoulée, nous avons complété l'archive déjà processée l'année précédente pour l'étendre aux années 2021 et 2022 sur les trois régions. Nous disposons ainsi de des données IASI sur les périodes suivantes : 2008-2020 pour IASI-A, 2013-2022 pour IASI-B et 2019-2022 pour IASI-C. Plusieurs études et contributions sont en cours et devraient donner lieu à des publications. Une étude sur les tendances et le cycle saisonnier de l'ozone aux stations de mesure d'altitude européennes et américaines, intégrant nos données IASI, a été soumis fin juillet (Putero et al., 2023). La Figure 1.1 montre l'impact de la pandémie de COVID-19 sur le cycle saisonnier de l'ozone déterminé à partir des observations IASI.

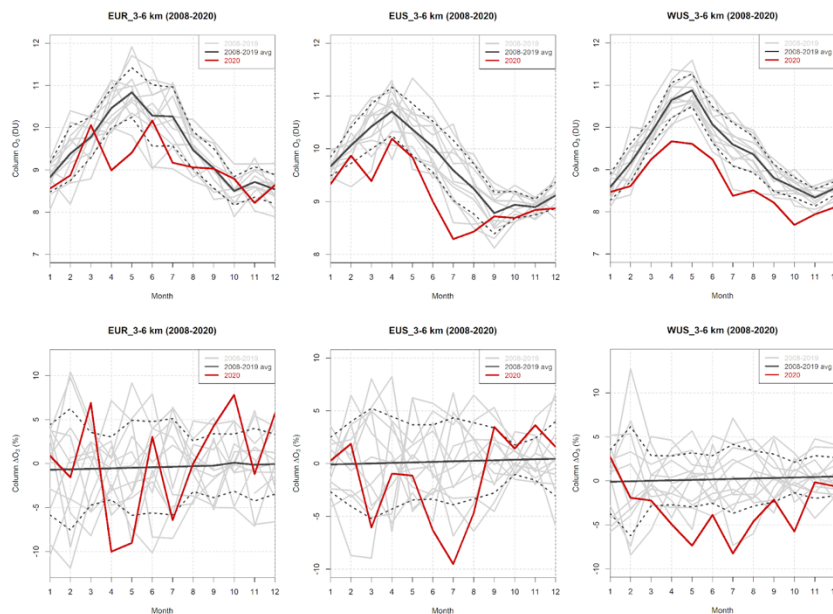


Figure 1.1 : Variabilité annuelle (haut) et anomalies (bas) de la colonne d'ozone mensuelle 3-6 km obtenue avec les données IASI dans les régions européenne (gauche), est (milieu) et ouest (droite) américaine autour des stations d'altitude. Les courbes en gris représente chaque année entre 2008 et 2019, la courbe noire la climatologie 2008-2019 avec la déviation standard associée en pointillée et la courbe rouge l'année 2020.

Une étude d'intercomparaison des données des trois instruments IASI est en cours et les résultats seront publiés dans la Community Special Issue du TOAR d'ici au printemps 2024. Les premiers résultats montrent un très bon accord entre les trois instruments avec des biais moyens inférieurs au pourcent dans la troposphère, ce qui permet de pouvoir utiliser les données pour étudier les tendances depuis 2008 en raccordant les différentes séries. En parallèle, nous menons un exercice de validation et d'intercomparaison des produits O₃ IASI français dans le cadre d'un projet soutenu par le CNES qui conduira également à une publication.

- b) 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 PoEASIA, ARGONAUT et LOCKAIR), soit des approches simplifiées d'équilibre de masse par exemple pour les émissions agricoles d'ammoniac (projet AMPAIR notamment). Le projet AMPAIR s'étant fini en 2021, cette dernière activité est en pause. Nous présentons dans la suite les avancées de l'année 2022-2023 sur l'inversion variationnelle des émissions de NO_x et de COVs (composés organiques volatils).

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. Cet outil étant toujours en développement, différentes versions ont été testées au cours des deux dernières années. La première version du système a été installée sur les machines du TGCC en novembre 2020. Une version consolidée du système a été installée fin 2021 et a conduit à une publication sur les émissions de NO_x en Chine (Savas et al., 2023) dans le cadre de la thèse de Dilek Savas soutenue en juin 2023. Au cours de l'année 2022-2023, nous nous sommes concentrés sur l'application du système pour l'inversion des émissions de NO_x en Europe. Ces travaux se font dans le cadre du projet ANR ARGONAUT et des projets liés CNES/TOSCA ARGOS et 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 (CO₂) en s'appuyant sur l'inversion atmosphérique et la nouvelle génération de satellites d'observation de la composition atmosphérique (Sentinel-5P/TROPOMI notamment). L'instrument européen TROPOMI/Sentinel-5P fournit (entre autres) des colonnes troposphériques de NO₂ à haute résolution (3,5 x 5,5 km²). Notre objectif avec l'utilisation des données TROPOMI est de réaliser des inversions de NO_x et de COVs à 10 km sur la France et moyenne résolution (50km) sur l'Europe. Nous avons rencontré de nombreuses difficultés à la fois avec les données TROPOMI qui étaient fortement biaisées et avec le système d'inversion qui ne convergeait pas. Avec la distribution d'une nouvelle version des produits satellitaires TROPOMI et l'ajout d'une fonctionnalité dans le CIF, les problèmes de convergence ont été résolus en décembre 2022. Le premier trimestre 2023 a été consacré à des tests pour évaluer les coûts de calcul et faire une demande d'heures complémentaires et être capables de passer en mode production. A noter que ce passage en mode production a été ralenti par le changement de système d'exploitation sur Irene ainsi que différentes maintenances qui nécessitent à chaque fois des interactions avec la hotline pour résoudre les incompatibilités résultantes. Actuellement, les inversions des émissions de NO_x pour la période du premier confinement et une année de référence (2019) sont en cours de production sur l'Europe, devraient suivre les inversions sur le domaine de

la France à haute résolution. Les premiers tests réalisés dans le cadre de la thèse de Dilek Savas ont montré que, sur la première semaine d'avril 2020, des diminutions d'émission de l'ordre de 30 à 40% étaient observées en 2019 et 2020 sur le nord de l'Europe (Pays-Bas, Allemagne, Belgique). Les diminutions sont plus faibles au sud de l'Europe à cause d'un manque d'échantillonnage des données satellites pendant cette période (Savas, 2023).

Un deuxième objectif du projet ANR ARGONAUT est d'utiliser les données TROPOMI de HCHO pour contraindre les émissions de COVs. Compte tenu de la sensibilité des données et des sources majoritaires, on s'attend à être capable de contraindre les émissions biogéniques en été. Un des challenges du projet est de tester si on arrive à contraindre séparément les émissions biogéniques et anthropiques. Cette activité a débuté à la fin du printemps 2023. Les premiers travaux ont consisté à prendre en main les données de TROPOMI et à faire des premières comparaisons entre les données et les simulations directes du modèle CHIMERE. La figure 1.2 montre la comparaison des colonnes de HCHO pour une journée en août 2019.

