

PROGRAMME de la journée du Webinaire SUIE, le 25 octobre 2023

9:15 – 9:30 : Introduction

9:30 – 09:45 : **Alejandra VELAZQUEZ GARCIA** : Evolution of black carbon properties in the Paris urban plume from ACROSS aircraft measurements.

09:45 – 10:15 : **Sarah TINORUA** : Étude d'inter-comparaison de trois méthodes de mesures des concentrations en carbone-suie sur deux ans de campagne à la station de recherches du Pic du Midi.

10:15 – 10:45 : **Alexandre ALBINET** : Bioanalytical approach to discover potent toxic chemicals associated to primary or aged (secondary) wood combustion particles.

10:45 – 11:00 : Pause

11:00 – 11:30 : **Claudia DI BIAGIO** : Étude expérimentale en chambre de simulation atmosphérique des propriétés des aérosols carbonés d'intérêt pour le climat.

11:30 – 12:00 : **Romain CEOLATO** : Mesures lidar des suies.

13h30 – 14h00 : Discussions

14:00 – 14:30 : **Pasquale SELLITTO** : Radiative impacts of the Australian bushfires 2019–2020 : radiative forcing, radiative heating and coupling with the vertical dynamics of biomass burning plumes.

14:30 – 15:00 : **Jérôme YON** : Stratégie d'amélioration de la modélisation de l'interaction lumière-agrégats de suie.

15:00 – 15:30 : **Nicolas BROSEAU-HABERT** : Calcul du déplacement des pics du spectre d'absorption UV-visible de nanoparticules de suie modélisées à l'échelle atomique, en fonction de leur degré d'interpénétration.

15:30 – 15:45 : Pause

15:45 – 16:15 : **Jean-Michel GEFFRIN** : Mesures d'analogues de micro-ondes pour les études électromagnétiques et de diffusion de la lumière.

16:15 – 16:45 : **Mijail LITTIN** : Spline-based radial property reconstruction for noise and trapping correction for emission, light scattering and extinction measurements in axisymmetric sooting flames.

16:45 – 17:30 : Discussions/Conclusions

Evolution of black carbon properties in the Paris urban plume from ACROSS aircraft measurements

Velazquez-Garcia A.¹, Tinorua S.¹, Bourriane T.¹, Yu C.², Denjean C.¹

¹CNRM, Université de Toulouse, Météo-France, CNRS, Toulouse, France

²Université Paris Cité and Univ Paris Est Créteil, CNRS, LISA, F-75013 Paris, France

Black carbon (BC) particles, produced from incomplete fossil fuel combustion and biomass burning, are ubiquitous in the atmosphere and have profound impacts on air quality and climate. Although BC represents a key-short lived climate forcer, its direct radiate forcing (DRF) remains highly uncertain (Forster et al., 2021; Naik et al., 2021). The gap largely arises from the limited characterization of BC mixing state and optical properties in the atmosphere (Ko et al., 2020; Moteki et al., 2007; Peng et al., 2016). BC is chemically inert, but morphology transformation is unavoidable once emitted into the atmosphere (Bond et al., 2013). Indeed, during aging BC particles will be filled by the aging-induced materials. Once filled, further accumulation of organic and inorganic coatings materials leads to growth of particle size. Such morphology transformation leads to alternation of BC optical properties and influence its hygroscopicity (Liu et al., 2015; Moteki et al., 2007; Peng et al., 2016; Sun et al., 2022, 2020). Here, we seek to further understand those changes by analyzing the evolution of BC properties within the Parisian urban plume tracked by the ART-42 aircraft during the ACROSS (Atmospheric ChemistRy Of the Suburban foreSt) campaign, focusing on the interactions of urban and biogenically-influenced air masses

The aircraft intensive observations were performed from June/15 to July/7, 2022. The instruments involve coordinated aircraft and ground-based measurements of the aerosol and trace gas properties. In this work, we centered on the study of refractory BC (rBC) aerosol concentrations measured by the SP2 (single particle soot photometer) of 11 flights. The SP2 incandescence signal was treated using the PYSP2 toolkit (Tinorua et al., 2023) with a time resolution of 1s per particle and the mass and number concentration retrieved were extended in lower and large size range (0-1000nm). Results show an average rBC mass concentrations ranging from 0.006 $\mu\text{g m}^{-3}$ (F31, north-west sector) to 0.142 $\mu\text{g m}^{-3}$ (F25, north-west sector). Black carbon size distributions were log-normally distributed using a multi modal fit, mean diameters range between 197nm (F29, north-east sector) to 238nm (F26, south-west sector). Overall, at the ACROSS campaign the rBC size distribution is dominated by the accumulation mode.

