



HAL
open science

Impact de paramètres morphologiques des agrégats de type carbone noir sur leurs propriétés radiatives pour des applications LIDAR

Yoran Raynaud Diarra, Jérôme Yon, Romain Ceolato, Marek Mazur

► **To cite this version:**

Yoran Raynaud Diarra, Jérôme Yon, Romain Ceolato, Marek Mazur. Impact de paramètres morphologiques des agrégats de type carbone noir sur leurs propriétés radiatives pour des applications LIDAR. Congrès Français sur les Aérosols, Mar 2025, Paris, France. <hal-04998213>

HAL Id: hal-04998213

<https://normandie-univ.hal.science/hal-04998213v1>

Submitted on 20 Mar 2025

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.



HAL Authorization

Impact de paramètres morphologiques des agrégats de type carbone noir sur leurs propriétés radiatives pour des applications LIDAR

*Y. Raynaud Diarra^{1,2}, J. Yon¹, R. Ceolato², M. Mazur¹

¹Laboratoire CORIA, INSA Rouen Normandie, France

²Laboratoire ONERA, Toulouse Occitanie, France

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

TITLE

Impact of morphological parameters of black carbon aggregates on their radiative properties for LIDAR applications

RESUME

La suie se distingue par sa morphologie fractale et ses propriétés d'absorption élevées. Ces propriétés doivent être prises en compte dans les codes d'inversion LIDAR, qui utilisent généralement la théorie de Mie. La théorie RDG-FA semble plus pertinente pour les particules de suie, même si elle souffre de limitations dues aux hypothèses simplificatrices sous-jacentes. Le but de ce travail est d'évaluer le rôle de la polydispersité des sphérules primaires sur les propriétés morphologiques, par calculs de fonctions de corrélation par paire. Cette dernière fonction est nécessaire pour calculer les propriétés de diffusion de la lumière des particules.

ABSTRACT

Soot particles stand out for its fractal morphology and high absorption properties. These properties need to be taken into account in LIDAR inversion codes. The RDG-FA theory seems relevant, even if it suffers from limitations due to the underlying simplifying assumptions. The aim of this work is to evaluate the role of certain fine morphological parameters on morphological properties, by means of pairwise pair correlation function calculations. The latter function is necessary for calculating the light scattering properties of the particles.

MOTS-CLÉS: agrégats de suie, RDG-FA, LIDAR, propriétés radiatives / **KEYWORDS:** soot aggregates, RDG-FA, LIDAR, radiative properties

1. INTRODUCTION

Le carbone noir (Black Carbon - BC), ou carbone suie, est issu de la combustion incomplète d'hydrocarbures et de biomasse ; il constitue une part importante des émissions anthropiques. Sous forme d'agrégats de sphérules primaires, typiquement de taille nanométrique, il possède une structure fractale. Il présente une forte capacité d'absorption du rayonnement solaire, contribuant ainsi au bilan radiatif terrestre et au réchauffement climatique (et al., 2013). De plus, en raison de leur petite taille, les particules de BC ont la capacité de s'infiltrer profondément dans les voies respiratoires. Elles posent ainsi de sérieux risques sanitaires, notamment des effets cancérigènes et des maladies respiratoires (Jansen et al., 2005).

Seules les techniques de télédétection permettent une caractérisation de ces particules sur de grandes distances. Parmi elles, le LIDAR (Light Detection and Ranging) utilise une source laser pour analyser la réponse spectrale des particules observées à longue distance.

Le LIDAR à rétro-diffusion élastique (EBL) est particulièrement efficace pour la détection de particules en sortie de moteurs d'avions ou dans les panaches de fumée. Les LIDAR détectent la lumière rétro-diffusée par les particules, permettant d'estimer leur concentration. Cependant cela impose une inversion des signaux mesurés qui repose sur un modèle d'interaction lumière-particule afin de quantifier les sections efficaces d'extinction et de rétro-diffusion. Traditionnellement, cela est assuré par la théorie de Mie, développée pour les particules sphériques. Cependant, la théorie de Mie n'est pas adaptée aux agrégats fractals tels que le BC (Ceolato et al., 2022). Le modèle Rayleigh-Debye-Gans pour Agrégats Fractals (RDG-FA) semble, en revanche, être une alternative plus adaptée à la caractérisation des propriétés radiatives de la suie.

