

Développement de la réfractométrie d'arc-en-ciel pour l'étude de l'évaporation de gouttes individuelles en écoulement

Damien Bonin

▶ To cite this version:

Damien Bonin. Développement de la réfractométrie d'arc-en-ciel pour l'étude de l'évaporation de gouttes individuelles en écoulement. Autre [cond-mat.other]. INSA de Rouen, 2011. Français. NNT : 2011ISAM0001 . tel-00583736

HAL Id: tel-00583736 https://theses.hal.science/tel-00583736

Submitted on 6 Apr 2011

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.

THÈSE

Présentée à l'

Institut National des Sciences Appliquées de Rouen

En vue de l'obtention du titre de

Docteur de l'INSA de Rouen

Discipline : Physique Spécialité : Energétique

Par

Damien BONIN

Développement de la réfractométrie d'arc-en-ciel pour l'étude

de l'évaporation de gouttes individuelles en écoulement

Soutenue le 12 janvier 2011

Composition du jury :

J. Van Beeck, Associate Professor, VKI, Bruxelles	Rapporteur
G. Lavergne, Professeur des Universités, ONERA, Toulouse	Rapporteur
F. Lemoine, Professeur des Universités, LEMTA, Nancy	Examinateur
C. Crua, Senior Researcher, SHRL, Brighton	Examinateur
C. Rousselle, Professeur des Universités, PRISME, Orléans	Examinateur
N. Roth, Dr-Ing., ITLR, Stuttgart	Examinateur
G. Gréhan, Directeur de Recherche, CORIA, Université et INSA de Rouen	Directeur de Thèse

Remerciements

Je tiens à remercier ici les personnes qui m'ont soutenu et aidé tout au long de cette thèse. Et en particulier :

Mon directeur de thèse, Gérard Gréhan, pour ses conseils, son soutien, sa passion pour la diffusion de la lumière (contagieuse !) et la physique en général.

Mes collègues thésards du CORIA et du GPM, pour leur soutien et leur amitié; Nicolas Verrier, Amélie Danlos, Nebya Salah et Karine Criner Thai en particulier.

Sawitree Saengkaew, pour son amitié et tous nos échanges fructueux sur l'arc-en-ciel.

Philippe Pruvot, du service électronique, pour sa gentillesse et son temps.

Le personnel de l'atelier du CORIA, qui a toujours fait au plus vite lorsque je leur demandais des pièces à produire "pour hier".

Enfin, ma famille, pour tous ses encouragements. Merci d'avoir cru en moi.

Table des matières

1 Introduction				1		
2	Evaporation : problématique et solutions par diagnostic optique			3		
	2.1	- Problé	Ématique	4		
	2.2	Modèl	es d'évaporation et hypothèses	5		
		2.2.1	Introduction	5		
		2.2.2	Présentation des modèles	6		
		2.2.3	Loi du D^2	6		
		2.2.4	Bilan sur le processus d'évaporation	9		
	2.3	Mesur	e de la vitesse	10		
		2.3.1	Anémométrie Doppler Laser	10		
		2.3.2	Vélocimétrie par images de particules	11		
	2.4	Mesur	e de la taille	11		
		2.4.1	Imagerie classique	12		
		2.4.2	Holographie	12		
		2.4.3	Imagerie en défaut de mise au point	13		
		2.4.4	Diffusion avant	14		
		2.4.5	Anémométrie Phase Doppler	15		
		2.4.6	Malvern	16		
		2.4.7	MDR	16		
	2.5	Mesur	e de la température	17		
		2.5.1	Techniques basées sur la diffusion élastique de la lumière	18		
		2.5.2	Infrarouge	25		
		2.5.3	LIF	26		
		2.5.4	Diffusion Raman	26		
	2.6	Réfrac	ctométrie d'arc-en-ciel : état de l'art	26		
	2.7	Discus	ssion sur la précision des techniques de mesure	28		
3	Thé	ories o	le la diffusion de la lumière pour des particules sphériques	31		
	3.1	Optiqu	ue géométrique	32		
	3.2	Théor	ie d'Airy	35		
	3.3	Théor	ie de Lorenz-Mie	37		
	3.4	Théor	ie de Debye	38		

	3.5	Théor	ie de Nussenzveig	40	
4	Réf	ractom	nétrie d'arc-en-ciel sur goutte unique	43	
	4.1	Introd	uction	43	
		4.1.1	Arc-en-ciel Standard	44	
		4.1.2	Influence des ordres d'arc-en-ciel sur le diagramme de diffusion	47	
		4.1.3	Étude de l'influence de la position de la goutte dans le faisceau	49	
	4.2	Arc-er	n-ciel en régime pulsé : principe et objectifs expérimentaux	56	
	4.3	Réfrac	tométrie d'arc-en-ciel en régime pulsé : dispositif expérimental	62	
		4.3.1	Mise en place du laser à double impulsion	65	
		4.3.2	Polarisation du laser	65	
		4.3.3	Injecteur	66	
		4.3.4	Caméra	68	
		4.3.5	Synchronisation	69	
		4.3.6	Procédure de traitement des données	72	
	4.4	Rejet	des particules non sphériques : cas des sphéroïdes	79	
	4.5	Réfrac	ctométrie d'arc-en-ciel en régime simple impulsion sur gouttes		
		unique	es : mesures statistiques de n et d	84	
		4.5.1	Processus d'inversion	84	
		4.5.2	Reproductibilité des mesures	95	
		4.5.3	Mesures statistiques de l'indice de réfraction et du diamètre	97	
5	Réf	ractom	nétrie d'arc-en-ciel en régime double impulsion : mesure d	u	
	tau	x d'éva	aporation	105	
	5.1	1 Principe			
	5.2	Dispos	sitif expérimental	107	
		5.2.1	Mise en place	107	
		5.2.2	Chaîne laser double impulsion et caméra double acquisition	107	
		5.2.3	Délais de commande et incertitude temporelle	111	
	5.3 Exploitation des résultats expérimentaux et simulations numériques				
	5.4	Influence du premier tir laser sur la seconde acquisition			
	5.5	Mesur	e du taux d'évaporation d'une goutte unique	115	
		5.5.1	Mesure du déphasage entre entre les signaux arc-en-ciel d'une ac-		
			quisition en mode double tir	116	
		5.5.2	Calcul de la variation de diamètre de la goutte à partir du déphasag	e121	
		5.5.3	Calcul du taux d'évaporation sur une goutte unique	126	
		5.5.4	Influence de la présence d'un gradient de température sur la mesure		
			du taux d'évaporation	129	
6	Cor	nclusio	n	133	
Bi	bliog	graphie	2	142	

Chapitre 1 Introduction

L'étude des sprays et des gouttelettes constitue un point clé pour comprendre le fonctionnement de nombreuses applications toujours en cours de développement, ces applications allant des moteurs à combustion interne aux sprays à usage médical, en passant des processus industriels tels que la fabrication de papier. Cette thèse présente l'étude de gouttes en cours d'évaporation, domaine lié notamment à la combustion de gouttes de carburant.

Le processus de combustion est déterminé par le mélange entre le carburant et l'air, qui joue le rôle d'oxydant. Le carburant est injecté dans la chambre de combustion après avoir été atomisé en petites gouttes, directement dans le cas d'un moteur à injection directe, ou *via* la chambre d'admission dans le cas d'un moteur à explosion classique. Lorsque le spray de carburant pénètre dans le cylindre et se répand dans celui-ci, l'air est entraîné par le spray, le mélange se produit et une évaporation a lieu, ce qui créée des conditions favorables à la formation du mélange combustible.

La position des gouttes de carburant et le niveau d'évaporation au moment de la combustion ont un impact direct sur le processus de création de polluants. Les émissions de NOx sont par exemple beaucoup plus élevées dans les régions où la température du carburant est la plus élevée. Les suies sont quand à elles produites dans les régions riches en carburant; leur formation à lieu principalement dans les moteurs de type Diesel, où la combustion est principalement déterminée par le taux de mélange. Les émissions de CO proviennent de carburants non brûlés dans les régions les plus froides du cylindre.

Un autre paramètre vient compliquer l'étude de l'évaporation : les combustibles du commerce (essence, diesel, kérosène...) sont des combustibles contenant de nombreux hydrocarbures aux propriétés différentes. Chaque composant ayant ses propres propriétés physico-chimiques, il influencera différemment les caractéristiques du spray, et les composants possédant le point d'ébullition le plus bas seront évaporés en premier. En conséquence, le mélange carburant-air sera affecté par les vapeurs de ces composants, et par conséquent la combustion en elle-même le sera aussi.

Les expériences sur banc moteur présentent l'inconvénient d'avoir un coût élevé. Les modèles décrivant le processus d'évaporation sont généralement utilisés dans des codes de calcul. Les capacités de prédiction des modèles d'évaporation nécessitent une meilleure caractérisation du processus de mélange, et donc de l'évaporation : c'est pourquoi diverses techniques de mesure sont nécessaires pour définir la température, la variation de masse ou encore la taille des gouttelettes. La maîtrise des interactions entre le carburant liquide et l'air environnant constitue donc un réel défi.

Dans ce cadre, l'objectif de cette thèse a été de développer une technique de mesure non intrusive qui puisse permettre la mesure instantanée du taux d'évaporation de gouttelettes uniques en écoulement. Le premier chapitre présente la problématique de la mesure du processus d'évaporation, ainsi que les techniques de diagnostic optique pouvant être utilisées afin de mesurer les divers paramètres nécessaires à l'étude du processus d'évaporation.

Le second chapitre donne un bref aperçu des diverses théories de la diffusion de la lumière pour des particules sphériques, et insiste plus particulièrement sur la théorie de Nussenzveig, qui a été utilisée lors du traitement des données expérimentales.

Le troisième chapitre présente l'application de la réfractométrie d'arc-en-ciel à des mesures réalisées sur une goutte unique en écoulement. Les mesures effectuées auparavant se basaient soit sur des gouttes suspendues, soit sur des trains de gouttes supposés identiques. Le dispositif expérimental développé au cours de cette thèse est introduit, ainsi qu'une validation du processus de traitement des données et du code d'inversion utilisé. Une validation des données expérimentales par un code rigoureux basé sur la théorie de Lorenz-Mie est également présentée.

Le quatrième chapitre introduit la réfractométrie d'arc-en-ciel sur goutte unique en régime double impulsion, avec pour objectif la mesure de la variation de diamètre de la goutte, qui permet de remonter à la mesure du taux d'évaporation d'une goutte unique en écoulement. Une méthode de mesure de la variation de diamètre portant sur la translation angulaire de la structure du ripple y est présentée, ainsi que la totalité du dispositif expérimental développé.

Le dernier chapitre est une conclusion, et présente diverses perspectives de la chaîne de mesure développée ainsi que des codes de simulation présentés.

Chapitre 2

Evaporation : problématique et solutions par diagnostic optique

Sommaire

2.1	\mathbf{Prol}	olématique			
2.2	Mod	lèles d'évaporation et hypothèses			
	2.2.1	Introduction			
	2.2.2	Présentation des modèles			
	2.2.3	Loi du D^2			
		2.2.3.1 Présentation			
		2.2.3.2 Hypothèses			
		2.2.3.3 Equations développées			
		2.2.3.4 Calcul du taux d'évaporation			
	2.2.4	Bilan sur le processus d'évaporation			
2.3	\mathbf{Mes}	ure de la vitesse	1		
	2.3.1	Anémométrie Doppler Laser	1		
	2.3.2	Vélocimétrie par images de particules	1		
2.4	\mathbf{Mes}	ure de la taille	1		
	2.4.1	Imagerie classique	-		
	2.4.2	Holographie	-		
	2.4.3	Imagerie en défaut de mise au point Imagerie en défaut de mise au point Imagerie en défaut de mise au point Diffusion avant Imagerie en défaut de mise au point Imagerie en défaut de mise au point Anémométrie Phase Doppler Imagerie en défaut de mise au point Imagerie en défaut de mise au point Malvern Imagerie en défaut de mise au point Imagerie en défaut de mise au point Imagerie en défaut de mise au point			
	2.4.4				
	2.4.5				
	2.4.6				
	2.4.7	MDR	1		
2.5	\mathbf{Mes}	ure de la température	1		
	2.5.1	Techniques basées sur la diffusion élastique de la lumière	1		
		2.5.1.1 Angle de Brewster	1		
		2.5.1.2 MDR	-		
		2.5.1.3 Arc-en-ciel standard	1		
		2.5.1.4 Arc-en-ciel global	4		
	2.5.2	Infrarouge	4		
	2.5.3	LIF	4		
	2.5.4	Diffusion Raman	4		
2.6	Réfr	actométrie d'arc-en-ciel : état de l'art	2		
2.7	Disc	ussion sur la précision des techniques de mesure	2		

Avant l'apparition des techniques laser, les différentes mesures dans les milieux en combustion (flammes...) étaient effectués avec des sondes physiques (à l'exception notable des techniques de spectroscopie d'émission ou d'absorption) : sonde à tube de Pitot pour la mesure de la vitesse d'écoulement, pyromètres pour la mesure de la température des gaz, ou encore sondes pour la mesure de concentration. Les particules à analyser devaient être retenues puis extraites du milieu, par exemple à l'aide de plaques de verre enduites d'un film d'huile. De telles techniques, plus ou moins intrusives, peuvent fortement perturber le milieu, et par là même fausser la mesure.

Les progrès importants dans le domaine des lasers ont permis, au cours des trois dernières décennies, de développer des techniques de mesure non intrusives (donc sans perturbation du milieu expérimental), et de mieux appréhender le fonctionnement des systèmes turbulents, réactifs et à haute température. Les nouveaux instruments permettent une mesure précise en temps et en espace, ceci sans avoir de sonde physiquement présente dans le milieu, ce qui est d'une grande utilité en cas de difficulté d'accès, ou encore de risque de perturbation du milieu par une sonde physique. La présence dans le milieu de mesure de gouttes de carburant ou de suies permet d'obtenir, grâce à différentes techniques laser, de nombreuses informations, par exemple la vitesse de l'écoulement si les particules présentes dans celui-ci sont suffisamment petites pour le suivre, ou encore la taille et la vitesse des particules en écoulement.

Il est important de noter que les mesures expérimentales sont principalement faites dans le but de valider des logiciels de simulation fiables, d'améliorer les modèles existants, et/ou d'améliorer les mesures connues sur des liquides tels que les biodiesels. L'obtention de tels modèles est en effet intimement liée aux mesures expérimentales qui permettent de les valider, et permet de comprendre plus finement les phénomènes physiques mis en jeu. Le coût des expériences pouvant être particulièrement élevé, le développement de logiciels de simulation d'écoulements, de comportement du milieu et de comportement des particules (gouttes ou suies) prend alors tout son sens.

2.1 Problématique

La caractérisation du processus d'évaporation est une étape clé dans dans la compréhension de l'efficacité de la combustion ainsi que pour l'optimisation l'émission de polluants. En effet, les carburants sous forme liquide couramment utilisés (hydrocarbures ou bio combustibles) sont constitués d'un mélange de plusieurs centaines de composants élémentaires, plus ou moins connus, et ayant des propriétés physiques et chimiques différentes. Ces carburants sont injectés sous la forme d'un brouillard de gouttelettes qui s'évaporent, la qualité de cette évaporation influençant fortement l'ensemble du processus de combustion. De plus, au cours de leur déplacement, les paramètres taille, température et composition des gouttelettes de carburant se trouvent modifiés.

Il est donc nécessaire de maîtriser le processus d'évaporation afin de mieux maîtriser la combustion. Afin d'y parvenir, plusieurs paramètres doivent impérativement être connus :

- Vitesse des gouttelettes
- Taille des gouttelettes
- Température des gouttelettes
- Composition des gouttelettes
- Fonction densité de probabilité (en anglais *Probability Density Function*, ou pdf) de taille/température.

Chacun de ces paramètres fait l'objet d'un développement dans ce chapitre.

Le domaine d'intérêt qui sera développé ici concerne des gouttes dont la taille est inférieure à $100\mu m$, jusqu'à leur évaporation complète, c'est à dire un diamètre proche de zéro.

Les techniques présentées par la suite sont des techniques permettant l'analyse de gouttelettes libres en écoulement. L'utilisation du signal de diffusion à l'angle d'arc-enciel, sur une goutte unique, et avec la conservation du phénomène de ripple (oscillations à haute fréquence superposées au signal principal), permet des mesures de variations de taille inférieures à 50nm, ce qui sera détaille dans le chapitre 4. La contrainte de la mesure en écoulement impose d'avoir la certitude que c'est bien la même gouttelette qui est étudiée, par exemple en limitant les mesures à des gouttelettes dont le déplacement est inférieur à dix fois leur diamètre. La mesure en arc-en-ciel avec un laser de type PIV (à double impulsion) permet de connaître ce déplacement.

Il convient toutefois de préciser qu'il existe d'autres techniques permettant la mesure de l'évaporation de gouttelettes uniques, mais ces méthodes reposent soit sur l'analyse de gouttelettes suspendues (par un ou plusieurs fils) ou bien piégées (piège sonique, piège optique, piège électrodynamique). Ces techniques ne seront pas développées plus avant ici, car leurs conditions de mesure sont trop éloignées des conditions réelles (en écoulement) pour permettre une validation réaliste (notamment au niveau de la taille des gouttes, de la vitesse relative air/goutte, de la durée de l'échauffement, de la modification du transfert thermique causé par les fils qui soutiennent la goutte).

2.2 Modèles d'évaporation et hypothèses

2.2.1 Introduction

L'évaporation est un phénomène complexe. Afin de l'étudier, de nombreux modèles mathématiques ont été développés, plus ou mois fiables et plus ou moins complexes.

Une des approches possibles consiste à résoudre les équations de Navier Stokes pour les conditions souhaitées; mais cette approche est généralement assez lourde et nécessite un temps de calcul important.

Afin d'obtenir des temps de calculs plus courts, plusieurs modèles simplifiés ont été développés au cours des années, et certains seront brièvement détaillés ici, notamment la loi dite du D^2 .

2.2.2 Présentation des modèles

La loi du D^2 appliquée à des gouttes mono composants donne de relativement bons résultats quand les conditions d'application sont respectées. Elle est généralement utilisée comme point de départ de modèles simplifiés d'évaporation à la fois pour des gouttes mono et multi composants.

Plusieurs modèles simplifiés existent, qui permettent des temps de calcul du taux d'évaporation plus rapide, puisque moins d'équations doivent être résolues. Ceci est notamment particulièrement avantageux pour les nuages de gouttelettes, pour lesquels le taux d'évaporation de chaque goutte doit être calculé. De plus, la simplification des équations d'évaporation permet de mettre en évidence à la fois les principaux paramètres et leurs dépendances respectives. L'inconvénient principal est bien sûr que plus le modèle utilisé est simplifié, plus les résultats du modèle s'éloignent des paramètres réels de la goutte en évaporation.

Une étude de nombreux modèles d'évaporation a entre autres été réalisée par J. Wilms [1] et C. Laurent [2] au cours de leurs thèses; c'est pourquoi seuls les modèles les plus simples, dits de la *loi du D*², seront expliqués dans le Chapitre 2.2.3.

2.2.3 Loi du D^2

2.2.3.1 Présentation

La loi dite du D^2 a été formulée pour la première fois en 1953 par Godsave [3] et Spalding [4]. Elle doit son nom au fait qu'elle prédit que le carré du diamètre de la goutte décroît linéairement avec le temps.

C'est un modèle qui peut à la fois être utilisé pour l'étude de la combustion et pour l'étude de l'évaporation d'une goutte; seule l'étude de l'évaporation nous intéressera ici.

2.2.3.2 Hypothèses

Plusieurs hypothèses sont formulées et doivent être respectées pour pouvoir établir la loi du D^2 (d'autres hypothèses viennent s'ajouter si l'on considère la conbustion) :

- Le taux de création d'espèces et d'énergie est nul
- L'interface liquide/gaz est supposée à l'équilibre thermodynamique
- La goutte doit être parfaitement sphérique (pour l'application de la symétrie sphérique)
- La goutte est considérée isolée (pas d'influences d'autres gouttes à proximité, c'est à dire pas d'effet de spray)
- Le gaz environnant la goutte doit être calme (pas de convection, naturelle ou forcée) : phase gazeuse quasi-stationnaire
- La température est uniforme et constante (la variation de température initiale de la goutte est négligée)
- La pression est supposée uniforme
- La phase gazeuse est un mélange idéal de gaz parfaits
- La propriétés de transport de la phase gazeuse sont constantes
- La solubilité de la phase gazeuse dans la phase liquide est négligeable
- La pression à la surface de la goutte est égale à la pression de vapeur saturante
- Pas d'effet Soret, Dufour, ni de radiation thermique
- Les taux de diffusion sont contrôlés

2.2.3.3 Equations développées

Le paramètre le plus important à déterminer est le taux de transfert massique, noté $\dot{m}'' = \frac{\dot{m}}{S}$, qui correspond à la variation de quantité de masse par unité de surface à la surface de la goutte. En appliquant la loi de conservation de la masse et la première loi de diffusion de Fick au film entourant la goutte, il est possible d'obtenir l'équation suivante pour le taux de transfert de masse \dot{m}'' :

$$\dot{m}'' = \frac{2\rho\delta_{12}}{d} \times \ln(1 + B_Y)$$
(2.1)

où d est le diamètre de la goutte, ρ la masse volumique du liquide composant la goutte, δ_{12} le coefficient de diffusion du liquide en phase gazeuse (indice 1) dans le gaz environnant (indice 2), et B_Y le nombre de Spalding massique :

$$B_Y = \frac{Y_{l,\infty} - Y_{l,s}}{Y_{l,s} - 1}$$
(2.2)

 $Y_{l,s}$ étant la fraction massique du liquide à la surface s, et $Y_{l,\infty}$ la fraction massique du liquide loin de la goutte.

En combinant les équations 2.1 et 2.2, il est possible d'exprimer le taux de transfert massique en fonction de la fraction massique de vapeur $Y_{l,s}$:

$$\dot{m}'' = \frac{2\rho\delta_{12}}{d} \times \ln\left(\frac{Y_{l,\infty} - 1}{Y_{l,s} - 1}\right)$$
(2.3)

Il est possible de réécrire cette équation en prenant en compte le transfert de chaleur :

$$\dot{m}'' = \frac{2k}{c_{pl}d} \times \ln\left(1 + B_T\right)$$
(2.4)

où k est la la conductivité thermique, c_{pl} la chaleur spécifique à pression constante, et B_T le nombre de Spalding thermique :

$$B_T = c_{pl} \times \frac{T_\infty - T_s}{\Delta h_r} \tag{2.5}$$

avec Δh_r la chaleur latente de vaporisation à la température T_s .

En comparant les équations 2.1 et 2.5, on remarque que la diffusion de masse et la diffusion de chaleur dans la phase gazeuse sont décrites par des expressions similaires. Le taux de transfert de masse peut être écrit en fonction de la température T_s en combinant les équations 2.4 et 2.5 :

$$\dot{m}'' = \frac{2k}{c_{pl}d} \times \ln\left(1 + c_{pl} \times \frac{T_{\infty} - T_s}{\Delta h_r}\right)$$
(2.6)

Les équations 2.1 et 2.4 forment un couple d'équations à trois inconnues : $Y_{l,s}$, \dot{m}'' et T_s . La pression de vapeur saturante $Y_{l,s}$ dépend à la fois de T_s et de la pression :

$$Y_{l,s} = Y_{l,s} \left(T_s, p \right)$$
 (2.7)

et peut être soit calculée à partir de la loi de Clausius-Clapeyron, soit évaluée par des tables.

2.2.3.4 Calcul du taux d'évaporation

Une fois le taux de transfert de masse \dot{m}'' calculé, la variation de diamètre de la goutte dû à ce transfert de masse doit être calculé. Pour cela, l'équation de taux de transfert de masse est calculée à la surface de la goutte, ce qui permet d'écrire :

$$\dot{m}'' = -\frac{\dot{m}}{S} = -\frac{1}{\pi D^2} \times \frac{d}{dt} \frac{\rho_l \pi D^3}{6}$$
(2.8)

où ρ_l correspond à la masse volumique du liquide composant la goutte. Après combinaison avec l'équation 2.6, on obtient :

$$\frac{dD^2}{dt} = -\frac{8\rho\delta_{12}}{\rho_l} \times \ln(1+B_Y) \tag{2.9}$$

Le taux d'évaporation β peut maintenant être introduit, comme étant le taux de régression de la surface de la goutte :

$$\beta = -\frac{dD^2}{dt} \tag{2.10}$$

Les équations 2.6 et 2.10 permettent d'établir que le calcul de l'évaporation dépend donc de la température T, du diamètre d et de la variation de diamètre Δd . Afin de réaliser une mesure du taux d'évaporation, il est donc nécessaire de pouvoir réaliser des mesures de tous ces paramètres.

Plusieurs techniques de mesure peuvent être utilisées pour la mesure de ces paramètres : mesure de T par LIF, mesure de la variation de diamètre (et donc de la variation de masse) par des gouttes suspendues ou en lévitation, ou encore par MDR, mesure du diamètre par PDA. L'on se propose de réaliser ces mesures simultanément grâce à un développement de la technique d'arc-en-ciel standard.

Le chapitre suivant présente les diverses techniques de mesure optique permettant de mesurer les paramètres liés au processus d'évaporation. Si il existe beaucoup de techniques de mesures pour des paramètres tels que la taille ou la vitesse, peu de techniques de mesure permettent la mesure de la température ou de la composition.

2.2.4 Bilan sur le processus d'évaporation

Comme l'a montré ce chapitre, les paramètres à connaître afin de caractériser l'évaporation sont : diamètre de la goutte, variation du diamètre de la goutte sur une durée connue, et température de la goutte. Ces mesures, effectuées sur une goutte unique, doivent être réalisées sur des distances réalistes de suivi de la goutte en écoulement ; en effet, il doit être possible de localiser la goutte à deux instants t_1 et t_2 , la différence temporelle entre t_1 et t_2 dépendant de la vitesse de l'écoulement. L'objectif est d'être capable de réaliser deux acquisitions alors que la distance parcourue par la goutte étudiée n'est que de quelques diamètres.

2.3 Mesure de la vitesse

La vitesse de déplacement de la ou des gouttes considérées (ainsi que sa vitesse de déplacement relative par rapport à l'écoulement) est un paramètre important à considérer. En effet, une goutte ne s'évaporera pas de la même façon si elle se déplace à $1m.s^{-1}$ ou à $30m.s^{-1}$. Il est donc nécessaire de connaître la vitesse de l'écoulement et/ou la vitesse des gouttes ; c'est pourquoi les techniques de mesure de la vitesse sont présentées.

Le calcul du nombre de Reynolds Re, qui représente le rapport entre les forces d'inertie et la viscosité, permet de caractériser le type d'écoulement étudié. Lorsque le nombre de Reynolds est faible (typiquement, inférieur à 2000), les forces de viscosité sont prédominantes; on parle d'écoulement laminaire. Pour des valeurs importantes du nombre de Reynolds (supérieures à 3000), les forces d'inertie deviennent prédominantes et on parle d'écoulement turbulent. Aux valeur intermédiaires de Re, on parle de régime transitoire.

Le nombre de Reynolds s'écrit :

$$Re = \frac{\rho v l}{\eta} \tag{2.11}$$

où ρ est la masse volumique du fluide, v sa vitesse, l sa dimension caractéristique et η sa viscosité.

Dans le cas particulier de l'étude d'une gouttelette unique, le nombre de Reynolds particulaire pourra être utilisé : il s'agit d'une adaptation du nombre de Reynolds au cas particulier d'une particule en déplacement dans un fluide. Le nombre de Reynolds particulaire s'écrit :

$$Re_p = \frac{2\rho_{gaz} \left| v_{gaz} - v_{goutte} \right|}{\eta_{goutte}} \tag{2.12}$$

où ρ_{gaz} est densité du gaz dans lequel la goutte est en déplacement, v_{gaz} la vitesse de déplacement du gaz au point d'intérêt, v_{goutte} la vitesse de la goutte au point d'intérêt, et η_{goutte} la viscosité dynamique du liquide composant la goutte.

2.3.1 Anémométrie Doppler Laser

La LDV [5], pour Laser Doppler Velocimetry (ou ADL : Anémométrie Doppler Laser) est une méthode permettant de mesurer localement la vitesse et la direction d'un écoulement ensemencé. Elle a été développée à partir de 1964, à partir des travaux de Yeh et Cummins [6]. Dans la configuration la plus couramment utilisée, son principe consiste à faire interférer deux faisceaux laser à l'endroit où l'on souhaite effectuer la mesure. Lorsque les particules présentes dans l'écoulement (naturellement ou après ensemencement) traversent le volume de mesure, elles diffusent un signal lumineux interférentiel dont la fréquence est directement proportionnelle à la vitesse des particules.

Les mesures par LDV sont des mesures dans du gaz en écoulement. Les particules qui ensemencent ce gaz doivent alors être suffisamment petites pour suivre l'écoulement du gaz, et suffisamment grosses pour pouvoir être détectables. L'obtention de la vitesse de l'écoulement est alors possible, la précision atteinte sur cette vitesse étant alors de quelques pour cent : il reste très difficile de faire la différence entre la vitesse du gaz et celle des particules. Cette sélection peut toutefois être réalisée en Anémométrie Phase Doppler (ou PDA) lorsque la taille est mesurée simultanément à la vitesse, ce qui permet d'obtenir des distributions de vitesses en fonction de la taille des particules : la vitesse des plus petites peut alors être assimilée à la vitesse du gaz.