In this study, we investigate the evolution of rBC properties by discriminating in-plume vs background conditions. The criteria to distinguish them was based on the statistics per flight considering the dilution of the rolling averaged rBC mass concentration. For instance, we consider in-plume conditions when the rBC mass concentration is higher than the 75th percentile, similarly, lower than the 25th percentile of the rBC mass concentration is considered as background conditions. In this way, we linked the SP2 observations with the absorption coefficient at 630nm to calculate the Mass Absorption Coefficient (MAC in $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$) in both conditions. Focusing on the flight #28 during in-plume conditions, preliminary results exhibit an evolution of the MAC from 12 $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ near Paris to 14 $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ at 103 km far away. This enhance of 2 $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ could be related to the atmospheric aging by coating with secondary aerosol constituents (e.g. organics, sulfate). Previous studies (Bond et al., 2013; Khalizov et al., 2013; Qiu et al., 2012; Shiraiwa et al., 2010; Sun et al., 2020; Yus-Díez et al., 2022) yielded a broad range of MAC enhancements from 1.05 to 3.50, varying with the diameter, morphology, and coating of BC particles. Further analysis is ongoing to understand this evolution by comparing it with other variables (e.g. chemical composition, photochemistry, CO:BC ratio) and quantifying the mixing state with two methods (delay time and leading-edge-only).

References

- 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. Atmospheres* 118, 5380–5552. <https://doi.org/10.1002/jgrd.50171>
- Forster, P., Storelvmo, T., Armour, K., Collins, W., Dufresne, J.-L., Frame, D., Lunt, D.J., Mauritsen, T., Palmer, M.D., Watanabe, M., Wild, M., Zhang, X., 2021. The Earth's energy budget, climate feedbacks, and climate sensitivity, in: Masson-Delmotte, V., Zhai, P., Pirani, A., Connors, S.L., Péan, C., Berger, S., Caud, N., Chen, Y., Goldfarb, L., Gomis, M.I., Huang, M., Leitzell, K., Lonnoy, E., Matthews, J.B.R., Maycock, T.K., Waterfield, T., Yelekçi, Ö., Yu, R., Zhou, B. (Eds.), *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 923–1054. <https://doi.org/10.1017/9781009157896.001>
- Khalizov, A.F., Lin, Y., Qiu, C., Guo, S., Collins, D., Zhang, R., 2013. Role of OH-Initiated Oxidation of Isoprene in Aging of Combustion Soot. *Environ. Sci. Technol.* 47, 2254–2263. <https://doi.org/10.1021/es3045339>
- Ko, J., Krasowsky, T., Ban-Weiss, G., 2020. Measurements to determine the mixing state of black carbon emitted from the 2017–2018 California wildfires and urban Los Angeles. *Atmospheric Chem. Phys.* 20, 15635–15664. <https://doi.org/10.5194/acp-20-15635-2020>
- Liu, S., Aiken, A.C., Gorkowski, K., Dubey, M.K., Cappa, C.D., Williams, L.R., Herndon, S.C., Massoli, P., Fortner, E.C., Chhabra, P.S., Brooks, W.A., Onasch, T.B., Jayne, J.T., Worsnop, D.R., China, S., Sharma, N., Mazzoleni, C., Xu, L., Ng, N.L., Liu, D., Allan, J.D., Lee, J.D., Fleming, Z.L., Mohr, C., Zotter, P., Szidat, S., Prévôt, A.S.H., 2015. Enhanced light absorption by mixed source black and brown carbon particles in UK winter. *Nat. Commun.* 6, 8435. <https://doi.org/10.1038/ncomms9435>
- Moteki, N., Kondo, Y., Miyazaki, Y., Takegawa, N., Komazaki, Y., Kurata, G., Shirai, T., Blake, D.R., Miyakawa, T., Koike, M., 2007. Evolution of mixing state of black carbon particles: Aircraft measurements over the western Pacific in March 2004. *Geophys. Res. Lett.* 34. <https://doi.org/10.1029/2006GL028943>
- Naik, V., Szopa, S., Adhikary, B., Artaxo Netto, P.E., Berntsen, T., Collins, W.D., Fuzzi, S., Gallardo, L., Kiendler-Scharr, A., Klimont, Z., Liao, H., Unger, N., Zanis, P., 2021. Short-lived climate forcers, in: Masson-Delmotte, V., Zhai, P., Pirani, A., Connors, S.L., Péan, C., Berger, S., Caud, N., Chen, Y., Goldfarb, L., Gomis, M.I., Huang, M., Leitzell, K., Lonnoy, E., Matthews, J.B.R., Maycock, T.K., Waterfield, T., Yelekçi, Ö., Yu, R., Zhou, B. (Eds.), *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 817–922. <https://doi.org/10.1017/9781009157896.001>
- Peng, J., Hu, M., Guo, S., Du, Z., Zheng, J., Shang, D., Levy Zamora, M., Zeng, L., Shao, M., Wu, Y.-S., Zheng, Jun, Wang, Y., Glen, C.R., Collins, D.R., Molina, M.J., Zhang, R., 2016. Markedly enhanced absorption and direct radiative forcing of black carbon under polluted urban environments. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 113, 4266–4271. <https://doi.org/10.1073/pnas.1602310113>
- Qiu, C., Khalizov, A.F., Zhang, R., 2012. Soot Aging from OH-Initiated Oxidation of Toluene. *Environ. Sci. Technol.* 46, 9464–9472. <https://doi.org/10.1021/es301883y>

