

Traitement des données (HCNM C₂-C₉) issues d'un système Turbomatrix/GC/FID

Agnès BORBON

- ⇒ contexte et objectifs de la thèse
(Borbon, 2002)
- ⇒ méthodes et résultats : exemples
- ⇒ conclusions

Contexte

4 années de mesures on-line (résolution horaire)
de 31 HydroCarbures Non Méthaniques (HCNM)

outil de mesure : Turbomatrix/GC/FID Perkin Elmer

aire d'étude : agglomération lilloise

2 sites récepteurs :

« Liberté » : urbain de proximité automobile

« Fives » : urbain de fond

Objectifs

Identification et Contribution des
principales sources des HCNM aux
teneurs ambiantes



répartition spatio-temporelle

Approches Sources-Récepteurs
appliquées aux concentrations en HCNM
au(x) sites récepteur(s)



Identification des sources

Séries temporelles

outil : moyennes mobiles

Soit les concentrations d'un composé i $C_1, \dots, C_n$, n le nombre de jours de mesure, les moyennes mobiles d'ordre 15 et centrées sur le 8^{ème} jour du composé i sont obtenues par la suite des moyennes arithmétiques:

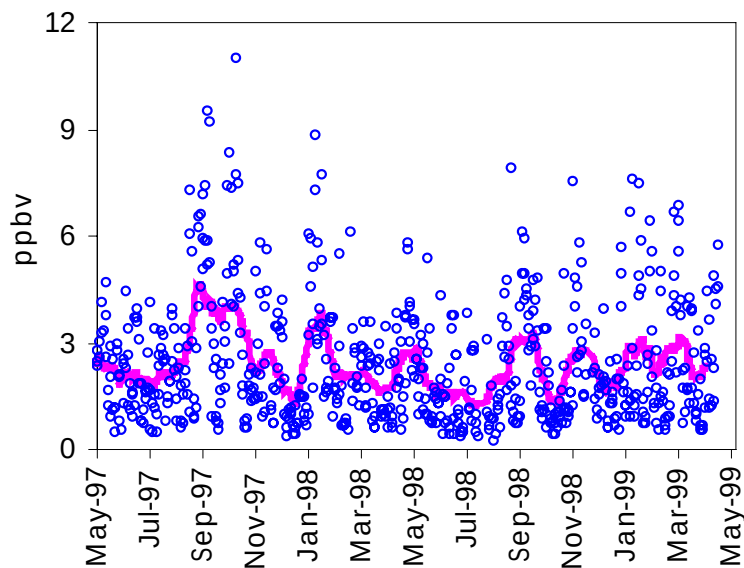
$$\frac{C_1 + C_2 + \dots + C_{15}}{15}, \frac{C_2 + C_3 + \dots + C_{16}}{15}, \dots, \frac{C_{n-15} + C_{n-14} + \dots + C_n}{15}$$

➔ **Analyse des tendances**

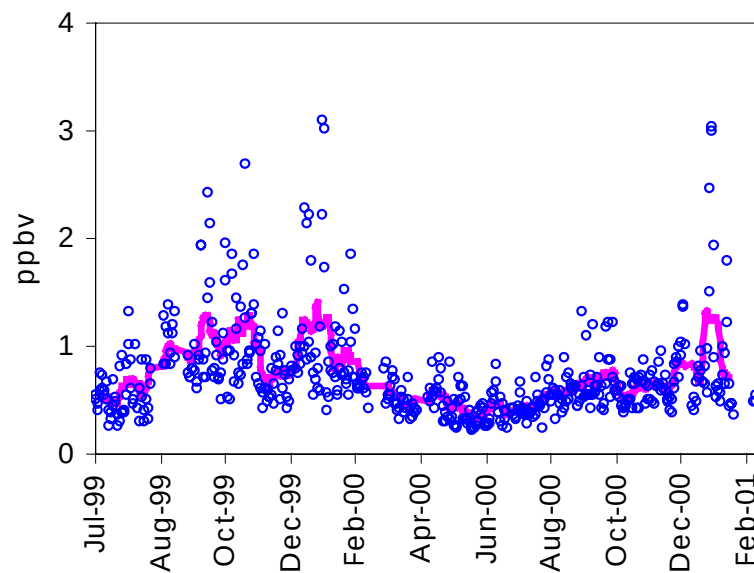
➔ **Contrôle des émissions pour les composés réglementés**

