

# DEVELOPPEMENT D'UNE CAVITE MULTI SPECTRALE COMPACTE POUR LA CARACTERISATION EMBARQUEE D'AEROSOLS

G. Lefevre<sup>\*1</sup>, J. Yon<sup>1</sup> et M. Mazur<sup>1</sup>

<sup>1</sup>UMR 6614 CORIA, INSA de Rouen, 76800 Saint Etienne du Rouvray, France

\*Courriel de l'orateur : guillaume.lefevre@coria.fr

## TITLE: DEVELOPMENT OF A COMPACT MULTI-SPECTRAL CAVITY FOR ON-FLIGHT AEROSOL CHARACTERISATION

### RESUME

Dans cette étude, une cavité optique multispectrale (405, 450, 520 nm) permettant la mesure d'extinction et de diffusion à 90° est développée. Cette cavité a pour but d'être miniaturisée et finalement embarquée sur un drone pour des mesures résolues temporellement et spatialement afin d'étudier les panaches de fumées ou pour le monitoring de la qualité de l'air. L'une des premières étapes de ce développement, et qui est l'objet de cette étude, est la mise en place de la cavité et son étalonnage. En effet, la détermination des coefficients de réflexion des miroirs constituant la cavité et la calibration des capteurs sont une étape cruciale pour la qualité des mesures. Pour ce faire, nous avons utilisé la génération d'un aérosol « étalon » (miniCAST) en laboratoire couplée à la théorie de Rayleigh-Debye-Gans pour les agrégats fractals (RDG-FA). A termes, cette cavité permettra d'obtenir des informations sur la fraction volumique, leur taille ainsi que des informations sur leurs propriétés optiques via la dépendance spectrale de l'indice optique.

### ABSTRACT

In this study, a multispectral optical cavity (405, 450, 520 nm) allowing the measurement of extinction and scattering at 90° is developed. This cavity is intended to be miniaturized and eventually mounted on a UAV for temporally and spatially resolved measurements to study smoke plumes or for air quality monitoring. One of the first steps in this development, which is the subject of this study, is the design and commissioning of the cavity and its calibration. Indeed, the determination of the reflection coefficients of the mirrors constituting the cavity and the calibration of the sensors are a crucial step for the quality of the measurements. For this purpose, we used the generation of a "standard" aerosol (miniCAST) in the laboratory coupled with the Rayleigh Debye Gans for Fractal Aggregates (RDG-FA) theory. In the future, this cavity will provide information on the soot volume fraction, size and optical properties through the spectral dependence of the optical index.

**MOTS-CLES** : Nanoparticules, Cavité optique multispectrale, RDG-FA / **KEYWORDS** : Nanoparticles, Multiwavelength optical cavity, RDG-FA

## 1. INTRODUCTION

Il est reconnu depuis longtemps que les nanoparticules de suie sont nocives pour la santé cardiovasculaire humaine [1]. De même, les nanoparticules de suie émises dans l'atmosphère diffusent et absorbent le rayonnement solaire, affectant ainsi le bilan radiatif de l'atmosphère [2]. Cependant, leur contribution au changement climatique est toujours associée à de grandes incertitudes [3], ce qui est principalement dû au manque de données résolues temporellement et spatialement. Surtout, de telles mesures in-situ dans un panache de fumées de feux industriels ou au-dessus de zones urbaines restent un challenge de taille. Grâce au développement croissant des drones [4], des mesures in-situ résolues spatialement et temporellement deviennent envisageable de manière sécurisée. Cependant cela nécessite le développement d'appareils de mesures miniaturisés et légers qui conservent une précision acceptable.

