

Titre de la thèse : identification optique de nanoparticules issues d'une combustion, en vue d'améliorer les détecteurs de particules ultrafines

Laboratoire d'accueil : FEMTO-ST et UTINAM

Spécialité du doctorat préparé : optique et photonique

Mots-clefs : suie, réponse optique, UV, modélisation atomistique, forçage radiatif, DLS, LIDAR, pollution, paramétrisation de modèles d'atmosphère

Descriptif détaillé de la thèse :

Introduction / contexte :

Les récents rapports du GIEC soulignent la nécessité d'estimer plus précisément le bilan radiatif de l'atmosphère terrestre pour réduire les incertitudes concernant l'ampleur et la temporalité des changements à venir. Contrairement à CO₂ qui a une grande durée de vie dans l'atmosphère (environ 300 ans), les particules générées par la combustion sont des composés atmosphériques à courte durée de vie (environ 4 à 10 ans), de sorte que tout changement dans l'utilisation, par exemple, des énergies fossiles, entraînerait un changement rapide de la quantité de particules carbonées dans l'atmosphère, alors que la concentration de CO₂ restera presque constante pendant une longue période [1]. Il est donc de la plus haute importance de connaître avec précision le forçage radiatif lié aux particules carbonées, en particulier pour mieux contraindre les modèles climatiques qui utilisent des données sur les propriétés d'absorption et de diffusion des différents constituants atmosphériques.

Cependant, la quantification de l'effet indirect des particules carbonées pourrait rester difficile à l'avenir en raison de la complexité des phénomènes correspondants, lesquels impliquent i) l'interaction de ces particules avec l'eau environnante pour former des noyaux de condensation des nuages et ii) diverses rétroactions sur le climat des nuages ainsi formés [2]. En revanche, une meilleure caractérisation de l'effet direct sur le climat des particules générées par la combustion peut, en principe, être attendue car le processus dépend principalement de la détermination des propriétés optiques des nanoparticules elles-mêmes [3]. Cela nécessite toutefois une meilleure connaissance de la distribution de la morphologie et de la composition des nanoparticules carbonées, depuis leur création jusqu'à leur croissance et leur vieillissement dans l'atmosphère [4,5].

A Besançon, nous travaillons dans ce domaine depuis de nombreuses années, avec une vraie spécificité par rapport à d'autres groupes utilisant des méthodes de calcul de réponse optique disponibles publiquement [6,7]. En effet, nous décrivons les grains de poussière à l'échelle atomique, avec des polarisabilités atomiques qui sont des quantités bien définies, au lieu de travailler avec des polarisabilités effectives d'éléments mésoscopiques de matière pour lesquels plusieurs prescriptions coexistent [8]. Ainsi, nous disposons de notre propre code de calcul des propriétés optiques des suies, sur la base de leurs caractéristiques atomiques [9,10,11].

De plus, afin de mieux décrire les phénomènes de vieillissement des suies, nous travaillons également tant avec des collègues du GDR SUIE (piloté par S. Picaud) qu'avec des collègues chinois et hongrois sur l'adsorption d'eau ou de composés volatiles sur des particules carbonées.

Le calcul des propriétés optiques que nous menons à Besançon concerne donc autant les suies naissantes que les suies « vieilles ».

Travaux envisagés :

Le but de ce travail de thèse est de simuler les spectres d'absorption et de diffusion de la lumière par des particules de suies comprenant diverses fonctions chimiques et éventuellement recouvertes par des molécules polyaromatiques hydrocarbonées, en fonction de la polarisation de l'onde incidente et des caractéristiques atomiques des particules concernées. Il se basera sur les travaux déjà réalisés à Besançon ces dernières années, en particulier le développement de la méthode PDI (Point Dipole Interaction) [9].