Cette théorie stipule que les propriétés angulaires de diffusion de la lumière se déduisent de la transformée de Fourier de la fonction d'auto-corrélation de paire qui se trouve être, par ailleurs un très bon descripteur morphologique des particules. Cependant, les modèles d'auto-corrélation de paire des agrégats fractals en vigueur reposent sur des agglomérats de sphères en contacts ponctuels, le plus souvent mono-disperses. Pourtant, des études ont montré, par exemple, que le coating a pour effet d'augmenter les sections efficaces d'absorption et de diffusion de la suie, particulièrement sa diffusion avant et arrière, son facteur d'asymétrie et

son albédo (F. Liu and Bescond, 2016).

Pour combler ce manque, dans cette étude, on s'intéresse à évaluer l'influence de paramètres morphologiques plus fins tels que la polydispersion (distribution de tailles des monomères), le facteur de compacité (packing factor - compacité locale des sphérules) et l'enrobage (coating - enrobage des sphérules par un matériau faiblement absorbant), afin de connaître plus précisément leur influence sur les propriétés radiatives des agrégats de suie.

2. MÉTHODOLOGIE

Il s'agit d'une étude numérique qui repose sur des agrégats générés virtuellement à l'aide du code MCAC (Monte Carlo Aggregation Code) (Cofre, 2021; et al., 2020). Ce code nous permet de simuler la formation d'agrégats fractals polydispersés en simulant leur mouvement Brownien. Ce dernier autorise, notamment, de considérer une phase de croissance de surface se produisant en cours d'agrégation. Dans ce document, nous nous limiterons à l'étude de la polydispersion des sphérules en considérant une loi lognormale en fixant le diamètre géométrique $D_{p,geo} = 80$ en faisant varier l'écart-type géométrique : $\sigma_{p,geo} = [1.00; 1.30; 1.45; 1.6]$. Nous verrons à quel point cela impacte la compacité locale et par extension les propriétés angulaires de diffusion.

Pour générer la base de données d'agrégats, nous fixons une fraction volumique à 1 ppm, une température à 1700 K, une pression à 1 atm. Nous étudierons des agrégats constitués d'un nombre de sphérules primaires $N_p \approx 150$.

Pour chaque agrégat ainsi généré et sélectionné, on calcule ensuite sa fonction d'auto-corrélation de paire :

$$A(\vec{r}) = \int_{-\infty}^{\infty} n(\vec{r} - \vec{u}) \cdot n(\vec{u}) d\vec{u} \quad (1)$$

avec $n(\vec{r})$ une fonction indiquant si le vecteur \vec{r} pointe la particule (et retourne 1) ou l'extérieur (et pointe alors 0). Ce calcul se fait numériquement et présente une allure continue lorsqu'il est moyenné sur différentes orientations de la particule (150 dans cette étude).

Ce résultat peut en fait se modéliser comme la somme de deux fonctions (Yon et al., 2021). La première correspond au calcul de l'auto-corrélation des sphérules avec elles-mêmes. Il existe en effet une forme analytique pour les sphères en contact ponctuel:

$$A_{pp}(r) = \frac{1}{N_p R_{pv}^3} \sum_{i=1}^{N_p} \left(R_{pi}^3 - \frac{3}{4} r R_{pi}^2 + \frac{r^3}{16} \right), \quad \text{pour } r \in [0, 2R_{pi}] \quad (2)$$

La seconde, appelée $A_{agg}(r)$, correspond au calcul de l'auto-corrélation de sphérules différentes au sein d'un même agrégat. C'est cette dernière qui revêt une signature fractale. Cette fonction peut être modélisée ainsi :

$$A_{agg} = \frac{\phi D_{fi}}{3} \left(\frac{r}{R_{pv}} \right)^{D_{fi}-3} \left(1 - \exp \left(- \left(\frac{r}{\xi_0} \right)^{\beta_0} \right) \right) \exp \left(- \left(\frac{r}{\xi_\infty} \right)^{\beta_\infty} \right) \quad (3)$$