Séries temporelles outil : moyennes mobiles

Benzène à « Liberté »

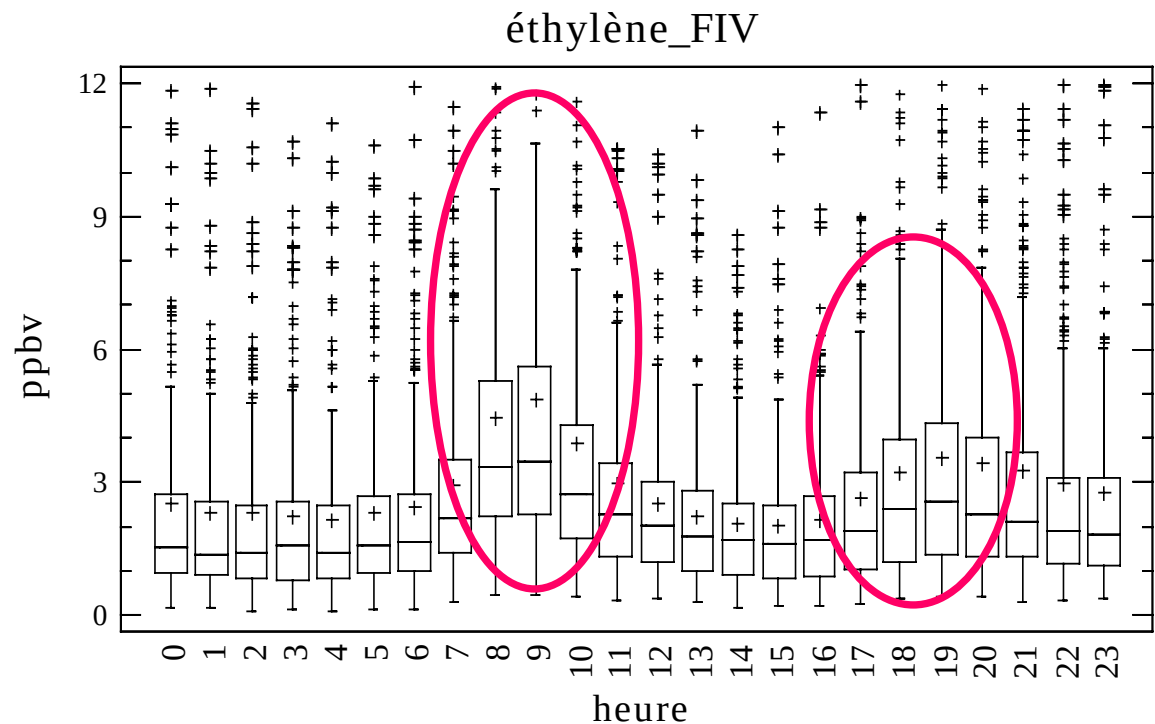
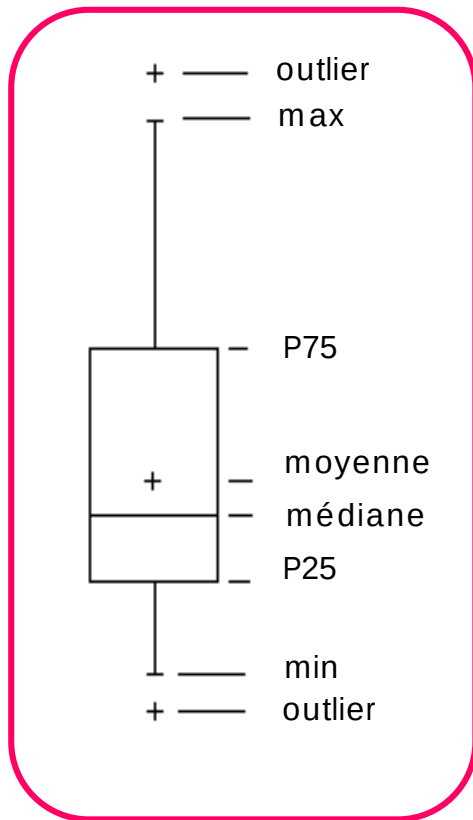