Nous utiliserons ensuite ces résultats pour entraîner un réseau de neurones permettant finalement de contribuer à identifier la structure physico-chimique de grains de suies submicrométriques présents dans l'atmosphère, à partir d'observations à distance. Ceci pourrait permettre d'améliorer aussi bien des détecteurs de nanoparticules que des modèles climatiques, ainsi que les études portant sur la santé des personnes susceptibles d'ingérer ces particules de suie. Ces informations seraient également pertinentes pour l'identification des grains carbonés du milieu interstellaire. Ces travaux seront conduits en étroite collaboration avec un collègue chinois qui s'intéresse lui-aussi à l'identification par réseau de neurones, mais dans le domaine de l'infra-rouge [12].

Interdisciplinarité

Ce projet de thèse concerne deux laboratoires bisontins, pilotés par deux instituts différents du CNRS (INSIS, INSU). Il implique des compétences tant en physique, qu'en chimie quantique, ainsi qu'en physique de l'atmosphère et en astrophysique pour ce qui a trait aux applications principales. Les travaux développés reposeront sur le couplage entre approches de simulations numériques à l'échelle atomique/moléculaire pour traiter des problèmes d'adsorption sur les suies (UTINAM) et générer les fichiers de coordonnées utilisés par la méthode PDI pour simuler la signature électromagnétique (sections efficaces, polarisation, indice optique effectif) des particules de suie, décrites atome par atome, dans le domaine UV-Visible (FEMTO-ST). Un gros effort sera également fait dans la mise en œuvre des méthodes de l'intelligence artificielle pour aller vers des applications en matière d'amélioration des modèles climatiques ou de détection des particules carbonées dans le milieu interstellaire, d'une part (UTINAM), pour l'aide au développement de nouveaux compteurs multifonctions de nanoparticules permettant une meilleure identification des fonctions chimiques présentes dans ces nanoparticules, voire de leur localisation (surface ou cœur), d'autre part (FEMTO-ST).

Références bibliographiques :

- [1] Bond, TC et al. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *J Geophys Res Atmos*, 2013, 118, 5380-5552.
- [2] Stephens GL, Cloud feedbacks in the climate system: A critical review. *J. Climate*, 2005, 18, 237-273.
- [3] Radney JG et al., Dependence of soot optical properties on particle morphology: measurements and model comparisons. *Environ Sci Technol*, 2014, 48, 3169-3176.
- [4] Kelesidis GA et al., Soot light absorption and refractive index during agglomeration and surface growth. *Proc Combust Inst*, 37, 2019, 1177-1184.
- [5] Kelesidis GA et al., The impact of organic carbon on soot light absorption. *Carbon*, 172, 2021, 742-749.
- [6] <http://ddscat.wikidot.com>
- [7] <https://github.com/adda-team/adda>
- [8] Moskalensky AE & Yurkin MA, A point electric dipole: From basic optical properties to the fluctuation-dissipation theorem, *Reviews in Physics*, 6, 100047 (2021);
- [9] Langlet et al., Bottom-up multi-step approach to study the relations between the structure and the optical properties of carbon soot nanoparticles. *J.Q.S.R.T.*, 2009, 110, 1615-1627.
- [10] Garcia-Fernandez, C. et al., Calculations of the Mass Absorption Cross Sections for carbonaceous nanoparticles modeling soot. *J.Q.S.R.T.* (2015) 164, 69-81.
- [11] Rerat, M. et al., A CRYSTAL-based parametrization of carbon atom dynamic polarizabilities to compute optical properties of curved carbonaceous nanostructures. *Theor. Chem. Acc.*, 2022, 141, 65.
- [12] Kovács et al., Machine-learning Prediction of Infrared Spectra of Interstellar Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, *ApJ*, 902:100 (9pp), 2020.

Profil demandé :

Nous recherchons une personne intéressée pour s'investir dans un projet d'au moins 3 ans, comprenant de la modélisation, des simulations en environnement de calculs hautes performances (centres de calculs nationaux ou régionaux), ainsi que l'utilisation de méthodes de l'intelligence artificielle.

