



**HAL**  
open science

# Fluorescence induite par laser multibande appliquée à la mesure de température dans les milieux complexes

Alain Delconte

► **To cite this version:**

Alain Delconte. Fluorescence induite par laser multibande appliquée à la mesure de température dans les milieux complexes. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2009. Français. NNT : 2009INPL062N . tel-01748731

**HAL Id: tel-01748731**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748731>**

Submitted on 29 Mar 2018

**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.



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

Ecole doctorale : Energétique Mécanique Matériaux

## THESE

Présentée pour l'obtention du grade de

**Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine**

Spécialité : Mécanique et Energétique

Par

**Alain DELCONTE**

# **Fluorescence induite par laser multibande appliquée à la mesure de température dans les milieux complexes**

Soutenue publiquement le 20 octobre 2009 devant la commission d'examen composée de :

Rapporteurs:	M. Claude Rozé	Professeur à l'université de Rouen
	M. Frédéric Grisch	Maître de recherche, HDR, ONERA, Palaiseau.
Examineur:	M. Pascal Lavieille	Maître de conférence, Université Paul Sabatier, Toulouse
	M. Gérard Lavergne	Professeur, ISAE, Toulouse.
	M. Fabrice Lemoine	Professeur, INPL, Nancy.
	M. Alexandre Labergue	Maître de conférence, INPL, Nancy
	M. Damien Blondel	Ingénieur, Dantec-Dynamics, Copenhague
	M. Gérard Gréhan	Directeur de recherche, CNRS, Rouen.

---

Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée

Nancy-Université, CNRS UMR 7563

2, avenue de la Forêt de Haye BP 160

54504 Vandoeuvre-Les-Nancy





## Remerciements :

J'adresse mes remerciements aux directeurs successifs du laboratoire, Mr Christian Moyne et Mr Fabrice Lemoine, ainsi que l'ensemble des équipes de recherche qui m'ont permis de mener à bien ce travail de thèse dans le cadre de mon activité professionnelle d'ingénieur d'étude CNRS affecté au LEMTA.

Je remercie tout particulièrement Fabrice Lemoine, qui dirige l'équipe de recherche et qui a parfaitement orienté les travaux menés sur la mesure de température par fluorescence induite par laser. Son anticipation des phénomènes, liés aux mécanismes physiques de la fluorescence, nous a permis notamment d'envisager les diverses expériences présentées au chapitre 4 et de comprendre les phénomènes mis en jeu ainsi que l'élaboration d'un modèle physique, permettant d'appréhender la mesure de température par fluorescence dans les milieux diphasiques tels que les sprays. Je le remercie également pour son aide précieuse dans la rédaction de ce mémoire, particulièrement pour le chapitre 2 qui reprend la théorie et les applications de la technique LIF multibande.

Je tiens également à exprimer toute ma gratitude à Mr Pascal Lavieille pour les travaux que nous avons menés ensemble sur la méthode LIF à 2 couleurs, appliquée à la mesure de température dans les milieux monophasiques en tenant compte des grands chemins optiques, qui est décrite dans ce manuel au chapitre 3.

Je remercie également la société DANTEC Dynamics pour la mise à disposition et adaptation du BSA Processeur Driver qui m'a permis de développer un algorithme de réglage des optiques de collection des sondes LIF et PDA donnant accès à nos premières mesures couplées entre les techniques LIF et Phases Doppler, ouvrant ainsi la perspective d'obtenir des histogrammes de température par classe de taille de gouttes dans un spray.

Mes remerciements s'adressent également à Alexandre Labergue qui est un partenaire privilégié en salle d'expérimentation et avec qui j'ai réalisé de nombreuses expériences décrites dans ce mémoire.

Enfin, il me reste à remercier:

Mr Michel Wolf pour sa relecture et ses corrections.

Mr Didier Vignali, pour son aide précieuse dans la mise en forme de ce mémoire ainsi que ses encouragements réguliers du jeudi lorsque j'étais dans ma phase de rédaction.

Mon amie Laurence Nicolas, qui m'a aidé dans la préparation de la soutenance.

Tous les membres du jury, qui ont réalisé une lecture attentive de mon mémoire et m'ont élevé au grade de Docteur.

Je dédie ce mémoire à mes 3 enfants, mes parents, mes frère et sœur, ma tante Françoise et son mari Jean Paul.

*Confronté à la roche, le ruisseau l'emporte toujours, non par la force mais par la persévérance.*

H. Jackson Brown (Ecrivain américain)

*Un expert est une personne qui a fait toutes les erreurs qui peuvent être faites dans un domaine très étroit.*

Niels Bohr (1885-1962)

*Il y a deux façons de concevoir sa vie. Une est de penser que les miracles n'existent pas et l'autre de penser que chaque chose est un miracle.*

*La théorie, c'est quand on sait tout et que rien ne fonctionne. La pratique, c'est quand tout fonctionne et que personne ne sait pourquoi. Ici, nous avons réuni théorie et pratique : Rien ne fonctionne... et personne ne sait pourquoi !*

Albert Einstein (1879-1955)

# Sommaire

<b>Nomenclature</b>	<b>1</b>
---------------------	----------

<b>Introduction Générale</b>	<b>3</b>
------------------------------	----------

<b>Chapitre 1</b>	<b>7</b>
-------------------	----------

## **Etude bibliographique: les techniques de mesure non intrusives de la température dans les milieux liquides**

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b> .....	<b>7</b>
<b>1.2</b>	<b>Spectroscopie Raman spontanée</b> .....	<b>7</b>
<b>1.3</b>	<b>Thermométrie par réfractométrie d'arc-en-ciel</b> .....	<b>9</b>
1.3.1	Réfractométrie d'arc-en-ciel standard (SRT).....	9
1.3.2	Thermométrie d'arc-en-ciel global (GRT).....	11
<b>1.4</b>	<b>Techniques fondées sur la fluorescence induite par laser</b> .....	<b>13</b>
1.4.1	Techniques à un seul colorant.....	14
1.4.1.1	Introduction.....	14
1.4.1.2	Mesures de concentration.....	15
1.4.1.3	Mesures de température .....	15
1.4.1.4	Conclusions sur la technique à un colorant.....	17
1.4.2	Technique à deux colorants fluorescents .....	17
1.4.3	Technique à un seul colorant et deux couleurs .....	21
<b>1.5</b>	<b>Techniques fondées sur la fluorescence exciplex</b> .....	<b>23</b>
<b>1.6</b>	<b>Autres techniques</b> .....	<b>26</b>
1.6.1	Techniques fondées sur la phosphorescence.....	26
1.6.1.1	Introduction.....	26
1.6.1.2	Principes de la mesure.....	26
1.6.2	Technique basée sur les résonances morphologiques (cas d'un goutte).....	27
1.6.3	Comparaison des différentes techniques ( tableau récapitulatif).....	29

<b>Chapitre 2</b>	<b>33</b>
-------------------	-----------

## **La technique de fluorescence induite par laser (LIF)**

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b> .....	<b>33</b>
<b>2.2</b>	<b>Transitions radiatives</b> .....	<b>33</b>
<b>2.3</b>	<b>Thermostatistique des niveaux d'énergie</b> .....	<b>34</b>
<b>2.4</b>	<b>Principe de Franck-Condon</b> .....	<b>34</b>
<b>2.5</b>	<b>Transitions non radiatives</b> .....	<b>35</b>
<b>2.6</b>	<b>Fluorescence induite par laser</b> .....	<b>35</b>
<b>2.7</b>	<b>Cinétique de l'absorption</b> .....	<b>36</b>
<b>2.8</b>	<b>Signal de fluorescence</b> .....	<b>37</b>

<b>2.9</b>	<b>Détection de la fluorescence .....</b>	<b>39</b>
<b>2.10</b>	<b>Absorption sur le chemin optique.....</b>	<b>40</b>
<b>2.11</b>	<b>Chaîne de mesure de fluorescence.....</b>	<b>41</b>
<b>2.12</b>	<b>Fluorescence induite par laser en phase liquide.....</b>	<b>42</b>
2.12.1	Principes et modélisation .....	42
2.12.2	Réabsorption de la fluorescence.....	44
2.12.3	Applications à la mesure de température .....	44
<b>2.13</b>	<b>Etalonnage préalable des traceurs fluorescents dans le cadre de la LIF à deux couleurs .....</b>	<b>46</b>
2.13.1	Dispositif expérimental .....	46
2.13.2	Sélection des bandes spectrales de détection .....	48
2.13.3	Calibration en température.....	50

## **Chapitre 3 55**

### **Fluorescence multibande appliquée aux écoulements monophasiques**

<b>3.1</b>	<b>Introduction.....</b>	<b>55</b>
<b>3.2</b>	<b>Equations de base de la fluorescence.....</b>	<b>56</b>
<b>3.3</b>	<b>Principes de la fluorescence à 3 couleurs .....</b>	<b>57</b>
3.3.1	Introduction .....	57
3.3.2	Dispositif optique .....	59
3.3.3	Modèle de la fluorescence induite par laser à trois couleurs .....	59
3.3.4	Procédure de calibration.....	61
3.3.4.1	Calibration en température .....	61
3.3.4.2	Effet du chemin optique de la fluorescence .....	63
3.3.4.3	Calibration initiale de l'absorption et prise de la référence .....	67
<b>3.4</b>	<b>Validation du modèle de fluorescence à trois couleurs.....</b>	<b>67</b>
<b>3.5</b>	<b>Application de la fluorescence induite par laser à trois couleurs au cas d'un jet turbulent chauffé.....</b>	<b>69</b>
3.5.1	Dispositif expérimental .....	69
3.5.2	Expérience à concentration constante .....	71
3.5.3	Expérience à concentration variable .....	71
3.5.4	Résultats expérimentaux .....	72
3.5.4.1	Commentaires généraux.....	72
3.5.5	<i>Facteur d'expansion</i> .....	75
3.5.5.1	Normalisation des profils de température .....	76

## **Chapitre 4 81**

### **Application de la fluorescence multibande à la mesure de la température dans les sprays**

<b>4.1</b>	<b>Introduction.....</b>	<b>81</b>
<b>4.2</b>	<b>Dispositif expérimental .....</b>	<b>82</b>
4.2.1	Génération de sprays : Injecteur Danfoss.....	82

4.2.2	L'injecteur de gouttes monodisperse .....	84
4.2.3	Caractérisation granulométrique du spray .....	85
4.2.3.1	Le granulomètre Phase Doppler .....	85
4.2.3.2	La sonde d'émission laser .....	85
4.2.3.3	Principe de la mesure phase Doppler .....	86
4.2.3.4	Volume de mesure du PDA .....	89
4.2.3.5	Données granulométriques du spray issus de l'injecteur Danfoss .....	90
4.2.4	Fluorescence induite par laser multibande .....	92
4.2.4.1	Dispositif expérimental .....	92
<b>4.3</b>	<b>Caractéristique de la chaîne de mesure .....</b>	<b>97</b>
4.3.1	Mesure du signal de fluorescence en milieu monophasique .....	97
4.3.2	Mesure du signal de fluorescence issu de gouttes .....	100
4.3.2.1	Remarques liminaires .....	100
4.3.2.2	Signaux de fluorescence issus d'une goutte .....	101
4.3.2.3	Convergence statistique des signaux .....	103
4.3.3	Evolution du signal de fluorescence émis par une goutte en fonction du diamètre de la goutte : conséquences métrologiques .....	106
4.3.3.1	Détermination du champ interne d'une goutte par la TLMG .....	106
4.3.3.2	Etude expérimentale pour différentes tailles de goutte .....	107
4.3.3.3	Dynamique de la mesure par LIF en terme de taille de goutte .....	110
4.3.4	Application aux sprays polydispersés en taille .....	111
4.3.4.1	Conséquences de la polydispersion en taille et en vitesse .....	111
4.3.4.2	Exemple de traitement des gouttes et convergence statistique .....	113
4.3.4.3	Traitement des données dans le spray .....	115
<b>4.4</b>	<b>Couplage de la technique de fluorescence et du PDA .....</b>	<b>118</b>
4.4.1	Principes .....	118
4.4.2	Faisabilité de la méthode .....	118
4.4.3	Aspect pratique du couplage des deux techniques .....	119
4.4.4	Difficultés de mise en œuvre .....	120
<b>4.5</b>	<b>Application de la technique de fluorescence à la mesure de la température dans le spray .....</b>	<b>127</b>
4.5.1	Expériences préliminaires .....	127
4.5.2	Hypothèse de la diffusion de l'émission fluorescente .....	132
4.5.3	Influence de la distribution granulométrique des gouttes .....	134
4.5.4	Influence de la concentration du traceur fluorescent .....	135
4.5.5	Expériences sur des gouttes individuelles calibrées .....	136
4.5.6	Nouvelle approche de la modélisation du signal de fluorescence émis par une gouttelette .....	139
4.5.7	Tentative d'interprétation physique .....	140
4.5.8	Influence de la profondeur de champ du dispositif optique .....	141
4.5.9	Conclusion partielle .....	145
<b>4.6</b>	<b>Mesures couplées LIF/PDA dans le spray .....</b>	<b>145</b>
4.6.1	Remarques préliminaires .....	145
4.6.2	Conséquences métrologiques de l'environnement spray .....	147
4.6.3	Couplages LIF-PDA : résultats et interprétation .....	151
4.6.4	Utilisation d'une troisième bande spectrale de détection .....	155
4.6.5	Essais complémentaires avec un autre type d'injecteur .....	158
<b>4.7</b>	<b>Fluorescence induite par laser à trois couleurs appliquée aux sprays .....</b>	<b>162</b>

4.7.1	Principes généraux .....	162
4.7.2	Mesures de référence.....	163
4.7.3	Courbe de calibration dynamique .....	163
4.7.4	Test de la technique de fluorescence induite par laser à trois couleurs .....	164
4.7.4.1	Dispositif expérimental .....	164
4.7.4.2	Expériences liminaires .....	166
4.7.4.3	Mesures dans des conditions de saturation en vapeur.....	170
4.7.4.4	Remarques sur la courbe de calibration dynamique .....	173
4.7.5	Conclusions .....	173

---

**Conclusions et perspectives** **175**

---

**Références bibliographiques** **177**

# Nomenclature

## Symboles Latins

$C$	Concentration en traceur fluorescent
$D$	Diamètre des gouttes
$dx, dy, dz$	Dimensions de l'ellipsoïde constituant le volume d'excitation laser
$D_{10}, D_{20}, D_{32}$	Diamètres statistiques
$f$	Fréquence piézo céramique de l'injecteur monodisperse
$I_{f1}, I_{f2}, I_{f3}$	Intensités de fluorescence collectées sur les 3 voies de mesure
$\bar{I}_1, \bar{I}_2, \bar{I}_3$	Intensité moyenne de fluorescence sur les 3 voies spectrales de mesure
$I_{1g}, I_{2g}, I_{3g}$	Intégrations des intensités $I_1, I_2, I_3$ sur le passage de la goutte
$I_{LIF}$	Intensité de fluorescence mesurée en niveaux de 0 à 4095
$K_{opt}$	Constante optique
$K_{spec}$	Constante spectroscopique
$P$	Pression d'injection
$Q$	Débit volumique
$R_{12}, R_{32}$	Rapport de fluorescence moyen obtenu sur le temps de mesure $T_{mes}$
$S(\lambda)$	Spectre de fluorescence
$T_a, T_{tr}$	Temps d'arrivée et Temps de transit de la goutte dans le volume de mesure
$T$	Température
$T_{mes}$	Temps effectif de la mesure
$V$	Vitesse de la goutte
$V_c$	Volume de collection de l'optique LIF

## Symboles Grecs

$\beta$	Coefficient de sensibilité à la température
$\varepsilon$	Coefficient d'extinction moléculaire ou d'absorption
$\lambda$	Longueur d'onde
$\varphi$	Angle entre les faisceaux laser incidents et l'axe l'optique de réception du PDA

$\theta$  Demi angle au sommet formé par les deux faisceaux laser  
 $\rho$  Masse volumique

### **Indice**

0 Conditions de référence  
1,2,3 Relatif à la première voie de mesure  
inj Conditions d'injection



# Introduction Générale

Les sondes de température usuelles (thermocouples, sondes de platine) ont des limites bien connues : elles sont intrusives, ont une réponse temporelle limitée et subissent différents biais lorsqu'elles sont soumises à d'intenses gradients de température.

Dans de nombreuses configurations d'écoulements académiques ou industriels, il est nécessaire de mesurer la température locale dans une phase liquide, afin de caractériser finement les transferts de chaleur. Citons par exemple les échangeurs de chaleur gaz-liquide, les maquettes hydrauliques ou plus généralement les écoulements turbulents dans lesquels des transferts de chaleur sont impliqués. Des données expérimentales dépourvues de perturbations causées par l'intrusion de l'instrument de mesure, sur les champs dynamiques et thermiques de l'écoulement, sont nécessaires à la validation de modèles.

L'un des autres points clefs est la possibilité d'effectuer des mesures dans des écoulements diphasiques de type gaz-liquide, par exemple dans des écoulements à bulles ou encore dans des sprays. Dans ce dernier cas, le volume de mesure est exposé de manière alternée et aléatoire à la phase liquide ou à la phase gazeuse. Ainsi, si la température de la phase liquide est le paramètre d'intérêt, l'effet de la phase gazeuse sur la mesure devra être totalement négligeable.

Une méthode idéale de mesure de la température dans les écoulements en phase liquide doit être à la fois non intrusive et posséder une bonne résolution spatiale et temporelle et doit être non sensible à la fraction de liquide présente dans le volume de mesure. La technique de la fluorescence induite par laser semble être un bon candidat. Le principe de la technique consiste à induire la fluorescence d'un traceur en forte dilution moléculaire (typiquement quelque ppm) dans le liquide à étudier. Certains traceurs fluorescents présentent une sensibilité en température notable, de l'ordre de quelques pourcent par °C.

La technique de fluorescence induite par laser a souvent été utilisée avec un seul traceur et une seule bande spectrale de détection et permet d'atteindre une résolution temporelle de plusieurs dizaines de kHz pour un volume de mesure de quelques dizaines de  $\mu\text{m}^3$ . Cependant, cette technique est sensible à la fraction de liquideensemencée par le traceur contenue dans le volume de mesure. Plus récemment, des techniques à deux traceurs et deux bandes spectrales de détection, ou un traceur et deux bandes spectrales de détection sont apparues mettant en avant de nouvelles perspectives intéressantes. En effet ce type de technique à deux bandes de détection présente l'ensemble des qualités requises (résolution spatiale et temporelle) et est de plus insensible à la fraction de liquide dans le volume de mesure.

Après avoir fait le point sur différentes techniques de mesure non-intrusives de la température en phase liquide, ce manuscrit s'attachera à présenter les principes de base de la fluorescence induite par laser en phase liquide et son application particulière à la mesure de température.

Puis, sera présentée la technique de fluorescence induite par laser à trois couleurs, extension de la technique à deux couleurs dans le cas de grands chemins optiques et pour une concentration en traceur fluorescent non constante.

Enfin, le dernier chapitre s'attaquera à démontrer la possibilité d'extension de la fluorescence à un seul traceur et plusieurs bandes spectrales de détection à la mesure de la température de la phase liquide d'un spray.

La complexité de l'exercice sera tout particulièrement mise en évidence, du fait de plusieurs facteurs :

- la difficulté d'interpréter un signal issu d'une goutte présentant une interface sphérique liquide-gaz
- les problématiques associées au traitement du signal du fait de la polydispersion en taille des gouttelettes
- la difficulté liée à la validation des protocoles de traitement et d'inversion du signal.

En particulier, nous mettrons l'accent sur la complémentarité de la fluorescence multibande avec l'analyse granulométrique phase Doppler et nous montrerons la possibilité d'accéder à des températures de gouttes par classe de taille.

# **Chapitre 1**

**Etude bibliographique :  
les techniques de mesure non intrusives de la température  
dans les milieux liquides**



# Chapitre 1

## Etude bibliographique: les techniques de mesure non intrusives de la température dans les milieux liquides

### 1.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de donner un état de l'art des différentes techniques de mesure non intrusives permettant de mesurer la température dans les liquides en écoulement. Les applications visées concernent aussi bien les écoulements monophasiques que les sprays, sujet auquel nous nous intéresserons tout particulièrement dans ce mémoire.

Les principales techniques qui seront analysées ici sont :

- La spectroscopie Raman spontanée
- Les techniques fondées sur la réfractométrie d'arc-en-ciel
- Les techniques de fluorescence incluant les techniques à un ou plusieurs traceurs
- Les techniques de fluorescence exciplex
- Les techniques fondées sur la phosphorescence
- Les techniques fondées sur l'analyse des modes de résonance morphologiques

Les méthodes basées sur l'émission infrarouge sont peu utilisées dans les liquides, qui se comportent comme des milieux semi-transparents. Elles concernent essentiellement des mesures de température de surface de goutte. On pourra, par exemple, se référer aux travaux de Ravel (1997).

### 1.2 Spectroscopie Raman spontanée

D'une manière générale, la diffusion Raman résulte de chocs inélastiques entre des photons et les noyaux et les nuages électroniques de molécules diffusantes (Schweiger, 1990). Ainsi, le signal de diffusion Raman est influencé par divers paramètres thermodynamiques tels que la température, la pression du milieu dans lequel se trouvent ces molécules. L'analyse du signal peut donc permettre d'obtenir des informations sur ces paramètres. Le signal provenant de la diffusion Raman correspond à des sections efficaces de diffusion faible, ce qui implique que l'excitation Raman nécessite des sources laser de forte puissance et fortement focalisées.

Le décalage spectral Raman entre la source laser et la lumière diffusée par les molécules dépend de l'énergie vibrationnelle et rotationnelle de ces molécules. Ainsi, la diffusion Raman peut également être utilisée pour discriminer finement différentes espèces moléculaires. Des mesures de concentration moléculaire locale par diffusion Raman induite par un laser excimer KrF ont été obtenues sur de l'éthanol et du méthanol liquide s'évaporant (Müller et al., 2000). La densité de puissance nécessaire est de l'ordre de  $1\text{GW}/\text{cm}^2$ , cependant celle-ci doit être limitée afin d'éviter les effets Raman stimulée. La spectroscopie par diffusion Raman permet également de mesurer la température d'un milieu monophasique ou diphasique. La position des pics Raman dans le spectre (figure 1.1) est fortement influencée par la formation de liaison hydrogène. Seule une fraction des molécules forme des polymères du fait des liaisons H et la fraction de polymère formée diminue lorsque la température augmente. La quantité de polymères formée (par exemple OH) influence donc le décalage spectral Raman et la comparaison à un étalonnage de référence permet de déterminer la température (figure 1.2). Cependant, il faut noter que dans le cas des écoulements diphasiques, tels qu'un spray d'éthanol étudié par Müller et al. (2000), il est difficile de différencier les contributions respectives des phases liquides et gazeuses.

Un certain nombre de difficultés inhérentes à la technique de diffusion Raman peuvent être identifiées :

- la mise en œuvre de la technique est délicate et nécessite une analyse spectrale finement résolue
- le signal est en général faible et l'utilisation de densité de puissance laser élevée est nécessaire
- des difficultés sont rencontrées pour distinguer l'interface liquide-gaz dans le cas des sprays
- la dépendance du signal en température est liée à la présence de liaisons hydrogènes, comme dans le cas de l'eau ou des alcools.

L'atout principal de la technique Raman est que la température peut être mesurée simultanément à d'autres paramètres tels que la concentration en vapeur par exemple (voir Müller et al, 2000).

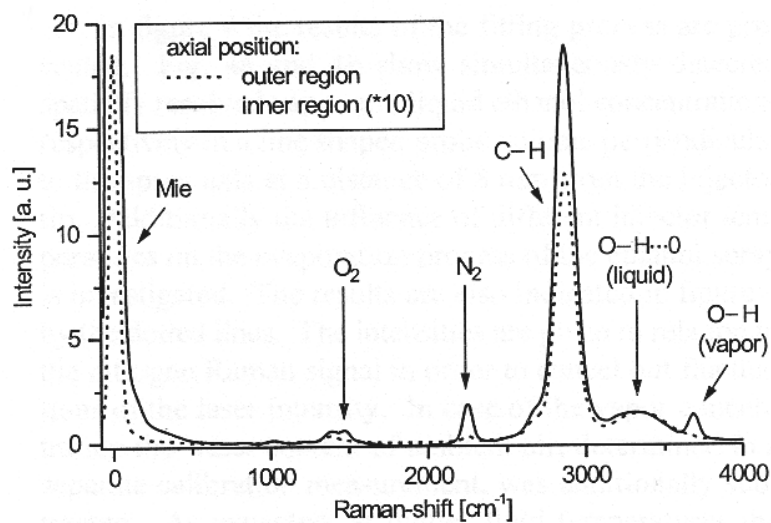


Figure 1.1 : Exemple d'un spectre Raman détecté dans un spray d'éthanol (d'après Muller et al., 2000)

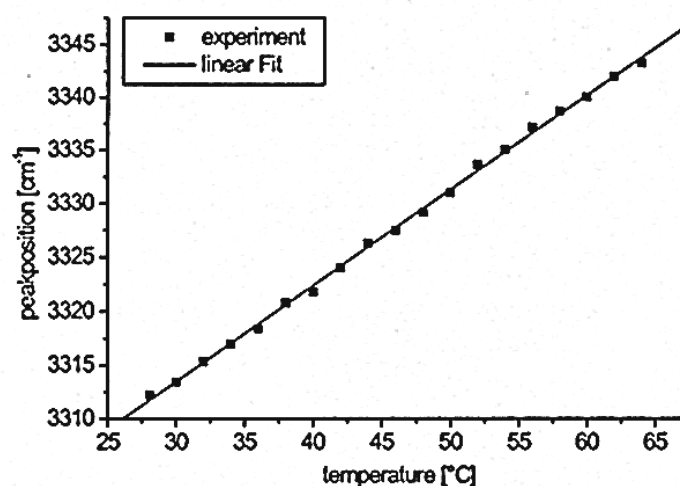


Figure 1.2 : Exemple de calibration de la position spectrale du pic de OH mesuré en phase liquide en fonction de la température (d'après Muller et al., 2000).

### 1.3 Thermométrie par réfractométrie d'arc-en-ciel

La thermométrie par réfractométrie d'arc-en-ciel, fondée sur la diffusion élastique de la lumière, est une technique principalement destinée à la mesure de températures de gouttes individuelles sphériques. On parle alors de technique d'arc-en-ciel standard (SRT). Cette technique est fondée sur la mesure de l'indice de réfraction lui-même dépendant de la température.

Des développements plus récents de la technique, appelés thermométrie d'arc-en-ciel global (GRT), permettent à la fois d'obtenir des informations sur la température de la phase liquide et sur la distribution granulométrique du spray, tout en évitant certains inconvénients liés à la technique d'arc-en-ciel ponctuelle.

#### 1.3.1 Réfractométrie d'arc-en-ciel standard (SRT)

Les principes et un certain nombre de résultats concernant la réfractométrie d'arc-en-ciel standard se trouvent dans les travaux initiaux de Roth et al. (1991, 1992, 1996) tout d'abord appliqués à la mesure de température et de taille de gouttes monodisperses en évaporation ou en combustion. Les travaux de Van Beeck et Riethmuller (1994, 1995, 1996) et de Walker (1976) se sont intéressés à la mesure de température de gouttes individuelles dans un spray. Un faisceau laser, polarisé perpendiculairement au plan de diffusion, illumine un spray. L'arc-en-ciel peut être défini comme une figure de diffusion résultant de la superposition des rayons lumineux ayant interagis trois fois avec l'interface de la goutte (figure 1.3).

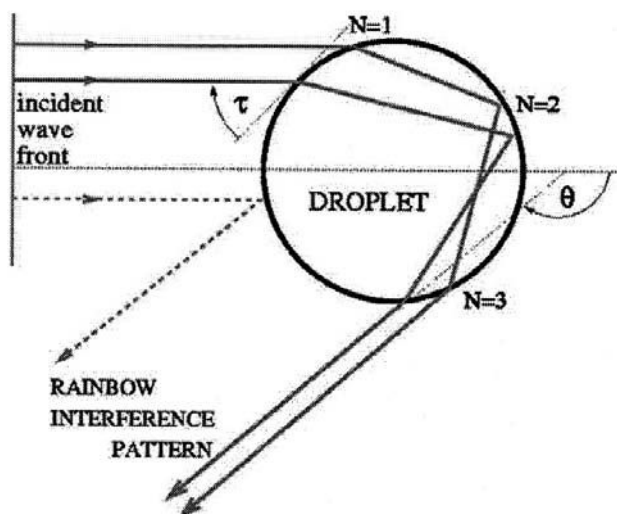


Figure 1.3 : Trajet des rayons lumineux à travers une sphère d'indice supérieur au milieu extérieur (d'après Vetrano et al., 2005).