Les modèles climatiques et la surveillance de la qualité de l'air dépendent fortement de ces mesures. En effet, des mesurandes telles que la concentration, la taille, la composition chimique, les propriétés optiques sont autant de données d'entrées cruciales pour la santé publique et l'environnement. Pour accéder à ce genre de grandeurs, il existe de nombreux appareils, le SMPS (Scanning Mobility Particle Spectrometer) par exemple pour la taille et la concentration [5], le PASS (Photo Acoustic Soot Spectrometer) [6–8] et/ou le Néphélomètre [9,10] pour les propriétés optiques d'absorption et de diffusion respectivement. Cependant, ces dispositifs sont souvent difficilement embarquables et leur dimension et leur masse ne permet pas un transport par drone. De plus, certains appareils nécessitent une phase de prélèvement et peuvent être très onéreux.

L'un des moyens permettant de déterminer un maximum d'informations (fraction volumique, taille, informations relatives au taux de composés organiques et aux propriétés optiques) de manière in situ et embarquable est la mesure d'extinction et de diffusion couplés [11,12]. En général, le coefficient de diffusion est mesuré avec un néphélomètre [13] ou un/des photomultiplicateur(s) à plusieurs angles [14,15] et le coefficient d'extinction peut être mesuré avec une cellule d'extinction optique [16,17] ou une cavité optique (CRDS [18–20], CEAS [21,22]).

Dans cette étude, nous nous intéresserons au développement d'une cavité optique couplant une mesure de coefficients d'extinction et de diffusion en polarisation verticale-verticale à 90°. L'avantage majeur de la cavité

optique est son chemin optique (et donc une sensibilité) supérieur à celui d'une cellule simple passage, une meilleure stabilité et robustesse aux vibrations qu'une cavité CRDS et la possibilité d'obtenir de nombreuses informations simultanément en utilisant un système compact et léger.

## 2. INSTALLATION EXPERIMENTALE

### 2.1. Génération d'aérosol de laboratoire

La Figure 1 représente le schéma de l'installation expérimentale utilisée pour la génération et l'acheminement de particules en laboratoire.

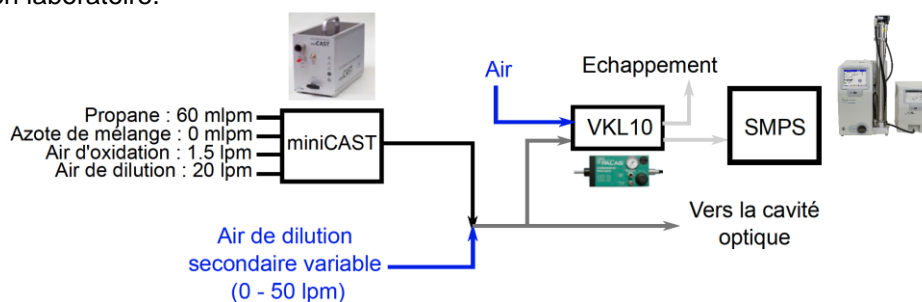


Figure 1 : Génération et conditionnement des particules

Afin de développer et d'étalonner la cavité optique permettant la mesure d'extinction et de diffusion en laboratoire, un générateur de particules commercial a été utilisé. Le miniCAST (real SOOT Generator Model 5201 Type C) conçu par Jing AG permet la génération de nanoparticules de suie issues d'une flamme de diffusion propane-azote entouré d'un coflow d'air. Le processus de formation des suies est figé par un flux d'azote (quench gaz) fixé à 7 lpm. Le contrôle des différents débits (A : Propane, B : Azote de mélange, C : Air d'oxydation et D : Air de dilution) permet la génération de nanoparticules de suie aux propriétés morphologiques, optiques et chimiques très variées. Au cours de travaux précédents, certains points de fonctionnement ont été caractérisés de manière approfondie (tailles caractéristiques, composition organique, microstructure, densité de la matière, propriétés optiques...) tant sur le plan expérimental [16,23] que numérique [24,25]. Dans cette étude, le point de fonctionnement CAST1 (A : 60 mlpm, B : 0 mlpm, C : 1.5 lpm et D : 20 lpm) dont les caractéristiques physiques sont connues a été utilisé comme référence pour l'étalonnage du dispositif optique. Ces propriétés physiques sont : le diamètre des particules primaires ( $\overline{D}_p = 26.6 \text{ nm}$ ), le préfacteur et la dimension fractale ( $k_f = 2.3$  et  $D_f = 1.8$ ) et les propriétés optiques à différentes longueurs d'ondes ( $E(m)$  et  $F(m)$ )

