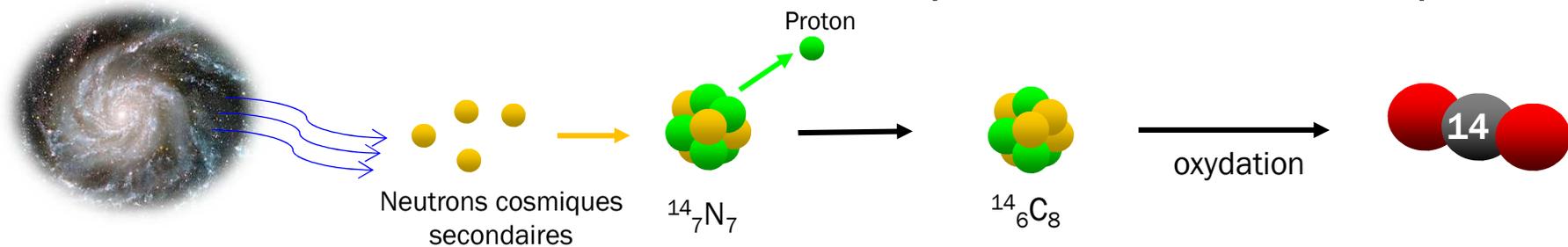


Mesures ^{14}C dans les aérosols atmosphériques

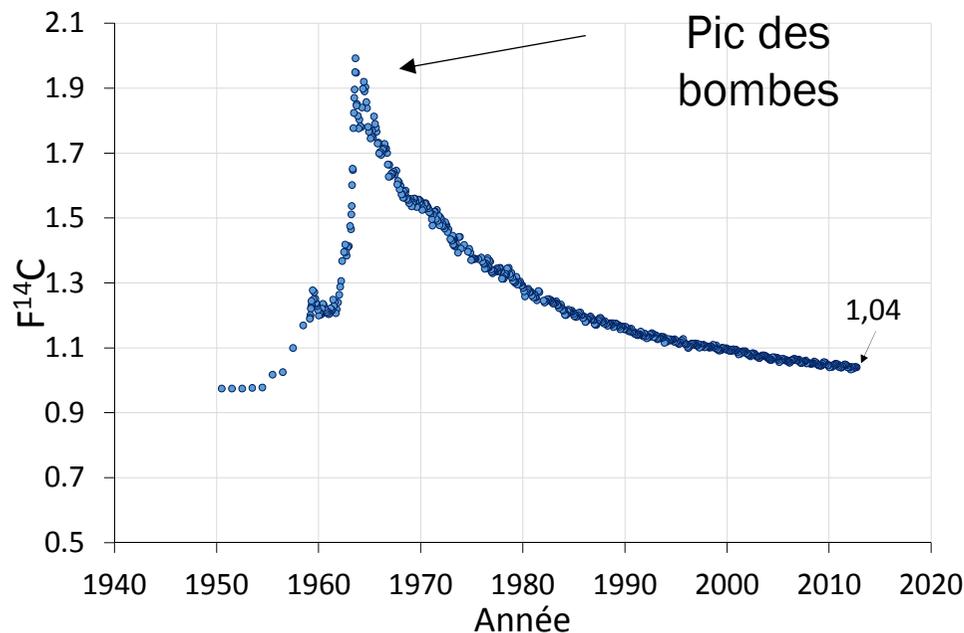
Lise BONVALOT, Thibaut TUNA, Yoann FAGAULT, Édouard BARD

Radiocarbone : généralités

- Création du ^{14}C dans les couches supérieures de l'atmosphère



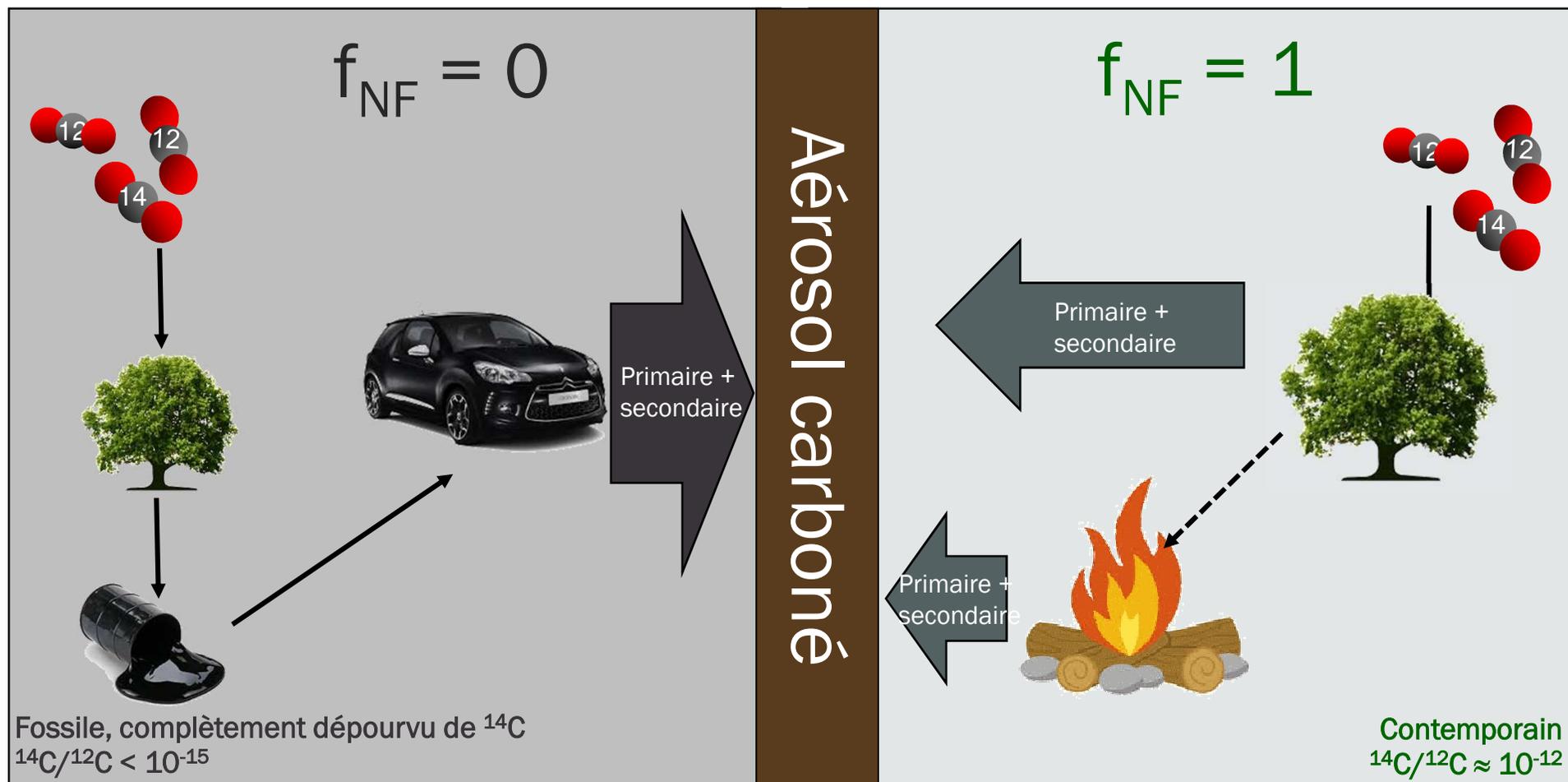
- Les organismes vivants présentent le même ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ que l'atmosphère



Le rapport $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ dans la biomasse dépend de son année de croissance

$^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 1980 > $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 2016