Cette personne pourra donc provenir d'un Master recherche ou d'une école d'ingénieurs, avec une spécialité dans les domaines de la physique ou de la chimie numérique, de l'astrophysique, des sciences de l'environnement ou de l'atmosphère terrestre, ou encore de la photonique théorique.

Des notions de base sur la physico-chimie quantique, d'électromagnétisme dans les milieux continus, de programmation en fortran 2003 ou C++ ou python, voire une expérience de parallélisation de code seraient les bienvenues.

Financement : MESRI établissement

Dossier à envoyer pour le 14/06/2023

Début du contrat : 01/09/2023 ou 01/10/2023

Direction / codirection de la thèse :

- 50 % Michel DEVEL PU SupMicrotech-ENSMM, 03 63 08 24 94, michel.devel@femto-st.fr

- 50 % Sylvain PICAUD DR CNRS, 03 81 66 64 78, sylvain.picaud@univ-fcomte.fr

Logo labo

Logo
établissement



SPIM

école doctorale **sciences pour l'ingénieur et microtechniques**

PhD title : optical identification of particles generated during a combustion, application to the improvement of ultra-fine particles detectors

Host laboratory : FEMTO-ST and UTINAM

Speciality of PhD: optics and photonics

Keywords : soot, optical identification, UV, atomistic models, radiative forcing, DLS, LIDAR, pollution, parametrization of atmospheric models

Job description :

Introduction / background:

Recent IPCC reports emphasize the need to estimate more precisely the radiation forcing of Earth's atmosphere to reduce uncertainties about the magnitude and timing of future changes. Unlike CO₂, which has a long lifetime in the atmosphere (about 300 years), particles generated by combustion are short-lived atmospheric compounds (about 4 to 10 years), so any change in the use of, for example, fossil fuels would result in a relatively rapid change in the amount of carbonaceous particles in the atmosphere, while the concentration of CO₂ will remain almost constant for a long time [1]. It is therefore of the utmost importance to know precisely the radiative forcing related to carbonaceous particles, to better constrain climate models that are parametrized against absorption and scattering optical cross-sections of the various atmospheric constituents.

However, quantifying the indirect effect of carbonaceous particles may remain difficult in the future due to the complexity of the corresponding phenomena, which involve i) the interaction of these particles with the surrounding water to form cloud condensation nuclei, and ii) various feedbacks on the climate of the clouds thus formed [2]. On the other hand, a better characterization of the direct effect on climate of combustion-generated particles can, in principle, be expected because the process depends mainly on the determination of the optical properties of the nanoparticles themselves [3]. However, this requires a better knowledge of the distribution of the morphology and composition of carbonaceous nanoparticles, from their creation to their growth and aging in the atmosphere [4,5].

In Besançon, we have been working in this field for many years, with a real specificity compared to other groups that use publicly available optical response calculation codes [6,7]. Indeed, we describe dust grains at the atomic scale, with atomic polarizabilities that are well defined quantities, instead of working with effective polarizabilities of mesoscopic elements for which several prescriptions coexist [8]. Thus, we have our own code for calculating the optical properties of soot, based on their atomic characteristics [9,10,11].

Moreover, in order to better describe the aging phenomena of soot, we are also working with colleagues of the GDR SUIE (led by S. Picaud) and with Chinese and Hungarian colleagues, on the

adsorption of water or volatile compounds on carbonaceous particles. Thus, we could compute optical properties of soot as well as "aged" soot.

Description of the work planned for the beginning of the thesis:

The aim of this thesis is to simulate the absorption and scattering spectra of light by soot particles comprising various chemical functions and possibly covered by hydrocarbon polyaromatic molecules, as a function of the polarization of the incident wave and the atomic characteristics of the particles concerned. It will be based on the work already done in Besançon in the last few years, in particular the development of the PDI (Point Dipole Interaction) method [9].