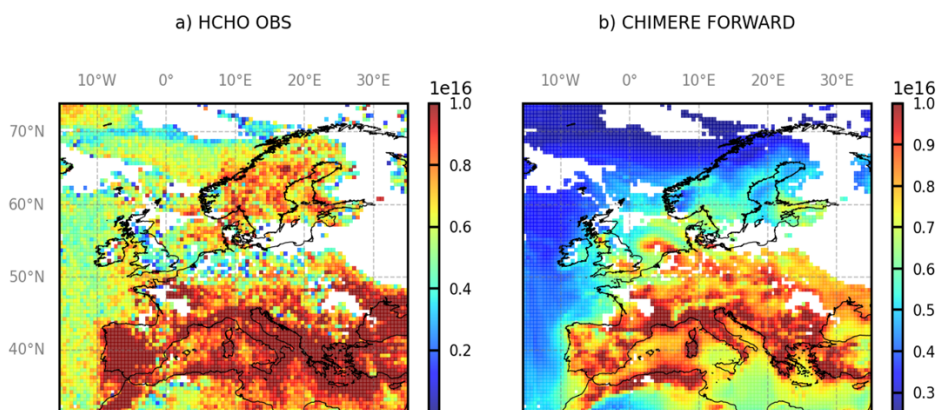


Figure 1.2 : Comparaison des colonnes de HCHO (molecule/cm²) observées par TROPOMI (gauche) et simulées par CHIMERE sur l'Europe le 1^{er} août 2019.

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 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 sur une seule année.

Le modèle CHIMERE a été utilisé sur un domaine européen centré sur la France avec une résolution horizontale de 9 x 9 km² afin de modéliser le potentiel oxydant sur les années 2013 et 2014. Les performances du modèle pour simuler les concentrations massiques de PM₁₀ (particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à 10 µm) et leur spéciation chimique (nitrate, sulfate, ammonium, carbone élémentaire, carbone suie ...) ont été évaluées en utilisant respectivement 350 et 13 stations françaises. Les mesures de PM₁₀ sont mises à disposition à une fréquence 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 réalisée. Cette méthode permet de suivre l'origine des polluants en fonction de leurs sources (Industrie, transport, agriculture, traitements des déchets ...). Les 3 différentes méthodes de modélisation du PO s'appuient sur cette capacité à suivre la contribution de chaque source.

La première méthode, dite « sources étendues », 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 par modèle-récepteurs Positive Source Factorization (PMF). On doit aussi noter que la mesure du PO s'appuie sur plusieurs tests acellulaires (Acide Ascorbique, AA ; Dithiothreitol, DTT, ...). 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 reste probablement des améliorations à faire sur la modélisation de certaines sources. Mais nous avons pu alors attribuer les PO intrinsèques, i.e normalisés par la masse de l'échantillon collecté, obtenus par les observations aux sources PMF modélisées. La modélisation du potentiel oxydant évaluée sur 8 stations françaises est plutôt correcte hormis sur les sites méditerranéens, complexes à modéliser du fait de la forte densité de population, l'orographie et la dynamique particulière de ces sites (Brises de mer voire brises de vallées).

L'équation ci-dessous indique le principe général de la modélisation des PO :

$$PO^v = \sum_{sources} (PO^i * C)$$

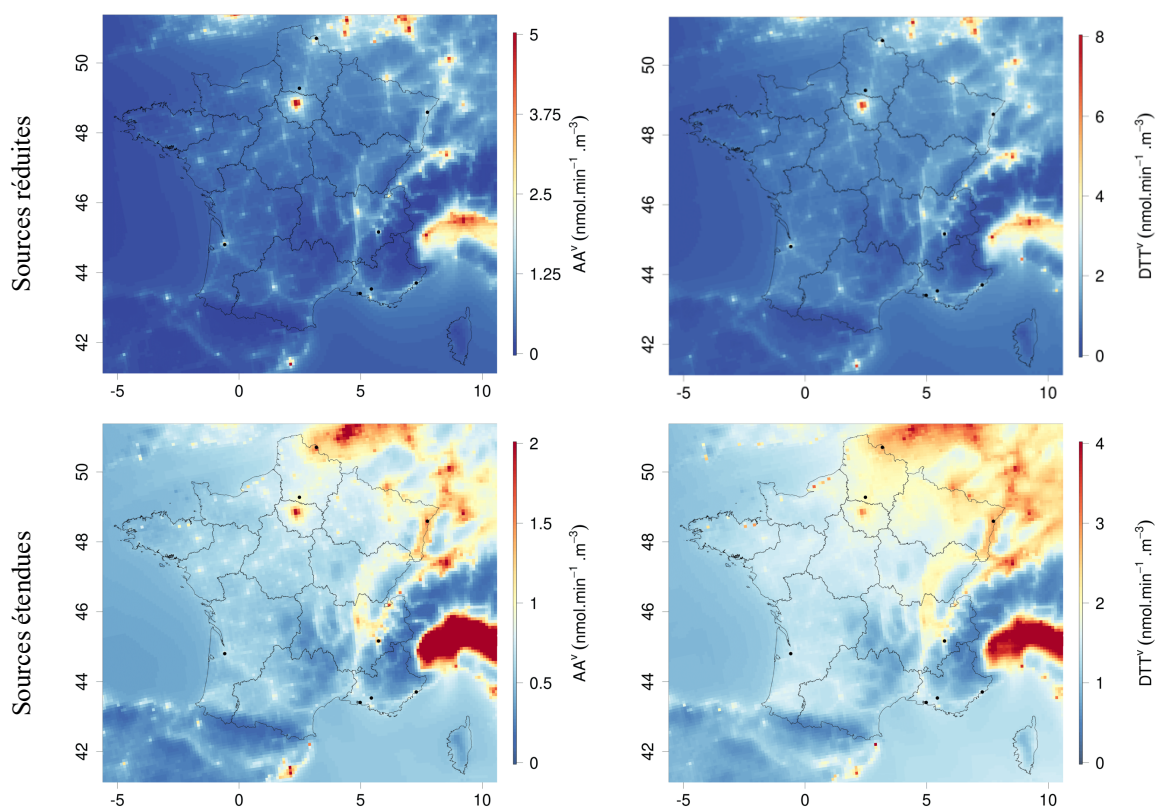
PO^v représente le PO volumique qui est désigné sous la dénomination PO dans le texte et qui est exprimé en $nmol\ min^{-1}\ m^{-3}$, PO^i représente le PO intrinsèque exprimé en $nmol\ min^{-1}\ m^{-3}$ qui est déterminé par les PMF; C désigne les concentrations simulées par CHIMERE pour chacune des sources PMF.