2.3.2 Vélocimétrie par images de particules

La PIV (pour Particle Image Velocimetry) est une technique permettant la mesure de la vitesse de particules. Le principe consiste à utiliser deux lasers pulsés ayant une durée d'impulsion de quelques nanosecondes, et dont l'intervalle entre deux pulsations est variable. En superposant les nappes créées par les deux lasers, il est alors possible de réaliser deux clichés instantanés du champ de particules, séparés par un délai temporel Δt . A partir de ces deux images, une cartographie des vecteurs vitesses des particules peut être extraite.

Les vitesses de particules obtenues par PIV sont précises à quelques pour cent près.

2.4 Mesure de la taille

Deux familles de techniques optique de mesure de taille peuvent être distinguées :

- Des techniques de mesure dites globales, qui caractérisent une portion de l'écoulement ou d'un spray,
- Des techniques permettant la mesure de la taille de particules uniques.

Ces deux types de techniques sont présentées dans la suite de ce chapitre, avec leurs avantages et leurs inconvénients, afin d'obtenir un large point de vue sur les techniques optiques de mesure de taille.

2.4.1 Imagerie classique

L'imagerie classique (ou ombroscopie) consiste à prendre une image instantanée d'une ou plusieurs particules à l'aide d'une caméra CCD. On utilise pour cela un montage dit "dans l'axe" : la source lumineuse, la particule à analyser et la caméra sont alignées, afin de réaliser une image ombrée de la particule. L'image de la ou des particules étudiées sont alors projetées sur la surface du capteur, et la taille de la particule peut alors être déterminée par un simple comptage du nombre de pixels composant la surface de l'image de la particule.

Une mire placée dans le plan d'acquisition de la particule permet ensuite d'obtenir la relation de transformation du nombre de pixels en taille de particule.

Cette méthode reste toutefois très imprécise, notamment pour des particules de petite taille. En effet, il est impossible de savoir si la mise au point de l'objectif du dispositif d'acquisition a été effectuée parfaitement ou non. De plus, pour augmenter la précision de cette technique, un grandissement de l'image de la particule sur le capteur est réalisé, ce qui réduit encore la précision du réglage de la mise au point. Il n'est par contre pas nécessaire de faire d'hypothèses quand à la forme de la particule étudiée.

La précision obtenue sur la mesure de la taille de la particule est de quelques pour cent, cette précision dépendant grandement de la taille des pixels de la caméra utilisée lors de l'acquisition.

2.4.2 Holographie

Le principe de l'holographie a été découvert en 1948 par Dennis Gabor [7] au cours de ses recherches pour l'amélioration des microscopes électroniques. Il s'agit d'une technique de mesure qui permet la visualisation d'un écoulement en trois dimensions.

Son principe consiste à faire interférer une onde de référence et cette même onde diffractée par une ou plusieurs particules présentes dans le volume de mesure. Il est alors possible de reconstruire l'écoulement plan par plan, et de retrouver la taille des particules.

Actuellement, la reconstruction plan par plan des écoulements se fait généralement grâce à des codes de calcul à partir des images holographiques enregistrées par caméra CCD. Toutefois, les plaques holographiques utilisées auparavant sont toujours d'actualité, notamment grâce à leur excellente résolution spatiale. Pour visualiser les plans de l'écoulement sur ces plaques, il est nécessaire de les éclairer à l'aide d'une onde de longueur d'onde égale ou proche de celle de l'onde de référence (avec la correction adaptée dans ce dernier cas). Il est également possible de connaître la vitesse d'écoulement de ces particules en utilisant un laser double pulse, et en réalisant ainsi une cartographie des vitesses comme en PIV classique.

L'holographie permet donc d'obtenir une bonne mesure de la position des particules dans l'écoulement, ceci en trois dimensions (avec une précision moins bonne toutefois dans l'axe de profondeur z, les approximations faites dans les modèles de restitution ayant tendance à réduire la précision sur la mesure en profondeur). L'holographie permet d'obtenir la taille des particules dans une certaine mesure (lors de la reconstruction, il peut être difficile de savoir si l'image est au point ou non); Comme pour l'imagerie classique, une mesure de la taille de n'importe quelle forme d'objet diffusant peut être réalisée.

La technique d'holographie présentée, dite *dans l'axe* ou *de Gabor*, est celle qui présente la meilleure précision sur la mesure de taille; l'erreur commise sur cette mesure est alors de quelques pour cent.

2.4.3 Imagerie en défaut de mise au point

ILIDS (pour Interferometric Laser Imaging for Droplet Sizing) est une technique d'imagerie hors axe en défaut de mise au point qui permet de mesurer la taille de particules dans une section de l'écoulement. Cette technique a vu le jour en 1995, notamment grâce aux travaux de A. R. Glover [8, 9]. Elle permet l'enregistrement des franges d'interférences en diffusion avant pour chaque particule présente dans l'écoulement, dont la fréquence angulaire permet d'obtenir la taille de chacune des particules. Cette technique d'imagerie peut maintenant être associée à un dispositif de type PIV pour l'obtention du champ de vitesses de l'écoulement en plus de la mesure de la taille des particules. Il est important de noter que seule la mesure de particules sphériques et transparentes est possible avec cette technique d'imagerie.

L'imagerie en défaut de mise au point est surtout adaptée aux mesures dans des sprays peu denses : en effet, si trop de gouttes sont présentes dans le volume de mesure il y aura superposition des franges d'interférences. Ce problème a été en partie résolu grâce au développement d'une compression des franges de diffusion [10], mais cette méthode entraîne une perte d'information sur la position des gouttes dans l'écoulement au profit de l'obtention des histogrammes de taille.

Cette technique permet également de disposer d'un volume de mesure important, qui dépendra de l'optique utilisée.



FIGURE 2.1 – Lumière diffusée par deux gouttes en défaut de mise au point. Les franges d'interférences sont nettement visibles.

2.4.4 Diffusion avant

Cette technique de mesure repose sur l'acquisition du diagramme de diffusion avant créé par la particule diffusante. Par un simple comptage de la fréquence angulaire il est alors possible de remonter à la taille de la particule diffusante.

La précision de la mesure de taille peut être fortement améliorée en prenant également en compte la phase des franges de diffusion [11, 12, 13].



FIGURE 2.2 – Diagramme de diffusion pour une plage angulaire comprise entre 40° et 50°, pour une particule de diamètre $100\mu m$ et d'indice 1, 38.

2.4.5 Anémométrie Phase Doppler

L'anémométrie phase Doppler (PDA pour Phase Doppler Anemometry, ou PDPA pour Phase Doppler Particle Analyser) est une technique optique qui a été développée à partir de 1975 [14, 15, 16, 17] : elle constitue une extension de la technique LDV. Elle est utilisée pour la mesure simultanée de la taille et de la vitesse de particules en écoulement. Son principe repose sur le fait que, sous certaines conditions, la phase des signaux Doppler produits par une particule est proportionnelle au diamètre de celle-ci.

Connaissant les paramètres optiques de l'anémomètre Phase Doppler, il est alors possible de déterminer la relation phase-diamètre. Expérimentalement, il suffit de mesurer la phase et la fréquence des signaux Doppler à l'aide de plusieurs détecteurs pour en déduire la taille et de une à trois composantes de vitesse pour chaque particule détectée. Toutefois, il faut créer un jeu de franges d'interférences pour chaque composante de la vitesse souhaitée, chacun des lasers devant avoir une longueur d'onde différente ou une polarisation différente, les détecteurs étant placés perpendiculairement aux franges d'interférences. Si un dispositif PDA deux couleurs peut être relativement simple à mettre en oeuvre, il est beaucoup plus difficile d'obtenir la troisième composante de la vitesse puisqu'il faut alors placer le détecteur dans l'axe de l'écoulement. Un léger angle pour le dispositif dédié à la troisième couleur est alors introduit, et une correction appliquée. Une intégration dans le temps permet d'obtenir les distributions de vitesses, de diamètres ainsi que les corrélations tailles/vitesses.

Il est alors possible de déterminer la taille et la vitesse des particules passant en un point particulier de l'écoulement [18]. Les constructeurs [19, 20] annoncent une précision de l'ordre de 1% sur les vitesses et de 1 à 2% sur les diamètres de sphères parfaites, dans une plage de $0, 5\mu m$ à quelques millimètres, avec une dynamique de $\frac{1}{30}$ pour les vitesses et de $\frac{1}{50}$ pour les diamètres. Toutefois de telles précisions impliquent des réglages très contraignants au niveau des détecteurs, et sont très rarement atteintes; il faut en effet remplir des conditions particulières également au niveau de l'écoulemen, par exemple un tran de gouttes monodispersées, pour atteindre la précision annoncée.

Il est important de noter que l'anémométrie Doppler laser ne peut fonctionner qu'avec des particules régulières. En effet, si les particules sont déformées (un sphéroïde par exemple), la phase des signaux Doppler devient alors non constante, et le PDA donne alors un diamètre qui correspond soit au grand axe de la goutte, soit au petit axe selon son orientation dans l'espace. Le PDA considère que les gouttes sont sphériques jusqu'à des valeurs d'ellipticité de l'ordre de 10 à 20%, ce qui ne permet pas d'obtenir une précision suffisante pour valider les mesures réalisées par arc-en-ciel [21, 22]. L'arc-en-ciel permet en effet de selectionner les particules non sphériques à quelques dixièmes de pourcent d'écart avec une sphère parfaite : si il est impossible d'utiliser le PDA pour valider des mesures de sphéricité faites par arc-en-ciel, l'inverse est en revanche vrai. Enfin, si les particules mesurés par PDA sont irrégulières, la phase des signaux devient irrégulière, et il est alors réellement impossible d'obtenir une mesure.

2.4.6 Malvern

Le Malvern [23], ou granulomètre laser, est un appareil de mesure qui permet de connaitre la distribution de taille de gouttes d'un spray. Cette distribution est déduite de l'analyse de la tache de diffraction du faisceau laser produite par l'interaction entre le faisceau laser et un ensemble de particules composant le spray étudié.

2.4.7 MDR

On appelle Résonances Morphologiquement Dépendantes (ou MDR - Morphology Dependent Resonances) des pics très fins que l'on peut observer dans les spectres de diffusion créés par des gouttes. Ces résonances sont créées par les ondes qui voyagent en proche surface à l'intérieur de particules dont l'indice de réfraction est supérieur à celui du milieu extérieur, et dont l'angle d'incidence par rapport à l'interface liquide/milieu extérieur est supérieur à l'angle limite de réfraction. Ces ondes subissent alors des réflexions quasi totales : la particule se comporte comme une cavité optique. Si la trajectoire de l'onde se superpose avec elle-même à l'intérieur de la particule, et que l'onde est en phase avec elle-même, il se produit alors une résonance. La première mesure par MDR a été réalisée en 1977 par Ashkin et Dziedzic [24]

Les MDR peuvent être caractérisées à partir de quatre paramètres :

- La polarisation (Transverse Electrique ou Transverse Magnétique)
- Le mode de résonance (ou moment angulaire total) qui correspond au nombre de pics d'intensité du champ interne observables sur un demi-périmètre de la particule
- L'ordre de résonance (ou nombre quantique radial), qui correspond au nombre de pics d'intensité du champ interne le long d'un rayon
- Le nombre quantique azimutal, qui représente les différentes trajectoires possibles.

L'utilisation de MDR permet la mesure très précise de la taille de gouttelettes, et, avec un précision moindre, celle de l'indice de réfraction, et donc de la température. Les mesures sont effectuées sur des trains de gouttelettes supposées identiques ou sur une goutte suspendue, et dans lequel a été ajouté un produit de fluorescence (rhodamine par exemple).

Une application des MDR a été proposée par Wilms en 2005 [1], sur des trains de gouttes. Le procédé consiste à suivre les pics d'intensité diffusée dans le temps, et ainsi remonter à la variation de diamètre des gouttes.

Les MDR sont à l'heure actuelle la seule technique de mesure réellement concurrente de la réfractométrie d'arc-en-ciel sur goutte unique. Elles permettent d'obtenir une très grande précision sur la mesure du diamètre absolu dans le cas de la configuration en goutte suspendue, si la longueur d'onde utilisée est suffisamment grande. Sur des trains de gouttes en écoulement, c'est cette fois la mesure de la variation de diamètre qui peut être réalisée, et non plus la mesure du diamètre absolu. Dans les deux cas de figure, la précision obtenue sur l'indice de réfraction (de l'ordre de 1.10^{-2}) ne permet toutefois pas une mesure réellement fiable de la température.

2.5 Mesure de la température

De nombreuses techniques optiques sont disponibles pour la mesure de la température de gouttelettes. Elles peuvent être classées en deux grands catégories : celles permettant la mesure directe de la température (Raman, infrarouge par exemple) et celles mesurant la température de manière indirecte (comme la réfractométrie d'arc-en-ciel).

Pour obtenir une mesure de température avec une technique de mesure dite indirecte, c'est un autre paramètre qui est mesuré : l'indice de réfraction. L'indice de réfraction est en effet lié à la température; chaque liquide possédant sa propre relation. Si le liquide utilisé est connu, il est alors possible d'obtenir la température de la goutte si son indice de réfraction est mesuré.

La figure 2.3 présente la relation indice de réfraction/température pour différents liquides, allant de éthanol à des biodiesels complexes [1, 25, 26, 27, 28, 29, 30].



FIGURE 2.3 – Relation entre l'indice de réfraction et la température pour différents liquides.

2.5.1 Techniques basées sur la diffusion élastique de la lumière

2.5.1.1 Angle de Brewster

Lorsqu'un rayon lumineux rencontre une interface liquide/liquide, liquide/gaz ou gaz/gaz, ce rayon peut être soit entièrement réfracté, soit partiellement réfracté et partiellement réfléchi. Si la polarisation du faisceau incident est transverse magnétique, la réflexion partielle disparaît pour une certaine valeur de l'angle avec la normale de l'interface : c'est cet angle qui est appelé angle de Brewster. Comme cet angle dépend directement des indices de réfraction des deux milieux composant le dioptre, et comme l'indice de réfraction dépend directement de la température, il est donc possible de connaître la température du milieu étudié en mesurant l'angle de Brewster.

2.5.1.2 MDR

Les MDR, détaillées dans le chapitre 2.4.7, permettent la mesure de l'indice de réfractions, avec une précision de l'ordre de 1.10^{-2} . Si cette précision est insuffisante pour la mesure d'indice que l'on souhaite obtenir ici, cette technique de mesure présente l'avantage de pourvoir mesurer à la fois la température et la taille.

La précision obtenue avec les MDR dépend toutefois de la largeur du domaine de fréquence mesuré. En fluorescence, le spectre créé par des gouttes en déplacement est étroit, et limite donc la précision atteinte. En lumière blanche, le spectre est bien plus large, et donc la précision atteinte bien supérieure; toutefois l'utilisation des MDR en lumière blanche impose un long temps de pose (problématique qui peut-être résolue avec l'utilisation d'un laser "blanc" en régime impulsionnel).

2.5.1.3 Arc-en-ciel standard

La thermométrie par arc-en-ciel est une technique non intrusive permettant de déterminer l'indice de réfraction d'une goutte. Par cette mesure, il est possible d'accéder à la température de la goutte, ainsi qu'à sa taille. La figure 2.4 représente un diagramme de diffusion autour de l'angle d'arc-en-ciel, pour une goutte sphérique et transparente, de diamètre $d = 100 \mu m$ et d'indice de réfraction n = 1, 38. Le premier arc-en-ciel (créé par les rayons d'ordre p = 2) est clairement visible, ainsi que le second arc-en-ciel. Les deux sont séparés par la bande sombre d'Alexander.



FIGURE 2.4 – Diagramme de diffusion pour une plage angulaire comprise entre 110° et 155° , pour une particule de diamètre $100\mu m$ et d'indice 1, 38.

La thermométrie par arc-en-ciel repose sur la détection d'un arc-en-ciel monochromatique créé par une gouttelette unique, éclairée par un faisceau laser. Comme l'indice de réfraction dépend de la température, il varie si la température du liquide étudié change. On observera alors un déplacement du pic principal et des pics secondaires; une mesure de ce déplacement permettra de remonter à la variation de température.

Cette technique a été présentée par Roth *et al.* [31, 32] en 1988; Sankar *et al.* ont présenté une application de la réfractométrie d'arc-en-ciel à la mesure de la température d'hydrocarbures [21] en 1997, grâce à un couplage avec un dispositif PDA. Les travaux de Van Beeck *et al.* [33, 34] ont permis de comparer les résultats obtenus expérimentalement à la théorie d'Airy, ainsi que la mise en évidence du phénomène de *ripple.* Ce phénomène est créé par les interférences entre les rayons réfléchis à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte (ordres p = 0 et p = 2 d'après la notation de Van de Hulst [35]), et produit des oscillations de haute fréquence qui viennent se superposer au signal de basse fréquence (voir figure 2.4). Il n'est détectable que dans le cas où une goutte unique est observée, ou dans le cas de plusieurs gouttes de taille identique à la même position; il disparaît si la distribution de taille de gouttes n'est pas uniforme. La figure 2.6 met ce phénomène en évidence : la sommation des diagrammes de diffusion pour des gouttes de tailles voisines mais différentes supprime totalement la structure de *ripple*, même pour un petit nombre de gouttes (5 dans le cas présenté).



FIGURE 2.5 – Diagrammes de diffusion calculés avec la théorie de Nussenzveig pour des gouttes d'indice 1.38, pour une longueur d'onde de 532nm et pour des diamètres de $78\mu m$, $78, 5\mu m$, $79\mu m$, $79, 5\mu m$ et $80\mu m$.



FIGURE 2.6 – Sommation des diagrammes de diffusion (intensité) calculés avec la théorie de Nussenzveig pour des gouttes d'indice 1.38, pour une longueur d'onde de 532nm et pour des diamètres de $78\mu m$, $78, 5\mu m$, $79\mu m$, $79, 5\mu m$ et $80\mu m$.

Le phénomène devient important pour des gouttelettes de petite taille : la fréquence du ripple s'approche alors de celle des pics d'arc-en-ciel secondaires, et son amplitude relative augmente (voir figure 2.7 : goutte d'indice 1,38 et de diamètre $15\mu m$). Il a par le passé été généralement filtré [34], ce qui entraîne après filtrage une perturbation de la mesure pour des gouttes de taille inférieure à $150\mu m$, comme le souligne Damashke [36] (voir également figure 2.7 : après filtrage, le maximum ne correspond pas forcément à celui donné par la théorie d'Airy). Afin de s'affranchir des incertitudes dues au filtrage, un développement et une utilisation de la structure de ripple lors du processus d'inversion a été développée au CORIA et est présentée dans le chapitre 5.



FIGURE 2.7 – Effet du filtrage sur un signal calculé en théorie de Lorenz-Mie et comparé au signal calculé par la théorie d'Airy, pour une goutte d'indice n = 1,38 et de diamètre $d = 15 \mu m$.

Un développement de la thermométrie d'arc-en-ciel, appelé arc-en-ciel global, a été effectué depuis 1999 [37]. L'arc-en ciel global permet la mesure de l'indice de l'indice de réfraction non plus d'une goutte simple, mais d'un nuage de gouttelettes. Cette technique de mesure est développée brièvement dans le chapitre 2.5.1.4

2.5.1.4 Arc-en-ciel global

Dans un spray réel, le milieu diffusif n'est pas uniquement constitué d'un filet de gouttes ou d'une goutte seule, mais d'un nuage de gouttes. C'est pourquoi la technique d'arc-en-ciel ne peut pas être appliquée directement; on utilise alors la méthode dite "d'arc-en-ciel global" afin de mesurer l'indice de réfraction moyen d'une section de nuage, ce qui permet de connaître la température moyenne des gouttes, ainsi que la distribution de taille [37, 38, 39].

La technique d'arc-en-ciel global repose sur l'analyse de la lumière diffusée autour

de l'angle d'arc-en-ciel par un ensemble de particules; on utilise le principe développé pour l'arc-en-ciel standard. La lumière diffusée enregistrée ne correspond pas à la lumière diffusée par une seule particule, mais bien par un ensemble de particules; la figure de diffusion d'arc-en-ciel global est le résultat de la sommation des signaux diffusés par chaque particule.

La figure 2.6 illustre ce phénomène, avec la superposition des figures de diffusion de particules individuelles. Lorsque le nombre de particules est assez grand, et que la distribution de taille s'élargit, le signal d'arc-en ciel global est alors comme illustré avec la figure 2.8.

L'image obtenue est caractérisée par un pic principal, suivi éventuellement d'un ou plusieurs pics secondaires. La position du pic principal dépend principalement de l'indice de réfraction, tandis que la forme du pic dépend surtout de la distribution de taille des particules diffusantes.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2.5.1.3, le ripple (apparition de structures de hautes fréquences dans le signal) est très sensible à la taille de la particule. Comme le milieu diffusif est constitué de nombreuses sphères de tailles différentes, cette structure de ripple disparaît. Un autre avantage de l'arc-en-ciel global concerne les particules non sphériques : si l'on considère que les particules non sphériques contenues dans le spray ont une orientation aléatoire, la contribution de ces particules consistera uniquement en un fond uni, d'après la loi de Möebius. C'est pourquoi il est possible de considérer que les mesures effectuées sont basées uniquement sur des particules sphériques.

La figure 2.8 montre un signal d'arc-en-ciel global calculé pour des gouttes d'indice n = 1, 38, pour une longueur d'onde de 532nm, et pour la distribution de tailles de gouttes donnée en figure 2.9.



FIGURE 2.8 – Diagramme de diffusion en arc-en-ciel global calculé avec la théorie de Nussenzveig pour des gouttes d'indice 1.38, pour une longueur d'onde de 532nm.



FIGURE 2.9 – Distribution de tailles de gouttes utilisée pour calculer le signal arc-en-ciel global de la figure 2.8.

Application de l'arc-en-ciel global à la mesure de taux de mélange et de composition

La technique d'arc-en-ciel global peut également être appliquée à la détermination de la composition de sprays de gouttelettes. La position angulaire du premier pic d'arc-en-ciel dépendant de l'indice de réfraction des liquides composant les gouttelettes, une connaissance préalable de l'indice des liquides présents dans le spray permet de remonter au taux de mélange du spray.



FIGURE 2.10 – Mélange de deux sprays en configuration d'arc-en-ciel global.

La figure 2.10 représente le mélange de deux sprays composés de deux liquides A et B, d'indices différents. Trois cas de figure peuvent se présenter :

- Le volume de mesure ne contient que des gouttes composées uniquement du liquide A ou du liquide B. La figure d'arc-en-ciel présentera un seul pic, permettant de calculer l'indice de réfraction du liquide A ou du liquide B.
- Le volume de mesure contient des gouttes composées du liquide A et des gouttes composées du liquide B. La figure d'arc-en-ciel présente alors un double pic, et une inversion réalisée sur chacun de ces pics pris séparément donne l'indice de réfraction de la population A et celle de la population B.
- Les gouttes présentes dans le volume de mesure sont constituées d'un mélange du liquide A et du liquide B (coalescence). La figure de diffusion présente alors un seul pic, dont le maximum est compris entre le maximum d'arc-en-ciel du liquide A pur et celui du liquide B pur. La position relative de ce maximum par rapport aux maxima des liquides purs donne le taux de mélange des gouttes présentes dans le volume de mesure.

La figure 2.11 présente un diagramme de diffusion expérimental, obtenu avec 2 atomiseurs, l'un contenant de l'eau, l'autre de l'éthanol. Les deux maxima sont séparés, ce qui indique la présence de gouttelettes d'eau et d'éthanol dans le volume de mesure. L'absence de maximum intermédiaire prouve qu'il n'y a pas eu de coalescence.



FIGURE 2.11 – Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour un spray composé de gouttelettes d'eau pure et d'éthanol pur.

Le tableau 2.1 donne l'indice de réfraction et la taille, mesurés pour chacun des deux atomiseurs utilisés séparément. Le tableau 2.2 donne l'indice de réfraction et la taille pour chacun des deux atomiseurs utilisés séparément, par inversions séparées sur chacun des deux maxima. Les résultats sont identiques, ce qui tend à prouver que cette approche est utilisable.

	Atomiseur A (eau)	Atomiseur B (éthanol)
Indice	1,325	1,361
Taille	$20 \mu m$	$24 \mu m$

Tableau 2.1 – Mesures d'indice et de taille réalisées séparément, pour deux atomiseurs contenant des liquides d'indices différents.

	Atomiseur A (eau)	Atomiseur B (éthanol)
Indice	1,324	1,359
Taille	$21 \mu m$	$25 \mu m$

Tableau 2.2 – Mesures d'indice et de taille réalisées simultanément, pour deux atomiseurs contenant des liquides d'indices différents.

2.5.2 Infrarouge

=

Les mesures de température par caméra infrarouge permettent une bonne mesure de la température de surface des gouttes étudiées, notamment pour des gouttes dont la taille est de l'ordre du millimètre. Il est en revanche plus difficile, voire impossible, d'obtenir la température centrale de la goutte en cas de gradient de température [40]. Lorsque la taille des gouttes devient plus proche de la longueur d'onde (de l'ordre de $10\mu m$), c'est cette fois une température moyenne qui est mesurée.

2.5.3 LIF

La fluorescence induite par Laser (ou LIF - Laser Induced Fluorescence) repose sur la dépendance à la température du phénomène de fluorescence. Il existe plusieurs variations du principe de base, parmi lesquelles notamment la fluorescence induite par Laser dite à deux couleurs [41]. Cette technique permet une mesure de la distribution de température de l'intérieur d'une goutte; les mesures sont toutefois réalisées sur des trains de gouttes monodispersées.

La principale difficulté lors de la réalisation d'une mesure LIF est qu'il est nécessaire de connaître les propriétés de fluorescence aux conditions de fonctionnement : espèces présentes dans le liquide utilisé, température et pression.

2.5.4 Diffusion Raman

La diffusion Raman spontanée peut être appliquée à la mesure de température de gouttelettes composant un spray. Müller *et al.* [42] ont présenté cette méthode en 1999; les auteurs annoncent une précision sur la mesure de la température des gouttes composant le spray de l'ordre de $2^{\circ}C$. Cette technique peut également être utilisée, simultanément à la mesure de la température, pour la mesure du rapport air/liquide (c'est à dire la densité du spray), ou encore pour la mesure de la température du gaz environnant le spray.

2.6 Réfractométrie d'arc-en-ciel : état de l'art

La réfractométrie d'arc-en-ciel est basée sur le fait que, dans le cadre de l'optique géométrique, la position angulaire d'un arc-en-ciel n'est fonction que de la valeur de l'indice de réfraction [43]. Comme cet indice de réfraction est lui-même une fonction de la température, la mesure de la position angulaire d'un arc-en-ciel correspond à une mesure de la température. L'un des avantages de la réfractométrie d'arc-en-ciel est que cette technique ne nécessite pas l'ajout d'un produit fluorescent et peut donc, potentiellement, s'appliquer dans un large domaine de température et de pression. L'utilisation de la position angulaire d'un arc-en-ciel pour mesurer la température de gouttes a été proposée il y a plusieurs années [31, 32]. Cependant, la dépendance de l'indice de réfraction avec la température est souvent faible, ce qui implique d'avoir des mesures très précises de la position angulaire des arcs-en-ciel. Dans le cas de gouttes suspendues, donc de taille importante et fixe, il est possible d'observer des arcs-en-ciel d'ordres élevés [44, 45]. Des mesures de l'indice de réfraction pour des gouttes de l'ordre du micromètre en lévitation ont été réalisées [46], incluant la prise en compte de l'arc-en-ciel secondaire [47]. Cependant, la majorité des mesures réalisées sur des gouttes en écoulement sont basées sur l'analyse de l'arc-en-ciel primaire, créé par des "rayons" subissant une seule réflexion interne.

L'étude de l'échauffement et de l'évaporation de goutte par réfractométrie d'arc-en-ciel a été abordée par de nombreux auteurs. Nous pouvons citer par exemple les travaux de Roth *et al.* [31], de Sankar *et al.* [30] qui couple un réfractomètre d'arc-en-ciel et un granulo-vélocimétre phase Doppler, Massoli *et al.* [28], Castanet *et al.* [48], Wilms [1, 49]. Notons cependant, que si des résultats importants ont été obtenus sur des lignes de gouttes monodispersées, les résultats obtenus sur des gouttes individuelles dans un spray sont plus rares [30, 50] et plus critiquables [22].

L'origine de ces critiques est que la thermométrie par réfractométrie d'arc-en-ciel demande une précision de mesure de l'indice de réfraction sur la quatrième décimale. Or, la détermination de l'indice de réfraction dépend de plusieurs facteurs.

La relation entre la position de l'arc-en-ciel et l'indice de réfraction présuppose une sphéricité parfaite de la goutte. Toute déformation de la goutte [51, 52], toute inhomogénéité dans la goutte (par exemple des gradients d'indice de réfraction créés par des gradients de température ou de composition) modifiera cette relation [53, 54, 55].

La définition de la position de l'arc-en-ciel impose une calibration angulaire absolue de la position du détecteur, avec une précision de l'ordre de la minute d'angle. De plus cette détermination sera sensible à tout filtrage du signal (voir par exemple l'analyse de Damaschke [36], pages 185-192 de sa thèse).

La qualité de la description de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel dépend fortement du cadre théorique utilisé. Les théories les plus couramment utilisées pour décrire la diffusion de la lumière autour d'un angle d'arc-en-ciel sont, classées par degré d'exactitude :

- La théorie de Lorenz-Mie : résolution rigoureuse des équations de Maxwell avec les conditions limites appropriées. Fournit une solution sous forme de séries infinies où toutes les contributions sont intimement liées. Les temps de calcul de ces séries sont relativement longs.
- La théorie de Debye : peut être vue comme une réécriture de la théorie de Lorenz-Mie où les contributions des différents termes sont séparables. La solution est encore sous la forme de séries infinies, les temps de calcul sont équivalents à ceux de la théorie de Lorenz-Mie.
- La théorie de Nussenzveig : à partir d'un terme de la théorie de Debye et de l'introduction d'hypothèses sur le domaine angulaire étudié, un travail analytique permet de transformer les séries infinies en intégrales et de les résoudre analytiquement. La précision est proche de celle de Debye et les calculs beaucoup plus rapides.

