COUPLAGE DE MESURES D'EXTINCTION ET DE DIFFUSION ANGULAIRE DE LA LUMIERE POUR LA CARACTERISATION (2D) DE NANOPARTICULES DE SUIE DANS UNE FLAMME

G. Lefevre^{*1}, J. Yon¹, A. Fuentes², M. Littin^{1,2} and M. Mazur¹

¹ UMR 6614 CORIA, INSA de Rouen, 76800 Saint Etienne du Rouvray, France

² Departamento de Industrias, Universidad Técnica Federico Santa María, Av. España 1680, Valparaíso,

Chile

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

TITLE: Coupling of Extinction and Angular Light Scattering measurements for the (2D) characterization of soot nanoparticles in a flame

RESUME

Dans cette étude, la mise en place d'un banc de métrologie optique permettant la mesure d'extinction et de diffusion angulaire à différentes longueurs d'ondes par des nanoparticules de suie issus d'une flamme de laboratoire est présentée. Le couplage de ces mesures optiques, associé à une théorie analytique de l'interaction lumière-nanoparticules (Rayleigh Debye Gans for Fractal Aggregate RDG-FA) permet l'estimation inédite de champs 2D de différentes mesurandes au sein de particules telles que la fraction volumique, la taille ou des variations de l'indice optique induites par la modification de leur composition.

ABSTRACT

In this study, the implementation of an optical bench allowing the measurement of extinction and angular scattering at different wavelengths on soot nanoparticles from a laboratory flame is presented. The coupling of these optical measurements, associated with an analytical theory of the light-nanoparticle interaction (Rayleigh Debye Gans for Fractal Aggregate RDG-FA), allows an original estimation of 2D fields of different measurands within particles such as volume fraction, size, or variations of the optical index caused by a change of composition of the particles.

MOTS-CLES: Nanoparticules, mesures optiques multi longueur d'onde, RDG-FA / **KEYWORDS**: Nanoparticles, Multiwavelength optical measurement, RDG-FA

1. INTRODUCTION

L'impact sanitaire et environnemental des nanoparticules de suie est maintenant avéré [1–4]. Cependant, leur caractérisation est toujours associée à de grandes incertitudes [5]. Par ailleurs, de telles mesures in-situ dans une flamme, lors d'incendies ou dans des zones urbaines restent un défi important. En effet, il existe de nombreux appareils pour mesurer la taille et la concentration, ainsi que les propriétés d'absorption et de diffusion [9–11] de la lumière par ces particules. Cependant, ces dispositifs sont souvent difficilement embarquables. De plus, certains appareils nécessitent une phase de prélèvement (ce qui réduit leur réactivité) et peuvent être très onéreux.

Grace au développement croissant des drones [6], des mesures in-situ résolues spatialement et temporellement deviennent envisageable de manière sécurisée et permettront la surveillance de la qualité de l'air à un prix accessible et avec une rapidité et une réactivité plus importantes pour intervenir par exemple pendant un incendie [7,8]. Cependant, cela nécessite le développement d'appareils de mesures miniaturisés et légers qui conservent une précision acceptable.

Une méthode permettant la détermination optique in situ des informations telles que la fraction volumique ou la maturité des particules de suie est la technique dite « Line of Sight Attenuation » (LOSA) [12]. Cette technique repose sur une mesure d'intensité lumineuse transmise (avec et sans aérosol) permettant le calcul d'un coefficient d'extinction. Une autre technique optique qui permet la détermination de paramètres caractéristiques des particules de suie comme la taille des particules ou la fonction de diffusion (liée à l'indice optique) est la mesure de diffusion angulaire (Horizontal Planar Angular Light Scattering (HPALS) [13].

L'objectif de ce travail est de montrer la plus-value du couplage de ces deux techniques (LOSA et HPALS) à différentes longueurs d'onde (405, 480, 550, 640, 750 nm) (voir Figure 1) sur un dispositif académique afin de faire émerger un protocole d'analyse qui pourra être, par la suite, miniaturisé.

La combinaison de ces deux techniques, couplée à une théorie de l'interaction lumière nanoparticules (RDG-FA) conduit à des informations clés pour la caractérisation des suies. Ainsi, dans ce dispositif, des cartographies 2D inédites de taille, de fraction volumique, de maturité (variation d'indice optique) sont obtenues et présentées. Ces informations sont d'un intérêt certain dans les domaines des aérosols atmosphériques, des incendies, de la qualité de l'air, de la combustion.

