

Caractérisation des aérosols organiques à Beyrouth, Liban.

Abstract

The air pollution problem has been the subject of growing concern during the last decades because of its serious impacts on public health, climate, atmospheric visibility, and ecosystems. Health problems linked to air pollution have increased because of the rapid growth of industrialization and urbanization. Among air pollutants, fine particulate matter (PM_{2.5}) is a topic of interest in terms of regulations and research because of its impacts on human health, atmospheric visibility, and the Earth's radiative budget. The chemical composition of PM_{2.5} includes both organic and inorganic compounds. Organic compounds, which constitute a significant fraction of the PM_{2.5} mass, can be emitted directly as primary aerosol from sources such as fossil-fuel combustion, biomass burning, and natural biogenic emissions, or formed in the atmosphere via chemical reactions leading to secondary organic aerosol (SOA) formation. SOA, which account for 20 – 80 % of total organic aerosol, are currently a major source of uncertainty in air quality modeling.

The identification and quantification of the chemical composition of the organic fraction of PM_{2.5} and its source apportionment are of great interest, especially in the Middle East region where data on organic aerosols are currently lacking. Lebanon, a small developing country in the Middle East region located on the eastern shore of the Mediterranean basin represents a good example for characterizing organic aerosols in this region. To address this issue, the air quality in Beirut (the capital city of Lebanon) was investigated with a focus on organic aerosols.

First, an air pollutant emission inventory was developed for Lebanon with a spatial resolution of 5 km x 5 km and for Beirut with a spatial resolution of 1 km x 1 km. The results obtained show that the road transport sector is the major contributor to carbon monoxide (CO), nitrogen oxides (NO_x) and non-methane volatile organic compounds (VOC) emissions; whereas fossil fuel-fired power plants and large industrial plants are the major contributors to sulfur dioxide (SO₂) and primary particulate matter (PM) emissions.

Then, two intensive 15-day measurement campaigns were conducted at a semi-urban site

located in a Beirut suburb to characterize air pollutant concentrations. The first measurement campaign took place in July 2011 and the second in February 2012. Measurements included $PM_{2.5}$, organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) mass concentrations as well as a molecular characterization of organic aerosols. Using these data, a source apportionment of organic aerosols was conducted for summer and winter. In summer, biogenic precursors such as monoterpenes and sesquiterpenes were the major source of OC due to intensive solar radiation and high ambient temperatures that promote biogenic VOC emissions and photo-oxidation reactions. In winter, biomass burning was the major source of organic aerosols because of the intensive use of wood burning for heating.

Finally, air pollutant concentrations in Beirut were simulated for July 2011 with the Polyphemus/Polair3D chemical-transport model (CTM). The emission inventory mentioned above was used as input to the model. Meteorological simulations were conducted with the Weather Research and Forecasting model (WRF) using different configurations and the configuration leading to the best agreement with the observations was used to drive the air quality simulations. The simulated air pollutant concentrations were compared to the measured concentrations collected during the summer measurement campaign. The results show that the model reproduces satisfactorily the concentrations of ozone (O_3), nitrogen dioxide (NO_2), carbon monoxide (CO), and the major components of $PM_{2.5}$. The differences obtained between the modeled and measured air pollutants concentrations are due in part to uncertainties in input data. Future studies should address the reduction of uncertainties such as those of the emission inventory. In addition, measurement campaigns involving several sites are needed to better characterize air pollution in Beirut and provide a more complete database to evaluate simulated air pollutant concentrations.