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 minimisé (au sens des moindres carrés) la différence entre PO observés et simulés pour obtenir les PO intrinsèques qui sont les paramètres de la régression. Les résultats se sont avérés être satisfaisants (PO intrinsèques semblables aux POⁱ des sources PMF et scores PO^v proches critères d'objectif) et plus proche des observations.

Enfin, la dernière méthode dite « sources réduites » 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 **Error! Reference source not found.** représente les valeurs moyennes des PO simulés sur la France (pour la méthode de l'acide ascorbique, AA) pour l'année 2013 et 2014 à l'aide des méthodes de sources étendues et réduites. Les résultats des deux méthodes sont assez similaires 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 sources réduites.

Figure 3.1 : Modélisation du potentiel oxydant des PM₁₀ à l'Acide Ascorbique (à gauche) et au dithiothréitol (à droite) avec la méthode de modélisation des sources PMF (en bas), dite méthode « sources étendues » et avec la méthode publiée, dite « sources réduites » reproduite (en haut) par le modèle CHIMERE à 9 x 9 km² de résolution horizontale sur les années 2013 et 2014.

Ce travail a été valorisé par une présentation orale à la conférence ITM à Barcelone en octobre 2021 et en Avril 2023 à la conférence EGU à Vienne. Par ailleurs un article sur ce sujet est en cours de rédaction (Vida et al, en cours de rédaction).

En parallèle, nous avons implanté dans le modèle CHIMERE la source d'aérosol biogénique primaire qui est une source importante au vu des fortes concentrations observées notamment en été (quelques $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) et son fort potentiel oxydant intrinsèque. Il s'agit de particules primaires biogéniques notamment des spores libérées par les champignons présents sur la végétation (Samaké et al., 2017, 2019a, 2019b). Des paramétrisations existent pour représenter cette sources (Heald & Spracklen, 2009 ; Sesartic & Dallafior, 2011 ; Hummel et al., 2015 ; Janssen et al., 2021). Durant cette année nous avons simulé dans CHIMERE ces émissions de spores en utilisant l'équation la paramétrisation de Heald & Spracklen (2009). Nous avons également engagé un gros travail d'évaluation des simulations (sur deux années) en utilisant la base de données françaises acquises par l'IGE (Institut des Géosciences de l'environnement) coté observations. Nous avons pu ainsi constater que la paramétrisation basée notamment sur le LAI qui est un indicateur de la densité de la végétation notamment mesuré par l'instrument MODIS permet de bien représenter ces spores au Nord de la France mais qu'elle fonctionne moins bien sur les zones côtières du sud. Ces résultats originaux sont en cours de valorisation avec la préparation d'une publication.

3.2 Modélisation déterministe du potentiel oxydant

Une autre approche est possible pour essayer de déterminer le potentiel oxydant des aérosols. Un modèle explicite de chimie pulmonaire (Lelieveld et al, 2021) permet de modéliser la production des espèces réactives de l'oxygène (ROS) à partir des particules $\text{PM}_{2.5}$ présente dans les voies respiratoires et leur composition. La production de ROS peut être associée à la consommation d'antioxydants dans le fluide épithélial pulmonaire, donc au Potentiel Oxydant (PO). Les principaux composés régissant cette production de ROS sont trois métaux : Fe, Cu et Mn. On s'intéresse donc à la modélisation atmosphérique de ces trois métaux, pour pouvoir ensuite construire une méthode de modélisation du PO.

Lors de l'année précédente, les inventaires d'émissions de métaux ont été retravaillés pour rendre les méthodes de calculs et les quantités de métaux émises plus cohérentes entre les différents pays européens. Notamment, la méthode qui permettait de générer des inventaires pour les pays ne déclarant pas d'émissions de cuivre a été revue pour obtenir des quantités d'émissions plus vraisemblables. Également, une base de données de mesures de Cu, Fe et Mn de plus d'une centaine de stations entre 1990 et 2023 a été collectée, en contactant des collègues, des organismes ou en téléchargeant des bases de données en ligne. L'analyse détaillée de ces données a permis d'améliorer notre compréhension du comportement de ces trois métaux de l'atmosphère, ainsi que de commencer à construire une méthode qui permettra de calibrer les émissions totales de fer et de manganèse, pour qu'elles puissent mieux expliquer les observations.

Une simulation à plus basse résolution ($45 \times 45 \text{ km}^2$) a été réalisée sur les années 2013 et 2014 avec le modèle CHIMERE v2020r3 (Menut et al., 2021). Celle-ci a permis de mettre en évidence le fait que les inventaires actuels ne permettent pas de

représenter le bon ordre de grandeur de fer et de manganèse dans l'atmosphère, et qu'un travail devra être fait avec les observations pour construire un inventaire corrigé. Les résultats ont également pu être comparés avec la base de données de mesure collectée.

La Figure 3.2 montre la moyenne des concentrations de fer, de cuivre et de manganèse pour les années 2013 et 2014. Elle a permis d'adresser plusieurs incohérences venant des émissions de certains pays (notamment Suisse, Autriche, Bosnie, Albanie). La Figure 3.3, quant à elle, montre que même avec une résolution grossière il y a une corrélation entre simulations et observations qui peut être bonne pour certaines stations, quels que soient les métaux, alors qu'il y a bien une sous-estimation générale du fer et du manganèse.

Ces travaux ont notamment pu être valorisés par une présentation orale à l'EGU de Vienne, en avril 2023. Un article concernant le calcul des inventaires de cuivre, de fer et de manganèse est également en cours d'écriture.