- La théorie d'Airy : prend en compte les interférences entre les rayons subissant une réflexion interne. La solution permet des calculs très rapides mais son domaine d'application est très limité [56]. C'est cependant l'outil utilisé pour l'analyse des signaux d'arc-en-ciel expérimentaux par quasiment tous les auteurs.

Lors de sa thèse, Damashke [36] a annoncé qu'il était impossible d'obtenir des mesures sur des gouttes d'une taille inférieure à $100\mu m$. Toutefois, de nombreux paramètres peuvent être obtenus sur des gouttes d'une taille beaucoup plus faible (typiquement, mesure sur des gouttes individuelles jusqu'à $20\mu m$ environ, et mesure sur des nuages de gouttelettes de taille inférieure à $10\mu m$ [57]), ceci, notamment pour l'arc-en-ciel standard, grâce à la prise en compte de la structure de ripple, et non plus son filtrage. Il a été prouvé que la prise en compte de ce phénomène interférentiel augmente finalement la précision des mesures, si les codes de calcul utilisés pour réaliser l'inversion sont adaptés [13, 39].

Pour résoudre les difficultés liées aux filtrage de la composante haute fréquence (ripple) et aux déformations des gouttes, van Beeck *et al.* [37] ont introduit une configuration originale, appelée "Global Rainbow Thermometry" (ou Réfractométrie d'arc-en-ciel global) qui mesure l'indice de réfraction moyen des gouttes dans une section de spray. Cette technique fournit également une distribution de taille des gouttes; son utilisation étant réservée aux nuages de gouttes, elle ne sera pas développée plus avant; un bref descriptif peut être trouvé dans le chapitre 2.5.1.4. Cette technique de mesure peut être appliquée sur des gouttelettes présentes dans un milieu en combustion [58] et pour des tailles de gouttes inférieures à $20\mu m$ [59]

2.7 Discussion sur la précision des techniques de mesure

Si de nombreuses techniques de mesures peuvent permettre d'obtenir les paramètres souhaités (indice de réfraction et diamètre notamment), il est en revanche difficile d'obtenir une précision suffisante pour réaliser des mesures quantitatives avec la plupart de ces techniques de mesures pour le point qui nous intéresse, à savoir la mesure du taux d'évaporation.

Pour réaliser une mesure de l'évaporation instantanée sur une goutte en écoulement, il faut en effet pouvoir :

- Réaliser la mesure sur une seule goutte, pour s'affranchir des approximations et postulats liés au travail sur une ligne de gouttes monodispersées, et surtout travailler sur des écoulements réalistes ou turbulents
- Obtenir une excellente précision sur la mesure de l'indice de réfraction, qui pourra alors être transformé en température. La précision nécessaire est située sur la qua-

trième décimale de l'indice de réfraction

- Obtenir une précision sur la mesure absolue du diamètre de la goutte de l'ordre du micromètre
- Obtenir une précision sur la mesure de la variation de diamètre de la goutte la plus grande possible afin de détecter de faibles évaporations; typiquement une variation de diamètre de 50nm.

De telles précisions sont difficilement atteignables, voire impossibles à atteindre, avec beaucoup des techniques de mesure citées dans ce chapitre. En dehors de la réfractométrie d'arc-en-ciel, les MDR, par exemple, constituent la technique de mesure qui pourrait s'approcher le plus des conditions demandées. Toutefois, même si pour la mesure de variation de diamètre, notamment sur des gouttes suspendues ou des trains de gouttes (y compris dans des flammes), les MDR permettent d'atteindre d'excellents résultats, la mesure de l'indice de réfraction est quand à elle beaucoup moins précise (de l'ordre de la seconde décimale), ce qui ne permet pas de transformer avec précision l'indice de réfraction mesuré en température.

La réfractométrie d'arc-en-ciel standard, et plus précisément le développement présenté ici, semble donc être la seule technique de mesure capable de réaliser les conditions demandées, à savoir la mesure simultanée de l'indice de réfraction, de la taille et de la variation de taille, notamment sur la précision de mesure.

Avant de présenter cette application de la réfractométrie d'arc-en ciel standard, les différentes théories de diffusion de la lumière vont être développées dans le chapitre suivant, afin de justifier les choix effectués lors du traitement des données expérimentales.
Chapitre 3

Théories de la diffusion de la lumière pour des particules sphériques

Sommaire

3.1	Optique géométrique 32	
	3.1.0.1 Angle de diffusion $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 32$	
	3.1.0.2 Calcul de l'intensité diffusée $\dots \dots \dots$	
	3.1.0.3 Limitations	
3.2	Théorie d'Airy	
3.3	Théorie de Lorenz-Mie	
3.4	Théorie de Debye	
3.5	Théorie de Nussenzveig	

Deux approches sont possibles lorsqu'il s'agit de décrire l'interaction de la lumière avec une particule sphérique. La première consiste à réaliser une approximation du faisceau incident, c'est à dire supposer que celui-ci est constitué de multiples rayons lumineux, chacun de ces rayons obéissant aux lois de l'optique géométrique. L'utilisation de la relation de Snell-Descartes et de la loi de Fresnel permet alors de calculer l'intensité et la direction de rayon réfléchi ou réfracté par la particule. La seconde approche consiste en une résolution rigoureuse des équations de Maxwell, en utilisant les conditions aux limites appropriées.

Afin de réaliser des mesures de taux d'évaporation, il est nécessaire d'obtenir une très grande précision sur les mesures de variations de taille de la goutte. A l'heure actuelle, la plupart des techniques, comme le PDA ou l'imagerie classique, annonçant des précisions de l'ordre de quelques pour cent, ne sont pas suffisantes pour mesurer un taux d'évaporation. L'objectif étant d'obtenir de très bonnes précisions à la fois sur la taille (mesure du diamètre au micromètre près), sur la variation de taille (de l'ordre de $0, 1\mu m$) et sur l'indice de réfraction (quatrième décimale), certaines des théories de diffusion de la lumière présentées ici ne pourront pas être utilisées lors du processus d'inversion, du fait de leur trop grande imprécision.

3.1 Optique géométrique

L'optique géométrique permet de décrire le chemin suivi par la lumière lors de son interaction avec une particule sphérique unique.

<u>Hypothèse</u> : on suppose la particule parfaitement sphérique, dont le diamètre est supérieur à la longueur d'onde du faisceau incident.

La loi de Fresnel décrit l'onde incidente comme étant une onde plane arrivant sur un plan. La sphère est donc transformée en un objet à n facettes, l'interaction faisceau/objet courbe n'étant pris en compte qu'au premier ordre; les phénomènes tels que les ondes de surface ou les MDR ne sont pas explicables par cette théorie. Il sera donc impossible d'obtenir des mesures fines avec ce type d'approche, qui devra donc être rejetée pour l'étude de la thermochimie des gouttes. En revanche, cette théorie permet des explications très pédagogiques.

Il est possible d'utiliser la relation de Snell-Descartes et la loi de Fresnel afin de décrire l'interaction entre un faisceau de lumière et la particule.

Le faisceau incident est représenté par une série de rayons. Si x est la distance entre le rayon incident considéré et l'axe du faisceau, il est possible d'introduire le paramètre d'impact $\rho = \frac{x}{a}$, avec a le rayon de la sphère, x le centre du faisceau et où $\rho \in [-1, 1]$. Quand le paramètre d'impact est nul ($\rho = 0$), le rayon incident est perpendiculaire à la surface de la particule, et traverse celle-ci suivant son diamètre en étant réfracté mais sans subir de déviation. Quand $\rho = |1|$, le rayon incident frôle la surface de la particule.

Les nouvelles directions de propagation sont calculées à chaque impact du rayon avec la surface de la particule à l'aide de la relation de Snell-Descartes (1623) (voir formule 3.1) pour les angles de propagation et de la loi de Fresnel (1820) pour le calcul de l'intensité diffusée.

$$n_{ext}\sin(i) = n_{part}\sin(r) \tag{3.1}$$

 n_{ext} étant l'indice de réfraction du milieu extérieur et n_{part} l'indice de réfraction de la particule.

3.1.0.1 Angle de diffusion

Afin de faciliter la compréhension, les notations de van de Hulst[35] seront utilisées.

-p = 0 correspond à une réflexion externe,

- -p = 1 correspond à un rayon ayant subi deux réfractions,
- -p=2 correspond à une réfraction, une réflexion interne, puis une réfraction,
- -p = 3 correspond à deux réflexions internes et deux réfractions
- plus généralement, p = n correspond à un rayon ayant subin 1 réflexions internes et deux réfactions.

La figure 3.1 montre les rayons d'ordre p = 0, p = 1, p = 2 ainsi que le paramètre d'impact.



FIGURE 3.1 – Visualisation du paramètre d'impact et notation de van de Hulst

Le calcul de la déviation d'un rayon réfléchi à l'extérieur de la particule se fait par la formule 3.2 :

$$D = \pi - 2i = \pi - 2 \arcsin \rho \tag{3.2}$$

Le calcul de la déviation d'un rayon lumineux après k réflexions internes est évident d'après la figure 3.1 : à chaque réflexion interne, le rayon est dévié d'un angle $\pi - 2r$, et aux deux réfractions (entrée et sortie du rayon) l'angle de déviation est i - r. La formule finale de la déviation d'un faisceau lumineux ayant subi k réflexions internes est donc :

$$D_k(i) = k(\pi - 2r) + 2(i - r)$$
(3.3)

D'après Descartes, la position angulaire du premier arc-en-ciel $\theta_{Descartes}$ est donnée par l'angle de diffusion minimum des rayons d'ordre p = 2. Au voisinage du rayon présentant le minimum de déviation, la densité de rayons est plus importante, d'où la présence d'un maximum d'intensité à cet angle particulier. Seuls les rayons d'ordre $p \ge 2$ possèdent un minimum de déviation; toutefois les arcs-en-ciel créés par des rayons d'ordre p > 2 ont des intensités plus faibles. Le second arc-en-ciel, qui est créé par les rayons d'ordre p = 3, peut notamment être observé dans la nature si les conditions sont favorables.

La position angulaire θ_{AEC} des différents ordres d'arc-en-ciel peut être calculée à partir de la formule 3.4:

$$\theta_{AEC} = 2\left\{ p \cos^{-1}\left(\frac{1}{N}\sqrt{1 - \frac{N^2 - 1}{p^2 - 1}} - \sin^{-1}\sqrt{\frac{N^2 - 1}{p^2 - 1}}\right\} \right)$$
(3.4)

où N correspond à l'indice de réfraction de la goutte et p à l'ordre du rayon diffusé contribuant à l'arc-en-ciel.

Calcul de l'intensité diffusée 3.1.0.2

Le calcul de l'intensité après chaque interaction avec la particule se fait à l'aide des coefficients de Fresnel. Huit coefficients sont ainsi définis, quatre étant utilisés pour chacune des polarisations.

Ces coefficients sont notés r_{ij} (réflexion) ou t_{ij} (transmission), *i* étant le milieu que traverse le rayon avant de rencontrer la surface de la particule et j le milieu où se propage le rayon après avoir rencontré la surface de la particule. On notera donc :

- $-r_{11}$ une réflexion externe,
- $-t_{12}$ une réfraction vers l'intérieur de la goutte,
- $-r_{22}$ une réflexion interne,
- $-t_{21}$ une réfraction vers l'extérieur de la goutte.

Pour une particule parfaitement transparente, l'intensité des différents types de rayons est alors donnée par :

- $-r_{11}^2$ pour une réflexion externe,
- $(t_{12} \times t_{21})^2$ pour un rayon réfracté deux fois, $(t_{12} \times t_{21} \times r_{22}^k)^2$ pour un rayon réfracté deux fois et ayant subi k réflexions internes.

Si la particule étudiée n'est pas parfaitement transparente, il est possible de connaitre l'atténuation subie à l'aide de la loi de Beer-Lambert. Il faut alors calculer la longueur de propagation des rayons à l'intérieur de la particule.

3.1.0.3 Limitations

La principale limitation de l'approche par l'optique géométrique est qu'il est impossible de prédire les caractéristiques de la lumière diffusée pour les points correspondant au croisement de deux rayons du même type. L'arc-en-ciel, qui correspond à un extremum de déviation pour des rayons subissant un nombre donné de réflexions internes, ne peut donc pas être décrit par l'optique géométrique. De plus, comme le montre la formule 3.4, le calcul de l'angle d'arc-en-ciel par l'optique géométrique ne prend pas en compte la taille de la particule et donne donc un résultat indépendant de la taille.

3.2 Théorie d'Airy

La théorie d'Airy a vu le jour en 1836. C'est une théorie scalaire s'appliquant aux particules sphériques qui permet la description de la diffusion de rayons lumineux après k réflexions internes, ceci dans une région angulaire proche de l'angle d'arc-en-ciel (voir équation 3.4).

Elle repose sur le fait que si la distribution d'amplitude des ondes est connue sur tout le front d'onde pour une goutte, alors la distribution d'amplitude peut être déterminée en tout point par le principe de Huygens : chaque point du front d'onde peut être considéré comme une source d'ondes secondaires, qui à leur tour définissent un nouveau front d'onde qui permet à nouveau de déterminer les propriétés de propagation. Le problème est donc d'obtenir la distribution d'amplitude initiale.

Airy utilise comme point de départ une surface d'onde à l'intérieur de la goutte, cette surface étant orthogonale à tous les rayons, y compris le premier arc-en-ciel. Cette surface possède un point d'inflexion à l'endroit où elle rencontre le rayon correspondant au minimum de déviation (et donc le rayon correspondant à un ordre d'arc-en-ciel). Il est alors possible d'exprimer l'intensité locale de la lumière sous forme d'intégrales d'Airy.

D'après van de Hulst [35], l'intensité diffusée est donnée par :

$$I\left(\theta,\alpha\right) = \left(\epsilon_{1}\right)^{2} \left[\frac{81}{16\pi^{2}h^{4}}\right]^{\frac{1}{6}} \cos\tau_{p}\alpha^{\frac{7}{3}}A_{i}^{2}\left(z\right)\frac{1}{\sin\left(\theta_{R}\right)}$$
(3.5)

où A_i est la fonction d'Airy, et où l'argument z vaut :

$$z = (-q) \left[\frac{12}{h\pi^2}\right]^{\frac{1}{3}} \alpha^{\frac{2}{3}} \left(\theta - \theta_R\right)$$
(3.6)

L'angle θ_R correspond à l'angle d'arc-en-ciel, q est entier prenant la valeur -1 ou +1, de telle façon que l'angle d'arc-en-ciel soit défini entre 0 et π , et qu'il vérifie la relation :

$$2\pi l + q\theta_R = \left(\tau_p - p\tau_p'\right) \tag{3.7}$$

avec l entier. τ_p et τ_p sont les angles complémentaires des angles d'incidence et de réfraction du rayon d'arc-en-ciel subissant p-1 réflexions internes. Il est alors possible d'écrire :

$$\tan \tau_p = \sqrt{\frac{N^2 - 1}{p^2 - N^2}} \tag{3.8}$$

$$\tan \tau_p' = \sqrt{\frac{p^2 \left(N^2 - 1\right)}{p^2 - N^2}} \tag{3.9}$$

h est donné par :

$$h = \sqrt{\left[\frac{\left(p^2 - 1\right)^2}{p^2 \left(N^2 - 1\right)}\right] \left[\frac{p^2 - N^2}{N^2 - 1}\right]}$$
(3.10)

et ϵ_i par :

$$\epsilon_i = \left(1 - r_i^2\right) \left(r_i\right)^{p-1} \tag{3.11}$$

avec :

$$r_1 = \frac{\sin\left(\tau_p - \tau_p^{\,\circ}\right)}{\sin\left(\tau_p + \tau_p^{\,\circ}\right)} \tag{3.12}$$

$$r_2 = \frac{\tan\left(\tau_p - \tau_p^{`}\right)}{\tan\left(\tau_p + \tau_p^{`}\right)} \tag{3.13}$$

La position de l'arc-en-ciel calculée avec la théorie d'Airy vaut alors :

$$\theta_{Airy} = \theta_{AEC} + \frac{1,0845}{\sqrt{\frac{N^2 - 1}{p^2 - 1}}} \left[\lambda^2 \frac{\sqrt{1 - \frac{N^2 - 1}{p^2 - 1}}}{64a^2} \right]^{\frac{1}{3}}$$
(3.14)

où θ_{AEC} est la position angulaire du premier arc-en-ciel calculé avec l'optique géométrique.

Le temps de calcul de l'équation 3.5 est très court si on le compare aux temps de calcul de la théorie de Lorenz-Mie.

Une grande limitation de la théorie d'Airy est que la distribution d'amplitude le long du front d'onde initial est une inconnue; elle doit être assumée à partir d'hypothèses.

Afin de déterminer le domaine de validité de l'approximation d'Airy, il est courant d'utiliser le paramètre de taille α , avec :

$$\alpha = \frac{\pi d}{\lambda} = \frac{kd}{2} \tag{3.15}$$

La théorie d'Airy n'est toutefois valable pour trouver la position du maximum du premier ou du second arc-en-ciel (ordres p = 2 et p = 3) que lorsque les gouttes ont un diamètre supérieur à $100\mu m$ dans le visible; en deça de cette valeur, les informations fournies par la théorie d'Airy sont juste qualitatives [43, 56]. L'utilisation d'une autre théorie, plus fine, peut donc s'avérer nécessaire lorsque l'on souhaite travailler avec des gouttes d'environ $100\mu m$ ou plus petites.

3.3 Théorie de Lorenz-Mie

La théorie de Lorenz-Mie (Lorenz 1890, Mie 1908) est l'approche la plus rigoureuse pour décrire l'interaction entre une onde plane et une particule parfaitement sphérique. Ce modèle est obtenu grâce à la résolution analytique des équations de Maxwell, et permet de calculer à la fois le champ interne de la particule et la lumière diffusée par celle-ci.

Tous les modes de diffusion étant calculés, cette théorie sert souvent de référence. Dans l'approximation de champ lointain, la théorie de Lorenz-Mie permet d'écrire les composantes du champ électrique comme étant :

$$E_{\theta} = i \frac{E_0 e^{-ikr}}{kr} \times \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[a_n \tau_n \left(\cos \theta \right) + i b_n \pi_n \left(\cos \theta \right) \right] \cos \varphi$$
(3.16)

$$E_{\varphi} = \frac{-E_0 e^{-ikr}}{kr} \times \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[a_n \pi_n \left(\cos \theta \right) + i b_n \tau_n \left(\cos \theta \right) \right] \sin \theta$$
(3.17)

où les fonctions de Legendre généralisées sont égales à :

$$\pi_n\left(\cos\theta\right) = \frac{P_n^1\left(\cos\theta\right)}{\sin\theta} \tag{3.18}$$

$$\tau_n\left(\cos\theta\right) = \frac{dP_n^1\cos\theta}{d\theta} \tag{3.19}$$

avec P_n^1 le polynôme associé de Legendre pour m = 1:

$$P_n^m(x) = (-1)^m \times (1 - x^2)^{m/2} \times \frac{d^m}{dx^m} P_n(x)$$
(3.20)

Les coefficients de diffusion de Mie a_n et b_n correspondant à l'onde externe sont donnés par :

$$a_n = \frac{\psi_n(\alpha)\psi'_n(\mu) - N\psi'_n(\alpha)\psi_n(\mu)}{\xi_n(\alpha)\psi'_n(\mu) - N\xi'_n(\alpha)\psi_n(\mu)}$$
(3.21)

$$b_n = \frac{N\psi_n(\alpha)\psi'_n(\mu) - \psi'_n(\alpha)\psi_n(\mu)}{N\xi_n(\alpha)\psi'_n(\mu) - \xi'_n(\alpha)\psi_n(\mu)}$$
(3.22)

où $\alpha = \frac{\pi d}{\lambda}$ correspond au paramètre de taille de la particule, et où $\mu = N\alpha$, avec d le diamètre de la particule, N son indice de réfraction complexe, λ la longueur d'onde du faisceau incident.

 $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ est le nombre d'onde, r étant la distance entre la particule et le point d'observation (dans le cas de l'approximation de champ lointain, $r > 20000\lambda$) et E_0 l'amplitude du champ incident.

Toutefois, la théorie de Lorenz-Mie ne permet pas de décrire le cheminement de la lumière à l'intérieur de la particule. De plus, le temps de calcul augmente avec le paramètre de taille de la particule (et donc augmente quand la taille de la particule augmente, et/ou quand la longueur d'onde de l'onde incidente diminue), et devient particulièrement prohibitif lorsque cette théorie est utilisée pour réaliser des calculs par inversion où de nombreuses itérations sont nécessaires.

3.4 Théorie de Debye

La théorie de Debye a vu le jour en 1909. Elle peut être considérée comme un développement de la théorie de Lorenz-Mie dans lequel les coefficients a_n et b_n sont écrits sous la forme de séries. La théorie de Debye permet d'obtenir une solution vectorielle rigoureuse au problème de la diffusion d'une onde plane par une particule parfaitement sphérique. De plus, elle permet de quantifier la contribution de chaque rayon d'ordre p [35], c'est à dire de connaître l'importance des rayons diffractés, réfléchis extérieurement

ou encore des rayons subissant k réflexions internes et deux réfractions, ceci en tronquant les coefficients a_n et b_n .

Il faut, pour pouvoir utiliser la théorie de Debye, que la particule soit assez grosse pour que le faisceau soit défini, mais qu'elle soit assez petite pour que les ordres p élevés soient toujours valables.

Les temps de calcul avec l'utilisation de la théorie de Debye sont sensiblement les mêmes que ceux de la théorie de Lorenz-Mie. En effet, même si les coefficients a_n et b_n peuvent être calculés plus rapidement, il n'est nécessaire d'effectuer ce calcul qu'une seule fois, contrairement aux coefficients angulaires π_n et τ_n qui sont à calculer pour chaque pas d'angle.

Dans la théorie de Debye, les coefficients de Lorenz-Mie a_n et b_n sont donc réécrits comme étant :

$$a_n = \frac{1}{2} \left[1 + R_n^{22} - \sum_{p=1}^{\infty} T_n^{21} \left(R_n^{11} \right)^{p-1} T_n^{12} \right]$$
(3.23)

avec une relation similaire pour le coefficient b_n .

Les coefficients R_n^{22} , R_n^{11} , T_n^{21} , T_n^{12} correspondent respectivement, pour l'onde sphérique partielle correspondante (la théorie de Debye permet le calcul des ondes arrivant vers la particule ou bien partant de son centre) :

- au coefficient de réflexion à l'extérieur de la particule,
- au coefficient de réflexion à l'intérieur de la particule,
- au coefficient de transmission de l'extérieur vers l'intérieur de la particule,
- au coefficient de transmission de l'intérieur vers l'extérieur de la particule.

L'équation 3.23 mène à :

- $-a_n = \frac{1}{2}$: décrivent la diffraction de l'onde incidente autour de la particule sphérique lorsqu'ils sont insérés dans les expressions des coefficients de diffusion du champ diffusé dans la théorie de Lorenz-Mie (E_{θ} et E_{φ}) et qu'ils sont sommés sur n.
- $-a_n = \frac{1}{2}R_n^{22}$: décrivent la partie de l'onde réfléchie vers l'extérieur depuis la surface de la particule sphérique lorsqu'ils sont insérés dans les expressions des coefficients de diffusion du champ diffusé dans la théorie de Lorenz-Mie (E_{θ} et E_{φ}) et qu'ils sont sommés sur n.
- $a_n = \frac{1}{2} \left[-\sum_{p=1}^{\infty} T_n^{21} \left(R_n^{11} \right)^{p-1} T_n^{12} \right]$: prend la forme d'une série géométrique, où chaque terme représente la lumière transmise vers la sphère et en émergeant après p-1 réflexions internes.

Comme pour la théorie de Lorenz-Mie, il s'agit d'une décomposition de l'onde incidente en onde sphérique dite partielle pour faciliter les conditions limites. Mathématiquement, il s'agit d'une décomposition en séries de Fourier où les ondes élémentaires sont des ondes sphériques. Ces termes permettent de faciliter la compréhension mais ne peuvent être pris en compte séparément ; seule leur somme a une signification physique.

Il est important de noter que lorsque $\theta = 0^{\circ}$, seule la somme des coefficients réflexion/transmission a un sens physique; indépendamment, ces deux séries de coefficients divergent. Il est ici, par exemple, impossible de différencier un photon réfracté à un angle de 0° et un photon diffusé à 0° .

Dans le cadre de la théorie de Lorenz-Mie comme dans celui de la théorie de Debye, l'intensité diffusée par la particule peut être obtenue en calculant :

$$I = E_{\theta} E_{\theta}^* + E_{\varphi} E_{\omega}^* \tag{3.24}$$

3.5 Théorie de Nussenzveig

La théorie des moments angulaires complexes (ou CAM, pour Complex Angular Momentum) a été publiée en 1969 par H. M. Nussenzveig [60, 61]. Cette théorie est basée sur la théorie de Debye : Nussenzveig transforme les séries de la théorie de Debye en intégrales, qui peuvent alors être calculées analytiquement par l'introduction d'approximations dépendant de la région angulaire étudiée, et du type de rayon sur lequel porte l'étude (p = 0, 1, 2...). Dans le cas de l'arc-en-ciel, les rayons qui seront utilisés pour le calcul de l'intensité diffusée sont les rayons d'ordre p = 0 à p = 2.

La théorie de Nussenzveig peut être utilisée pour obtenir des mesures quantitatives pour des particules ayant un paramètre de taille aussi petit que 100, ce qui correspond à environ $15\mu m$ de diamètre dans les longueur d'onde du visible; des informations qualitatives peuvent être obtenues pour des paramètres de taille allant jusqu'à $1, 5\mu m$.

Une étude détaillée des fonctions représentant l'intensité diffusée par les rayons d'ordre p = 0 à p = 2 peut être trouvée dans la thèse de S. Saengkaew [39], et ces termes ne seront pas détaillés ici.

La théorie de Nussenzveig permet donc, pour les rayons d'ordre p = 0 à p = 2, de parfaitement décrire la lumière diffusée par une goutte unique, y compris la structure de ripple, ceci dans le domaine angulaire souhaité et pour des particules aussi petites que $15\mu m$.

Le principal intérêt de la théorie de Nussenzveig est qu'elle permet le calcul de

l'intensité diffusée avec une précision très proche de celle de la théorie de la théorie de Debye, tout en conservant un temps de calcul proche de celui de la théorie d'Airy.

La figure 3.2 compare les intensités diffusées calculées en théorie de Lorenz-Mie et en théorie de Nussenzveig pour une goutte de diamètre $d = 80 \mu m$ et d'indice n = 1, 38.



FIGURE 3.2 – Diagrammes de diffusion calculés avec la théorie de Debye et la théorie de Nussenzveig pour une goutte d'indice 1.38, de diamètre $80\mu m$ pour une longueur d'onde de 532nm.

Contrairement à la théorie d'Airy, la théorie de Nussenzveig permet la prise en compte de la structure de ripple, qui pourra alors être utilisé afin d'obtenir des mesures plus fines sur des signaux d'arc-en-ciel standard. La figure 3.3 permet de mettre en évidence les différences entre la théorie de Nussenzveig et la théorie d'Airy.



FIGURE 3.3 – Diagrammes de diffusion calculés avec la théorie d'Airy et la théorie de Nussenzveig pour une goutte d'indice 1.38, de diamètre $100\mu m$ pour une longueur d'onde de 532nm.

Chapitre 4

Réfractométrie d'arc-en-ciel sur goutte unique

Sommaire

4.1	.1 Introduction					
	4.1.1 Arc-en-ciel Standard		:			
	4.1.2 Influence des ordres d'arc-en-ciel sur le diagramme de diffusion \ldots		•			
	4.1.3	Étude de l'influence de la position de la goutte dans le faisce au \hdots	1			
4.2	4.2 Arc-en-ciel en régime pulsé : principe et objectifs expérimentaux 56					
4.3	Réfr	actométrie d'arc-en-ciel en régime pulsé : dispositif expérimental 62	1			
	4.3.1	Mise en place du laser à double impulsion $\ldots \ldots 65$	1			
	4.3.2 Polarisation du laser					
	4.3.3 Injecteur					
4.3.4 Caméra						
	4.3.5 Synchronisation					
	4.3.6 Procédure de traitement des données					
		4.3.6.1 Obtention du profil d'intensité en fonction du numéro de pixel de la				
		caméra à partir de l'image brute	1			
		4.3.6.2 Obtention des données de calibration				
		4.3.6.3 Traitement des profils calibrés	1			
4.4	\mathbf{Reje}	t des particules non sphériques : cas des sphéroïdes)			
4.5	Réfr	actométrie d'arc-en-ciel en régime simple impulsion sur gouttes				
	uniq	ues : mesures statistiques de n et d	:			
	4.5.1	Processus d'inversion	:			
		4.5.1.1 Etude de l'influence distribution de taille / diamètre fixé $\ldots \ldots 90$)			
	4.5.2	Reproductibilité des mesures	1			
	4.5.3 Mesures statistiques de l'indice de réfraction et du diamètre					
		4.5.3.1 Cas de l'eau	;			
		4.5.3.2 Cas de l'isopropanol)			

4.1 Introduction

Au cours des dernières années, plusieurs études en réfractométrie d'arc-en-ciel standard ont porté sur l'étude de gouttes dites "uniques". Dans les faits, peu de ces travaux portent réellement sur des gouttes uniques, et la plupart des travaux publiés portent sur l'étude de trains de gouttes supposées identiques. Parmi les auteurs de travaux portant sur l'étude de gouttes uniques à l'aide de la technique d'arc-en-ciel standard, il est notamment possible de citer les travaux de :

- Chan et al. [45] en 1996 sur de l'eau distillée, qui parvient à une précision de 2.10⁴ sur l'indice de réfraction de gouttes suspendues, celles-ci ayant une taille de 50mm environ,
- Duft *et al.* [47] en 2004, pour la mesure de l'indice de réfraction de gouttelettes en lévitation magnétique, électrostatique, ou électrodynamique. La mesure est ici effectuée à l'aide des maxima d'ordre p = 2 et p = 3 de l'arc en ciel en utilisant une fonction de Fisher-Tippet. Les gouttes étudiées ont un diamètre de 30 à $60\mu m$, pour un indice compris entre 1,32 et 1,43. Les auteurs effectuent une moyenne sur une plage de diamètre de $0, 5\mu m$ afin de supprimer la structure de ripple.