Benzène à « Fives »



Séries temporelles

outil : boîtes à moustaches



Analyse Graphique des Ratios

ratio dérivé des teneurs ambiantes

➔ *principe: calcul des ratios des teneurs massiques moyennes journalières*

$$\text{ratio} = \frac{[\text{HCNM}]_i}{[\text{acétylène}]}$$

➔ *un traceur des gaz d'échappement automobile: l'acétylène*

- *produit de combustion*
- *communément utilisé*
- *réactivité faible ($Tr \approx 12$ jours)*

Analyse Graphique des Ratios

ratio dérivé des

- ⇒ *principe: calcul des ratios massiques moy*

$$\text{ratio} = \frac{\sum \text{masses}}{\sum \text{masses}}$$

- ⇒ *un traceur des automobiles: l'air*
- produit de corrosion
 - communément
 - réactivité faible

ratio dérivé des facteurs d'émission (Fontaine, 2000)

- ⇒ *données à l'émission de gaz d'échappement automobiles des Voitures Particulières*
- ⇒ *bilan massique*

$$\text{ratio} = \frac{\sum_j (FE_{(\text{HCNM},j)} \times f_j)}{\sum_j (FE_{(\text{acétylène},j)} \times f_j)}$$

avec

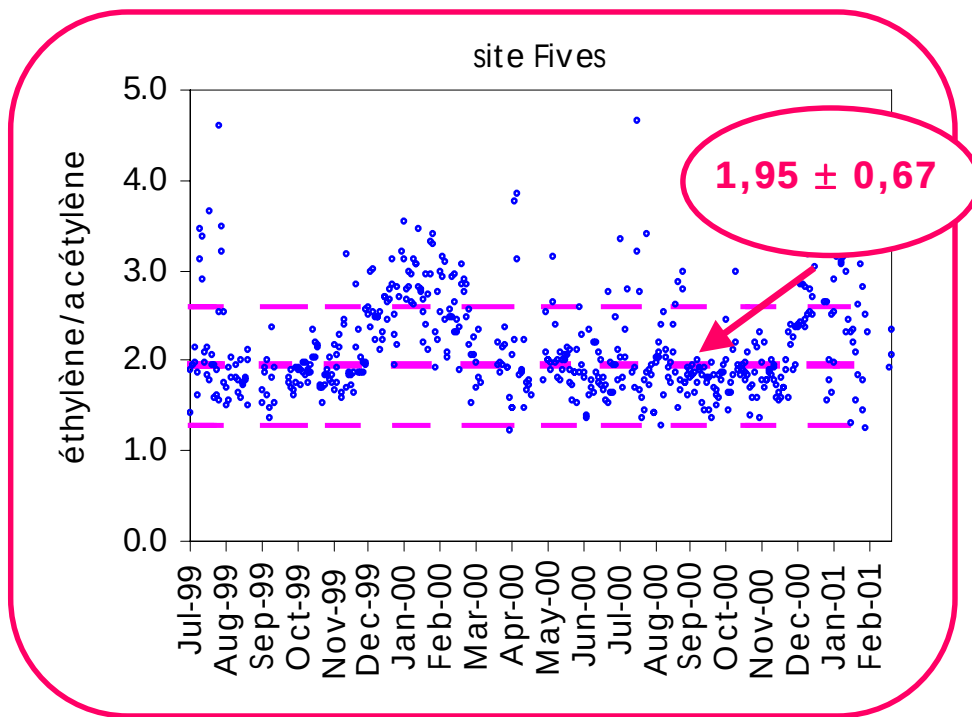
FE facteur d'émission du HCNM_i en mg/km

f_j fraction en % du kilométrage parcouru en zone urbaine par chaque motorisation j