- Shiraiwa, M., Kondo, Y., Iwamoto, T., Kita, K., 2010. Amplification of Light Absorption of Black Carbon by Organic Coating. *Aerosol Sci. Technol.* 44, 46–54. <https://doi.org/10.1080/02786820903357686>
- Sun, J., Wang, Zhe, Zhou, W., Xie, C., Wu, C., Chen, C., Han, T., Wang, Q., Li, Z., Li, J., Fu, P., Wang, Zifa, Sun, Y., 2022. Measurement report: Long-term changes in black carbon and aerosol optical properties from 2012 to 2020 in Beijing, China. *Atmospheric Chem. Phys.* 22, 561–575. <https://doi.org/10.5194/acp-22-561-2022>
- Sun, J.Y., Wu, C., Wu, D., Cheng, C., Li, M., Li, L., Deng, T., Yu, J.Z., Li, Y.J., Zhou, Q., Liang, Y., Sun, T., Song, L., Cheng, P., Yang, W., Pei, C., Chen, Y., Cen, Y., Nian, H., Zhou, Z., 2020. Amplification of black carbon light absorption induced by atmospheric aging: temporal variation at seasonal and diel scales in urban Guangzhou. *Atmospheric Chem. Phys.* 20, 2445–2470. <https://doi.org/10.5194/acp-20-2445-2020>
- Tinorua, S., Denjean, C., Nabat, P., Bourriane, T., Pont, V., Gheusi, F., Leclerc, E., 2023. Two-year measurements of Black Carbon properties at the high-altitude mountain site of Pic du Midi Observatory in the French Pyrenees. *EGUsphere* 2023, 1–33. <https://doi.org/10.5194/egusphere-2023-570>
- Yus-Díez, J., Via, M., Alastuey, A., Karanasiou, A., Minguillón, M.C., Perez, N., Querol, X., Reche, C., Ivančić, M., Rigler, M., Pandolfi, M., 2022. Absorption enhancement of black carbon particles in a Mediterranean city and countryside: effect of particulate matter chemistry, ageing and trend analysis. *Atmospheric Chem. Phys.* 22, 8439–8456. <https://doi.org/10.5194/acp-22-8439-2022>

GDR Suie Besançon 24-26 octobre 2023

Titre de la présentation : « Étude d'inter-comparaison de trois méthodes de mesures des concentrations en carbone-suie sur deux ans de campagne à la station de recherches du Pic du Midi. »

Sarah Tinorua¹ (Doctorante 3e année), Cyrielle Denjean¹, Pierre Nabat¹, Mathilde Arnaud¹, Thierry Bourrienne¹, Véronique Pont², Maria Diaz Alvez², Eric Gardrat², et Corinne Galy Lacaux²

¹ CNRM, Université de Toulouse, Météo-France, CNRS, Toulouse, France

² Laboratoire d'Aérologie, UPS Université Toulouse 3, CNRS (UMR 5560), Toulouse, France

Le carbone-suie (BC) est une des espèces atmosphériques clé dans le changement climatique, avec des effets sanitaires nocifs. Il existe des incertitudes importantes quant à l'estimation de son forçage radiatif et à l'évaluation de son impact sur la santé en raison de l'absence d'un moyen standard pour mesurer la concentration massique de BC.

