



**HAL**  
open science

# Développement d'une méthode innovante basée sur la diffusion spectrale de la lumière pour la mesure de distribution de taille de suie

Maxime Bouvier, Jérôme Yon, G. Lefevre, F. Grisch

► **To cite this version:**

Maxime Bouvier, Jérôme Yon, G. Lefevre, F. Grisch. Développement d'une méthode innovante basée sur la diffusion spectrale de la lumière pour la mesure de distribution de taille de suie. CFA Congrès Français sur les Aérosols, Jan 2019, Paris, France. 10.25576/ASFERA-CFA2019-16660 . hal-01995082

**HAL Id: hal-01995082**

**<https://hal.science/hal-01995082v1>**

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.

# DEVELOPPEMENT D'UNE METHODE INNOVANTE BASEE SUR LA DIFFUSION SPECTRALE DE LA LUMIERE POUR LA MESURE DE DISTRIBUTION DE TAILLE DE SUIES

M.Bouvier\*, J.Yon, G.Lefevre, F.Grisch

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

\*Courriel de l'orateur : maxime.bouvier@coria.fr

## A NEW APPROACH FOR IN-SITU SOOT SIZE DISTRIBUTION MEASUREMENT BASED ON SPECTRALLY RESOLVED LIGHT SCATTERING.

### RESUME

La mesure optique in-situ de distribution de taille de suies est une tâche complexe en particulier lorsque les accès angulaires sont limités car c'est une limitation critique pour l'utilisation de techniques basées sur la diffusion élastique de la lumière. Dans cette étude, une démonstration de l'exploitation de mesures de diffusion spectrale est présentée. Les informations supplémentaires apportées par la réponse spectrale du signal de diffusion à une lumière incidente polychromatique permettent la mesure in-situ de distribution de taille de suies.

### ABSTRACT

In-situ laser-based measurement of soot size distribution is a complex task, especially when the angular optical accesses are limited which is a critical limitation of scattering-based techniques. In the present study, a proof of concept of the exploitation of the spectral elastic light scattering technique is presented. Additional information provided by the spectral response of the light scattering signals enables the in-situ measurement of the soot size distribution with only two scattering angles.

**MOTS-CLÉS:** Suies, Diffusion de la lumière, Diffusion spectrale, Distribution de taille / **KEYWORDS:** Soot, Light scattering, Spectral scattering, Size distribution

## 1. INTRODUCTION

La compréhension et la modélisation de la formation des suies au cours des réactions de combustion sont des enjeux importants pour la réduction des émissions particulières dans le cadre de l'anticipation des normes environnementales strictes qui vont être appliquées dans les prochaines années dans des domaines tels que l'aéronautique et l'automobile. La mesure de taille des particules de suie générées pendant la combustion est essentielle pour quantifier leur rôle et impact au sein d'une multitude de procédés et de phénomènes : déposition, filtration, changement climatique, impact sur la santé. La taille des particules de suie est généralement obtenue par des techniques ex-situ telles que le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer), le DMS (Differential Mobility Spectrometer), l'ELPI (Electrical Low-Pressure Impactor) ou le TEM (Transmission Electron Microscopy). Ces techniques ont cependant le désavantage de nécessiter un prélèvement de particules qui entraîne des questions concernant la représentativité des résultats. En effet, plusieurs phénomènes comme l'aggrégation ou les pertes lors de la déposition peuvent avoir lieu lors du prélèvement mais aussi lors du stockage (Ouf, Yon et al. 2010).

Dans le but d'obtenir une compréhension précise de phénomènes instationnaires grâce à des mesures in-situ résolues dans le temps et dans l'espace, le développement de méthodes optiques est nécessaire. Nous nous intéresserons dans cette étude à la diffusion élastique de la lumière par les particules qui peut notamment être utilisée pour obtenir des informations de taille. Sans être exhaustif, on peut citer les travaux de (De Iuliis, Cignoli et al. 1998), de (Oltmann, Reimann et al. 2010) et de (Caumont-Prim, Yon et al. 2011) qui ont développé des méthodes de mesure ponctuelles mais aussi (Reimann, Kuhlmann et al. 2009) qui propose un couplage diffusion-LII (Laser Induced Incandescence) permettant d'effectuer de l'imagerie 2D. Ces différentes méthodes nécessitent cependant un minimum de trois accès angulaires ou donnent un accès partiel à la taille des particules sondées. Afin de réduire le nombre d'angles de diffusion à deux et avoir accès à des mesures de distributions de taille en milieu confiné (chambre de combustion haute pression par exemple), la technique de diffusion spectrale est ici présentée. Le manque d'accès angulaire est compensé par une information spectrale sur la lumière diffusée grâce à l'utilisation d'une source d'excitation polychromatique et d'un spectromètre en tant que détecteur.