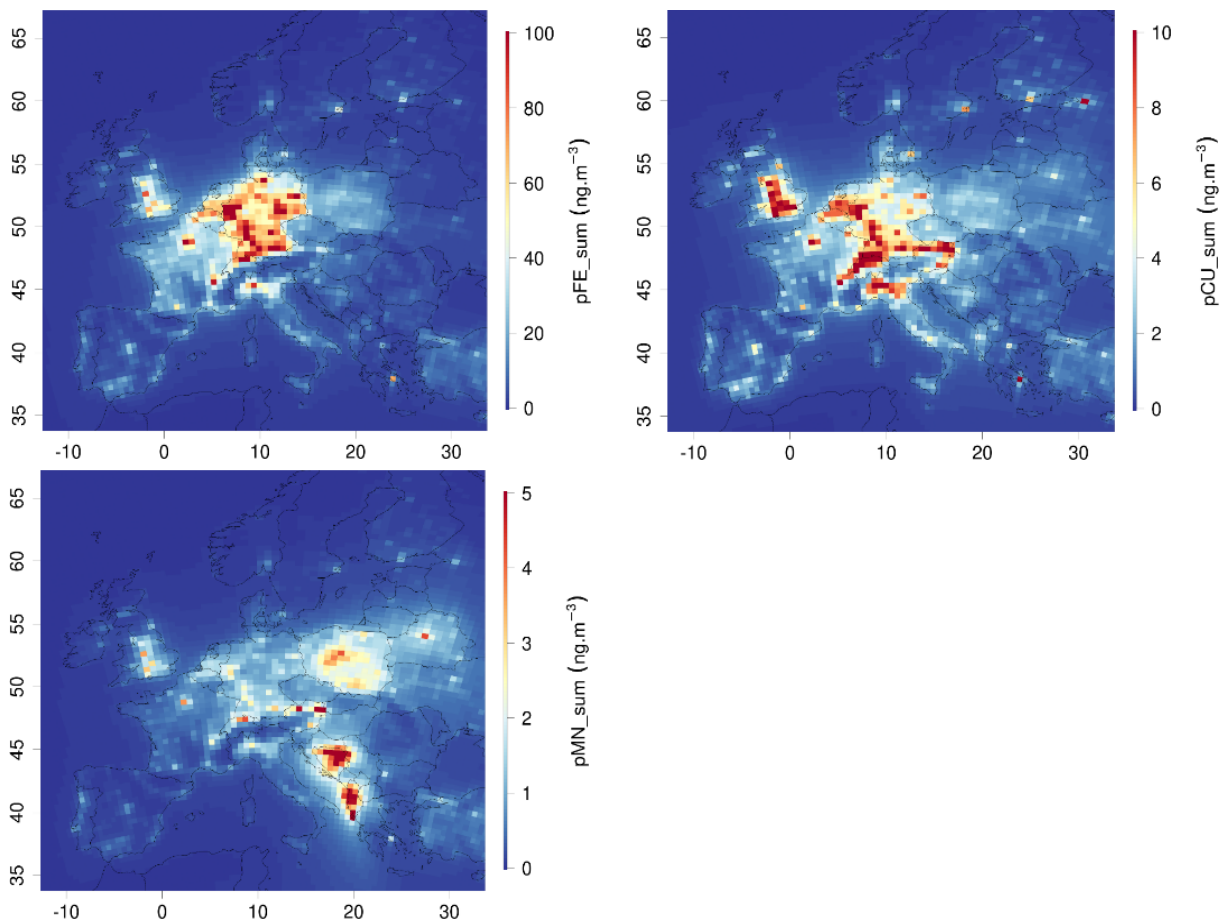


Figure 3.2 : Modélisation du fer (en haut à gauche), du cuivre (en haut à droite) et du manganèse (en bas) des PM10, moyennés sur les années 2013 et 2014, avec le modèle CHIMERE à une résolution de 45 x 45 km.

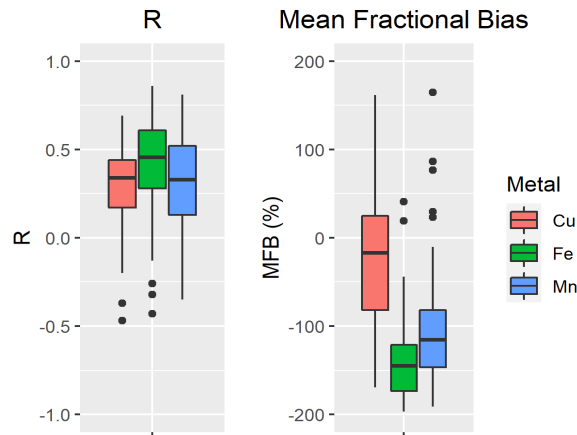


Figure 3.3 : Résultats statistiques de la simulation : corrélation (gauche) et biais relatif normalisé (droite).

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

1. Project Context.

The levels of air pollution in eastern African cities have risen to levels of concern for public health. In the 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 implemented. The findings from short-term monitoring campaigns conducted occasionally in these cities bear compelling evidence of severe deterioration in air quality and point to traffic emissions and the use of biofuels as important sources of local air pollution. Biomass burning which generally happens over the central African belt during dry seasons considerably impact on regional air quality especially around Kigali and Kampala. Therefore, enhancement in $PM_{2.5}$ concentration levels tend to occur in dry seasons due to regional transport of pollution, but also due to less wet removal of PM.

The current study involves a three-year (2020 January to 2022 December) measurement campaign in Nairobi which collocated low-cost $PM_{2.5}$ sensors with a reference-grade instrument for calibration after which the sensors were deployed across various locations to monitor the concentrations. $PM_{2.5}$ measurement data is also available in Kampala and Kigali, the data provides an opportunity to evaluate the model and also gain air quality insights in these cities. In addition, the low-cost devices also provided NO_2 measurements, but unfortunately, these measurements could not be calibrated due to lack of a reference instrument. For the first time, we intend combining synergy of ground measurements, satellites, and modeling to advance the knowledge of air quality and examine scenarios that can inform proper air quality management in the study cities.

The modeling work in this research uses CHIMERE (<https://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>), a multi-scale chemistry-transport model

(CTM) that has been adequately developed for urban-scale air quality applications (Menuet et al., 2013). Global anthropogenic emission datasets like those provided by CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service) (Granier et al., 2019) and EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research) (Crippa et al., 2018) inventories are used for modeling air quality in the sub-Saharan Africa region since they are better developed compared to the regional inventories. The datasets, however, lack sufficient robustness to accurately characterize the regional-specific emission sources which introduces uncertainties in CTM models. Although earlier studies from these cities lay good foundation for research, the studies could not adequately evaluate air quality spatial-temporal characteristics, speciation, source contribution, regional transport, and evaluation of potential mitigation pathways due to limited data.

2. Methodology and Preliminary Results

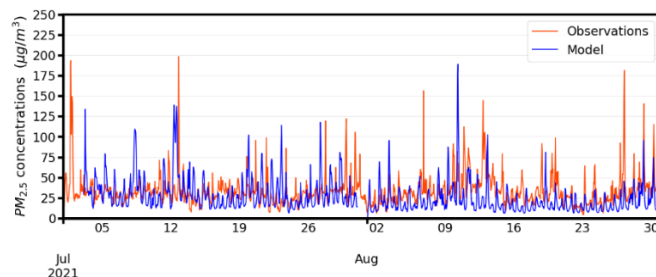
CHIMERE simulation is set to be run for a similar duration (year 2021) during which the ground measurements are available in Nairobi, Kampala, and Kigali. The simulation uses coarse, intermediate and nested model domains with nesting ratios of 1:5:3 and horizontal grid resolutions of 30 km², 6 km², and 2 km² respectively. The coarse model domain has 147 x 104 horizontal grid-cells which not only covers the eastern Africa but also extends to the entire central African belt which is important to regional air quality due to seasonal wild fires. The intermediate model domain is set over Nairobi, Kampala, and Kigali and has 221 x 156 horizontal grid cells. The cities are then nested separately within the intermediate domain. Each nested domain has 166 x 118 grid cells of 2 km² horizontal resolution, while the model uses 20 vertical layers. The anthropogenic (CAMsv4.2) and fire (GFASv1.3 (Kaiser et al., 2012)) emission datasets are derived from the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) which have resolutions of 0.1 x 0.1 degrees. CHIMERE uses the melchior complete chemical mechanism (Lattuati, 1997) which describes more than 300 reactions of 80 gaseous species. The formation of secondary organic aerosols (SOA) from primary organic aerosols (POA) involves both organic carbon (OC) and black carbon (BC) while its formation from volatile organic compounds (VOCs) follows single-step oxidation mechanism. The boundary conditions come from the CAMS global model, meteorological forcing is then provided by the Weather Research and Forecasting (WRF) model (Skamarock et al., 2005) through online coupling with CHIMERE.