Une fois les particules générées par le miniCAST, celles-ci sont diluées une seconde fois par un apport d'air de dilution secondaire variable (0 – 50 lpm) permettant de faire varier la concentration en nombre. Après le deuxième étage de dilution, l'aérosol est séparé en deux voies. La première est envoyée vers un granulomètre SMPS (Classifieur 3082 TSI + Neutraliseur X-Ray TSI + Long DMA 3080 TSI + Compteur CPC 3756 TSI) protégé de la saturation par un troisième étage de dilution (VKL10, PALAS). Ces granulométries SMPS nous permettent de nous assurer de la taille (en diamètre de mobilité électrique) et de la concentration en nombre de l'aérosol analysé optiquement à l'aide de la cavité optique décrite dans la section suivante.

### 2.2. Cavité optique

La cavité optique est représentée schématiquement sur la Figure 2. Une source lumineuse (Diode Laser Combiner Free-space, Acalbf) constituée de trois diodes laser (405, 450 et 520 nm) chacune modulée par un signal TTL (Pulse Generato Mode 577 BNC) et décalé dans le temps afin d'identifier chaque longueur d'onde. Les faisceaux lumineux passent tout d'abord par un système de lentilles afin de générer des faisceaux parfaitement collimatés. Après collimation, le passage par une lame à retard demi-onde permet de produire des faisceaux polarisés (rectilignes et verticaux par rapport au plan d'incidence). Les faisceaux passent ensuite à travers deux miroirs espacés de 10 cm (constituant la cavité) partiellement réfléchissants ( $R > 0.9$ ). Le fait d'utiliser des miroirs partiellement réfléchissants permet de piéger une partie de la lumière (engendrant de multiples rebonds) et d'augmenter ainsi le chemin optique dans un espace réduit, ce qui est le principe de la CRDS (Cavity RingDown Spectroscopy). Le signal sortant du deuxième miroir est ensuite focalisé sur une photodiode (Model 818-BB-21 Newport) par une lentille de longueur focale 10 cm. Simultanément, le signal de diffusion (en polarisation verticale) est également enregistré à l'aide d'un  $\mu$ PMT (H12405-01 Hamamatsu).

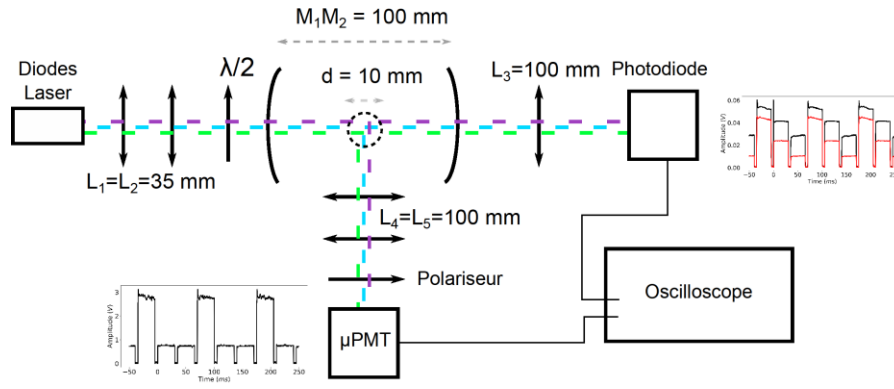


Figure 2 : Cavité optique

### 3. METHODE ET RESULTATS

Les coefficients d'extinction ( $K_{ext}$ ) et les coefficients de diffusion en polarisation verticale-verticale ( $K_{vv}$ ) peuvent être déterminés grâce aux mesures effectuées dans la cavité optique et peuvent être exprimés par les équations suivantes [11,12,26] :