Parmi les auteurs ayant travaillé sur la mesure de l'indice de réfraction de trains de gouttes par arc-en-ciel standard, il est possible de citer :

- Roth *et al.* [32] à partir de 1991, avec l'introduction de la réfractométrie d'arc-en-ciel pour la mesure de taille de trains de gouttes, corrigée par la mesure de l'indice de réfraction,
- Van Beeck et al. [33, 34] en 1995, avec la mesure de l'indice de réfraction de trains de gouttes de taille allant de 1 à 5mm par la théorie d'Airy après suppression de la structure de ripple par filtrage,
- Wilms et al. [1, 62] en 2004, pour la réalisation de nombreuses mesures d'évaporation sur des trains de gouttes, les mesures d'indice de réfraction et de diamètre étant moyennées à partir des 49 valeurs les plus proches (7 pour le diamètre et 7 pour l'indice) afin de supprimer la structure de ripple.

Depuis 2005, plusieurs travaux introduisant la structure de ripple dans la procédure d'inversion ont été réalisés, ce qui permet le calcul de l'indice de réfraction sans avoir besoin de réaliser de filtrage [13, 39].

C'est dans cette continuité que s'inscrit le travail présenté ici : l'objectif est de pouvoir mesurer l'indice de réfraction et la taille de gouttes réellement uniques (et non plus de trains de gouttes supposées identiques) en conservant la structure de ripple.

4.1.1 Arc-en-ciel Standard

Van Beeck et Riethmuller [33] ont mesuré l'indice de réfraction et la taille de gouttes dites "individuelles" en utilisant la théorie d'Airy. Leur méthode repose sur le fait que, d'après la théorie d'Airy, à un changement de diamètre correspond un changement dans la distance angulaire séparant les arcs-en-ciel surnuméraires, alors qu'un changement d'indice de réfraction de la goutte correspond à un déplacement angulaire de la figure d'arc-en-ciel.



FIGURE 4.1 – Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte d'indice 1,38 et de diamètre 40,80 et 160 $\mu m.$

La figure 4.1 permet de mettre en évidence que la forme de l'arc-en-ciel est modifiée lorsque la taille de la particule varie. Plus le diamètre de la particule est grand, moins la largeur du pic principal est importante, et plus la distance entre les maximums des arcs surnuméraires diminue. Toutefois, toutes les courbes de même indice possèdent un point commun, qui correspond à la position de l'arc-en-ciel calculé à l'aide de l'optique géométrique (représenté sur la figure 4.1 par la droite rouge verticale), et qui est très proche du point d'inflexion.



Chapitre 4. Réfractométrie d'arc-en-ciel sur goutte unique

FIGURE 4.2 – Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte de diamètre $80 \mu m$ et d'indice 1, 36, 1, 38 et 1, 40.

148

150

152

154

146

La figure 4.2 montre qu'une variation de l'indice de réfraction de la goutte induit un décalage complet de la figure d'arc-en-ciel. Une mesure de la position absolue de l'arc-en-ciel est donc une mesure de l'indice de réfraction.

La théorie d'Airy ne permet toutefois pas de décrire la totalité du phénomène d'arc-en-ciel, notamment le phénomène de ripple (oscillations à haute fréquence), qui est dû aux interférences entre la lumière réfléchie à l'extérieur de la goutte (p = 0) et la lumière ayant subi une réfraction, une réflexion interne puis à nouveau une réfraction (p = 2). C'est pourquoi toute mesure de taille ou d'indice de réfraction d'une goutte unique ou d'une ligne de goutte de même taille doit au préalable s'accompagner d'un filtrage des hautes fréquences pour éliminer le ripple. Le processus de filtrage induit toutefois une forte incertitude, la position du ripple venant perturber la recherche du maximum; ceci est d'autant plus vrai que la particule est petite.

La figure 4.3 présente un signal expérimental obtenu avec une goutte unique, de taille $80\mu m$. Le signal le plus proche du signal expérimental a été calculé et est également présenté. Le signal expérimental filtré n'a plus la structure de ripple; le maximum de ce signal filtré peut varier de plusieurs dixièmes de degrés selon la phase du ripple du signal

0

142

144

d'origine.



FIGURE 4.3 – Signal expérimental obtenu avec une goutte unique de $80\mu m$, signal recalculé par la théorie de Nussenzveig et signal expérimental filtré.

4.1.2 Influence des ordres d'arc-en-ciel sur le diagramme de diffusion

L'intensité lumineuse diffusée par une goutte à un angle donné correspond aux interférences entre les différents ordres p d'arc-en ciel. Les contributions les plus importantes proviennent toujours des ordres p = 0 et p = 2. Mais selon l'indice de réfraction de la goutte, d'autres ordres d'arc-en-ciel peuvent avoir une contribution importante également; c'est notamment le cas de l'ordre p = 6 pour des indices de réfraction proches de 1.36. Dans ce cas, la figure d'arc-en-ciel sera perturbée par l'arc-en-ciel d'ordre élevé, et l'inversion pourra donner des résultats faussés : les codes n'utilisent généralement que les contributions d'ordre p = 0 et p = 2, la précision des prédictions étant moins bonne lorsque des ordres plus élevés de p sont pris en compte.

La figure 4.4 montre l'influence relative des ordres d'arc-en-ciel, de p = 0 à p = 9, pour une goutte de $100\mu m$ de diamètre, et d'indice 1, 33, 1, 36 et 1, 38.



FIGURE 4.4 – Influence relative des ordres d'arc-en-ciel pour une goutte de $100 \mu m$ de diamètre et d'indice 1.33, 1.36 et 1.38

4.1.3 Étude de l'influence de la position de la goutte dans le faisceau

Les figures 4.5 et 4.6 présentent l'effet de la position horizontale de la goutte dans le faisceau laser sur des images expérimentales. Le cercle vert représente une section du faisceau laser; si le dispositif est bien réglé et que la goutte se trouve à l'intérieur du faisceau, la caméra pourra enregistrer un signal de diffusion. Si la goutte est centrée dans le faisceau, l'image obtenue sera également centrée (l'effet circulaire bordé de noir étant simplement dû à l'objectif de la caméra). Si la goutte n'est pas centrée dans le faisceau laser, non seulement l'image enregistrée ne sera pas centrée, mais la calibration sera faussée. En effet, l'utilisation d'un miroir pour la réalisation de la calibration angulaire impose que l'axe de rotation du miroir corresponde parfaitement avec l'axe d'écoulement des gouttes; il faudra donc veiller à ce que lors de l'acquisition, les gouttes soient bien centrées dans le faisceau laser.



FIGURE 4.5 – Influence de la position horizontale de la goutte dans le faisceau : goutte excentrée.



FIGURE 4.6 – Influence de la position horizontale de la goutte dans le faisceau : goutte centrée.

Le même effet sur l'image sera présent si les gouttes sont situées à des positions différentes dans l'axe de l'écoulement. Un décalage vertical n'entraînera pas de problèmes lors de la calibration, puisque toutes les gouttes seront situées dans l'axe de rotation du miroir; toutefois, au vu de l'effet de courbure présent sur toutes les images obtenues par réfractométrie d'arc-en-ciel, un tel décalage pourrait avoir une légère influence sur la mesure angulaire. C'est pourquoi des simulations ont été effectuées, basées sur un code de calcul utilisant la théorie de Lorenz-Mie.

Ce code de calcul permet, à partir de la position connue de particules d'indice de réfraction et de diamètre connus, de calculer le champ diffusé à l'angle d'arc-en-ciel. Reconstruit sous forme d'image, il est alors possible d'introduire cette image dans un code d'inversion, ceci afin de vérifier l'influence de la position de la goutte dans le faisceau laser. Il est également possible de simuler la présence de plusieurs particules dans le faisceau laser, le résultat obtenu permettant alors d'étudier les interférences produites par les n sources lumineuses diffusantes que sont les gouttelettes présentes dans le faisceau.

Le repère en trois dimensions permettant de repérer la position de la particule est appelé (Oxyz) (voir figure 4.7). L'onde incidente représentant le faisceau laser est une onde plane se propageant selon l'axe (O, z) vers les z positifs. Il est alors possible d'entrer les coordonnées de la particule P_i , ainsi que son indice de réfraction et son diamètre. $P_i(x_i, y_i, z_i, n_i, d_i)$ représente alors les coordonnées de la particule P_i dans le repère ainsi que son indice de réfraction et son diamètre.



FIGURE 4.7 – Position des particules et distance relative

Il est possible d'entrer dans le code de calcul plusieurs particules ; la particule courante sera alors notée $P_j(x_j, y_j, z_j, n_j, d_j)$. Il devient donc possible de calculer la distance séparant les deux particules l_{ij} :

$$l_{ij} = \frac{\sqrt{(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2 + (z_i - z_j)^2}}{2} \times proxim$$
(4.1)

proxim étant le facteur de proximité : les l_{ij} ne dépendent que des coordonnées des centres et peuvent être comparés, de manière à ce que l_{ij} soit supérieur à la somme des rayons des particules i et j que multiplie proxim, qui est donc à définir comme étant n fois la distance entre les particules i et j. L'intérêt est d'avoir une distance minimum entre les particules afin de pouvoir maîtriser les effets de la diffusion multiple.

Le code recalcule l_{ij} à chaque ajout de particule, et ceci pour toutes les particules ajoutées précédemment : la distance entre chaque particule est donc connue; il n'y a pas de prise en compte de la diffusion multiple, mais celle-ci devient négligeable si *proxim* est assez grand.

L'objectif étant maintenant de pouvoir utiliser ce code de calcul afin de simuler les résultats expérimentaux à l'aide de la théorie de Lorenz-Mie, il est nécessaire de simuler le capteur expérimental dans le code de calcul. On définit ainsi un détecteur se trouvant sur un cercle du plan (xOz), placé à une distance R du centre O du repère (voir figure 4.8). L'influence de la polarisation également être simulée : si la polarisation est parallèle à l'axe Ox, la polarisation sera nulle; si elle est parallèle à l'axe Oy, on aura une polarisation à 90°. La position du détecteur est définie par un angle minimum et un angle maximum (voir figure 4.8. Le détecteur est défini comme étant carré, de dimensions 512×512 pixels : sa longueur est calculée au moyen des angles θ_{min} et θ_{max} puis cette longueur sert également dans la direction Y. Un pixel de la caméra aura alors pour coordonnées pix(K, L) dans le repère (O'XY), O' étant le centre du détecteur.



FIGURE 4.8 – Définition du détecteur

A partir des coordonnées de la particule $P_i(x_i, y_i, z_i, n_i, d_i)$ et de celles du pixel pix(K, L) sur le détecteur, il est alors possible de calculer (x_d, y_d, z_d) , qui sont les coordonnées du pixel dans le repère centré sur la particule étudiée, et l'on obtient alors (r_d, θ_d, ϕ_d) , qui sont les coordonnées du pixel vu depuis la particule. Les conditions sont maintenant remplies pour appliquer la théorie de Lorenz-Mie, et il est possible d'extraire les champs E et H des coordonnées (r_d, θ_d, ϕ_d) .

Une fois ces champs mis sous forme matricielle, on calcule la somme, pour le pixel pix, de tous les champs créés par chaque particule sous forme matricielle. Les matrices indépendantes sont également stockées afin de pouvoir étudier l'influence d'une particule individuelle. Lors du calcul de la somme des champs, il est nécessaire de transformer les coordonnées sphériques du cercle de rayon R pour $(E(r, \theta, \phi))$ et $(H(r, \theta, \phi))$ dans le repère lié au détecteur. On obtient ainsi les coordonnées dans le plan du capteur par projection. Après calcul du vecteur de Poynting, on ne garde que la composante normale au capteur, qui est celle qui nous intéresse, et l'on en tire deux images : l'une correspond au champ diffusé par la particule P_i en cours d'étude, l'autre à la somme des champs de la particule P_i et des particules étudiées précédemment. Si une seule particule est étudiée, les deux images sont identiques, sinon, les deux images sont différentes.

La même démarche est effectuée pour la particule P_j : on ajoute à ce qui est en mémoire le champ qui vient d'être calculé pour cette particule et ce pixel précis, et une nouvelle matrice individuelle, un nouveau vecteur de Poynting sont calculés, ceci jusqu'à ce tous les champs diffusés des particules présentes soient calculés. Il est à noter que ce code de calcul est applicable à l'holographie hors axe, par simple ajout d'une onde de référence.

La figure 4.9 présente le champ diffusé par une goutte de $80\mu m$ de diamètre et d'indice n = 1,3772 placée au centre du faisceau.



FIGURE 4.9 – Théorie de Lorenz-Mie : Champ diffusé par une goutte de $80\mu m$ de diamètre et d'indice n = 1,3772 placée au centre du faisceau.

Les figures présentées figure 4.10 présentent l'influence de la position de la goutte dans le faisceau, pour un déplacement de celle-ci de 2mm dans les 3 axes. La colonne de gauche

représente le champ diffusé par une goutte décalée de -2mm dans les axes x, y et z, et la colonne de droite le champ diffusé par une goutte décalée de +2mm dans les axes x, y et z.



FIGURE 4.10 – Théorie de Lorenz-Mie : Champ diffusé par une goutte de $80\mu m$ de diamètre et d'indice n = 1,3772 excentrée dans le faisceau.

L'effet n'étant pas évident à visualiser avec ces images, les profils d'intensité ont été

tracés et sont présentés figure $4.11\,;$ la figure 4.12 présente un grossissement du maximum d'intensité.



FIGURE 4.11 – Théorie de Lorenz-Mie : Profils d'intensité du champ diffusé par une goutte de $80\mu m$ de diamètre et d'indice n = 1,3772.



FIGURE 4.12 – Théorie de Lorenz-Mie : Grossissement du maximum d'intensité des profils d'intensité du champ diffusé par une goutte de $80\mu m$ de diamètre et d'indice n = 1,3772.

Les figures 4.11 et 4.12 mettent en évidence l'effet d'un décentrage de la goutte dans le faisceau. Si la mise au point de l'objectif de la caméra est bel et bien à l'infini, seul un décalage suivant l'axe x a une influence sur la lumière diffusée par la goutte; les profils pour la goutte centrée ainsi que pour la goutte décalée dans les axes y et z sont parfaitement identiques. L'importance du centrage de la goutte suivant l'axe x pressenti lors des premières expériences se trouve donc bien validé par la théorie de Lorenz-Mie.

4.2 Arc-en-ciel en régime pulsé : principe et objectifs expérimentaux

Comme expliqué précédemment dans le chapitre 2.6, les approches concernant l'arc-en-ciel standard ont consisté jusqu'ici à la suppression du phénomène de ripple, que ce soit par filtrage, ou par sommation de signaux [33, 34, 62]. Or la structure de ripple est très sensible aux variations de diamètre pour une goutte de $100\mu m$, une variation de la phase du ripple de 2π correspondant à une variation de diamètre de $0, 2\mu m$. Plutôt que de chercher à supprimer la structure de ripple, il peut donc être avantageux de l'exploiter afin d'obtenir des mesures de variation de diamètre très précises.

La figure 4.13 présente l'effet d'une petite variation du diamètre de la gouttelette (ici, des variations de $1.10^{-8}m$ sur le diagramme de diffusion).



FIGURE 4.13 – Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte d'indice 1, 38 et de diamètre 79, $98\mu m$, 79, $99\mu m$ et $80\mu m$.

La figure 4.14 représente le maximum d'intensité de la figure. Seul est visible le pic du ripple le plus élevé; le décalage de la figure de ripple est alors nettement visible.



FIGURE 4.14 – Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte de diamètre $80\mu m$ et d'indice 1,3795, 1,38 et 1.3815 : Zoom sur le pic du ripple présentant le maximum d'intensité.

Connaissant la relation qui lie le décalage du ripple à la variation de diamètre, il est alors possible, à partir de deux profils réalisés sur une goutte à des instants t différents, de remonter au taux d'évaporation de cette goutte.

C'est l'effet "vernier" dû à la translation de la structure de ripple qui va être utilisé afin de réaliser des mesures très précises de variation de diamètre de la goutte étudiée. Les figures suivantes présentent cet effet vernier.

La figure 4.15 présente le décalage de la structure de ripple d'une goutte d'indice n = 1,38 dont le diamètre varie de 80,02 à $80,20\mu m$. La flèche indique le sens de translation de la structure de ripple lorsque le diamètre de la goutte augmente.



FIGURE 4.15 – Effet vernier : influence d'une faible variation de diamètre sur la structure de ripple.

La figure 4.16 grossit la zone présentant le maximum d'intensité de la structure de ripple. Le pas de diamètre est cette fois de $0, 02\mu m$, soit 20nm.



FIGURE 4.16 – Effet vernier : zoom sur le maximum d'intensité.

La figure 4.17 représente l'effet vernier. La variation de diamètre de la goutte est représentée en fonction du décalage angulaire de la structure de ripple, pour une goutte de $80\mu m$. Cette fonction dépendra de la taille de la goutte, et devra donc être recalculée lors de changements importants de diamètre.



FIGURE 4.17 – Effet vernier : variation de diamètre en fonction du décalage angulaire pour une goutte de $80\mu m$.

Les figures 4.15, 4.16 et 4.17 ont été obtenues à partir d'un code de calcul basé sur la théorie de Nussenzveig. Ce code de calcul permet d'établir la relation entre la variation du diamètre de la goutte et le décalage angulaire de la structure de ripple. L'objectif est maintenant de réussir à obtenir des mesures expérimentales sur une goutte unique avec la même précision; c'est pourquoi la réfractométrie d'arc-en-ciel standard en régime pulsé est introduite.

Comme le montre la figure 4.18, une variation de phase de 2π du signal haute fréquence correspond à une variation de diamètre de $0, 2\mu m$ à l'angle d'arc-en-ciel, pour une goutte d'indice n = 1, 38 et de diamètre $d = 80\mu m$. Il est donc théoriquement possible d'obtenir des mesures de variation de diamètre extrêmement précises, si l'acquisition des données expérimentales est réalisée dans les bonnes conditions et si les codes de d'inversion supportent cette précision.



FIGURE 4.18 – Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte d'indice 1,38 et de diamètre $80\mu m$ et $80, 2\mu m$

Le dispositif expérimental développé, ainsi que la méthodologie et les codes de calcul utilisés sont développés dans le chapitre suivant.

4.3 Réfractométrie d'arc-en-ciel en régime pulsé : dispositif expérimental

Le premier défi a consisté à démontrer la possibilité d'enregistrer un signal d'arc-en-ciel pour une goutte unique. Il existe très peu de ces signaux dans la littérature, et encore moins qui soient de bonne qualité, et donc utilisables par les codes d'inversion (qui nécessitent des particules sphériques pour donner de bons résultats).

L'obtention de résultats exploitables s'est réalisée en deux étapes. Un premier dispositif expérimental a d'abord été créé, basé sur un boîtier de synchronisation analogique développé au laboratoire, permettant de contrôler temporellement une caméra CCD et un laser Nd-YAG : ce boîtier de synchronisation, en se calant sur la fréquence des lampes flash du laser, envoie alors un signal décalé temporellement vers l'injecteur, un autre vers la caméra, et déclenche l'émission laser lors du flash des lampes du laser suivant.

- Un générateur Microdrop "drop-on-demand" (MD-E-201-H) capable d'émettre une goutte à la fois. Celle-ci possède un diamètre variant de $80\mu m$ à $120\mu m$ selon le liquide utilisé et se déplace à 2m/s.
- Une caméra (Kappa DX-2), capable d'enregistrer la lumière diffusée durant un certain temps de pose (typiquement 0.1s)
- Un laser pulsé (type Nd-YAG, Continuum Surelite II-20) pouvant émettre une impulsion lumineuse d'une durée d'environ 10ns.

L'ensemble de l'expérience était alors organisé autour d'un boîtier de synchronisation qui, lorsqu'il en reçoit l'ordre, génère trois signaux décalés temporellement permettant de déclencher chaque partie du dispositif. Afin d'obtenir les délais nécessaires au bon fonctionnement de l'expérience, plusieurs mesures ont été nécessaires. Celles-ci ont été effectuées à l'aide d'un oscilloscope numérique LeCroy (WaveMaster 8120A 6GHz), et répétées 50 fois afin d'avoir un échantillon statistique exploitable.

La première étape a consisté à mesurer le délai entre l'impulsion électrique générée par le boîtier de synchronisation et l'émission laser elle-même, ainsi que la stabilité de ces mesures. La lumière émise par le laser était collectée par un photo multiplicateur Hamamatsu, et le délai entre les deux signaux électriques visualisé et enregistré sur l'oscilloscope numérique haute fréquence.

Le délai entre l'impulsion électrique du boîtier de synchronisation et l'émission laser dépend des caractéristiques du laser; ainsi, si les conditions de fonctionnement du laser ne sont pas modifiées, la valeur du décalage temporel entre les impulsions électriques ne doit pas être modifié. Les mesures statistiques sur 50 tirs laser sont présentées dans le tableau 4.1. La figure 4.19 représente un schéma descriptif du dispositif expérimental.

	Délai (secondes)
Moyenne	2.007321e-01
Ecart type	6.549581e-07
Maximum	2.007334e-01
Minimum	2.007305e-01

Tableau 4.1 – Mesures statistiques du délai temporel entre l'impulsion de commande d'émission du laser et l'émission laser elle-même.



FIGURE 4.19 – Schéma descriptif du dispositif expérimental.

Ce dispositif a permis de démontrer la faisabilité de l'acquisition de signaux d'arc-enciel sur une goutte unique avec une structure de ripple figée. Toutefois, si les mesures présentées dans le tableau 4.1 sont relativement précises, il s'est avéré que la précision du boîtier de synchronisation analogique développé n'était pas suffisante. Ce premier dispositif, même s'il a permis de démontrer avec certitude la possibilité d'obtenir des images de bonne qualité de la lumière diffusée par des gouttes uniques, n'a donc pas permis de réaliser des mesures répétables. C'est pourquoi un boîtier de synchronisation numérique a été utilisé; tous les résultats présentés dans les chapitres suivants ont été obtenus avec ce boîtier numérique.

Le matériel finalement utilisé afin de réaliser les acquisitions est listé ci-dessous, et leur utilisation sera détaillée au cours des chapitres suivants.

- Un générateur Microdrop "drop-on-demand" (MD-E-201-H) capable d'émettre une goutte à la fois. Celle-ci possède un diamètre variant de $80\mu m$ à $120\mu m$ selon le liquide utilisé et se déplace à 2m/s.
- Une caméra (JAI 4200) de type PIV, pouvant fonctionner en mode simple ou double acquisition, permettant de réaliser deux acquisitions séparées de quelques dizaines de microsecondes seulement.
- Un laser pulsé (type Nd-YAG, Big Sky Laser/Quantel EC-CFR-2K) à double cavité, pouvant émettre deux impulsions lumineuses très rapprochées temporellement, d'une durée d'environ 10ns.
- Un boîtier de synchronisation numérique à 6 sorties, d'une précision de 500ns, de

marque R&D Vision.

4.3.1 Mise en place du laser à double impulsion

Afin d'obtenir les meilleures acquisitions possibles, les faisceaux laser émis par les deux cavités du dispositif laser de type PIV doivent être parfaitement parallèles, ce qui est normalement le cas lors de l'utilisation d'une chaîne d'acquisition dédiée à la PIV. Les faisceaux doivent de plus être parfaitement horizontaux, ceci afin de bien définir le plan horizontal de diffusion lumineuse. Afin de vérifier cette horizontalité, un niveau à eau a été utilisé, consistant en un tube en U aux extrémités graduées. L'une des extrémités est alors placée directement à la sortie du laser, l'autre le plus loin possible dans le faisceau, et une comparaison des extrémités graduées permet de relever le niveau vertical du faisceau. On recherche moins de 1mm de décalage vertical sur une longueur de 3, 5m, soit un angle de moins de $0, 12^{\circ}$. Ceci permet de limiter les imprécisions de mesure lors du traitement des données.

Ce laser sera utilisé en configuration "simple tir" dans ce chapitre, n'utilisant donc qu'une seule des deux cavités. Le mode "double tir" sera développé dans le chapitre 5.

4.3.2 Polarisation du laser

La polarisation du laser utilisé est une polarisation horizontale (0°) . Si la théorie d'Airy ne peut pas traiter les signaux en polarisation à 0° pour le premier arc-en-ciel, ce n'est pas le cas de la théorie de Nussenzveig, qui fonctionne avec les deux polarisations pour l'étude du second arc-en-ciel. Toutefois, pour des raisons d'intensité du signal et de réduction du rapport signal/bruit, il a été choisi de travailler avec le premier arc-en-ciel, nécessitant donc une polarisation à 90° .

L'effet de la polarisation peut être vu sur le graphe 4.20. Il est en effet nettement visible que pour une particule de taille $80\mu m$ et d'indice 1, 38, l'intensité est plus élevée dans la configuration polarisation à 90° à l'angle d'arc-en-ciel, le premier arc-en-ciel étant ici situé à environ 145°.




FIGURE 4.20 – Logarithme de l'intensité en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte de taille $80 \mu m$ et d'indice 1, 38.

Deux solutions se présentaient alors : utiliser un rotateur de polarisation, ou placer le laser parfaitement perpendiculaire au plan de travail. Il s'est avéré que la seconde option était à la fois plus précise et plus simple à mettre en oeuvre; c'est donc celle-ci qui a été choisie, et le laser a été placé verticalement au moyen d'une équerre.

4.3.3 Injecteur

Le générateur de gouttes utilisé pour réaliser toutes les expériences est un injecteur de marque Microdrop [63], modèle MD-E-201-H. Il est composé d'un injecteur piézoélectrique, alimenté en liquide par un petit réservoir. Un générateur électrique dédié pilote le tout, et permet de régler le signal envoyé à l'injecteur, signal qui doit être modifié pour changer le régime de fonctionnement de l'injecteur. Ainsi, à chaque tête d'injection correspondra un régime particulier, déterminé par un couple tension/fréquence. Si le couple tension/fréquence appliqué n'est pas le bon, l'injecteur ne génèrera pas des trains de gouttes réguliers, mais créera un spray de gouttelettes de plusieurs tailles.

L'objectif étant de collecter la lumière diffusée à l'angle d'arc-en-ciel par une seule

12

10

goutte, il est nécessaire de s'assurer qu'une seule goutte est bien présente dans le faisceau laser au moment de l'acquisition. Pour cela, un générateur de gouttelettes "à la demande" a été utilisé. Il peut fonctionner dans trois modes différents :

- Mode continu : des gouttes de taille identique sont émises en continu
- Mode "train de gouttes" : un nombre déterminé de gouttes est émis, puis l'injection stoppe
- Mode "goutte à la demande" : lorsque l'injecteur reçoit le signal déclencheur, il émet une goutte et une seule.

C'est le mode "goutte à la demande" qui a été utilisé.



FIGURE 4.21 – Visualisation du système d'injection

Un dispositif de chauffage de la tête d'injection peut être associé à l'injecteur. Le dispositif permet alors de faire chauffer la partie horizontale de l'injecteur à la température demandée, ceci avec une précision de 1°C. Un thermocouple permet une mesure de la température du dispositif de chauffage; toutefois, la tête d'injection elle-même n'est pas chauffée, ce qui induit une légère diminution de température entre la barre de chauffage et la tête d'injection elle-même. Cette variation peut être mesurée, puisqu'un second thermocouple est présent dans la tête d'injection. La température d'injection dans le milieu ambiant peut donc être connue avec précision; l'affichage de cette température se faisant directement sur le générateur électrique contrôlant l'injecteur.

La tête d'injection est constituée d'un capillaire en verre, de diamètre interne de 1mm environ, entouré par un cristal piézo-électrique. Le diamètre du capillaire se réduit à la sortie, aboutissant à un orifice de sortie de quelques dizaines de micromètres. Lorsqu'une impulsion électrique est appliquée sur le cristal piézo-électrique, celui-ci se contracte fortement, ce qui crée une onde de pression dans le liquide situé à l'intérieur du capillaire, engendre une très forte accélération au niveau de l'orifice de l'injecteur et génère un filament de liquide. Lorsque le cristal piézo-électrique se relâche à la fin de l'impulsion électrique, une dépression se crée et le liquide retourne partiellement vers le capillaire. Si le volume expulsé de l'injecteur a été suffisamment important, l'intégrité du filament liquide n'est plus préservée car les forces de tension superficielle deviennent trop faibles. Une partie du liquide se détache alors pour former une goutte, dont la vitesse d'éjection est d'environ $2m.s^{-1}$ (voir figure 4.22).



FIGURE 4.22 – Processus de formation d'une goutte par contraction du capillaire en verre

L'injecteur doit être placé de telle façon que la goutte émise se trouve au centre du faisceau laser, dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation de celui-ci. En effet, tout décalage dans ce plan entraîne des mesures faussées et un décalage dans la valeur de l'indice de réfraction mesuré, et donc dans la température de la goutte.