The mean bias error MBE and Pearson correlation (R) were calculated to evaluate the model performance. The chemical speciation of PM_{2.5} is directly calculated in the model while variations in temporal and spatial characteristics are analyzed from the model output. The PSAT tool integrated in CHIMERE will be used for assessment of source contribution to the modelled PM_{2.5}. We also aim to test various emission scenarios to determine possible mitigation measures that can be used for abatement of air pollution. Here, two months (July-August 2021) results of modeled PM_{2.5} are presented for traffic, urban background and sub-urban sites in Nairobi corresponding

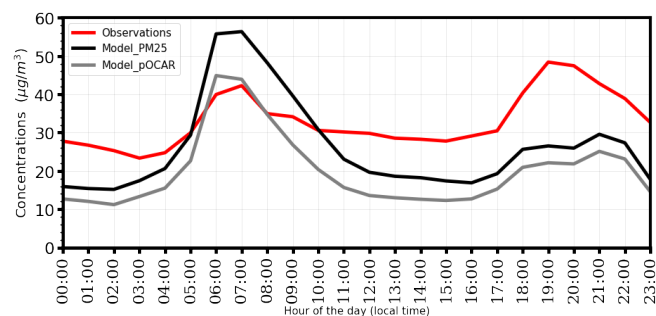
to the first half of duration when ground measurements were available at seven distinct locations (urban background/ residential/ traffic /suburban).

The MBE score for the traffic site was $-7.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ while both urban background and sub-urban sites had similar MBE scores of $-3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$. The model demonstrated only weak but positive correlation ($r = 0.20\sim 0.25$). The model daily averaged $\text{PM}_{2.5}$ concentrations was highest at the traffic site ($30 \mu\text{g}/\text{m}^3$) and the lowest ($21 \mu\text{g}/\text{m}^3$) at suburban site, corresponding to an underestimation by 21% and 13% respectively with respect to measurements. At traffic sites, the $\text{PM}_{2.5}$ diurnal profiles showed morning and evening peaks which mimicked the daily morning and evening traffic cycles. The model, however, overestimated the morning peak concentrations by almost a factor of 2 while a significant underestimation occurred for the rest of the day. An interesting result of simulations is the chemical composition of $\text{PM}_{2.5}$: approximately 90% of simulated $\text{PM}_{2.5}$ is primary organic carbon which is due residential emissions and may be attributed to the use of biofuels especially for cooking. According to spatial distribution of $\text{PM}_{2.5}$, air pollution hotspot can be seen over Nairobi, the highest concentrations seen over Nairobi Central Business District (CBD) is due to huge traffic density and tertiary emissions, high pollution to the eastern part of the city may be attributed to industrial emissions from industrial areas there. The pollution plume from the CBD is dispersed by the dominant southeasterly winds across the city's northern metropolitan region. The regional background concentration appears to be very low in Nairobi (Fig 4.1 (c)), therefore, its contribution to city's air quality is less compared to local pollution sources.

(a)



(b)



(c)

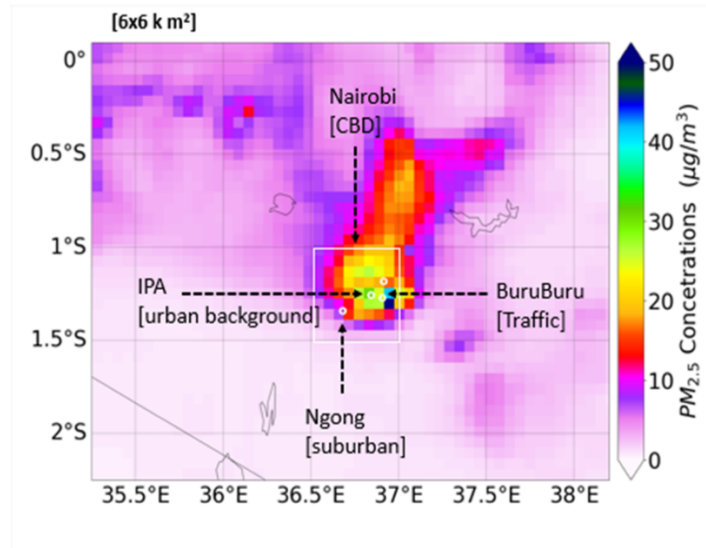


Figure 4.1. The characteristics of Nairobi air quality (July-August 2021) showing (a). Hourly variations in $PM_{2.5}$, (b). Diurnal profile of $PM_{2.5}$ and (c). Spatial distribution of the modelled $PM_{2.5}$ concentrations over Nairobi metropolitan area.

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/m^2 (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, enfin l'effet de mélange. 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; Liu et al., 2016, 2015; 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 ACROSS peut être un moyen de valider les résultats de la simulation à l'échelle fine (domaine simulé avec 2km de résolution spatiale) en comparant avec différentes sources de données tant pour la partie chimique que pour la partie physique (distribution en taille, masse, composition chimique de l'aérosol...)

A cet effet, en utilisant les heures attribuées pour l'année précédente, deux simulations 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) pour la période de la campagne ACROSS 2022. Cette période, qui commence vers le 15 juin 2022 et se termine le 25 Juillet 2022 a été caractérisée par deux vagues de chaleur importantes, qui font de cette période un intérêt considérable pour les futures études climatiques.

- 1) La première est une simulation de contrôle, dans laquelle la base de données de l'indice de réfraction a été mise à jour en tenant compte de l'absorption du « brown carbon » (Wang et al., 2018, 2014; Saleh et al., 2014). La simulation a été réalisée tout au long de la période ACROSS dont la masse des aérosols (e.g. PM₁₀, PM_{2.5}, O₃) a été validée par des observations in-situ (EEA, Agence européenne pour l'environnement). 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. En particulier la composition de l'aérosol, d'un intérêt considérable pour les propriétés optiques, a été comparée aux observations in situ (Fig. 5.1). Dans cette dernière, les deux périodes caniculaires de juin et juillet se distinguent nettement par les niveaux de masse atteints (PM₁>15µg³) et une période avec de faibles niveaux d'aérosols (PM₁<10µg³).
- 2) 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) et les effets direct (DRE) des aérosols (Fig. 5.2). Dans cette dernière, on a décidé de diviser les périodes de vagues de chaleur pour mettre en évidence le plus grand effet des aérosols sur le climat dans des conditions difficiles à simuler. En effet, l'estimation du DRE illustré dans la Fig. 5.2 sur la région Île de France montre un DRE de -10.4 Wm⁻² pour toute la période de la campagne ACROSS (a)), -4.6 Wm⁻² pour la période « clean » (b)) et -16.8 Wm⁻² et -18.9 Wm⁻² respectivement pour les cas b) et d) en période de canicule.