2. INSTALLATION EXPERIMENTALE

2.1. Flamme étudiée

La présente étude est réalisée sur une flamme de diffusion éthylène-air à coflow axisymétrique laminaire en utilisant un brûleur de type Gülder à pression atmosphérique. Il est constitué d'un tube central de 10,9 mm de diamètre intérieur pour l'injection du combustible, entouré d'un tube coannulaire de 90 mm de diamètre intérieur utilisé pour l'alimentation en air du coflow [14]. Deux régulateurs de débit massique ont été utilisés pour fournir des débits constants d'éthylène pur (à 0,194 slpm) et d'air (à 150 slpm).

2.2. Banc de métrologie optique

Pour obtenir les images 2D d'extinction et d'émission propre ainsi que la diffusion angulaire et spectrale de la flamme, une campagne expérimentale de mesures a été réalisée à l'aide du dispositif expérimental présenté à la Figure 1. Pour cela, une source LED (CELESTA) multispectrale (405, 480, 520, 550, 638, 750 nm) est utilisée. La lumière est ensuite collimatée en plaçant une lentille achromatique (f =300 mm) entre la source lumineuse et la flamme. Pour les mesures LOSA (Extinction et émission propre spectrale) et de diffusion angulaire, une roue à filtre (405, 480, 520, 550, 638, 750 nm) couplée à une caméra CCD (Thorlabs) et un objectif (Canon 200 mm) sont montés sur un bras rotatif et motorisé. Les mesures LOSA sont réalisées en ligne (0°) et les mesures de diffusion sont réalisées à différents angles (8.0, 14.8, 27.7, 52.6, 110.2°)



Figure 1 : Installation expérimentale – Mesures d'émission propre, d'extinction et de diffusion angulaire et spectrale d'une flamme

3. METHODE ET RESULTATS

Après une inversion d'Abel des images expérimentales et calibration de l'installation expérimentale pour chaque longueur d'onde de détection, l'émission propre *J* et les coefficients d'extinction K_{ext} et de diffusion K_{vv} peuvent être obtenus :

$$J(r, z, \lambda) = K_{abs}(r, z, \lambda) \times B(T(r, z), \lambda)$$

$$K_{ext}(r, z, \lambda) = K_{abs}(r, z, \lambda) \times (1 + \alpha_{\lambda}) \approx \frac{6\pi E(m) f_{v}}{\lambda}$$
$$K_{vv}(r, z, \lambda) = \frac{N_{agg} V_{agg}^{2} 9\pi^{2} F(m)}{\lambda^{4}} f(qR_{g})$$

Où $B(T(r,z),\lambda)$ représente la loi de Planck à la température T(r,z), α_{λ} la contribution de la diffusion dans l'extinction (qui peut être considérée négligeable pour les plus grandes longueurs d'onde (750 nm), E(m) et F(m) sont les fonctions d'absorption et de diffusion (dépendant de l'indice complexe de réfraction des particules), f_v la fraction volumique de particule, N_{agg} et V_{agg} la concentration en nombre et le volume d'un agrégat respectivement et $f(qR_g)$ un facteur de structure qui varie avec l'angle de détection et qui est dépendant de la taille des agrégats caractérisés par un rayon de gyration (R_g) .

Dans un premier temps, en couplant les mesures d'émission propre et d'extinction, il est possible de retrouver la température des particules :

$$T_{J/K_{ext}} = \left(-\frac{k_b \lambda}{hc} \ln\left(\frac{\lambda^5 J}{2hc^2 K_{abs}}\right)\right)^{-1} \text{ (voir Figure 2)}$$

La température déterminée précédemment permet d'avoir accès à l'évolution spectrale de la fonction d'absorption :

$$\frac{E(m,\lambda)}{E(m,\lambda_{ref})} = \frac{J(\lambda)}{J(\lambda_{ref})} \frac{\lambda}{\lambda_{ref}} \frac{B(T,\lambda_{ref})}{B(T,\lambda)} = \left(\frac{\lambda}{\lambda_{ref}}\right)^{-\beta}$$
(voir Figure 3)

Avec β un coefficient qui caractérise la dépendance spectrale de E(m) et $\lambda_{ref} = 750 nm$. Il est reconnu que la dépendance spectrale de la fonction d'absorption est fortement corrélée à la maturité des particules. En effet, une décroissance spectrale importante de la fonction d'absorption est caractéristique d'un taux de composés organique important. Ainsi, basé sur un modèle de dispersion développé au laboratoire par Bescond et al. [15], une loi reliant la valeur de β et le taux de composés organique est utilisée pour la détermination du taux de composés organiques et de la maturité des particules.