Cette étude présente une analyse comparative sur deux ans de trois techniques de mesure du BC couramment utilisées à la station de recherche du Pic du Midi, située dans les Pyrénées françaises à une altitude de 2877 m au-dessus du niveau de la mer. L'aéthalomètre AE33 récemment amélioré, un analyseur thermo-optique Sunset et un photomètre SP2 ont été déployés pour mesurer simultanément la concentration massique de BC équivalent (M_{eBC}), de carbone élémentaire (M_{EC}) et de BC réfractaire (M_{rBC}), respectivement.

Nous avons notamment observé des écarts importants dans la réponse des instruments. Toutefois, toutes les techniques de mesures ont pu reproduire les variations saisonnières des concentrations en BC atmosphérique et ont montré une bonne corrélation tout au long de la période d'étude. Les résultats obtenus démontrent que, malgré les différents principes physiques sous-jacents aux différents instruments, ils ont pu quantifier le même type de particules. Cependant, les pentes et les coefficients de corrélation présentaient une variabilité entre les instruments considérés deux à deux. En particulier, l'AE33 a révélé les biais les plus importants, avec des valeurs de M_{eBC} environ 2 fois supérieures aux valeurs de M_{rBC} et M_{EC} . Les ratios mensuels M_{eBC}/M_{rBC} et M_{EC}/M_{rBC} variaient entre 1.8 et 6.7 et entre 0.9 et 8.3, respectivement.

La principale explication de ces écarts importants tient aux valeurs de MAC_{BC} et C_{ref} trop faibles recommandées par le fabricant de l'AE33 et appliquées aux coefficients d'atténuation mesurés par l'instrument. De plus, le transport longue distance de particules de poussières désertiques au PDM au printemps a entraîné une augmentation significative du biais entre l'AE33 et le SP2, atteignant un facteur 8. Les mesures de M_{EC} obtenues par le Sunset ont montré une concordance d'environ 17 % avec les valeurs de M_{rBC} mesurées par le SP2. Il a été observé que le M_{EC} était significativement surestimé lorsque la concentration totale de carbone sur le filtre était inférieure à $25 \mu\text{gC cm}^{-2}$. Cette surestimation pourrait être attribuée à une mauvaise détermination du point de discrimination OC-EC (appelé split point). Enfin, nous avons observé une contribution de la gamme de détection en taille limitée du SP2 à cet écart ; car elle ne permettait pas la détection des plus petites particules de rBC.

Bio-analytical approach to discover potent toxic chemicals associated to primary or aged (secondary) wood combustion particles