Il s'agit d'une loi de puissance pilotées par la dimension fractale individuelle de l'agrégat D_{fi} dont l'intersection avec l'axe des ordonnées est pilotée par le facteur de compacité (*packing factor*) ϕ , D_{fi} et le rayon d'une sphère ayant le volume moyen des sphérules R_{pv} . Cependant, puisque l'agrégat est d'extension finie, que ce soit aux petites ou aux grandes échelles, il convient de multiplier le résultat par des fonctions de coupures pilotées par des paramètres d'échelles (ξ_0 et ξ_∞) et des facteurs indiquant si ces coupures sont brutales ou non (β_0 et β_∞).

La figure 1 représente la fonction d'auto-corrélation et sa décomposition en A_{pp} et A_{agg} ainsi modélisés.

La distribution des sphérules primaires est connue. Afin de déterminer les paramètres morphologiques (D_{fi} , ϕ , β_0 , β_∞ , ξ_0 et ξ_∞), nous procédons à l'ajustement des calculs numériques par la fonction ainsi modélisée :

$$A(r) = A_{pp}(r) + A_{agg}(r) \quad (4)$$

3. RÉSULTATS

On constate que la modélisation proposée de la fonction d'autocorrélation de paire ne convient pas toujours. Notamment, on observe que la dimension fractale n'est pas toujours bien évaluée par un ajustement automatique et ceci impact la détermination du facteur de compacité. Nous avons effectué un relevé "manuel" des

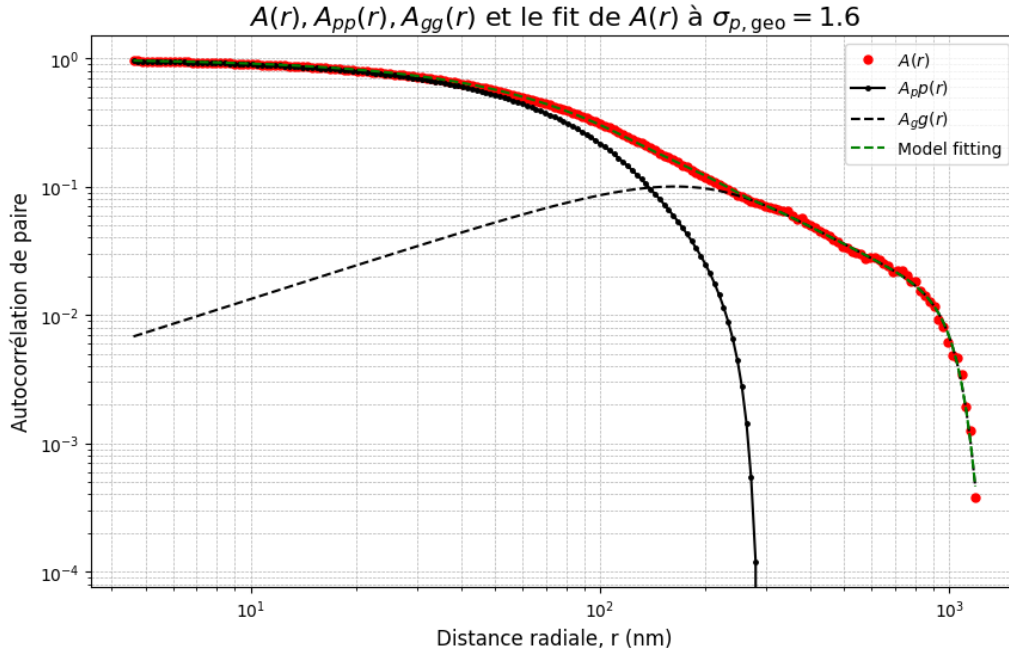


Figure 1. Schéma des différentes autocorrélations de paire.