VP ess. cata/non cata et VP diesel

Analyse Graphique des Ratios

exemple 1 : Combustion non-automobile



➔ combustion non-auto

en hiver, sur Fives

ratio_{ambiant} > ratio_{émission}

➔ quels composés ?

éthylène

acétylène (éthyne)

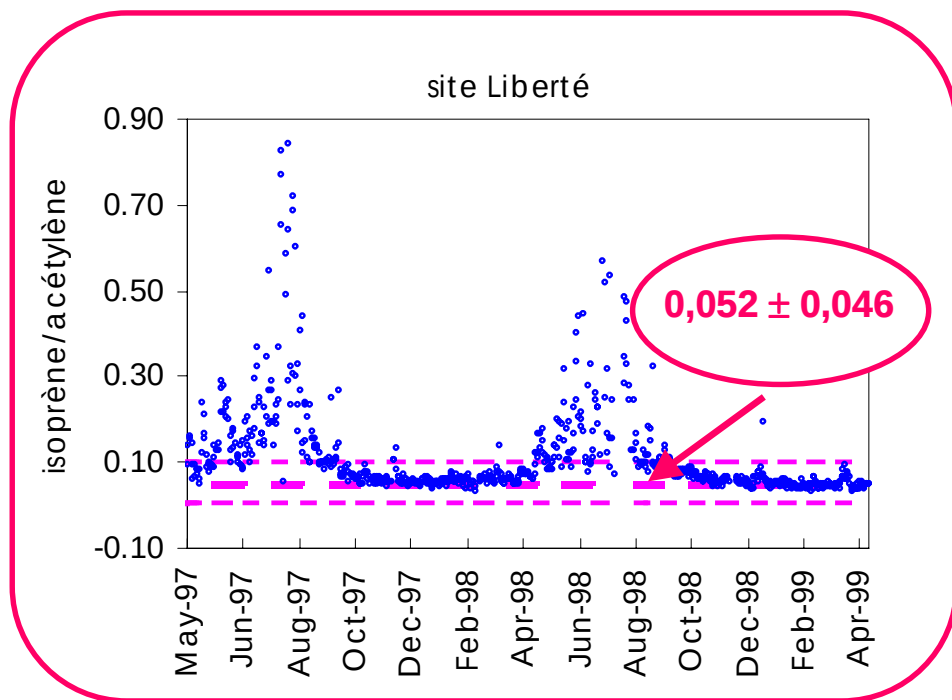
➔ non concernés

propène

1,3-butadiène

Analyse Graphique des Ratios

exemple 2 : double origine de l'isoprène



➔ **émissions biogéniques**

max d'été

ratio_{ambient} > ratio_{émission}

