



HAL
open science

IMPACT DE L'AJOUT D'UNE GANGUE DE COMPOSES ORGANIQUES SUR LES PROPRIETES RADIATIVES DE PARTICULES DE SUIE

G. Lefevre, Maxime Bouvier, Jérôme Yon

► **To cite this version:**

G. Lefevre, Maxime Bouvier, Jérôme Yon. IMPACT DE L'AJOUT D'UNE GANGUE DE COMPOSES ORGANIQUES SUR LES PROPRIETES RADIATIVES DE PARTICULES DE SUIE. CFA Congrès Français sur les aérosols, Jan 2019, Paris, France. hal-01995079

HAL Id: hal-01995079

<https://hal.science/hal-01995079v1>

Submitted on 25 Jan 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

IMPACT DE L'AJOUT D'UNE GANGUE DE COMPOSES ORGANIQUES SUR LES PROPRIETES RADIATIVES DE PARTICULES DE SUIE

G.Lefevre, M.Bouvier, J.Yon*

Laboratoire CORIA, Université et INSA de ROUEN, 76800 Saint-Etienne du Rouvray, France

*Courriel de l'orateur : yon@coria.fr

IMPACT OF THE ADDITION OF AN ORGANIC LAYER ON THE RADIATIVE PROPERTIES OF SOOT.

RESUME

Du fait de leur impact sur le réchauffement climatique, il est nécessaire d'approfondir notre compréhension de l'évolution des propriétés radiatives des suies une fois émises dans l'atmosphère. Dans cette étude, le vieillissement atmosphérique est simulé expérimentalement par l'ajout d'un revêtement contrôlé d'acide oléique. La restructuration morphologique est quantifiée à l'aide de mesures non optiques (SMPS et masse volumique effective) et par diffusion angulaire. Des mesures de diffusion spectrales ont également été menées sur la gamme 500-700 nm, permettant la quantification d'un facteur d'amplification dépendant de la longueur d'onde. Les résultats sont comparés avec succès avec des résultats numériques précédemment publiés et ont rendu possible la validation d'une théorie « RDG-CFA » qui pourra être intégrée dans des modèles climatiques ou pour l'interprétation de mesures reposant sur la diffusion de la lumière.

ABSTRACT

Due to their strong impact on the global warming, it is now necessary to have a better understanding of the way soot particles radiative properties are affected once those particles are emitted in the atmosphere. In the present study, the aging process is experimentally mimicked in laboratory by adding a coating of oleic acid onto freshly generated soot particles. Morphological restructuration is determined by non-optical techniques (SMPS and effective density) and by angular light scattering. Moreover, spectrally resolved (500-700 nm) scattering measurements have been carried out enabling the quantification of the scattering enhancement as a function of the wavelength. Results are satisfactorily compared to previously published numerical investigations and enable the validation of a Rayleigh Debye Gans theory for Coated Fractal Aggregates (RDG-CFA) that could be integrated in climate models or for the interpretation of scattering based measurements.

MOTS-CLÉS: Suies, Diffusion de la lumière, morphologie, revêtement organique / **KEYWORDS:** Soot, Light scattering, morphology, organic coating

1. INTRODUCTION

Il est maintenant admis que les aérosols atmosphériques jouent un rôle sanitaire et environnemental majeur. Les nanoparticules de type suie émises par les activités humaines restent en suspension dans l'atmosphère et peuvent affecter le bilan climatique terrestre via leur pouvoir diffusif et d'absorption du rayonnement solaire. Cependant, une fois éjectées dans l'atmosphère, du fait de leur interaction avec différents composés présents dans l'environnement (Bond et al. 2013) et de leur exposition aux radiations solaires, les particules de suie peuvent se retrouver partiellement ou totalement recouvertes de composés organiques. Toutefois, cette gangue de composés tels que l'acide sulfurique ou des composés organiques volatiles, dont les propriétés d'absorptions sont souvent considérées faibles (Jacobson 2001), peut altérer les propriétés radiatives des particules (Khalizov et al. 2009; Schnaiter et al. 2003) ainsi que leur morphologie (Ghazi and Olfert 2013; Xue et al. 2009). Afin d'affiner les modèles climatiques et de développer des diagnostics optiques de ces particules, il convient de mieux quantifier l'impact de l'ajout d'une telle gangue sur leurs propriétés radiatives. Si de nombreuses études numériques ont été menées dans ce but, rares sont les études expérimentales qui ont pu confirmer les modèles, surtout en ce qui concerne leurs propriétés de diffusion de la lumière.