^{14}C dans les aérosols

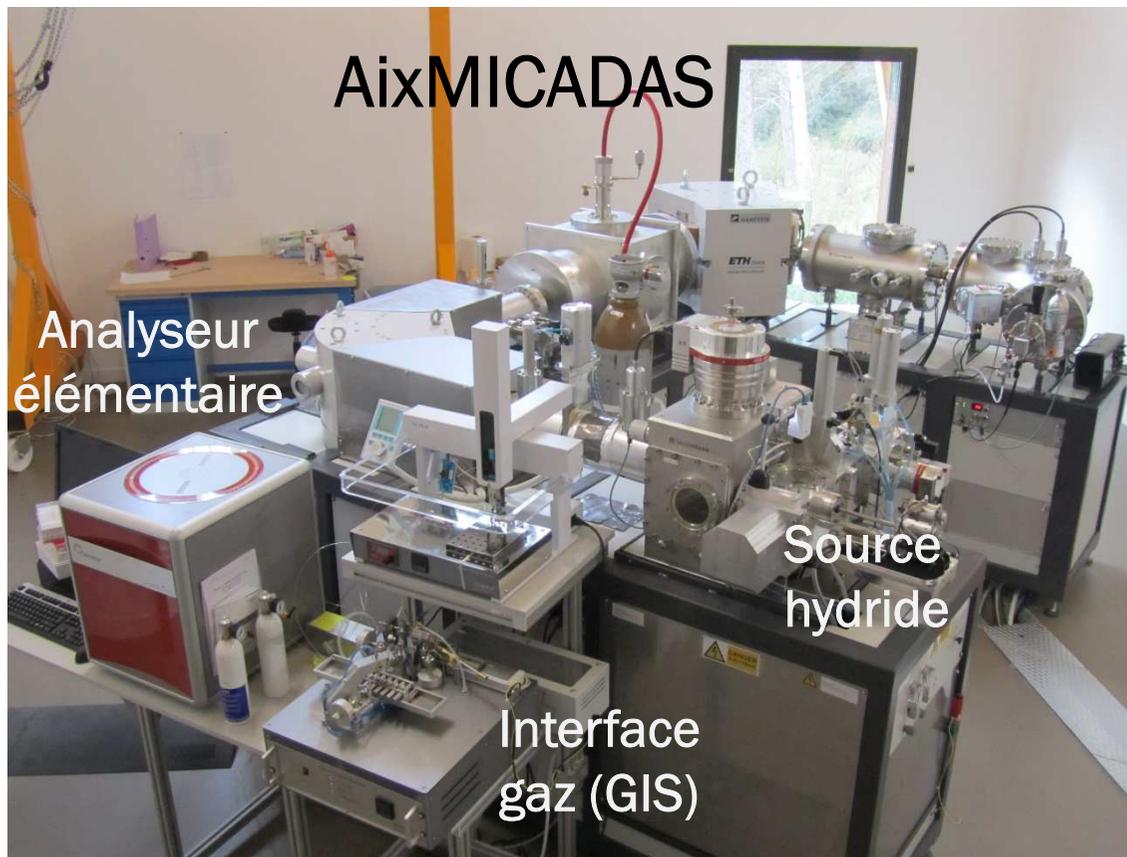


f_{NF} donne le pourcentage de contribution non fossile

ex : $f_{\text{NF}} = 0,75 \rightarrow 75\%$ de carbone non fossile

Mesure du T¹⁴C

Analyse en ligne EA-GIS-Aix MICADAS, pas besoin de graphitisation ni de préparation « chimique »



Avantages mesure
EA-GIS-AixMICADAS

Injection CO₂

Masse < 100 µgC

Préparation rapide

Analyse rapide

Limitations mesure
EA-GIS-AixMICADAS

Contaminations nacelles - EA

Mesure TC

: pas de séparation OC-EC

Mesure ¹⁴C au % pour éch.
moderne

Mesure du T¹⁴C

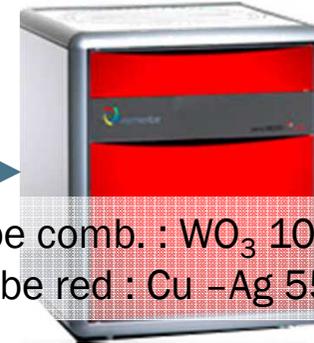
Filtre échantillonné
 $S_{\text{punch}} = \text{entre } 1,5 \text{ et } 0,3 \text{ cm}^2$



Punch placé dans nacelle argent
 (20x20x10 mm / 2h @ 800 °C)



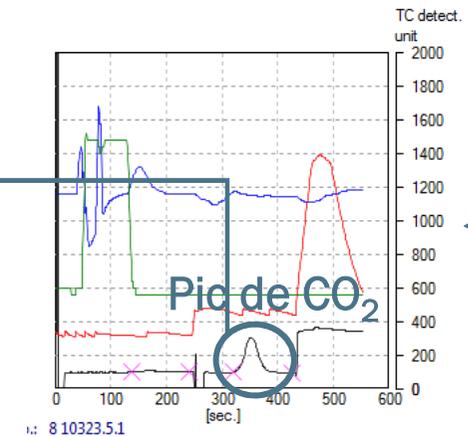
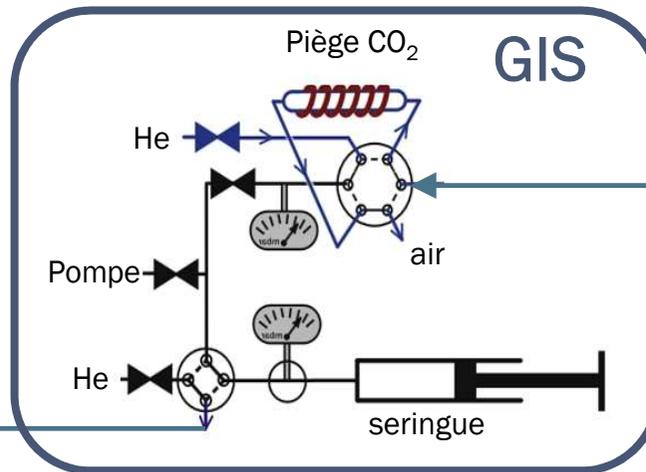
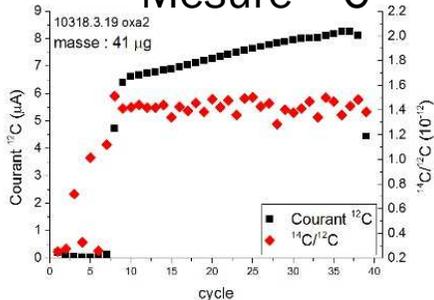
Combustion et oxydation
 en CO₂ dans EA



Tube comb. : WO₃ 1050 °C
 Tube red : Cu - Ag 550 °C



Mesure ¹⁴C



Sélection et focalisation du CO₂

Quantification

Bard et al., NIMB, 2015
 Bonvalot et al., ACP, 2016

Mesure du T¹⁴C

- Valeurs obtenues

- f_{NF} (par F¹⁴C)
- Masse de carbone (GIS ou EA)