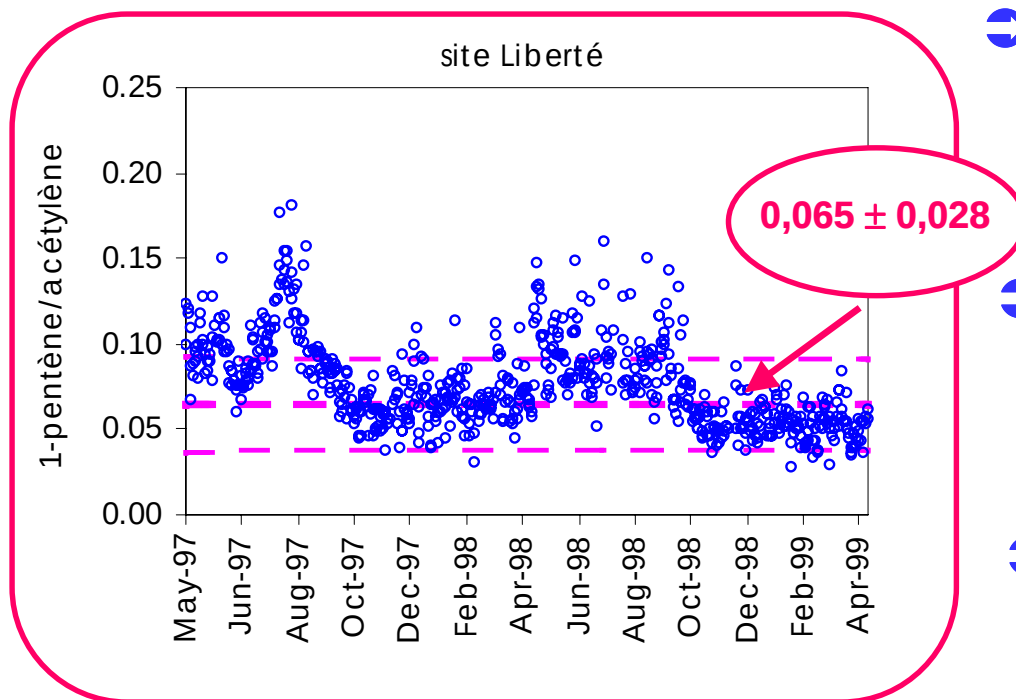
➔ **gaz d'échappement auto**

hiver :

ratio_{émission} ≈ ratio_{ambient}

Analyse Graphique des Ratios

exemple 3 : évaporation des essences/solvants



➔ gaz d'échappement auto

hiver :

ratio émission $\approx$ ratio ambiant

➔ évaporation des essences

max d'été, sur les 2 sites

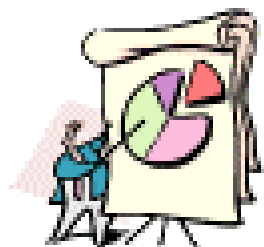
ratio ambiant $>$ ratio émission

➔ quels composés ?

alcane $>$ C₄ (isopentane)

alcène $>$ C₄

aromatiques (benz., toluène)