Pour ces raisons, un dispositif permettant la génération et l'ajout contrôlé d'une gangue de composés organiques a été mis en place. Un miniCAST est utilisé afin de générer les suies et ces dernières sont transportées dans une chambre contenant de l'acide oléique chauffé permettant la formation répétable d'une couche organique autour des particules. Des mesures SMPS, TEOM, CPMA et leur couplage ont été réalisées afin de caractériser la distribution de taille, la densité effective et l'apport de masse généré par l'ajout de la gangue organique. L'interprétation de ces résultats permet de quantifier l'épaisseur de la couche organique ainsi que le degré de restructuration.

Par ailleurs, des mesures de diffusion élastique angulaire et spectrale sur la gamme (500-700nm) ont été conduites, permettant d'évaluer l'amplification de la diffusion et sa dépendance spectrale.

Enfin, un modèle analytique simplifié est proposé afin d'évaluer les sections efficaces de diffusion des particules recouvertes d'une gangue organique. Cette dernière généralise la théorie de Rayleigh pour les agrégats fractals aux particules recouvertes d'un revêtement de composés organiques.

2. MONTAGE EXPERIMENTAL

Le montage expérimental mis en place pour les mesures de diffusion résolues spectralement est schématisé sur la figure 1. Les suies générées par un miniCAST traversent la chambre de revêtement avant d'atteindre le volume de mesure optique. L'épaisseur du revêtement est contrôlée par la température régulée de l'acide oléique. La caractérisation de cette épaisseur est décrite dans (Lefevre et al. 2018). L'aérosol ainsi recouvert est exposé à un flux lumineux polychromatique. Le signal diffusé est collecté par un spectromètre couplé à une caméra intensifiée sur l'intervalle de longueur d'onde [500 nm ; 700 nm]. On peut changer l'angle de collection en déplaçant le bras supportant la source polychromatique. Le dispositif est calibré en intensité à l'aide de billes de Latex, et la concentration en nombre des particules injectées est contrôlée par un compteur à noyaux de condensation. De cette façon, les signaux sont interprétés sous la forme de sections efficaces de diffusion.