A. El Mais^{1,2}, B. D'Anna², S. Aït-Aïssa¹, and A. Albinet¹

¹Ineris, Parc Technologique Alata, Verneuil-en-Halatte, 60550, France

²Aix Marseille Univ, CNRS, LCE, Marseille, France

Presenting author email: alexandre.albinet@ineris.fr

Residential wood combustion (RWC) is a significant source of fine particulate matter (PM_{2.5}) in ambient air especially in winter. Due to large amounts of volatile and semi-volatile organic compounds (VOCs and SVOCs) emitted, this source also induces the formation, through atmospheric photo-(oxidation) processes, of secondary organic aerosols (SOA) which account for a significant fraction of PM_{2.5}. As PM are complex mixtures, chemical analyses alone cannot fully characterize them nor identify unknown bio-active species. Implementing complementary integrated strategies, combining effect-based assessment and analytical methods (bio-analytical approach) can allow to evaluate the overall PM biological activity and reveal the presence of potent toxicological compounds. In this context, the main objectives of this work were first, to assess and compare, using *in vitro* bioassays, the biological responses of the primary and aged RWC PM emissions, as well as of SOA formed from the oxidation of key precursors largely emitted by biomass burning processes namely PAHs and furans; and second, to identify, using effect-directed analysis (EDA), the key species involved in the observed biological responses. The daytime (OH radicals) or nighttime (NO₃ radicals) atmospheric aging of 4 pure PAHs and 3 furans, or RWC emissions, was simulated using a Potential Aerosol Mass - Oxidation Flow Reactor (PAM-OFR). RWC experiments have been carried out using two modern residential heating appliances (logwood and pellets stove) under different output conditions (nominal and reduced). The biological responses of the generated PAHs and furans SOA, as well as primary and aged RWC PM, were assessed using *in vitro* bioassays targeting different modes of action (aryl hydrocarbon receptor (AhR), (anti)estrogenicity, and (anti)androgenicity). Selected active samples were fractionated by liquid chromatography and fractions obtained were individually tested for their AhR activity. Non-targeted screening (NTS) chemical analyses were then performed by GC-MS on the most potent fractions to identify the bioactive compounds. Results obtained showed that only the SOA formed from the oxidation of PAHs induced significant AhR-mediated activity, which was even higher when SOA were formed through NO₃ radical oxidation processes. The biological responses observed for RWC emissions, mainly AhR (and partial anti-androgenic), were dependent on the heating appliances and output conditions. They typically decreased, or remained comparable, after aging due to the degradation or inactivation of active primary ligands and/or the formation of new active compounds. Targeted chemical analyses of 45 PAHs, oxy- and nitro-PAHs explained only 1 to 23% of the observed AhR biological activity. Finally, EDA identified 18 AhR ligands that were confirmed for their individual activity, including 6 in PAH SOA samples and 2 in RWC emissions never reported before. Overall, this work has shown the relevance of combining effect-based methods with NTS chemical characterization to discover new key PM bioactive constituents that might be later monitored in ambient air as well as in combustion emissions.

El Mais, A. E. R.: Primary and secondary residential wood combustion emissions: physicochemical and bio-analytical characterization and effect-directed analysis (EDA), PhD Thesis, Université Aix Marseille, 2023.

Keywords: Atmospheric chemistry, Air quality, Biomass burning, Secondary organic aerosols (SOA), *In vitro* bioassays, Effect-directed analysis (EDA), Non-targeted analyses (NTA).

Etude expérimentale en chambre de simulation atmosphérique des propriétés des aérosols carbonés d'intérêt pour le climat

Di Biagio Claudia and the B2C team

Université Paris Cité, Univ Paris Est Creteil, CNRS, LISA, F-75013 Paris, France

L'aérosol carboné, sous forme de particules contenant du black carbon (BC) et brown carbon (BrC), est parmi les plus forts absorbeurs du rayonnement solaire et aussi l'une des plus grandes incertitudes dans l'évaluation du forçage climatique planétaire. Emis par des processus de combustion et par réaction des composantes atmosphériques d'origine à la fois naturelle ou anthropique, l'aérosol carboné reste difficile à représenter dans les modèles climatiques et les algorithmes de restitution satellitaire. En particulier les propriétés optiques spectrales de ces aérosols, et plus spécifiquement leur dépendance à l'état physico-chimique de la particule et modification au cours du vieillissement atmosphérique, restent inconnues.

Pour avancer sur ces questionnements des études originales sont réalisées dans la chambre de simulation atmosphérique CESAM (Chambre expérimentale de simulation atmosphérique multiphasique, <https://cesam.cnrs.fr/>) du LISA dans le cadre du projet ANR JCJC B2C : Black and Brown Carbon. Le projet B2C s'appuie sur des expériences de laboratoire originales à la chambre CESAM afin d'étudier les propriétés optiques spectrales des : 1 / aérosols primaires absorbants (suies), produites par un générateur commerciale (minCAST, Jing) considérés comme représentatifs des particules de combustion contenant du BC ; 2 / aérosols primaires vieilli, donc particules de suies après avoir subi un vieillissement physique (coagulation, irradiation, humidification) ou une réaction hétérogène avec des constituants atmosphériques induisant la formation de revêtements inorganiques / organiques sur eux ; et 3/ aérosols secondaires absorbants de type BrC générés chimiquement par des réactions chimiques et processing des aérosols organiques secondaires. La stratégie du projet B2C consiste à générer des aérosols dans la chambre CESAM et à les faire vieillir dans des conditions réalistes et atmosphériques pertinentes, et à caractériser simultanément leurs propriétés optiques spectrales et leur état physico-chimique sur la base de l'instrumentation, protocoles de laboratoire établis et approches de modélisation avancées. L'objectif est de quantifier l'impact de la composition chimique et de la morphologie sur les propriétés optiques essentielles de ces particules qui sont: l'efficacité d'extinction, d'absorption et de diffusion (MEE, MAE, MSE, $m^2 g^{-1}$, i.e. extinction, absorption, et diffusion par unité de masse), l'indice de réfraction complexe ($m=n-ik$) et l'albédo de simple diffusion (SSA, i.e. rapport entre diffusion et extinction). Le projet fournira des données originales et complémentaires aux études précédentes, permettant d'avancer notre état des connaissances des aérosols carbonés.