## 2. MONTAGE EXPERIMENTAL

Le montage expérimental mis en place pour les mesures de diffusion est détaillé sur la figure 1. La source utilisée produit un faisceau polychromatique de faible puissance (quelques  $\mu\text{W}/\text{nm}$ ) fortement divergent sur un intervalle de longueurs d'onde allant du proche UV au proche infrarouge.

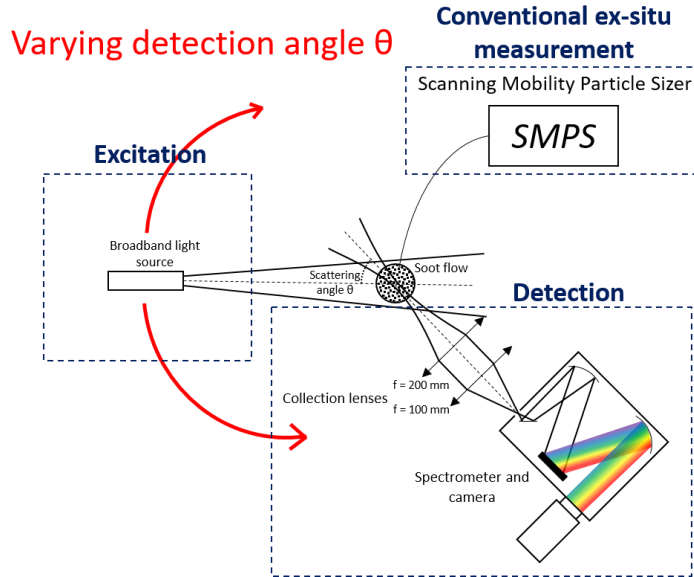


Figure 1: Montage expérimental

Ce faisceau est dirigé sur un écoulement de suies produites par un générateur standard : le miniCAST. Cet appareil, grâce à une flamme de diffusion propane/air, produit des agrégats de suies de manière reproductible et stable. De plus, il permet de générer un large panel de type de suies en termes de taille, de morphologie, de composition chimique et de structure en ajustant les différents débits de carburant, d'oxydant, de dilution et de quenching. Trois points de fonctionnement ont donc été définis et appelés CAST 1, CAST 2 et CAST 3. Ils couvrent une large gamme de taille, de composition chimique et de propriétés optiques. Cet aérosol est injecté par un tube entouré par un poreux délivrant un coflow à la même vitesse qu'au centre permettant de conserver un écoulement central stable et de diamètre constant (6 mm).

Le système de détection est composé de deux lentilles de collection focalisant la lumière diffusée dans la fente d'un spectromètre. L'intensité de la lumière diffusée par les suies est mesurée sur l'intervalle de longueur d'onde [500 nm ; 700 nm] grâce à une caméra. Le bras sur lequel est fixée la source est capable de tourner autour du tube central afin de faire varier l'angle de diffusion  $\theta$ .

Des mesures de prélèvement conventionnelles ont aussi été effectuées grâce à un SMPS, elles seront comparées aux mesures optiques afin de les valider.

## 3. PRINCIPE THEORIQUE ET RESULTATS

Une particule de suie est un agrégat composé de  $N_p$  particules primaires de rayon  $R_p$ . Ces agrégats sont considérés comme fractals, leur morphologie peut donc être décrite grâce à une expression appelée loi fractale :

$$N_p = k_f \left( \frac{R_g}{R_p} \right)^{D_f} \quad 1.$$

$R_g$  est le rayon de giration de l'agrégat et la grandeur à laquelle on cherche à accéder dans cette étude,  $D_f$  est la dimension fractale et  $k_f$  est le préfacteur fractal.

L'interaction entre la lumière et des agrégats fractals peut être décrite par la RDG-FA (Rayleigh-Debye-Gans theory for Fractal Aggregates) qui est une adaptation de la théorie de la diffusion de Rayleigh-Debye-Gans aux agrégats fractals. L'ajout d'un facteur de forme ( $f$ ) à la section efficace de diffusion permet de modéliser fidèlement l'impact de la morphologie fractal de l'agrégat sur la répartition angulaire et spectrale de la lumière diffusé (Dobbins and Megaridis 1991). C'est ainsi que l'on peut exprimer le flux (en  $W$ ) diffusé en polarisation  $vv$  (onde incidente et diffusée polarisées verticalement) par une population de suies contenue dans un volume  $V_m$  soumis à un éclaircissement  $I_0$  (en  $W/m^2$ ) en fonction de la section efficace différentielle de diffusion des agrégats  $\frac{dC_{sca}^a}{d\Omega_{vv}}$  ou du coefficient de diffusion  $K_{vv}$ :

$$I_{vv}(\lambda) = I_0(\lambda)V_m K_{vv} = I_0(\lambda)V_m N_{agg} \frac{dC_{sca}^a}{d\Omega}_{vv}$$

avec  $N_{agg}$  la concentration en nombre ( $\#/m^3$ ).