La combinaison d'une lentille et d'un trou d'épingle permet de générer un filtre spatial définissant un volume de mesure dans lequel passe une seule goutte à un instant donné. Un système d'imagerie approprié projette la lumière diffusée issue d'une seule particule sur une caméra CCD, dans la direction de l'arc-en-ciel. Chaque pixel de la matrice CCD correspond à une petite fraction angulaire de la figure d'arc-en-ciel associée à une particule unique (figure 1.4). Cette figure d'arc-en-ciel est composée d'une structure à basse fréquence (franges d'Airy) modulée par une structure haute fréquence (le ripple) correspondant à des phénomènes d'interférences entre des réflexions internes et externes du faisceau laser par la surface de la goutte (figure 1.5). La position des franges d'Airy dépend à la fois de l'indice de réfraction du liquide (et donc de sa température) et du diamètre de la goutte. Pour cela, la SRT a été utilisée

simultanément avec un granulomètre phase Doppler (Sankar et al., 1996) afin de minimiser l'erreur sur la mesure de l'indice de réfraction. Des applications à la mesure de l'échauffement de gouttes de combustible ont été réalisées à l'aide de cette technique (Sankar et al., 1997). A titre d'exemple, la figure d'arc-en-ciel se déplace angulairement de  $2,3^\circ$  lorsque la température augmente de 0 à  $100^\circ\text{C}$ , dans le cas de l'eau. Les deux premiers maxima des franges d'Airy sont utilisés afin de déterminer l'indice de réfraction et le diamètre de la particule. Cependant, la structure de ripple doit être préalablement filtrée afin d'avoir une détermination précise de la position angulaire des deux premiers maxima d'Airy. Cette technique reste relativement précise pour des gouttes de diamètre supérieur à  $30\ \mu\text{m}$ . Pour des gouttes de plus petite taille, la structure de ripple devient très importante, la localisation des maxima d'Airy devient difficile et la précision de la mesure se dégrade fortement (Massoli, 1998). La présence de gradients de température à l'intérieur même la goutte influence également fortement la mesure de l'indice de réfraction (Anders et al., 1995, Massoli 1998), et c'est une situation fréquente pour des gouttes en phase d'échauffement ou dans le cas de gouttes multicomposants. Ces gradients entraînent une déviation des rayons lumineux par rapport au cas de la goutte homogène (figure 1.6). La figure d'arc-en-ciel est donc décalée, ce qui implique une mesure de température sur-ou sous-évaluée suivant le sens des gradients (Laurent, 2008).

Par ailleurs, la mesure du décalage de l'arc-en-ciel du fait de la présence de gradients d'indice de réfraction, associée à une mesure de la température moyenne de la goutte obtenue à l'aide d'une autre technique telle que la fluorescence induite par laser à deux couleurs (Lavieille et al., 2001), permet d'obtenir une estimation du gradient de température à l'intérieur de la goutte, en s'appuyant sur l'hypothèse d'un profil parabolique de distribution des indices à l'intérieur de la goutte (Laurent, 2008).

Outre la présence de gradients d'indices de réfraction, la forme même des gouttelettes influence fortement la position de l'arc-en-ciel, ce qui peut induire une forte erreur sur la mesure de la température (VanBeeck et Riethmuller, 1995). Cette dépendance à l'écart à la sphéricité peut d'ailleurs être appliquée à la détection de gouttelettes non sphériques (VanBeeck et al., 1996)

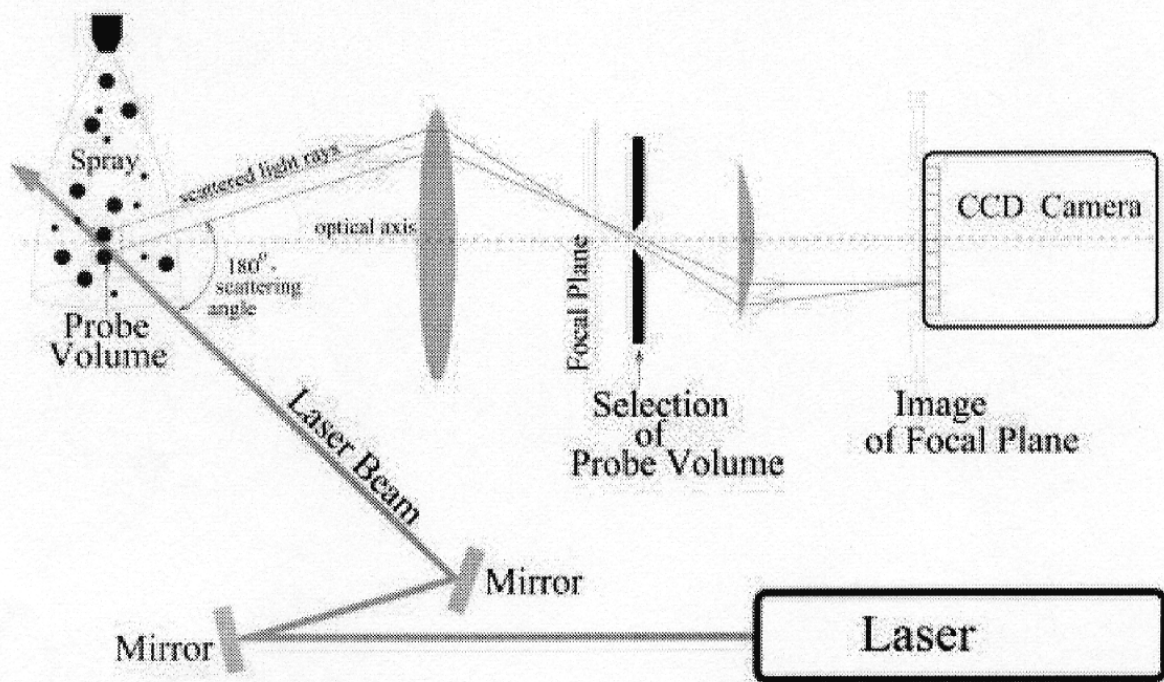


Figure 1.4 : Dispositif d'arc-en-ciel standard.



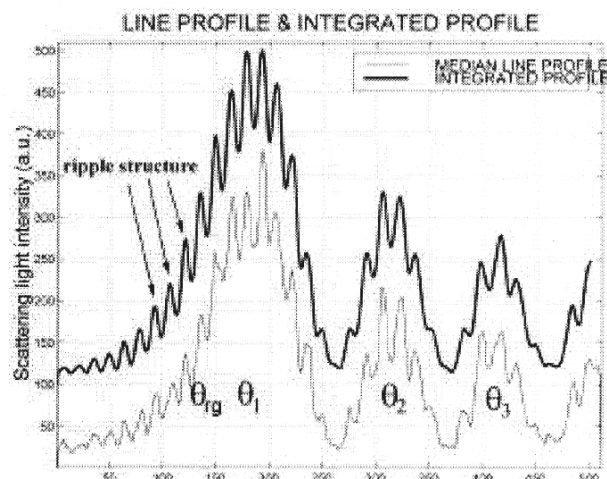


Figure 1.5: Enregistrement d'une figure d'arc-en-ciel (d'après Van Beeck and Riethmuller, 2000).

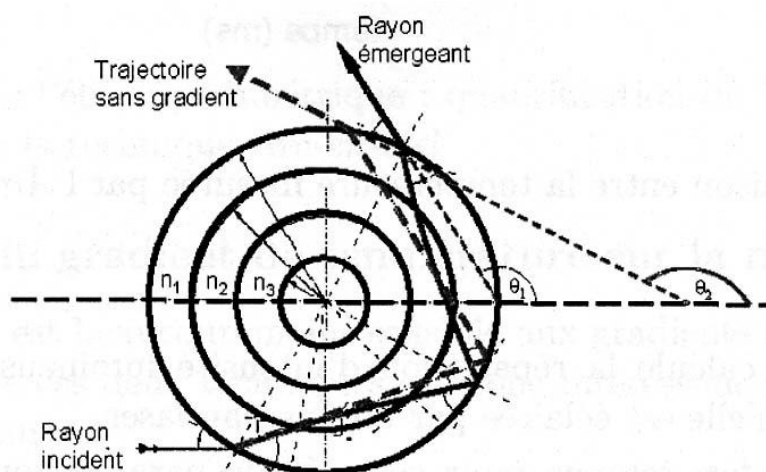


Figure 1.6: Déviation des rayons lumineux par la présence de gradients d'indice de réfraction dans la goutte (d'après Laurent, 2008).

### 1.3.2 Thermométrie d'arc-en-ciel global (GRT)

Cette technique a été initiée par VanBeeck et Riethmuller (1997) à l'institut Von Karman (Bruxelle). La GRT permet de déterminer la température et la distribution de taille associée à un ensemble de gouttelettes. La technique permet en outre d'éliminer les biais créés par les gouttes non sphériques. Un faisceau laser étendu de quelques millimètres de diamètre, illumine le spray, ce qui signifie que toute goutte traversant le volume d'illumination contribue à construire la figure d'arc-en-ciel, appelée arc-en-ciel global, qui peut ainsi être enregistrée sur une caméra CCD. Dans cette situation, les franges d'Airy sont très stables en dépit de la présence de gouttes non sphériques. Les réseaux de franges d'Airy résultent de la superposition d'interférences constructives produites par les gouttes sphériques. Les franges d'interférences correspondant aux gouttes non sphériques sont distribuées de manière aléatoire et forment un bruit de fond uniforme par interférence destructive. De plus, la structure de ripple n'est plus visible, ce qui facilite la détection des maxima d'Airy.

En général, la distribution en taille du spray influence l'écart angulaire entre les franges d'Airy alors que la température fixe la position absolue de l'angle d'arc-en-ciel.

Les algorithmes d'inversion de la figure d'arc-en-ciel peuvent utiliser les points d'inflexion des deux premiers maxima d'Airy ( $\theta_1$  et  $\theta_2$ ) (figure 1.8). La technique GRT fournit une valeur moyenne de la taille des gouttes et de la température du liquide dans le volume de mesure étendu. Considérons par exemple une distribution de taille  $f(D)$  de type log-normale du diamètre des gouttes  $D$  :

$$f(D) = \frac{1}{\sigma D \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2} \left[ \frac{\ln(D/\delta)}{\sigma} \right]^2} \quad (1.1)$$

où  $\delta$  représente la valeur moyenne du diamètre et  $\sigma$  un paramètre de dispersion de la taille autour de la valeur moyenne.

La figure 1.9 présente l'évolution de l'angle d'arc-en-ciel  $\theta_{rg}$  déduit des deux premiers maxima d'Airy en fonction du paramètre de dispersion de la fonction densité de probabilité de taille des gouttes, pour différents diamètres moyens  $\delta$ . La déviation angulaire maximale n'excède jamais  $0,025^\circ$  du fait de la dispersion en taille, ce qui conduit à une incertitude sur la mesure de la température inférieure à  $1^\circ$ , dans le cas de l'eau. Il est aussi intéressant de noter que la technique permet de fournir une estimation raisonnable du paramètre de dispersion  $\sigma$ , pour  $\sigma < 0,4$ . En revanche, le diamètre moyen estimé  $D_{Airy}$  surestime le diamètre moyen de Sauter.

Des algorithmes d'inversion plus récents sont fondés sur la comparaison d'une figure d'arc-en-ciel calculée et de l'arc-en-ciel enregistré expérimentalement, traité préalablement par un lissage (Vetrano et al., 2004 et 2005). Le diagramme d'intensité d'un ensemble de particules est calculé en sommant les intensités diffusées correspondant à chacune des gouttelettes pondérées par une densité de probabilité associée à la distribution statistique de taille, d'indice de réfraction (variant avec la température ou la composition) et d'ellipticité des particules (rapport des deux axes principaux de l'ellipsoïde) (van Beeck et al., 2001). Les densités de probabilité associées à chacune de ces variables sont en générale présumées; Van Beeck et al. (2001) ont suggéré d'utiliser une densité de probabilité de type log-normale pour la distribution en taille et de type gaussienne pour les distributions de l'indice et de l'ellipticité. Ces paramètres sont également supposés non corrélés.

D'une manière générale, la précision de la GRT réside dans la mesure précise des angles absolus liés à la figure d'arc-en-ciel; une procédure de calibration a été proposée par Vetrano et al. (2005), utilisant un angle de référence afin de déterminer la position absolue des franges. Les corrélations potentielles entre les distributions de taille, de température et d'ellipticité influent également sur la qualité de la mesure. De plus, les gradients de température dans les gouttes ont également une influence certaine. Ces points ont encore été peu explorés dans la littérature, à notre connaissance.

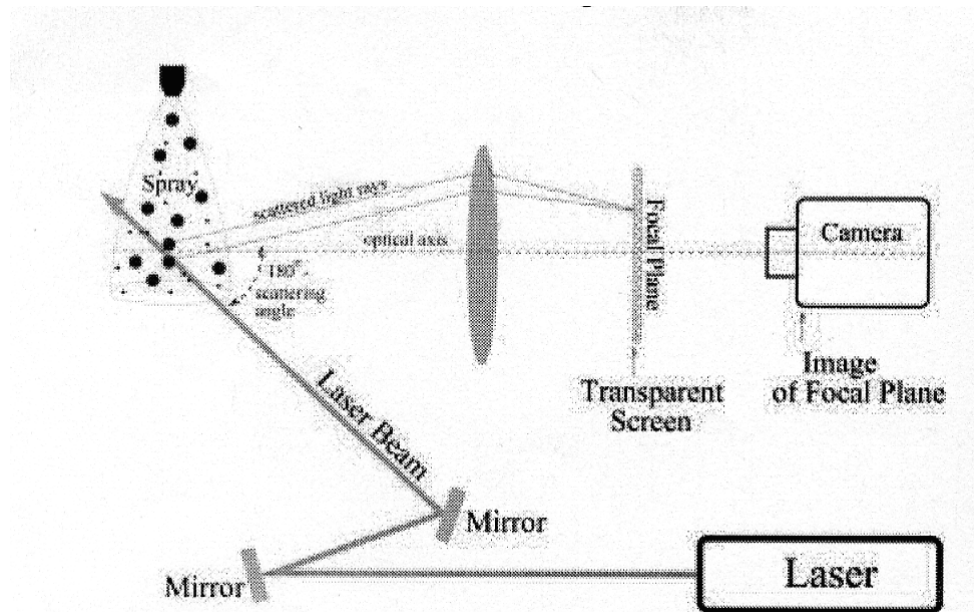


Figure 1.7 : Dispositif expérimental de réfractométrie d'arc-en-ciel global.

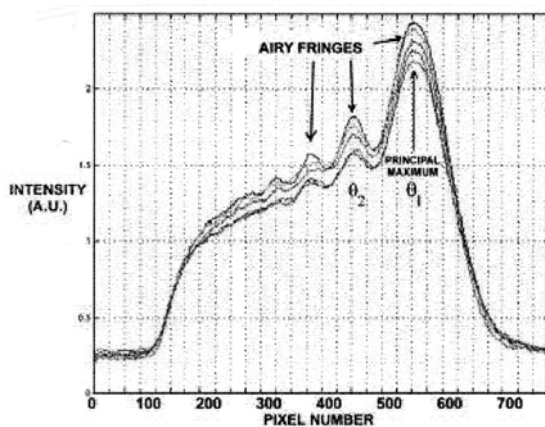


Figure 1.8 : Enregistrement d'un arc-en-ciel global (à quatre instants différents).

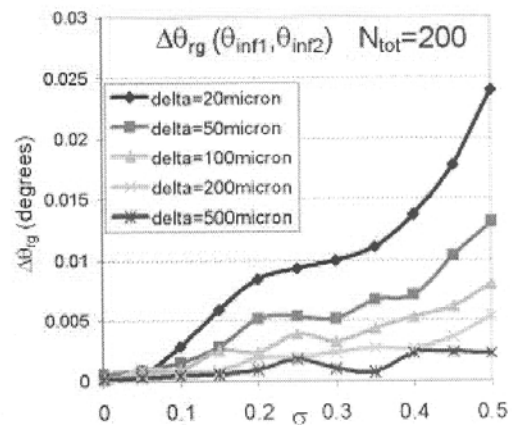


Figure 1.9 : Déviation de  $\theta_{rg}$  à partir de sa valeur à  $\sigma=0$  en fonction de  $\sigma$  pour différentes valeurs du diamètre moyen  $\delta$ .

## 1.4 Techniques fondées sur la fluorescence induite par laser

Le phénomène de fluorescence est la conséquence de la désactivation d'un état moléculaire excité singulet. L'état excité peut être peuplé par une excitation laser présentant une longueur d'onde accordée sur le spectre d'absorption du traceur fluorescent préalablement dissout dans le milieu liquide. En phase liquide, ce traceur fluorescent est fréquemment un colorant organique.

Le signal de fluorescence émis présente une dépendance au nombre de molécules dans l'état excité, lui-même dépendant de la concentration moléculaire du traceur en solution, de la température et également du pH. De nombreuses applications de la fluorescence induite par laser existent. Celles-ci utilisent en général un colorant fluorescent et une bande spectrale de détection. Plus récemment sont apparues des techniques à deux traceurs fluorescents et deux bandes spectrales de détections ou encore un colorant fluorescent et deux bandes spectrales de

détection. Ces techniques sont en général référencées sous l'appellation de fluorescence induite par laser à deux couleurs.

## 1.4.1 Techniques à un seul colorant

### 1.4.1.1 Introduction

Dans ce type de techniques, l'écoulement estensemencé avec une très faible concentration (typiquement quelques ppm) d'un colorant fluorescent. Les techniques à un seul colorant permettent de mesurer soit la concentration de celui-ci, soit la température du liquide lorsque l'un de ces deux paramètres ne varie pas. Le volume de mesure, correspondant à l'intersection des domaines d'excitation et de collection du signal de fluorescence doit également être maintenu constant tout au long de l'expérience, ce qui interdit l'expérimentation dans un écoulement présentant une interface liquide-gaz variant dans le volume de mesure, comme dans le cas d'un spray par exemple. On peut citer le cas exceptionnel où l'ensemble des paramètres peut être totalement contrôlé, comme dans le cas des travaux de Lavieille et al. (2000), s'intéressant à un jet de gouttes monodisperse parfaitement périodique.

Lorsque la température du milieu est constante, la concentration locale du traceur fluorescent peut être mesurée (Walker, 1987 ; Karasso and Mungal, 1997, Lemoine et al., 1996) et lorsque la concentration du traceur fluorescent est constante, la température du liquide peut être déterminée (Lemoine et al., 1999 ; Nakajima et al., 1993). La sélection du traceur fluorescent prend une importance toute particulière pour la mesure de température, du fait que cette sensibilité varie de manière significative d'un colorant à l'autre. La rhodamine B et le kiton red (ou sulforhodamine B) sont d'excellents traceurs sensibles à la température (Copetta and Rogers, 1998) et leur fluorescence peut être aisément induite par des lasers commerciaux courants tel que la raie verte du laser à argon ionisé ( $\lambda=514.5$  nm) ou la raie correspondant à la deuxième harmonique du laser Nd-Yag ( $\lambda =532$  nm). D'une manière générale, l'intensité de l'émission de fluorescence  $I_f$  s'écrit:

$$I_f = K_{opt} I_{laser} V_c C \eta \epsilon_1 e^{-\int_0^b \epsilon_1 C(x) dx} e^{-\int_0^c \epsilon_2 C(y) dy} \quad (1.2)$$

où  $K_{opt}$  est une constante optique, le produit  $V_c C$  représentant le nombre total de molécules excitées,  $C$  étant la concentration molaire du traceur fluorescent et  $V_c$  le volume de collection des photons . La grandeur  $\epsilon_1$  désigne le coefficient d'extinction molaire à la longueur d'onde d'excitation et  $\epsilon_2$  celui à la longueur d'onde de la fluorescence alors que  $\eta$  est le rendement quantique de fluorescence.  $I_{laser}$  représente l'intensité laser incidente et les paramètres  $e$  et  $b$  désignent les chemins optiques pour le faisceau laser et pour le signal de fluorescence respectivement (voir figure 1.10).

Les coefficients d'extinction  $\epsilon_1$  and  $\epsilon_2$  peuvent dépendre du pH et de la température, en fonction du colorant fluorescent considéré. Le rendement quantique de fluorescence  $\eta$  dépend lui aussi de la température et de la composition du milieu liquide.

D'une manière générale, le signal de fluorescence est détecté sur une large bande spectrale suffisamment décalée par rapport au spectre d'absorption afin d'éviter les phénomènes d'absorption de la fluorescence.

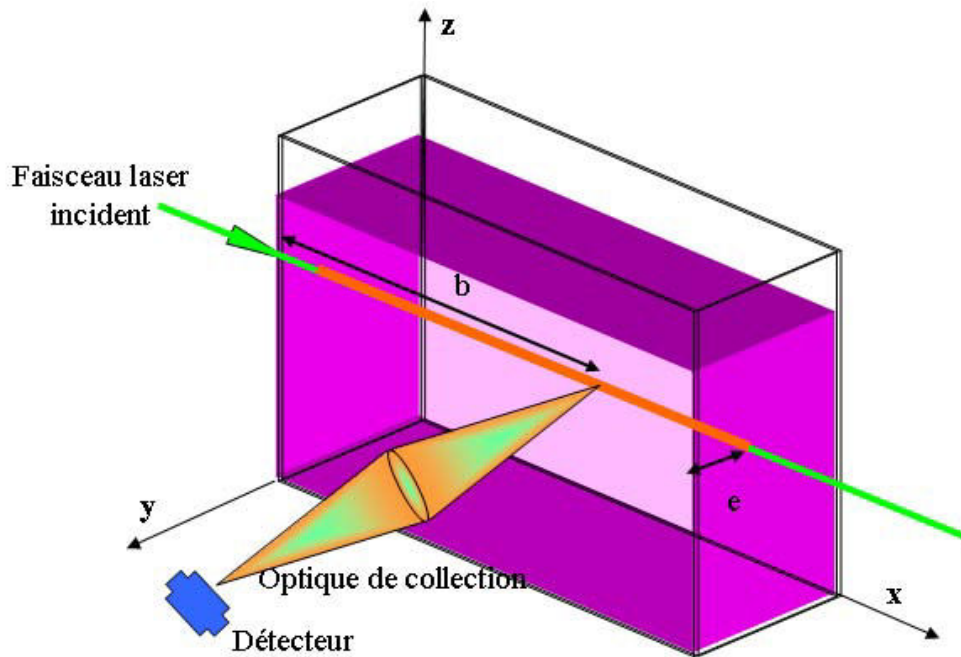


Figure 1.10 : Définition des différents chemins optiques.

#### 1.4.1.2 Mesures de concentration

L'utilisation de niveaux de concentration très faibles (de  $10^{-7}$  mol/l à  $10^{-6}$  mol/l) permet de rendre négligeable les phénomènes d'absorption du faisceau laser incident. Dans ce cas, l'intensité de fluorescence devient proportionnelle à la concentration locale du traceur fluorescent si l'intensité laser et le volume de collection des photons est maintenu constant tout au long de l'expérience.

Si l'absorption du faisceau incident n'est pas négligeable, une technique d'imagerie globale (excitation par plan laser et détection de la fluorescence à l'aide d'une camera matricielle) permettra une correction de l'absorption de proche en proche (Auban et al., 2001).

La technique à un seul colorant peut être utilisée en tant que méthode ponctuelle ou méthode d'imagerie globale. Elle peut aisément être combinée à la vélocimétrie laser ou à la PIV. De telles mesures combinées ont permis d'étudier les processus de mélange de constituants et de la chaleur par la turbulence dans des écoulements de type turbulence de grille ou jets (Lemoine et al., 1996, Papanicolaou and List, 1988, Antoine et al., 2001).

#### 1.4.1.3 Mesures de température

L'expression (1.2) peut aussi être utilisée pour déterminer la température locale de l'écoulement en modélisant le rendement quantique de fluorescence et le coefficient d'extinction  $\varepsilon_f$ . Lemoine et al. (1999) ont montré que le signal de fluorescence pouvait s'exprimer en fonction de la température selon l'expression suivante:

$$I_f = K_{opt} K_{spec} I_{laser} V_c C e^{\beta/T} e^{-\int_0^b \varepsilon_1 C(x) dx} e^{-\int_0^e \varepsilon_2 C(y) dy} \quad (1.3)$$

où  $\beta$  est un paramètre représentant la sensibilité en température du signal de fluorescence et  $T$  est la température absolue.  $K_{spec}$  est une constante spectroscopique incluant l'ensemble des propriétés spectroscopiques du traceur fluorescent dans son solvant.

Mesurer la température à l'aide du signal de fluorescence nécessite l'utilisation d'une concentration constante en traceur fluorescent dans tout le champ de l'écoulement. De plus, la

puissance laser doit être maintenue constante durant toute l'expérience. Dans le cas de la rhodamine B, le coefficient d'extinction  $\varepsilon_2$  présente peu de dépendance en température. Le processus de détection est similaire à celui utilisé pour la mesure de concentration. Trois cas doivent être considérés :

1- L'absorption du faisceau laser incident et du signal de fluorescence sont négligeables,

ce qui signifie que  $e^{-\int_0^b \varepsilon_1 C(x) dx} e^{-\int_0^c \varepsilon_2 C(y) dy} \approx 1$ . La mesure de température est donc déduite à l'aide d'un seul point de référence  $T_0$  où la température est connue, ce qui permet ainsi d'éliminer les constantes optiques et spectroscopiques. La température est alors déduite de la relation:

$$\ln\left(\frac{I_f}{I_{f0}}\right) = \beta\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) \quad (1.4)$$

où l'indice '0' désigne les conditions de référence.

2- L'absorption du faisceau laser incident n'est pas négligeable, mais celle du signal de fluorescence demeure négligeable. Une référence doit alors être déterminée dans chaque plan de mesure  $(y,z)$  perpendiculaire au faisceau laser (figure 1.11).

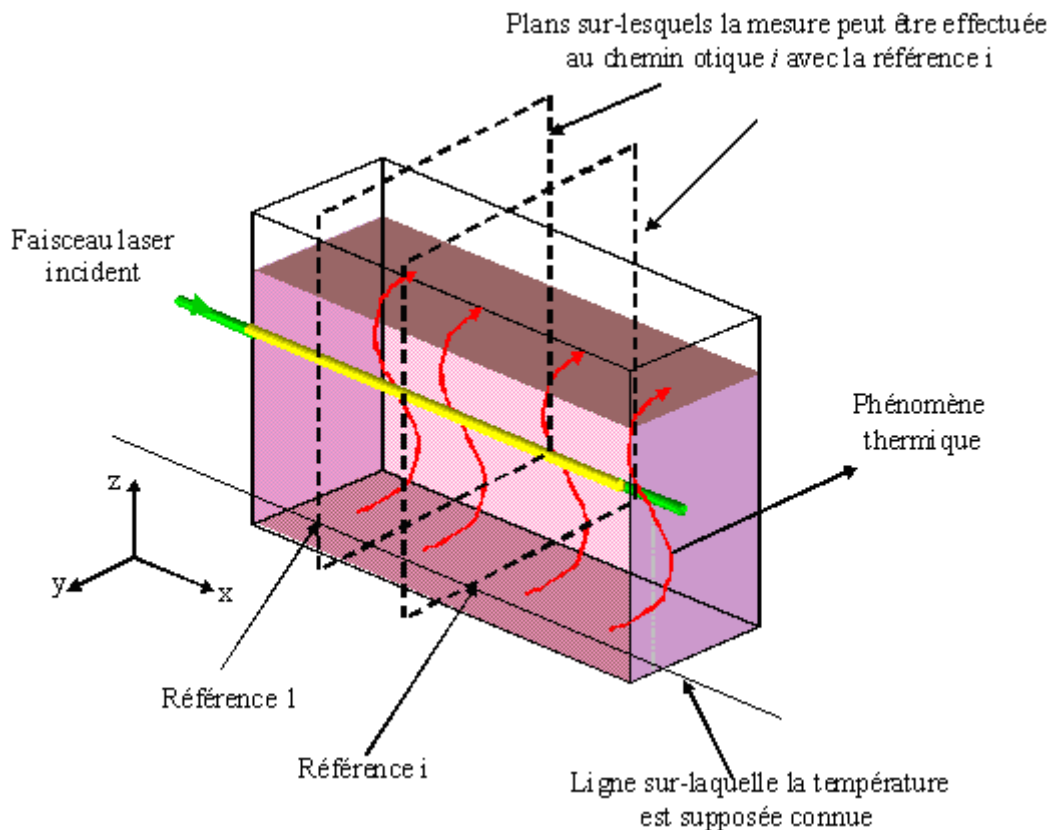


Figure 1.11 : Principe de la mesure lorsque l'absorption du faisceau laser est non négligeable.