L'opérateur veillera également à ne pas effectuer de mesures trop près du nez de l'injecteur. En effet, immédiatement après la sortie de l'injecteur, les gouttes sont animées d'un mouvement oscillatoire faisant passer la goutte de problate à oblate, ceci jusqu'à la stabilisation du mouvement d'oscillation de la goutte, qui reste alors sphérique. Toutes les mesures réalisées par la suite ont été réalisées à une distance de 1cm de la sortie de l'injecteur.

4.3.4 Caméra

La caméra utilisée est une JAI4200. Cette caméra dispose d'une surface d'enregistrement de 2048×2048 pixels en 12 bits (soit 4096 niveaux de gris), et peut fonctionner en mode double acquisition (type PIV) à une fréquence de 5Hz. L'offset de la caméra peut être réglé; dans le cas des mesures réalisées par la suite, un réglage de cet offset à une valeur de 1600 a été nécessaire pour obtenir des images bien contrastées.



FIGURE 4.23 – Caméra JAI4200 utilisée lors des acquisitions par arc-en-ciel.

🚰 Camera Tool 📃 📃 🗙
File Macro
Camera : Status :
JAI 4200 Connected
Settings Advanced I/Os
Taps : 1 ▼ Bits : 12 ▼ Rate (MB/s) : 0
Trigger
PIV Polarity : • High C Low
Input : O CL HIROSE Number of frames :
0 🚊 © Synchrone C Asynchrone
OFF Viser 84 ps
Gain Offset FP5
Get Sync: true Set

FIGURE 4.24 – Logiciel de contrôle de la caméra.

4.3.5 Synchronisation

Afin de pouvoir enregistrer le signal de diffusion de la goutte émise, il est nécessaire de synchroniser le dispositif. La gouttelette émise par l'injecteur doit en effet être éclairée par l'impulsion laser au moment de l'ouverture de la caméra. Un boîtier de synchronisation numérique à 6 sorties de marque R&D Vision a été utilisé, permettant de contrôler les deux cavités du laser, l'ouverture de la caméra ainsi que l'injection de la goutte.



FIGURE 4.25 – Boîtier de synchronisation numérique utilisé.

Un déclenchement du boîtier de synchronisation permet alors :

- d'envoyer une goutte unique,
- de déclencher l'émission laser,
- d'enregistrer le signal diffusé par la goutte éclairée par le laser.

Le boîtier de synchronisation permet de répéter ces étapes à une fréquence choisie par l'utilisateur ; la fréquence d'acquisition de la caméra étant ici le facteur limitant, c'est une fréquence d'acquisition de 5Hz qui a été choisie. La figure 4.26 montre le réglage du boîtier de synchronisation : l'utilisateur peut contrôler la valeur de *Q-Switch* pour chaque cavité, le délai temporel entre les émissions laser des deux cavités, le déclenchement de l'injecteur ainsi que le moment d'ouverture de la caméra et sa durée.



FIGURE 4.26 – Fonctionnement du boîtier de synchronisation numérique.

Le cadrage du signal de diffusion à l'angle d'arc-en-ciel est réalisé avec l'injecteur fonctionnant en mode continu. Le filet de gouttes ainsi créé est alors éclairé avec le laser pulsé à la fréquence de 5Hz. Afin de ne pas saturer la caméra, la puissance du laser est d'abord réglée au minimum, puis augmentée jusqu'à la valeur nominale pour l'acquisition en modifiant le délai de *Q-Switch*. La caméra CCD JAI4200 réalise alors une acquisition à 5 images par seconde, qui permet de cadrer facilement le signal d'arc-en-ciel.

Une fois l'injecteur, le laser et la caméra synchronisés, les acquisitions se font au moyen du logiciel *HIRIS*, dont l'interface est présentée figure 4.27.



FIGURE 4.27 – Interface du logiciel d'acquisition HIRIS.

La partie spécifique à la synchronisation du dispositif PIV se trouve dans le chapitre 5.2.2, qui présente le fonctionnement particulier de la caméra en régime double acquisition.

4.3.6 Procédure de traitement des données

Il est nécessaire d'observer une certaine rigueur lors du traitement des images brutes obtenues par réfractométrie d'arc-en-ciel, ceci afin de garder la plus petite imprécision possible. Le processus de traitement des images brutes comprend plusieurs étapes, qui sont décrites dans ce chapitre.

4.3.6.1 Obtention du profil d'intensité en fonction du numéro de pixel de la caméra à partir de l'image brute

L'obtention d'un profil d'intensité à partir d'une image brute est un processus relativement simple qui consiste, pour chaque colonne de pixels de l'image, à faire la somme de l'intensité de chaque pixel de cette colonne. Le résultat obtenu à partir de l'image est alors une cartographie en deux dimensions de l'intensité moyenne de chaque colonne de pixels, en fonction du numéro de colonne. Lors d'acquisitions en réfractométrie d'arc-en-ciel, les images obtenues présentent toutefois une courbure angulaire nettement visible, courbure qui dépend de l'angle de collection, comme le montre la figure 4.28, qui présente une image brute typique.



FIGURE 4.28 – Acquisition typique d'arc-en-ciel sur goutte unique. L'effet de courbure est nettement visible.

Lors du tracé du profil d'intensité d'une telle image, il est donc nécessaire de limiter l'erreur commise à cause de cette courbure, en sélectionnant une zone de l'image à partir de laquelle le profil d'intensité sera calculé : la figure 4.29 montre les différences lors du tracé du profil d'intensité, si le profil est tracé sur toute l'image ou sur une zone de 100 pixels de haut. La zone choisie sera toujours celle présentant un maximum d'intensité à un minimum angulaire; les figures 4.30 et 4.31 montrent l'effet d'un mauvais choix pour la zone de tracé de profil, l'erreur commise pouvant aller jusqu'à 30 pixels sur cet exemple tiré de l'image de la figure 4.28. Une hauteur de sélection d'environ 100 pixels permet de s'affranchir de l'effet de courbure tout en conservant l'effet de filtrage à très haute fréquence (variations brutales d'un pixel à l'autre si le profil d'intensité est tracé sur une seule ligne de l'image, voir figure 4.32) grâce à la sommation d'intensité des pixels de la zone.



FIGURE 4.29 – Influence de la hauteur en pixels de la zone de tracé de profil d'intensité.



FIGURE 4.30 – Influence du choix de la position de la zone de tracé de profil d'intensité.



 ${\rm FIGURE}$ 4.31 – Influence du choix de la position de la zone de tracé de profil d'intensité : zoom sur le maximum d'intensité.



 $\label{eq:Figure 4.32-Influence} Figure 4.32-Influence de la hauteur en pixels de la zone de tracé de profil d'intensité : comparaison entre un profil sur une ligne et un profil sur une zone.$

Avec un dispositif expérimental parfait, c'est-à-dire avec une mise au point de l'objectif

réellement à l'infini, le fait que la goutte se déplace verticalement n'aurait pas d'influence sur l'image obtenue. Dans tous les cas présentés par la suite, un déplacement vertical de la goutte entraîne un déplacement vertical de la zone circulaire créée par l'objectif de la caméra. Ce léger déplacement est dû au fait que l'objectif de la caméra n'était pas parfait, malgré un réglage de la mise au point "à l'infini" manuel. Si ce problème n'a que très peu d'influence sur un dispositif de réfractométrie d'arc-en-ciel classique, il s'avère que ce léger décalage pourrait faire perdre énormément en précision, puisque la sélection automatique de la zone présentant le maximum d'intensité au minimum angulaire pourrait être faussée. Afin de résoudre ce problème, des simulations ont été effectuées avec le code de calcul présenté dans le chapitre 4.1.3.

Pour éliminer l'influence de la position verticale de la goutte dans le faisceau, le choix a donc été fait de déterminer une zone de tracé de profil spécifique à chaque position verticale de la goutte dans le faisceau laser. On recherche ainsi le maximum d'intensité au minimum angulaire, ce qui permet de se retrouver dans le cas d'un objectif réglé à l'infini. La figure 4.33 représente le maximum d'intensité au minimum angulaire, indiqué par la flèche rouge. La sélection de la zone de tracé de profil (en rouge) se fait après avoir identifié ce point.



FIGURE 4.33 – Sélection de la zone présentant un maximum d'intensité au minimum angulaire.

4.3.6.2 Obtention des données de calibration

Les profils d'intensité obtenus précédemment sont fonction du numéro de pixel de la caméra. De telles courbes sont inexploitables pour la mesure de l'indice de réfraction et du diamètre sans une étape de calibration angulaire. Plusieurs méthodes de calibration sont possibles; on pourra citer notamment la procédure consistant à utiliser un jet d'eau parfaitement cylindrique, de diamètre et d'indice connu, servant à transformer le numéro de pixel de la caméra en angle.

La méthode de calibration utilisée ici consiste à utiliser un miroir monté sur goniomètre (voir figure 4.34).



FIGURE 4.34 – Schéma descriptif du miroir monté sur goniomètre utilisé pour la calibration.

Le miroir doit être placé sous l'injecteur, l'axe de rotation du miroir devant correspondre à l'axe d'écoulement des gouttes. Un laser He-Ne atténué par plusieurs filtres neutres, dont le faisceau se superpose parfaitement au faisceau du laser Nd-YAG, permettra d'effectuer la calibration sans endommager la caméra, la superposition des faisceaux pouvant être vérifiée à l'aide de diaphragmes. Le faisceau laser rencontre alors le miroir placé sur goniomètre (voir figure 4.34) et est réfléchi par celui-ci. En faisant tourner le miroir, il est alors possible de renvoyer le faisceau atténué vers la caméra. La caméra enregistre alors le spot laser, et une recherche du maximum d'intensité de ce spot permet d'obtenir le pixel de la caméra correspondant à l'angle lu au goniomètre. Les angles θ_1 et θ_2 , correspondant aux bords de l'objectif, peuvent alors être définis ; des acquisitions intermédiaires sont ensuite réalisées afin d'obtenir la meilleure courbe de calibration possible. La transformation de l'angle lu sur le goniomètre en angle absolu se fait grâce à la relation :

$$angle = 180 - (zero_{goniometre} - lecture) \times 2 \tag{4.2}$$

zero_{aoniometre} correspondant à l'angle lu sur le goniomètre pour lequel le faisceau est

réfléchi avec un angle de 180° et *lecture* à l'angle lu sur le goniomètre et associé à un pixel. Il est ainsi possible d'associer à chaque pixel de la caméra un angle de diffusion précis.

La mesure des angles par cette méthode étant fortement dépendante de la position du miroir, le goniomètre a été monté sur deux déplacements micrométriques afin de faire correspondre le plus parfaitement possible l'axe de rotation du miroir avec la trajectoire des gouttelettes émises par l'injecteur, celles-ci étant émises à une vitesse de $2m.s^{-1}$ vers le bas.

La figure 4.35 représente la courbe de calibration obtenue. L'ordonnée représente l'angle de diffusion, l'abscisse les pixels de la caméra. Pour cette configuration le signal sera enregistré sur 153°45′, entre 138°02′ et 153°47′.



FIGURE 4.35 – Courbe de calibration permettant de transformer chaque pixel de la caméra en angle.

L'effet de S qui peut être obtenu lors du tracé de la courbe de calibration provient du fait que l'objectif de la caméra n'était pas parfaitement placé perpendiculairement au faisceau diffusé. Le positionnement correct de la caméra étant difficile, l'utilisation de la courbe de calibration sous la forme d'un polynôme d'ordre 5 permet de s'assurer que l'effet de distorsion du signal enregistré, dû à la non-perpendicularité du montage, est corrigé.

Chaque pixel de la caméra ayant ainsi un angle qui lui est associé, il est possible de transformer les profils d'intensité I = f(pixel) en profils d'intensité I = f(angle). Ces profils sont alors exploitables dans les codes d'inversion, et il est possible d'obtenir l'indice de réfraction et le diamètre associé à chaque diagramme de diffusion. Un code de calcul a été développé, qui permet un traitement automatisé des images brutes, leur transformation en profil d'intensité et leur calibration.

4.3.6.3 Traitement des profils calibrés

Les profils d'intensité étant dorénavant exprimés en fonction de l'angle de diffusion, il est possible de traiter ces profils à l'aide du code d'inversion basé sur la théorie de Nussenzveig afin d'obtenir des résultats exploitables. Pour prouver la faisabilité de mesures sur une goutte unique, le code de calcul d'origine a été modifié : il inclut dorénavant la prise en compte de la structure de ripple, et comporte également un module de traitement de fichiers multiples.

Ces données peuvent alors être traitées de façon statistique, et les données suivantes seront enregistrées :

- Indice de réfraction moyen
- Indice de réfraction minimum
- Indice de réfraction maximum
- Ecart type sur la mesure de l'indice de réfraction
- Diamètre moyen obtenu par distribution de taille (voir à ce sujet le chapitre 4.5.1)
- Diamètre minimum
- Diamètre maximum
- Ecart type sur la mesure du diamètre.

Les résultats obtenus par inversion peuvent parfois varier lorsque les paramètres d'inversion sont modifiés. Afin de s'affranchir de ce problème, toutes les inversions ont été réalisées avec les mêmes paramètres, qui figurent dans le tableau 4.2 en fonction du liquide utilisé lors des expériences (eau ou isopropanol).

	Eau	Isopropanol
Angle minimum (°)	134.2	140.2
Angle maximum (°)	143.4	151.1
Nombre de points de comparaison	80	150
Nombre de diamètres possibles	50	50
Plus petit diamètre (μm)	80	70
Plus grand diamètre (μm)	150	100
Longueur d'onde du las er (nm)	0.532	0.532

Tableau 4.2 – Paramètres d'inversion utilisés

4.4 Rejet des particules non sphériques : cas des sphéroïdes

Lors du traitement par inversion des signaux d'arc-en-ciel, la non sphéricité des particules peut poser problème : l'arc-en-ciel est très sensible à la sphéricité. Cette

particularité a été utilisée afin de prouver la sphéricité des gouttes.

Il est possible d'utiliser plusieurs techniques pour calculer l'angle d'arc-en-ciel de sphéroïdes. On pourra notamment citer l'approche asymptotique (par la loi de Möbius [51], le taux de sphéricité donne la plage dans laquelle se situe l'arc-en-ciel, et l'orientation du sphéroïde donne sa direction), ou des approches plus complètes comme les T-Matrices ou la séparation de variables à partir de la théorie de Lorenz-Mie.

C'est le code de calcul de l'intensité lumineuse diffusée par des sphéroïdes développé par Y. P. Han [64, 65] qui a été appliqué. Ce code est basé sur une méthode rigoureuse de séparation de variables et permet le calcul des profils d'intensité de sphéroïdes à l'aide de la théorie de Lorenz-Mie. Une étude a donc été réalisée afin de mettre en évidence l'effet de la non sphéricité des gouttelettes sur le profil d'intensité et sur l'influence de cette non sphéricité sur les valeurs données par les codes d'inversion [52].

Ce code de calcul par séparation de variables a été couplé au code d'inversion basé sur la théorie de Nussenzveig, et prévu pour l'étude de particules parfaitement sphériques. L'objectif est de calculer des profils d'intensité rigoureux de sphéroïdes, puis de les traiter avec le code d'inversion afin d'en extraire les indices de réfraction équivalents et diamètres à volume équivalent de la particule sphérique équivalente au sphéroïde étudié.



FIGURE 4.36 – Comparaison entre le profil d'intensité d'un sphéroïde d'ellipticité e = 0,993 et celui de sa sphère équivalente.



FIGURE 4.37 – Comparaison entre le profil d'intensité d'un sphéroïde d'ellipticité e = 0,98 et celui de sa sphère équivalente.

Les figures 4.36 et 4.37 présentent les diagrammes de diffusion de sphéroïdes correspondant à une goutte d'indice de réfraction n = 1,40 et d'ellipticité 0,993 et 0,98 (particules oblates). le volume de la goutte est considéré constant, et correspond au volume d'une sphère de diamètre $100\mu m$.

Comme prédit par Möbius [51], la position du premier arc-en-ciel varie avec l'ellipticité. Quand la sphéricité est faible, et donc que le sphéroïde ressemble beaucoup à une sphère, la forme de l'arc-en-ciel est identique au profil créé par une goutte parfaitement sphérique (voir figure 4.36). Dès que l'ellipticité augmente, ne serait-ce qu'à une valeur de 2%, le décalage devient très important, il s'avère impossible de réaliser une inversion correcte et le profil d'intensité n'est même plus reconnaissable comme étant un profil d'arc-en-ciel (voir figure 4.37).

Un calcul de l'erreur commise par le code d'inversion sur la valeur de l'indice de réfraction a été effectué, et l'erreur commise sur indice de réfraction équivalent en fonction de l'ellipticité a été tracée figure 4.38.



FIGURE 4.38 – Erreur commise sur l'indice de réfraction en fonction de l'ellipticité.

L'erreur commise sur l'indice de réfraction équivalent par le code d'inversion est similaire, que la particule soit oblate (e < 1) ou problate (e > 1). L'erreur est voisine de zéro lorsque le code inverse le diagramme de diffusion d'une sphère parfaite.

A une ellipticité de 1% correspond une variation de l'indice de réfraction de 1.10^{-2} , alors que les mesures par arc-en-ciel ont typiquement une précision de l'ordre de 1.10^{-4} . Une particule présentant une telle ellipticité sera donc immédiatement identifiée grâce au code d'inversion, et pourra être rejetée lors du traitement statistique. Etant donné la précision obtenue lors des mesures expérimentales réalisées, les gouttes créées à l'aide de l'injecteur utilisé peuvent alors être considérées comme parfaitement sphériques.

Afin de s'assurer de la sphéricité des gouttes lors de l'expérience, deux points de comparaison ont été utilisés.

Le premier consiste à calculer la différence d'aire entre la courbe expérimentale et la courbe calculée par la théorie de Nussenzveig. Au delà d'une valeur d'aire déterminée arbitrairement, les images ne présentant pas une sphéricité suffisante seront rejetées lors du traitement. La figure 4.39 présente une courbe expérimentale rejetée à l'aide de ce critère, ainsi qu'une acquisition acceptée selon ce critère.



FIGURE 4.39 – Sélection des particules sphériques par la différence d'aires. A gauche : acquisition rejetée ; à droite, acquisition traitée.

Un second critère consiste à sélectionner les particules sphériques à partir des distributions de taille calculées lors de l'inversion par la théorie de Nussenzveig. Si la particule est sphérique, elle présente un pic principal, et éventuellement quelques pics secondaires de faible intensité, dûs au fait que le nombre de classes de tailles est un nombre fini, et donc que le maximum principal n'est pas parfaitement exact. Dans le cas d'une goutte présentant une ellipticité, même faible, plusieurs pics de forte intensité seront observés. En sélectionnant uniquement les acquisitions présentant un seul maximum, les gouttes non sphériques peuvent être exclues de la suite du traitement. La figure 4.40 présente la comparaison d'une distribution de taille rejetée et d'une distribution de taille acceptée pour la suite du traitement.



FIGURE 4.40 – Sélection des particules sphériques par la distribution de taille. A gauche : acquisition rejetée ; à droite, acquisition traitée.

Une fois ce traitement effectué, seules les particules sphériques seront traitées, les particules non sphériques ayant été rejetées par ce traitement. Seulement 2% des diagrammes de diffusion ont été rejetés au cours de toutes les séries d'acquisition présentées par la suite.

4.5 Réfractométrie d'arc-en-ciel en régime simple impulsion sur gouttes uniques : mesures statistiques de n et d

Comme vu dans le chapitre 4.3.6.3, un processus standardisé a été mis en place afin de pouvoir réaliser une étude statistique sur les paramètres mesurés, à savoir l'indice de réfraction n et le diamètre d. Toutefois, avant de procéder à une étude statistique, une vérification de la stabilité des résultats expérimentaux est nécessaire, ainsi que qu'un étude de la fiabilité du processus d'inversion, qui consiste, à partir d'un diagramme de diffusion, à déterminer l'indice de réfraction ainsi que la distribution de taille associée au diagramme de diffusion de la particule étudiée. Le chapitre 4.5.1.1 présente une étude détaillée de la fiabilité du processus d'inversion par distribution de taille.

4.5.1 Processus d'inversion

Afin d'obtenir les paramètres souhaités (indice de réfraction et diamètre) à partir des profils d'intensité expérimentaux, un processus d'inversion est réalisé, au moyen d'un code de calcul développé au laboratoire lors de la thèse de S. Saengkaew [39] et modifié afin de prendre en compte la structure de ripple lors de l'inversion.

Ce code d'inversion, basé sur la théorie de Nussenzveig [60, 61], compare le profil d'intensité du profil d'intensité expérimental avec des profils d'intensité théoriques à l'aide de la méthode des moindres carrés non négatifs ou NNLS (Non Negative Least Square). Lorsque l'erreur commise est minimale, le code de calcul donne alors l'indice de réfraction de la goutte étudiée ainsi qu'une distribution de taille pour cette particule, cette distribution représentant la probabilité pour la particule étudiée d'avoir le diamètre d_i plutôt que d_j . L'interface du code de calcul est présentée figure 4.41.



FIGURE 4.41 – Interface du code d'inversion.

Afin de faciliter la lecture, les explications suivantes seront basées sur quatre acquisitions prises au hasard dans une série de 500; toutefois, pour les calculs statistiques, l'intégralité des 500 images de chaque série d'acquisition ont été traités selon le protocole décrit dans ce chapitre. Les conditions expérimentales étaient, pour ces acquisitions : $T_{amb} = 23, 2^{\circ}C, T_{inj} = 26, 0^{\circ}C$, fréquence d'acquisition de 5Hz, le liquide utilisé étant de l'isopropanol.

Les images présentées figure 4.42 sont quatre acquisitions brutes réalisées à l'angle d'arc-en-ciel dans les conditions précédemment décrites.



FIGURE 4.42 – Acquisition de la lumière diffusée à l'angle d'arc-en-ciel par 4 gouttes individuelles différentes.

Les figures 4.43 à 4.46 représentent la comparaison des profils d'intensité expérimentaux et de la meilleure correspondance par la théorie de Nussenzveig pour les quatre gouttes uniques différentes, le liquide utilisé étant de l'isopropanol. Comme ces résultats le montrent, les résultats expérimentaux sont excellents, et très similaires à ceux donnés par la théorie de Nussenzveig.



FIGURE 4.43 – Tracé du profil d'intensité d'une goutte unique (a) prise au hasard dans une série de 500 acquisitions, et comparaison avec le profil d'intensité recalculé par la théorie de Nussenzveig.



FIGURE 4.44 – Tracé du profil d'intensité d'une goutte unique (b) prise au hasard dans une série de 500 acquisitions, et comparaison avec le profil d'intensité recalculé par la théorie de Nussenzveig.



FIGURE 4.45 – Tracé du profil d'intensité d'une goutte unique (c) prise au hasard dans une série de 500 acquisitions, et comparaison avec le profil d'intensité recalculé par la théorie de Nussenzveig.



FIGURE 4.46 – Tracé du profil d'intensité d'une goutte unique (d) prise au hasard dans une série de 500 acquisitions, et comparaison avec le profil d'intensité recalculé par la théorie de Nussenzveig.

Le tableau 4.3 donne les indices de réfraction associés par le code d'inversion à chacune des gouttes individuelles présentées.

Goutte	Indice de réfraction
a	1.375169
b	1.375120
с	1.374923
d	1.375166

Tableau 4.3 – Indices de réfraction obtenus par inversion pour les quatre gouttes individuelles de la figure 4.42.

Les figures 4.47 à 4.50 représentent les distributions de taille associées à chaque goutte individuelle par le code d'inversion, à partir du profil d'intensité expérimental présenté

ci-dessus.



FIGURE 4.47 – Distribution de taille associée à la goutte (a) présentée figure 4.43.



FIGURE 4.48 – Distribution de taille associée à la goutte (b) présentée figure 4.44.



FIGURE 4.49 – Distribution de taille associée à la goutte (c) présentée figure 4.45.



FIGURE 4.50 – Distribution de taille associée à la goutte (d) présentée figure 4.46.

Les distributions de taille obtenues à partir des profils expérimentaux sont la plupart du temps quasi mono dispersées, ce qui indique que le code d'inversion identifie ces particules comme ayant un diamètre fixé. Une étude a été effectuée afin de vérifier l'influence de la largeur de la distribution de taille, et donc la viabilité de l'approche proposée; elle est présentée dans le chapitre 4.5.1.1.

4.5.1.1 Etude de l'influence distribution de taille / diamètre fixé

Comme vu précédemment, le code d'inversion utilisé est basé sur la théorie de Nussenzveig. Par minimisation entre le diagramme de diffusion expérimental et des itérations successives de diagrammes de diffusion calculés à partir de la théorie de Nussenzveig à l'angle d'arc-en-ciel, le code d'inversion extrait une valeur de l'indice de réfraction ainsi que la distribution de taille correspondant le mieux au diagramme de diffusion expérimental. Cette distribution de taille correspond à la probabilité qu'a la goutte d'avoir le diamètre d_i plutôt que d_j , mais ne donne pas une valeur exacte du diamètre de la goutte. Ceci étant inhérent au processus d'inversion, une étude a été réalisée afin de vérifier la correspondance de ces distributions de taille avec le diamètre exact d'une particule de même indice de réfraction.

Afin de vérifier la validité de l'approche par distribution de taille, les profils d'intensité expérimentaux ont tout d'abord été inversés. A partir de la distribution de taille ainsi obtenue, l'ordre de grandeur du diamètre de la goutte est connu, et servira de base à un code itératif qui va calculer, par pas de $0,01\mu m$, la valeur de diamètre qui minimise l'écart entre le profil d'intensité expérimental et le profil d'intensité calculé.

La figure 4.51 montre le profil expérimental ainsi que le profil théorique obtenu par inversion, ici entre 141° et 149°. Le code d'inversion a été utilisé afin de trouver le profil d'une goutte de diamètre compris entre $70\mu m$ et $100\mu m$, le diamètre pouvant prendre 100 valeurs différentes dans cette plage. L'indice de réfraction donné par le code d'inversion est ici de 1, 37606, et la distribution de taille associée est donnée figure 4.52.



FIGURE 4.51 – Comparaison du profil d'intensité expérimental et du profil d'intensité recalculé par la théorie de Nussenzveig.



FIGURE 4.52 – Distribution de taille calculée par la théorie de Nussenzveig pour le profil de la figure 4.51.

La flèche indique le diamètre ayant, d'après le code d'inversion, la plus grande probabilité d'être le bon, soit ici $d = 80,91\mu m$. Cet indice de réfraction peut maintenant être introduit dans le code itératif, qui va calculer la différence entre le profil d'intensité expérimental et le profil recalculé à l'aide de la théorie de Nussenzveig de 75,91 μm à 85,91 μm , par pas de $0,01\mu m$. Le résultat obtenu est présenté figure 4.53 (l'aspect oscillatoire est dû au fait que le code de calcul cherche en permanence la meilleure taille de goutte possible).



FIGURE 4.53 – Différence entre le profil d'intensité expérimental et le profil d'intensité recalculé par la théorie de Nussenzveig.

Le minimum de la courbe présentée figure 4.53 n'étant pas clairement visible, la figure 4.54 représente un zoom de sa partie basse. Le minimum est cette fois nettement visible, et une valeur exacte de diamètre peut alors être extraite, comme indiqué par la flèche.



FIGURE 4.54 – Différence entre le profil d'intensité expérimental et le profil d'intensité recalculé par la théorie de Nussenzveig : zoom sur le minimum.

La fiabilité de la méthode d'inversion peut désormais être établie ; une étude statistique sur 20 profils d'intensité pris au hasard sur une série de 500 montre les résultats donnés

Profil n°	Diamètre par distribution de taille (μm)	Diamètre calculé (μm)	Ecart absolu (μm)
1	84.08	83.88	0.20
2	82.85	84.59	1.74
3	83.46	85.02	1.56
4	85.91	84.17	1.74
5	84.69	85.07	0.38
6	85.30	84.33	0.97
7	82.85	84.21	1.36
8	82.85	84.60	1.75
9	82.85	84.58	1.73
10	85.91	84.18	1.73
11	81.63	83.34	1.71
12	83.49	82.70	0.79
13	84.08	84.27	0.19
14	87.14	85.57	1.57
15	84.08	85.06	0.98
16	84.69	84.48	0.21
17	82.24	82.64	0.40
18	85.91	84.14	1.77
19	84.69	83.72	0.97
20	82.85	84.58	1.73

Tableau 4.4 – Comparaison des diamètres de gouttes obtenus par distribution de taille et calcul exact.

Le tableau 4.5 donne la valeur moyenne, minimum, maximum ainsi que l'écart type calculé à partir des données présentées dans le tableau 4.4.

	Diamètre par distribution de taille (μm)	Diamètre calculé (μm)	Ecart absolu (μm)
Moyenne	84.08	84.26	1.17
Minimum	81.63	82.64	0.19
Maximum	87.14	85.57	1.77
Ecart type	1.45	0.74	0.62

Tableau 4.5 – Données statistiques pour la comparaison entre approche par distribution de taille et par indice fixé.

On voit que les différences entre le calcul de taille par distribution et par diamètre fixé sont très faibles : moins de $0, 2\mu m$ sur la valeur moyenne; l'écart type de l'écart entre valeur de diamètre calculé par distribution et diamètre fixé est de plus égal à $0, 62\mu m$. Le code d'inversion utilisé permet donc d'obtenir la taille d'une goutte unique (en se basant sur le maximum de la distribution de taille) à, au pire, $1,77\mu m$ près. Si cette précision ne sera pas suffisante afin de déterminer un taux d'évaporation à partir d'une variation de diamètre, elle est en revanche satisfaisante pour connaître le diamètre absolu de la particule étudiée. Ces résultats valident donc l'approche par distribution de taille, qui sera par la suite utilisée afin de déterminer le diamètre absolu de la goutte en cours d'étude.