Les heures restantes seront nécessaires pour tester la sensibilité du modèle à l'indice de réfraction et finaliser les simulations, avec la possibilité de lancer une dernière simulation complète avec la configuration optimale.

Au final, ce travail a été valorisé lors de conférences et séminaires telles que l'EGU 2023, AMA 2023 et Workshop ACROSS 2022.

- 1) <https://meetingorganizer.copernicus.org/EGU23/EGU23-17485.html>
- 2) <https://meetingorganizer.copernicus.org/EGU23/EGU23-420.html>
- 3) <http://www.meteo.fr/cic/meetings/2023/AMA/>

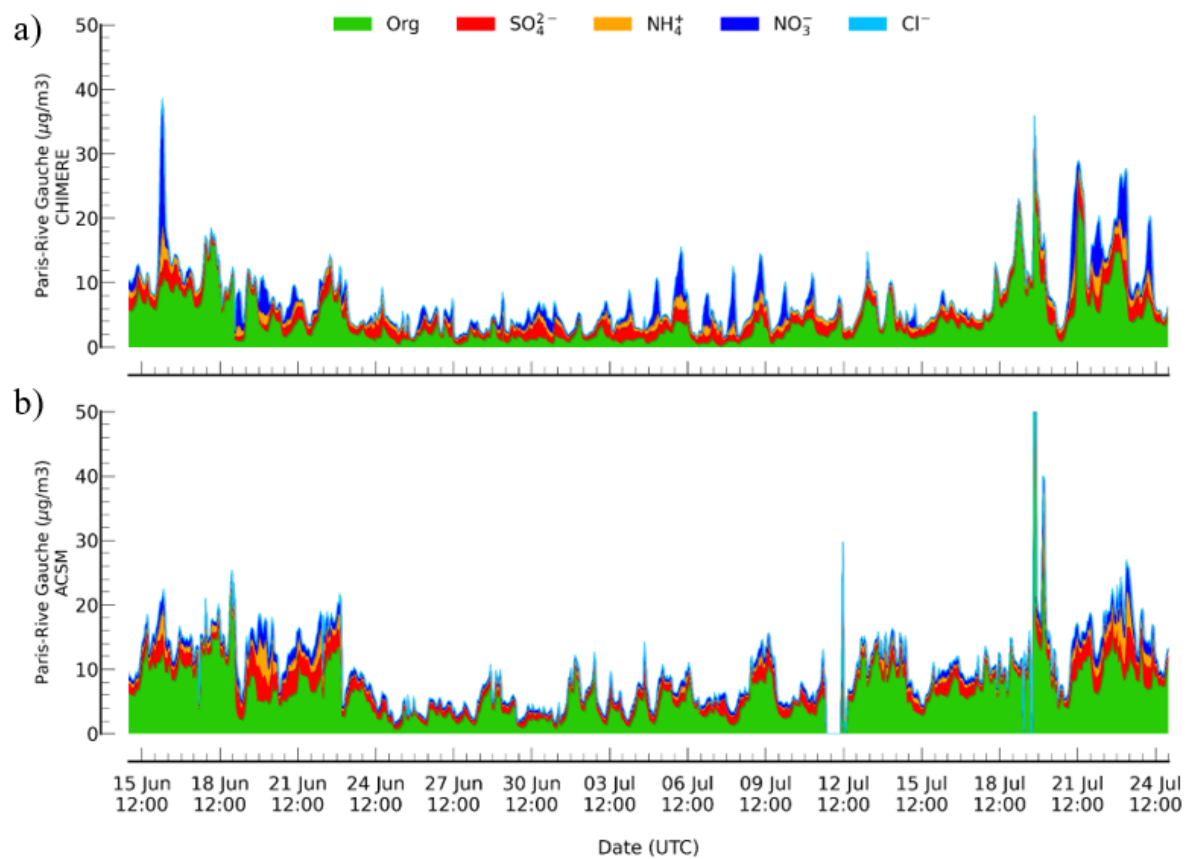


Fig. 5.1 Composition chimique PM_1 de l'aérosol a) simulée avec le modèle CHIMERE au super site Paris-Rive Gauche b) observée lors de la campagne ACROSS 2022 au super site Paris-Rive Gauche.