$$K_{ext}(\lambda) = \frac{1}{d} \ln \left( \frac{1}{2R^2} \left( \sqrt{4R^2 + \left( \frac{I_0}{I_t} (R^2 - 1) \right)^2} + \frac{I_0}{I_t} (R^2 - 1) \right) \right) \approx \frac{1}{d} \left( \frac{I_0}{I_t} - 1 \right) (1 - R) \text{ Si } R \approx 1$$

$$K_{vv}(\lambda) = \alpha(\lambda) \frac{I_{vv}(\lambda)}{I_t(\lambda)}$$

Avec  $d = 10 \text{ mm}$  la longueur « simple passage » du milieu absorbant, dans notre cas la largeur du faisceau de particule,  $R(\lambda)$  le coefficient de réflexion des miroirs à la longueur d'onde  $\lambda$ ,  $I_0(\lambda)$  et  $I_t(\lambda)$  les intensités transmises par la cavité sans et avec milieu absorbant (aérosol) respectivement et  $I_{vv}(\lambda)$  l'intensité diffusée en polarisation vertical-vertical à  $90^\circ$ . Le coefficient  $\alpha(\lambda)$  correspond à une constante de calibration de la réponse du  $\mu\text{PMT}$  mesurant la diffusion à  $90^\circ$ .

Comme décrit avant, la calibration de la cavité optique est réalisée en comparant la réflectivité des miroirs  $R(\lambda)$  et les coefficients de calibration  $\alpha(\lambda)$  déterminés expérimentalement à partir du point de fonctionnement CAST1 avec les mêmes grandeurs obtenues avec la théorie analytique de Rayleigh Debye Gans for Fractal Aggregate (RDG-FA).

En effet, d'après la RDG-FA, les coefficients d'extinction et de diffusion v-v s'écrivent [27,28] :

$$K_{ext} = N_{tot} \frac{4\pi x_p^3}{k^2} E(m) \overline{N_p} + N_{tot} \frac{8\pi x_p^6}{3k^2} F(m) \overline{N_p^2 g}$$

$$\left( \frac{dK_{sca}}{d\Omega} \right)_{vv}^{\theta=90^\circ} = K_{vv}^{\theta=90^\circ} = \frac{8\pi x_p^6 F(m)}{3k^2} N_{tot} \overline{N_p^2 f^{\theta=90^\circ}}$$

Avec  $x_p = \frac{\pi D_p}{\lambda}$  le paramètre de taille,  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ ,  $E(m) = \text{Im} \left( \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)$  et  $F(m) = \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2$  les propriétés optiques d'absorption et de diffusion avec  $m$  l'indice de réfraction complexe des particules,  $\overline{N_p} = \frac{\int_{D_{min}}^{D_{max}} N_p(D_m) \cdot n(D_m) \cdot dD_m}{\int_{D_{min}}^{D_{max}} n(D_m) \cdot dD_m}$ ,  $\overline{N_p^2 g} = \frac{\int_{D_{min}}^{D_{max}} N_p^2(D_m) g(R_g, k, D_f) \cdot n(D_m) \cdot dD_m}{\int_{D_{min}}^{D_{max}} n(D_m) \cdot dD_m}$  et  $\overline{N_p^2 f^{\theta=90^\circ}} = \frac{\int_{D_{min}}^{D_{max}} N_p^2(D_m) f(qR_g) \cdot n(D_m) \cdot dD_m}{\int_{D_{min}}^{D_{max}} n(D_m) \cdot dD_m}$  des paramètres qui dépendent des distributions de taille de mobilité électrique obtenues par mesures SMPS, et de paramètres morphologiques comme le préfacteur et la dimension fractale déjà connus.