3- Lorsque les deux termes d'absorption sont non négligeables, une référence doit être déterminée pour chaque plan  $(y,z)$  et les mesures peuvent être effectuées valablement le long de l'axe  $z$ , avec cette référence (figure 1.12).

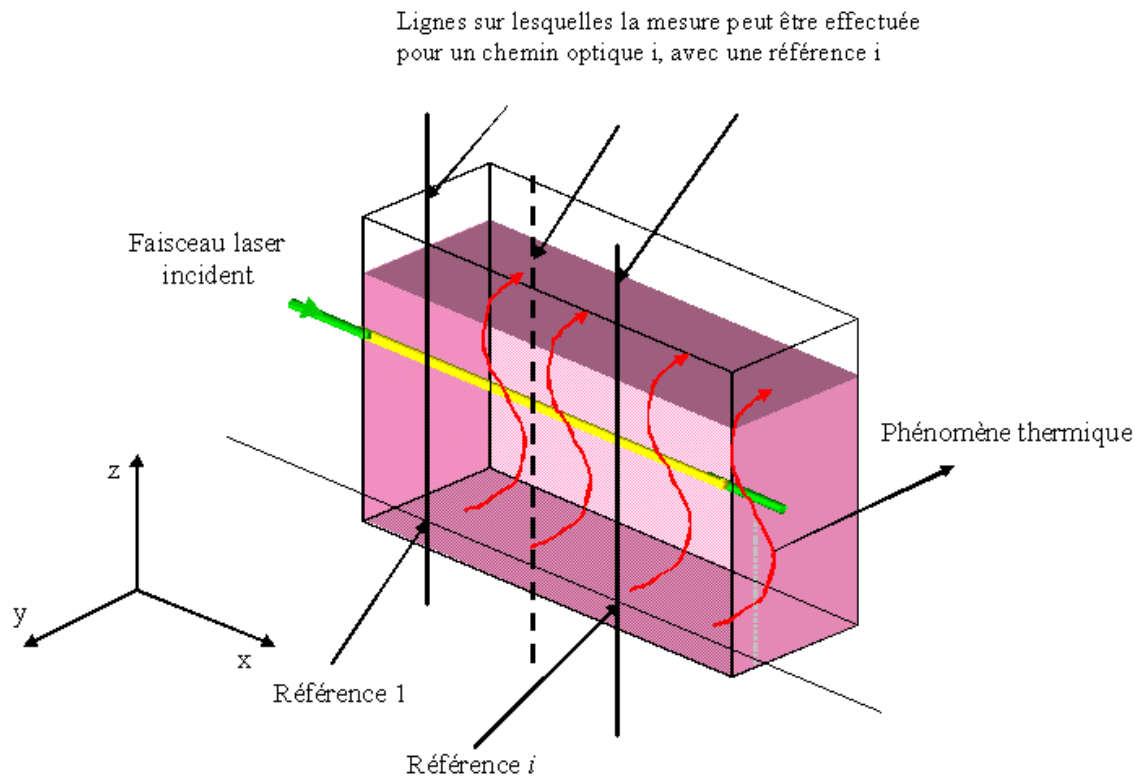


Figure 1.12 : Principe de la mesure avec influence de l'absorption du faisceau laser incident et du signal de fluorescence. .

#### 1.4.1.4 Conclusions sur la technique à un colorant

Le principal avantage de la technique à un colorant est la simplicité de mise en œuvre et de son dispositif expérimental. De plus, des quantités fluctuantes (concentrations ou températures) peuvent être déterminées (Papanicolaou and List, 1988 ; Lemoine et al., 1996 ; Lemoine et al., 1999).

Les principaux inconvénients sont:

- l'ensemble des paramètres doit être contrôlé et maintenu constant durant l'expérience: concentration en colorant, intensité laser, volume de collection.
- les phénomènes d'absorption du faisceau incident et de la fluorescence doivent être pris en compte,
- il n'est pas possible d'appliquer cette technique aux écoulements diphasiques, c'est à dire lorsqu'une interface liquide-gaz variable est présente, ce qui ferait varier le volume de collection des photons.

### 1.4.2 Technique à deux colorants fluorescents

Afin d'éviter les inconvénients des techniques à un seul colorant appliquées à la mesure de température, certains auteurs ont préconisé l'utilisation d'un mélange de deux colorants (Copetta and Rogers, 1998 ; Hishida and Sakakibara, 2000 ; Sakakibara and Adrian, 1999, Lavieille et al., 2000, Sakakibara and Adrian, 2004).

Rappelons brièvement les inconvénients des techniques à un seul colorant :

- La technique est sensible à l'éclairement laser incident  $I_{laser}$  qui peut être influencé par différents phénomènes : divergence du faisceau, réfraction de la lumière du fait d'un gradient thermique, stabilité du laser dans le temps.
- le nombre de molécules émettant de la fluorescence dans le volume de mesure doit être maintenu constant, c'est-à-dire le produit de la concentration molaire du traceur par le volume excité vu par le dispositif de collection.

Dans la technique à deux colorants, deux colorants fluorescents sont introduits dans l'écoulement. L'un des colorants doit être très sensible à la température, l'autre doit y être insensible ou pratiquement insensible.

De plus, les spectres de fluorescence de chacun des colorants doivent être suffisamment séparés pour permettre de séparer par voie optique les signaux issus de chacun d'entre eux. Ajoutons que les spectres d'absorption doivent présenter un domaine commun afin d'exciter le colorant avec une seule et unique longueur d'onde. La rhodamine B est en général utilisée comme traceur sensible à la température. La rhodamine 110 présente une partie de son spectre d'absorption commune avec la rhodamine B et est peu sensible à la température (0.13%/K selon Sakakibara and Adrian, 1999) (figure 1.13 et 1.14).

Dans un premier temps, les phénomènes de réabsorption de la fluorescence sur le chemin optique seront négligés. En principe, la fluorescence issue du colorant A peut être réabsorbée par le colorant A lui-même ou par le colorant B. Ces phénomènes, nommés conflits spectraux, constituent une source d'erreur majeure pour la technique à deux colorants. Ces phénomènes seront discutés ultérieurement.

Le signal de fluorescence issu du colorant A (rhodamine B par exemple) peut être exprimé par:

$$I_{fA} = K_{optA} K_{specA} I_{laser} V_c C_A e^{\beta_A/T} e^{-\int_0^b \varepsilon_{1A} C_A(x) + \varepsilon_{1B} C_B(x) dx} \quad (1.5)$$

et pour le colorant B (rhodamine 110 par exemple) :

$$I_{fB} = K_{optB} K_{specB} I_{laser} V_c C_B e^{\beta_B/T} e^{-\int_0^b \varepsilon_{1A} C_A(x) + \varepsilon_{1B} C_B(x) dx} \quad (1.6)$$

Deux photodétecteurs ( $\nu$  et  $\omega$ ) (photomultiplicateurs ou cameras CCD) détectent chacun une partie de l'émission du colorant A et du colorant B, ceci en dépit de la séparation spectrale des spectres d'émission (figure 1.13).

Les signaux détectés par chacune des voies de mesure:

$$I_{f\nu} = F_A^\nu I_{fA} + F_B^\nu I_{fB} = I_{laser} e^{-\int_0^b \varepsilon_{1A} C_A(x) + \varepsilon_{1B} C_B(x) dx} V_c \left[ F_A^\nu K_{optA} K_{specA} C_A e^{\beta_A/T} + F_B^\nu K_{optB} K_{specB} C_B e^{\beta_B/T} \right] \quad (1.7)$$

$$I_{f\omega} = F_A^\omega I_{fA} + F_B^\omega I_{fB} = I_{laser} e^{-\int_0^b \varepsilon_{1A} C_A(x) + \varepsilon_{1B} C_B(x) dx} V_c \left[ F_A^\omega K_{optA} K_{specA} C_A e^{\beta_A/T} + F_B^\omega K_{optB} K_{specB} C_B e^{\beta_B/T} \right] \quad (1.8)$$

où  $F_A^\nu$  et  $F_A^\omega$  sont les fractions de l'émission du colorant A détectés par les détecteurs  $\nu$  et  $\omega$  respectivement et pareillement pour  $F_B^\nu$  et  $F_B^\omega$ .

Notons maintenant la quantité  $I_{laser} e^{-\int_0^b \varepsilon_{1A} C_A(x) + \varepsilon_{1B} C_B(x) dx}$  par  $I_0$ .



Les fractions  $F$  et les constantes optiques et spectroscopiques sont mesurées en annulant la concentration de l'un des deux colorants et en mesurant l'intensité reçue par les deux détecteurs à une température  $T_0$  connue.

Cette expérience constitue l'expérience de référence et sera indiquée par '0'.

La calibration initiale permet de déterminer:

$$\begin{aligned}
 K_{optA} K_{specA} F_A^v &= \frac{I_{fv}(C_B = 0)}{I_{00} V_c C_{A0} e^{\beta_A/T_0}} \\
 K_{optA} K_{specA} F_A^\omega &= \frac{I_{f\omega}(C_B = 0)}{I_{00} V_c C_{A0} e^{\beta_A/T_0}} \\
 K_{optB} K_{specB} F_B^v &= \frac{I_{fv}(C_A = 0)}{I_{00} V_c C_{B0} e^{\beta_B/T_0}} \\
 K_{optB} K_{specB} F_B^\omega &= \frac{I_{f\omega}(C_A = 0)}{I_{00} V_c C_{B0} e^{\beta_B/T_0}}
 \end{aligned} \tag{1.9), (1.10), (1.11), (1.12)}$$

( $I_{00}$  étant l'intensité laser lors de l'expérience de référence).

Pour un système optique donné, l'ensemble de ces paramètres est constant. .

En notant  $R_C = \left( \frac{C_A}{C_{A0}} \right) / \left( \frac{C_B}{C_{B0}} \right)$  le rapport des concentrations, le rapport des émissions de fluorescence s'écrit:

$$\frac{I_{fv}}{I_{f\omega}} = \frac{R_C I_{fv}(C_B = 0) e^{\beta_A \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right)} + I_{fv}(C_A = 0) e^{\beta_B \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right)}}{R_C I_{f\omega}(C_B = 0) e^{\beta_A \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right)} + I_{f\omega}(C_A = 0) e^{\beta_B \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right)}} \tag{1.13}$$

La sensibilité en température  $\beta_A$  et  $\beta_B$  des deux colorants doit être calibrée initialement dans des conditions contrôlées (figure 1.15).

Dans l'équation(1.13), le rapport de fluorescence est indépendant du volume de collection et de l'intensité laser. Si  $\beta_A$  et  $\beta_B$  sont suffisamment différents, il sera possible de déterminer précisément la température à l'aide de l'équation (1.13). Le rapport des concentrations affecte également le rapport de fluorescence et il doit être calibré initialement et maintenu constant tout au long de l'expérience. La précision obtenue à l'aide de ce type de technique a été évaluée à 1,5°C par Sakakibara and Adrian (1999).

Néanmoins, différentes sources potentielles d'erreur ont pu être identifiées. Le rapport des concentrations des traceurs fluorescents doit être maintenu constant tout au long de l'expérience : cette condition est aisément réalisée si l'écoulement estensemencé de manière uniforme. Lorsque l'ensemencement n'est pas uniforme, il faut s'assurer que les deux colorants diffusent de manière identique ou que la diffusion turbulente est majoritaire. Cette condition est en général bien réalisée du fait des grands nombres de Schmitt des colorants fluorescents. Il est également nécessaire de s'assurer qu'il n'y a pas d'interaction de nature chimique ou physique entre les deux colorants. Notons que le rapport des concentrations peut être difficile à maintenir constant, en particulier dans une situation telle que des gouttes en évaporation ou en combustion, ou l'un des deux traceurs pourrait disparaître préférentiellement.

Le recouvrement des spectres d'absorption et d'émission des deux colorants, appelé conflit spectral, peut également conduire à des erreurs de mesure

**Conflit spectral de type I-** Il s'agit d'un recouvrement entre les bandes d'émission de chacun des colorants. Cela signifie qu'une fraction de la fluorescence du colorant A pourra se superposer à celle du colorant B et inversement. Les effets du conflit de type I peuvent être minimisés par une calibration initiale et par un choix approprié des bandes spectrales de détection et du rapport des concentrations. Cependant, la sensibilité globale en température peut être affectée, ce qui peut réduire la précision (voir l'équation. (1.13)).

**Conflit spectral de type II-** Au cours des développements précédents, les phénomènes de réabsorption de la fluorescence ont été négligés. Un conflit spectral de type II correspond à l'absorption de l'émission du colorant A par le colorant B. Or cette absorption peut varier avec la température ou la concentration du colorant selon la loi de Beer-Lambert. Cela implique que la concentration du colorant B doit être uniformément répartie dans le champ de l'écoulement. Il en sera donc de même pour la concentration en traceur B. Ainsi, la température ne pourra être mesurée que dans un écoulement où une concentration uniforme des deux traceurs fluorescents peut être établie et dans le cas où les coefficients d'extinction sont indépendants de la température.

**Conflit spectral de type III-** Ce type de conflit est lié au recouvrement entre le spectre d'émission de l'un des colorants et celui d'absorption de l'autre. Dans le cas où la concentration des deux traceurs varie sur le chemin optique de la fluorescence, le rapport de fluorescence sera modifié sans aucune possibilité de correction et ainsi une température erronée sera mesurée. Ce type de conflit peut être rencontré lorsque des phénomènes de transferts de chaleur et de masse sont étudiés simultanément.

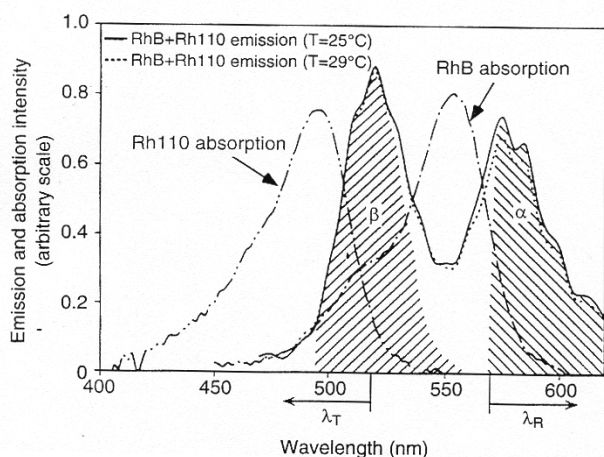


Figure 1.13 : Spectres d'absorption et de fluorescence de la rhodamine B et de la rhodamine 110 et bandes spectrales de détection utilisées. (d'après Sakakibara et Adrian, 1999).

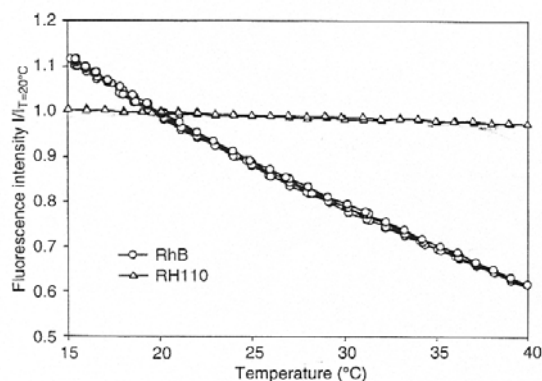


Figure 1.14 : Réponses en température de la rhodamine B et de la rhodamine 110 (d'après Sakakibara et Adrian, 1999).

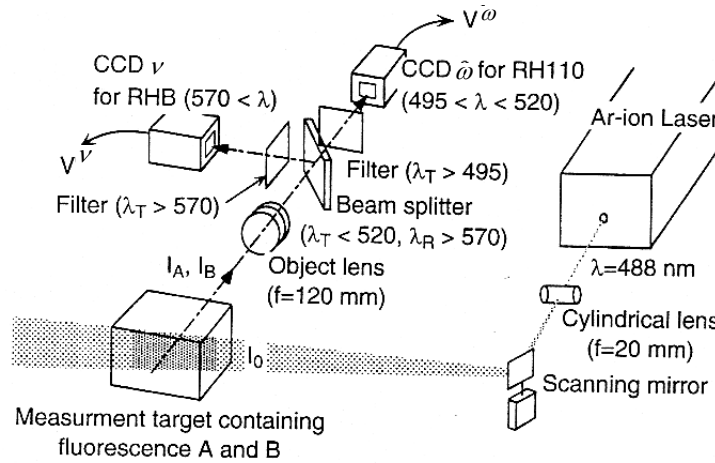


Figure 1.15: Dispositif de fluorescence induite par laser à deux colorants (d'après Sakakibara et Adrian, 1999)

### 1.4.3 Technique à un seul colorant et deux couleurs

Cette technique a été développée par Lavieille et al. (2001) au LEMTA (Nancy). Les auteurs ont montré que le coefficient de sensibilité en température (équation. (1.3)) dépendait de la longueur d'onde d'émission, en particulier dans le cas de la rhodamine B dissoute dans l'éthanol. La technique a été étendue à d'autres solvants tels que l'eau (Castanet et al., 2009) ou à d'autres traceurs tel qu'en particulier le pyrrométhène 597-8c9, soluble dans les alcanes et le gasoil (Wolff. et al., 2007 ; Deprédurand et al., 2008).

Le principe de la technique consiste à introduire une faible quantité de traceur fluorescent (rhodamine B par exemple) dans l'écoulement et de détecter la fluorescence sur deux bandes spectrales judicieusement choisies, pour lesquelles la sensibilité en température est fortement différente.

Cette propriété est illustrée pour la rhodamine B ( $C=5.10^{-6}$  mol/l) dont le spectre est présenté figure 1.16 pour trois températures différentes:  $T=24,5^{\circ}\text{C}$ ,  $T=36^{\circ}\text{C}$  et  $T=57^{\circ}\text{C}$ . Il est clair que l'amplitude du signal décroît de manière très nette avec la température. La sensibilité en température  $\beta(\lambda)$  est également présentée en fonction de la longueur d'onde. En dépit du faible signal au voisinage de 525 nm, cette première région spectrale présente une sensibilité en température particulièrement faible, alors qu'une importante sensibilité en température est notée au-delà. Il est ainsi possible de choisir deux bandes spectrales correspondant au meilleur compromis entre une bonne sensibilité en température et un niveau de signal suffisant sur chacune des bandes spectrales (figure 1.17).

Le signal de fluorescence détecté sur la première bande spectrale, lorsque les termes d'absorption sont négligées, peut être écrit (équation. (1.3)):

$$I_{f2} = K_{opt1} K_{spec1} V_c I_{laser} C e^{\beta_1/T} \quad (1.14)$$

et sur la seconde :

$$I_{f2} = K_{opt2} K_{spec2} V_c I_{laser} C e^{\beta_2/T} \quad (1.15)$$

où l'indice 1 se réfère à la première bande spectrale de détection et l'indice 2 à la seconde.

Le calcul du rapport entre les intensités de fluorescence mesurées sur chacune des bandes spectrales permet d'éliminer la dépendance au volume de collection, à l'intensité laser et à la concentration en traceur fluorescent. Ce rapport peut s'écrire :

$$R_f = \frac{I_{f1}}{I_{f2}} = \frac{K_{opt1}}{K_{opt2}} \frac{K_{spec1}}{K_{spec2}} e^{\frac{\beta_1 - \beta_2}{T}} \quad (1.16)$$

Une mesure de référence préalable à une température  $T_0$  connue, conjointement au rapport de fluorescence est  $R_f(T_0)$ , est nécessaire afin d'éliminer les constantes  $\frac{K_{opt1}}{K_{opt2}} \frac{K_{spec1}}{K_{spec2}}$ . Ainsi, l'évolution du rapport de fluorescence en fonction de la température pourra être réécrite:

$$\ln\left(\frac{R_f(T)}{R_f(T_0)}\right) = (\beta_1 - \beta_2) \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) \quad (1.17)$$

Une calibration initiale de la rhodamine B dans son solvant, sur les deux bandes spectrales de détection, est réalisée préalablement dans une cuve régulée en température afin de déterminer le coefficient  $(\beta_1 - \beta_2)$ . Comme le montre la figure 1.16, la sensibilité en température sur la première bande spectrale ( $\beta_1 \approx 100$  K) est plutôt faible, alors qu'elle est importante sur la seconde ( $\beta_2 \approx 1730$  K). La figure 1.19 présente l'évolution de  $\ln(R_f(T)/R_f(T_0))$  en fonction de  $(1/T - 1/T_0)$ . Une variation de l'ordre 1% du rapport de fluorescence correspond à environ 2°C de variation en température. La technique a été appliquée à la mesure de température de gouttelettes d'éthanol en évaporation (Castanet et al., 2002) et en combustion (Castanet et al., 2005). Cette technique appliquée à des gouttelettes signifie des chemins optiques très faibles pour le signal de fluorescence. Pour des chemins optiques plus longs, la réabsorption de la fluorescence peut constituer un obstacle majeur. En effet, les coefficients d'absorption diffèrent fortement d'une bande spectrale à l'autre; par exemple, l'absorption est très forte sur la première bande puisqu'elle coïncide pratiquement avec le maximum du spectre d'absorption.

Cette absorption différente pourra causer des variations du rapport de fluorescence ce qui conduira à des erreurs importantes sur la mesure de température.

Un point important doit néanmoins être souligné: si la technique 1 colorant/2 couleurs possède un fort potentiel, elle est néanmoins très sensible à l'environnement : pH du solvant, composition du milieu, nature chimique du solvant... Des calibrations préliminaires des coefficients d'extinction, de la sensibilité en température doivent être effectuées préalablement. Ces paramètres varient significativement d'un fluide à l'autre.

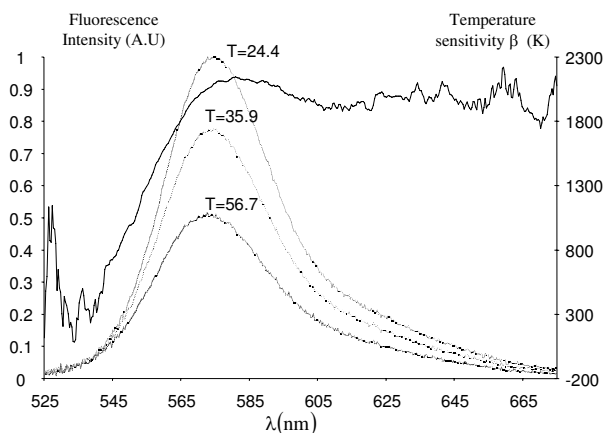


Figure 1.16 : Evolution du spectre de fluorescence de la rhodamine B en fonction de la température et de la sensibilité en température en fonction de la longueur d'onde.

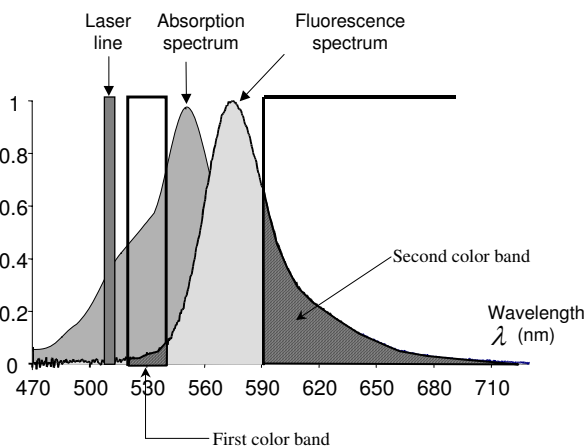


Figure 1.17 : Schéma des deux bandes spectrales de détection pour la rhodamine B dissoute dans l'éthanol.

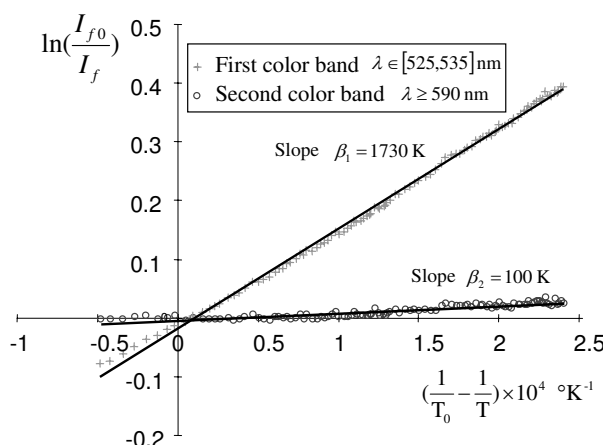


Figure 1.18 : Calibration du signal de fluorescence en fonction de la température pour les deux bandes spectrales de détection (rhodamine B dissoute dans l'éthanol).

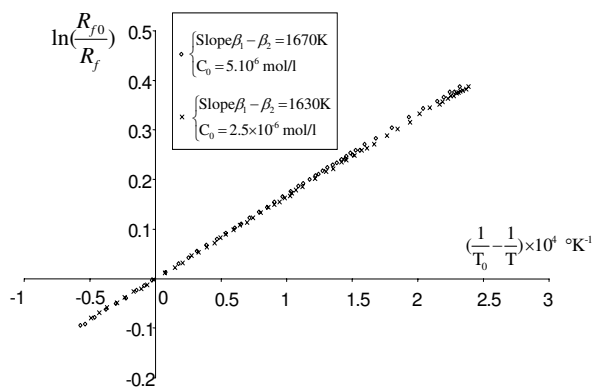


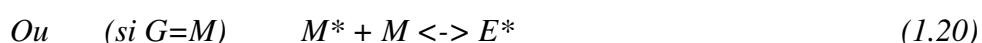
Figure 1.19 : Calibration du rapport de fluorescence en fonction de la température et effet de la concentration du traceur.

## 1.5 Techniques fondées sur la fluorescence exciplex

Les principes de cette technique ont été initialement posés par Murray et Melton (1985) et un nombre significatif de travaux ont été publié depuis lors (Wells et Melton, 1990 ; Parigger et al., 1998 ; Lu et Melton, 2000 ; Escobar et al., 2001). Cette technique a principalement été utilisée pour déterminer la température de gouttelettes en mouvement. Il n'existe, à notre connaissance, aucune application de cette technique dans le cadre de milieux monophasiques, du fait d'un certain nombre de limitations qui seront discutées dans ce paragraphe. La thermométrie exciplex exploite le signal de fluorescence d'une molécule dopante excitée, préalablement introduite dans l'écoulement, réagissant avec une autre espèce

de l'écoulement et formant un complexe excité (appelé exciplex). L'excitation peut être produite par un faisceau laser, de manière ponctuelle ou à l'aide d'un plan, ce qui peut permettre d'obtenir une distribution de température à l'intérieur même de la goutte (Lu and Melton, 2000).

Une molécule  $M$  (molécule traceur ajoutée) se trouvant dans l'état fondamental, appelée monomère, est excitée par absorption de lumière dans le domaine UV (issu d'un laser pulsé ou d'une lampe UV de forte puissance) afin de former un état singulet excité  $M^*$ . L'état excité  $M^*$  réagit avec une molécule  $G$  se trouvant à l'état fondamental (qui peut être différente de la molécule  $M$ ) pour former un complexe à l'état excité (exciplex)  $E^*$ . Le processus physicochimique est résumé comme suit:



Une émission de fluorescence se produit à partir des deux molécules dans leurs états excités respectifs ainsi créés,  $M^*$  et  $E^*$ . Comme dans le cas de la majorité des émissions de fluorescence, un décalage stokes par rapport à la longueur d'onde d'excitation peut être observé. Ainsi, le spectre d'émission présente deux domaines distincts, l'un correspondant à l'émission de  $M^*$  et l'autre de  $E^*$  (figure 1.20). A une température suffisamment élevée (de l'ordre de 20°C, selon les auteurs), la réaction (1.19) peut être considérée comme un équilibre chimique dont la position dépend de la température et des concentrations des espèces  $M$  et  $G$ . L'augmentation de la température déplace l'équilibre du côté du monomère. Ainsi, l'émission provenant de  $E^*$  va décroître comparativement à celle provenant de  $M^*$ , lorsque la température augmente (figure 1.21). De plus, si la concentration de  $G$  augmente, l'équilibre sera décalé du côté de  $E^*$ . La mesure du rapport des intensités provenant respectivement du monomère ( $I_E$ ) et de l'exciplex ( $I_M$ ) permet de donner une information sur la température du liquide. Une courbe de calibration du rapport ( $I_E/I_M$ ), réalisée préalablement en conditions contrôlée doit être utilisée pour obtenir des mesures quantitatives de température (figure 1.22).