Une vue d'ensemble des expériences réalisées et en cours à CESAM à la fois sur les suies et le BrC, et résultats obtenus jusqu'à présent, sera illustré.

Stratégie d'amélioration de la modélisation de l'interaction lumière-agrégats de suie

J. Yon¹, J. Moran¹, C. Argentin¹, R. Ceolato², M. Mazur¹

¹Normandie Univ, UNIROUEN, INSA Rouen, CNRS, CORIA, Rouen, 760 0 0, France

²ONERA, The French Aerospace Lab, Toulouse University, 31055 Toulouse, France

La métrologie des aérosols ainsi que la modélisation de leurs propriétés radiatives reposent sur notre capacité à modéliser l'interaction lumière-particules (détermination de leurs sections efficaces d'absorption et de diffusion). La théorie de Mie joue parfaitement ce rôle pour des particules sphériques mais n'est pas adaptée aux particules de type agrégats fractals comme les particules de suie. La théorie Rayleigh-Debye-Gans for Fractal Aggregates a été développée pour tenir compte de la morphologie spécifique des agrégats de suie en considérant leur « petite » dimension relativement à la lumière visible. Mais cette théorie repose sur certaines hypothèses simplificatrices (notamment l'absence de couplage optique interne entre les sphérules primaires) conduisant à des erreurs parfois importantes qu'il convient de réduire. Pour améliorer cette théorie RDG-FA et proposer des termes correctifs, il est nécessaire de mieux comprendre comment le couplage optique impacte l'évaluation des sections efficaces. Pour répondre à cet enjeu, le CORIA a développé une stratégie en trois étapes :

-Production d'agrégats virtuels à morphologie réaliste, prenant en compte le recouvrement des sphérules et l'évolution des conditions thermodynamiques au sein d'une flamme (couplage à la CFD)[1-5],

-Détermination du champ électrique au sein de ces particules en résolvant de façon rigoureuse les équations de Maxwell (usage de l'approche discrète dipolaire)[6],

-Interprétation du champ électrique local à l'aide de l'outil phasorial afin d'aboutir à des termes correctifs de la théorie RDG-FA[7-9].

Cette présentation illustrera ces différentes étapes et fera l'état d'avancement de ce projet et dressera les perspectives de ce travail ainsi que son impact potentiel, par exemple pour la métrologie LIDAR des aérosols carbonés [10].

Bibliographie

1. Morán, J., et al., *Multi-scale soot formation simulation providing detailed particle morphology in a laminar coflow diffusion flame*. Combustion and Flame, 2023. **256**: p. 112987.
2. Morán, J., A. Poux, and J. Yon, *Impact of the competition between aggregation and surface growth on the morphology of soot particles formed in an ethylene laminar premixed flame*. Journal of Aerosol Science, 2021. **152**: p. 105690.
3. Morán, J., et al., *Impact of the maturation process on soot particle aggregation kinetics and morphology*. Carbon, 2021. **182**: p. 837-846.
4. Morán, J., 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, 2020. **575**: p. 274-285.
5. Morán, J., J. Yon, and A. Poux, *Monte Carlo Aggregation Code (MCAC) Part 1: Fundamentals*. Journal of Colloid and Interface Science, 2020. **569**: p. 184-194.

6. Draine, B.T. and P.J. Flatau, *User Guide for the Discrete Dipole Approximation Code DDSCAT 7.1* (<http://arxiv.org/abs/1002.1505>). astro-ph.IM, 2010.
7. Argentin, C., et al., *Electromagnetic coupling and determination of the structure factor of fractal aggregates*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2023. **296**: p. 108451.
8. Argentin, C., et al., *A semi-empirical correction for the Rayleigh-Debye-Gans approximation for fractal aggregates based on phasor analysis: Application to soot particles*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2022: p. 108143.
9. Argentin, C., et al., *Assessing the limits of Rayleigh–Debye–Gans theory: Phasor analysis of a bisphere*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2021. **264**: p. 107550.
10. Ceolato, R., et al., *Black carbon aerosol number and mass concentration measurements by picosecond short-range elastic backscatter lidar*. Scientific Reports, 2022. **12**(1): p. 8443.