Contribution des sources aux teneurs ambiantes en HCNM

Méthodologie

Détermination de la relation mathématique

$$Y = \beta_0 + \beta_1 \cdot X + \varepsilon$$

par analogie

β_1 = ratio à l'émission de gaz d'échappement auto

$X = [\text{traceur}] / Y = [\text{HCNM}]_i$

hypothèses: représentativité du ratio β_1

➔ fenêtre de la modélisation 07:00-09:00 // décembre à février

➔ plusieurs traceurs: acétylène + éthylène, propène, 1,3-butadiène

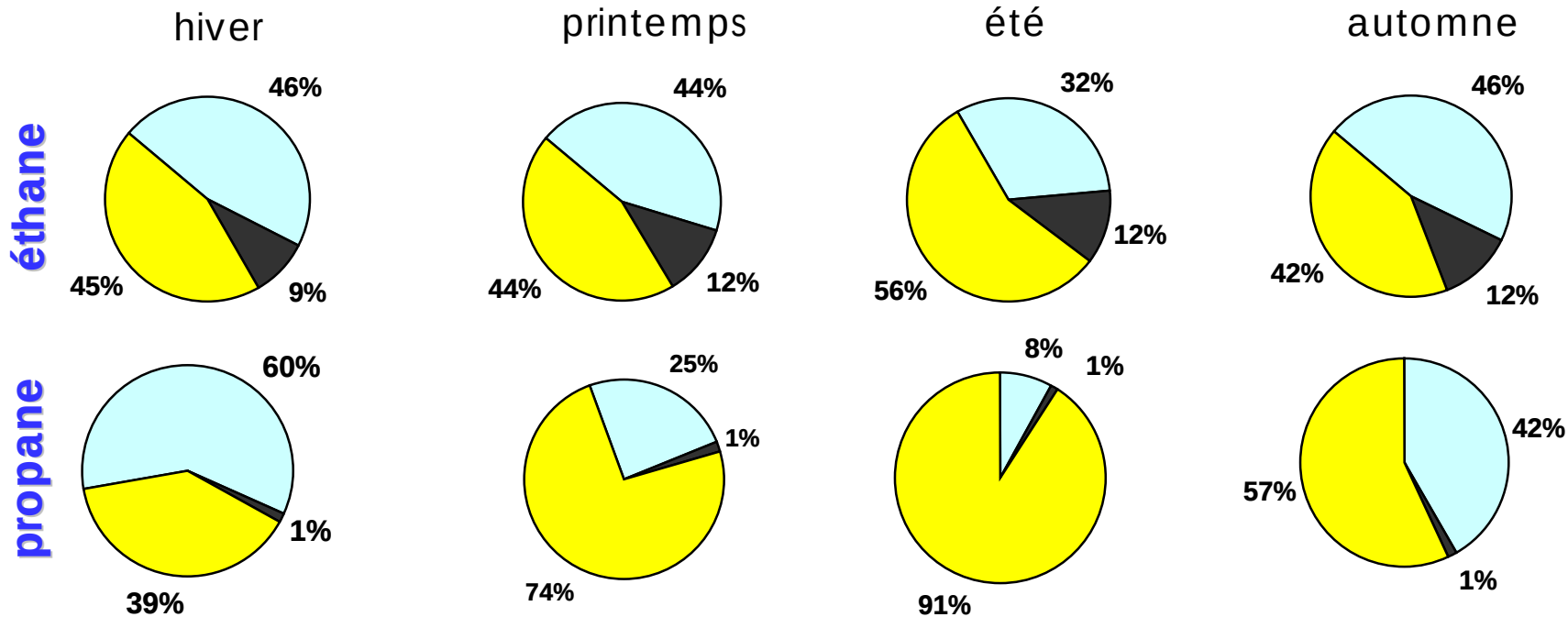
Application de β_1 aux teneurs en traceurs

$$\beta_1 \times [\text{traceur}] = [\text{HCNM}]_{\text{échappement automobile}}$$

hypothèses: ratio β_1 constant

Estimation des contributions de non-combustion automobile par comparaison des concentrations modélisées à celles mesurées.