Le montage expérimental détaillé dans la section 2 permet la mesure de  $I_{vv}$ . Si on effectue une mesure à deux angles, le ratio R peut être défini comme le rapport de l'intensité mesurée à un angle  $\theta$  sur l'intensité mesurée à un angle de référence  $\theta_{ref}$  :

$$R(\theta, \theta_{ref}, \lambda) = \frac{I_{vv}(\theta, \lambda)}{I_{vv}(\theta_{ref}, \lambda)}$$

Cela permet de s'affranchir d'un bon nombre de paramètres inconnus ou nécessitant une mesure supplémentaire comme le diamètre des particules primaires ou encore l'indice optique complexe. Des mesures de ratio R pour les trois points de fonctionnement et pour cinq angles de diffusions sont présentées sur la figure 2 en fonction du paramètre q qui sert à unifier l'influence de la longueur d'onde et de l'angle de diffusion ( $q(\theta, \lambda) = \frac{4\pi}{\lambda} \sin(\theta/2)$ ).

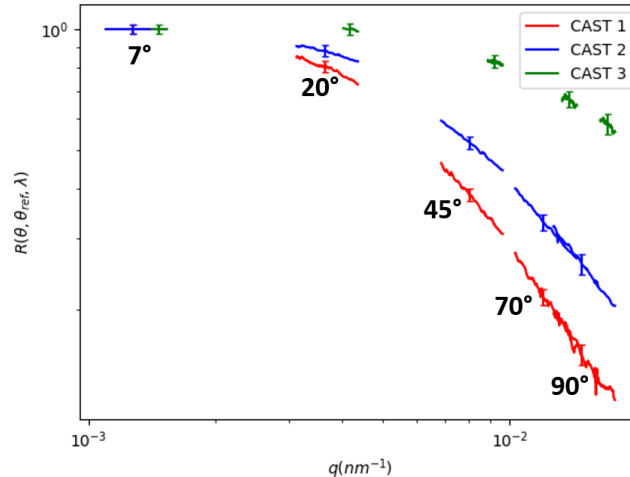


Figure 2 : Ratios de dissymétrie ( $\theta_{ref}=7^\circ$ ).

Tous les agrégats étudiés ne présentent pas un seul et unique rayon de giration, la population est dite polydisperse et est généralement modélisée par une loi log-normal dans le domaine des suies. Cette loi possède deux paramètres : le diamètre géométrique médian appelé  $D_{g,geo}$  et l'écart-type géométrique noté  $\sigma_{g,geo}$ . Or à chaque longueur d'onde et pour chaque angle on peut interpréter le ratio R comme émanant d'une population monodisperse et ainsi définir  $R_g^*$  le rayon de giration de cette population. Les résultats expérimentaux sont exposés sur la figure 3.

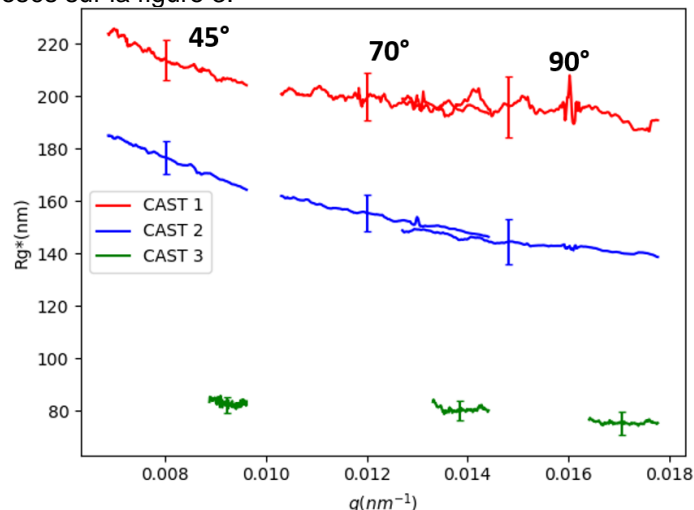


Figure 3 :  $R_g^*$  expérimentaux pour chaque point de fonctionnement et chaque angle de diffusion.