$$\rightarrow [TC_{NF}] = [TC] \times f_{NF}$$

Masse de carbone non-fossile

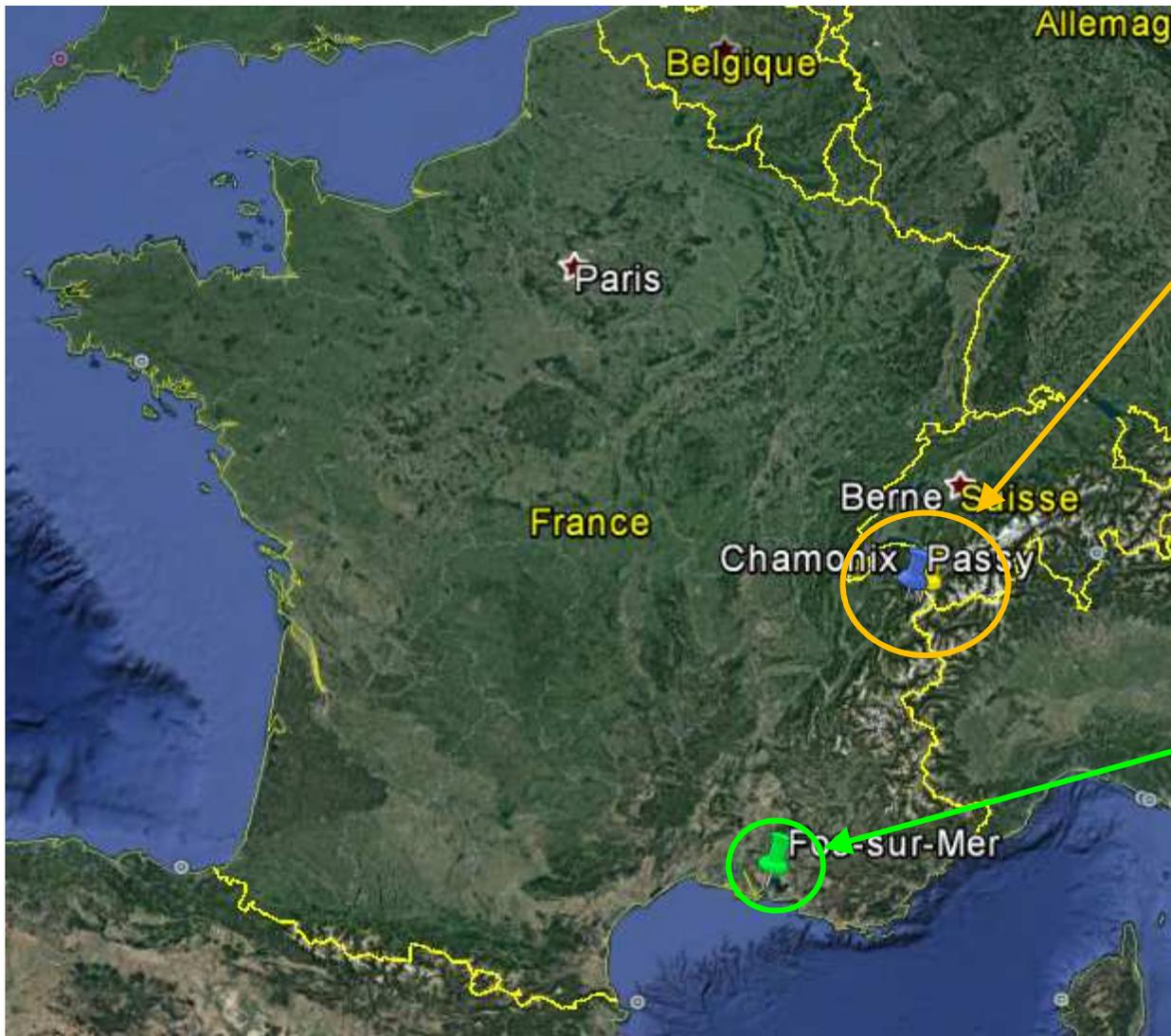
$$\rightarrow [TC_F] = [TC] \times (1 - f_{NF})$$

Masse de carbone fossile

- Comparaison avec différents traceurs

- Biomass Burning (Lévo)
- Combustion de fioul fossile (NO_x)
- Aérosol biogénique primaire (polyols)

Utilisation du ^{14}C sur deux sites



Vallée de l'Arve

Collaboration LGGE
J. L. Jaffrezo et F.
Chevrier

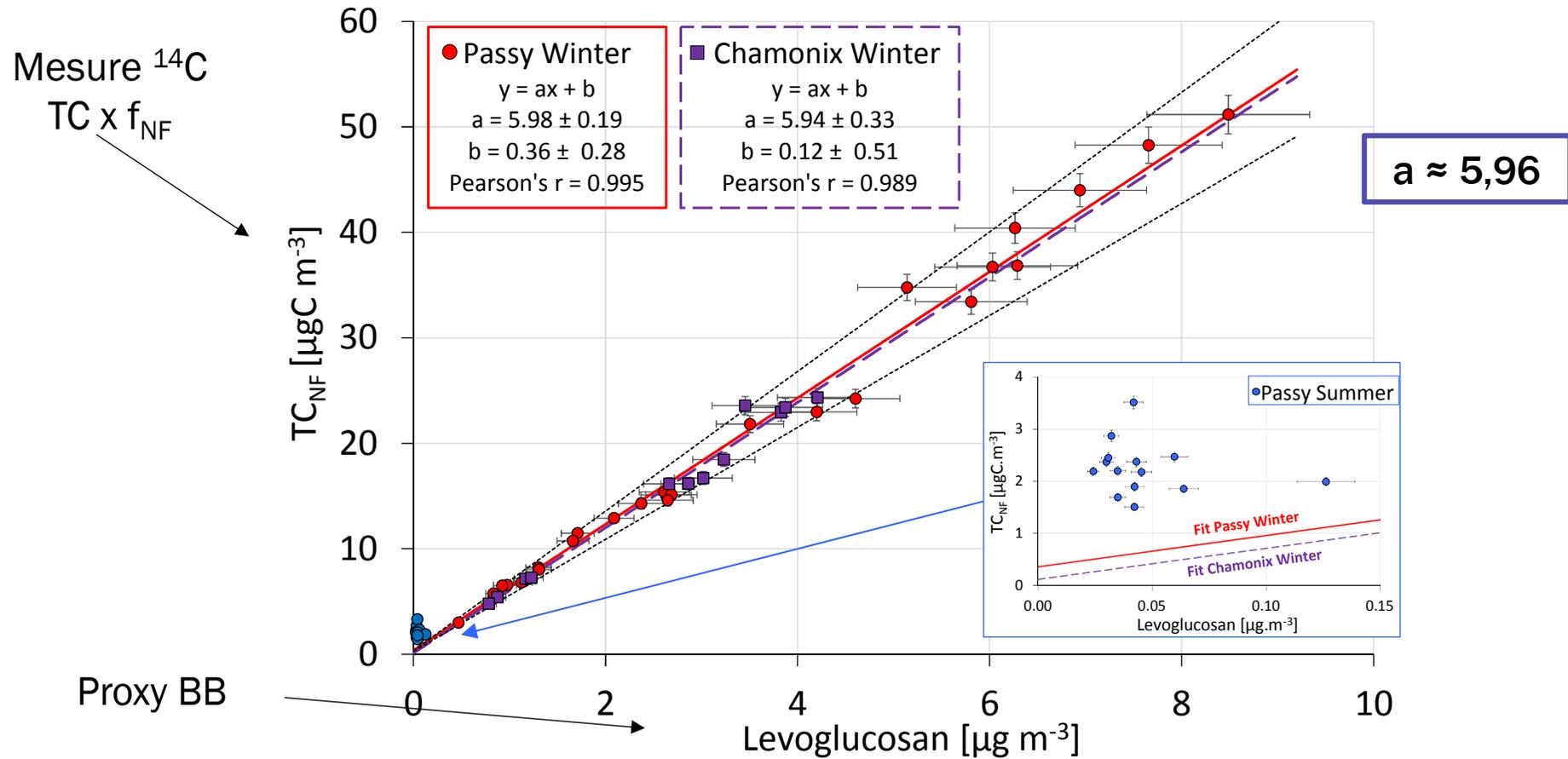
29 échantillons hivernaux
(Passy et Chamonix)
14 échantillons estivaux
(Passy)