Il s'agit donc d'une technique fondée sur le calcul d'un rapport d'émissions qui pourra donc être appliquée à la mesure de température d'une gouttelette, puisque les volumes d'émission du monomère et de l'exciplex sont identiques. Ce volume sera donc éliminé par le calcul du rapport. Ce processus présente des similitudes avec les techniques de fluorescence induite par laser à deux couleurs (à un ou deux colorants).

Cependant, on peut noter deux inconvénients majeurs, limitant fortement le développement de cette technique:

- le rapport calculé résulte d'un équilibre chimique qui lui-même dépend des concentrations en espèces dopantes ( $M$  et  $G$ ). Cela implique donc que ces concentrations doivent être contrôlées et maintenues constantes durant toute l'expérience. Cette condition est particulièrement difficile à satisfaire pour des gouttes en forte évaporation, par exemple.
- le problème majeur est lié au phénomène de quenching par les molécules d'oxygène, qui nécessite d'opérer en environnement neutre (en l'absence d'oxygène). En effet, le taux de quenching par les molécules d'oxygène est différent pour le monomère et l'exciplex, ce qui fausse la valeur du rapport des signaux et conduit ensuite à une valeur erronée de la température. Il est donc nécessaire de travailler en atmosphère totalement exempte d'oxygène et d'éliminer toute trace d'oxygène dissout dans la phase liquide. Une autre difficulté est liée à la concentration particulièrement importante des dopants (par exemple le pyrène), qui doit

être utilisée. Selon Wells and Melton (1990), des concentrations de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-3}$  mol/l sont nécessaires. Sachant que le coefficient d'extinction du pyrène est de  $3,6 \cdot 10^4$  mol<sup>-1</sup>.l.cm<sup>-1</sup>, une forte absorption est attendue y compris pour des chemins optiques très faibles, de l'ordre de 100 μm par exemple. L'application à des écoulements monophasique, à l'exception des écoulements en micro-canaux, ne pourra donc pas être envisagée.

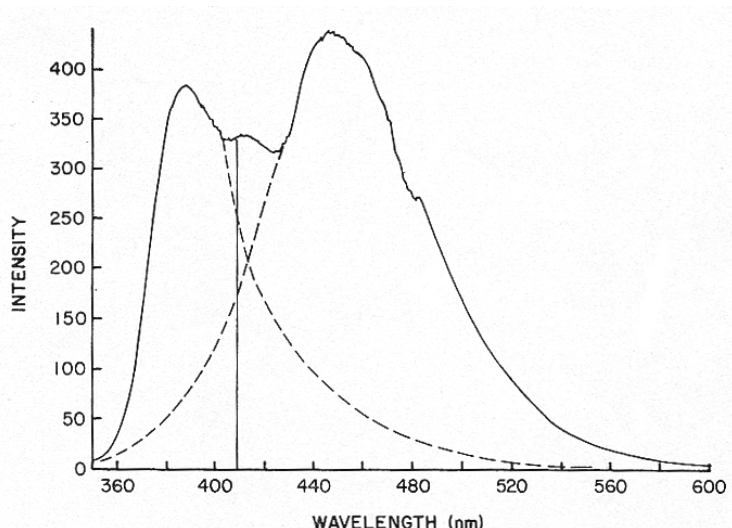


Figure 1.20 : Spectre de fluorescence du pyrène en solution dans le décane (à 80°C), excitation à 337 nm. Lignes pointillées: émission du monomère (spectre de gauche) et de l'exciplex (spectre de droite). (D'après Wells and Melton, 1990)

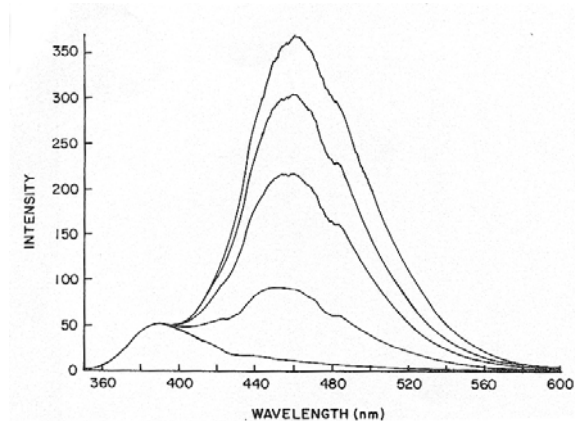


Figure 1.21 : Spectres de fluorescence du pyrène en solution dans le décane en fonction de la température. Excitation à 337 nm. Les températures sont: 23 (haut), 37, 47, 70, 124°C (bas). (d'après Wells et Melton, 1990)

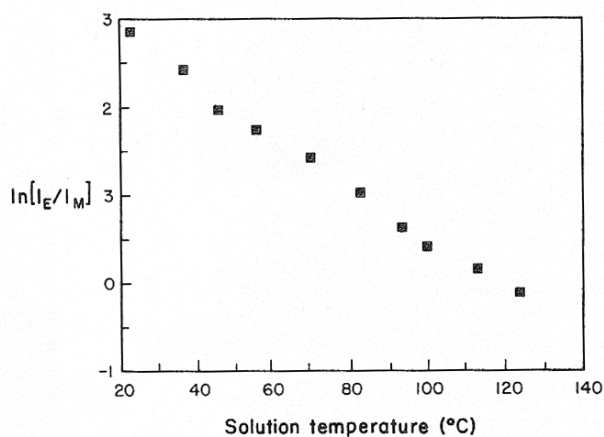


Figure 1.22 : Courbe de calibration du rapport des intensités exciplex / monomère en fonction de la température. (d'après Wells et Melton, 1990)

## 1.6 Autres techniques

### 1.6.1 Techniques fondées sur la phosphorescence

#### 1.6.1.1 Introduction

Assez peu de techniques de mesure de température dans les liquides utilisent le phénomène de phosphorescence. La durée de vie de l'état excité en fluorescence est de l'ordre de  $10^{-8}$  à  $10^{-9}$  secondes, alors que celle de la phosphorescence est supérieure à  $10^{-6}$  s. Alors que la fluorescence est habituellement utilisée dans les gaz et les liquides, l'utilisation de la phosphorescence est en générale plus commune dans les solides, du fait du quenching très efficace dans les milieux liquides ou gazeux.

Un certain nombre de travaux ont permis de diminuer le taux de quenching de la phosphorescence dans une solution aqueuse contenant du 1-BrNp (1-bromonaphtalène), qui est un traceur fluorescent. L'ajout de molécules de glucosyl- $\beta$ -cyclodextrin (G $\beta$ -CD) et d'un alcool permet de protéger le 1-BrNp des effets du quenching par l'oxygène.

La phosphorescence du complexe moléculaire ainsi formé (1-BrN•G $\beta$ -CD•ROH) est alors accrue d'un facteur  $10^3$ . Tout comme pour la fluorescence, l'intensité de la phosphorescence dépend fortement de l'intensité laser, de la concentration du complexe moléculaire phosphorescent et de la température de la solution. Lorsque la température augmente, la durée de vie de la phosphorescence et le rendement quantique diminuent. Ainsi, dans une solution uniformémentensemencée en traceur phosphorescent, éclairée par une intensité laser constante, l'augmentation de la température conduit à une diminution de l'émission phosphorescente.

#### 1.6.1.2 Principes de la mesure

L'écoulement est brièvement illuminé à l'aide d'une source laser ultraviolette (par exemple à l'aide d'un laser XeCl excimer laser à 308 nm). La configuration la plus simple consiste à illuminer l'écoulement à l'aide d'un simple faisceau laser. Des images successives du faisceau phosphorescent sont enregistrées à l'aide d'une caméra CCD avec un délai suffisamment faible de manière à pouvoir négliger la déformation du faisceau. La mesure de la lumière émise permet d'obtenir aisément la température avec une précision de  $\pm 1^\circ\text{C}$  sur une étendue de  $30^\circ\text{C}$  (Thomson et Maynes, 2001). L'utilisation de cette technique est limitée aux écoulements monophasiques, car le signal, tout comme pour la fluorescence, dépend du volume de collection. De plus, la déformation de la zone de fluide marquée à l'aide du faisceau laser doit rester négligeable durant le temps de mesure ; on peut également dire que la concentration des molécules marquées doit rester constante au cours du temps. Cette technique a été efficacement utilisée en écoulement laminaire (Thomson and Maynes, 2001) et pourrait être utilisée en écoulement turbulent si le temps caractéristique de la diffusion par la turbulence est supérieur au temps de mesure.

L'un des avantages de cette technique est de potentiellement permettre d'effectuer des mesures simultanées de vitesse par la technique du marquage moléculaire (ou MTV, Molecular Tagging Velocimetry). Le principe est assez comparable à la PIV : une région de fluide marquée se déplace avec l'écoulement et demeure visible jusqu'à l'extinction totale de l'émission phosphorescente. La vitesse du fluide est alors obtenue en comparant le déplacement relatif de la région marquée par rapport à sa position initiale. L'intérêt est que, contrairement à la PIV, aucun ensemencement particulière n'est nécessaire.



## 1.6.2 Technique basée sur les résonances morphologiques (cas d'une goutte)

Cette technique émergente a permis des mesures de température de microgouttelettes individuelles (Mazumder et Chen, 1995). Les molécules sont ensemencées à l'aide d'une molécule thermochromique absorbante et d'un colorant fluorescent, typiquement comparable à ceux utilisés dans les lasers à colorants. La molécule thermochromique absorbante est dissoute dans de l'isopropanol (85%) et de l'eau (15%). Le colorant fluorescent, la rhodamine B, concentrée à  $5 \cdot 10^{-4}$  mol/l est ajouté à la solution. La température de la goutte est déterminée à l'aide du schéma suivant:

- l'absorption par la molécule thermochromique est sensible à la température (figure 1.23)
- la gouttelette se comporte comme une microcavité optique pour certaines longueurs d'onde spécifiques et pour la lumière présentant une incidence située au delà de l'angle de réfraction limite. On parle alors d'un mode de résonance morphologique (MDR). Ainsi, certaines longueurs d'onde de fluorescence se trouvent amplifiées avec un fort facteur de qualité, ce qui conduit à un effet laser.
- le spectre d'émission stimulée du colorant subi un décalage vers le bleu du fait de l'absorption dans la gouttelette.

Pour qu'un effet laser apparaisse dans la goutte, le gain doit compenser les pertes totales correspondant aux pertes par re-absorption de la fluorescence (par le traceur lui-même) et à l'absorption par les molécules thermochromiques. Les pertes par réfraction sont en général très faibles pour les longueurs d'onde spécifiques correspondant à des modes de résonance morphologique. Du fait du faible taux de pertes, l'effet laser se produit en général sur des modes de résonance morphologique. Pour une taille de goutte donnée (Mazumder et Chen, 1995), la longueur d'onde où apparaît un effet laser à 20°C est 635 nm, lorsque la rhodamine B est utilisée comme traceur fluorescent. Lorsque la température augmente, l'absorption due à la présence de la molécule thermochromique augmente également. L'émission laser se décale alors naturellement vers le bleu, là où cette absorption est plus faible. Le spectre d'émission laser est ainsi globalement décalé vers le bleu lorsque la température du milieu augmente. La température peut ainsi être obtenue en localisant spectralement le pic d'émission laser. Dans l'expérience décrite par Mazumder et Chen (1995), les gouttelettes sont illuminées par un laser Nd-Yag pulsé ( $\lambda=532$  nm, durée 10s) ; le spectre est imagé à 90° à l'aide d'un spectrographe couplé à une caméra CCD. Une calibration initiale donnant le maximum d'émission laser en fonction de la température, pour une taille de goutte donnée est également nécessaire. La technique n'apparaît globalement pas simple à mettre en œuvre et nécessite des concentrations en additif (molécules thermochromiques, et traceur fluorescent) importantes, ce qui rend le caractère non-intrusif discutable. Néanmoins, elle peut présenter un grand intérêt pour les petites gouttes (typiquement d'un diamètre inférieur à 50  $\mu\text{m}$ ), là où les techniques de fluorescence seront limitées par la quantité de signal. De plus, les techniques fondées sur les résonances morphologiques permettent également une détermination précise des tailles de goutte car la longueur d'onde des résonances varie avec la taille de goutte (Chen et al., 1996 ; Pastel et Struthers, 2001, Ducastel, 2007).

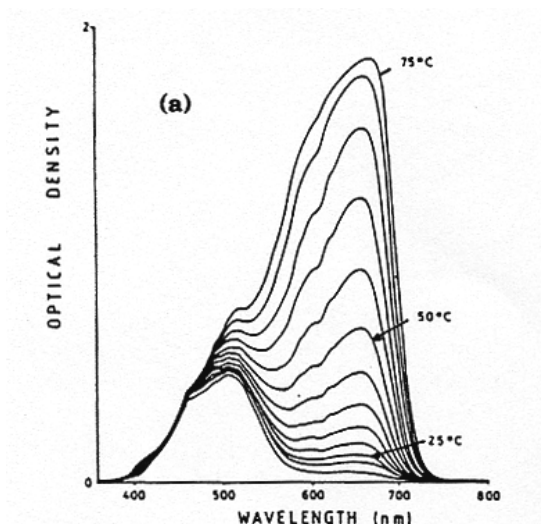


Figure 1.23 : Spectre d'absorption du  $\text{CoCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$  dans 85% d' isopropanol et 15% d'eau pour différentes températures.

### 1.6.3 Comparaison des différentes techniques (tableau récapitulatif)

(Voir page 29)

	<b>Fluorescence</b>			<b>Réfractométrie d'arc-en-ciel</b>	
	<b>Traceur unique</b>	<b>Deux traceurs</b>	<b>Un traceur/deux couleurs</b>	<b>Standard</b>	<b>Globale</b>
<b>Avantages</b>	- Mise en oeuvre relativement simple - Bonne précision pour les écoulements monophasiques	Insensible à : - la puissance laser - au volume de collection	Non sensible à : - la puissance laser - au volume de collection - la concentration en colorant	- Grande sensibilité aux variations de température - Possibilité d'étudier des gouttes individuelles	- Peu sensibles aux effets de non-sphéricité - Possibilité d'obtenir une distribution de taille simultanément
<b>Inconvénients</b>	Sensible à : - La puissance laser - La concentration en colorant - Le volume de collection L'ensemble de ces paramètres doit être contrôlé	- Le rapport des concentrations doit être contrôlé et constant - Les nombres de Schmidt des deux colorants doivent être voisins. - Ecoulements monophasiques laminaires et turbulents - Sprays	- Sensibilité importante à l'absorption - Une troisième bande spectrale est nécessaire dans des conditions absorbantes - Sprays, gouttelettes, avec évaporation	Sensibilité aux : - gradients de température internes - aux effets de non sphéricité	- Précision moyenne (dépendant du liquide) - Température moyenne d'un volume de sprays défini
<b>Champ d'application</b>	Écoulements monophasiques laminaires et turbulents			- Gouttes individuelles	- sprays
<b>Ponctuel</b>	Oui	Oui	Oui	Oui	Non
<b>Imagerie</b>	Oui	Oui	Oui	Non	Oui

	<b>Raman Spontané</b>	<b>Fluorescence exciplex</b>	<b>Phosphorescence</b>	<b>Techniques fondées sur les MDR</b>
<b>Avantages</b>	- Etude des deux phases possibles - Mesures simultanées de concentrations d'espèces possibles	Insensible à : - la puissance laser - au volume de collection	- Permet de suivre une évolution rapide de la zone marquée - Possibilité de mesures de vitesse simultanées	- Mesures sur des petites gouttes (diamètre inférieur à 50 µm) - Potentialité pour déterminer simultanément la taille
<b>Inconvénients</b>	- Lasers de haute puissance nécessaires - Faible signal - Difficultés pour séparer la phase liquide et la phase gazeuse - Mise en œuvre assez complexe	Sensible à : - la concentration en colorant - l'absorption Une atmosphère neutre est nécessaire Forte concentration en traceur nécessaire	- Processus d'ensemencement complexe - Sensible au volume d'émission : qui doit rester constant durant le temps d'observation.	- Analyse spectaculaire nécessaire - Forte concentration en traceur nécessaire - Processus d'ensemencement complexe
<b>Champ d'application</b>	- Sprays avec évaporation ou réactif - Ecoulements en phase gazeuse	Sprays (évaporation ?)	Écoulements monophasiques laminaires et turbulents	- gouttes, sprays peu denses
<b>Ponctuel</b>	Oui	Oui	Non	Oui
<b>Imagerie</b>	Non	Oui	Oui	Non



## **Chapitre 2**

### **La technique de fluorescence induite par laser (LIF)**



# Chapitre 2

## La technique de fluorescence induite par laser (LIF)

### 2.1 Introduction

L'intérêt pratique d'utiliser la fluorescence induite par laser pour mesurer une grandeur physique caractérisant le milieu dans lequel se trouve l'espèce fluorescente résulte de plusieurs facteurs directement issus de la physique même du phénomène :

le faible seuil de détectivité, puisque quelques ppm de l'espèce fluorescente suffisent à produire un signal mesurable et exploitable, ceci étant lié à la forte section efficace d'absorption,

le temps de réponse extrêmement court, relié à la brièveté de la durée de vie de l'état excité de la molécule, de l'ordre  $10^{-9}$  s à  $10^{-6}$  s, ce qui permet d'envisager l'investigation de phénomènes rapidement variables,

le décalage entre le spectre d'émission et le spectre de fluorescence permet une séparation aisée du rayonnement excitateur et du signal de fluorescence.

### 2.2 Transitions radiatives

Pour décrire les transitions radiatives, une molécule présentant deux états énergétiques 1 et 2, excitée par une onde électromagnétique de fréquence  $\nu_{12}$  tel que  $E_2 - E_1 = h\nu_{12}$ , sera considérée.

- L'absorption : la molécule M dans l'état fondamental 1 absorbe un photon et passe dans l'état excité 2 suivant  $M + h\nu \rightarrow M^*$ . La population de l'état excité 1 peut être décrite par la loi cinétique:

$$\frac{dN_1}{dt} = N_1 B_{12} W \quad (2.1)$$

avec :  $B_{12}$ , coefficient d'Einstein pour la transition de l'état 1 vers l'état 2 (exprimé en  $\text{m}^3 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-2}$ ) et W est la densité spectrale d'énergie (notée W), exprimée en  $\text{J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}$ , puisqu'on s'intéresse à une transition à une fréquence d'onde particulière. L'émission spontanée est aussi appelée **fluorescence**.

- L'émission spontanée : il y a retour spontané de l'état excité 2 vers l'état fondamental 1 par émission d'un photon suivant la réaction:  $M^* \rightarrow M + h\nu$ . Le taux de dépeuplement de l'état excité s'exprime par l'équation cinétique:

$$\frac{dN_2}{dt} = N_2 A_{21} \quad (2.2)$$

avec  $A_{21}$  coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée (exprimé en  $\text{s}^{-1}$ ), qui représente la probabilité de transition par émission spontanée, par unité de temps.

On définit également la durée de vie naturelle (exprimée en s) de l'état excité par l'inverse de la vitesse de désactivation par émission spontanée :

$$\tau_0 = \frac{1}{A_{21}} \quad (2.3)$$

- L'émission stimulée : contrairement au cas précédent, le retour vers l'état fondamental ne se fait pas de manière spontanée, mais un photon d'énergie  $h\nu$  est nécessaire pour stimuler le passage de l'état excité vers l'état fondamental, suivant la réaction:  $M^* + h\nu \rightarrow M + 2h\nu$ . Notons que le photon émis a les mêmes caractéristiques que le photon incident en phase, en énergie et en direction de propagation. Le milieu se comporte alors comme un amplificateur de gain 2, phénomène à la base de l'effet laser.

Le taux de dépeuplement de l'état excité par émission stimulée s'exprime par l'équation cinétique:

$$\frac{dN_2}{dt} = N_2 B_{21} W \quad (2.4)$$

avec :  $B_{21}$ , coefficient d'Einstein pour l'émission stimulée (exprimé en  $m^3 \cdot J^{-1} \cdot s^{-2}$ ).

Les coefficients d'Einstein sont liés par les relations :

$$\begin{aligned} g_1 B_{12} &= g_2 B_{21} \\ B_{21} &= \frac{A_{21} c^3}{4h\nu^3} \end{aligned} \quad (2.5)$$

avec :  $g_1$  et  $g_2$ , dégénérescences respectives des états 1 et 2, représentant le nombre de sous-niveaux de même énergie.

On remarquera que le rapport entre l'émission spontanée et l'émission stimulée est donné par :

$$\frac{B_{21} W}{A_{21}} \quad (2.6)$$

## 2.3 Thermostatistique des niveaux d'énergie

A l'équilibre thermique et pour une température  $T$ , les niveaux d'énergie sont répartis suivant une loi de distribution de Boltzmann :

$$N_i = N \frac{g_i e^{-E_i/kT}}{\sum_i g_i e^{-E_i/kT}} \quad (2.7)$$

avec :  $N_i$  nombre de molécules par unité de volume dans l'état  $i$ ,  $N$  nombre total de molécules par unité de volume,  $k$  constante de Boltzmann.

On nomme fraction de Boltzmann  $f(T)$  de l'état fondamental (d'énergie  $E_1$ ) le rapport :

$$f(T) = N_1/N = \frac{g_1 e^{-E_1/kT}}{\sum_i g_i e^{-E_i/kT}} \quad (2.8)$$

La fraction de Boltzmann est en général utilisée pour définir la fraction de population correspondant à un état d'énergie donné.

## 2.4 Principe de Franck-Condon

Le temps de transition de l'état fondamental vers l'état excité est très court, de l'ordre de  $10^{-15}$  s ; il n'y a aucune modification de la position géométrique des noyaux atomiques durant la transition du fait des mouvements de rotation et de vibration dont l'échelle de temps



caractéristique est de  $10^{-12}$ s. La structure de la molécule stable à l'état fondamental ne correspond pas à la structure stable à l'état excité : l'absorption est donc suivie généralement d'une « relaxation vibrationnelle » à l'état excité, ramenant la molécule à l'état vibrationnel le plus bas de l'état électronique excité. L'émission fluorescente d'une molécule se fera donc toujours à des longueurs d'onde supérieures à celle de la radiation excitatrice et le spectre de fluorescence sera donc décalé par rapport à la radiation excitatrice. On pourra observer l'exemple de la sulfo-rhodamine B en solution aqueuse (figure 2.1). Dans la pratique, il sera donc relativement aisé de séparer le rayonnement excitateur du rayonnement réémis par fluorescence.

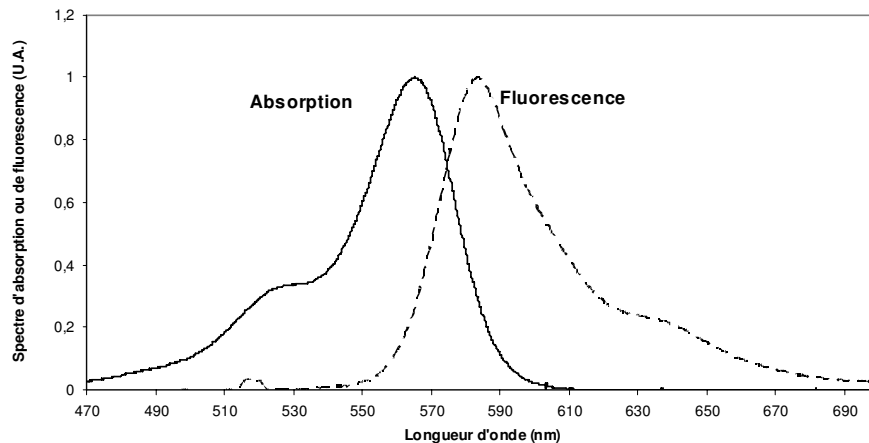


Figure 2.1 : Illustration du principe de Franck-Condon (Spectre de la sulforhodamine B en solution aqueuse)

## 2.5 Transitions non radiatives

D'autres mécanismes, non radiatifs, concourent à la désactivation de l'état excité, chacun d'eux étant caractérisé par un taux de transition propre :

- Désactivation collisionnelle ou quenching
- Conversions internes, correspondant à un passage à des états énergétiques voisins
- Passage de l'état singulet à l'état triplet, pouvant donner lieu à des phénomènes de phosphorescence pouvant être concurrencés par la désactivation collisionnelle.

Ainsi, la durée de vie réelle  $\tau$  de l'état excité est donc nettement plus brève du fait de ces différents phénomènes, qui entrent en compétition avec la fluorescence :

$$\tau = \frac{1}{A_{21} + k_Q + k_{ST} + k_{CI}} \quad (2.9)$$

où  $k_Q$ ,  $k_{ST}$  et  $k_{CI}$  sont respectivement les taux de transition par désactivation collisionnelle, passage de l'état singlet à l'état triplet et conversions internes.

## 2.6 Fluorescence induite par laser

La fluorescence induite par laser est une technique de mesure quantitative utilisée en particulier dans le domaine de la mécanique des fluides et des phénomènes de transport. Ce domaine d'application n'est pas exclusif, puisque l'utilisation de cette technique est aussi répandue dans le secteur de la physico-chimie que dans celui des sciences du vivant et de la microscopie en particulier (Valeur, 2004).

La fluorescence correspond à la désexcitation spontanée d'un état singulet excité d'une espèce atomique ou moléculaire. L'état excité peut être peuplé de différentes façons dont l'utilisation de décharges électriques (technique utilisée dans les laser à gaz ionisés par exemple), de réactions chimiques ou bien par absorption d'un rayonnement électromagnétique. C'est ce dernier mode qui nous intéressera ici. Dans ce dernier cas, l'utilisation d'un rayonnement laser permet de délivrer une énergie considérable sur une bande spectrale extrêmement réduite. Le résultat, dans le cas d'une molécule fluorescente est une émission lumineuse polychromatique, en général décalée spectralement vers des longueurs d'onde supérieures à la radiation excitatrice (fluorescence Stokes), bien qu'une fluorescence anti Stokes puisse être observée. Comme nous l'avons vu précédemment, l'émission de fluorescence entre en compétition avec d'autres types de transitions (désactivation collisionnelle, conversions internes, passage à l'état triplet) (figure 2.2).

Dans l'ensemble des développements suivants, les phénomènes d'émission stimulée seront négligés, les énergies d'excitation mises en jeu étant jugées insuffisantes pour obtenir une contribution significative de ce phénomène ;

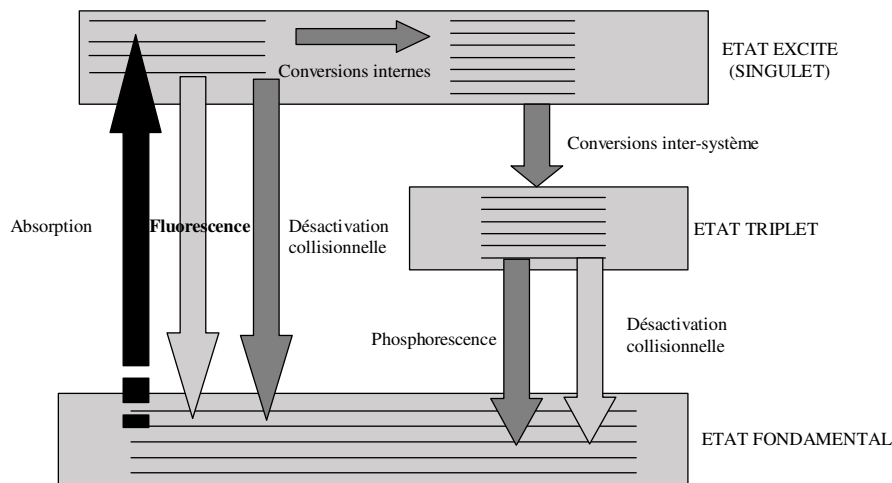


Figure 2.2 : Schéma de principe de la fluorescence induite par laser

L'émission fluorescente (que l'on nommera par la suite « signal de fluorescence ») dépend d'une part des caractéristiques intrinsèques de l'émetteur, à savoir de la molécule fluorescente, mais aussi des grandeurs thermodynamiques du milieu. En effet l'intensité de cette émission fluorescente dépend en particulier du nombre d'émetteurs par unité de volume (concentration volumique), de la température, de la viscosité du milieu, du pH en phase liquide de la présence éventuelle de molécules tierces. On peut aussi noter une dépendance en pression rencontrée essentiellement en phase gazeuse, bien qu'une telle dépendance ait été notée en phase liquide, mais pour des variations de pression peu rencontrées dans des situations usuelles.