La Figure 3a montre la comparaison entre les coefficients d'extinction déterminés par la RDG-FA et ceux obtenus expérimentalement pour différentes concentrations (en agissant sur le débit de dilution d'air secondaire). Sur ce graphique, les coefficients d'extinction issus de la RDG-FA sont calculés à partir des données

physiques du point de fonctionnement CAST1 ( $D_p$ ,  $k_f$ ,  $D_f$ ,  $E(m)$ ,  $F(m)$ ), et des distributions de taille obtenues par SMPS. Quant aux coefficients d'extinction expérimentaux, les coefficients de réflexion ( $R(\lambda)$ ) sont ajustés pour s'accorder sur la RDG-FA, on trouve ainsi  $R_{405} = 0.65$ ,  $R_{450} = 0.971$  et  $R_{520} = 0.95$ . Avec ces valeurs de  $R$ , l'accord semble correct entre la RDG-FA et les valeurs expérimentales pour les longueurs d'ondes 450 et 520 nm. En revanche, pour la longueur d'onde 405 nm, pour laquelle nous obtenons un coefficient de réflexion de 0.65 (inférieur à  $\approx 0.9$  attendu), l'accord entre RDG-FA est moins bon, en particulier pour des concentrations ( $N_{tot}$ ) élevées. Ce désaccord aux grandes concentrations peut être lié au phénomène d'agglomération. En effet, les temps de séjours dans le tube conduisant au SMPS (0.3 lpm) ne varient pas alors que ceux menant à la cavité (20 – 70 lpm) dépendent du taux de dilution. Ainsi, il est possible que pour de faibles dilutions, les diamètres obtenus par SMPS ne soient pas parfaitement représentatifs des diamètres des particules réellement présentes dans la cavité. Cette différence de diamètres peut entraîner un biais sur l'estimation des coefficients d'extinction calculés par RDG-FA. Cet écart devient également accru pour de faible longueur d'onde, là où la diffusion prend une part plus importante dans le calcul de l'extinction (lorsque la taille augmente et où la fonction de diffusion  $F(m)$  augmente également). A priori, à diamètre constant, le coefficient d'extinction devrait varier linéairement avec la concentration. Les ondulations des  $K_{ext}$  observées sur le graphe sont liées au fait que le diamètre varie également avec la dilution (phénomène d'agglomération). Ce phénomène est plutôt bien reproduit par les  $K_{ext}$  calculés par la RDG-FA et suit une bonne tendance par rapport à l'expérience.