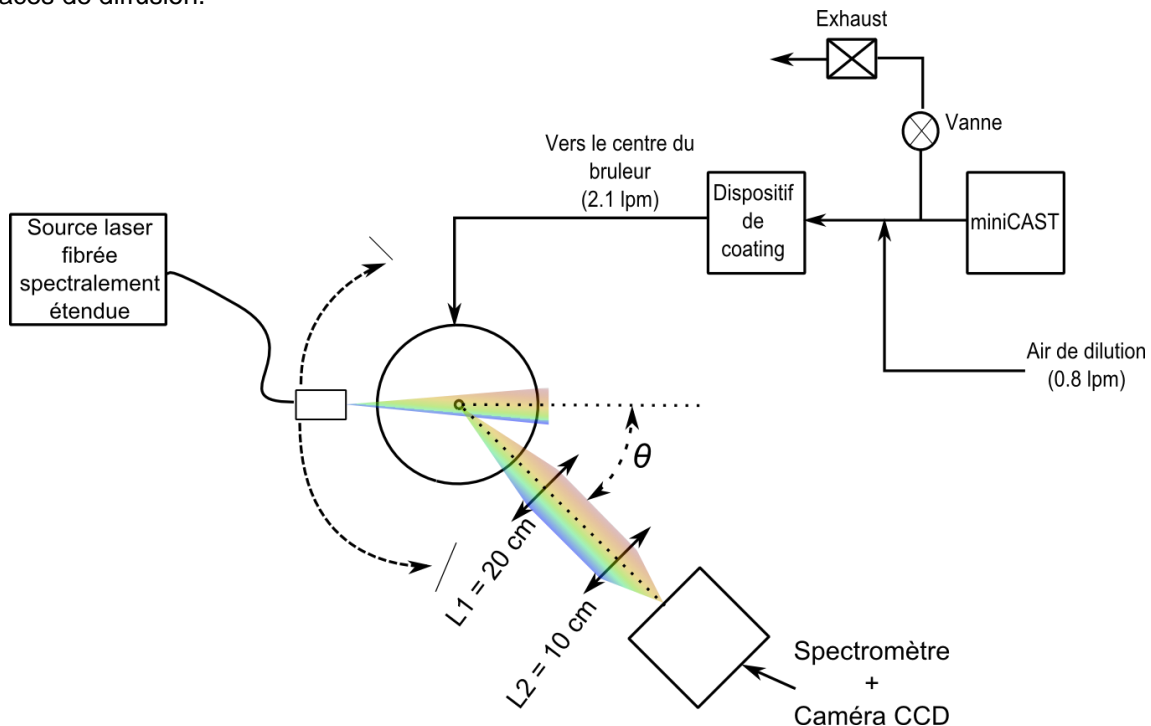


Figure 1: Montage expérimental

Par ailleurs, l'aérosol est également étudié à l'aide d'un SMPS afin d'observer l'évolution de la distribution de taille et à l'aide d'un tandem DMA-CPMA, permettant l'obtention de la relation liant le diamètre de la particule à sa masse (masse volumique effective).

3. RESULTATS

3.1. Mesures non optiques

Même après ajout d'un coating organique, les distributions de tailles SMPS conservent un comportement lognormal. Cependant, le diamètre géométrique médian et l'écart-type géométrique varient. Pour les plus faibles épaisseurs de revêtement ajouté, on observe tout d'abord une diminution puis, pour les plus grosses épaisseurs, ces paramètres croient à nouveau pour dépasser les valeurs initiales. La phase de réduction s'explique par une restructuration de la suie probablement causée par des forces de tension de surface induites par l'ajout de la couche organique. Cette restructuration est également visible au travers du paramètre de forme (dynamic shape factor χ , voir figure 2-A). En effet, ce paramètre, qui vaut 1 pour une sphère, croit d'autant plus que la forme de la particule s'éloigne de la sphère. Ceci est le cas sans ajout de composés organiques ($p=0$) mais, plus l'épaisseur de revêtement augmente, plus χ tends à nouveau vers 1, en particulier pour les plus grandes particules. En exploitant un modèle proposé par (Yon et al. 2015) généralisé aux particules recouvertes, il est possible, à partir des résultats présentés en Fig. 2-A d'évaluer

l'évolution de la dimension fractale de la particule de suie (en faisant abstraction du revêtement ajouté). On observe ainsi en Fig. 2-B que la dimension fractale croît continûment jusqu'à des valeurs proches de 2.2.

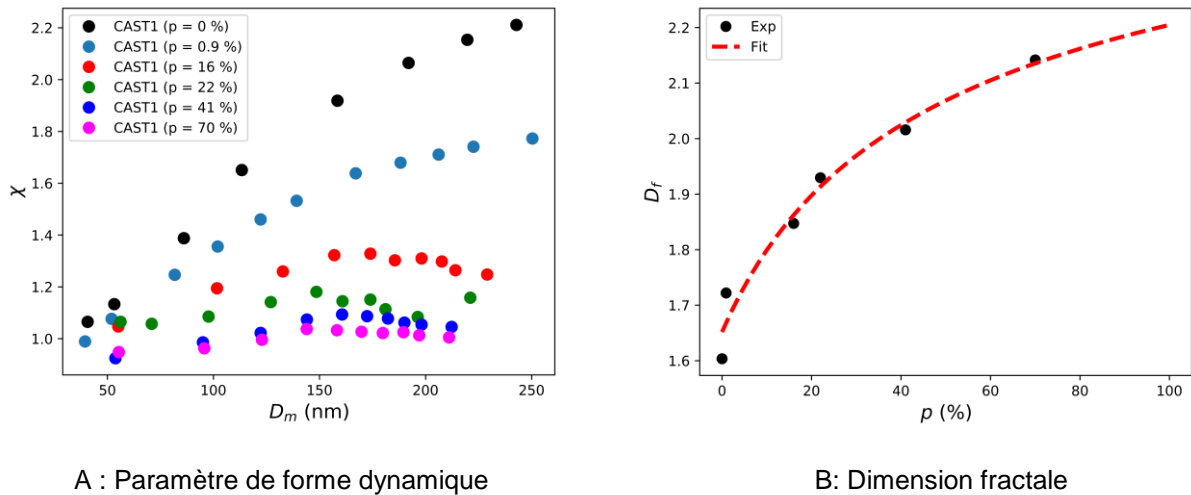


Figure 2 : Interprétation des mesures de masse volumique effective. $p=e/D_p$ avec e l'épaisseur de la couche organique et D_p le diamètre des particules primaires des agrégats.