Cette grandeur nous apporte une première information quantitative concernant la taille des agrégats étudiés mais permet aussi d'aller plus loin, en effet on observe que  $R_g^*(q)$  décroît avec  $q$ . On peut montrer que cette décroissance est fonction du degré de polydispersité de la population étudiée ( $\sigma_{g,geo}$ ) alors que l'amplitude moyenne de la courbe est représentative du diamètre médian de la distribution log-normal ( $D_{g,geo}$ ). Ainsi on est capable de mesurer des distributions de taille pour chaque angle de diffusion et chaque point de

fonctionnement. Ces résultats sont reportés sur la Figure 4 sous forme de fonction densité de probabilité aux côtés des résultats des prélèvements SMPS. On observe un bon accord global entre les deux techniques de mesure et une dispersion relativement faible entre chaque angle de diffusion. Une quantification des incertitudes a été effectuée grâce la méthode statistique des Bayésiens qui est particulièrement adaptée à la résolution de problèmes mathématiquement mal posés comme peut l'être l'inversion d'un signal de diffusion.

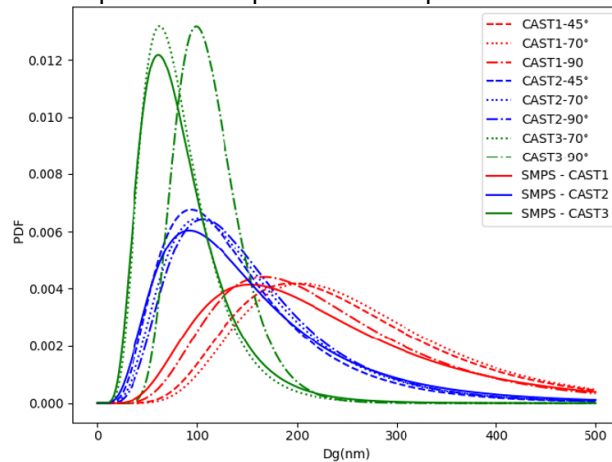


Figure 4 : Comparaison entre les distributions de taille mesurées par diffusion spectrale (pointillés) et par SMPS (traits pleins).

Ces mesures de distributions de taille couplées à un étalonnage en intensité de la ligne de détection nous ont aussi permis d'obtenir des informations sur les propriétés optiques des suies étudiées via la mesure de la fonction  $F(m)$ . Cette fonction appelée fonction de diffusion témoigne des propriétés optiques des particules. Il a récemment été démontré que son évolution spectrale pouvait donner des informations sur la composition chimique et la structure des agrégats. La Figure 5 détaille les mesures effectuées et les compare à un modèle récemment publié (Bescond, Yon et al. 2016).

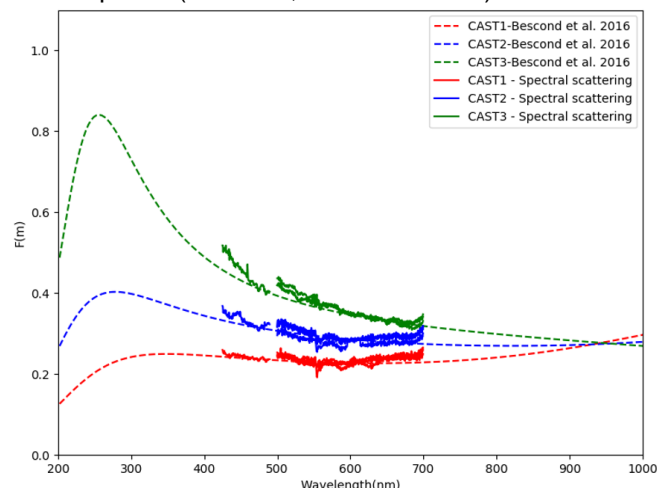


Figure 5 : Evolution spectrale de la fonction  $F(m)$ . Mesure optique (trait plein) et modèle (pointillés).

- Bescond, A., J. Yon, et al. (2016). "Soot optical properties determined by analyzing extinction spectra in the visible near-UV: Toward an optical speciation according to constituents and structure." *Journal of Aerosol Science* **101**: 118-132.
- Caumont-Prim, C., J. Yon, et al. (2011). Measurement of aggregates' size distribution by angular light scattering.
- De Iuliis, S., F. Cignoli, et al. (1998). "Determination of soot parameters by a two-angle scattering-extinction technique in an ethylene diffusion flame." *Applied Optics* **37**(33): 7865-7874.
- Dobbins, R. A. and C. M. Megaridis (1991). "Absorption and scattering of light by polydisperse aggregates." *Applied Optics* **30**(33): 4747-4754.
- Oltmann, H., J. Reimann, et al. (2010). "Wide-angle light scattering (WALS) for soot aggregate characterization." *Combustion and Flame* **157**(3): 516-522.
- Ouf, F.-X., J. Yon, et al. (2010). "Influence of Sampling and Storage Protocol on Fractal Morphology of Soot Studied by Transmission Electron Microscopy." *Aerosol Sci. Tech.* **44**(11): 1005 - 1017.
- Reimann, J., S. A. Kuhlmann, et al. (2009). 2D aggregate sizing by combining laser-induced incandescence (LII) and elastic light scattering (ELS).