Zone industrielle Fos-Berre

Collaboration LCE
N. Marchand et A. Sylvestre
AirPACA

30 échantillons

Vallée de l'Arve PM₁₀



Hiver
 Très forte corrélation
 Ordonnée à l'origine = 0

Eté
 Pas de corrélation
 $TC_{NF} \neq TC_{BB}$

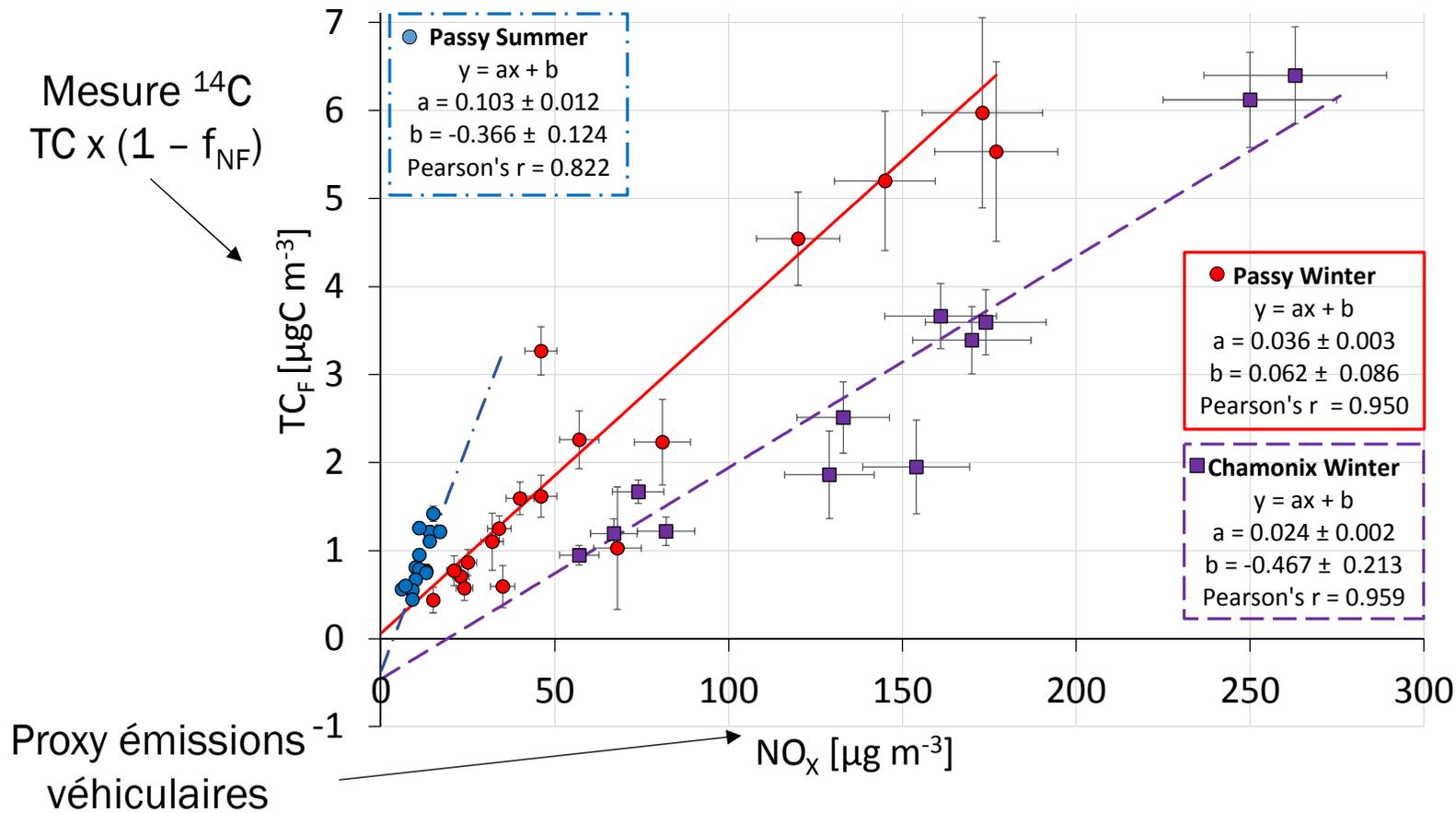
$TC_{NF} = TC_{BB}$

Diapositive 8

I7

85% NF en hiver
75% en été
lbonvalot; 06/12/2016

Vallée de l'Arve PM₁₀



Très forte corrélation
Ordonnée à l'origine = 0

TC_F = combustion de fuels fossiles

TC_F ne varie pas avec TC

$$TC_{\text{hiver}} = 13 \times TC_{\text{été}}$$

$$TC_{\text{Fhiver}} = 3 \times TC_{\text{Fété}}$$

Vallée de l'Arve PM₁₀

 TC_{NF}

$$F^{14}C_{ech} \times TC = F^{14}C_F \times TC_F + F^{14}C_{bio} \times TC_{bio} + F^{14}C_{BB} \times TC_{BB}$$

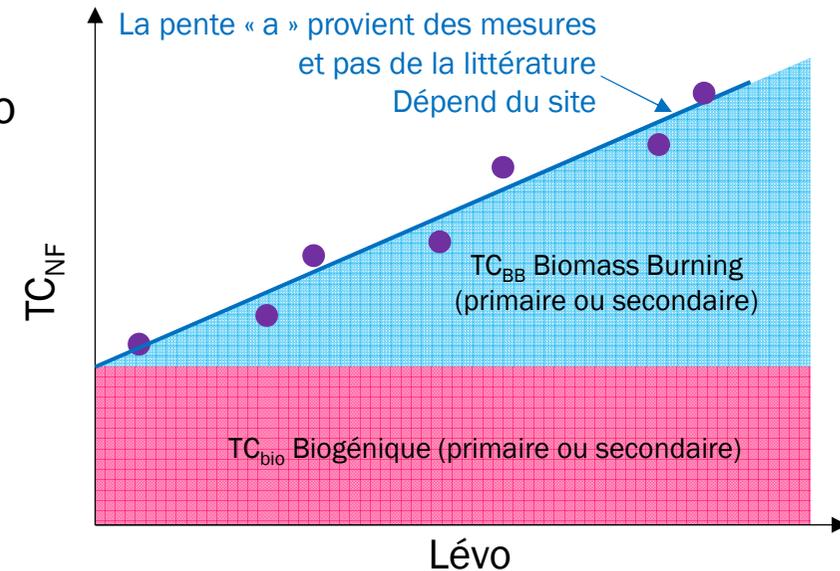
Mesure GIS MICADAS

$$TC_{bio} = \frac{F^{14}C_{ech} \times TC - F^{14}C_{BB} \times TC_{BB}}{F^{14}C_{bio}}$$

1,10

a x lévo

1,04



Double approche ¹⁴C et lévo permet de quantifier le carbone biogénique dans les échantillons estivaux

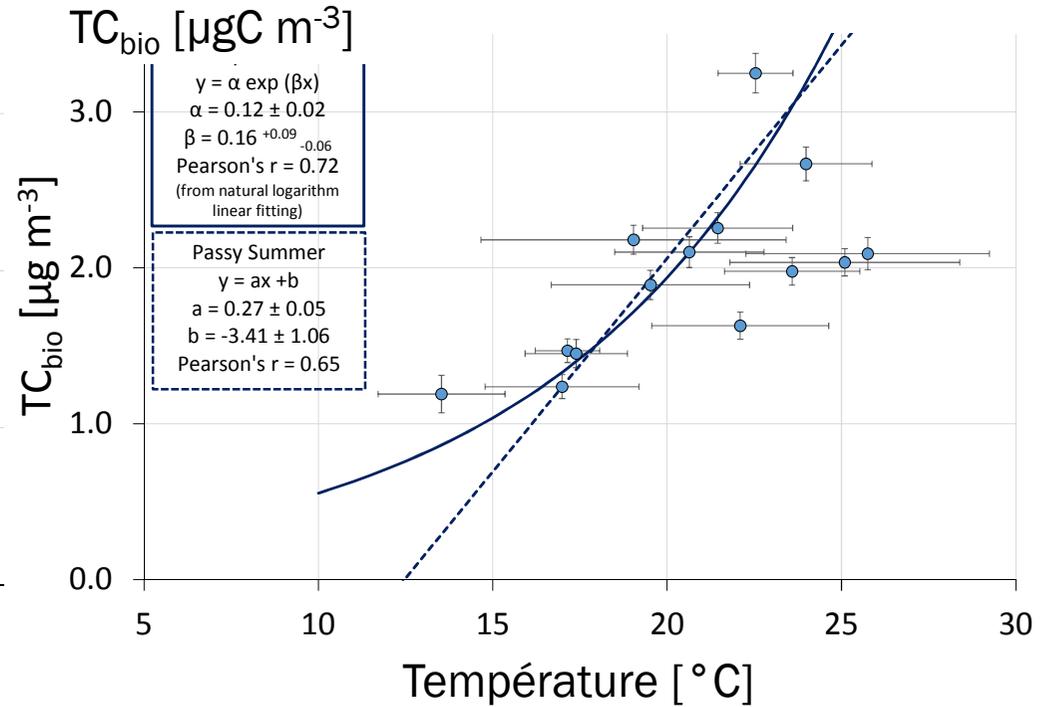
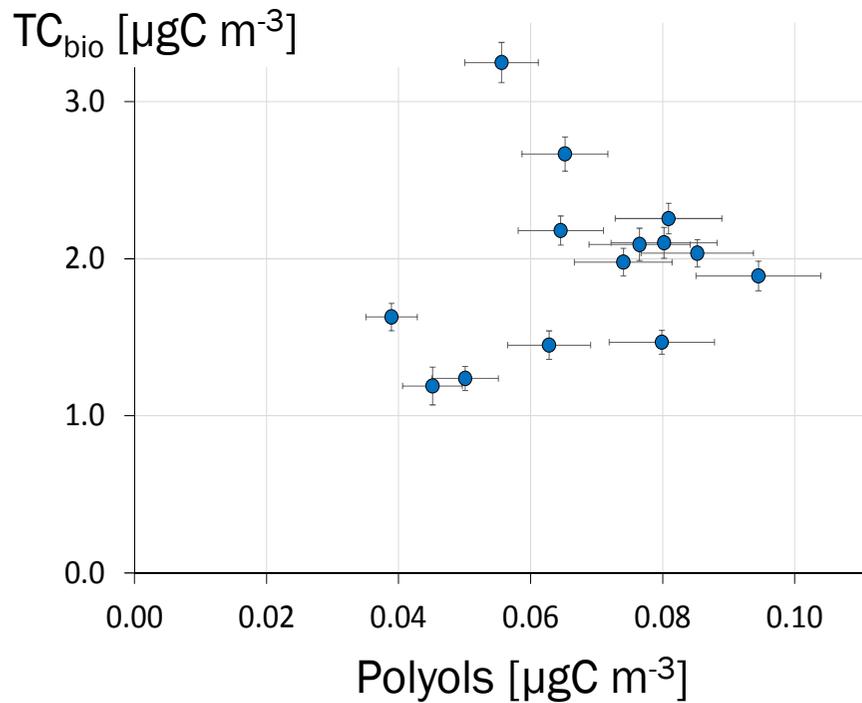
Diapositive 10