3.2. Mesures optiques

La figure 3-A présente en couleurs pour différentes longueurs d'ondes λ et pour trois angles de diffusion ($\theta=7, 20$ et 90°) la section efficace de diffusion (en polarisation verticale-verticale). L'axe des abscisses correspond à la norme du vecteur de diffusion $q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)$. On reporte également par des symboles la diffusion angulaire mesurée à $\lambda=532$ nm. On vérifie, en accord avec la théorie de Rayleigh, que la diffusion est plus intense aux petites longueurs d'ondes et aux faibles angles de diffusion. En extrapolant ces résultats à la diffusion avant ($\theta=0$) pour différentes épaisseurs de revêtement, on parvient à déterminer le facteur d'amplification de la diffusion avant et sa dépendance à l'épaisseur du revêtement et à la longueur d'onde (Fig. 3-B). On observe un accroissement important de la diffusion avant (plus d'un facteur 30 pour les plus larges épaisseurs considérées). Cet accroissement est plus prononcé pour les grandes longueurs d'ondes.

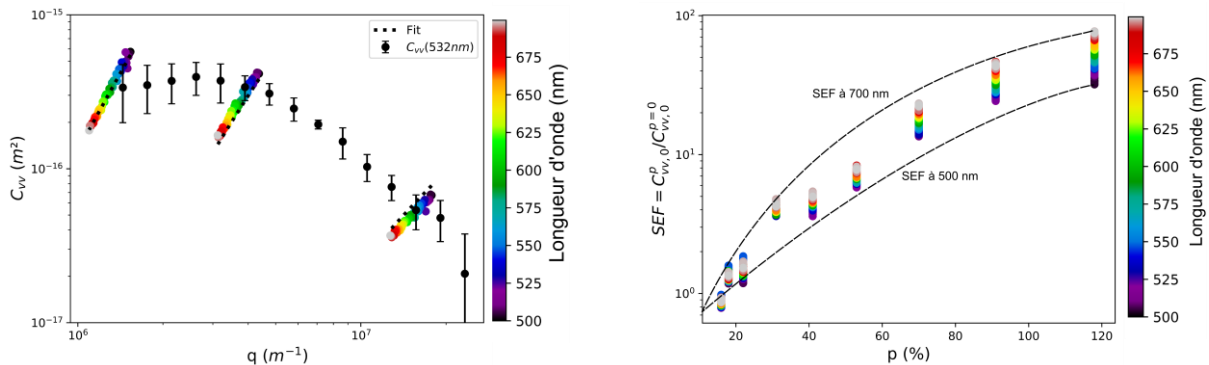


Figure 3 : Résultats des mesures de diffusion angulaires et spectrales. $p=e/D_p$ avec e l'épaisseur de la couche organique et D_p le diamètre des particules primaires des agrégats.

3.3. Interpretations : Rayleigh Debye-Gans theory for Coated Fractal Aggregates (RDG-CFA)

Un modèle théorique simplifié appelé RDG-FA (Rayleigh-Debye-Gans theory for Fractal Aggregates) est fréquemment utilisé pour quantifier les sections efficaces des agrégats fractals. Nous proposons ici de généraliser ce concept à des particules de suies recouvertes d'un revêtement organique :

$$\frac{dC_{vv}}{d\Omega} = A \times (V^t)^2 \frac{9\pi^2 F(m)}{\lambda^4} f(qR_g, D_f)$$

Avec A un facteur correctif de la théorie pour la prise en compte des effets de diffusion multiple, V^t le volume total de la particule recouverte, $F(m)$ la fonction de diffusion des sphérules primaires (recouvertes ou non, résultant de la théorie Core-Shell Mie) et f le facteur structural Dobbins and Megaridis (1991). Grâce au couplage des informations déduites des mesures optiques et non optiques (sections 3.1 et 3.2 et SMPS non présentées) il est possible d'évaluer la dépendance à la longueur d'onde et/ou à l'épaisseur du revêtement de V^t , $F(m)$ et f . Ainsi, la seule inconnue pouvant être déterminée expérimentalement est A, le facteur correctif (reporté à 532 nm par des disques pleins dans la figure 4). On observe une décroissance marquée de ce facteur avec l'épaisseur de revêtement, indiquant que les effets de multidiffusion sont amplifiés par la présence de la gangue organique et, qu'en absence de prise en compte de ce facteur A, la RDG-CFA pourrait conduire à une forte surestimation de la section efficace de diffusion. Par ailleurs, on observe un très bon accord avec cette même évaluation basée sur des calculs numériques (Discret Dipoles Approximation, Liu et al. (2016), représentés par des triangles dans la figure 4).