4.5.2 Reproductibilité des mesures

L'injecteur utilisé (Microdrop MD-E-201-H) permet, en mode "goutte à la demande", de générer des gouttes uniques dont les caractéristiques, à une distance fixée de la sortie de l'injecteur, ne varient pas. En pratique, et étant donné la précision de la technique de mesure développée ici, il peut arriver que de très légères variations apparaissent. Toutefois, dans l'immense majorité des cas, les diagrammes de diffusion sont identiques d'une goutte à l'autre; dans environ 2% des cas, le diagramme de diffusion présente une différence notable avec le diagramme de diffusion attendu pour la particule en cours d'étude, ce qui, lors du processus d'inversion, induit naturellement une erreur lors de l'estimation de l'indice de réfraction et de la distribution de taille.

Il est relativement facile d'identifier de tels diagrammes de diffusion; généralement, ces diagrammes sont même identifiables à l'oeil nu, et un calcul de la surface entre le diagramme de diffusion et le diagramme de diffusion correspondant calculé par la théorie de Nussenzveig permet alors d'automatiser le processus de rejet des diagrammes de diffusion ne correspondant pas aux critères souhaités, notamment de sphéricité (voir à ce sujet le chapitre 4.4, qui présente l'effet de la non-sphéricité de la goutte sur son diagramme de diffusion).

Dans les 98% de cas restants, les profils d'intensité présentent une très grande stabilité d'une goutte à l'autre; la figure 4.55 représente les profils d'intensité calibrés obtenus à partir de cinq acquisitions consécutives (les acquisitions étant réalisées à 5Hz, ces cinq profils sont associés à cinq gouttes uniques émises en une seconde). Seules de faibles variations d'intensité des pics de ripple sont visibles, qui peuvent être dues à une légère variation de la puissance du laser; chaque maximum de ripple reste bien marqué et à la même position angulaire d'un tir laser à l'autre, ce qui montre que chaque goutte unique a le même diamètre que la précédente.



 ${\rm FIGURE}$ 4.55 – Tracé de 5 profils d'intensité de gouttes uniques successives dans une série de 500 acquisitions.

Afin de vérifier la stabilité des acquisitions sur une plage temporelle plus importante, les profils d'intensité ont été comparés à nouveau, mais cette fois-ci pour cinq acquisitions prises au hasard dans une série de 500; la figure 4.56 présente cette comparaison.



FIGURE 4.56 – Tracé de 5 profils d'intensité de gouttes uniques pris au hasard dans une série de 500 acquisitions.

Il est cette fois possible de noter un très léger décalage de la structure de ripple d'un tir laser à l'autre. Ces cinq profils d'intensité ayant été choisis aléatoirement sur une série de 500, soit une durée d'acquisition de 100s, ce léger décalage peut être considéré comme une légère variation des conditions expérimentales. Cette variation aura un effet négligeable sur le calcul de la valeur du diamètre de la goutte lors du processus d'inversion.

Comme le montrent les figures 4.55 et 4.56, la stabilité des profils d'intensité d'une goutte à l'autre est excellente; les mesures sont donc parfaitement reproductibles tant que les conditions expérimentales restent identiques.

4.5.3 Mesures statistiques de l'indice de réfraction et du diamètre

Ce chapitre présente une vue d'ensemble des mesures réalisées sur des gouttes uniques, en configuration simple tir laser. Les mesures réalisées à partir des diagrammes de diffusion sont l'indice de réfraction, ainsi que la distribution de taille de la particule correspondante. Il a été montré dans le chapitre 4.5.1.1 qu'il était possible d'associer le diamètre correspondant au maximum de la distribution de taille à un diamètre précis; c'est ce diamètre qui sera donné ici.

Les acquisitions ont été réalisées avec deux liquides différents (à savoir de l'eau et de l'isopropanol), à trois températures différentes dans chaque cas. Les résultats seront principalement présentés sous forme de tableaux listant :

- les indices moyen, minimum et maximum mesurés, ainsi que l'écart type l'indice de réfraction
- les diamètres moyen, minimum et maximum mesurés, ainsi que l'écart type sur le diamètre.

4.5.3.1 Cas de l'eau

Une première étude a porté sur la mesure de l'indice de réfraction et du diamètre de gouttes d'eau uniques générées par l'injecteur Microdrop. Des séries de 250 acquisitions ont été réalisées, les images transformées en profils, calibrés puis inversés. Un même régime de fonctionnement stable n'ayant pas pu être trouvé pour ces températures, il a été nécessaire de modifier le couple tension/fréquence de l'injecteur. A cause de cela, les gouttes n'ont pas la même taille à chacune des trois températures, mais les mesures de diamètre sont tout de même présentées pour un aperçu global de la fiabilité des mesures.

Le tableau 4.6 présente les résultats obtenus pour la mesure de l'indice de réfraction de gouttes d'eau uniques à $25^{\circ}C$, le tableau 4.7 présente quand à lui les mesures de diamètre pour ces gouttes d'eau à $25^{\circ}C$.

	Indice de réfraction
Indice moyen	1.332006
Indice minimum	1.329586
Indice maximum	1.333257
Ecart type	5.59E-04

Tableau 4.6 – Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $25^\circ C.$

	Diamètre (μm)
Diamètre moyen	114.27
Diamètre minimum	107.14
Diamètre maximum	117.14
Ecart type	2.01

Tableau 4.7 – Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $25^{\circ}C$.

Les tableaux 4.8 et 4.9 présentent les résultats obtenus pour la mesure de l'indice de réfraction et du diamètre de gouttes d'eau uniques à $32^{\circ}C$.

	Indice de réfraction
Indice moyen	1.330990
Indice minimum	1.329145
Indice maximum	1.331998
Ecart type	6.59E-04

Tableau 4.8 – Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $32^{\circ}C$.

	Diamètre (μm)
Diamètre moyen	127.68
Diamètre minimum	124.29
Diamètre maximum	131.43
Ecart type	1.51

Tableau 4.9 – Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $32^{\circ}C$.

Les tableaux 4.10 et 4.11 présentent les résultats obtenus pour la mesure de l'indice de réfraction et du diamètre de gouttes d'eau uniques à $40^{\circ}C$.

	Indice de réfraction
Indice moyen	1.330439
Indice minimum	1.329735
Indice maximum	1.330998
Ecart type	3.12E-04

Tableau 4.10 – Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $40^{\circ}C$.

	Diamètre (μm)
Diamètre moyen	96.98
Diamètre minimum	94.29
Diamètre maximum	102.86
Ecart type	2.37

Tableau 4.11 – Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $40^{\circ}C$.

Ces résultats sont présentés figure 4.57, où est tracé l'indice de réfraction en fonction de la température pour les mesures effectuées (indice moyen) et pour les valeurs de la littérature [66].



FIGURE 4.57 – Indice de réfraction mesuré en fonction de la température pour des gouttes d'eau uniques, et valeur théorique de l'indice.

4.5.3.2 Cas de l'isopropanol

La seconde étude a eu pour objet l'étude de gouttes individuelles d'isopropanol : cet alcool présente une faible viscosité, ce qui facilite le fonctionnement de l'atomiseur Microdrop. De plus, son indice de réfraction est de n = 1,3772 à 20°C, indice proche de celui des hydrocarbures utilisés dans les moteurs à combustion interne, et permet de plus de s'affranchir des effets de l'arc-en-ciel d'ordre p = 6 qui perturbent les mesures par arc-en-ciel lorsque les liquides utilisés ont un indice de réfraction proche de 1,36 [39].

Des séries de 500 acquisitions ont été réalisées, permettant la mesure statistique de l'indice de réfraction et du diamètre. Contrairement au cas de l'eau, un même régime de fonctionnement stable aux trois températures a pu être trouvé pour ce liquide; les gouttes ont donc sensiblement la même taille lors des mesures.

Le tableau 4.12 présente les résultats obtenus pour la mesure de l'indice de réfraction de gouttes d'eau uniques à $26^{\circ}C$, le tableau 4.13 présente quand à lui les mesures de diamètre pour ces gouttes d'eau à $26^{\circ}C$.

	Indice de réfraction
Indice moyen	1.376117
Indice minimum	1.374018
Indice maximum	1.377992
Ecart type	1.08E-03

Tableau 4.12 – Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $26^{\circ}C$.

	Diamètre (μm)
Diamètre moyen	83.64
Diamètre minimum	75.51
Diamètre maximum	95.71
Ecart type	3.82

Tableau 4.13 – Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $26^{\circ}C$.

Les tableaux 4.14 et 4.15 présentent les résultats obtenus pour la mesure de l'indice de réfraction et du diamètre de gouttes d'eau uniques à $34^{\circ}C$.

	Indice de réfraction
Indice moyen	1.374747
Indice minimum	1.371993
Indice maximum	1.376697
Ecart type	1.02E-03

Tableau 4.14 – Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $34^{\circ}C$.

	Diamètre (μm)
Diamètre moyen	84.40
Diamètre minimum	79.80
Diamètre maximum	96.94
Ecart type	1.92

Tableau 4.15 – Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $34^{\circ}C$.

Les tableaux 4.16 et 4.17 présentent les résultats obtenus pour la mesure de l'indice de réfraction et du diamètre de gouttes d'eau uniques à $41^{\circ}C$.

	Indice de réfraction
Indice moyen	1.374196
Indice minimum	1.371658
Indice maximum	1.376118
Ecart type	1.06E-03

Tableau 4.16 – Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $41^{\circ}C$.
	Diamètre (μm)
Diamètre moyen	84.77
Diamètre minimum	79.80
Diamètre maximum	88.37
Ecart type	1.72

Tableau 4.17 – Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $41^{\circ}C$.

Les résultats présentés sous forme de tableaux pour l'isopropanol sont ici donnés sous forme graphique (voir figure 4.58). L'indice de réfraction est tracé en fonction de la température à la fois pour les mesures effectuées (indice de réfraction moyen) et pour les valeurs de la littérature [67].



FIGURE 4.58 – Indice de réfraction mesuré en fonction de la température pour des gouttes d'isopropanol uniques, et valeur théorique de l'indice.

Un écart par rapport aux données de la littérature est cette fois nettement visible. L'indice de réfraction mesuré est sur-estimé, et ce phénomène semble s'accroître avec la température d'injection. Afin de vérifier la stabilité de ces données expérimentales, plusieurs expériences ont été réalisées, dans les mêmes conditions, à plusieurs jours d'intervalle. Ces résultats sont présentés figure 4.59.



 ${\rm FIGURE}$ 4.59 – Indice de réfraction moyen mesuré en fonction de la température pour des gouttes d'isopropanol uniques.

La figure 4.59 montre que les mesures effectuées sont stables; le phénomène observé de sur-estimation de l'indice n'est donc pas une erreur de mesure lors de l'expérience.

Une étude plus poussée de cette surestimation de l'indice sera nécessaire; la présence d'un gradient d'indice venant perturber la mesure de la température est sans doute la meilleure hypothèse [55]. L'influence de ce gradient sur la mesure du taux d'évaporation est présentée dans le chapitre 5.5.4.

Dans la suite de cette thèse, les températures annoncées seront les températures mesurées à l'aide d'un thermocouple à la sortie de l'injecteur, et non pas les températures mesurées par arc-en-ciel. La mesure de diamètre reste néanmoins de bonne qualité, et la faisabilité de mesures sur des gouttelettes uniques a été démontrée.

Chapitre 5

Réfractométrie d'arc-en-ciel en régime double impulsion : mesure du taux d'évaporation

Sommaire

5.1 Priz	ncipe
5.2 Dis	positif expérimental
5.2.1	Mise en place
5.2.2	Chaîne laser double impulsion et caméra double acquisition
5.2.3	Délais de commande et incertitude temporelle
5.3 Exp	ploitation des résultats expérimentaux et simulations numériques 113
5.4 Infl	uence du premier tir laser sur la seconde acquisition
5.5 Me	sure du taux d'évaporation d'une goutte unique
5.5.1	Mesure du déphasage entre entre les signaux arc-en-ciel d'une acquisition en
	mode double tir
5.5.2	Calcul de la variation de diamètre de la goutte à partir du déphasage \ldots 121
	5.5.2.1 Cas de l'isopropanol \ldots 121
	5.5.2.2 Cas de l'eau
5.5.3	Calcul du taux d'évaporation sur une goutte unique
5.5.4	Influence de la présence d'un gradient de température sur la mesure du taux d'évaporation

Le chapitre 4 a permis de démontrer la faisabilité de la mesure de la température et du diamètre en régime pulsé sur une goutte unique. La qualité des mesures prouve que les gouttes sont stables et sphériques, et permet d'envisager d'étendre cette technique de mesure à la mesure de la variation de diamètre à l'aide de l'effet vernier.

L'objectif est maintenant de réaliser une mesure du taux d'évaporation sur une gouttelette unique en écoulement : les mesures doivent être statistiquement stables. L'objectif final est de pouvoir réaliser une telle mesure dans un spray réel en écoulement ; cependant une étape permettant de valider l'approche proposée est nécessaire : un générateur de gouttelettes permettant de créer une seule goutte à la fois et à la demande sera donc utilisé. Ainsi une seule goutte diffusera la lumière du faisceau laser lors de l'acquisition. Avec un système de détection de la goutte, cette technique pourra ensuite être employée dans un spray réel.

5.1 Principe

La réfractométrie d'arc-en-ciel permet la mesure de l'indice de réfraction (et donc de la température) ainsi que la mesure de la taille des gouttes, avec une précision sur la mesure de la taille de l'ordre du micromètre si la structure de ripple n'est pas prise en compte; l'utilisation du ripple permettant d'augmenter la précision.

Afin de mesurer un taux d'évaporation, une solution consiste à connaître le diamètre absolu avec la plus grande précision possible, à deux instants t_1 et t_2 . La différence de diamètre obtenue donnera alors la variation de masse par unité de temps, et donc le taux d'évaporation.

Les mesures réalisées avec la réfractométrie d'arc-en-ciel standard ne permettent pas, à ce jour, la mesure du diamètre absolu d'une goutte unique avec suffisamment de précision pour la mesure du taux d'évaporation instantané. La précision de la mesure du diamètre est inférieure à $2\mu m$ pour une goutte de $80\mu m$, ce qui, à moins de réaliser le suivi de la goutte sur des durées très longues (de l'ordre de plusieurs secondes), ne permet pas de calculer un taux d'évaporation. Pour des mesures en écoulement dont la vitesse est de plusieurs mètres par seconde, le suivi de la goutte sur une telle durée est impossible.

Toutefois, les acquisitions réalisées en arc-en-ciel standard, grâce à la présence de la structure de ripple, sont très sensibles à la moindre variation de diamètre de la goutte (une variation de diamètre de l'ordre de $0,02\mu m$ pourra par exemple être exploitée).

Pour pouvoir réaliser une mesure de variation de diamètre sur une goutte unique en écoulement, il faut pouvoir envoyer deux impulsions laser sur la même goutte avec un délai contrôlé entre les deux impulsions, et réaliser l'acquisition de la lumière diffusée à l'angle d'arc-en-ciel par cette goutte unique lors de chacun des deux tirs. La mesure du déphasage entre les deux signaux permet de remonter à la variation de diamètre de la goutte, et cette variation de diamètre peut être convertie en taux d'évaporation.

La solution choisie consiste en l'utilisation d'une chaîne PIV. Un tel dispositif permet l'envoi de deux impulsions laser successives ainsi que le déclenchement de la caméra associée, ce qui permettra de réaliser les couples d'acquisition souhaités. Avant de pouvoir utiliser une telle chaîne d'acquisition, de nombreuses étapes de synchronisation du dispositif sont cependant à réaliser. Celles ci sont présentées dans le chapitre 5.2.

5.2 Dispositif expérimental

Dans l'approche choisie, il est nécessaire d'envoyer deux tirs laser, séparés par un délai qui doit pouvoir être modifié, sur la même goutte en écoulement. De plus, une acquisition doit être effectuée à chacun de ces tirs laser, parfaitement synchronisée avec ceux-ci. Un dispositif de type PIV permet de remplir les conditions demandées.

5.2.1 Mise en place

L'acquisition de signaux d'arc-en-ciel créés par une goutte unique en régime laser pulsé constitue le point clé de cette thèse. Pour obtenir des images qui puissent être transformées en profils d'intensité et exploitées, une attention toute particulière a été portée sur la mise en place du dispositif expérimental.

5.2.2 Chaîne laser double impulsion et caméra double acquisition

La chaîne PIV utilisée est constituée d'un couple de cavités laser de marque Big Sky Laser (Quantel), modèle EC-CFR-2K, dont les faisceaux sont rendus parfaitement superposés et de même sens par un boîtier de couplage. Ainsi, chaque cavité peut générer une impulsion laser identiques, les deux impulsions suivront le même chemin, et un délai temporel variable peut être appliqué entre les deux impulsions laser. Les faisceaux doivent également être parfaitement horizontaux, afin de ne pas introduire une incertitude de mesure lors de la collection de la lumière diffusée. Le réglage de l'horizontalité des lasers est détaillé dans le chapitre 4.3.1.



FIGURE 5.1 – Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage.

La lumière diffusée par la gouttelette lors de chaque impulsion est collectée à l'aide d'une caméra PIV à double acquisition JAI 4200 [68]. Le délai temporel entre les deux impulsions en mode PIV étant en général assez court, les caméras PIV disposent d'un fonctionnement particulier afin de pouvoir vider le buffer de la première image alors que la seconde est en cours d'enregistrement. Le temps d'intégration de la caméra pour la première acquisition est laissé à la discrétion de l'utilisateur, tandis que pour la seconde acquisition, le shutter de la caméra reste ouvert plus longtemps (de l'ordre de la centaine de microsecondes) afin de laisser au buffer le temps de se vider pour le prochain couple d'acquisitions.

La fréquence d'acquisition maximale d'un couple d'images sera alors déterminée en partie par ce délai; il sera impossible de faire fonctionner la caméra à une fréquence trop élevée (de l'ordre de 6 - 7Hz), sans quoi le buffer de la caméra n'aura pas le temps de se vider complètement avant la prochaine acquisition, comme illustré avec la figure 5.2. Il faut alors diminuer la fréquence d'acquisition pour résoudre le problème.



FIGURE 5.2 – Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider



FIGURE 5.3 – Synchronisation des impulsions laser et de l'ouverture de la caméra

La figure 5.3 représente les deux impulsions laser, ainsi que le fait que, pour obtenir deux acquisitions indépendantes, les deux ouvertures de la caméra doivent correspondre chacune à un tir laser. Si la synchronisation entre caméra et laser n'est pas bonne, les cas de figure 5.4 à 5.7 peuvent se présenter.



FIGURE 5.4 – Mauvaise synchronisation laser/caméra : deux images noires



FIGURE 5.5 – Mauvaise synchronisation laser/caméra : image A correcte, image B noire



FIGURE 5.6 – Mauvaise synchronisation laser/caméra : image A noire, image B correcte



FIGURE 5.7 – Mauvaise synchronisation laser/caméra : image A noire, image B avec double acquisition

Le fait que le temps d'intégration de l'image B soit plus long que celui de l'image A ne

pose pas de problème en termes de contraste; en effet la lumière collectée par la caméra provient de la diffusion de l'impulsion laser par la gouttelette, et non de la lumière ambiante de la pièce. Le niveau de bruit pourra toutefois être plus élevé pour la seconde image, puisque le temps d'intégration est plus important. Une solution pour limiter ce problème consistera simplement à effectuer les acquisitions dans le noir complet, le bruit thermique étant alors très limité.

Le réglage du temps d'intégration doit être fait minutieusement, et la valeur du temps d'intégration de l'image A réduite au minimum. En effet, la valeur d'intégration de l'image A constitue une limite basse pour le délai entre les deux acquisitions : si le temps d'intégration est supérieur au délai minimum utilisé lors de l'expérience, la seconde image sera toujours noire (voir figure 5.5).

Après de nombreux essais, il s'avère qu'avec le matériel utilisé (précis à 500*ns* près, voir chapitre 5.2.3), il est très difficile de réduire le temps d'intégration au delà de $20\mu s$. Si on considère que le délai minimum souhaité entre deux tirs laser ne sera jamais inférieur à $50\mu s$, un temps d'intégration réglé entre 20 et $40\mu s$ pour l'image A semble approprié. La difficulté consistera alors à n'avoir que le premier tir laser dans la plage temporelle correspondant au temps d'intégration de l'image A, l'image B enregistrant alors la lumière diffusée par la gouttelette lors du second tir laser.

5.2.3 Délais de commande et incertitude temporelle

Afin de mesurer avec le plus de précision possible le taux d'évaporation, qui constitue le principal objectif, il est nécessaire de connaître avec précision les délais imposés par la chaîne de mesure. Du point de vue expérimental, les incertitudes de mesure peuvent avoir plusieurs origines :

- Incertitude sur le déclenchement du laser : si le laser est déclenché trop tôt ou trop tard, la goutte en écoulement ne sera pas à la même position dans le faisceau laser lors d'acquisitions successives. Cela pourra entraîner une incertitude lors de l'exploitation du diagramme de diffusion à l'angle d'arc-en-ciel, par exemple un décalage de l'indice de réfraction (voir chapitre 4.1.3 pour un traitement complet de ce problème). Dans le pire des cas, la gouttelette se trouvera complètement hors du faisceau, et le seul résultat sera alors une image noire, facile à repérer lors du post-traitement.
- Incertitude sur le déclenchement de l'injecteur et de l'envoi de la gouttelette : les conséquences seront similaires à celles d'une incertitude sur le déclenchement du laser, la goutte pouvant se trouver soit décalée dans le faisceau, soit complètement hors de celui-ci. (voir également le chapitre 4.1.3 pour un traitement complet de ce problème).

- Incertitude sur le déclenchement de la caméra : si l'expérimentateur ne prend pas garde à avoir une marge d'incertitude assez grande pour le réglage du temps d'intégration et du déclenchement de la caméra, il pourra se retrouver dans les cas limite suivants :
 - deux images noires
 - une image noire, une acquisition correcte
 - une image noire, une acquisition avec double impulsion et superposition des signaux de diffusion

A ce sujet, voir le chapitre 5.2.2 sur le fonctionnement de la caméra PIV, qui liste exhaustivement les cas qu'il est possible de rencontrer.

- Incertitude du boîtier de synchronisation et de contrôle des retards : toute incertitude à ce niveau pourra entraîner chacune des incertitudes citées ci-dessus.

Une mesure de l'incertitude lors de l'envoi d'un signal d'acquisition a donc été nécessaire, et ceci pour chaque appareil indépendamment lorsque cela a été possible; les mesures étant réalisées à l'aide d'un oscilloscope numérique haute fréquence, l'impulsion laser étant détectée par un photo-multiplicateur Hamamatsu.

Dispositif	Incertitude
Boîtier de contrôle	< 500 ns
Laser	< 10ns
Injecteur	< 10ns

Tableau 5.1 – Mesures statistiques du délai temporel entre l'impulsion de commande et le déclenchement du dispositif.

On voit donc, d'après ces mesures, que l'incertitude temporelle la plus élevée provient du boîtier de contrôle et de synchronisation en lui-même. Cette incertitude sera toujours inférieure à la microseconde; le temps d'intégration de la caméra ayant été réglé, lors de toutes les mesures, à une valeur comprise entre 25 et $50\mu s$. Il est donc tout à fait possible d'encadrer cette plage d'incertitude de 500ns dans un temps d'intégration de $25\mu s$, et plus encore à $50\mu s$.

Concernant à la fois le tir laser et la caméra, un décalage maximal de 500ns dans la transmission du signal se traduit par un décalage de position relative de la gouttelette et de l'impulsion laser. La gouttelette étant émise par l'injecteur à une vitesse d'environ $2m.s^{-1}$, le décalage spatial est alors d'environ $1\mu m$. Sachant que le faisceau laser est un faisceau gaussien large de 3, 5mm environ à mi-hauteur, il est donc possible de conserver la goutte dans le faisceau à chaque double acquisition. L'expérimentateur devra veiller à ce que le délai temporel entre les deux impulsions laser en mode PIV ne dépasse pas la milliseconde, afin que la gouttelette reste dans la partie centrale du faisceau laser lors des deux acquisitions $(1ms \times 2m.s^{-1} = 2mm < 3.5mm)$.

Ainsi, la valeur d'incertitude qui a le plus d'influence est celle du boîtier de synchronisation. Toutefois, malgré cette incertitude, il est tout à fait possible de faire fonctionner le dispositif expérimental dans des conditions telles que toutes les incertitudes temporelles liées à la chaîne d'acquisition soient négligeables; c'est pourquoi ces incertitudes ne seront plus évoquées par la suite.

5.3 Exploitation des résultats expérimentaux et simulations numériques

Lors de la réalisation d'une acquisition en régime double impulsion, la goutte sur laquelle est effectuée la mesure est en mouvement. Les images A et B, réalisées par la caméra PIV avec un décalage temporel Δt , présentent donc la goutte à deux positions distinctes, la différence spatiale entre ces deux positions étant liée au décalage temporel Δt et à la vitesse de la goutte. Une étude théorique de l'influence de la position de la goutte dans le faisceau sur la mesure de l'indice de réfraction (et donc de la température) a été réalisée dans le chapitre 4.1.3, cette étude montrant que l'influence de la position de la goutte lorsque celle-ci se déplace selon l'axe Y est négligeable.

Toutefois, dans les faits, un léger décalage est présent sur les images expérimentales, dû au fait que l'objectif de la caméra n'a pas permis un réglage de la mise au point à l'infini parfait, même si les images restent de très bonne qualité. Expérimentalement, il existe donc une influence de la position verticale de la goutte dans le faisceau : la prise en compte de cette position est donc nécessaire afin d'obtenir des données fiables.

La figure 5.8 présente une double acquisition, avec un décalage temporel de 500μ s. Le décalage du cercle correspondant à l'objectif de la caméra est visible.



FIGURE 5.8 – Visualisation du décalage vertical expérimental (délai temporel de $500 \mu s$).

Afin de compenser cet effet, une solution lors du post-traitement a été choisie. En effet, quel que soit le décalage vertical de la goutte dans le faisceau, le choix d'une bande incluant le maximum d'intensité au minimum angulaire permet, dans tous les cas, de compenser cette mise au point, et donc de s'affranchir du décalage vertical.

Lors de chaque tracé de profil d'intensité, le maximum d'intensité au minimum angulaire a donc été recherché, puis une bande de 100 pixels de haut, centrée sur ce maximum, a été utilisée afin de réaliser le profil d'intensité. Ce processus a été détaillé dans le chapitre 4.3.6.1, et sera appliqué de nouveau pour toutes les images, ce procédé permettant de s'affranchir du décalage vertical.

Influence du premier tir laser sur la seconde acquisition 5.4

L'objectif est de réaliser des mesures en double impulsion sur une goutte unique : il est important de quantifier l'effet possible du premier tir laser sur la goutte (déformation, échauffement...). Pour ce faire, l'expérience suivante a été effectuée.

Une première série de mesures en régime double impulsion a été réalisée (avec un enregistrement aux temps t_1 et t_2 , correspondant aux deux tirs laser). Les images enregistrées au temps t_2 ont ensuite été traitées afin de mesurer l'indice de réfraction moyen des gouttes, pour 250 acquisitions.

Une seconde série de mesures a ensuite été réalisée, cette fois en régime simple tir, au temps t_2 . La figure 5.9 compare les indices de réfraction mesurés au temps t_2 en configuration simple et double impulsion laser, pour des gouttes d'eau à trois températures différentes. Le fait que les mesures d'indice de réfraction de la première série (régime double impulsion) soient inférieures à celles de la seconde série (régime simple impulsion) montre qu'il existe un léger échauffement de la goutte causé par le premier tir laser. L'effet est d'autant plus important que la température initiale de la goutte est faible. Cependant, la valeur de cet échauffement est faible (l'indice varie d'une valeur inférieure à 2.10^{-4} , soit moins de deux degrés pour l'eau), et il sera négligé par la suite. Cet écart statistique pour l'influence du premier tir laser sur la mesure réalisée lors du second tir montre toutefois la grande sensibilité de cette technique de mesure, puisqu'un écart aussi petit que 2.10^{-4} peut être mesuré.



FIGURE 5.9 – Influence du second tir laser sur la mesure de l'indice de réfraction : indice de réfraction en fonction de la température.

5.5 Mesure du taux d'évaporation d'une goutte unique

Si la faisabilité d'une double acquisition sur une goutte unique a été prouvée, il reste maintenant à réaliser la dernière étape, à savoir extraire de ces doubles acquisitions un taux d'évaporation. Pour cela, un code de post-traitement a été développé, qui permet, à partir de doubles signaux calibrés, d'obtenir de déphasage entre les deux signaux, et donc la variation de diamètre. Une brève description de ce code ainsi que la méthodologie utilisée pour la mesure de ce déphasage est donnée dans le chapitre 5.5.1. Le chapitre 5.5.2 donne la méthode utilisée pour transformer ce déphasage en mesure de variation de diamètre de la goutte en mesure du taux d'évaporation. La figure 5.10 présente les profils d'intensité expérimentaux d'une goutte d'isopropanol, en régime double impulsion.



FIGURE 5.10 – Visualisation du décalage de la structure de ripple en régime double impulsion.

146

147

148

149

150

0 2

0.0

143

144

145

5.5.1 Mesure du déphasage entre entre les signaux arc-en-ciel d'une acquisition en mode double tir

L'un des objectifs est de réaliser des mesures statistiques sur les paramètres liés au processus d'évaporation, un code de calcul a été développé afin de pouvoir, à partir d'une série de couples d'images arc-en-ciel réalisées avec un délai temporel, calculer la variation de diamètre de la goutte de manière statistique.