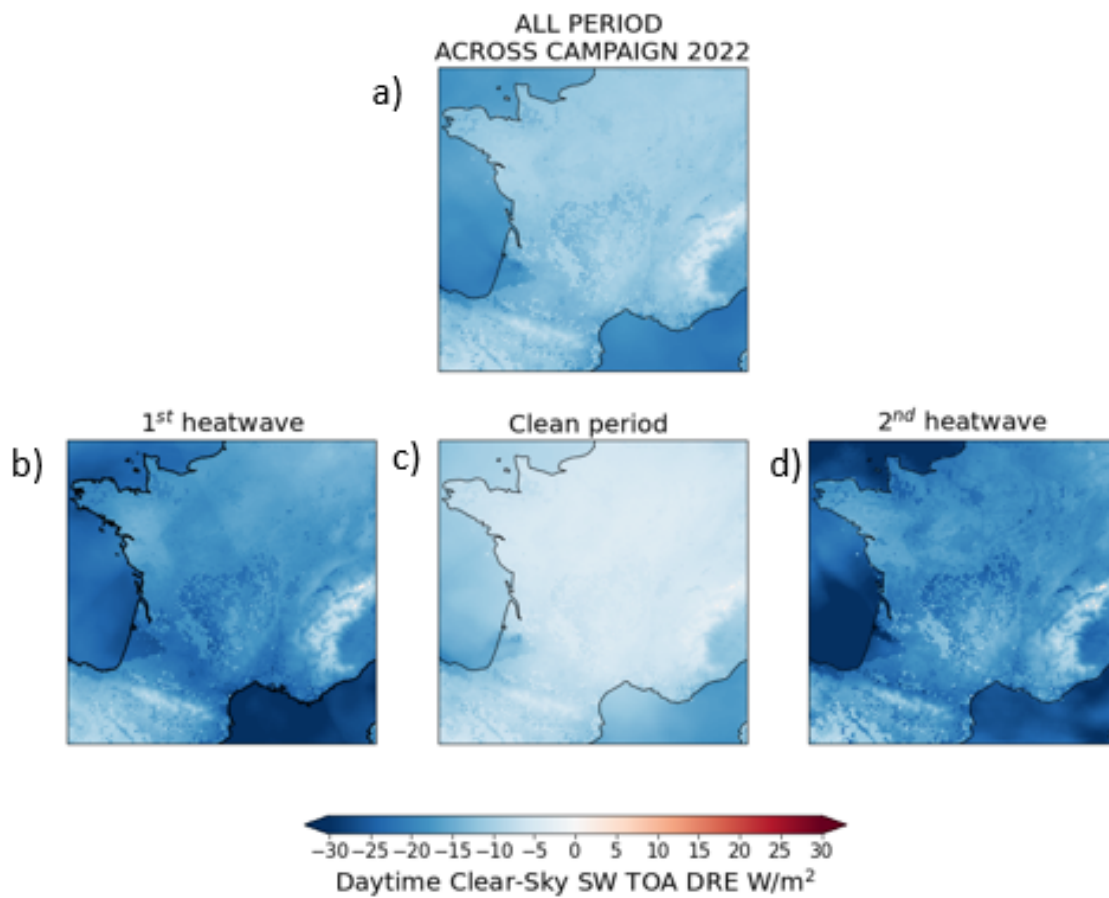


Fig. 5.2 Estimation de l'effet direct Daytime Clear-Sky au TOA pour quatre différentes périodes a) du 15 Juin 2022 jusqu'au 25 Juillet 2022 (comprenant toute la période de la campagne ACROSS) b) du 15 Juin 2022 jusqu'au 24 Juin 2022 représentant la première vague de chaleur c) du 25 Juin 2022 jusqu'au 17 Juillet 2022 période avec de faibles niveaux d'aérosols définie comme « clean » c) du 18 Juin 2022 jusqu'au 25 Juillet 2022 représentant la deuxième vague de chaleur.

Publications en preparation

Dubois N., Foret G., Siour G., Beekmann M., Andre J.-M., Moukhtar S., Uzu G., Jaffrezo J.-L.: Modelling of atmospheric copper, iron and manganese based on new European emission inventories over two years with the CHIMERE model, en préparation

Nyaga W. et al. 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. (Preparation in progress).

Nyaga W. et al. Application of Ground-Based Measurements and Air Quality Model to Improve the Estimations of Air Quality in Nairobi, Kenya (To be submitted soon)

Vida, M., Foret, G., Siour, G., Weber, S., Favez, O., Jaffrezo, J.-L., Uzu, G., and Beekmann, M.: Oxidative potential modelling of PM10: an indicator of aerosol health risk studied in France with the CHIMERE model, à soumettre.

Vida M, Gilles Foret, Guillaume Siour, Florian Couvidat, Olivier Favez, Jean-Luc Jaffrezo, Gaelle Uzu and Matthias Beekmann, Modelling of fungal spores to simulate biogenic primary organic aerosols: maps and comparisons in France over 2 years, en préparation

Publications

Putero, D., Cristofanelli, P., Chang, K.-L., Dufour, G., Beachley, G., Couret, C., Effertz, P., Jaffe, D. A., Kubistin, D., Lynch, J., Petropavlovskikh, I., Puchalski, M., Sharac, T., Sive, B. C., Steinbacher, M., Torres, C., and Cooper, O. R.: Fingerprints of the COVID-19 economic downturn and recovery on ozone anomalies at high-elevation sites in North America and Western Europe, EGU sphere [preprint], <https://doi.org/10.5194/egusphere-2023-1737>, 2023.

Savas, D.; Dufour, G.; Coman, A.; Siour, G.; Fortems-Cheiney, A.; Broquet, G.; Pison, I.; Berchet, A.; Bessagnet, B. Anthropogenic NO_x Emission Estimations over East China for 2015 and 2019 Using OMI Satellite Observations and the New Inverse Modeling System CIF-CHIMERE. *Atmosphere* 2023, 14, 154. <https://doi.org/10.3390/atmos14010154>

Savas Dilek, Inverse modeling of nitrogen oxides emissions in urbanized regions of the Northern Hemisphere: Application of the CIF-CHIMERE inversion system to OMI and TROPOMI observations, thèse, juin 2023.

Conférences et posters

Carreira Mendes Da Silva Y., G. Dufour, A. Fortems-Cheiney, Q. Marsal, J.-M. Gilliot, F. Couvidat, S. Générumont, Do alternative inventories based on satellite observations or mechanistic models improve the spatiotemporal representation of spring ammonia emissions in France?, 2023 GEIA conference, Brussels, June 2023.

Dubois, N., Foret, G., Beekmann, M., Siour, G., Vida, M., Andre, J.-M., Moukhtar, S., Uzu, G., Jaffrezo, J.-L., Conil, S., Le Berre, L., Marchand, N., Chazeau, B., Gille, G., Alastuey, A., Querol, X., Reche, C., Socquet, S., Bret, C., and Duval, M.: European modeling of atmospheric copper, iron and manganese as key players for aerosol toxicity, EGU General Assembly 2023, Vienna, Austria, 23–28 Apr 2023, EGU23-

12878, <https://doi.org/10.5194/egusphere-egu23-12878>, 2023.

Nyaga W. et al. Assessment of air quality in Nairobi based on ground measurement and modelling, EGU conference, Vienna, Austria, April 2023.

Nyaga W. et al. Air Quality Study to Analyze PM_{2.5} Sources and their Possible Mitigation pathways in Nairobi, CHIMERE modeling community workshop, June 2023.

Savas D., Dufour G., Coman A., Siour G., Fortems-Cheiney A., Broquet G., Pison I., Berchet A., Plauchu R., Bessagnet B., NO_x emission estimations in urbanized regions using variational inversion CIF-CHIMERE and NO₂ satellite observations, 2023 GEIA conference, Brussels, June 2023.

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.

Vida, M., Foret, G., Siour, G., Weber, S., Favez, O., Jaffrezo, J.-L., Uzu, G., and Beekmann, M.: Oxidative potential modelling of PM₁₀: an indicator of aerosol health risk studied in France with the CHIMERE model, EGU General Assembly 2023, Vienna, Austria, 24–28 Apr 2023, EGU23-5896, <https://doi.org/10.5194/egusphere-egu23-5896>, 2023.

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 Zwaafink, 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.

Crippa, M., Guizzardi, D., Muntean, M., Schaaf, E., Dentener, F., van Aardenne, J. A., Monni, S., Doering, U., Olivier, J. G. J., Pagliari, V., & Janssens-Maenhout, G. (2018). Gridded emissions of air pollutants for the period 1970–2012 within EDGAR v4.3.2. *Earth System Science Data*, 10(4), 1987–2013. <https://doi.org/10.5194/essd-10-1987-2018>

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. Rapp, 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., van Der Gon, H. D., Jana, D., Elguindi, N., Bo, G., Michael, G., Marc, G., Jalkanen, J.-P., & Kuenen, J. (2019). *The Copernicus atmosphere monitoring service global and regional emissions (April 2019 version)* [PhD Thesis]. Copernicus Atmosphere Monitoring Service.