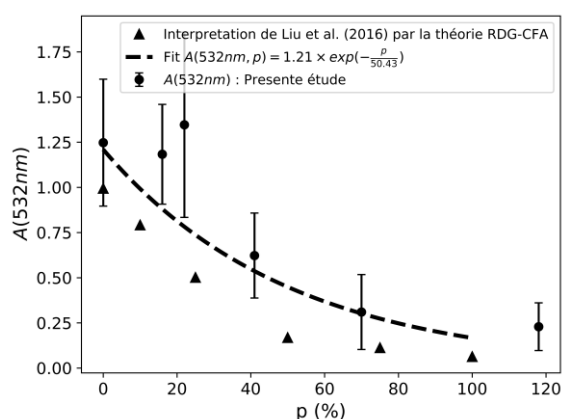


Figure 4 : Dépendance de la correction de la fonction de diffusion $F(m)$ à considérer pour la RDG-CFA

Ainsi, la présente étude a permis la quantification de la restructuration morphologique et de l'amplification des sections efficaces de diffusion suite à l'ajout d'une couche de composés organiques sur des particules de suies fraîchement générées. Un bon accord avec des simulations numériques a été obtenu et un modèle simple appelé RDG-CFA permettant l'évaluation des propriétés radiatives des suies enrobées d'une couche organique est finalement proposé.

Bond, T.C., Doherty, S.J., Fahey, D.W., Forster, P.M., Berntsen, T., DeAngelo, B.J., Flanner, M.G., Ghan, S., Kärcher, B., Koch, D., Kinne, S., Kondo, Y., Quinn, P.K., Sarofim, M.C., Schultz, M.G., Schulz, M., Venkataraman, C., Zhang, H., Zhang, S., Bellouin, N., Guttikunda, S.K., Hopke, P.K., Jacobson, M.Z., Kaiser, J.W., Klimont, Z., Lohmann, U., Schwarz, J.P., Shindell, D., Storelvmo, T., Warren, S.G., Zender, C.S. (2013). Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *J Geophys Res-Atmos*, 118:5380-5552.

Dobbins, R.A., Megaridis, C.M. (1991). Absorption and scattering of light by polydisperse aggregates. *Appl. Opt.*, 30:4747-4754.

Ghazi, R., Olfert, J.S. (2013). Coating Mass Dependence of Soot Aggregate Restructuring due to Coatings of Oleic Acid and Dioctyl Sebacate. *Aerosol Science and Technology*, 47:192-200.

Jacobson, M.Z. (2001). Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols. *Nature*, 409:695-697.

Khalizov, A.F., Xue, H., Wang, L., Zheng, J., Zhang, R. (2009). Enhanced light absorption and scattering by carbon soot aerosol internally mixed with sulfuric acid. *The Journal of Physical Chemistry A*, 113:1066-1074.

Lefevre, G., Yon, J., Liu, F., Coppalle, A. (2018). Spectrally resolved light extinction enhancement of coated soot particles. *Atmospheric Environment*, 186:89-101.

Liu, F., Yon, J., Bescond, A. (2016). On the radiative properties of soot aggregates – Part 2: Effects of coating. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 172:134-145.

Schnaiter, M., Horvath, H., Möhler, O., Naumann, K.H., Saathoff, H., Schöck, O.W. (2003). UV-VIS-NIR spectral optical properties of soot and soot-containing aerosols. *J. Aerosol Sci.*, 34:1421-1444.

Xue, H., Khalizov, A.F., Wang, L., Zheng, J., Zhang, R. (2009). Effects of coating of dicarboxylic acids on the mass– mobility relationship of soot particles. *Environmental Science & Technology*, 43:2787-2792.

Yon, J., Bescond, A., Ouf, F.X. (2015). A simple semi-empirical model for effective density measurements of fractal aggregates. *J. Aerosol Sci.*, 87:28-37.