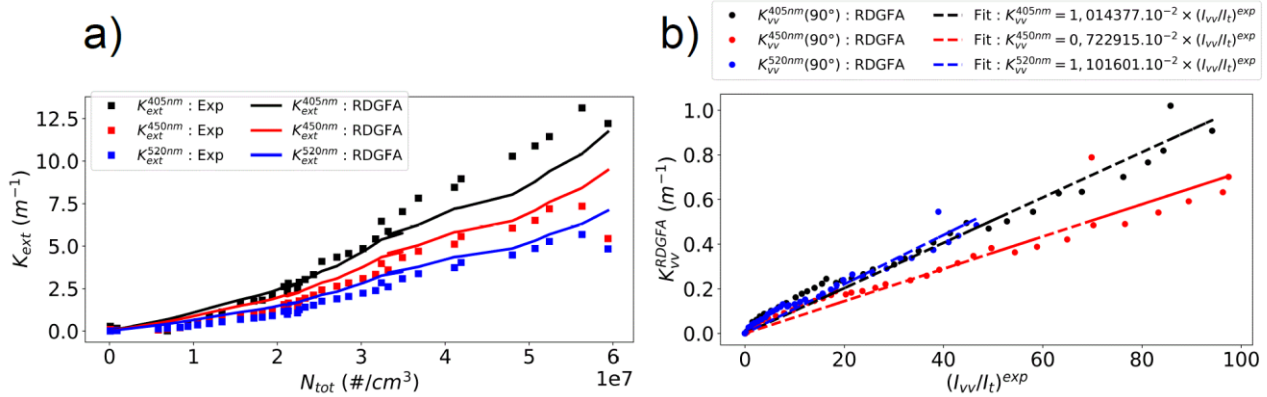


Figure 3 : a) Détermination empirique des coefficients de réflexion des miroirs  $R(\lambda)$  de la cavité, b) Détermination des constantes de calibration du  $\mu$ PMT  $\alpha(\lambda)$  pour la mesure de diffusion

En ce qui concerne la mesure de diffusion, les coefficients de diffusion vertical-vertical à  $90^\circ$  sont également calculés par RDG-FA dans les mêmes conditions que l'extinction. La Figure 3b reporte les coefficients de diffusion vertical-vertical à  $90^\circ$  issus de la RDG-FA en fonction du rapport  $I_{vv}/I_t$  expérimental mesuré pour différentes dilutions secondaires. Les coefficients directeurs des différentes courbes en pointillés correspondent aux constantes de calibrations pour chaque longueur d'onde, on trouve  $\alpha_{405} = 1,014377.10^{-2}$ ,  $\alpha_{450} = 0,722915.10^{-2}$ ,  $\alpha_{520} = 1,10601.10^{-2}$ . On observe une variation quasi linéaire du  $K_{vv}$  calculé par RDG-FA avec le rapport  $I_{vv}/I_t$  expérimental. Cependant, nous constatons deux « régimes » pour des valeurs de  $I_{vv}/I_t < 20$  là où la dilution est importante (plus faibles concentrations) et  $I_{vv}/I_t > 20$  correspondant à de plus fortes concentrations. Dans les deux cas, la tendance est linéaire. Comme pour la Figure 3a, ceci peut s'expliquer par le phénomène d'agglomération discuté précédemment.

#### 4. CONCLUSION

Dans cette étude, nous présentons le développement et la calibration d'une cavité optique à trois longueurs d'onde destinée à faire des mesures in situ de plusieurs paramètres liés à la fraction volumique, la taille et les propriétés optiques des aérosols. Pour ce faire, des mesures simultanées d'extinction et de diffusion en polarisation verticale-verticale (à  $90^\circ$ ) ont été étalonnées grâce à la génération en laboratoire d'aérosols polydispersés issus du miniCAST. Ces mesures, couplée à la théorie analytique de la RDG-FA, ont permis l'évaluation des performances de l'instrument, ainsi que la détermination des coefficients de réflexion des miroirs constituant la cavité et les constantes de calibration du  $\mu$ PMT effectuant les mesures de diffusion. En s'appuyant sur un montage compact et léger, cette technique, désormais calibrée, offre une alternative potentiellement embarquable sur drone et relativement peu onéreuse pour la détermination de paramètres primordiaux dans le domaine de la mesure des aérosols présents dans les panaches de feux et en lien avec le contrôle de la qualité de l'air.

## ACKNOWLEDGEMENT :

Le projet INTERREG France (Manche) Angleterre : FIREDRONE est cofinancé par le Fonds Européen de Développement Régional (FEDER)