Résumé

Depuis plusieurs décennies, l'impact négatif de la pollution de l'air sur la santé et sur le changement climatique a été largement étudié. Face à ce problème, des politiques efficaces visant à la réduction des niveaux des concentrations des polluants ont été élaborées en Europe en 1996 avec la directive « cadre » et aux États Unis en 1970 avec les « clean air act amendements » (CAAA) et la création d'une agence fédérale en charge de la protection de l'environnement (U.S. EPA). Les aérosols atmosphériques qui possèdent un impact très important sur le changement climatique et sur la santé humaine se trouvent au cœur des problèmes engendrés par la pollution de l'air. L'aérosol organique qui constitue la fraction majoritaire des particules (PM) demeure mal appréhendé. Dans ce contexte, la connaissance des sources primaires (combustion des carburants fossiles, combustion de la biomasse, éruptions des volcans, etc.) et secondaires (oxydation des composés organiques volatils (COV) suivie de la condensation formant des composés organiques particulaires) de l'aérosol organique ainsi que la caractérisation et la quantification de sa composition chimique restent un déficit majeur, en particulier dans la région du Moyen-Orient où les études de caractérisation de l'aérosol organique n'existent pas jusqu'à présent. Le Liban, un pays du Moyen-Orient qui se situe au bord du bassin méditerranéen, représente un bon exemple pour la caractérisation des aérosols organiques dans cette région. Les travaux menés durant cette thèse s'inscrivent dans un objectif de l'étude de la qualité de l'air à Beyrouth (la capitale du Liban) en se concentrant plus spécifiquement sur les aérosols organiques.

Tout d'abord, cette thèse a permis le développement d'un inventaire des émissions pour les gaz et les particules pour le Liban avec une résolution spatiale de 5 km x 5 km et pour la capitale Beyrouth avec une résolution spatiale de 1 km x 1 km. Les résultats obtenus indiquent que le transport routier est la source majoritaire responsable des émissions de monoxyde de carbone (CO), d'oxydes d'azote (NO_x) et de composés organiques volatils non méthaniques (COVNM), tandis que les industries et les centrales électriques sont les principaux émetteurs des émissions de dioxyde de soufre (SO₂) et des particules primaires.

Ensuite, afin de caractériser les concentrations des polluants et plus spécialement la

fraction organique des particules, deux campagnes de mesures intensives de 15 jours chacune ont été menées sur un site semi-urbain situé dans la banlieue de Beyrouth. Une première campagne estivale s'est déroulée en juillet 2011 et une deuxième campagne hivernale en février 2012. Ces campagnes, qui s'inscrivent dans le cadre du projet ECOCEM (Emission and Chemistry of Organic Carbon in East Mediterranean Beirut) ont permis une spéciation moléculaire et une catégorisation des sources en été et en hiver de l'aérosol organique au site de mesures où les campagnes ont été menées. En été, les précurseurs biogéniques tels que les monoterpènes et les sesquiterpènes qui aboutissent à la formation des aérosols organiques secondaires biogéniques sont la principale source à cause de l'insolation intensive et les températures élevées qui favorisent les émissions et les réactions de photo-oxydations. En hiver, la combustion de la biomasse est la principale source en raison de la combustion du bois dans le secteur résidentiel pour le chauffage.

Enfin, les concentrations ambiantes des polluants à Beyrouth ont été simulées durant le mois de juillet 2011 à partir de données de l'inventaire des émissions développé dans le cadre de cette thèse en utilisant le modèle de chimie-transport Polyphemus/Polair3D. Les concentrations de polluants simulées avec le modèle ont été comparées aux concentrations mesurées durant la campagne estivale afin d'évaluer le modèle. Les résultats obtenus révèlent que le modèle est capable de simuler de manière satisfaisante les concentrations d'ozone (O_3), de NO_x et la plupart des composés présents dans les particules fines. Les différences entre le modèle et les mesures peuvent résulter des incertitudes dans les données d'entrée qui ont une très grande influence sur les sorties du modèle. Pour cela, une réduction des incertitudes engendrées par les données d'entrée et plus spécifiquement celles liées à l'inventaire des émissions est nécessaire. Par ailleurs, des mesures chimiques sur plusieurs sites sont aussi nécessaires dans le futur afin de mieux évaluer les simulations des concentrations de polluants.