I8

DIAGRAMME DE PRINCIPE
BIO ET BB

lbonvalot; 06/12/2016

Vallée de l'Arve PM₁₀



Pas de corrélation entre polyols et TC_{bio}
 ⇒ Ne provient pas d'émission primaire

Corrélation exponentielle
 ⇒ Aérosol secondaire

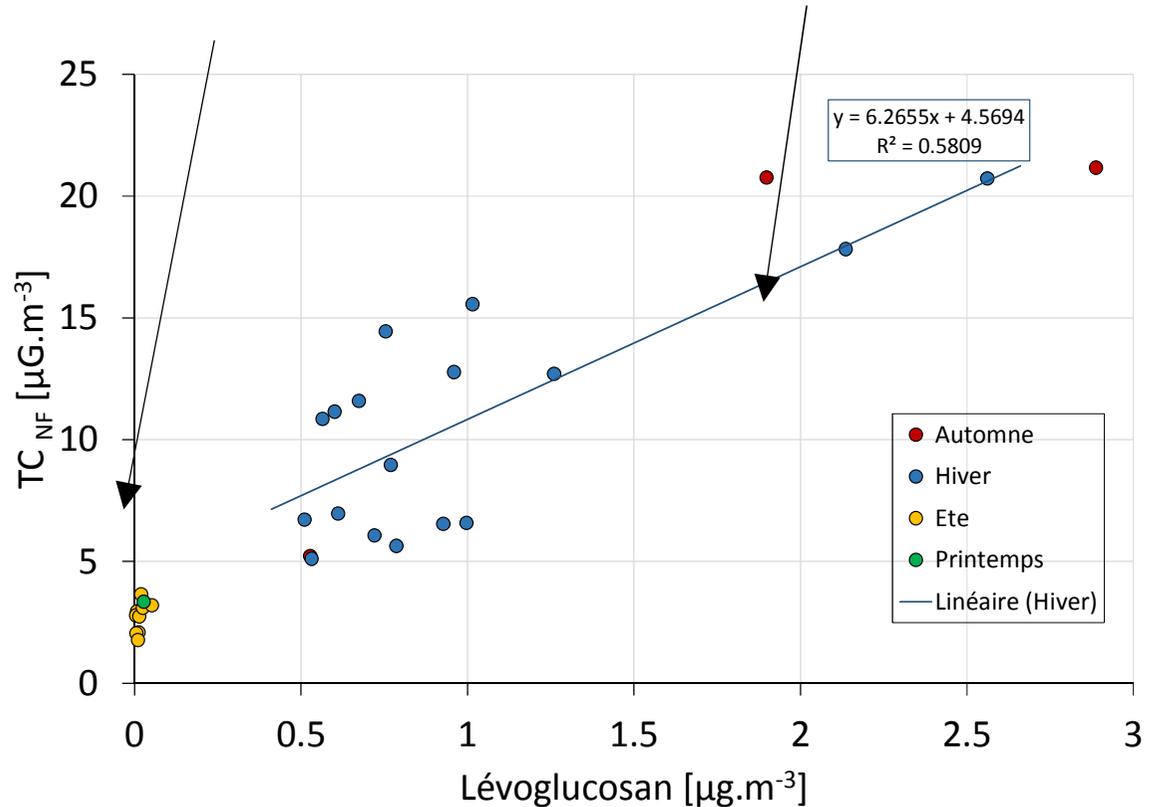
Fos sur Mer PM_{2,5}

Hiver
84-88% du carbone est non-fossile

Été
58% du carbone est non-fossile

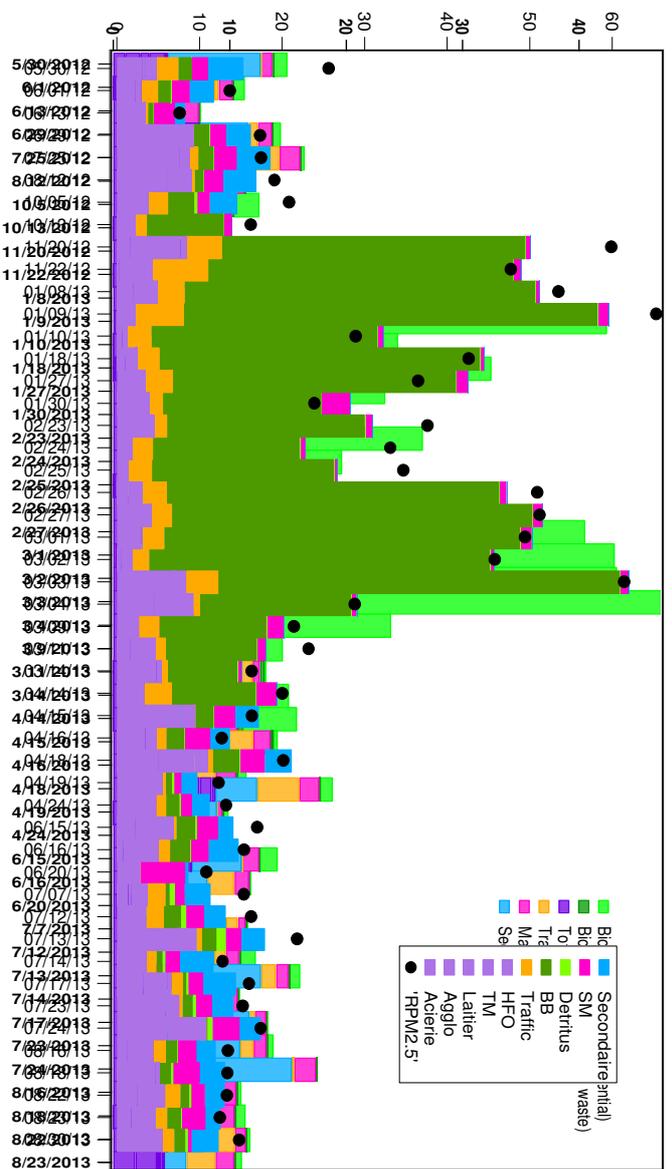
Ordonnée à l'origine $\neq 0$
BB n'est pas la seule source