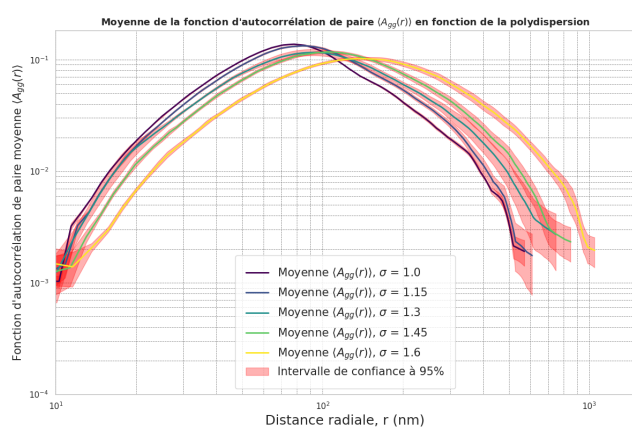
pentés dans le régime de puissance (pente = $3 - D_{fi}$) afin de déterminer de cette manière la dimension fractale des agrégats et pouvoir proposer un critère de sélection des agrégats à considérer pour l'étude (ceux répondant bien au modèle proposé). Ce critère exploite notamment les covariances des paramètres du modèles. On reporte ainsi dans le tableau 1 les paramètres morphologiques ainsi obtenus accompagnés de leurs intervalles de confiance à 95%.

$\sigma_{p,geo}$	$\langle D_{fi} \rangle \pm IC$	$\langle \beta_0 \rangle \pm IC$	$\langle \beta_\infty \rangle \pm IC$	$\langle \xi_\infty / R_g \rangle \pm IC$	$\langle \xi_0 / R_{pv} \rangle \pm IC$	$\langle \phi \rangle \pm IC$
1.0	1.79 ± 0.06	3.14 ± 0.05	4.93 ± 0.49	1.78 ± 0.08	1.66 ± 0.05	0.76 ± 0.10
1.3	1.98 ± 0.27	3.15 ± 0.94	2.59 ± 2.61	1.30 ± 0.61	1.86 ± 0.13	1.05 ± 0.64
1.45	2.10 ± 0.31	2.41 ± 0.03	1.77 ± 0.74	0.91 ± 0.40	2.06 ± 0.27	0.86 ± 0.42
1.6	1.66 ± 0.17	2.51 ± 0.12	5.83 ± 1.59	1.83 ± 0.16	2.52 ± 0.27	1.28 ± 0.56

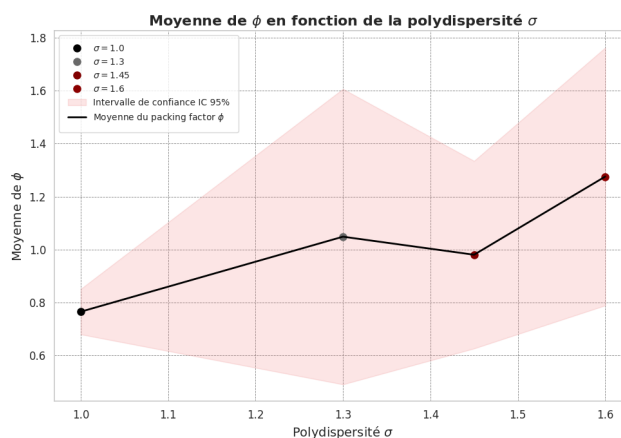
Table 1: Moyennes et intervalles de confiance (IC) des paramètres morphologiques en fonction de la polydispersité $\sigma_{p,geo}$.