## 2.7 Cinétique de l'absorption

La variation de population de l'état excité par transitions à partir de l'état fondamental est donnée par :

$$\frac{dN_2}{dt} = B_{12}WN_1 \quad (2.10)$$

Le profil spectral de la raie d'absorption  $g(\nu)$ , combiné à l'ensemble des mécanismes d'élargissement décrit précédemment, ainsi que l'étendue spectrale de la raie laser doivent également être pris en compte par le produit de convolution entre les deux profils de raie:

$$\frac{dN_2}{dt} = B_{12}WN_1 \int_{-\infty}^{+\infty} g(\nu)E(\nu)d\nu \quad (2.11)$$

avec  $E(\nu)$  profil spectral de la raie laser tel que  $\int_{-\infty}^{+\infty} E(\nu)d\nu = 1$ .

Lorsque la largeur de raie laser est très petite devant la largeur de la raie d'absorption, on peut tout simplement écrire :

$$\frac{dN_2}{dt} = B_{12}WN_1g(\nu_e)\Delta\nu_e \quad (2.12)$$

où  $\nu_e$  est la fréquence centrale de la raie laser et  $\Delta\nu_e$  sa largeur spectrale. Dans le cas général, il faut se référer à la relation (2.11).

## 2.8 Signal de fluorescence

On appelle signal de fluorescence l'énergie lumineuse émise pour une transition de la molécule d'un état excité vers l'état fondamental. Dans un modèle à deux niveaux (1 : état fondamental, 2 : état excité) Le nombre de transitions radiatives (fluorescence) par unité de temps est donné par :

$$\frac{dN_2}{dt} = -A_{21}N_2 = -\frac{N_2}{\tau_0} \quad (2.13)$$

La puissance lumineuse  $P(t)$  émise lors de la transition  $2 \rightarrow 1$  est alors :

$$P(t) = \frac{dN_2}{dt} h\nu_{12} \quad (2.14)$$

Plaçons nous dans le cas où la largeur de la raie d'absorption est très supérieure à la largeur de la raie laser (équation (2.12)). En négligeant tous les mécanismes de transition non radiative, excepté la désactivation collisionnelle, le calcul de  $dN_2/dt$  peut être réalisé à l'aide de l'équation bilan :

$$\frac{dN_2}{dt} = B_{12}Wf(T)N_1g(\nu_e)\Delta\nu_e - (A_{21} + k_q) \quad (2.15)$$

Notons que la fraction de Boltzmann  $f(T)$  est introduite afin de déterminer la population du sous niveau de l'état fondamental susceptible d'absorber la radiation laser incidente.

En introduisant le bilan de population :

$$N_1 + N_2 = N_1^0 \quad (2.16)$$

où  $N_1^0$  correspond à la population de l'état fondamental en conditions d'équilibre.

Ainsi :

$$\begin{aligned} \frac{dN_2}{dt} &= -N_2(B_{12}Wf(T)g(\nu_e)\Delta\nu_e + A_{21} + k_q) + f(T)B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_eN_1^0 \\ &= -\frac{N_2}{\tau_f} + f(T)B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_eN_1^0 \end{aligned} \quad (2.17)$$

avec:  $\tau_f = \frac{1}{B_{12}Wf(T)g(\nu_e)\Delta\nu_e + A_{21} + k_q}$ , temps caractéristique de l'émission de fluorescence.

Finalement, le nombre de transitions par unité de temps s'exprime par:

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{N_2}{\tau_f} + B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_e f(T)N_1^0 \quad (2.18)$$

En utilisant la condition initiale  $t=0$ ,  $N_2=0$ , le nombre de molécules  $N_2$  se trouvant dans l'état excité est donné par :

$$N_2 = \left( \frac{1}{\tau_f} B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_e f(T)N_1^0 \right) (1 - e^{-t/\tau_f}) \quad (2.19)$$

L'énergie  $F(t)$  émise par fluorescence lors de la transition  $2 \rightarrow 1$  sera alors donnée par:

$$F(t) = N_2 h\nu_{12} \quad (2.20)$$

soit en utilisant l'expression (2.19) :

$$N_2 = \left( \frac{1}{\tau_f} B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_e f(T)N_1^0 \right) h\nu_{12} (1 - e^{-t/\tau_f}) \quad (2.21)$$

Un régime permanent est atteint pour une durée d'excitation notablement plus longue que la durée de vie de l'état excité :

$$N_2 = \frac{1}{\tau_f} B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_e f(T)N_1^0 h\nu_{12} \quad (2.22)$$

Soit en utilisant la définition de  $\tau_f$  :

$$\begin{aligned} F &= \frac{B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_e f(T)N_1^0 h\nu_{12}}{B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_e f(T) + A_{21} + k_q} \\ &= \frac{N_1^0 h\nu_{12}}{1 + \frac{A_{21} + k_q}{B_{12}Wg(\nu_e)\Delta\nu_e f(T)}} \end{aligned} \quad (2.23)$$

Introduisons la densité spectrale l'énergie de saturation  $W_{sat}$ , définie par :

$$W_{sat} = \frac{A_{21} + k_q}{B_{12}g(\nu_e)\Delta\nu_e f(T)} \quad (2.24)$$

qui correspond à la densité spectrale des molécules amenant à l'état excité l'ensemble des molécules susceptibles de se trouver dans cet état. L'énergie devient alors :

$$F = \frac{N_1^0 h\nu_{12}}{1 + \frac{W_{sat}}{W}} \quad (2.25)$$

Si  $W \gg W_{sat}$ , on est en régime de saturation.

Si  $W \ll W_{sat}$ , le régime linéaire est obtenu :

$$F = \frac{B_{12} W g(\nu_e) \Delta \nu_e f(T) N_1^0 h \nu_{12}}{A_{21} + k_q} \quad (2.26)$$

Dans tous les développements qui suivront, nous resterons dans l'approximation du régime linéaire, c'est-à-dire loin de la saturation.

Cette dernière équation peut être réécrite en utilisant la définition du rendement quantique de fluorescence  $\eta$  :

$$F = B_{12} W g(\nu_e) \Delta \nu_e f(T) \eta N_1^0 h \nu_{12} \quad (2.27)$$

La puissance lumineuse émise sur une largeur spectrale  $\Delta \nu$  de fluorescence est alors :

$$F = B_{12} W N_1^0 f(T) g(\nu_e) \Delta \nu_e \eta \int_{\Delta \nu} h S(\nu) d\nu \quad (2.28)$$

où  $S(\nu)$  représente la distribution spectrale normalisée de l'intensité de fluorescence, tel

que  $\frac{1}{\Delta \nu} \int_{\Delta \nu} S(\nu) d\nu = 1$ .

En introduisant la section efficace d'absorption que l'on peut définir dans ce cas par :

$$\sigma = \frac{B_{12}}{c} f(T) h \nu_e g(\nu_e) \quad (2.29)$$

Il en résulte :

$$F = \frac{\sigma c}{h \nu_e} W N_1^0 \Delta \nu_e \eta \int_{\Delta \nu} h S(\nu) d\nu \quad (2.30)$$

La densité spectrale d'énergie incidente  $W$  peut être écrite :

$$W = \frac{I_0}{\Delta \nu_e c} \quad (2.31)$$

avec  $I_0$  densité de puissance incidente ( $W/m^2$ ).

Déterminons maintenant l'énergie  $\rho$  émise par unité de volume et introduisons le coefficient d'absorption molaire  $k_\lambda$  à la longueur d'onde de l'émission laser ( $\text{moles}^{-1} \cdot \text{m}^2$ )

$$\rho = \frac{k_\lambda}{h \nu_e} I_0 C \eta \int_{\Delta \nu} h S(\nu) d\nu \quad (2.32)$$

où  $C$  est la concentration molaire volumique en espèces fluorescente ( $\text{moles} \cdot \text{m}^{-3}$ ) et  $k_\lambda = \sigma N$  ( $N$  étant le nombre d'Avogadro).

## 2.9 Détection de la fluorescence

Le signal constitué par l'émission de fluorescence est collecté à l'aide d'un système optique définissant un volume de mesure  $V_{\text{mes}}$  qui est défini par l'intersection entre le volume excité par la radiation incidente et le volume de collection imposé par le système optique (figure 2.3). Le signal optique ainsi collecté sera ensuite converti en un signal électrique à l'aide d'un photodétecteur qui pourra être une photodiode, un photomultiplicateur ou encore une caméra matricielle de type CCD par exemple.

Le photodétecteur intègre la fluorescence, polychromatique, sur une fenêtre spectrale  $[\nu_1; \nu_2]$  avec une fonction d'efficacité spectrale  $H(\nu)$  qui lui est propre. De plus, les différents éléments de la chaîne optique utilisée introduisent une constante optique  $K_{\text{opt}}$ .

L'intensité de fluorescence collectée dans le volume de mesure s'exprime donc par :

$$I_f = K_{\text{opt}} \frac{k_\lambda}{h \nu_e} I_0 C V_{\text{mes}} \eta \int_{\text{sup}(\Delta \nu, [\nu_1, \nu_2])} H(\nu) \otimes h S(\nu) d\nu \quad (2.33)$$

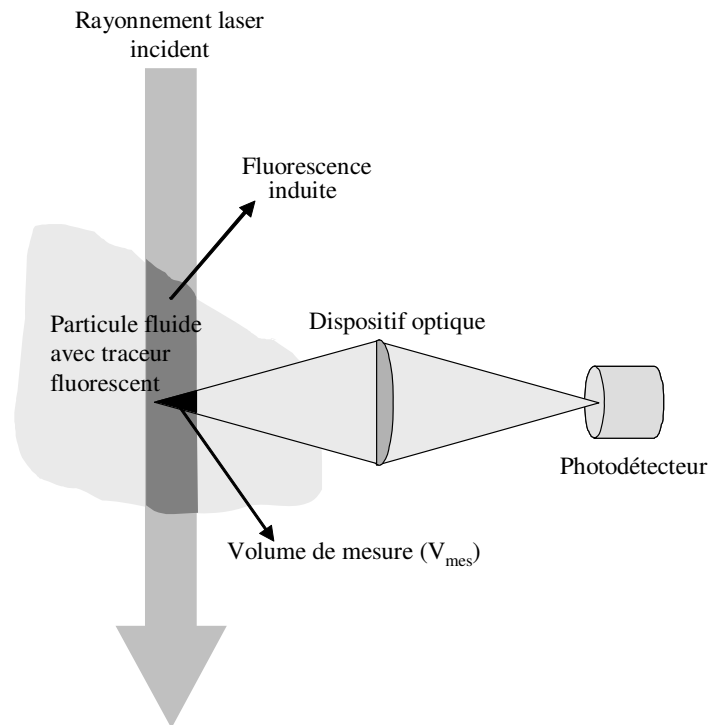


Figure 2.3 : Schéma typique d'une chaîne de fluorescence induite par laser.

## 2.10 Absorption sur le chemin optique

Il faut noter que l'ensemble des équations précédentes ne prend pas en compte l'atténuation du rayonnement laser incident traversant le milieu ensemené en traceur fluorescent ainsi que la réabsorption de la fluorescence elle-même, du fait du recouvrement partiel des spectres d'absorption et d'émission.

La loi de Beer-Lambert permet de décrire cette absorption sous la forme:

$$I_{\lambda} = I_{\lambda_0} e^{-\int_0^l k_{\lambda} C(y) dy} \quad (2.34)$$

où  $I_{\lambda_0}$  est l'intensité incidente et  $l$  le chemin optique traversé (figure 2.4),  $C(y)$  la concentration molaire du traceur fluorescent à l'abscisse  $y$ .  $k_{\lambda}$  est le coefficient d'absorption molaire à une longueur d'onde  $\lambda$  correspondant soit à la longueur d'onde du laser soit à une longueur d'onde de fluorescence.

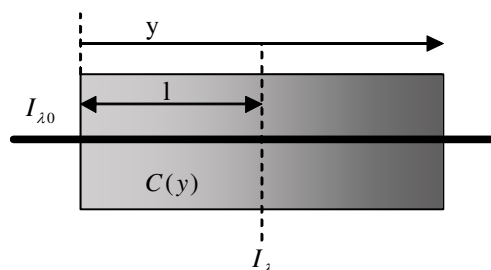


Figure 2.4 : Atténuation du signal de fluorescence sur le chemin optique.

## 2.11 Chaîne de mesure de fluorescence

Dans cette section, nous décrivons les composants d'une chaîne de mesure par fluorescence induite par laser. Deux types de méthodes peuvent être mises en œuvre : les méthodes ponctuelles et les méthodes bidimensionnelles. Les avantages et inconvénients des deux méthodes sont similaires à ceux que l'on peut invoquer pour la vélocimétrie laser à effet Doppler et la PIV (Vélocimétrie par Imagerie de Particules). Cependant, pour l'ensemble des travaux présentés, nous nous limiterons à des méthodes ponctuelles.

Dans ce dernier cas, l'excitation laser est déposée sur une zone précise de l'écoulement et le signal de fluorescence est collecté dans cette même zone.

Ainsi, il sera possible de réaliser un suivi dans le temps d'une propriété (température, concentration ...) en un point avec une résolution temporelle importante, pouvant atteindre plusieurs kHz. En revanche, la mesure doit être réalisée point par point et nécessite la stationnarité ou bien l'ergodicité du phénomène étudié.

Les éléments d'une chaîne de mesure ponctuelle sont :

- Un dispositif optique de collection dont le but est de former le volume de mesure et de collecter les photons de fluorescence en un point précis,
- Un laser continu ou pulsé (la durée du pulse doit être supérieure à la durée de vie de l'état excité)
- Un filtre optique permettant de séparer l'émission de la source et l'émission fluorescente
- Un photodétecteur : les photomultiplicateurs sont les dispositifs les plus fréquemment employés. Dans un tel dispositif, le signal lumineux atteint la surface photosensible d'une photocathode : des photoélectrons sont alors extraits par effet photoélectrique. Ces photoélectrons sont ensuite accélérés à l'aide d'une haute tension réglable afin de frapper une dynode, qui à son tour va émettre des électrons secondaires qui seront également accélérés et impacteront une seconde dynode et ainsi de suite. Il y a en général, dans un photomultiplicateur de l'ordre d'une dizaine de dynodes, ce qui conduit à un gain très important pouvant atteindre  $10^6$ . Le courant résultant est collecté à l'anode du dispositif figure 2.5).
- Un amplificateur de type courant-tension qui permet de conditionner le signal sous une forme utilisable par une carte d'acquisition par exemple et un logiciel de traitement.

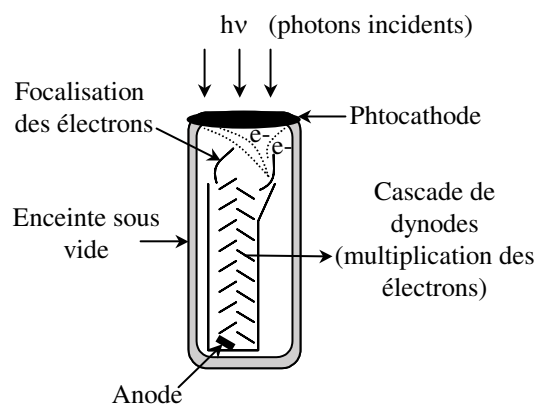


Figure 2.5 : Schéma de principe d'un photomultiplicateur.

## 2.12 Fluorescence induite par laser en phase liquide

### 2.12.1 Principes et modélisation

Dans les phases condensées, comme en phase liquide, il n'est plus possible de résoudre la structure fine vibrationnelle et rotationnelle du spectre de fluorescence. Nous parlerons donc plutôt de bandes d'énergie qui correspondent à des continuum d'émission ou d'absorption. Ces bandes d'énergie peuvent avoir une largeur spectrale de l'ordre d'une centaine de nm.

Ainsi, le terme d'interaction entre la raie laser, de longueur négligeable devant la largeur spectrale de la bande d'absorption, peut être intégré dans les constantes spectroscopiques qui seront notées de manière générique  $K_{opt}(\lambda)$ .

Un modèle à deux bandes énergétiques (notées 1 et 2, 1 désignant l'état fondamental et 2 l'état excité) sera donc considéré (figure 2.6), avec  $g_1$  et  $g_2$ , dégénérescences respectives des états 1 et 2. Rappelons que le signal de fluorescence peut être exprimé d'après l'équation (2.33). Le coefficient d'absorption molaire et le rendement quantique de fluorescence sont tout deux susceptibles de dépendre de la température. En phase liquide, il n'y a pas de dépendance notable en pression, sauf pour des niveaux de pression extrêmes.

La dépendance en température du coefficient d'absorption molaire  $k_\lambda$  se trouve essentiellement au niveau de la fraction de Boltzmann  $f(T)$ .

La population moléculaire totale  $N$  est répartie entre les deux états énergétiques 1 et 2, d'énergie respective  $E_1$  et  $E_2$ , suivant la loi de Boltzmann (eq. (2.7)) :

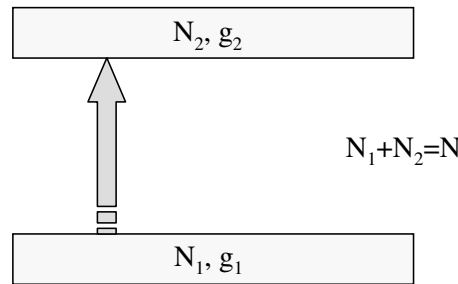


Figure 2.6 : Illustration du modèle à deux niveaux d'énergie.

La fraction des molécules  $f(T)$  dans l'état fondamental est alors:

$$f(T) = \frac{N_1}{N} = \frac{g_1 e^{-E_1/kT}}{Q_v} \quad (2.35)$$

où  $Q_v$  est la fonction de partition définie dans le cas d'un système à deux niveaux d'énergie par:

$$Q_v = g_1 e^{-\frac{E_1}{kT}} + g_2 e^{-\frac{E_2}{kT}} \quad (2.36)$$

L'approximation suivante peut en général être admise (Herzberg , 1951):

$$g_2 e^{-E_2/kT} \gg g_1 e^{-E_1/kT} \quad (2.37)$$



ce qui conduit à une expression simplifiée de  $f(T)$  :

$$f(t) = \frac{g_1}{g_2} e^{(E_2 - E_1)/kT} \quad (2.38)$$

Le taux de désactivation collisionnelle (quenching)  $Q$  peut être écrit en fonction d'une constante cinétique  $k_{qi}$  et de la concentration moléculaire des espèces participant à la désactivation collisionnelle, notée  $[M_i]$  :

$$Q = \sum_i k_{qi} [M_i] \quad (2.39)$$

Les constantes de quenching  $k_{qi}$  dépendent de la température du milieu et peuvent être formulées à l'aide d'une loi de type Arrhénius (Glowacki, 1964) :

$$k_{qi} = k_{q0i} e^{-E_a/kT} \quad (2.40)$$

où  $k_{q0i}$  est une constante et  $E_a$  est l'énergie d'activation mise en jeu dans l'interaction de la molécule fluorescente avec une molécule tiers.

Lorsque l'on s'intéresse à une espèce fluorescente ultra-minoritaire en solution dans un solvant mono composant,  $[M]$  peut être considérée comme constant.

Le rendement quantique de fluorescence  $\eta$ , en négligeant le terme d'émission spontanée devant le terme de désactivation collisionnelle, peut s'exprimer de la manière suivante :

$$\eta \propto \frac{A_{21}}{k_{q0} e^{-E_a/kT}} \quad (2.41)$$

Cette approximation a un très large domaine de validité, que ce soit en phase gazeuse pour des pressions supérieures à 1000 Pa ou dans les phases condensées.

En utilisant la modélisation adoptée pour le coefficient d'absorption  $k_\lambda$  et pour le rendement quantique de fluorescence  $\eta$ , il est possible de déterminer une expression du spectre de fluorescence de fluorescence en phase liquide, sous la forme:

$$I_f(\lambda) = K_{opt}(\lambda) K_{spec}(\lambda) V_{mes} C I_0 e^{\beta(\lambda)/T} \quad (2.42)$$

avec  $\beta(\lambda) = \frac{E_2 - E_1 + E_a}{kT}$ . Ce paramètre,  $\beta(\lambda)$ , rend compte de la déformation du spectre

avec la température.

Cette expression ne tient pas compte de l'absorption de l'énergie incidente sur le chemin optique ni de l'éventuelle réabsorption du signal de fluorescence du fait du possible recouvrement partiel entre les spectres d'absorption et d'émission.

Le signal de fluorescence est en général intégré sur une bande spectrale assez large  $[\lambda_1, \lambda_2]$ . L'intégration de l'équation spectrale (2.42) conduit à une expression du type:

$$I_f = K_{opt} K_{spec} C I_0 \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} e^{\beta(\lambda)/T} d\lambda \approx K_{opt} K_{spec} V_{mes} C I_0 e^{A/T^2 + B/T} \quad (2.43)$$

où  $K_{opt}$  et  $K_{spec}$  sont des constantes optiques et spectroscopiques spécifiques à la bande spectrale de détection. A et B sont deux coefficients de sensibilité à la température relatifs à la bande spectrale choisie.

## 2.12.2 Réabsorption de la fluorescence

Le problème de la réabsorption de la fluorescence se pose lorsque la bande spectrale de détection choisie appartient au spectre d'absorption de l'espèce fluorescente. Ce problème peut s'avérer important en phase liquide étant donnée la densité moléculaire du milieu, nettement plus importante qu'en phase gazeuse.

D'un point de vue spectral, la réabsorption de la fluorescence obéit à la loi de Beer-Lambert :

$$I_f(\lambda) = I_{f0}(\lambda) e^{-\varepsilon(\lambda)C_y} \quad (2.44)$$

où  $I_{f0}(\lambda)$  est l'intensité de fluorescence émise avant réabsorption par le milieu et  $\varepsilon(\lambda)$  est le coefficient d'absorption molaire à la longueur d'onde  $\lambda$ .

En présence de réabsorption, l'équation (2.43) doit être réécrite en intégrant la dépendance en longueur d'onde de  $\varepsilon(\lambda)$  :

$$I_f = K_{opt} K_{sepc} V_{mes} C I_0 \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} e^{\beta(\lambda)/T} e^{-\varepsilon(\lambda)C_y} d\lambda \quad (2.45)$$

Dans une telle configuration, le milieu optique traversé se comporte comme un filtre spectral vis-à-vis du signal de fluorescence. L'effet de ce filtrage est lié au chemin optique équivalent  $C.y$  traversé par le signal de fluorescence, ce qui revient à rendre les coefficients de sensibilité en température A et B de l'équation (2.43) dépendant du chemin optique.

En séparant les termes relatifs à l'absorption, à la dépendance en température et en intégrant le chemin optique dans les coefficients de sensibilité en température, l'équation (2.45) peut être écrite de manière empirique sous la forme:

$$I_f = K_{opt} K_{sepc} V_{mes} C I_0 e^{-(\varepsilon C_y + k C^2 y^2)} e^{\frac{A(C_y) + B(C_y)}{T^2 + T}} \quad (2.46)$$

où  $\varepsilon$  et  $k$  sont des coefficients d'absorption.

En général, A et B évoluent de manière linéaire avec le chemin optique  $C.y$  (Lavieille et al., 2004).

## 2.12.3 Applications à la mesure de température

L'intensité de fluorescence émise en un point est proportionnelle à la concentration et présente une dépendance en température. Ces propriétés peuvent être exploitées afin de mesurer ces paramètres dans les liquides en écoulement.

- **Méthode à une bande spectrale de détection**

Pour utiliser le signal de fluorescence afin de mesurer la température en utilisant une seule bande spectrale de détection, il sera nécessaire d'opérer avec une concentration constante C en traceur fluorescent, tout en maintenant la puissance laser incidente et le volume de collection de la fluorescence constants tout au long de l'expérience. De plus, la bande spectrale de détection sera choisie de manière à minimiser la réabsorption du signal de fluorescence dans le milieu. Pour cela, la bande de détection sera choisie si possible hors de la bande d'absorption du traceur fluorescent. Ainsi, les coefficients A et B de l'équation (2.46) deviennent indépendants du chemin optique  $C.y$ .

Si l'atténuation du faisceau laser n'est pas négligeable, il sera nécessaire, soit de travailler à chemin optique constant, soit d'effectuer une correction de cette atténuation à l'aide de la loi de Beer-Lambert(2.34).

Dans ce cas l'utilisation d'un simple point de référence où la température  $T_0$  est connue et où l'intensité de fluorescence  $I_{f0}$  peut être mesurée permet d'accéder à la température suivant la relation, provenant de l'équation (2.42):

$$\ln\left(\frac{I_f}{I_{f0}}\right) = B\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) + A\left(\frac{1}{T^2} - \frac{1}{T_0^2}\right) \quad (2.47)$$

Les coefficients A et B sont déterminés préalablement et une fois pour toutes par étalonnage dans une cellule agitée dans laquelle la température est progressivement accrue et mesurée par un thermocouple. L'agitation est nécessaire pour assurer une bonne homogénéité de la température dans la cellule et éviter le photoblanchissement du traceur fluorescent dû à l'exposition prolongée au rayonnement laser.

Pour utiliser l'équation (2.47), il est également nécessaire de se placer dans des conditions de réabsorption du signal de fluorescence négligeable. Dans le cas contraire, la référence doit être prise au même chemin optique que les mesures.

Notons également que le signal de fluorescence en phase liquide présente une dépendance plus ou moins marquée au pH et à la composition du liquide, en fonction du traceur fluorescent utilisé (Walker, 1987). Pour cela, en phase aqueuse, nous utiliserons exclusivement de l'eau désionisée.

- **Méthode à deux bandes spectrales de détection : fluorescence induite par laser à deux couleurs**

Cette méthode a principalement été développée pour la mesure de température de gouttelettes en évaporation. Nous nous limiterons donc au cas de très faibles chemins optiques, ce qui permettra de négliger l'atténuation du faisceau incident et la réabsorption du signal de fluorescence.

Cependant dans une gouttelette et dans toute particule fluide présentant une interface liquide-gaz, le volume de mesure est difficilement quantifiable et peut varier en fonction de la position de l'interface par rapport aux faisceaux laser. De plus, la distribution de l'énergie laser dans la particule fluide dépend de la forme de l'interface. Ajoutons que dans une gouttelette en évaporation, la concentration en traceur fluorescent n'est pas constante et augmente constamment. Une stratégie de mesure fondée sur la détection de la fluorescence sur deux bandes spectrales distinctes a donc été développée. Cette stratégie s'appuie sur la forte dépendance en longueur d'onde de la sensibilité en température  $\beta(\lambda)$  (équation (2.42)).

Cette propriété est illustrée sur le cas de la sulforhodamine B en solution aqueuse (figure 2.8). La sensibilité en température est faible aux alentours de 540 nm et devient importante pour des longueurs d'onde supérieures à 570 nm.

Notons que la courbe  $\beta(\lambda)$  obtenue est fortement dépendante du traceur fluorescent utilisé ainsi que du solvant. Une telle courbe s'obtient en calculant le rapport de deux spectres de fluorescence enregistrés à des températures différentes.

Dans une technique à deux couleurs, la fluorescence est détectée simultanément sur deux bandes spectrales dont les sensibilités en température sont très différentes.

Le signal sur la première bande, en négligeant tout type d'absorption, s'exprime par (équ. (2.43)) :

$$I_{f1} = K_{opt1} K_{spec1} V_{mes} C I_0 e^{\frac{A_1 + B_1}{T^2 + T}} \quad (2.48)$$

De la même manière, le signal sur la deuxième bande spectrale s'exprimera par :

$$I_{f2} = K_{opt2} K_{spec2} V_{mes} C I_0 e^{\frac{A_2 + B_2}{T^2 + T}} \quad (2.49)$$

Le rapport  $R_{12}$  des intensités mesurées sur les deux bandes spectrales s'écrira donc :

$$R_{12} = \frac{I_{f1}}{I_{f2}} = \frac{K_{opt1} K_{spec1}}{K_{opt2} K_{spec2}} e^{(A_1 - A_2) \frac{1}{T^2} + (B_1 - B_2) \frac{1}{T}} \quad (2.50)$$

Ce rapport est indépendant de la concentration du traceur fluorescent, de l'énergie laser incidente et du volume de mesure et dépend donc exclusivement de la température.