Pente proche de celle obtenue
pour vallée de l'Arve



FOS sur Mer PM_{2,5}

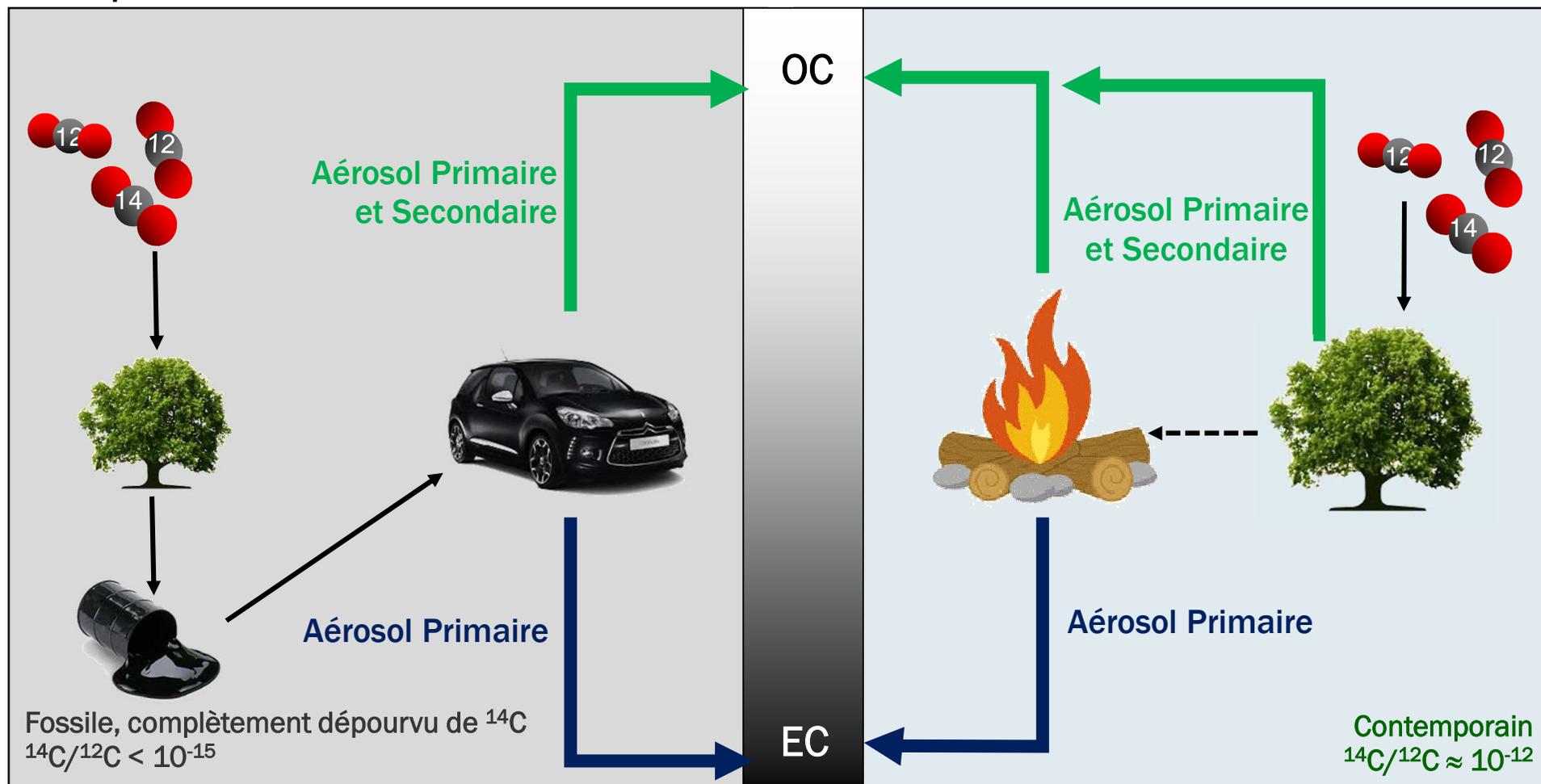
- Utilisation des résultats ¹⁴C par A. Sylvestre (LCE)
- Modèle ME2



⇒ Augmentation de la source BB

Analyse $O^{14}C-E^{14}C$

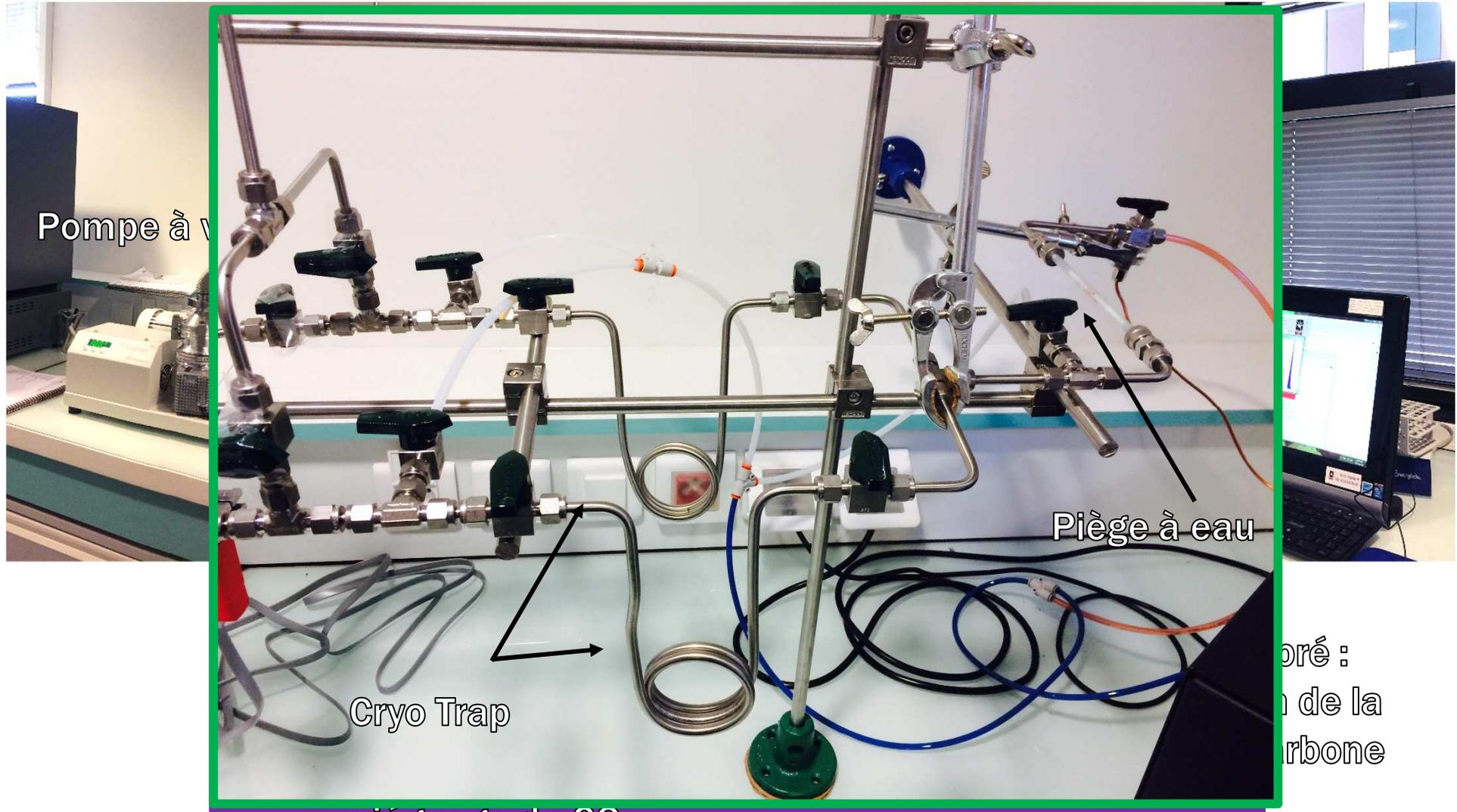
- La séparation OC-EC avant analyse ^{14}C permet une attribution plus détaillée