Les dimensions fractales D_{fi} sont classiques dans ce régime d'agglomération pour $\sigma_{p,geo} = 1.0$ et 1.6 et bien supérieures pour les polydispersions intermédiaires. Cependant, les intervalles de confiance sont également plus élevés attestant une variabilité plus grande. On ne peut donc pas attester d'une variation de la dimension fractale avec la polydispersion. Les exposants d'étirement β_0 et β_∞ présentent également des variations significatives. L'exposant β_0 , diminue avec $\sigma_{p,geo}$ tandis que β_∞ montre d'importantes fluctuations associées à des intervalles de confiance particulièrement élevés. La figure 2a montre bien un décalage vers les grandes échelles de la fonction d'autocorrélation de paire avec $\sigma_{p,geo}$, signifiant la plus forte probabilité de trouver de la matière à grande échelle pour les cas polydispersés. Le paramètre de coupure rapporté au rayon de giration ξ_∞ / R_g augmente avec $\sigma_{p,geo}$, indiquant que l'étendue spatiale de la matière croît avec la polydispersion.

Le facteur de compacité ϕ croît avec $\sigma_{p,geo}$, passant de 0.76 ± 0.1 à 1.28 ± 0.56 , cela indique que la polydispersion autorise une compacité locale plus importante pouvant être expliquée par l'insertion de petites sphérules dans les interstices. La figure nous confirme cette tendance globale.



(a) Autocorrélations de paires selon différents σ



(b) ϕ moyens en fonction de $\sigma_{p,geo}$

Figure 2. Analyse statistique réalisée sur un ensemble d'environ trente agrégats par polydispersité simulés pour différentes valeurs du packing factor ϕ avec un nombre de particules = 150. La figure de gauche présente la fonction d'autocorrélation de paire d'agrégat, $\langle A_{agg}(r) \rangle$, moyennée pour chaque niveau de polydispersité. La figure de droite illustre la valeur moyenne de ϕ en fonction de la polydispersité $\sigma_{p,geo}$, pour le même ensemble d'agrégats. Un intervalle de confiance à 95% est ajouté à chaque courbe afin de quantifier la variabilité des mesures.

Ces résultats soulignent l'importance de prendre en compte la polydispersité des sphérules primaires pour la modélisation des propriétés morphologiques des agrégats. La compacité locale semble être impactée ainsi que d'autres paramètres morphologiques. Il semble également qu'un nombre important d'agrégats ne permet pas un ajustement précis par le modèle proposé, ce qui a conduit à une statistique faible. Il semble donc important d'améliorer les fonctions de coupures aux grandes et courtes échelles qui sont à l'origine de problèmes et d'étendre l'analyse sur un ensemble conséquent d'agrégats. Notre volonté est ensuite de continuer l'étude de l'impact des différents paramètres morphologiques du modèle et d'étendre l'analyse aux propriétés de rétro-diffusion.

4. BIBLIOGRAPHIE

References

- R. Ceolato, A. Bedoya-Velásquez, and F. F. et al. Black carbon aerosol number and mass concentration measurements by picosecond short-range elastic backscatter lidar. *Scientific Reports*, 12:8443, 2022. doi: 10.1038/s41598-022-11954-7.
- J. M. Cofre. *Amélioration de la simulation numérique de la formation de l'aérosol suie dans les flammes*. PhD thesis, Normandie Université, 2021. URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-03621268>. □NNT: 2021NORMIR26□.
- J. M. et al. Monte carlo aggregation code (mcac) part 2: Application to soot agglomeration, highlighting the importance of primary particles. *Journal of Colloid and Interface Science*, 575:274–285, 2020.
- T. B. et al. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118:5380–5552, 2013. doi: 10.1002/jgrd.50171.
- J. Y. F. Liu and A. Bescond. On the radiative properties of soot aggregates – part 2: Effects of coating. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 172:134–145, 2016. doi: 10.1016/j.jqsrt.2015.08.005.
- K. Jansen, T. Larson, and J. K. et al. Associations between health effects and particulate matter and black carbon in subjects with respiratory disease. *Environmental Health Perspectives*, 113(12):1741–1746, 2005. doi: 10.1289/ehp.8153.
- J. Yon, J. Morán, F.-X. Ouf, M. Mazur, and J. Mitchell. From monomers to agglomerates: A generalized model for characterizing the morphology of fractal-like clusters. *Journal of Aerosol Science*, 151:105628, 2021. doi: 10.1016/j.jaerosci.2020.105628.