Une fois la maturité des particules déterminée, le modèle de dispersion peut donner accès à une valeur absolue de la fonction d'absorption et de diffusion et permet ainsi de déterminer la fraction volumique des suies. En effet, grâce aux mesures d'extinction à 750 nm (où la diffusion peut être négligeable), la fraction volumique est telle que :

$$f_{v} \approx \frac{K_{ext}(\lambda) \times \lambda}{6\pi E(m,\lambda)}$$
 (voir Figure 4)

Enfin, pour les mesures de diffusion angulaire et spectrale, en modélisant les coefficients de diffusion avec la RDG-FA, il est possible de déterminer un rayon de giration équivalent monodisperse pour chaque longueur d'onde de détection :

$$K_{vv}(r, z, \lambda) = \frac{N_{agg} V_{agg}^2 9\pi^2 F(m)}{\lambda^4} f(qR_g) \text{ (voir Figure 5)}$$

Avec :

$$f(qR_g) = \begin{cases} exp\left(-\frac{\left(qR_g\right)^2}{3}\right) & si \left(qR_g\right)^2 \le \frac{3}{2}D_f \\ \left(\frac{3}{2e}\frac{D_f}{\left(qR_g\right)^2}\right)^{\frac{D_f}{2}} & si \left(qR_g\right)^2 > \frac{3}{2}D_f \end{cases}$$

Les figures ci-dessous montrent des profils de température, de taux d'organiques de fractions volumiques de suie et de taille des particules de suies à une hauteur au-dessus du brûleur de HAB = 30 mm.





Figure 3 : Profil radial de maturité des particules à HAB = 30 mm



Figure 4 : Profil radial de fraction volumique à HAB = 30 mm



Figure 5 : Profil radial de taille (rayon de giration) à HAB = 30 mm

4. CONCLUSION

Dans cette étude, nous présentons le développement d'un banc de métrologie optique multispectrale couplant des mesures d'émission propre, d'extinction et de diffusion angulaire destiné à permettre des mesures in situ dans une flamme de diffusion afin de déterminer plusieurs paramètres liés à la fraction volumique, la maturité ou la taille des particules. Ces mesures, couplée à des modèles (modèle de dispersion, RDG-FA), ont permis l'évaluation de champs 2D de mesurandes d'intérêt certain dans de nombreux domaines comme la combustion, la pollution atmosphérique ou encore le secteur automobile.

Les travaux ont été réalisés dans le cadre du projet européen Interreg transmanche FIREDRONE, qui a pour but de développer un système de mesure embarquable qui donnera accès à ces mesurandes. La présente étude sert à vérifier le principe de mesure et les résultats serviront de référence pour la validation des essais d'une version miniaturisée qui sera embarqué sur drone. Ce système permettra ainsi le suivi en temps réel et de façon résolue spatialement des particules fines présentes dans des panaches de fumées lors d'incendies industriels.

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. Ministère de l'Intérieur. Direction générale de la Sécurité Civile et de la gestion des crises, (2017).
- 3. A. A. Stec, K. E. Dickens, M. Salden, F. E. Hewitt, D. P. Watts, P. E. Houldsworth, and F. L. Martin, Sci. Rep. 8, 2476 (2018).
- 4. H. Couve, L. Morel, and S. Saurel, Ecole Natl. Supér. Off. Sapeurs-Pomp. (2016).
- 5. Q. Lu, C. Liu, D. Zhao, C. Zeng, J. Li, C. Lu, J. Wang, and B. Zhu, Atmospheric Res. 240, 104891 (2020).
- 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).
- 7. S. Prichard, N. S. Larkin, R. Ottmar, N. H. F. French, K. Baker, T. Brown, C. Clements, M. Dickinson, A. Hudak, A. Kochanski, R. Linn, Y. Liu, B. Potter, W. Mell, D. Tanzer, S. Urbanski, and A. Watts, Atmosphere **10**, 66 (2019).
- 8. ESRL Chemical Sciences Division. FIREX-AQ., (2019).
- 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. G. Lefevre, J. Yon, M. Bouvier, F. Liu, and A. Coppalle, Environ. Sci. Technol. 53, 6383 (2019).
- 12. J. Yon, J. J. Cruz, F. Escudero, J. Morán, F. Liu, and A. Fuentes, Combust. Flame 227, 147 (2021).
- 13. J. Yon, J. Morán, F. Lespinasse, F. Escudero, G. Godard, M. Mazur, F. Liu, and A. Fuentes, Combust. Flame 232, 111539 (2021).
- 14. D. R. Snelling, K. A. Thomson, G. J. Smallwood, and Ö. L. Gülder, Appl. Opt. 38, 2478 (1999).
- 15. A. Bescond, J. Yon, F.-X. Ouf, C. Rozé, A. Coppalle, P. Parent, D. Ferry, and C. Laffon, J. Aerosol Sci. **101**, 118 (2016).