Slater et al., *Atmospheric Environment* 2002

Szidat et al., *Nuclear Instruments & Methods* 2004

Analyse $O^{14}C-E^{14}C$



ré :
de la
rbone

Diapositive 15

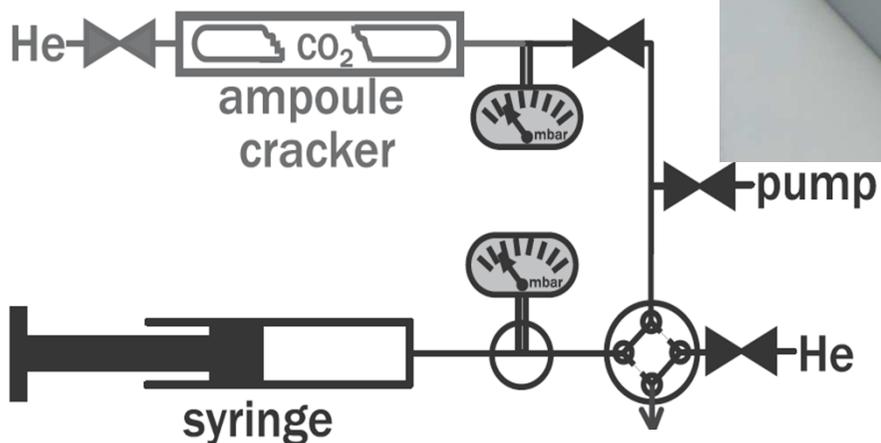
I2

nouvelle photo avec groupe de pompage + pc
lbonvalot; 06/12/2016

Analyse $O^{14}C-E^{14}C$

- Analyse « off-line »
- Reste plus rapide que la graphitisation

Cracker d'ampoules scellées contenant le CO_2



AixMICADAS

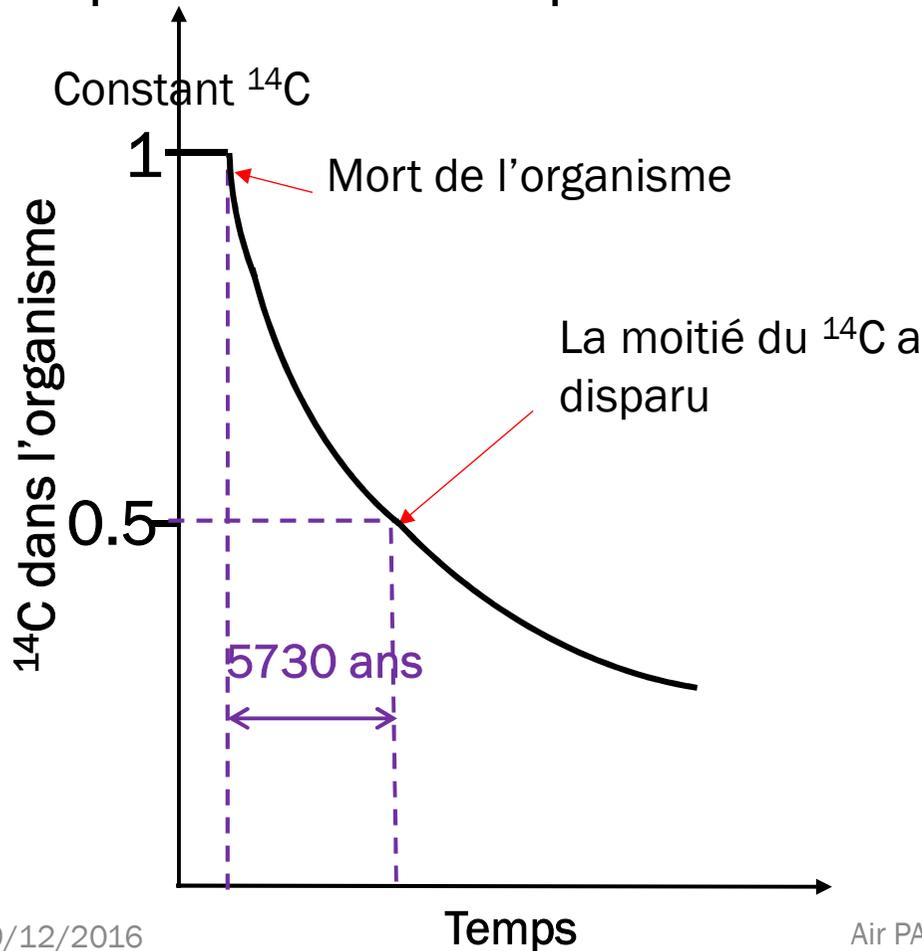


Seringue automatique avec moteur pas-à-pas, injectant un mélange CO_2 (5%) + He (95%) dans la source d'ions

**Merci de votre
attention**

Radiocarbone : généralités

- $T_{1/2} = 5730$ ans
- Après la mort d'un organisme, tout les 5730 ans, la quantité de ^{14}C qu'il contient diminue de moitié



Fuels fossiles, proviennent de matière organique sédimentaire

Beaucoup plus ancien que la demi-vie du ^{14}C

Complément dépourvu de ^{14}C

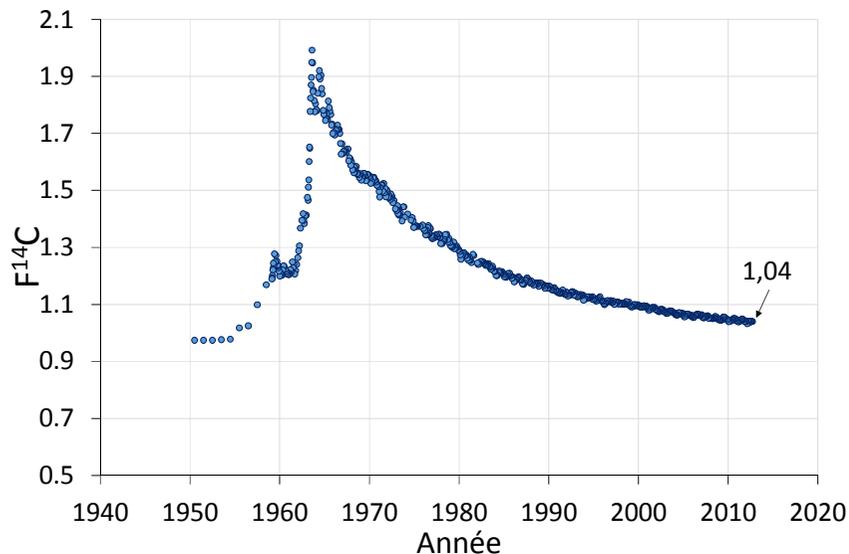
Diapositive 18

I1

PAS NECESSAIRE
lbonvalot; 06/12/2016

Radiocarbone : généralités

- $F^{14}C = \frac{A_{SN}}{A_{ON}}$, Fraction moderne, ne change pas suivant l'année de mesure
- $f_{NF} = \frac{F^{14}C}{f_{NF,ref}}$, Fraction non-fossile
- La fraction non fossile prend en compte la variation de $F^{14}C$ due aux pics des bombes.



