

THESE

Présentée à :

L'université de Normandie

En vue de l'obtention du grade de :

Docteur

Discipline : Physique énergétique

par

Alexandre BESCOND

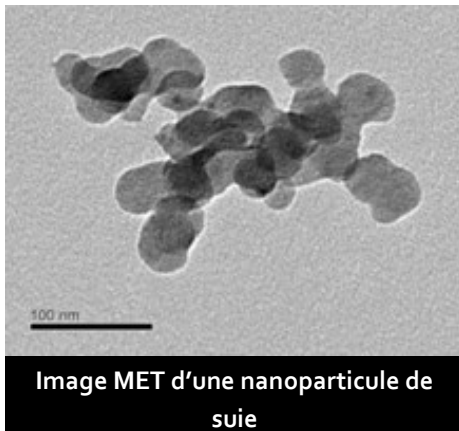
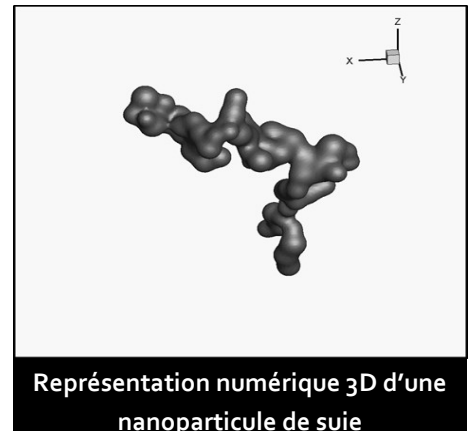


Image MET d'une nanoparticule de suie



Représentation numérique 3D d'une nanoparticule de suie

Mercredi 16 septembre 2015

À 14h en salle de conférences du CORIA

Contribution à la métrologie des nanoparticules de suie et à la caractérisation des particules produites par un générateur de référence

Direction de thèse : ROZE Claude

Devant le jury composé de :

VAILLON Rodolphe	Directeur de Recherche CNRS, UMR 5008 CETHIL, Lyon, France (Rapporteur)
CHAUMEIX Nabiha	Directrice de Recherche CNRS, UPR 3021 ICARE, Orléans, France (Rapporteur)
OUF François-Xavier	Ingénieur de Recherche IRSN, LPMA, Gif-sur-Yvette, France
D'Anna Barbara	Chargée de Recherche, IRCELYON, Lyon, France
GAFFIE Daniel	Chef de Projet, ONERA, PALAISEAU, France
COPPALLE Alexis	Professeur des universités, UMR 6614 CORIA, Rouen, France
ROZE Claude	Professeur des universités, UMR 6614 CORIA, Rouen, France
YON Jérôme	Maître de conférence, UMR 6614 CORIA, Rouen, France (encadrant)

RESUME

Dans le cadre de ses réflexions sur l'impact de l'aviation civile sur l'environnement, le Réseau Thématique Aéronautique et Environnement (RTAE) du Conseil pour la Recherche Aéronautique (CORAC) a lancé une étude sur les traînées de condensation et les cirrus induits générés par le trafic aérien en altitude et leur impact sur l'environnement. Le projet dans lequel s'inscrit cette thèse (projet MERMOSE, financé par la Direction Générale de L'Aviation Civile) a pour objectif la caractérisation des émissions particulières de moteurs aéronautiques et l'étude de leur réactivité avec l'eau. L'objectif du travail présenté dans ce mémoire et, dans le cadre du projet MERMOSE, est, tout d'abord, de contribuer au développement de la métrologie des aérosols produits par la combustion (la suie) puis, de mettre en œuvre ces outils afin de caractériser le plus finement possible les nanoparticules produites par un générateur d'aérosol de combustion de référence (le miniCAST 5201c) et par un moteur d'avion.