Shifts of the UV-visible absorption peaks of soot nanoparticles as a function of their coalescence: an atomistic study

Nicolas Brosseau^(1,2), Michel Devel⁽¹⁾ and Sylvain Picaud⁽²⁾

¹Institut FEMTO-ST – UMR 6174 CNRS/UFC/ENSMM/UTBM, Besançon, France

²Institut UTINAM – UMR 6213 CNRS/UFC, Besançon, FRANCE

Soot particles emitted by combustion processes are suspected to have a non-negligible impact on the Earth's radiative balance.

Up to now, remote observation of their interaction with light is almost the only way of characterizing their structure, *in situ*. Thus, we seek to get better estimations of the absorption cross-sections of these particles in the UV-visible part of the spectrum as a function of their detailed structure (geometric and chemical) to better characterize them.

Among the methods used to compute optical properties of particles with arbitrary shapes, the Atomic Dynamic Point Dipole Interaction (ADPDI) model developed in Besançon [1-4] is similar to the classical DDA (Dipole Dipole Approximation) but has the distinctive advantage of being sensitive to the atomistic geometry [1-3] of the particle and to the chemical functions it contains. This model however requires an adequate parameterization of the atomic polarizabilities for all the atomic species forming the particle [4], over the UV-visible spectrum, and the knowledge of the atomic coordinates of all the atoms in the particle. Following previous works that modeled isolated spherules of soot at the atomic scale [1-4], here I have considered two identical carbonaceous spherules made of 2753 carbon atoms, varying the distance between their centers, hence their degree of interpenetration, to quantify the effect of coalescence on the optical properties of soot particles.

First, I used the molecular dynamics software LAMMPS [5] to obtain the equilibrated atomic coordinates of the two more or less interpenetrated spherules, using AIREBO or ReaxFF reactive force fields. As a result of the interpenetration distance, a decrease of the aromatic over aliphatic C ratio is obtained. Then, I showed that the range of interpenetration leads to significant, increasing shifts of the maxima of the peaks of the absorption cross-section spectra computed with the ADPDI method implemented in the Polar_scatt code developed in Besançon [1-2].

1. *Optical properties of soot nanoparticles*. F. Moulin, M. Devel and S. Picaud, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Trans.*, **109**, 1791-1801 (2008)
2. *Bottom-up multi-step approach to study the relations between the structure and the optical properties of carbon soot nanoparticles*. R. Langlet, M.R. Vanacharla, S. Picaud and M. Devel, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Trans.*, **110**, 1615-1627 (2009)
3. *Calculations of the mass absorption cross sections for carbonaceous nanoparticles modeling soot*. C. García-Fernández, S. Picaud, M. Devel, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Trans.*, **164**, 69-81 (2015)
4. *A CRYSTAL-based parameterization of carbon atom dynamic polarizabilities to compute optical properties of curved carbonaceous nanostructures*. M. Rérat, J.-C. Rayez, B. Fabian, M. Devel, S. Picaud, *Theoretical Chemistry Accounts*, 65-75 (2022),
5. *LAMMPS - a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales*. A. P. Thompson, H. M. Aktulga, R. Berger et al. *Comp Phys Comm*, 271, 10817 (2022)

Mesures d'analogues de micro-ondes pour les études électromagnétiques et de diffusion de la lumière

J.-M. Geffrin¹, V. Tobon-Valencia¹, F. Ménard², J-B Renard³, H. Tortel¹, A. Litman¹

¹ Aix Marseille Univ, CNRS, Centrale Marseille, Institut Fresnel, Marseille, France