$$F^{14}C_{bio} \leq f_{NF,ref} \leq F^{14}C_{bb}$$

$$1.04 \leq f_{NF,ref} \leq 1.10$$

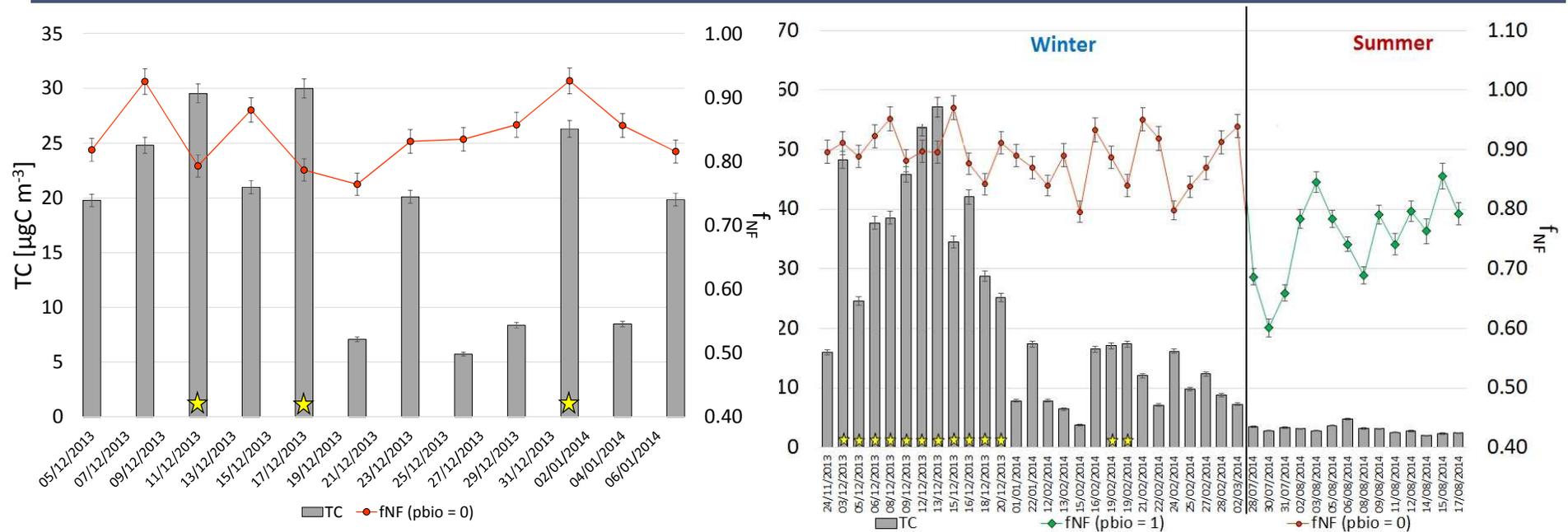
→ 6% variation on f_{NF}

Diapositive 19

I3

PAS NECESSAIRE
lbonvalot; 06/12/2016

Vallée de l'Arve PM₁₀



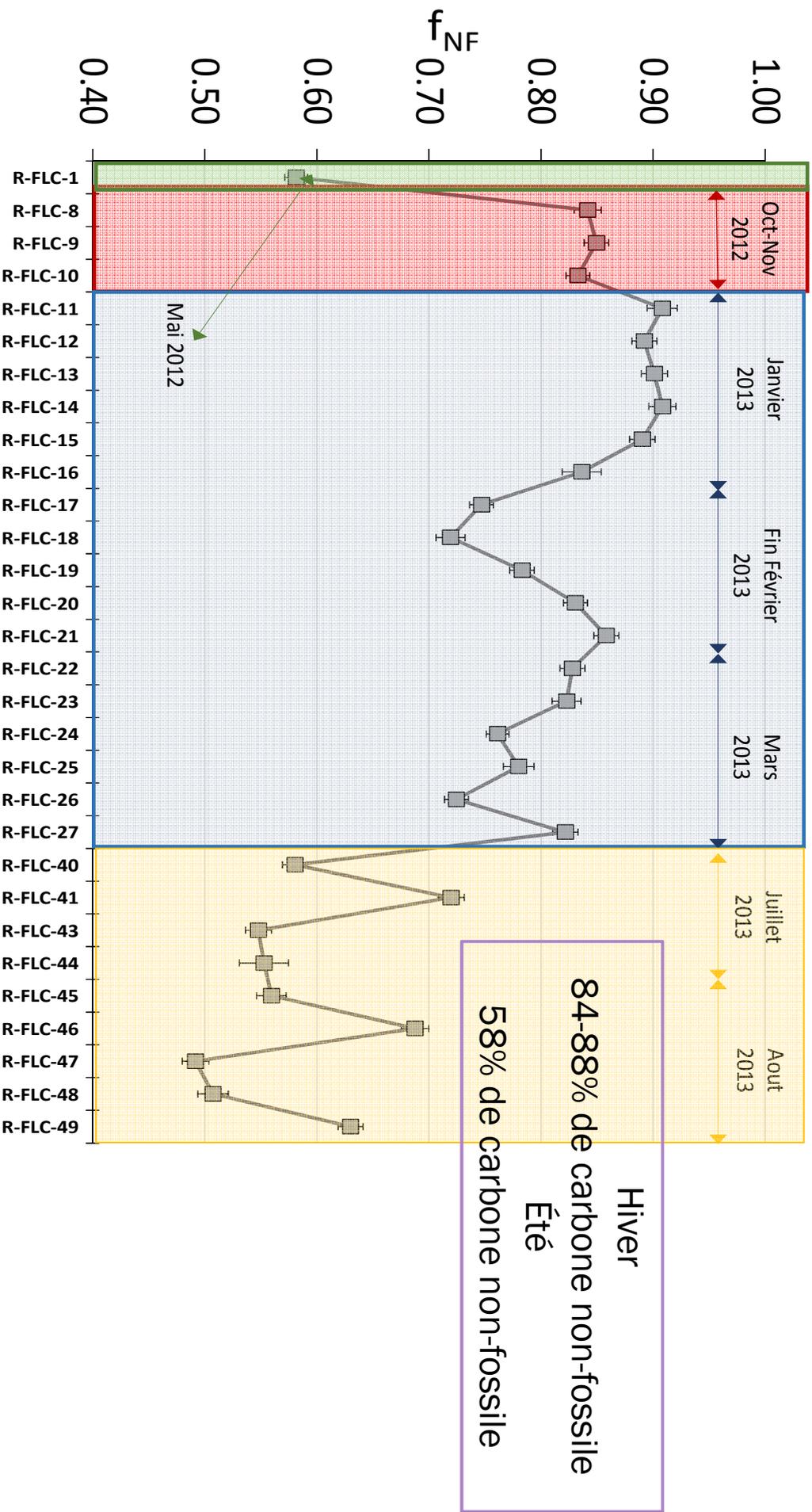
Fraction non-fossile largement dominante toute l'année
 85 % en hiver
 75 % en été

Diapositive 20

16

PAS NECESSAIRE
lbonvalot; 06/12/2016

FOS sur Mer PM_{2,5}



Diapositive 21

I10

PAS NECESSAIRE
lbonvalot; 06/12/2016

Vallée de l'Arve PM_{10}

- Fraction non-fossile dominante toute l'année
 - 85% en hiver, 75 % en été
- Très forte corrélation entre TC_{NF} et lévo en hiver
 - $TC_{NF} = TC_{BB}$
- TC_F et NO_x corrélés
 - Source de TC_F = émissions véhiculaires
- Aérosol secondaire semble composer la majeure partie de TC_{NF} en été

Diapositive 22

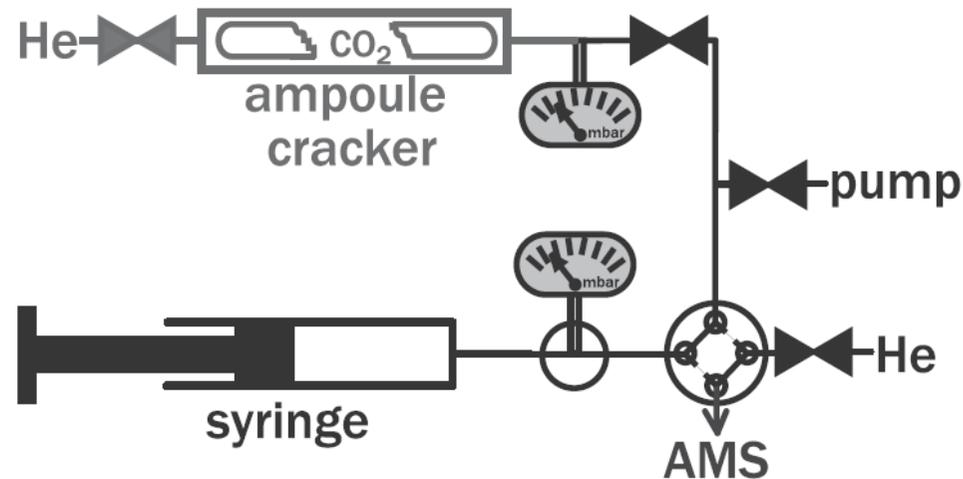
I9

PAS NECESSAIRE

lbonvalot; 06/12/2016

Analyse $O^{14}C-E^{14}C$

- Le CO_2 de chaque fraction est piégé dans une ampoule
- Analyse du ^{14}C en phase gazeuse, avec le « cracker ».



- Analyse « off-line »
- Reste plus rapide que la graphitisation

Conclusions ¹²

- Analyses rapides et facile à mettre en place en T¹⁴C
 - Analyses « de routine »
- Résultats ¹⁴C fiables
 - Protocoles de mesure validés
- Combiné avec des traceurs : nouvelles informations
- Intérêt dans l'utilisation de modèle

- Mesures de O¹⁴C-E¹⁴C
 - Meilleure connaissance du BC
 - Séparation des fractions organiques