Fraction C_2-C_3



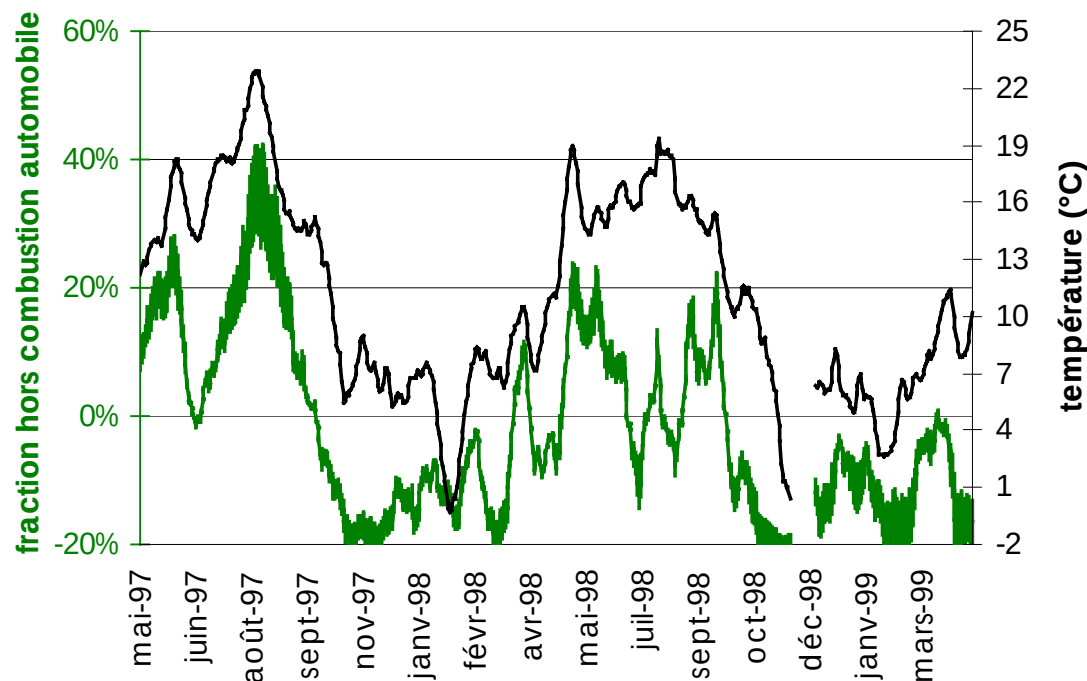
fond

fuites de gaz naturel

échappement auto

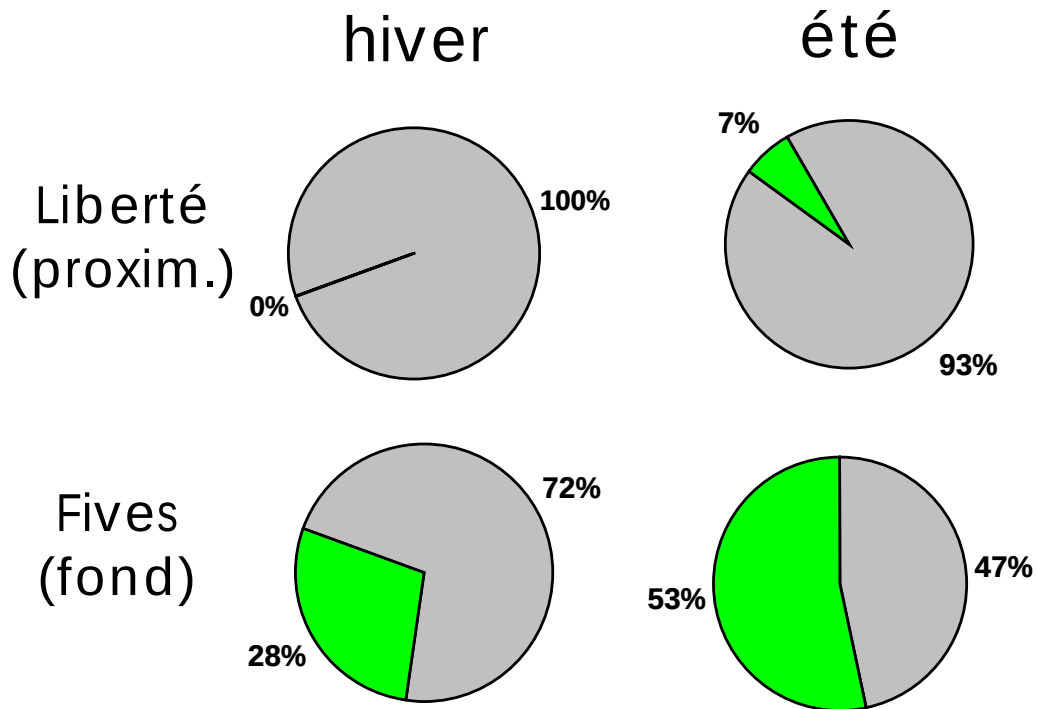
Fraction C_5-C_9

exemple : pentènes_{non-combustion auto} = f(temps)