En utilisant une mesure de référence où la température  $T_0$  est connue et où le rapport de fluorescence  $R_{120}$  peut être mesuré, il est possible de déterminer la température suivant la relation :

$$\ln\left(\frac{R_{12}}{R_{120}}\right) = (A_1 - A_2) \left(\frac{1}{T^2} - \frac{1}{T_0^2}\right) + (B_1 - B_2) \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) \quad (2.51)$$

Les paramètres  $(A_1 - A_2)$  et  $(B_1 - B_2)$  s'obtiennent par un étalonnage préalable, comme pour les techniques à une seule bande spectrale.

On notera que le rapport de fluorescence est totalement indépendant de l'atténuation du faisceau laser incident. Cependant, la réabsorption de la fluorescence par le milieu est un point critique, car celle-ci est beaucoup plus marquée pour la première bande spectrale que pour la seconde. Ce phénomène est donc susceptible de fortement influencer le rapport de fluorescence si cette réabsorption n'est pas négligeable. Pour effectuer l'étalonnage initial, il sera donc nécessaire de travailler à chemin optique constant et minimum.

## 2.13 Etalonnage préalable des traceurs fluorescents dans le cadre de la LIF à deux couleurs

Les traceurs fluorescents doivent faire l'objet d'un étalonnage préalable dans des conditions de température contrôlées.

### 2.13.1 Dispositif expérimental

La solution, composée du traceur fluorescent et de son solvant est placée dans une cellule en verre borosilicaté de 16 ml permettant une tenue en température jusqu'à environ 450°C. Cette cellule est maintenue en contact avec une plaque de cuivre. Un module à effet Peltier impose une température à la plaque de cuivre qui permet le chauffage ou un refroidissement selon le sens du courant qui traverse les jonctions de l'élément Peltier. Une agitation constante de la solution, réalisée par un barreau magnétique tournant, permet d'établir un champ de température homogène dans la solution. Une isolation thermique de la cellule a été conçue avec des accès optiques permettant la pénétration du faisceau laser à travers la cellule et la prise de mesure des intensités de fluorescence par l'optique de collection LIF qui est placée à

90° du faisceau laser. Ces accès optiques permettent le passage du faisceau laser en bord de paroi afin d'éviter les phénomènes de réabsorption de la fluorescence.

Un obturateur de faisceau laser est adjoint au dispositif afin d'éviter le phénomène de photoblanchissement de la solution. Celui est piloté par le logiciel d'acquisition des intensités de fluorescence par l'intermédiaire du port parallèle du PC hôte du logiciel. Les acquisitions sont définies sur une période suffisante afin de permettre la convergence des signaux d'intensité.

La prise de température de la solution est réalisée par un thermocouple plongeant dans la solution. Le logiciel d'acquisition vient lire la valeur de la température en communiquant avec un multimètre par la liaison série du PC. L'ensemble du dispositif expérimental de calibration est représenté figure 2.7

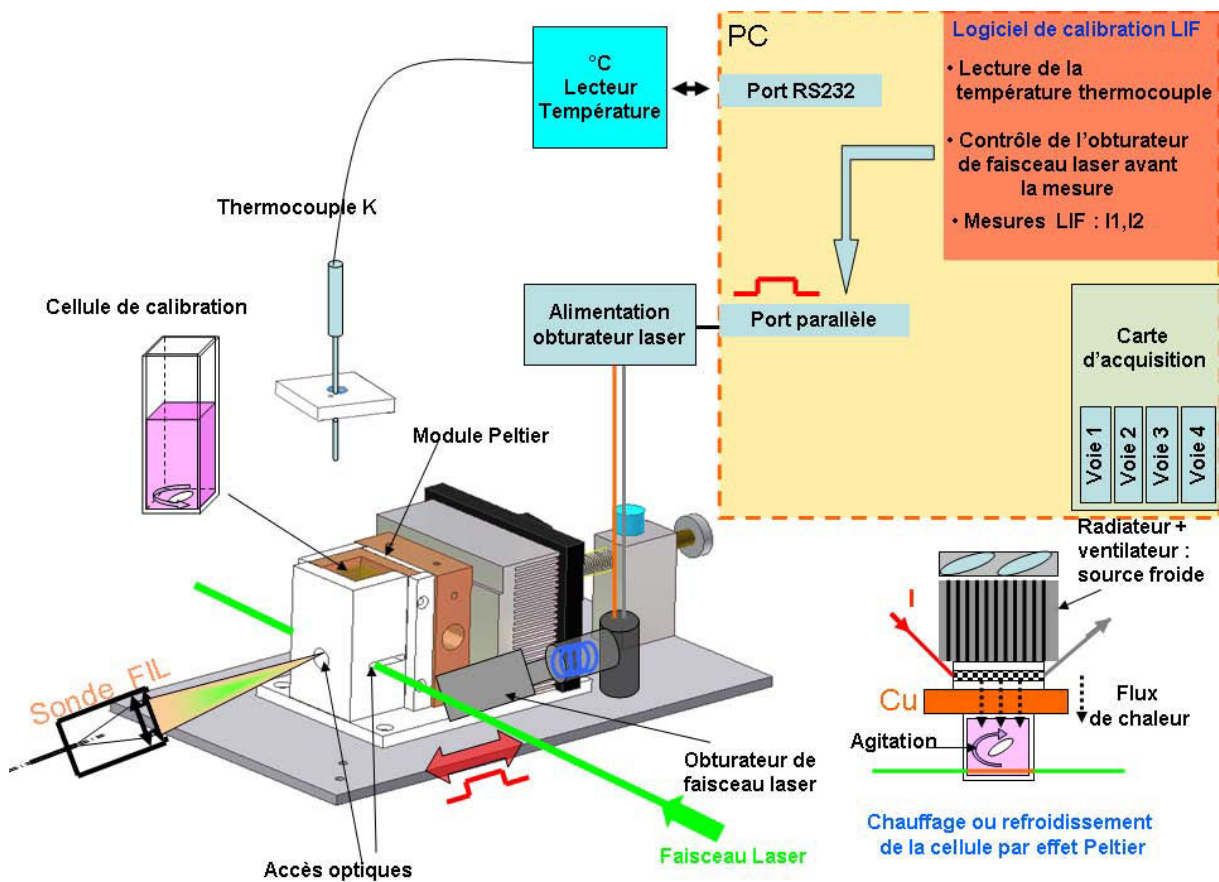


Figure 2.7 : Schéma du dispositif expérimental réalisé pour la calibration en température des solutions fluorescentes.

### 2.13.2 Sélection des bandes spectrales de détection

Afin de sélectionner de manière appropriée les bandes spectrales de détection, il est nécessaire d'effectuer le compromis suivant :

- bonne sensibilité en température globale de la méthode, c'est-à-dire disposer d'une sensibilité en température entre les deux bandes spectrales la plus grande possible.
- Disposer de niveau de signal suffisant sur chacune des bandes spectrales, un éventuel déséquilibre pouvant être compensé par l'ajustement des tensions des photodétecteurs.

La sensibilité spectrale du traceur fluorescence est déterminée de la manière suivante : deux spectres  $I_{f1}(\lambda)$  et  $I_{f2}(\lambda)$  sont enregistrés dans la cellule de calibration décrite précédemment à deux températures très différentes,  $T_1$  et  $T_2$ , dans les mêmes conditions optiques. La solution aqueuse de colorant est excitée par la raie verte du laser à argon ionisé ( $\lambda=514.5$  nm). Puis le rapport des spectres est calculé afin d'extraire la sensibilité  $\beta(\lambda)$  :

$$\beta(\lambda) = \ln \left( \frac{I_{f1}(\lambda)}{I_{f2}(\lambda)} \right) / \left( \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right) \quad (2.52)$$

L'évolution de la sensibilité  $\beta(\lambda)$  en température du traceur en solution dans l'eau est superposée avec les spectres d'émission et d'absorption du colorant, pour la sulforhodamine B (kiton red) figure 2.8 et pour la rhodamine B figure 2.9.

L'examen de la sensibilité en température conduit à la répartition des bandes spectrales suivantes :

<i>Traceur</i>	<i>Bande 1 (nm)</i>	<i>Bande 2 (nm)</i>
<i>Sulfo-Rhodamine B</i>	535-545	> 615
<i>Rhodamine B</i>	525-535	590-700

Tableau 2.1 : Bandes spectrales sélectionnées pour les deux traceurs en solution dans l'eau.

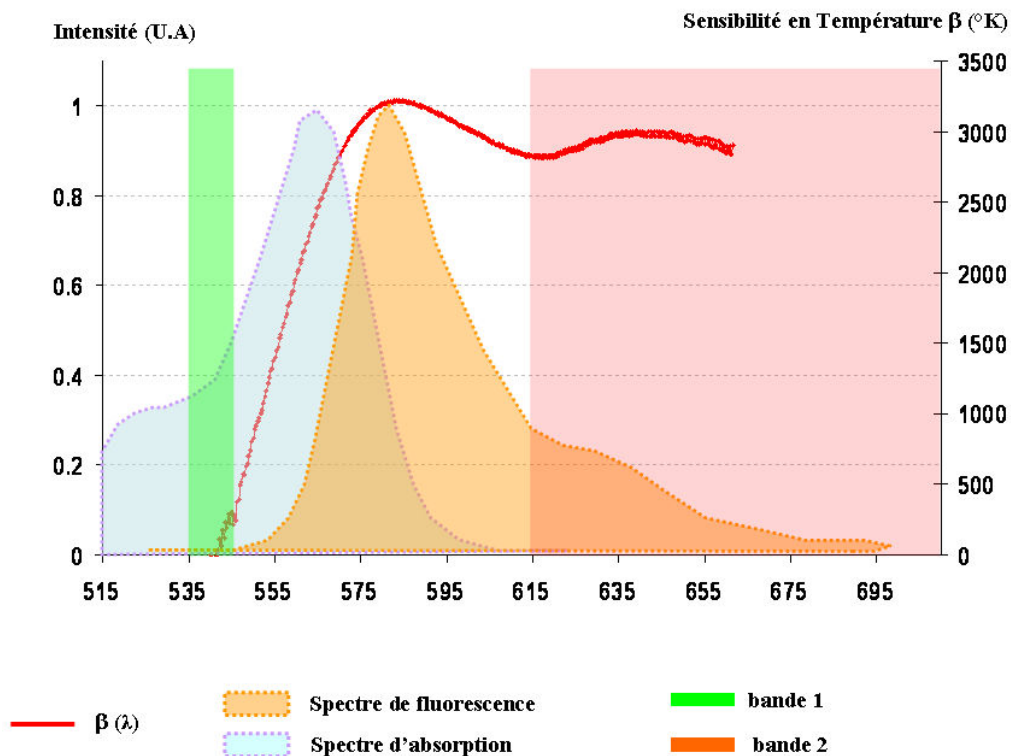


Figure 2.8 : Spectres d'émission et d'absorption de la SulfoRhodamine B dissoute dans l'eau. Position des bandes spectrales et courbe de sensibilité en température.

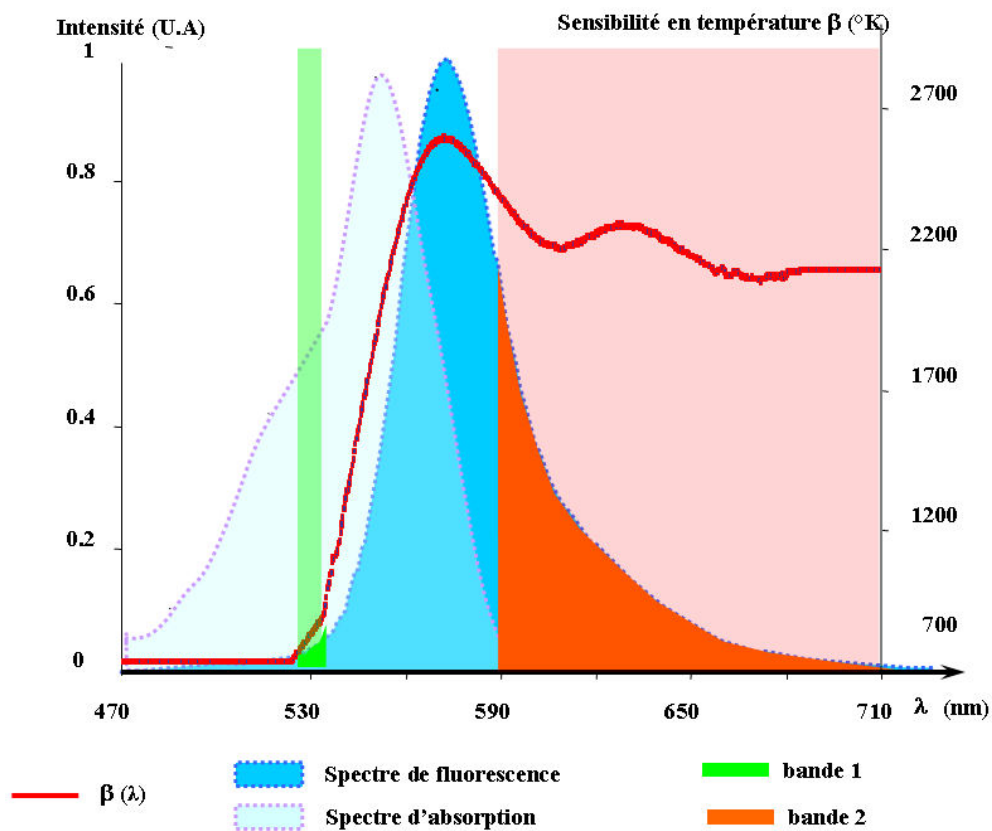


Figure 2.9 : Spectres d'émission et d'absorption de la Rhodamine B dissoute dans l'eau. Position des bandes spectrales et courbe de sensibilité en température.

### 2.13.3 Calibration en température

La calibration en température de la solution fluorescente s'effectue selon les étapes suivantes :

- Etapes préliminaires :
  - Réglage des hautes tensions des photomultiplicateurs pour avoir des intensités de fluorescence maximales sans saturation du signal.
  - En l'absence de faisceau laser et dans l'obscurité, mesure du bruit sur les voies de mesure 1 et 2.
  - En présence du faisceau laser, mesure des intensités de référence  $I_{10}$  et  $I_{20}$  de fluorescence sur la période d'acquisition définie par l'utilisateur, ainsi que la température initiale de la solution (prise comme référence)  $T_0$ .
- Lancement de la chauffe en réglant un courant circulant dans le module Peltier
- Lancement des mesures LIF en boucle suivant le cycle suivant:
  - Ouverture de l'obturateur laser
  - Mesure des intensités  $I_1$  et  $I_2$  de fluorescence sur une courte période d'acquisition fixée par l'utilisateur, à une température  $T$  supposée constante sur la période.
  - Fermeture de l'obturateur Laser
  - Mesure de la température de la solution  $T$  donnée par le thermomètre digital.
  - Traitement des données enregistrement

Pour les bandes spectrales sélectionnées, les solutions ont été étalonnées en température dans la cellule de calibration décrite précédemment. Les courbes d'étalonnage en température sont représentées figure (2.11) pour la rhodamine B dissoute dans l'eau, et figure (2.10) pour la sulfo-rhodamine B également en solution aqueuse. Les coefficients de calibration en température ( $A_1-A_2$ ) et ( $B_1-B_2$ ) de l'équation (2.51) sont évalués à partir de ces courbes d'étalonnage et sont résumés dans le tableau 2.2.



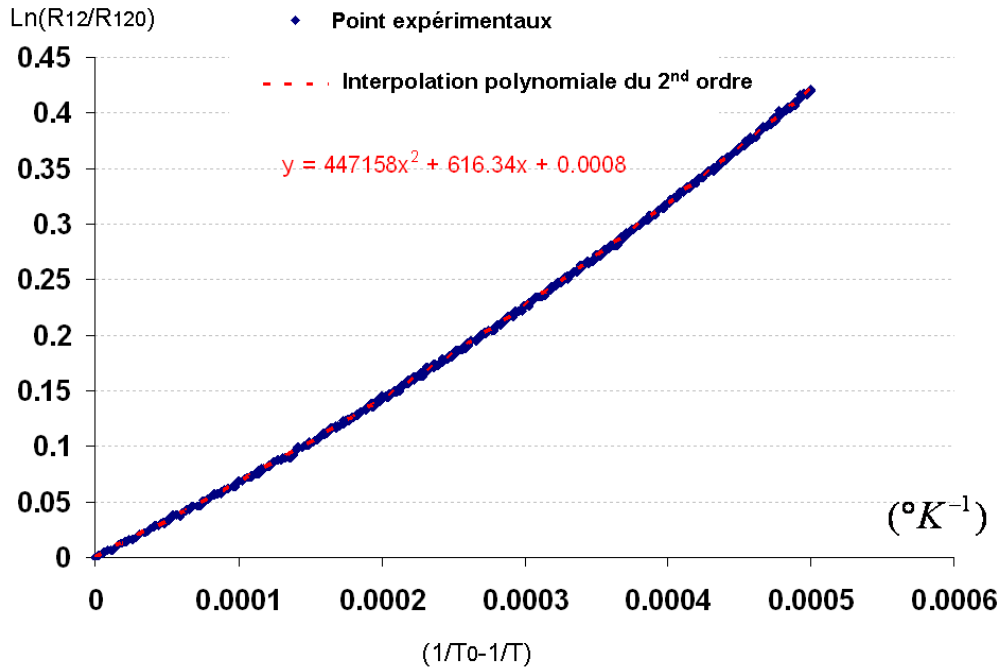


Figure 2.10 : Calibration en température de la sulfo-Rhodamine dissoute dans l'eau

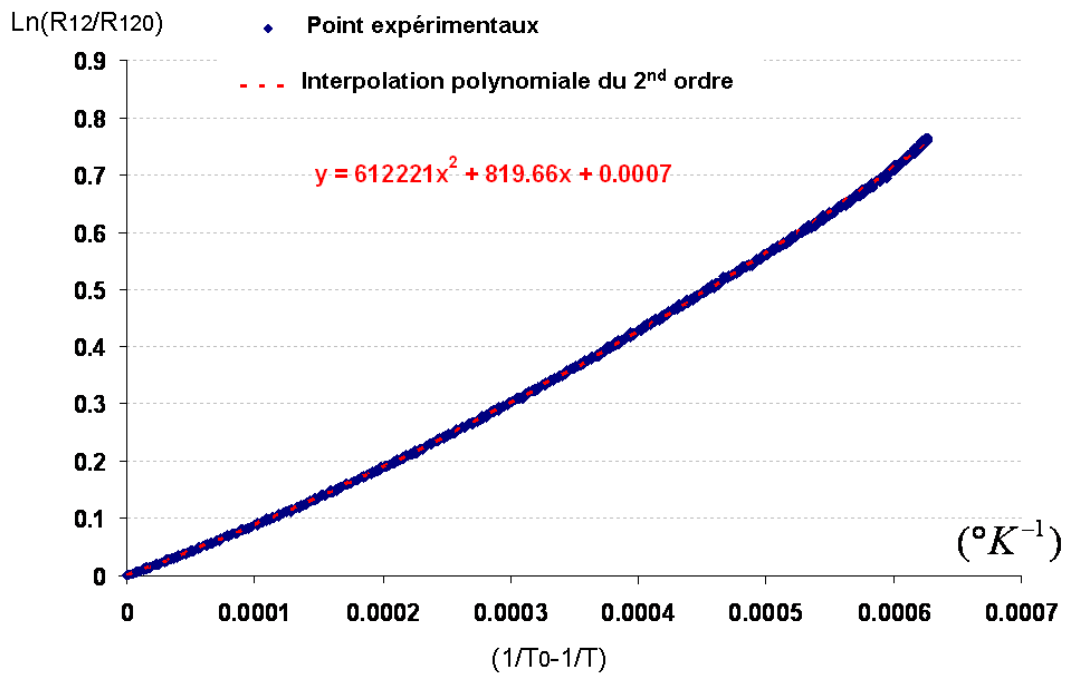


Figure 2.11 : Calibration en température de la Rhodamine B dissoute dans l'eau

Traceur	$A_1-A_2$	$B_1-B_2$
Sulforhodamine B	447158	616,34
Rhodamine B	612221	819,66

Tableau 2.2 : Coefficients de calibration en température obtenus pour les deux traceurs en solution dans l'eau



## **Chapitre 3**

### **Fluorescence multibande appliquée aux écoulements monophasiques**



# Chapitre 3

## Fluorescence multibande appliquée aux écoulements monophasiques

### 3.1 Introduction

Dans de nombreux cas, il est souvent nécessaire de mesurer la température locale dans des écoulements, afin de caractériser les transferts de chaleur dans des configurations d'écoulements académiques ou industrielles, que ce soit pour des applications industrielles, comme les échangeurs de chaleur, ou sur des maquettes hydrauliques. Des données expérimentales pour lesquelles les perturbations sur les champs dynamiques et thermiques de l'écoulement, du fait de l'instrument de mesure sont minimales, sont nécessaires à la validation de modèles. D'autre part, la méthode de mesure doit être à la fois non intrusive et doit avoir une bonne résolution spatiale. La technique de la fluorescence induite par laser semble être un bon candidat. Le principe de la technique consiste à induire la fluorescence d'un traceur fortement dilué (typiquement quelque ppm) dans le liquide à étudier.

La technique de fluorescence a souvent été utilisée avec un seul traceur, mais plus récemment des techniques à deux traceurs, ou un traceur et deux couleurs, sont apparues mettant en avant de nouvelles perspectives intéressantes. La technique à un traceur peut être utilisée pour mesurer soit la température, soit la concentration du traceur, lorsque l'un ou l'autre de ces deux paramètres ne varie pas. La source excitatrice et l'optique de collection doivent alors intercepter un volume constant pendant la durée l'expérience, ce qui exclut l'application de la technique à un traceur pour les applications diphasiques, à l'exception des cas où tous les paramètres peuvent être contrôlés (Lavieille et al 2000a). A concentration constante, la température locale du fluide peut être mesurée (Nakajima et al. 1990 ; Sakakibara et al. 1993 ; Lemoine et al. 1999) en utilisant la dépendance en température du rendement quantique de fluorescence et de la section efficace d'absorption. La sélection du traceur fluorescent est importante pour les applications de mesure de la température car la sensibilité en ce paramètre varie fortement d'une solution à l'autre. La Rhodamine B et le Kitton Red (aussi appelé sulfohodamine B) sont les plus sensibles (Copetta and Rogers 1998). D'autres traceurs présentent des propriétés intéressantes tels que la Fluorescine 548 (Sutton et al., 2008), soluble dans l'eau et présentant une bande de fluorescence Stokes anti-Stokes. Par ailleurs, ces traceurs ont l'avantage d'être facilement excités à l'aide de sources laser classiques, disponibles dans le commerce: laser à argon ionisé argon à  $\lambda = 514.5$  nm et 488 nm ou laser Nd-Yag à  $\lambda = 532$  nm.

La difficulté principale pour la mesure de températures est d'avoir la concentration en traceur, l'intensité laser et le volume de collection toujours constant durant la durée de l'expérience. De plus, l'absorption du faisceau laser incident dans le liquide ensemencé ainsi que la réabsorption de la fluorescence issue du volume d'émission vers l'optique de collection doivent être négligeables. En d'autres termes, cela signifie que de faibles concentrations en traceur et de faibles chemins optiques doivent être utilisés. Or, ceci est rarement vérifié lors des applications expérimentales réelles.

Dans le but de pallier ces problèmes intrinsèques à la technique à un seul traceur fluorescent, l'utilisation de deux traceurs fluorescents dilués dans l'écoulement a été envisagée (Copetta et Rogers 1998 ; Sakakibara et Adrian 1999 ; Hishida and sakakibara 2000 ; Lavieille et al

2000b). Dans cette technique, dite à deux traceurs et deux couleurs, un des deux traceurs est sensible à la température et l'autre nettement moins. D'autre part, les deux spectres d'émission de fluorescence doivent être suffisamment séparés pour permettre de les distinguer spectralement. Ainsi, cette technique deux couleurs permet d'éliminer les dépendances à l'absorption du faisceau laser incident, l'intensité laser et le volume de mesure. Cependant, il reste toujours la dépendance au rapport des deux concentrations. Ce rapport doit être maintenu constant durant la durée de l'expérience et sa valeur connue. Par exemple, dans les cas d'étude de la diffusion turbulente, il est nécessaire de s'assurer que les deux traceurs diffusent de la même manière. Une autre difficulté provient des conflits spectraux dus au recouvrement des spectres d'absorption et d'émission (Coppetta et Rogers, 1998).

La technique à deux couleurs et un seul traceur » développée initialement par Lavieille et al (2001, 2002) permet de résoudre le problème de la dépendance au rapport des concentrations. Cette technique utilise un seul traceur (la Rhodamine B) associé à deux bandes spectrales de détection ayant des sensibilités en température différentes. Les influences de la taille du volume de mesure, de l'intensité laser et de l'absorption du faisceau laser incident sont également éliminées en effectuant le rapport des intensités de fluorescence collectées sur les deux bandes spectrales.

Cette technique a été développée pour mesurer la température de gouttes d'éthanol en évaporation ou en combustion. Cependant, pour des chemins optiques importants, la réabsorption peut être différente sur les deux bandes spectrales car la première coïncide pratiquement avec le maximum du spectre d'absorption. Cette différence d'absorption entre les deux bandes induit alors des erreurs très importantes sur la mesure de température.

L'objectif de ce chapitre est de présenter l'extension de la technique deux couleurs, un traceur en traitant le problème de la réabsorption pour les chemins optiques importants. L'idée est d'utiliser une troisième bande spectrale dans le but de prendre en compte le phénomène de réabsorption. Deux rapports de fluorescence sont alors déterminés pour en extraire la température.

Dans un second temps, une expérience de démonstration sera réalisée sur jet d'eau chauffé injecté dans un réservoir d'eau calme, lorsque la concentration du traceur est constante ou varie.

## 3.2 Equations de base de la fluorescence

Le spectre de fluorescence d'un traceur en une phase liquide se présente sous la forme d'une large bande, dont l'expression de l'intensité en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  est donnée par (Walker 1987 ; Lemoine et al. 1996 ; Karaso et Mungal 1997) :

$$I_f(\lambda) = K_{opt}(\lambda) I_{laser} e^{-\varepsilon(\lambda_{laser}) \int_0^b C(x) dx} V_c C \eta \varepsilon(\lambda_{laser}) e^{-\varepsilon(\lambda) \int_0^e C(y) dy} \quad (3.1)$$

où  $K_{opt}(\lambda)$  est une constante optique, le produit  $V_c C$  représente le nombre total de molécules excitées présentes dans le volume de mesure ( $C$  étant la concentration moléculaire en traceur fluorescent et  $V_c$  le volume de collection),  $\varepsilon(\lambda_{laser})$  est le coefficient d'extinction pour la longueur d'onde excitatrice  $\lambda_{laser}$ ,  $\varepsilon(\lambda)$  est le coefficient d'extinction pour l'émission de fluorescence à la longueur d'onde  $\lambda$ ,  $\eta$  est le rendement quantique de fluorescence et  $I_{laser}$  est l'intensité laser excitatrice. Les paramètres  $b$  et  $e$  sont respectivement les chemins optiques de du faisceau laser incident et de l'émission de fluorescence (figure 3.1).