² Univ. Grenoble Alpes, CNRS, IPAG, 38000 Grenoble, France

³ LPC2E, Université d'Orléans, CNRS, Orléans, France

Basée sur la règle d'invariance d'échelle, l'analogie micro-onde, est connue depuis les années 60 et les travaux du groupe de Greensberg. De nos jours, les progrès techniques des appareils de mesure des micro-ondes, combinés aux progrès de l'impression 3D, permettent de caractériser en laboratoire les propriétés de diffusion d'une large gamme d'objets dont les caractéristiques géométriques et d'indice de réfraction peuvent être contrôlées. À partir des mesures du champ diffusé complexe d'une particule donnée effectuées dans des conditions contrôlées et dans plusieurs orientations, nous pouvons obtenir les paramètres des matrices de Jones et de Mueller dans l'hypothèse d'un couplage faible. Le nombre de vues pertinentes est déterminé en contrôlant la convergence de nos résultats [1]. Comme nos mesures varient en fréquence entre 3 et 18 GHz, nous utilisons également l'invariance d'échelle pour combiner la réponse de particule de différentes tailles, imitant ainsi une population de particules avec une loi de distribution choisie [2]. De plus, grâce à la capacité de notre équipement à fournir des champs complexes calibrés, d'autres combinaisons peuvent être réalisées, comme, une orientation privilégiée des particules.

Comme nous effectuons ces études avec une variété croissante de particules, nous avons décidé de partager nos mesures et les résultats de nos simulations dans une base de données appelée EMSCOP (cf. fresnel.fr/EMSCOP). Cette base de données sera régulièrement enrichie (grâce au projet ERC DUST2PLANETS, GA No. 101053020). Nous montrerons ici quelques exemples de résultats obtenus avec des agrégats et des particules rugueuses et des comparaisons avec les calculs obtenus avec notre code éléments finis. La prochaine évolution de notre dispositif expérimental est déjà en cours (grâce au projet France 2030 IDEC, ANR-21-ESRE-0002), et nous montrerons comment, avec un double bras de portique, nous pourrions mesurer le champ diffusé presque tout autour de l'objet testé.

Nous en profitons également pour remercier le GdR Suie pour les collaborations qu'il nous a apporté, les nombreux échanges qu'il nous permis d'avoir, et aussi pour les soutiens financiers qu'il a pu apporter à nos projets, ...

[1] Renard, J. B. et al (2021). Nombre de mesures indépendantes nécessaires pour obtenir des propriétés de diffusion moyennes fiables de particules irrégulières ayant un petit paramètre de taille, en utilisant des mesures par analogie avec les micro-ondes. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 272, 107718.

[2] Vanesa Tobon Valencia. Exploring the formation of planets with microwave measurements of protoplanetary dust analogs. Physique [physique]. Université d'Aix-Marseille, 2022. En anglais. (NNT :). (tel-03962660)

Spline-based radial property reconstruction for noise and trapping correction for emission, light scattering and extinction measurements in axisymmetric sooting flames

M. Littin¹, G. Lefevre¹, M. Mazur¹, A. Fuentes², and J. Yon¹

¹*INSA Rouen Normandie, Univ Rouen Normandie, CNRS, Normandie Univ, CORIA UMR 6614, F-76000 Rouen, France.*

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

September 28, 2023

Abstract

The experimental characterisation of soot particles, which are generated during incomplete combustion of fossil fuels and contribute significantly to global warming and respiratory diseases [1], presents a considerable challenge. Recent advancements have brought the innovative techniques of Multiwavelength Line-of-Sight Attenuation (MW-LOSA), Emission [2], and Horizontal Angular Light Scattering (HPALS) [3] to the forefront of in-situ soot measurement techniques. With the help of the RDF-FA light particle interaction theory, these methods are capable of giving access to spatial profiles of integral soot properties such as volume fraction, maturity, particle size, and optical index. However, the complexities associated in extinction, emission and scattering require robust inversion tools. A common problem is the Abel reconstruction of radial symmetric flames, which experiences high noise due to error multiplication [4]. In this context, a novel approach for the Abel inversion is introduced, based on clamped cubic splines. The effect of self-absorption in emission is taken into account, enabling accurate and representative signal reconstruction from extinction/emission measurements in a canonical laminar flame. Additionally, the impact of signal trapping in light scattering measurements is presented. Reliable and precise inversion solutions facilitate accurate soot temperature measurements, volume fraction determination, and optical index assessment, thereby enhancing our understanding of soot formation.

References

- [1] Hill, W., Lim, E. L., et al., 2023. *Nature*, 616(7955):159–167.
- [2] Yon, J., Cruz, J. J., et al., 2021. *Combustion and Flame*, 227:147–161.
- [3] Yon, J., Morán, J., et al., 2021. *Combustion and Flame*, 232:111539.
- [4] Daun, K. J., Thomson, K. A., et al., 2006. *Applied Optics*, 45(19):4638.