## RÉFÉRENCES :

1. M. Z. Jacobson, *J. Geophys. Res. Atmospheres* **115**, (2010).
2. T. C. Bond, S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, B. J. DeAngelo, M. G. Flanner, S. Ghan, B. Kärcher, and D. Koch, *J. Geophys. Res. Atmospheres* **118**, 5380 (2013).
3. Q. Lu, C. Liu, D. Zhao, C. Zeng, J. Li, C. Lu, J. Wang, and B. Zhu, *Atmospheric Res.* **240**, 104891 (2020).
4. M. Pikridas, S. Bezantakos, G. Močnik, C. Keleshis, F. Brechtel, I. Stavroulas, G. Demetriades, P. Antoniou, P. Vouterakos, M. Argyrides, E. Liakakou, L. Drinovec, E. Marinou, V. Amiridis, M. Vrekoussis, N. Mihalopoulos, and J. Sciare, *Atmospheric Meas. Tech.* **12**, 6425 (2019).
5. G. Lefevre, J. Yon, M. Bouvier, F. Liu, and A. Coppalle, *Environ. Sci. Technol.* **53**, 6383 (2019).
6. D. A. Lack, E. R. Lovejoy, T. Baynard, A. Pettersson, and A. R. Ravishankara, *Aerosol Sci. Technol.* **40**, 697 (2006).
7. J. R. Wiegand, L. D. Mathews, and G. D. Smith, *Anal. Chem.* **86**, 6049 (2014).
8. D. A. Fischer and G. D. Smith, *Aerosol Sci. Technol.* **52**, 393 (2018).
9. W. P. Arnott, K. Hamasha, H. Moosmüller, P. J. Sheridan, and J. A. Ogren, *Aerosol Sci. Technol.* **39**, 17 (2005).
10. S. Singh, M. N. Fiddler, and S. Bililign, *Atmospheric Chem. Phys.* **16**, 13491 (2016).
11. W. Zhao, X. Xu, M. Dong, W. Chen, X. Gu, C. Hu, Y. Huang, X. Gao, W. Huang, and W. Zhang, *Atmospheric Meas. Tech.* **7**, 2551 (2014).
12. X. Xu, W. Zhao, B. Fang, J. Zhou, S. Wang, W. Zhang, D. S. Venables, and W. Chen, *Opt. Express* **26**, 33484 (2018).
13. A. Petzold, T. Onasch, P. Keabian, and A. Freedman, *Atmospheric Meas. Tech.* **6**, 1141 (2013).
14. M. Bouvier, J. Yon, G. Lefevre, and F. Grisch, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **225**, 58 (2019).
15. C. Caumont-Prim, J. Yon, A. Coppalle, F.-X. Ouf, and K. Fang Ren, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **126**, 140 (2013).
16. A. Bescond, J. Yon, F.-X. Ouf, C. Rozé, A. Coppalle, P. Parent, D. Ferry, and C. Laffon, *J. Aerosol Sci.* **101**, 118 (2016).
17. G. Lefevre, J. Yon, F. Liu, and A. Coppalle, *Atmos. Environ.* **186**, 89 (2018).
18. Y. He and B. J. Orr, *Appl. Phys. B* **75**, 267 (2002).
19. F. V. English, Y. He, and B. J. Orr, *Appl. Phys. B* **94**, 1 (2009).
20. Z. Li, W. Ma, X. Fu, W. Tan, G. Zhao, L. Dong, L. Zhang, W. Yin, and S. Jia, *Opt. Express* **21**, 17961 (2013).
21. Y. He and B. J. Orr, *Chem. Phys. Lett.* **319**, 131 (2000).
22. K. Zheng, C. Zheng, Y. Zhang, Y. Wang, and F. K. Tittel, *Sensors* **18**, 3646 (2018).
23. A. Bescond, Rouen (2015).
24. J. Yon, A. Bescond, and F. Liu, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **162**, 197 (2015).
25. F. Liu, J. Yon, and A. Bescond, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **172**, 134 (2016).
26. A. W. Strawa, R. Castaneda, T. Owano, D. S. Baer, and B. A. Paldus, *J. Atmospheric Ocean. Technol.* **20**, 454 (2003).
27. T. L. Farias, Ü. Ö. Köylü, and M. da G. Carvalho, *Appl. Opt.* **35**, 6560 (1996).
28. C. M. Sorensen, J. Yon, F. Liu, J. Maughan, W. R. Heinson, and M. J. Berg, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **217**, 459 (2018).