Plusieurs méthodes ont été testées pour la mesure de la variation de diamètre à partir des doubles acquisitions, mais c'est au final une méthode utilisée pour la mesure de la différence de phase de signaux PDA par Domnick *et al.* [69] qui a servi au calcul de la différence de phase.

Cette méthode permet d'obtenir la différence de phase entre deux signaux ainsi que la fréquence du signal, à partir de la densité spectrale croisée ou Cross-Spectral Density (CSD). La fonction CSD est une fonction complexe composée d'une partie réelle appelée spectre de coïncidence (notée $C_{xy}(f)$), et d'une partie imaginaire appelée spectre de quadrature (notée $Q_{xy}(f)$).

$$G_{xy}(f) = C_{xy}(f) + jQ_{xy}(f)$$
(5.1)

Le spectre de coïncidence représente la distribution d'amplitude du signal de chacun des deux signaux x(t) et y(t) à une fréquence et une phase communes. Le spectre de quadrature représente la même distribution de puissance, mais cette fois pour deux signaux en opposition de phase (180°). Ainsi, si les signaux ont une amplitude suffisante à une fréquence commune mais à une différence de phase arbitraire, on observera une répartition de l'amplitude de la CSD entre les fonctions $C_{xy}(f)$ et $Q_{xy}(f)$ qui sera fonction de la différence de phase (entre 0° et 360°) entre les deux signaux.

L'expression de la CSD en fonction de l'amplitude et de la phase rend plus lisible cette interprétation; et l'on obtient alors :

$$G_{xy}(f) = |G_{xy}(f)| e^{-j\theta_{xy}(f)}$$
 (5.2)

où

$$|G_{xy}(f)| = \sqrt{C_{xy}^2(f) + Q_{xy}^2(f)}$$
(5.3)

$$\theta_{xy}(f) = \arctan\left(\frac{Q_{xy}(f)}{C_{xy}(f)}\right) \tag{5.4}$$

Les équations 5.3 et 5.4 sont la clé pour les calculs de différence de phase décrits dans ce chapitre. A partir de l'amplitude absolue de la fonction $G_{xy}(f)$, la fréquence des signaux d'arc-en-ciel (et ici du ripple, qui est la fréquence qui nous intéresse) peut être identifiée. Une fois la fréquence déterminée, celle-ci est utilisée afin de déterminer la valeur de $C_{xy}(f)$ et $Q_{xy}(f)$, permettant ainsi le calcul de la différence de phase $\theta_{xy}(f)$.

Le calcul de la fonction $G_{xy}(f)$ peut être réalisé par une fonction de corrélation croisée, ou directement à partir des signaux expérimentaux par une transformée de Fourier rapide (ou FFT). C'est cette seconde méthode qui a été choisie, car elle permet un calcul très rapide de la différence de phase des couples de signaux.

Le premier paramètre à calculer pour évaluer la différence de phase des couples de signaux d'arc-en-ciel est donc la fréquence de ces signaux ; chacun des couples de signaux d'arc-en-ciel sera traité de la même manière :

- Calcul de la dérivée des deux signaux expérimentaux
- Calcul de la FFT en puissance ordonnée de la dérivée des deux signaux expérimentaux
- Recherche du maximum de la FFT
- Utilisation de cette fréquence principale comme fréquence de la structure de ripple

Lors du calcul de la FFT, il est nécessaire de sélectionner une fenêtre comportant 2^n points. Même si les signaux expérimentaux comportent 2048 points de mesure (correspondant aux 2048 pixels de la caméra), c'est une fenêtre de 512 pixels qui a été utilisée : le signal d'arc-en-ciel a la particularité de présenter une dérive en fréquence, et donc plus l'angle de la mesure est important, plus cette dérive viendra perturber les

mesures. La fenêtre de mesure de 512 pixels permet un angle de mesure relativement faible (4°) tout en conservant plusieurs périodes du signal de ripple pour conserver la précision du calcul de la différence de phase. Le choix d'une fenêtre plus petite (256 pixels) aurait été possible, mais aurait présenté moins de périodes de la structure de ripple.

C'est la dérivée des signaux expérimentaux qui a été utilisée, et non pas directement les signaux expérimentaux. L'utilisation de la dérivée permet en effet de se focaliser sur les oscillations de la structure de ripple.

Une fois la fréquence de la structure de ripple obtenue, un filtrage léger du signal expérimental doit être réalisé pour supprimer les très hautes fréquences dues aux pixels de la caméra tout en conservant la structure de ripple. La FFT calculée précédemment permet de déterminer facilement une fréquence maximale (déterminée par l'expérimentateur), de supprimer les fréquences supérieures à cette fréquence maximale, puis de reconstruire le signal filtré. Tous les calculs suivants seront basés sur ces couples de signaux débruités reconstruits.

La figure 5.11 illustre l'influence du choix de la fréquence maximale sur le déphasage. La ligne verticale verte correspond à la fréquence principale du signal expérimental. Si la fréquence maximale choisie est inférieure à la fréquence principale, le code ne parvient pas à trouver la valeur du déphasage. Si la fréquence maximale choisie est supérieure et proche de la fréquence principale, le code de calcul parvient à trouver la valeur du déphasage à partir du signal débruité. Si la fréquence maximale choisie est trop supérieure à la fréquence principale (à droite de la ligne verticale rouge), les hautes fréquences dues au bruit expérimental et aux pixels de la caméra sont présentes, et le calcul du déphasage entre les signaux s'en trouve faussé.



FIGURE 5.11 – Influence du choix de la fréquence maximale sur le calcul du déphasage.

A partir des couples de signaux filtrés, le calcul de la différence de phase peut être réalisé. Les figures 5.12 à 5.15 présentent les différents onglets de l'interface du code développé pour le traitement des couples de signaux d'arc-en-ciel.



FIGURE 5.12 – Interface du code de calcul de la différence de phase : Recherche des maxima.



FIGURE 5.13 – Interface du code de calcul de la différence de phase : Différence de phase.



FIGURE 5.14 – Interface du code de calcul de la différence de phase : Sommation d'intensité.



FIGURE 5.15 – Interface du code de calcul de la différence de phase : Traitement multiple.

Les déphasages peuvent, grâce à ce code de calcul, être traités en grand nombre et très rapidement : ce code est en effet capable de traiter plus de 30 couples de signaux d'arc-en-ciel par seconde sur un processeur cadencé à 1, 6GHz; ce qui permettra dans l'avenir un traitement en temps réel des doubles acquisitions arc-en-ciel.

5.5.2 Calcul de la variation de diamètre de la goutte à partir du déphasage

Dans ce chapitre, l'effet vernier présenté dans le chapitre 4.2, va être utilisé pour déterminer la variation de diamètre subie par une goutte unique en écoulement, chauffée ou non au préalable. Ceci permet d'associer à chaque valeur de déphasage une variation de diamètre de la goutte, si l'on considère que la variation de diamètre est suffisamment petite devant le diamètre.

5.5.2.1 Cas de l'isopropanol

Pour cette étude, des séries de 500 couples d'acquisitions ont été réalisées, avec des délais temporels entre les deux acquisitions compris entre $50\mu s$ et $700\mu s$, pour trois températures de gouttes différentes : 26, 34 et 41°C. Le liquide utilisé est l'isopropanol, qui présente un taux d'évaporation élevé, ceci afin de visualiser l'effet vernier.

La figure 5.16 présente le déphasage mesuré entre les deux acquisitions réalisées sur une goutte unique, en fonction du délai temporel entre ces deux acquisitions, et ceci pour 3 valeurs de la température. Lorsque le délai temporel entre les deux acquisitions augmente, la différence de phase mesurée augmente également, ce qui indique que lorsque la température augmente, la pente de la courbe n'est pas modifiée mais l'ordonnée augmente avec la température : la température de la goutte a une influence sur le déphasage mesuré. Plus la température de la goutte est importante, et plus la différence de phase mesurée sera importante, comme indiqué sur la figure 5.17, qui représente la différence de phase mesurée entre les deux signaux en fonction de la température pour les différents délais temporels appliqués.



FIGURE 5.16 – Déphasage mesuré entre les signaux arc-en-ciel en fonction du délai temporel entre les deux acquisitions pour des gouttes uniques d'isopropanol.



FIGURE 5.17 – Déphasage mesuré entre les signaux arc-en-ciel en fonction de la température de la goutte d'isopropanol.

En effectuant une inversion à l'aide du code de basé sur la théorie de Nussenzveig, il est possible de connaître le diamètre moyen des gouttes pour chaque série d'acquisitions. Pour cette valeur connue de diamètre, il suffit alors de déterminer à quelle variation de diamètre correspond un déphasage de 2π radians, soit 360°. La variation de diamètre associée à la valeur de déphasage mesuré est alors calculée à l'aide d'un simple produit en croix.

Pour une goutte de diamètre $84\mu m$, la variation de diamètre associée à un déphasage de 2π à l'angle d'arc-en-ciel est de $0, 2\mu m$. La différence de phase mesurée peut alors être transformée facilement en variation de diamètre, comme présenté sur les figures 5.18 et 5.19. La figure 5.18 représente la variation de diamètre de la goutte en fonction du délai temporel, pour trois températures différentes.



FIGURE 5.18 – Variation de diamètre de la goutte d'isopropanol en fonction de la température d'injection.

La figure 5.19 présente la variation de diamètre mesuré en fonction de la température de la goutte, pour différentes valeurs du délai temporel entre les acquisitions.



FIGURE 5.19 – Variation de diamètre de la goutte d'isopropanol en fonction de la température d'injection.

Les tableaux 5.2, 5.3 et 5.4 résument ces données, et présentent le déphasage moyen mesuré à l'aide des 500 couples d'acquisitions, ceci pour les trois températures de l'expérience : 26, 34 et $41^{\circ}C$.

	$\Delta t = 50 \mu s$	$\Delta t = 100 \mu s$	$\Delta t = 200 \mu s$	$\Delta t = 300 \mu s$	$\Delta t = 500 \mu s$	$\Delta t = 700 \mu s$
Moyenne	12.8396	14.4750	23.7998	38.9761	66.1886	90.5853
Ecart type	7.8108	4.7378	7.4067	13.4262	20.2678	28.5062
Maximum	34.8966	24.9099	39.4927	58.6185	89.6523	117.4257
Minimum	1.5362	3.0876	12.3318	2.3891	20.2562	41.8469

Tableau 5.2 – Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés), pour des délais temporels de 50 à $700 \mu s$ à $26^{\circ}C$.

	$\Delta t = 50 \mu s$	$\Delta t = 100 \mu s$	$\Delta t = 200 \mu s$	$\Delta t = 300 \mu s$	$\Delta t = 500 \mu s$	$\Delta t = 700 \mu s$
Moyenne	14.6948	18.6739	27.2738	44.2656	73.1834	101.2932
Ecart type	8.8869	5.9989	8.7010	15.8182	20.0232	22.1152
Maximum	29.5619	34.8475	44.9081	74.8042	109.5200	138.9050
Minimum	2.1307	10.0019	15.0136	20.1951	40.1499	60.1992

Tableau 5.3 – Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés), pour des délais temporels de 50 à $700\mu s$ à $34^{\circ}C$.

	$\Delta t = 50 \mu s$	$\Delta t = 100 \mu s$	$\Delta t = 200 \mu s$	$\Delta t = 300 \mu s$	$\Delta t = 500 \mu s$	$\Delta t = 700 \mu s$
Moyenne	19.3279	34.8358	53.7410	70.6496	97.3087	134.5057
Ecart type	7.7850	13.2998	18.3693	20.7473	35.1841	22.4023
Maximum	34.9310	73.0493	89.5526	106.7491	158.3831	179.1271
Minimum	1.2211	12.6283	20.9128	30.4364	41.6797	70.6455

Tableau 5.4 – Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés), pour des délais temporels de 50 à $700 \mu s$ à $41^{\circ}C$.

5.5.2.2 Cas de l'eau

Le dispositif expérimental a été également testé pour des gouttelettes d'eau, à plusieurs températures. Les résultats de la mesure de taux d'évaporation pour les gouttelettes d'eau (de diamètre $100\mu m$) pour deux températures ($32^{\circ}C$ et $40^{\circ}C$) sont présentés ici, ainsi que les données statistiques pour 250 couples d'acquisitions. La sensibilité de l'injecteur n'a hélas pas permis de réaliser ces mesures à température ambiante; il a été impossible d'obtenir un régime de fonctionnement stable à cette température.

Les tableaux 5.5 et 5.6 présentent les mesures de déphasage réalisées pour les températures $32^{\circ}C$ et $40^{\circ}C$. La première colonne correspond au déphasage mesuré pour un délai temporel de $50\mu s$ entre les deux tirs laser, et la seconde colonne présente les résultats obtenus pour un délai temporel de $500\mu s$.

	$\Delta t = 50 \mu s$	$\Delta t = 500 \mu s$
Moyenne	10.9945	11.0672
Ecart type	15.1220	10.6885
Maximum	59.2155	59.3791
Minimum	0.0638	0.0556

Tableau 5.5 – Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés), pour des délais temporels de 50 et $500\mu s$ à $32^{\circ}C$.

	$\Delta t = 50 \mu s$	$\Delta t = 500 \mu s$
Moyenne	8.7716	9.0663
Ecart type	5.9169	6.3107
Maximum	21.6769	28.2967
Minimum	0.0152	0.0254

Tableau 5.6 – Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés), pour des délais temporels de 50 et $500\mu s$ à $40^{\circ}C$.

Le tableau 5.7 présente la variation de diamètre moyenne associée au déphasage moyen mesuré, pour des gouttes d'eau uniques à $32^{\circ}C$ et $40^{\circ}C$.

	$\Delta t = 50 \mu s \ (32^{\circ}C)$	$\Delta t = 500 \mu s \ (32^{\circ}C)$	$\Delta t = 50\mu s \ (40^{\circ}C)$	$\Delta t = 500 \mu s \ (40^{\circ}C)$
Variation de diamètre	1.0553E-08 m	6.7040E-09 m	4.8731E-09 m	5.0368E-09 m

Tableau 5.7 – Variation de diamètre moyenne associée au déphasage moyen mesuré, pour des gouttes d'eau uniques à $32^{\circ}C$ et $40^{\circ}C$.

Les mesures de déphasages obtenus pour de l'eau à ces deux températures apportent plusieurs informations importantes. En effet, quel que soit le décalage temporel entre les deux acquisitions, le déphasage mesuré reste constant. Ceci tend à prouver qu'aux températures de la mesure, le taux d'évaporation de l'eau n'est pas assez grand pour être significatif. De plus, le déphasage entre les signaux ne varie pas en fonction de la température comme lors du cas de l'isopropanol. La température d'ébullition de l'eau est en effet plus élevée que celle de l'isopropanol $(82, 5^{\circ}C)$, mais surtout le taux d'évaporation de l'isopropanol est dix fois supérieur à celui de l'eau. Il s'avérera donc difficile de réaliser des mesures de déphasage sur des liquides dont le taux d'évaporation est bas, et à des températures relativement éloignées de leur température d'ébullition : les valeurs de déphasage (de l'ordre de 10°) sont alors dans le bruit de mesure. Toutefois, des mesures de déphasage pour des taux d'évaporation plus importants, ou pour des températures plus proches du point d'ébullition du liquide considéré, sont réalisables, comme le montrent les résultats obtenus pour l'isopropanol.

5.5.3 Calcul du taux d'évaporation sur une goutte unique

La dernière étape consiste à transformer les variations de diamètre mesurées en taux d'évaporation. Comme détaillé dans le chapitre 2.2.3, le taux d'évaporation β est défini comme étant le taux de régression de surface subie par la goutte par unité de temps :

$$\beta = -\frac{dD^2}{dt} \tag{5.5}$$

Appliqué aux mesures effectuées précédemment, le taux d'évaporation peut être réécrit comme décrit dans la formule 5.6 :

$$\beta = \frac{d^2 - \left(d - \Delta d\right)^2}{\Delta t} \tag{5.6}$$

d étant le diamètre de la goutte, et Δd la variation de diamètre subie pendant le temps Δt .

Le taux d'évaporation peut dorénavant être calculé, à partir de la mesure du diamètre de la goutte (avec la précision δd due à l'interprétation de la distribution de taille comme étant un diamètre fixé, comme détaillé dans le chapitre 4.5.1.1) et de la mesure de la variation de diamètre subie par la goutte.

Le tableau 5.8 présente les taux d'évaporation calculés pour chaque délai temporel appliqué entre les acquisitions, et pour les températures 26, 34 et $41^{\circ}C$. Le liquide utilisé est l'isopropanol, l'eau ne permettant pas de réaliser de telles mesures de taux d'évaporation, comme indiqué chapitre 5.5.2.2.

Délai tempore l $\Delta t~(\mu s)$	$\beta \ (26^{\circ}C) \ (m^2.s^{-1})$	$\beta (34^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$	$\beta (41^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$
50	4.432E-08	6.332E-08	7.065 E-08
100	1.998E-08	2.819E-08	6.997 E-08
200	1.548E-08	1.847E-08	4.736E-08
300	1.734E-08	2.049E-08	3.910E-08
500	1.776E-08	2.027 E-08	2.985 E-08
700	1.725E-08	1.997E-08	2.933E-08

Tableau 5.8 – Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions.

Le taux d'évaporation ne doit normalement pas dépendre du délai Δt entre les deux acquisitions, puisque la dimension de β est ramenée en $m^2 \cdot s^{-1}$. Dans les faits, les valeurs calculées pour le taux d'évaporation β sont faussées si le délai entre les deux acquisitions est trop court : la précision de la mesure du déphasage est alors insuffisante. Le taux d'évaporation moyen, calculé de façon à le rendre indépendant du délai Δt entre les acquisitions, est présenté dans le tableau 5.9. Les mesures réalisées avec un délai temporel de $50\mu s$ étant très proches du bruit de mesure, celles-ci ont été supprimées lors du calcul des statistiques sur le taux d'évaporation.

	$\beta (26^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$	$\beta (34^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$	$\beta (41^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$
Moyenne	1.7560E-08	2.1478E-08	4.3123E-08
Ecart type	1.6101E-09	3.8354 E-09	1.6742 E-08
Maximum	1.9977E-08	2.8192E-08	6.9968E-08
Minimum	1.5477E-08	1.8467 E-08	2.9330E-08

Tableau 5.9 – Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions : moyenne effectuée pour rendre β indépendant de Δt .

Afin de vérifier l'influence de la précision de la mesure du diamètre, due en partie au fait que les distributions de taille ont été transformées en diamètre fixé, les cas extrêmes β_+ et β_- de la valeur du taux d'évaporation β ont été calculés. En prenant les cas extrêmes obtenus lors des expériences, le diamètre absolu peut être mesuré avec moins de $2\mu m$ d'erreur sur des gouttes de $80\mu m$; c'est cette erreur qui a été injectée en tant que δd . La formule 5.6 devient, dans le cas de β_+ :

$$\beta_{+} = \frac{(d+\delta d)^2 - (d+\delta d - \Delta d)^2}{\Delta t}$$
(5.7)

Dans le cas de β_{-} , l'équation 5.6 devient cette fois :

$$\beta_{+} = \frac{(d - \delta d)^2 - (d - \delta d - \Delta d)^2}{\Delta t}$$
(5.8)

Les tableaux 5.10 et 5.11 donnent les valeurs obtenues pour β_{-} et β_{+} .

Délai tempore l $\Delta t~(\mu s)$	$\beta \ (26^{\circ}C) \ (m^2.s^{-1})$	$\beta (34^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$	$\beta (41^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$
50	4.381E-08	6.267E-08	6.996E-08
100	1.969E-08	2.782E-08	6.928E-08
200	1.524E-08	1.820E-08	4.684 E-08
300	1.708E-08	2.020E-08	3.863E-08
500	1.750E-08	1.999E-08	$2.947 \text{E}{-}08$
700	1.699E-08	1.968E-08	2.895 E-08

Tableau 5.10 – Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions : cas permettant la valeur la moins élevée de β .

Délai tempore l $\Delta t~(\mu s)$	$\beta \ (26^{\circ}C) \ (m^2.s^{-1})$	$\beta (34^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$	$\beta (41^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$
50	4.482E-08	6.396E-08	7.134E-08
100	2.026E-08	2.856E-08	7.065 E-08
200	1.571E-08	1.874E-08	4.789 E-08
300	1.759E-08	2.078E-08	3.956E-08
500	1.802E-08	2.056E-08	3.024 E-08
700	1.750E-08	2.025 E-08	2.971E-08

Tableau 5.11 – Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions : cas permettant la valeur la plus élevée de β .

Comme précédemment, une moyenne de ces résultats a été réalisée, afin de rendre ces mesures indépendantes du délai entre les deux acquisitions, et figure dans les tableaux 5.12 et 5.13. Comme pour le calcul de β , les mesures réalisées avec un délai temporel de $50\mu s$ ont été supprimées lors du calcul des statistiques sur le taux d'évaporation.

	$\beta (26^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$	$\beta (34^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$	$\beta (41^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$
Moyenne	1.7302E-08	2.1179E-08	4.2635E-08
Ecart type	1.5920E-09	3.7966E-09	1.6615E-08
Maximum	1.9692 E-08	2.7824 E-08	6.9283E-08
Minimum	1.5243E-08	1.8199E-08	2.8952E-08

Tableau 5.12 – Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions : moyenne effectuée pour rendre β_{-} indépendant de Δt .

	$\beta \ (26^{\circ}C) \ (m^2.s^{-1})$	$\beta (34^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$	$\beta (41^{\circ}C) (m^2.s^{-1})$
Moyenne	1.7818E-08	2.1778E-08	4.3610E-08
Ecart type	1.6282 E-09	3.8742E-09	1.6868E-08
Maximum	2.0262 E-08	2.8559E-08	7.0653 E-08
Minimum	1.5711E-08	1.8736E-08	2.9708 E-08

Tableau 5.13 – Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions : moyenne effectuée pour rendre β_+ indépendant de Δt .

La valeur moyenne du taux d'évaporation ainsi calculé est tracée figure 5.20, en fonction de la température d'injection des gouttelettes. Les bornes β_+ et β_- ont été tracées sur le même graphe.



FIGURE 5.20 – Taux d'évaporation moyen mesuré β en fonction de la température d'injection des gouttelettes.

La figure 5.20 correspond à ce qui était attendu : le taux d'évaporation croit de façon exponentielle avec la température. Wilms [1] présente une étude à ce sujet dans sa thèse. La figure 5.20 permet également de mettre en évidence le fait que la mesure du diamètre absolu avec une très grande précision n'est pas nécessaire pour la mesure de taux d'évaporation sur des gouttelettes uniques. La plus grande précision possible est par contre indispensable pour la mesure du déphasage, qui est le paramètre le plus important dans cette technique de mesure de taux d'évaporation.

5.5.4 Influence de la présence d'un gradient de température sur la mesure du taux d'évaporation

Chacune des gouttes étant émise à une température T_{inj} supérieure à la température de l'air ambiant T_{amb} , une étude a été réalisée afin de tenter d'expliquer la surestimation de l'indice de réfraction mesuré, comme présenté chapitre 4.5.3.2.

Les gouttes créées par l'injecteur sont, dès la sortie de celui-ci, soumises à un refroidissement causé par la température de l'air ambiant. Un gradient de température se crée donc à la surface de la goutte, ce qui pourrait expliquer le décalage entre les valeurs de la littérature, mesurées par réfractomètre, et celles obtenues par arc-en-ciel : la goutte se refroidit dans l'air ambiant, et en surface de la goutte la température est plus faible qu'au centre de celle-ci. Comme l'ont montré Saengkaew *et al.* [55], de tels gradients peuvent, selon leur forme, entraîner une surestimation de l'indice mesuré par réfractométrie d'arc-en-ciel.

L'on sait toutefois que la présence d'un gradient de température à l'intérieur d'une goutte modifie la mesure de la température, lorsque cette mesure est réalisée par réfractométrie d'arc-en-ciel. De plus, la température varie moins rapidement que le diamètre au cours de l'évaporation [Kennedy, trains de gouttes]. Les mesures réalisées au cours de cette thèse ont été effectuées sur des gouttes chauffées, puis injectées dans de l'air à la température ambiante, d'où la présence d'un gradient de température dans les gouttes. Pourtant les mesures de température *via* l'indice de réfraction présentent une très faible variation (ces mesures sont détaillées dans le chapitre suivant), et la mesure de température est donc quasi-identique pour chacune des doubles acquisitions réalisées lors de la mesure du taux d'évaporation. Le diamètre a toutefois été modifié entre ces deux acquisitions, et la variation de diamètre mesurée : si l'arc-en-ciel est sensible à la présence de gradients de température, la sensibilité de la réfractométrie d'arc-en-ciel ne permet pas de détecter de petites variations de ce gradient. En revanche, de très fines variations de diamètre peuvent être mesurées; une erreur sur la mesure de la température n'entraînera pas d'imprécision sur la mesure de la variation de diamètre de la goutte, et donc du taux d'évaporation.

Le tableau 5.14 présente le taux d'évaporation calculé pour une goutte d'indice constant 1,368 (première colonne) et pour une goutte présentant un gradient d'indice (et donc de température) comme tracé figure 5.21. La goutte est chauffée puis injectée dans de l'air à température ambiante, la température de surface de la goutte est donc inférieure à la température centrale, et l'indice à la surface est par conséquent plus élevé. Les taux d'évaporations présentés dans le tableau 5.14 ont été calculés à partir de diagrammes de diffusions simulés, pour des gouttes de $80\mu m$ et $80, 1\mu m$. La variation de diamètre correspondante, soit $0, 1\mu m$, est alors comparée à la variation de diamètre obtenue expérimentalement. Pour une goutte à $41^{\circ}C$, une telle variation de diamètre est obtenue lors d'un délai temporel entre les deux acquisitions de 1ms environ; le taux d'évaporation obtenu par les diagrammes de diffusions simulés a donc calculé avec ce délai.

	Indice constant $(1, 368)$	Gradient d'indice
Variation de diamètre (m/s)	1.26040E-04	1.27980E-04
Taux d'évaporation (m^2/s)	3.60525E-08	3.68557 E-08

Tableau 5.14 – Variation de diamètre et taux d'évaporation calculés pour des gouttes d'indice constant (1, 368) et des gouttes présentant un gradient d'indice (voir figure 5.21).



FIGURE 5.21 – Gradient d'indice de réfraction dans le cas test.

Ceci montre bien que la mesure du taux d'évaporation réalisée n'est pas influencée par la présence d'un gradient de température. En revanche, les mesures de température à l'aide de la réfractométrie d'arc-en ciel sont perturbées par la présence d'un tel gradient.

Il est donc possible d'obtenir, à partir de gouttes uniques, non seulement des mesures d'indice de réfraction et de diamètre, mais également de variation de diamètre, qui conduisent au taux d'évaporation de gouttelettes individuelles. Il est à noter que les mesures de taux d'évaporation obtenues par cette méthode se basent seulement sur une variation de diamètre de la goutte. Tout effet de dilatation de la goutte sera donc pris en compte dans le calcul du taux d'évaporation.

Chapitre 6

Conclusion

L'étude du phénomène d'évaporation est, à l'heure actuelle, un domaine relativement ouvert. Le fort développement de l'informatique a, depuis quelques années, ouvert la voie à la simulation numérique comme alternative peu coûteuse aux bancs moteur et aux mesures en situation réelle. Toutefois, afin de modéliser correctement les phénomènes liés à l'évaporation, les numériciens souhaitent obtenir des mesures expérimentales fiables, leur permettant d'améliorer leurs modèles. A l'opposé, de nombreux industriels souhaitent pouvoir réaliser des mesures *in situ*, avec des techniques expérimentales appliquées aux conditions réelles.

C'est dans ce cadre que s'est inscrite cette thèse. L'objectif principal, qui était de démontrer la faisabilité, et la stabilité, de mesures en réfractométrie d'arc-en-ciel sur des gouttes uniques en écoulement afin d'obtenir le taux d'évaporation de ces gouttes, a été rempli. Avant toute tentative de mesure de taux d'évaporation, une étude poussée a été effectuée concernant tous les aspects possibles de cette nouvelle application de la réfractométrie d'arc-en-ciel, avec notamment, la synchronisation du dispositif (la goutte, se déplaçant à $2m.s^{-1}$ doit rencontrer une impulsion laser de 10ns, le tout lors de l'ouverture de la caméra), l'amélioration de codes de calcul pour la prise en compte de la structure de ripple, et la validation de toutes les étapes du traitement des données expérimentales.

Ce dispositif ayant permis des mesures d'excellente qualité, les mesures de taux d'évaporation sur une goutte unique en écoulement étaient désormais accessibles. L'utilisation d'un dispositif dédié habituellement à la PIV a servi à réaliser des acquisitions de couples d'images, séparées par un délai temporel variable. A partir de la structure de ripple, une méthode très fine de la mesure de variation de diamètre, baptisée ici effet vernier, a été introduite, autorisant la mesure du taux d'évaporation instantané d'une goutte en écoulement par le biais du déphasage de la structure de ripple.

Plusieurs perspectives d'utilisation de cette technique de mesure se présentent. Même si les mesures, dans le cadre de cette thèse, ont été réalisées sur des gouttes générées par un injecteur "à la demande", le futur de cette technique réside sans doute dans un système de détection du passage de la goutte en amont, par exemple un dispositif ADL. Une telle chaîne de mesure permettrait la mesure de la vitesse d'une goutte présente dans un spray, et connaissant cette vitesse de déplacement, pourrait piloter la chaîne PIV dédiée à la mesure du taux d'évaporation, en déclenchant automatiquement le double tir laser, et en ajustant le délai de manière à conserver la goutte dans le faisceau. Au final, l'utilisateur pourrait connaître la vitesse de déplacement d'une goutte précise dans un spray, puis réaliser une mesure de taille, de température (par l'indice de réfraction) et de taux d'évaporation sur cette même goutte, le tout piloté automatiquement. La puissance des ordinateurs actuels permet d'envisager sérieusement toute l'étape de post-processing des données en quasi temps réel.