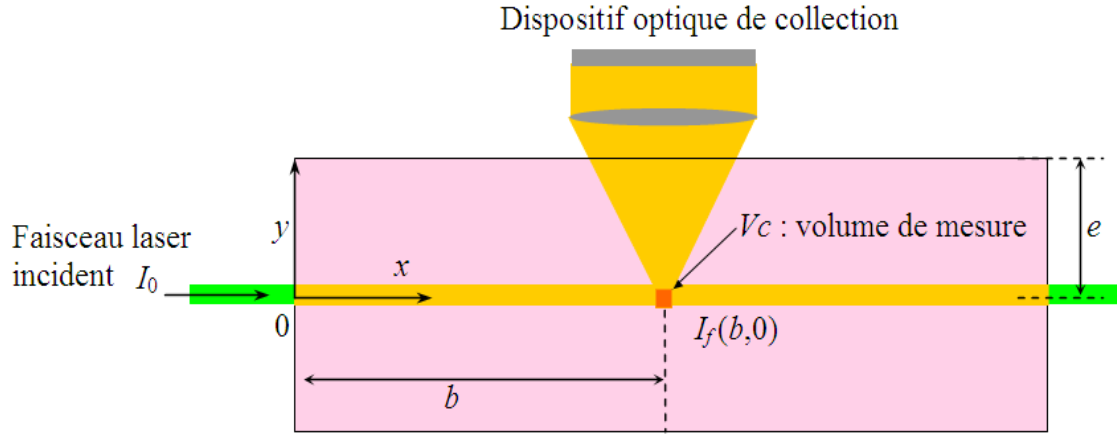


Figure 3.1 : Définition des chemins optiques

Les coefficients d'extinction  $\varepsilon(\lambda_{laser})$  et  $\varepsilon(\lambda)$  dépendent à la fois de la température et du pH, selon le traceur fluorescent utilisé. La température de l'écoulement peut être déduite de l'expression (3.1) en modélisant l'expression du rendement quantique de fluorescence et du coefficient d'extinction  $\varepsilon(\lambda_{laser})$  (Lemoine et al. 1999). L'équation spectrale du signal de fluorescence en fonction de la température devient (voir chapitre 2):

$$I_f(\lambda) = K_{opt}(\lambda) K_{spec}(\lambda) I_{laser} e^{-\varepsilon(\lambda_{laser}) \int_0^b C(x) dx} V_c C e^{-\varepsilon(\lambda) \int_0^e C(y) dy} e^{\beta(\lambda)/T} \quad (3.2)$$

ou  $\beta(\lambda)$  est le coefficient de sensibilité en température pour la longueur d'onde  $\lambda$  et  $T$  est la température absolue.  $K_{spec}(\lambda)$  est une constante spectroscopique résultant des propriétés spectroscopiques du traceur dans son solvant à la longueur d'onde  $\lambda$ . Pour collecter suffisamment de photons et assurer la convergence du signal, la fluorescence est collectée sur une bande spectrale  $[\lambda_1, \lambda_2]$ . L'intensité de fluorescence collectée sur la bande spectrale est :

$$I_f = I_{laser} e^{-\varepsilon(\lambda_{laser}) \int_0^b C(x) dx} V_c C \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} K_{opt}(\lambda) K_{spec}(\lambda) e^{-\varepsilon(\lambda) \int_0^e C(y) dy} e^{\beta(\lambda)/T} d\lambda \quad (3.3)$$

Par la suite, pour des raisons de simplification des notations, les quantités  $\int_0^b C(x) dx$  et  $\int_0^e C(y) dy$  seront notées  $C_x$  et  $C_y$  respectivement.

### 3.3 Principes de la fluorescence à 3 couleurs

#### 3.3.1 Introduction

Dans l'équation (3.3), la mesure de la fluorescence sur deux bandes spectrales permet de supprimer la dépendance au volume de mesure  $V_c$ , à la concentration en traceur  $C$ , à l'intensité laser incidente  $I_{laser}$  et à l'absorption du faisceau laser incidente représentée par le terme  $C_x$ . Néanmoins, le terme  $C_y$  demeure inconnu et il est nécessaire de le quantifier afin de mesurer une température correcte. Notre étude portera sur le cas de la rhodamine B en solution aqueuse dont la fluorescence est induite par la raie verte du laser à argon ionisé ( $\lambda=514,5$  nm).

Ainsi, pour déterminer le terme d'absorption inconnu  $Cy$  et par là même, la température pour des chemins optiques importants, l'idée est d'utiliser une troisième bande spectrale de détection. Les trois bandes spectrales doivent être sélectionnées judicieusement de manière à dissocier la sensibilité en température et les effets de la réabsorption de la fluorescence. Pour la rhodamine B en solution aqueuse, ces critères de sélection sont présentés figure 3.2, en relation avec la courbe de sensibilité en température mesurée par spectroscopie. (voir chapitre 2).

Ces critères sont les suivants :

- Bande 1 [ $\lambda_1; \lambda_2$ ] : peu sensible à la température et sensible à la réabsorption de la fluorescence.
- Bande 2 [ $\lambda_3; \lambda_4$ ] : sensible à la température et sensible à la réabsorption de la fluorescence.
- Bande 3 [ $\lambda_5; \lambda_6$ ] : sensible à la température mais faible sensibilité à la réabsorption de la fluorescence.

Une difficulté supplémentaire est que l'absorption moyenne agit comme un filtre spectral sur elle-même en raison du chevauchement du spectre d'absorption et du spectre d'émission de la fluorescence. Une modification de la distribution de fluorescence sur les bandes spectrales est donc attendue, causée par le phénomène de réabsorption. Cela revient à dire que la sensibilité en température  $\beta(\lambda)$  dépend de la longueur du chemin optique de la fluorescence.

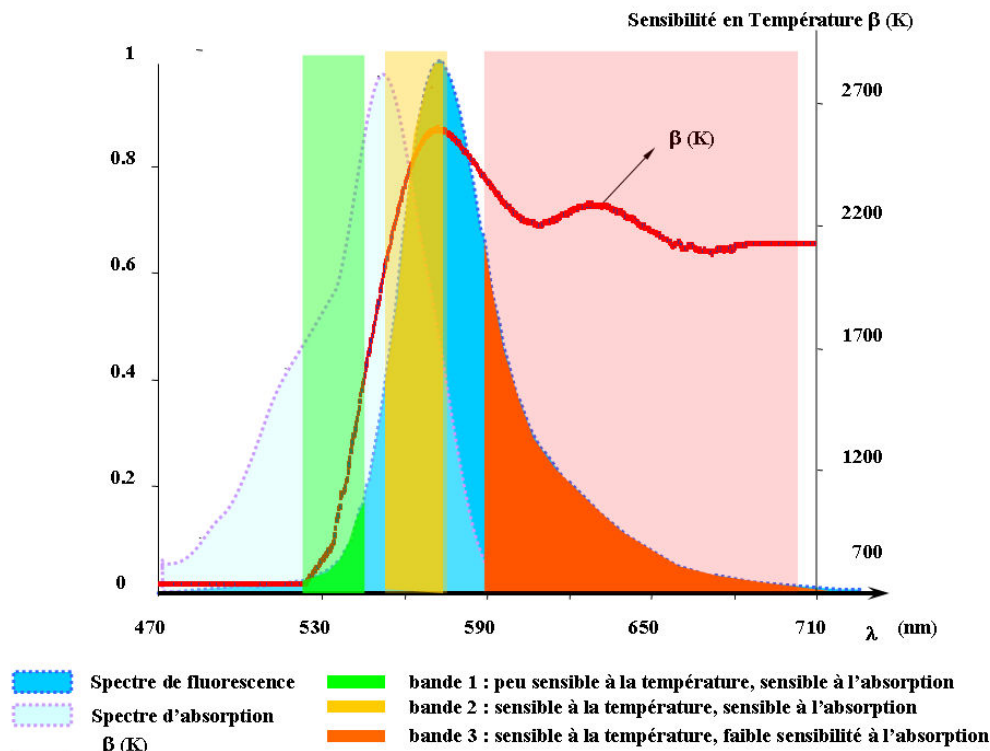


Figure 3.2 : Spectre absorption, d'émission de la rhodamine B excitée par la longueur d'onde  $\lambda=514,5$  nm. Positions des 3 bandes spectrales de détection LIF et sensibilité en température de l'intensité de fluorescence.



### 3.3.2 Dispositif optique

Le dispositif optique utilisé comprend une sonde laser de type LDA, utilisée pour l'excitation de la fluorescence, munie d'un élargisseur de faisceau afin de réduire le diamètre des faisceaux au col. Cette sonde est couplée par fibre optique à un faisceau laser issu d'une source à argon ionisée accordée sur la longueur d'onde  $\lambda=514,5$  nm. La fluorescence est détectée par cette même sonde, en rétro-diffusion à l'aide d'un miroir à 45° (figure 3.3). Le signal de fluorescence est repris par une lentille achromatique puis focalisé sur une fibre optique. La fibre optique conduit le signal optique vers un séparateur de couleurs composé de deux séparateurs dichroïques. Auparavant, la diffusion correspondant à la raie excitatrice est éliminée à l'aide d'un filtre coupe bande de type 'notch' dont la densité optique est de l'ordre de  $10^6$  à  $\lambda=514,5$  nm. Les bandes spectrales de détection sont ensuite affinées l'aide de filtres interférentiels. Les bandes spectrales choisies sont :

- bande 1 [525 nm ; 545 nm]
- bande 2 [555 nm ; 575 nm]
- bande 3 [590 nm ; 700 nm]

Le signal optique est ensuite détecté à l'aide de photomultiplicateurs équipés d'amplificateurs transimpédances, permettant une sortie directe en tension. Une carte d'acquisition rapide 4 voies permet la digitalisation des signaux et son traitement sur un PC à l'aide d'un logiciel programmé en langage DELPHI.

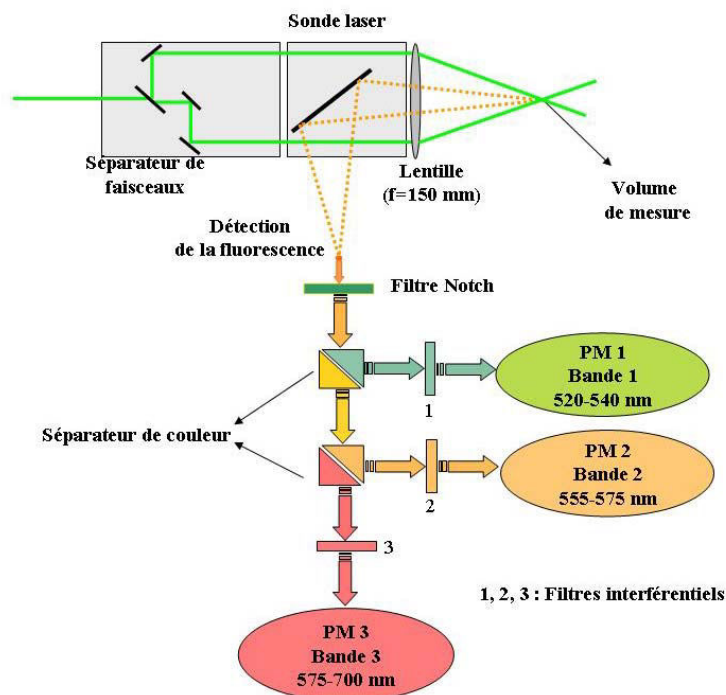


Figure 3.3 : Dispositif optique de fluorescence induite par laser à trois couleurs.

### 3.3.3 Modèle de la fluorescence induite par laser à trois couleurs

L'étude spectrale en température, montre que  $\beta(\lambda)$  et  $\varepsilon(\lambda)$  varient fortement avec la longueur d'onde  $\lambda$ . Par exemple, sur la première bande spectrale, le coefficient d'absorption  $\varepsilon$  et le coefficient de sensibilité en température  $\beta$  augmentent lorsque la longueur d'onde augmente (figure 3.2). Cela signifie d'un point de vue pratique, qu'augmenter le trajet optique de la fluorescence à travers le milieu absorbant revient à diminuer la sensibilité en température du signal de fluorescence : en effet, les plus grandes longueurs d'onde qui sont associées à une

meilleure sensibilité en température sont plus absorbées (figure 3.2) ce qui contribue donc à diminuer la sensibilité en température. Si l'on ne tient pas compte de ce phénomène, une erreur sur la détermination de la température de plusieurs degrés peut être commise.

Nous avons déjà vu l'approximation du second ordre consistant à approcher l'intégrale de la sensibilité en température sur une bande spectrale  $i$  par :

$$\int_{\lambda_2}^{\lambda_1} e^{\beta(\lambda)/T} d\lambda \approx e^{\frac{b_i + a_i}{T}} \quad (3.4)$$

Au vue de la forme des différents termes dépendant de la longueur d'onde, une correction peut être implémentée dans le coefficient de sensibilité en température, l'expression de l'intégrale de l'équation (3.3) sera approchée par :

$$\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} K_{speci}(\lambda) e^{-\varepsilon(\lambda)Cy} e^{\beta(\lambda)/T} d\lambda \approx K_{speci} e^{-(\varepsilon_i Cy + k_i C^2 y^2)} e^{\frac{b_i + \delta_i Cy + a_i + \gamma_i Cy}{T}} \quad (3.5)$$

Cette hypothèse suppose une approximation du second ordre pour le coefficient d'absorption intégré sur une bande spectrale et une sensibilité à la température effective dépendant du chemin optique  $Cy$ .

L'intensité de fluorescence sur chacune des trois bandes spectrales  $i$  peu alors s'écrire :

$$I_{f1} = K_{opt1} K_{spec1} I_{laser} e^{-\varepsilon(\lambda_{laser})Cx} V_c C e^{-(\varepsilon_1 Cy + k_1 C^2 y^2)} e^{\frac{b_1 + \delta_1 Cy + a_1 + \gamma_1 Cy}{T}} \quad (3.6)$$

$$I_{f2} = K_{opt2} K_{spec2} I_{laser} e^{-\varepsilon(\lambda_{laser})Cx} V_c C e^{-(\varepsilon_2 Cy + k_2 C^2 y^2)} e^{\frac{b_2 + \delta_2 Cy + a_2 + \gamma_2 Cy}{T}} \quad (3.7)$$

$$I_{f3} = K_{opt3} K_{spec3} I_{laser} e^{-\varepsilon(\lambda_{laser})Cx} V_c C e^{-(\varepsilon_3 Cy + k_3 C^2 y^2)} e^{\frac{b_3 + \delta_3 Cy + a_3 + \gamma_3 Cy}{T}} \quad (3.8)$$

En calculant les rapports  $I_{f1}/I_{f3}$  et  $I_{f1}/I_{f2}$  afin d'éliminer les dépendances à la concentration en traceur, au volume de mesure et à l'intensité laser locale, il vient :

$$R_{13} = \frac{K_{opt1} K_{spec1}}{K_{opt3} K_{spec3}} e^{-(\varepsilon_{13} Cy + k_{13} C^2 y^2)} e^{\frac{b_{13} + \delta_{13} Cy + a_{13} + \gamma_{13} Cy}{T}} = \frac{K_{opt1} K_{spec1}}{K_{opt3} K_{spec3}} e^{-(\varepsilon_{13} Cy + k_{13} C^2 y^2)} e^{\frac{B_{13} + A_{13}}{T}} \quad (3.9)$$

$$R_{12} = \frac{K_{opt1} K_{spec1}}{K_{opt2} K_{spec2}} e^{-(\varepsilon_{12} Cy + k_{12} C^2 y^2)} e^{\frac{b_{12} + \delta_{12} Cy + a_{12} + \gamma_{12} Cy}{T}} = \frac{K_{opt1} K_{spec1}}{K_{opt2} K_{spec2}} e^{-(\varepsilon_{12} Cy + k_{12} C^2 y^2)} e^{\frac{B_{12} + A_{12}}{T}} \quad (3.10)$$

avec pour  $i=1, 2, 3$ :

$$a_{ij} = a_i - a_j \text{ et } b_{ij} = b_i - b_j$$

$$\delta_{ij} = \delta_i - \delta_j, \gamma_{ij} = \gamma_i - \gamma_j \text{ et } \varepsilon_{ij} = \varepsilon_i - \varepsilon_j$$

$$B_{ij} = b_{ij} + \delta_{ij} Cy \text{ et } A_{ij} = a_{ij} + \gamma_{ij} Cy$$

En normalisant  $R_{13}$  et  $R_{12}$  par une mesure prise dans des conditions de référence connues ( $C_0, y_0, T_0, R_{120}, R_{130}$ ), les constantes de système  $K_{opt}$  et  $K_{spec}$  peuvent être éliminées. Après passage au logarithme, les équations (3.9) et (3.10) deviennent :

$$\ln\left(\frac{R_{13}}{R_{130}}\right) = -(\varepsilon_{13} Cy + k_{13} C^2 y^2) + \frac{b_{13} + \delta_{13} Cy}{T} + \frac{a_{13} + \gamma_{13} Cy}{T^2} \\ + (\varepsilon_{13} C_0 y_0 + k_{13} C_0^2 y_0^2) - \frac{b_{13} + \delta_{13} C_0 y_0}{T_0} - \frac{a_{13} + \gamma_{13} C_0 y_0}{T_0^2} \quad (3.11)$$

$$\begin{aligned} \ln\left(\frac{R_{12}}{R_{120}}\right) &= -\left(\varepsilon_{12}Cy + k_{12}C^2y^2\right) + \frac{b_{12} + \delta_{12}Cy}{T} + \frac{a_{12} + \gamma_{12}Cy}{T^2} \\ &+ \left(\varepsilon_{12}C_0y_0 + k_{12}C_0^2y_0^2\right) - \frac{b_{12} + \delta_{12}C_0y_0}{T_0} - \frac{a_{12} + \gamma_{12}C_0y_0}{T_0^2} \end{aligned} \quad (3.12)$$

ou ces équations peuvent également s'écrire :

$$\begin{aligned} \ln\left(\frac{R_{13}}{R_{130}}\right) &= Cy\left(-\varepsilon_{13} + \frac{\delta_{13}}{T} + \frac{\gamma_{13}}{T^2}\right) - k_{13}C^2y^2 + b_{13}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) + a_{13}\left(\frac{1}{T^2} - \frac{1}{T_0^2}\right) \\ &+ C_0y_0\left(\varepsilon_{13} - \frac{\delta_{13}}{T_0} - \frac{\gamma_{13}}{T_0^2}\right) + k_{13}C_0^2y_0^2 \end{aligned} \quad (3.13)$$

$$\begin{aligned} \ln\left(\frac{R_{12}}{R_{120}}\right) &= Cy\left(-\varepsilon_{12} + \frac{\delta_{12}}{T} + \frac{\gamma_{12}}{T^2}\right) - k_{12}C^2y^2 + b_{12}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) + a_{12}\left(\frac{1}{T^2} - \frac{1}{T_0^2}\right) \\ &+ C_0y_0\left(\varepsilon_{12} - \frac{\delta_{12}}{T_0} - \frac{\gamma_{12}}{T_0^2}\right) + k_{12}C_0^2y_0^2 \end{aligned} \quad (3.14)$$

Dans les deux équations (3.13) et (3.14), il y a deux paramètres inconnus qui sont  $Cy$  et  $T$ , qui peuvent être déterminés par une résolution itérative du système d'équations selon un algorithme de Newton. Les coefficients ( $\varepsilon_{12}$ ,  $\varepsilon_{13}$ ,  $k_{12}$ ,  $k_{13}$ ,  $a_{12}$ ,  $b_{12}$ ,  $\delta_{12}$ ,  $\delta_{13}$ ,  $\gamma_{12}$ ,  $\gamma_{13}$ ) peuvent être déterminés par une procédure de calibration initiale que nous allons décrire.

### 3.3.4 Procédure de calibration

#### 3.3.4.1 Calibration en température

Un exemple de calibration de l'émission de fluorescence en fonction de la température est présenté figure 3.4, pour un très petit chemin optique ( $Cy \approx 0$ ). Les rapports de fluorescence  $\ln(R_{12})$  and  $\ln(R_{13})$  sont représentés en fonction de  $(1/T)$ . L'approximation du second ordre de la sensibilité en température sur une bande spectrale semble bien justifiée. La concentration en traceur fluorescent est  $C=10^{-6}$  mol/l.

Lorsque la température est recalculée à l'aide de l'ajustement polynomial du second ordre (au sens des moindres carrés), l'erreur par rapport à la température mesurée à l'aide du thermocouple n'excède pas 0,5°C. Une calibration similaire a été réalisée avec une solution différente à la même concentration en rhodamine B ( $C=10^{-6}$  mol/l), afin d'examiner la reproductibilité de l'expérience. Un nouveau jeu de coefficient ( $a_i$ ,  $b_i$ ) est obtenu ainsi qu'une nouvelle évolution de la température. L'erreur entre les deux calibrations et la température mesurée par le thermocouple est reportée figure 3.5 : pour la seconde calibration, cette erreur n'excède pas 1°C.

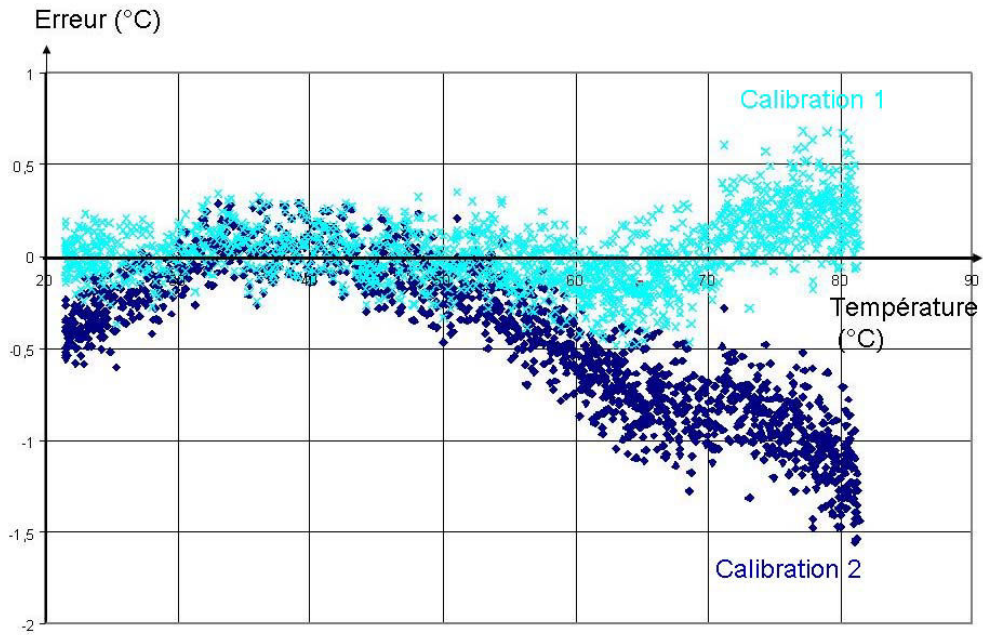


Figure 3.4 : Erreur sur la température obtenue a partir de 2 jeux de coefficients de calibration (calibration 2 : calibration issue d'une nouvelle solution)

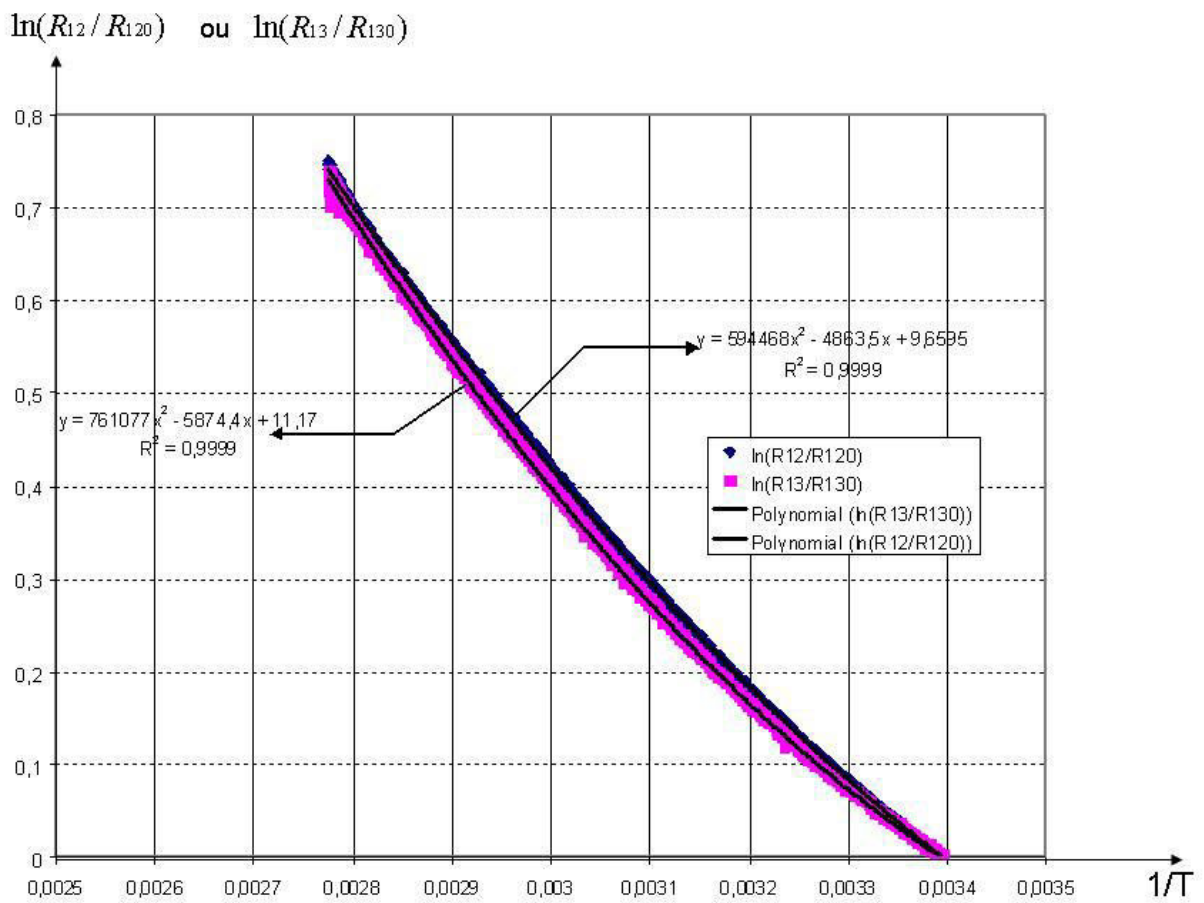


Figure 3.5 : Exemple de calibration en température.

### 3.3.4.2 Effet du chemin optique de la fluorescence

La validité l'équation (3.5) a été testée en mesurant l'absorption de la fluorescence sur chaque bande spectrale, en déplaçant le volume de mesure à différentes positions  $y$ , pour différentes températures de la solution entre 22 et 84°C (figure 3.6).

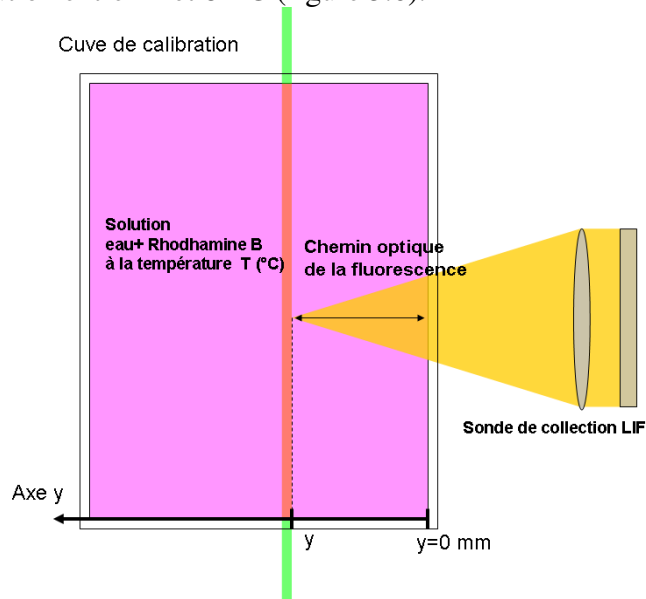


Figure 3.6 : Calibration de l'émission de fluorescence en fonction du chemin optique.

L'évolution des rapports de fluorescence ( $\ln(R_{12})$  et  $\ln(R_{13})$ ) en fonction du chemin optique  $C_y$  est représentée sur la figure 3.7 ainsi que l'évolution des rapports de fluorescence ( $\ln(R_{12})$  et  $\ln(R_{13})$ ) en fonction de l'inverse de la température ( $1/T$ ) pour différents chemins optiques  $y$  (figures 3.8 et 3.9). Une dépendance de la sensibilité en température au chemin optique est mise en évidence comme prévu par les équations (3.11) et (3.12). Ces courbes sont interpolées par une fonction polynomiale du second ordre afin de déterminer les coefficients  $A'$  et  $B'$  des équations (3.9) et (3.10). L'évolution de  $A'$  et  $B'$  en fonction de  $C_y$  est représentée (figures 3.10 et 3.11) et permet de calculer les coefficients  $a$ ,  $b$ ,  $\delta$  et  $\gamma$  pour les deux rapports  $R_{12}$  et  $R_{13}$ . La dépendance linéaire de  $A'$  et  $B'$  semble correctement justifiée.