**Variations saisonnières
corrélées à T°C
($0,50 < R^2 < 0,75$)**

Fraction C_5-C_9



Echappement auto

Évaporation des
essences et/ou
des solvants

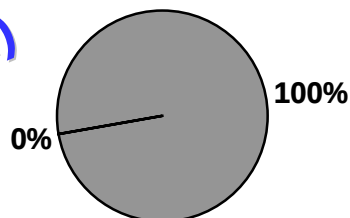
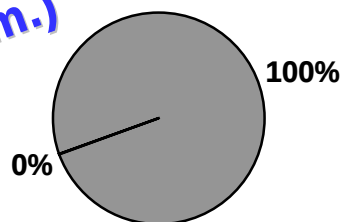
- en hiver sur Fives
- en été 10% à 50%
BTEX Fives: 20%-40%

Isoprène

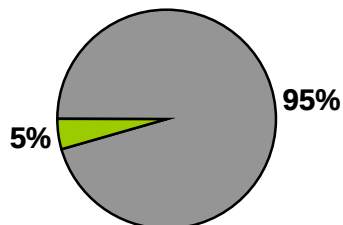
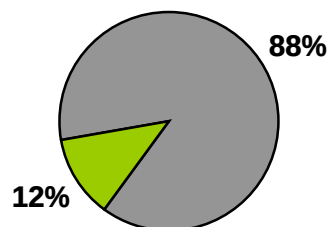
Liberté
(proxim.)

Fives
(fond)

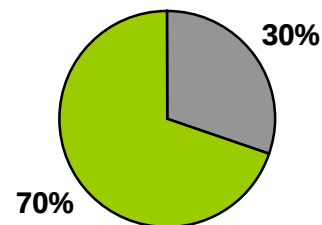
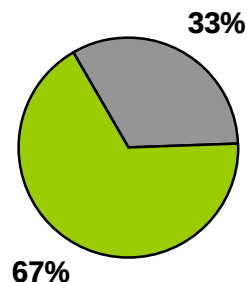
hiver



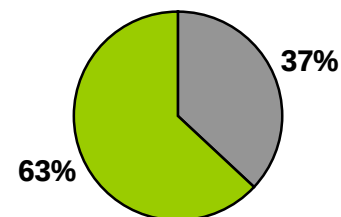
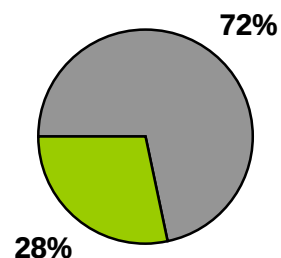
printemps



été



automne



Gaz d'échappement automobiles

Emissions biogéniques : $r > 0.75$ avec température

Conclusion

Identification et Evaluation des Contributions Spécifiques des sources principales des HCNM à l'échelle urbaine

dynamique spatio-temporelle

large contribution des gaz d'échappement automobile **mais**
implication forte des autres sources

Méthodes **complémentaires** de recherche et d'évaluation des contributions des sources

utilisation simple modulables opérationnelles

application à **d'autres zones d'études** avec adaptation aux
moyens et aux objectifs

Références

France :

Borbon A., Le comportement des Hydrocarbures Non-Méthaniques en zone urbaine : identification et contributions des sources. Thèse, Université des Sciences et Technologies de Lille, 2002.

Soumis à Atmospheric Environment en 2003. Developing receptor-oriented methods for Non-Methane Hydrocarbon characterisation in urban air. Part I: Source identification & Part II : Source apportionment.

Royaume Uni :

Derwent, R.G., Davies, T.J., Delaney, M., Dollard, G.J., Field, R.A., Dumitrean, P., Nason, P.D., Jones, B.M.R. & Pepler, S.A., Analysis and interpretation of the continuous hourly monitoring data for 26 C₂-C₈ hydrocarbons at 12 United Kingdom sites during 1996. Atmospheric Environment, 34, pp. 297-312, 2000.

UK PORC, Ozone in the United Kingdom. Fourth report of the Photochemical Oxidants Review Group. Department of the Environment, Transport and the Regions, London, 1997.