He, Q., Tomaz, S., Li, C., Zhu, M., Meidan, D., Riva, M., Laskin, A., Brown, S. S., George, C., Wang, X., and Rudich, Y.: Optical Properties of Secondary Organic Aerosol Produced by Nitrate Radical Oxidation of Biogenic Volatile Organic Compounds, *Environ. Sci. Technol.*, 55, 2878–2889, <https://doi.org/10.1021/acs.est.0c06838>, 2021.

Heald, C. L. and Spracklen, D. V.: Atmospheric budget of primary biological aerosol particles from fungal spores, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L09806, <https://doi.org/10.1029/2009GL037493>, 2009.

Hummel, M., Hoose, C., Gallagher, M., Healy, D. A., Huffman, J. A., O'Connor, D., Pöschl, U., Pöhlker, C., Robinson, N. H., Schnaiter, M., Sodeau, J. R., Stengel, M., Toprak, E., and Vogel, H.: Regional scale simulations of fungal spore aerosols using an emission parameterization adapted to local measurements of fluorescent biological aerosol particles, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 6127–6146, <https://doi.org/10.5194/acp-15-6127-2015>, 2015.

IPCC: *Climate Change 2022: Impacts, Adaptation and Vulnerability*, 2022.

Janssen, R. H., Heald, C. L., Steiner, A. L., Perring, A. E., Huffman, J. A., Robinson, E. S., Twohy, C. H., and Ziemba, L. D.: Drivers of the fungal spore bioaerosol budget: Observational analysis and global modeling. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(6), 4381–4401. <https://doi.org/10.5194/acp-21-4381-2021>, 2021.

Kaiser, J. W., Heil, A., Andreae, M. O., Benedetti, A., Chubarova, N., Jones, L., Morcrette, J.-J., Razinger, M., Schultz, M. G., & Suttie, M. (2012). Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power. *Biogeosciences*, 9(1), 527–554.

Lattuati, M. (1997). *Contribution à l'étude du bilan de l'ozone troposphérique à l'interface de l'Europe et de l'Atlantique Nord: Modélisation lagrangienne et mesures en altitude. PhD thesis, Université P.M.Curie, Paris, France.*

Lelieveld, S., Wilson, J., Doyrou, E., Mishra, A., Lakey, P. S. J, Shiraiwa, M., Pöschl, U., Berkemeier, T. : *Hydroxyl Radical Production by Air Pollutants in Epithelial Lining Fluid Governed by Interconversion and Scavenging of Reactive Oxygen Species*, *Environmental Science & Technology*, 55 (20), 14069-14079 , [10.1021/acs.est.1c03875](https://doi.org/10.1021/acs.est.1c03875), 2021.

Liu, J., Lin, P., Laskin, A., Laskin, J., Kathmann, S. M., Wise, M., Caylor, R., Imholt, F., Selimovic, V., and Shilling, J. E.: Optical properties and aging of light-absorbing secondary organic aerosol, *Atmospheric Chem. Phys.*, 16, 12815–12827, <https://doi.org/10.5194/acp-16-12815-2016>, 2016.

Liu, P. F., Abdelmalki, N., Hung, H.-M., Wang, Y., Brune, W. H., and Martin, S. T.: Ultraviolet and visible complex refractive indices of secondary organic material produced by photooxidation of the aromatic compounds toluene and *m*-xylene, *Atmospheric Chem. Phys.*, 15, 1435–1446, <https://doi.org/10.5194/acp-15-1435-2015>, 2015.

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., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., & Hodzic, A. (2013). CHIMERE 2013: A model for regional atmospheric composition modelling. *Geoscientific Model Development*, 6(4), 981–1028.

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.

Samaké, A., Uzu, G., Martins, J. M. F., Calas, A., Vince, E., Parat, S., and Jaffrezo, J. L.: The unexpected role of bioaerosols in the Oxidative Potential of PM, *Sci. Rep.*, 7, 10978, <https://doi.org/10.1038/s41598-017-11178-0>, 2017.

Samaké, A., Jaffrezo, J.-L., Favez, O., Weber, S., Jacob, V., Canete, T., Albinet, A., Charron, A., Riffault, V., Perdrix, E., Waked, A., Golly, B., Salameh, D., Chevrier, F., Oliveira, D. M., Besombes, J.-L., Martins, J. M. F., Bonnaire, N., Conil, S., Guillaud, G., Mesbah, B., Rocq, B., Robic, P.-Y., Hulin, A., Le Meur, S., Descheemaeker, M., Chretien, E., Marchand, N., and Uzu, G.: Arabitol, mannitol, and glucose as tracers of primary biogenic organic aerosol: the influence of environmental factors on ambient air concentrations and spatial distribution over France, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 11013–11030, <https://doi.org/10.5194/acp-19-11013-2019>, 2019a.

Samaké, A., Jaffrezo, J.-L., Favez, O., Weber, S., Jacob, V., Albinet, A., Riffault, V., Perdrix, E., Waked, A., Golly, B., Salameh, D., Chevrier, F., Oliveira, D. M., Bonnaire, N., Besombes, J.-L., Martins, J. M. F., Conil, S., Guillaud, G., Mesbah, B., Rocq, B., Robic, P.-Y., Hulin, A., Le Meur, S., Descheemaeker, M., Chretien, E., Marchand, N., and Uzu, G.: Polyols and glucose particulate species as tracers of primary biogenic organic aerosols at 28 French sites, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 3357–3374, <https://doi.org/10.5194/acp-19-3357-2019>, 2019b.

Sesartic, A. and Dallafior, T. N.: Global fungal spore emissions, review and synthesis of literature data, *Biogeosciences*, 8, 1181–1192, <https://doi.org/10.5194/bg-8-1181-2011>, 2011.

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.

Wang, X., Heald, C. L., Ridley, D. A., Schwarz, J. P., Spackman, J. R., Perring, A. E., Coe, H., Liu, D., and Clarke, A. D.: Exploiting simultaneous observational constraints on mass and absorption to estimate the global direct radiative forcing of black carbon and brown carbon, *Atmospheric Chem. Phys.*, 14, 10989–11010, <https://doi.org/10.5194/acp-14-10989-2014>, 2014.

Wang, X., Heald, C. L., Liu, J., Weber, R. J., Campuzano-Jost, P., Jimenez, J. L., Schwarz, J. P., and Perring, A. E.: Exploring the observational constraints on the simulation of brown carbon, *Atmospheric Chem. Phys.*, 18, 635–653, <https://doi.org/10.5194/acp-18-635-2018>, 2018.

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.