D'importants moyens de métrologie ont été mis en œuvre pour caractériser les propriétés morphologiques, physico-chimiques et optiques des nanoparticules de suie ainsi générées. Outre l'emploi d'appareils commerciaux *standards* (*granulométrie SMPS, concentration massique TEOM, microscopie électronique en transmission MET...*), des techniques optiques ont été mises en œuvre (*dépolarisation, extinction spectrale*) ainsi que des couplages de techniques conduisant, par exemple, à la détermination de la masse volumique effective ou encore à la détermination des propriétés optiques. Dans le cadre de ce travail, l'exploitation des résultats ainsi obtenus a été menée à l'aide de théories, modèles ou méthodes qui ont été soit conçus (*modèle de masse volumique effective, analyse automatisée des clichés MET*) ou améliorés (*théorie de l'interaction lumière-agrégats RDG-FA avec prise en compte des effets de diffusion multiple au sein des agrégats de suie*). Dans chaque cas, ces développements ont été menés dans un souci constant de précision, en observant, par exemple, l'impact de la prise en compte d'une morphologie réaliste des agrégats de nanoparticules (*recouvrement et jointure entre les sphérules primaires*).

Ces couplages de mesures, ainsi que les méthodes d'exploitations proposées, ont permis d'accéder à des grandeurs essentielles telles que la distribution de taille des sphérules primaires, la dimension fractale des agrégats, la masse volumique de la sphérule, et leurs propriétés optiques, ouvrant notamment la voie à une spéciation optique des nanoparticules de suie par leur taux de composés organiques et leur état microstructural (*amorphe / cristallin*).

Le générateur miniCAST permet la génération stable et reproductible de particules de suie présentant des propriétés morphologiques et physico-chimique (et par conséquent optiques) variées. Il peut être utilisé comme *substitut* de suies générées par différentes sources.

Mots-clés : métrologie des aérosols, nanoparticules de suie, morphologie, propriétés optiques, composés organiques, distribution de taille

ABSTRACT

In the context of the civil aviation impact on the environment, the French aerospace and environment thematic network (called RTAE) of the French council for civil aeronautics research (CORAC) launched a study on contrails formation. The environmental impact of the induced cirrus generated by air traffic in altitude was also analyzed. The project in which this thesis is carried out (MERMOSE project, financed by the French general council of civil aviation) aims to characterize the particles emitted by an aeronautic engine and to study the soot reactivity with water. First of all, the work presented in this manuscript contributes to the improvement of the metrology of aerosol produced by combustion (soot). Furthermore, tools are designed and implemented to accurately characterize the nanoparticles produced by a reference aerosol combustion generator (miniCAST 5201c) and by an aircraft engine.

Significant metrology means have been used to characterize the morphological, physico-chemical and optical properties of soot nanoparticles. Besides the use of standard commercial devices (*SMPS sizer, mass concentration TEOM, Transmission Electronic Microscopy TEM ...*), optical techniques have also been used (*depolarization of light, extinction spectra*). The coupling of those techniques leads, for example, to the determination of the effective density or to the determination of optical properties. The exploitation of the obtained results has been carried out by using theories, modelling or methods that have been proposed (*modelling of the effective density, automatized processing of TEM images*) or improved (*theory of light interaction with aggregates RDG-FA with the taking into account of internal multiple scattering*). Accordingly, these new findings intend to improve the accuracy of the previously developed techniques. For example, the impact of accounting for a realistic morphology of aggregates (*overlapping and necking between primary particles*) has been studied.

The use of the aforementioned techniques or methods permitted to reach key parameters such as the size distribution of primary particles, the fractal dimension of aggregates, the bulk density of primary spheres and their optical properties, opening the way to an optical speciation of soot nanoparticles by their organic compounds content and microstructure (*amorphous or graphitic*).

The miniCAST generator allows to produce soot nanoparticles with a great stability and repeatability with various morphological and physico-chemical (and by the way optical) properties. This generator can be used as a surrogate of soot generated by different sources.

Keywords : aerosol metrology, soot nanoparticles, morphology, optical properties, organic compounds, size distribution