Une autre perspective est la mesure, cette fois non plus sur une goutte unique, mais sur un petit volume de mesure contenant n gouttes. A partir des images obtenues en régime impulsionnel, et à partir des interférences générées par l'interaction de la lumière diffusée par les gouttes, il est alors possible de connaître la distance séparant les gouttes, et donc leur position relative ainsi que la densité de la zone du spray en cours d'étude. Un code de calcul est en cours de développement, quelques expériences ont d'ores et déjà été réalisées dans ce sens [70], et une image expérimentale, obtenue lors du réglage de l'injecteur au cours de cette thèse, est présentée ici.



FIGURE 6.1 – Avenir possible de la réfractométrie d'arc-en-ciel en régime impulsionnel : distance entre les gouttes et densité du spray.

Table des figures

2.1	Lumière diffusée par deux gouttes en défaut de mise au point. Les franges	
	d'interférences sont nettement visibles	14
2.2	Diagramme de diffusion pour une plage angulaire comprise entre 40° et 50° ,	
	pour une particule de diamètre $100\mu m$ et d'indice $1, 38. \ldots \ldots \ldots$	14
2.3	Relation entre l'indice de réfraction et la température pour différents liquides.	17
2.4	Diagramme de diffusion pour une plage angulaire comprise entre 110° et	
	155°, pour une particule de diamètre $100 \mu m$ et d'indice 1, 38	19
2.5	Diagrammes de diffusion calculés avec la théorie de Nussenzveig pour des	
	gouttes d'indice 1.38, pour une longueur d'onde de $532nm$ et pour des	
	diamètres de 78 μm , 78, 5 μm , 79 μm , 79, 5 μm et 80 μm .	20
2.6	Sommation des diagrammes de diffusion (intensité) calculés avec la théorie	
	de Nussenzveig pour des gouttes d'indice 1.38, pour une longueur d'onde	
	de 532nm et pour des diamètres de 78 μ m, 78, 5 μ m, 79 μ m, 79, 5 μ m et 80 μ m.	20
2.7	Effet du filtrage sur un signal calculé en théorie de Lorenz-Mie et comparé	
	au signal calculé par la théorie d'Airy, pour une goutte d'indice $n = 1,38$	
	et de diamètre $d = 15 \mu m$.	21
2.8	Diagramme de diffusion en arc-en-ciel global calculé avec la théorie de	
	Nussenzveig pour des gouttes d'indice 1.38, pour une longueur d'onde de	0.0
0.0	532nm	23
2.9	Distribution de tailles de gouttes utilisée pour calculer le signal arc-en-ciel	0.0
0.10		23
2.10	Melange de deux sprays en configuration d'arc-en-ciel global.	24
2.11	Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour un spray com-	05
	pose de gouttelettes d'eau pure et d'etnanoi pur	25
3.1	Visualisation du paramètre d'impact et notation de van de Hulst	33
3.2	Diagrammes de diffusion calculés avec la théorie de Debye et la théorie de	
	Nussenzveig pour une goutte d'indice 1.38, de diamètre $80\mu m$ pour une	
	longueur d'onde de $532nm$	41
3.3	Diagrammes de diffusion calculés avec la théorie d'Airy et la théorie de	
	Nussenzveig pour une goutte d'indice 1.38, de diamètre $100 \mu m$ pour une	
	longueur d'onde de $532nm$	42

4.1	Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte	
	d'indice 1,38 et de diamètre 40,80 et 160 μm	45
4.2	Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte de	
	diamètre $80\mu m$ et d'indice 1, 36, 1, 38 et 1, 40. $\dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots$	46
4.3	Signal expérimental obtenu avec une goutte unique de $80\mu m$, signal recal-	
	culé par la théorie de Nussenzveig et signal expériment al filtré	47
4.4	Influence relative des ordres d'arc-en-ciel pour une goutte de $100 \mu m$ de	
	diamètre et d'indice 1.33, 1.36 et 1.38 \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	48
4.5	Influence de la position horizontale de la goutte dans le faisceau : goutte	
	excentrée	49
4.6	Influence de la position horizontale de la goutte dans le faisceau : goutte	
	centrée	50
4.7	Position des particules et distance relative	51
4.8	Définition du détecteur	52
4.9	Théorie de Lorenz-Mie : Champ diffusé par une goutte de $80 \mu m$ de diamètre	
	et d'indice $n=1,3772$ placée au centre du faisce au	53
4.10	Théorie de Lorenz-Mie : Champ diffusé par une goutte de $80 \mu m$ de diamètre	
	et d'indice $n = 1,3772$ excentrée dans le faisceau.	54
4.11	Théorie de Lorenz-Mie : Profils d'intensité du champ diffusé par une goutte	
	de $80\mu m$ de diamètre et d'indice $n = 1, 3772$	55
4.12	Théorie de Lorenz-Mie : Grossissement du maximum d'intensité des profils	
	d'intensité du champ diffusé par une goutte de $80 \mu m$ de diamètre et d'indice	
	$n = 1,3772. \ldots \ldots$	55
4.13	Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte	
	d'indice 1,38 et de diamètre 79,98 μm , 79,99 μm et 80 μm	57
4.14	Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte de	
	diamètre $80 \mu m$ et d'indice 1,3795, 1,38 et 1.3815 : Zoom sur le pic du	
	ripple présentant le maximum d'intensité	58
4.15	Effet vernier : influence d'une faible variation de diamètre sur la structure	
	de ripple.	59
4.16	Effet vernier : zoom sur le maximum d'intensité	60
4.17	Effet vernier : variation de diamètre en fonction du décalage angulaire pour	
	une goutte de $80\mu m$	61
4.18	Intensité normalisée en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte	
	d'indice 1,38 et de diamètre $80\mu m$ et $80, 2\mu m$	62
4.19	Schéma descriptif du dispositif expérimental	64
4.20	Logarithme de l'intensité en fonction de l'angle de diffusion pour une goutte	
	de taille $80\mu m$ et d'indice 1, 38	66
4.21	Visualisation du système d'injection	67
4.22	Processus de formation d'une goutte par contraction du capillaire en verre	68
4.23	Caméra JAI4200 utilisée lors des acquisitions par arc-en-ciel	69
4.24	Logiciel de contrôle de la caméra.	69

4.25	Boîtier de synchronisation numérique utilisé	70
4.26	Fonctionnement du boîtier de synchronisation numérique	71
4.27	Interface du logiciel d'acquisition HIRIS.	72
4.28	Acquisition typique d'arc-en-ciel sur goutte unique. L'effet de courbure est nettement visible.	73
4.29	Influence de la hauteur en pixels de la zone de tracé de profil d'intensité.	74
4.30	Influence du choix de la position de la zone de tracé de profil d'intensité.	74
4.31	Influence du choix de la position de la zone de tracé de profil d'intensité :	
	zoom sur le maximum d'intensité	75
4.32	Influence de la hauteur en pixels de la zone de tracé de profil d'intensité : comparaison entre un profil sur une ligne et un profil sur une zone.	75
4.33	Sélection de la zone présentant un maximum d'intensité au minimum an-	
	gulaire	76
4.34	Schéma descriptif du miroir monté sur goniomètre utilisé pour la calibration.	77
4.35	Courbe de calibration permettant de transformer chaque pixel de la caméra	
	en angle	78
4.36	Comparaison entre le profil d'intensité d'un sphéroïde d'ellipticité $e =$	
	0,993 et celui de sa sphère équivalente	80
4.37	Comparaison entre le profil d'intensité d'un sphéroïde d'ellipticité $e = 0,98$	
	et celui de sa sphère équivalente	81
4.38	Erreur commise sur l'indice de réfraction en fonction de l'ellipticité	82
4.39	Sélection des particules sphériques par la différence d'aires. A gauche :	
	acquisition rejetée; à droite, acquisition traitée.	83
4.40	Sélection des particules sphériques par la distribution de taille. A gauche :	
	acquisition rejetée; à droite, acquisition traitée.	83
4.41	Interface du code d'inversion.	85
4.42	Acquisition de la lumière diffusée à l'angle d'arc-en-ciel par 4 gouttes indi-	
	viduelles différentes.	86
4.43	Tracé du profil d'intensité d'une goutte unique (a) prise au hasard dans une	
	série de 500 acquisitions, et comparaison avec le profil d'intensité recalculé	0 7
	par la théorie de Nussenzveig.	87
4.44	Trace du profil d'intensité d'une goutte unique (b) prise au hasard dans une	
	serie de 500 acquisitions, et comparaison avec le profil d'intensité recalcule	07
4 45	par la théorie de Nussenzveig.	87
4.45	Trace du profil d'intensité d'une goutte unique (c) prise au hasard dans une	
	serie de 500 acquisitions, et comparaison avec le prom d'intensité récalcule	00
1 16	Tracé du profil d'intensité d'une goutte unique (d) prise eu begard dans une	00
4.40	race du prom d'intensité d'une goutte unique (d) prise au hasard dans une série de 500 acquisitions, et comparaison avec la profil d'intensité recalculé	
	par la théorie de Nussenzvoir	20
4 47	Distribution de taille associée à la goutte (a) présentée figure AA^2	80
1.41 1 18	Distribution de taille associée à la goutte (b) présentée figure 4.43	80
4.40	Distribution de tame associée à la goutte (b) présentée figure 4.44	09
4.49	Distribution de taille associée à la goutte (c) présentée figure 4.45 90	
---	--	
4.50	Distribution de taille associée à la goutte (d) présentée figure 4.46 90	
4.51	Comparaison du profil d'intensité expérimental et du profil d'intensité re-	
	calculé par la théorie de Nussenzveig	
4.52	Distribution de taille calculée par la théorie de Nussenzveig pour le profil	
	de la figure 4.51	
4.53	Différence entre le profil d'intensité expérimental et le profil d'intensité	
	recalculé par la théorie de Nussenzveig	
4.54	Différence entre le profil d'intensité expérimental et le profil d'intensité	
	recalculé par la théorie de Nussenzveig : zoom sur le minimum 93	
4.55	Tracé de 5 profils d'intensité de gouttes uniques successives dans une série	
	de 500 acquisitions. $\dots \dots \dots$	
4.56	Tracé de 5 profils d'intensité de gouttes uniques pris au hasard dans une	
	série de 500 acquisitions	
4.57	Indice de réfraction mesuré en fonction de la température pour des gouttes	
4 50	d'eau uniques, et valeur theorique de l'indice 100	
4.58	Indice de refraction mesure en fonction de la temperature pour des gouttes	
4 50	la diso de réfrection mesure mesuré en fenction de la température neur des	
4.09	routtes d'isopropapel uniques	
	gouttes a isopropation uniques	
5.1	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107	
$5.1 \\ 5.2$	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se	
$5.1 \\ 5.2$	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9 5.10	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9 5.10 5.11	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15 5.16	Laser double cavité EC-CFR-2K utilisé et son boîtier de couplage 107 Acquisition typique d'un buffer de caméra n'ayant pas eu le temps de se vider	

5.17	Déphasage mesuré entre les signaux arc-en-ciel en fonction de la tempéra-
	ture de la goutte d'isopropanol. $\ldots \ldots \ldots$
5.18	Variation de diamètre de la goutte d'isopropanol en fonction de la tempé-
	rature d'injection
5.19	Variation de diamètre de la goutte d'isopropanol en fonction de la tempé-
	rature d'injection
5.20	Taux d'évaporation moyen mesuré β en fonction de la température d'injec-
	tion des gouttelettes. \ldots
5.21	Gradient d'indice de réfraction dans le cas test
0.1	
6.1	Avenir possible de la réfractomètrie d'arc-en-ciel en régime impulsionnel :
	distance entre les gouttes et densité du spray

Liste des tableaux

2.1	Mesures d'indice et de taille réalisées séparément, pour deux atomiseurs contenant des liquides d'indices différents.	25
2.2	Mesures d'indice et de taille réalisées simultanément, pour deux atomiseurs contenant des liquides d'indices différents.	25
4.1	Mesures statistiques du délai temporel entre l'impulsion de commande d'émission du laser et l'émission laser elle-même	63
4.2	Paramètres d'inversion utilisés.	79
4.3	Indices de réfraction obtenus par inversion pour les quatre gouttes indivi- duelles de la figure 4.42.	88
4.4	Comparaison des diamètres de gouttes obtenus par distribution de taille et calcul exact	94
4.5	Données statistiques pour la comparaison entre approche par distribution de taille et par indice fixé	94
4.6	Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $25^{\circ}C$.	98
4.7	Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $25^{\circ}C$.	98
4.8	Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $32^{\circ}C$.	99
4.9	Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $32^{\circ}C$.	99
4.10	Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $40^{\circ}C$.	99
4.11	Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'eau uniques à $40^{\circ}C$.	99
4.12	Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $26^{\circ}C.$	101
4.13	Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'iso- propanol uniques à $26^{\circ}C$	101
4.14	Indice de réfraction moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $34^{\circ}C$.	101

4.15	Diamètre moyen, maximum, minimum et écart type pour des gouttes d'isopropanol uniques à $34^{\circ}C$	101
4 16	Indice de réfraction moven maximum minimum et écart type pour des	101
1.10	souttes d'isopropanol uniques à $41^{\circ}C$	101
4 17	Diamètre moven maximum minimum et écart type pour des gouttes d'iso-	101
1.11	propanol uniques à $41^{\circ}C.$	102
5.1	Mesures statistiques du délai temporel entre l'impulsion de commande et	
	le déclenchement du dispositif	112
5.2	Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés),	
	pour des délais temporels de 50 à $700\mu s$ à $26^{\circ}C.$	124
5.3	Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés),	
	pour des délais temporels de 50 à $700\mu s$ à $34^{\circ}C$.	124
5.4	Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés),	
	pour des délais temporels de 50 à $700\mu s$ à $41^{\circ}C$.	124
5.5	Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés),	
	pour des délais temporels de 50 et $500\mu s$ à $32^{\circ}C$	125
5.6	Mesures statistiques du déphasage de la structure de ripple (en degrés),	
	pour des délais temporels de 50 et $500\mu s$ à $40^{\circ}C$	125
5.7	Variation de diamètre moyenne associée au déphasage moyen mesuré, pour	
	des gouttes d'eau uniques à $32^{\circ}C$ et $40^{\circ}C$.	125
5.8	Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions	127
5.9	Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions :	
	moyenne effectuée pour rendre β indépendant de Δt	127
5.10	Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions :	
	cas permettant la valeur la moins élevée de β	128
5.11	Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions :	
	cas permettant la valeur la plus élevée de β	128
5.12	Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions :	
	moyenne effectuée pour rendre β_{-} indépendant de Δt	128
5.13	Taux d'évaporation moyens calculés à partir de séries de 500 acquisitions :	
	moyenne effectuée pour rendre β_+ indépendant de Δt	128
5.14	Variation de diamètre et taux d'évaporation calculés pour des gouttes d'in-	
	dice constant $(1, 368)$ et des gouttes présentant un gradient d'indice (voir	
	figure 5.21)	130

Bibliographie

- [1] J. Wilms, *Evaporation of multicomponent droplets*. PhD thesis, University of Stuttgart, 2005.
- [2] C. Laurent, Contribution au développement et à la validation des modèles d'évaporation multi-composant. PhD thesis, Institut Supérieur de l'Aéronautique et de l'espace, 2008.
- [3] G. A. E. Godsave, "Studies of the combustion of drops in a fuel spray : The burning of single drops of fuel," in *International Symposium on combustion (Baltimore)*, 1953.
- [4] D. B. Spalding, "The combustion of liquid fuels," in International Symposium on combustion (Baltimore), 1953.
- [5] F. Dust, A. Melling, and J. H. Whitelaw, Principle and practice of Laser-Doppler Anemometry. Academic Press, London, 2nd ed., 1981.
- [6] Y. Yeh and H. Z. Cummins, "Localized fluid flow measurements with an he-ne laser spectrometer," Appl. Phys. Lett., vol. 4, no. 176, 1964.
- [7] D. Gabor, "A new microscopic principle," Nature, vol. 161, pp. 777–778, 1948.
- [8] A. R. Glover, S. M. Skippon, and R. D. Boyle, "Interferometric Laser Imaging for Droplet Sizing : a method for droplet-size measurement in sparse sprays systems," *Appl. Opt.*, vol. 34, no. 36, pp. 8409–8421, 1995.
- [9] R. Ragucci, A. Cavaliere, and P. Massoli, "Drop sizing by laser light scattering exploiting intensity angular oscillation in the Mie regime," *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 7, pp. 221–225, 1990.
- [10] M. Maeda, T. Kawaguchi, and K. Hishida, "Novel interferometric measurement of size and velocity distributions of spherical particles in fluid flows," *Mes. Sci. Technol.*, vol. 11, pp. L13–L18, 2000.
- [11] S. L. Min and A. Gomez, "High-resolution size measurement of single spherical particles with a fast fourier transform of the angular scattering intensity," *Appl. Opt.*, vol. 35, no. 24, pp. 4919–4926, 1996.
- [12] X. Han, K. F. Ren, Z. W. Wu, F. Corbin, G. Gouesbet, and G. Grehan, "Characterization of initial disturbances in a liquid jet by rainbow sizing," *Appl. Opt.*, vol. 37, no. 36, pp. 8498–8503, 1998.
- [13] S. Saengkaew, T. Charinpanikul, C. Laurent, Y. Biscos, G. Lavergne, G. Gouesbet, and G. Grehan, "Processing of individual rainbow signals," *Exp. Fluids*, vol. 48, pp. 111–119, 2010.

- [14] F. Durst and M. Zare, "Laser-Doppler measurements in two-phase flows," in Proceedings of the LDA-Symposium, Copenhagen, Denmark, 1975.
- [15] M. Saffman, P. Buchhave, and H. Tanger, "Simultaneous measurements of size, concentration and velocity of spherical particles by a laser Doppler method," in Second International Symposium on Applications of Laser Anemometry to Fluid Mechanics, Lisbon (Portugal), 1984.
- [16] W. D. Bachalo, "Method for measuring the size and velocity of spheres by dual-beam light-scatter interferometry," *Appl. Opt.*, vol. 19, no. 3, pp. 363–370, 1980.
- [17] W. D. Bachalo and M. J. Houser, "Phase Doppler spray analyzer for simultaneous measurements of drop size and velocity distributions," *Opt. Eng.*, vol. 23, pp. 583–590, 1984.
- [18] J. Lacoste, D. Kennaird, S. Begg, and M. R. Heikal, "Phase doppler anemometry measurements of a diesel spray," School of Engeneering, University of Brighton, East Sussex UK, 2002.
- [19] http://www.dantecdynamics.com/.
- [20] http://www.tsi.com/.
- [21] S. V. Sankar, D. H. Buermann, and W. D. Bachalo, "Application of rainbow thermometry to the study of fuel droplet heat-up and evaporation characteristics," *Journal* of Engineering for Gas Turbines and Power, vol. 119, pp. 573–584, 1997.
- [22] J. Hom and N. Chigier, "Rainbow refractometry : simultaneous measurement of temperature, refractive index and size of droplets," *Appl. Opt.*, vol. 41, no. 10, pp. 1899– 1907, 2002.
- [23] http://www.malverninstruments.com/.
- [24] A. Ashkin and J. M. Dziedzic, "Observation of resonances in the radiation pressure on dielectric spheres," *Physical Review Letters*, vol. 38, no. 23, 1977.
- [25] J. E. F. Rubio, J. M. Arsuaga, M. Taravillo, V. G. Baonza, and M. Carceres, "Refractive index of benzene and methil derivatives : temperature and wavelength dependencies," *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 28, pp. 887–891, 2004.
- [26] S. S. Sazhin, "Advanced models of fuel droplet heating and evaporation," Progress in Energy and Combustion Science, vol. 32, pp. 162–214, 2006.
- [27] S. S. Sazhin, T. Kristyadi, W. A. Abdelghaffar, S. Begg, M. R. Heikal, S. V. Mikhalovsky, and S. T. Meikle, "Approximate analysis of thermal radiation absorption in fuel droplets," *Transactions of ASME*, vol. 129, pp. 1246–, 2007.
- [28] P. Massoli, F. Beretta, A. D'Alessio, and M. Lazzaro, "Temperature and size of single transparent droplets by light scattering in the forward and rainbow regions," *Appl. Opt.*, vol. 32, no. 18, pp. 3295–3301, 1993.
- [29] R. E. Tate, K. C. Watts, C. A. W. Allen, and K. I. Wilkie, "The densities of three biodiesel fuels at temperatures up to 300°C," *Fuel*, vol. 85, pp. 1004–1009, 2006.

- [30] S. V. Sankar, I. K. M., D. H. Buermann, F. M. J., and W. D. Bachalo, "An integrated phase doppler/rainbow refractometer system for simultaneous measurement of droplet size, velocity, and refractive index," in *Proceedings of the 3rd International Congress on Optical Particle Sizing, Yokohama (Japan)*, pp. 275–284, 1993.
- [31] N. Roth, K. Anders, and A. Frohn, "Simultaneous measurement of temperature and size of droplet in the micrometer range," 7th International Congress on Optical Methods in Flow and Particle Diagnostics, vol. 67, pp. 294–304, 1988.
- [32] N. Roth, K. Anders, and A. Frohn, "Refractive index measurements for the correction of particle sizing methods," *Appl. Opt.*, vol. 30, no. 33, pp. 4960–4965, 1991.
- [33] J. P. A. J. van Beeck and M. L. Riethmuller, "Nonintrusive measurements of temperature and size of single falling raindrops," *Appl. Opt.*, vol. 34, no. 10, pp. 1633–1639, 1995.
- [34] J. P. A. J. van Beeck and M. L. Riethmuller, "Rainbow phenomena applied to the measurement of droplet size and velocity and to the detection of nonsphericity," *Appl. Opt.*, vol. 35, no. 13, pp. 2259–2266, 1996.
- [35] H. C. van de Hulst, Light scattering by small particles. Wiley, New York, 1957.
- [36] N. Damaschke, Light scattering theories and their use for single particle characterization. PhD thesis, Technische Universitat Darmstadt, 2003.
- [37] J. P. A. J. van Beeck, D. Giannoulis, L. Zimmer, and M. L. Riethmuller, "Global rainbow thermometry for droplet-temperature measurement," *Optics Letters*, vol. 24, no. 23, pp. 1696–1698, 1999.
- [38] J. P. A. J. van Beeck, D. Giannoulis, L. Zimmer, and M. L. Riethmuller, "Global rainbow thermometry for average temperature measurement of spray droplets," in 10th International Symposium of laser techniques applied to fluid mechanics, Lisbon (Portugal), 2000.
- [39] S. Saengkaew, Study of spray heat up : on the development of global rainbow techniques. PhD thesis, Université de Rouen (France) and University of Chulalongkorn (Bangkok, Thailand), 2005.
- [40] C. Amiel, Application de techniques optiques à l'étude du comportement dynamique et thermique de gouttes en interaction avec une paroi chauffée. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure de l'Aéronautique et de l'Espace (ENSAE) Toulouse, 2003.
- [41] G. Castanet, A. Delconte, F. Lemoine, L. Mees, and G. Gréhan, "Evaluation of temperature gradients within combusting droplets in linear stream using two colors laserinduced fluorescence," *Experiments in Fluids*, vol. 39, pp. 431–440, 2005.
- [42] T. Müller, G. Grünefeld, and V. Beushausen, "High-precision measurement of the temperature of methanol and ethanol droplets using spontaneous Raman scattering," *Applied Physics B*, vol. 70, pp. 155–158, 2000.
- [43] J. A. Adam, "The mathematical physics of rainbows and glories," *Physics Reports*, vol. 356, pp. 229–365, 2002.

- [44] K. Sassen, "Angular scattering and rainbow formation in pendant drops," J. Opt. Soc. Am., vol. 69, no. 8, pp. 1083–1089, 1979.
- [45] C. W. Chan and W. K. Lee, "Measurement of a liquid refractive index by using high order rainbows," J. Opt. Soc. Am. B, vol. 13, no. 3, pp. 532–535, 1996.
- [46] N. Roth, K. Anders, and Fro, "Determination of size, evaporation rate and freezing of water droplets using light scattering and radiation pressure," *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 11, no. 3, pp. 207–211, 1994.
- [47] D. Duft and T. Leisner, "The index of refraction of supercooled solutions determined by the analysis of optical rainbow scattering from levitated droplets," Int. J. of Mass Spectrometry, vol. 233, pp. 61–65, 2004.
- [48] G. Castanet, P. Lavieille, F. Lemoine, M. Lebouché, A. Atthasit, Y. Biscos, and G. Lavergne, "Energetic budget on an evaporating monodisperse droplet stream using combined optical methods : Evaluation of the convective heat transfer," *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, vol. 45, pp. 5053–5067, 2002.
- [49] J. Wilms and B. Weigand, "Composition measurements of binary mixture droplets by rainbow refractometry," Appl. Opt., vol. 46, no. 11, pp. 2109–2118, 2007.
- [50] Y. Zhao and H. H. Qiu, "Measurements of multicomponent microdroplet evaporation by using rainbow refractometer and PDA," *Experiments in Fluids*, vol. 40, pp. 60–69, 2006.
- [51] W. Möbius, "Zur theorie des regenbogens und ihrer experimentellen prüfung," Annalen der Physik, vol. IV, no. 33, pp. 1498–1558, 1911.
- [52] D. Bonin, S. Saengkaew, Y. P. Han, and G. Gréhan, "On non-sphericity detection in standard rainbow refractometry," in 8th International Congress on Optical Particle Characterization, Graz (Austria), 2007.
- [53] C. L. Brockman and N. G. Alexopoulos, "Geometrical optics of inhomogeneous particles : glory ray and the rainbow revisited," *Appl. Opt.*, vol. 16, no. 1, pp. 166–174, 1977.
- [54] L. Kai and P. Massoli, "Scattering of electromagnetic-plane waves by radially inhomogeneous spheres : a finely stratified sphere model," *Appl. Opt.*, vol. 33, no. 3, pp. 501–511, 1994.
- [55] S. Saengkaew, T. charinpanitkul, H. Vanisri, W. Tanthapanichakoon, Y. Biscos, N. Garcia, G. Lavergne, L. Mees, G. Gouesbet, and G. Gréhan, "Rainbow refractometry on particles with radial refractive index gradients," *Exp. Fluids*, vol. 43, pp. 595–601, 2007.
- [56] R. T. Wang and H. C. van de Hulst, "Rainbows : Mie computations and the airy approximation," *Appl. Opt.*, vol. 30, no. 1, pp. 106–117, 1991.
- [57] S. Saengkaew, D. Bonin, and G. Gréhan, "On the measurement of particles smaller than 20μm by global rainbow refractometry," in 5th International Symposium on Measurement Techniques for Multiphase Flows, Macao (China), 2006.

- [58] S. Saengkaew, D. Bonin, A. Garo, and G. Gréhan, "Co-combustion of gas and liquid bio-fuel : simultaneous measurements of droplets temperature and size distribution," in 3rd European Combustion Meeting, Chania (Crete), 2007.
- [59] S. Saengkaew, C. Laurent, G. Gouesbet, G. Lavergne, T. Charinpanitkul, and G. Gréhan, "Evaporation of multi-component droplets : a numerical study," in 10th International Congress on Liquid Atomization and Spray Systems, Kyoto (Japan), 2006.
- [60] H. M. Nussenzveig, "High frequency scattering by a transparent sphere. I Direct reflexion and transmission," *Journal of Mathematical Physics*, vol. 10, no. 1, pp. 82– 124, 1969.
- [61] H. M. Nussenzveig, "High frequency scattering by a transparent sphere. II Theory of the rainbow and the glory," *Journal of Mathematical Physics*, vol. 10, no. 1, pp. 125– 176, 1969.
- [62] J. Wilms, N. Roth, and B. Weigand, "Determination of the composition of multicomponent droplets by rainbow refractometry," in 12th Int. Symp. Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics, Lisbon (Portugal), 2004.
- [63] http://www.microdrop.de.
- [64] Y. P. Han, L. Méès, K. F. R. andG. Gouesbet, S. Z. Wu, and G. Gréhan, "Scattering of light by spheroids : the far field case," Opt. Comm., vol. 210, pp. 1–9, 2002.
- [65] Y. P. Han, L. Méès, K. F. Ren, G. Gréhan, Z. S. Wu, and G. Gouesbet, "Far scattered field from a spheroid under a femtosecond pulsed illumination in a generalized lorenzmie theory framework," *Opt. Comm.*, vol. 231, pp. 71–77, 2004.
- [66] R. C. Weast, Handbook of Chemistry and Physics. CRC Press, 56th ed., 1975-1976.
- [67] A. Rodriguez, J. Canosa, and J. Tojo, "Density, refractive index, and speed of sound of binary mixtures (diethyl carbonate + alcohols) at several temperatures," J. Chem. Eng. Data, vol. 46, pp. 1506–1515, 2001.
- [68] http://www.pulnix.com/4200/.
- [69] J. Domnick, H. Ertel, and C. Tropea, "Processing of phase-doppler signals using the cross-spectral density function," in *Processings of the 4th International Symposium* on Applications of Laser Anemometry to Fluid Mechanics, 1988.
- [70] S. Saengkaew, D. Bonin, P. Briard, and G. Gréhan, "Réfractométrie d'arc-enciel global à faisceau pulsé : Estimation des concentrations et des distances inter-particulaires," in *Congrès Francophone de Techniques Laser (CFTL2010)*, *Vandoeuvre-lès-Nancy (France)*, 14–17 septembre 2010.