We will then use these results to train a neural network that will eventually contribute to identify the physico-chemical structure of submicrometer soot grains present in the atmosphere, from remote observations. This could help improve climate models, as well as studies on the health of people likely to ingest these soot particles. This information would also be relevant for the identification of carbonaceous grains in the interstellar medium. This work will be conducted in close collaboration with a Chinese colleague who is also interested in neural network identification, but in the infrared domain [12].

Interdisciplinarity:

This thesis project concerns two laboratories in Bionne, led by two different CNRS institutes (INSIS, INSU). It involves skills in physics, quantum chemistry, as well as in atmospheric physics and astrophysics for the main applications. The work developed will be based on the coupling between numerical simulation approaches at the atomic/molecular scale to treat adsorption problems on soot (UTINAM) and to generate the coordinate files used by the PDI method to simulate the electromagnetic signature (cross sections, polarization, effective optical index) of soot particles, described atom by atom, in the UV-Visible domain (FEMTO-ST). A major effort will also be made in the implementation of artificial intelligence methods to improve climate models or the detection of carbonaceous particles in the interstellar medium, on the one hand (UTINAM), and on the other hand (FEMTO-ST), to help develop new multifunctional nanoparticle counters that will allow a better identification of the chemical functions present in these nanoparticles, or even their location (surface or core)

Bibliography :

- [1] Bond, TC et al. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *J Geophys Res Atmos*, 2013, 118, 5380-5552.
- [2] Stephens GL, Cloud feedbacks in the climate system: A critical review. *J. Climate*, 2005, 18, 237-273.
- [3] Radney JG et al., Dependence of soot optical properties on particle morphology: measurements and model comparisons. *Environ Sci Technol*, 2014, 48, 3169-3176.
- [4] Kelesidis GA et al., Soot light absorption and refractive index during agglomeration and surface growth. *Proc Combust Inst*, 37, 2019, 1177-1184.
- [5] Kelesidis GA et al., The impact of organic carbon on soot light absorption. *Carbon*, 172, 2021, 742-749.
- [6] <http://ddscat.wikidot.com>
- [7] <https://github.com/adda-team/adda>
- [8] Moskalensky AE & Yurkin MA, A point electric dipole: From basic optical properties to the fluctuation-dissipation theorem, *Reviews in Physics*, 6, 100047 (2021);
- [9] Langlet et al., Bottom-up multi-step approach to study the relations between the structure and the optical properties of carbon soot nanoparticles. *J.Q.S.R.T.*, 2009, 110, 1615-1627.
- [10] Garcia-Fernandez, C. et al., Calculations of the Mass Absorption Cross Sections for carbonaceous nanoparticles modeling soot. *J.Q.S.R.T.* (2015) 164, 69-81.
- [11] Rerat, M. et al., A CRYSTAL-based parametrization of carbon atom dynamic polarizabilities to compute optical properties of curved carbonaceous nanostructures. *Theor. Chem. Acc.*, 2022, 141, 65.
- [12] Kovács et al., Machine-learning Prediction of Infrared Spectra of Interstellar Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, *ApJ*, 902:100 (9pp), 2020.

Applicant profile:

We are looking for a person ready to commit herself in a project of at least 3 years, including modeling, simulations in high performance computing environment (national or regional computing centers), as well as the use of artificial intelligence methods.

This person could therefore have a Master's degree (or equivalent for engineers), with a specialization in the fields of physics or computational chemistry, astrophysics, environmental sciences of Earth's atmosphere, or theoretical photonics.

Basic knowledge of quantum physics and chemistry, electromagnetism in continuous media, programming in Fortran 2003 or C++ or Python, or even experience in code parallelization would be welcome.

Financing Institution: MESRI**Application deadline: 15/06/2023****Start of contract: 01/09/2023 or 01/10/2023****Thesis Supervisor(s):**

- 50 % Michel DEVEL PU SupMicrotech-ENSMM, 03 63 08 24 94, michel.devel@femto-st.fr
- 50% Sylvain PICAUD DR CNRS, 03 81 66 64 78, sylvain.picaud@univ-fcomte.fr