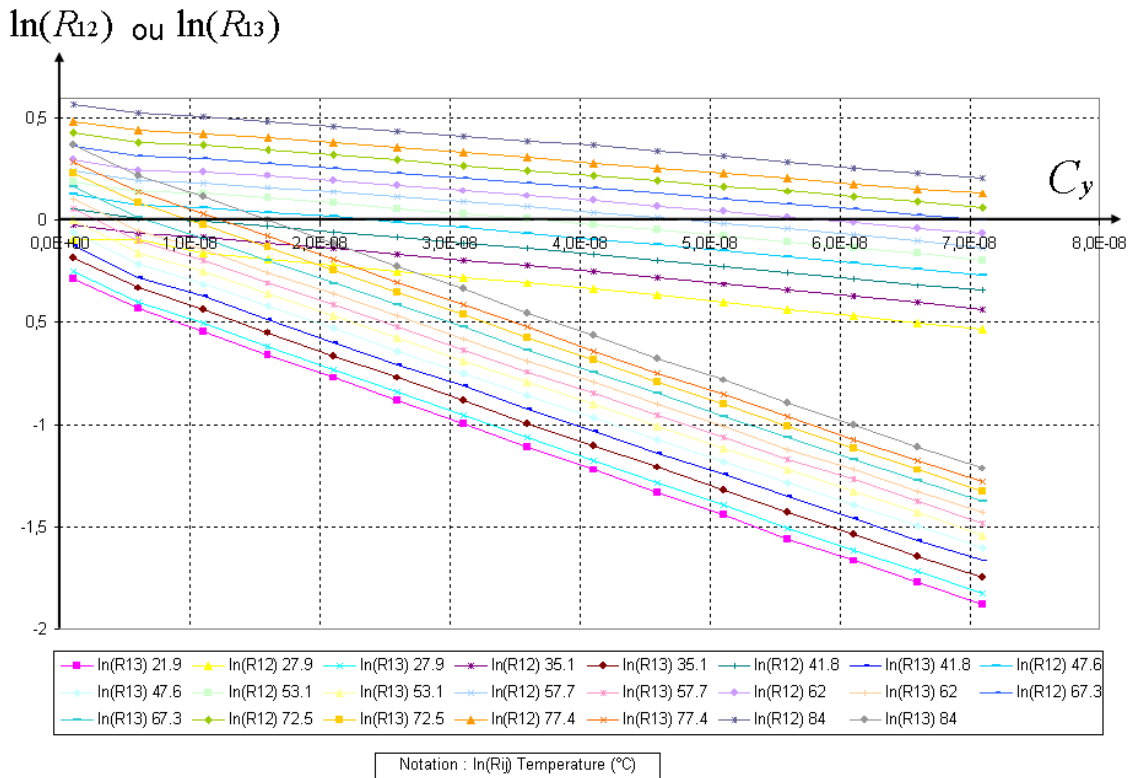


Figure 3.7 : Absorption de la fluorescence en fonction du chemin optiques à différentes températures.

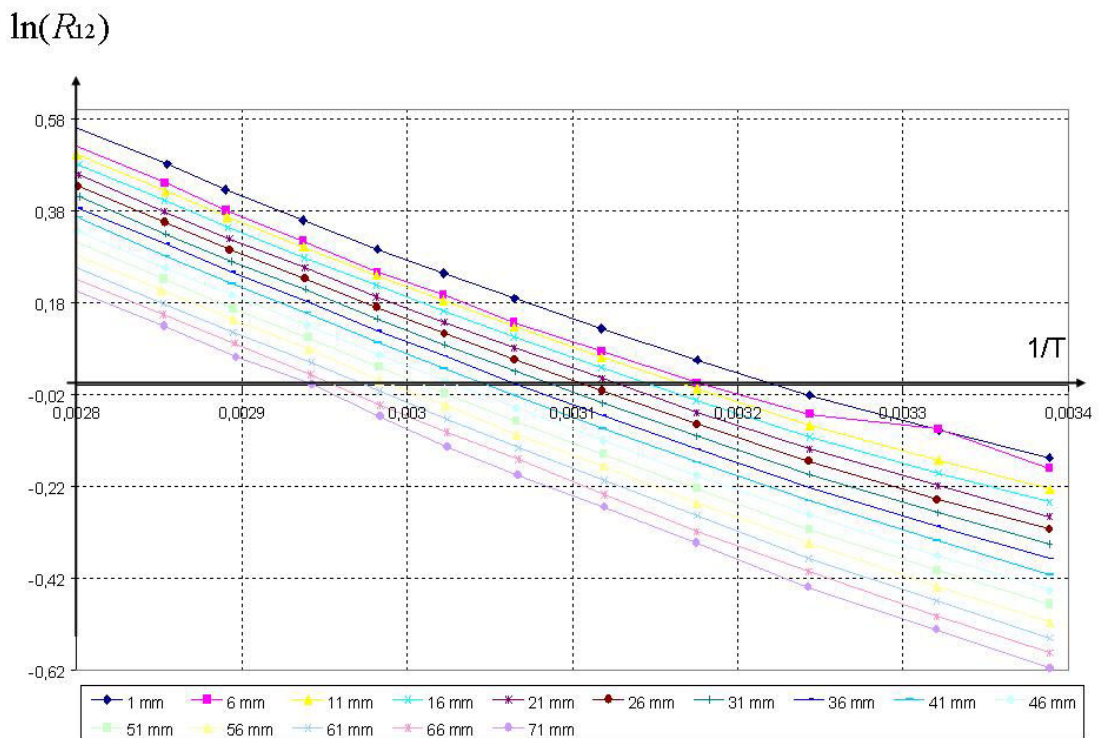


Figure 3.8 : Evolution du rapport  $R_{12}$  en fonction de la température pour différents chemins optiques  $y$ .

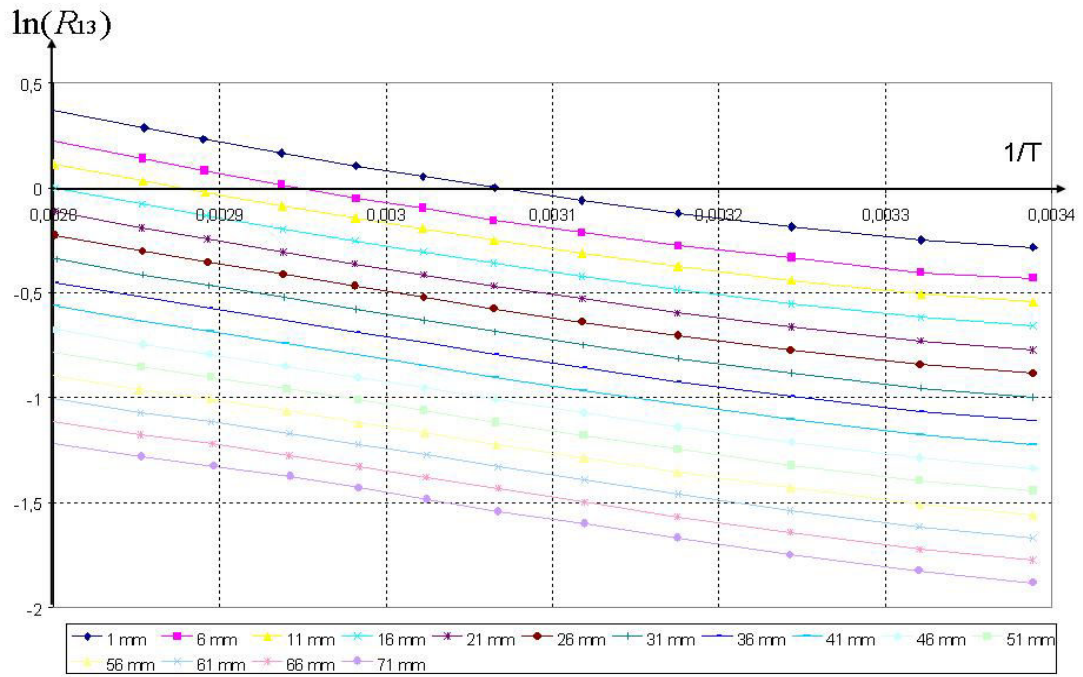


Figure 3.9 : Evolution du rapport  $R_{13}$  en fonction de la température pour différents chemins optiques  $y$ .

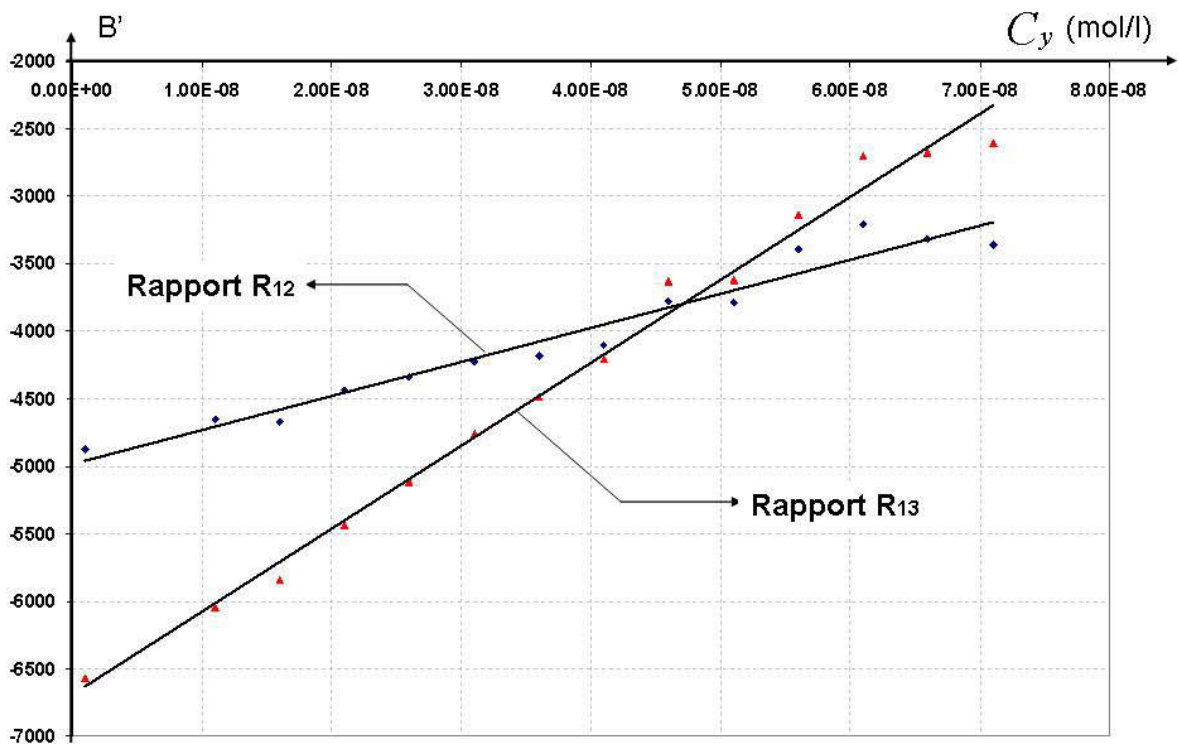


Figure 3.10 : Evolution de  $B'$  en fonction du chemin optique  $C_y$  pour les rapports de fluorescence  $R_{12}$  et  $R_{32}$ .



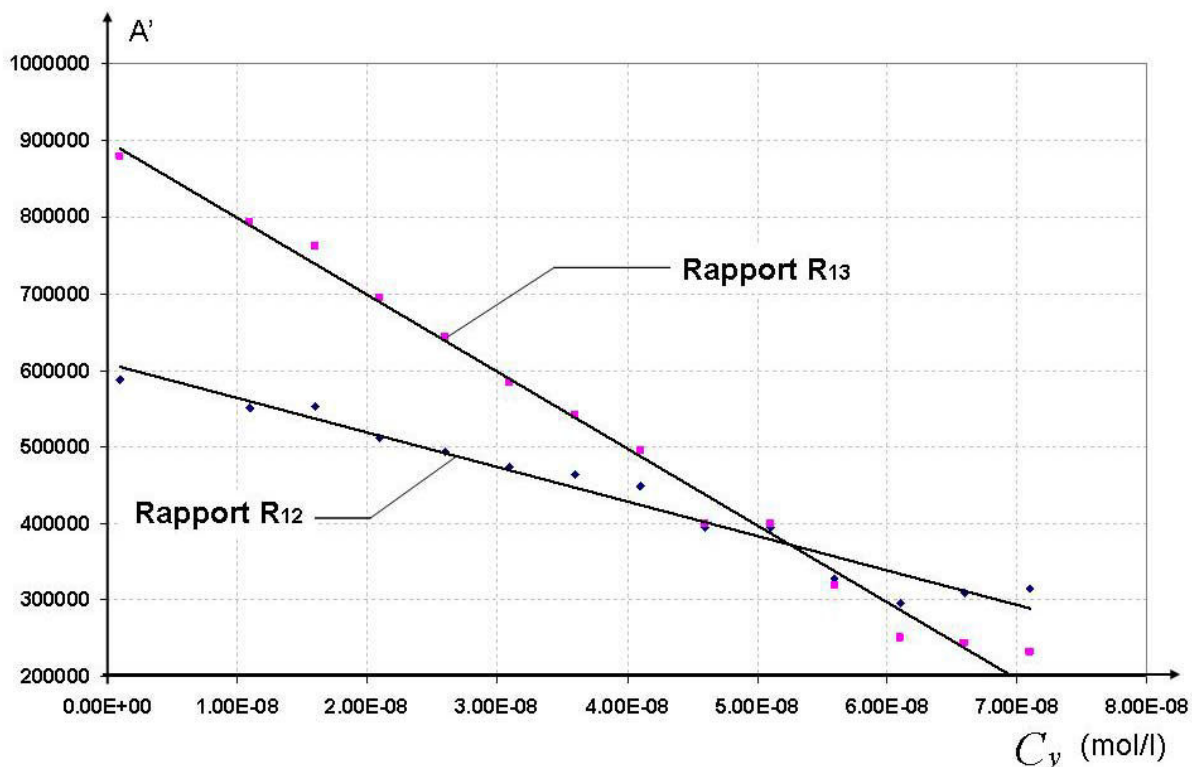


Figure 3.11 : Evolution de  $A'$  en fonction du chemin optique  $C_y$  pour les rapports de fluorescence  $R_{12}$  et  $R_{32}$ .

Un exemple de résultat de calibration de la rhodamine B en solution aqueuse est donné dans les tableaux 3.1. Ces coefficients sont susceptibles de varier en fonction de la qualité de l'eau utilisée du fait de la dépendance du spectre de fluorescence au pH. Pour cela, de l'eau désionisée a été utilisée.

$b_{12}$ (K)	-4983.2	$b_{13}$	-6694
$\delta_{12}$ (K.mol <sup>-1</sup> .l.m <sup>-1</sup> )	$5.5198.10^{10}$	$\delta_{13}$	$6.1597.10^{10}$
$a_{12}$ (K <sup>2</sup> )	$6.0875.10^5$	$a_{13}$	$8.9958.10^5$
$\gamma_{12}$ (K <sup>2</sup> .mol <sup>-1</sup> .l.m <sup>-1</sup> )	$-4.5046.10^{12}$	$\gamma_{13}$	$-1.0036.10^{13}$

Tableau 3.1 : Calibration des coefficients de sensibilité en température pour la rhodamine B en solution aqueuse.

Ensuite, une seconde calibration est réalisée afin de déterminer les coefficients décrivant l'effet de l'absorption ( $\epsilon_{12}$ ,  $\epsilon_{13}$ ,  $k_{12}$ ,  $k_{13}$ ). Un exemple de mesure de ces coefficients est présenté dans le tableau 3.2.

$\epsilon_{12}$ (mol <sup>-1</sup> .l.m <sup>-1</sup> )	$3.9786.10^7$	$\epsilon_{13}$	$1.1747.10^8$
$k_{12}$ (mol <sup>-1</sup> .l <sup>2</sup> .m <sup>-2</sup> )	$5.9118.10^{12}$	$k_{13}$	$-1.937.10^{13}$

Table 3.2 : Calibration des coefficients d'absorption de la fluorescence pour la rhodamine B en solution aqueuse.



### 3.3.4.3 Calibration initiale de l'absorption et prise de la référence

L'expérience de calibration initiale peut être réalisée en même temps que la prise de référence dans une cellule de calibration où les conditions sont  $T=T_0$  et  $C=C_0$ , conditions supposées connues.

Dans la cellule de calibration, les équations (3.13) et (3.14) peuvent être réécrites :

$$\ln(R_{13}) = C_0 y \underbrace{\left(-\varepsilon_{13} + \frac{\delta_{13}}{T_0} + \frac{\gamma_{13}}{T_0^2}\right)}_{D_{13}} - k_{13} C_0^2 y^2 + C_0 y_0 \underbrace{\left(\varepsilon_{13} - \frac{\delta_{13}}{T_0} - \frac{\gamma_{13}}{T_0^2}\right)}_{E_{130}} + k_{13} C_0^2 y_0^2 + \ln(R_{130}) \quad (3.15)$$

$$\ln(R_{12}) = C_0 y \underbrace{\left(-\varepsilon_{12} + \frac{\delta_{12}}{T_0} + \frac{\gamma_{12}}{T_0^2}\right)}_{D_{12}} - k_{12} C_0^2 y^2 + C_0 y_0 \underbrace{\left(\varepsilon_{12} - \frac{\delta_{12}}{T_0} - \frac{\gamma_{12}}{T_0^2}\right)}_{E_{120}} + k_{12} C_0^2 y_0^2 + \ln(R_{120}) \quad (3.16)$$

Pour différentes positions  $y$ , les équations (3.15) et (3.16) sont interpolées par une fonction polynomiale du second degré en  $C_0 y$  afin de déterminer les coefficients  $k_{13}$ ,  $k_{12}$ ,  $D_{12}$ ,  $D_{13}$ ,  $E_{120}$ ,  $E_{130}$ . Les paramètres  $\delta_{13}$ ,  $\delta_{12}$ ,  $\gamma_{12}$ ,  $\gamma_{13}$  et  $T_0$  étant connus,  $\varepsilon_{12}$  et  $\varepsilon_{13}$  peuvent être déterminés par :

$$\varepsilon_{13} = \frac{\gamma_{13}}{T_0^2} + \frac{\delta_{13}}{T_0} - D_{13} \quad , \quad \varepsilon_{12} = \frac{\gamma_{12}}{T_0^2} + \frac{\delta_{12}}{T_0} - D_{12} \quad (3.17) \text{ et } (3.18)$$

En combinant les équations (3.12), (3.13), (3.15) et (3.16), la température peut être déduite en résolvant le système d'équations suivant:

$$\ln(R_{13}) = C y \left(-\varepsilon_{13} + \frac{\delta_{13}}{T} + \frac{\gamma_{13}}{T^2}\right) - k_{13} C^2 y^2 + b_{13} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) + a_{13} \left(\frac{1}{T^2} - \frac{1}{T_0^2}\right) + E_{13} \quad (3.19)$$

$$\ln(R_{12}) = C y \left(-\varepsilon_{12} + \frac{\delta_{12}}{T} + \frac{\gamma_{12}}{T^2}\right) - k_{12} C^2 y^2 + b_{12} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) + a_{12} \left(\frac{1}{T^2} - \frac{1}{T_0^2}\right) + E_{12} \quad (3.20)$$

## 3.4 Validation du modèle de fluorescence à trois couleurs

Le modèle présenté précédemment a été testé dans une cuve transparente contenant une solution de rhodamine B diluée dans de l'eau désionisée ( $C=10^{-6}$  mol/l).

La température de la cellule est augmentée progressivement par l'intermédiaire d'une résistance électrique et mesurée à l'aide d'un thermocouple de type K. Parallèlement, la température est mesurée par fluorescence à trois couleurs. Cette acquisition des deux températures est effectuée pour un chemin optique  $y$  de 17,3 mm. La figure 3.12 présente la différence  $\Delta T$  entre la température mesurée par le thermocouple et celle mesurée par LIF trois couleurs. Les résultats montrent un très bon accord entre les deux mesures et ce pour une large plage de variation de la température dans l'intervalle [20°C ; 80°C]. L'écart moyen entre les deux mesures n'excède pas 0,33°C RMS. L'écart plus important observé au-delà d'une température de 70°C provient d'une stratification en température dans la cellule.

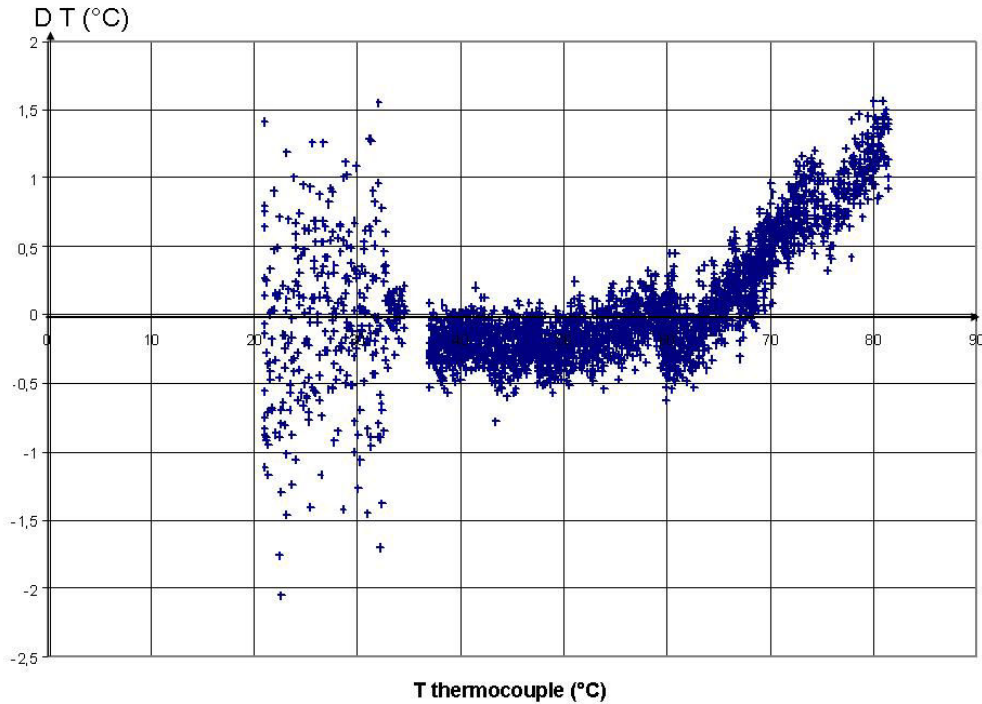


Figure 3.12 : Différence entre la température mesurée par la technique de fluorescence 3 couleurs et par thermocouple.

Des profils de température ont été effectués dans la direction  $y$  (c'est-à-dire dans la direction de l'absorption de la fluorescence) pour des températures stabilisées et homogènes dans la cellule. La température mesurée le long de la direction  $y$  est reportée figure 3.13 pour différentes températures du liquide dans la cellule. La valeur RMS des variations de la température calculée le long des profils  $y$ , également portée sur la figure 3.13, demeurer faible. La valeur de RMS la plus importante est observée pour la température la plus haute atteinte dans la cellule où des fluctuations en température dues aux phénomènes de convection thermique apparaissent.

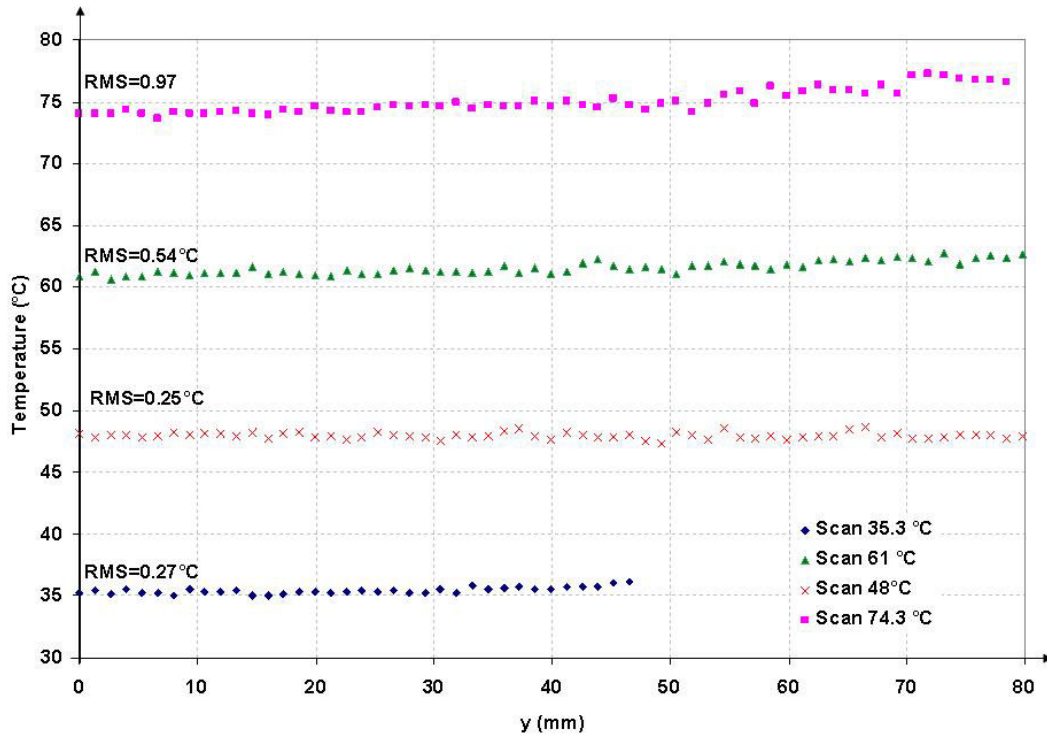


Figure 3.13 : Profils de température dans la direction de l'absorption de la fluorescence à température fixe et RMS des fluctuations des températures mesurées ( $C=10^{-6}$  mol/l)

### 3.5 Application de la fluorescence induite par laser à trois couleurs au cas d'un jet turbulent chauffé

L'objectif est de tester la technique sur une expérience simple, un jet chaud turbulent injecté dans de l'eau calme à température ambiante. Deux expériences ont été menées:

- la première est réalisée à concentration constante : la concentration en traceur fluorescent à l'injection est identique à celle de l'eau calme.
- dans la seconde expérience, la concentration du traceur dans l'eau calme est très faible comparée à celle à l'injection. Ainsi, on parlera d'expérience en 'concentration variable'.

#### 3.5.1 Dispositif expérimental

- **Description du jet**

Un jet d'eau chauffé est injecté à une température de 75°C et une vitesse de 5 m/s dans de l'eau à température ambiante (environ 20°C). La buse d'injection (diamètre 0,75 mm) est placée à l'intérieur d'un large réservoir d'eau calme (volume de 70 l), à niveau constant. Le réservoir est équipé de deux accès optiques. Le dispositif est décrit à la figure 3.14. L'axe du jet est positionné à 85 mm des deux fenêtres optiques. Le premier accès optique est utilisé pour le passage du faisceau laser et le second pour la collection du signal de fluorescence.

- **Le volume de mesure**

Le volume de mesure est créé par l'intersection de deux faisceaux laser focalisés issus d'une sonde optique de vélocimétrie laser doppler. En raison des petites dimensions des grandeurs caractéristiques de l'écoulement, la taille du volume de mesure a été réduite à 40 $\mu$ m dans la

direction  $x$  et  $z$  et à  $180\mu\text{m}$  dans la direction  $y$  en utilisant la combinaison d'un élargisseur de faisceau et d'une courte distance focale ( $f = 150 \text{ mm}$ ). Comme dans le dispositif précédent, la détection de la fluorescence est réalisée en rétrodiffusion (figure 3.14).

- **Paramètre de l'acquisition**

La valeur moyenne des intensités de fluorescence est calculée sur les trois bandes spectrales sur  $5 \cdot 10^5$  échantillons acquis à une fréquence de 1 MHz. Le temps d'acquisition pour un point de mesure est de 0,5 s.

- **Protocole expérimental**

Après avoir réalisé la mesure de référence près du bord de la cuve l'écoulement est exploré en effectuant une série de profils de température. Les mesures de fluorescence sont traitées en temps réel afin de rendre compte du champ de température de manière instantanée. Chaque profil est réalisé à une hauteur  $z$  donnée (de  $z = 5$  à  $z = 75 \text{ mm}$ ) dans le réservoir selon les axes de symétrie  $x, y$  du jet (voir figure 3.15).

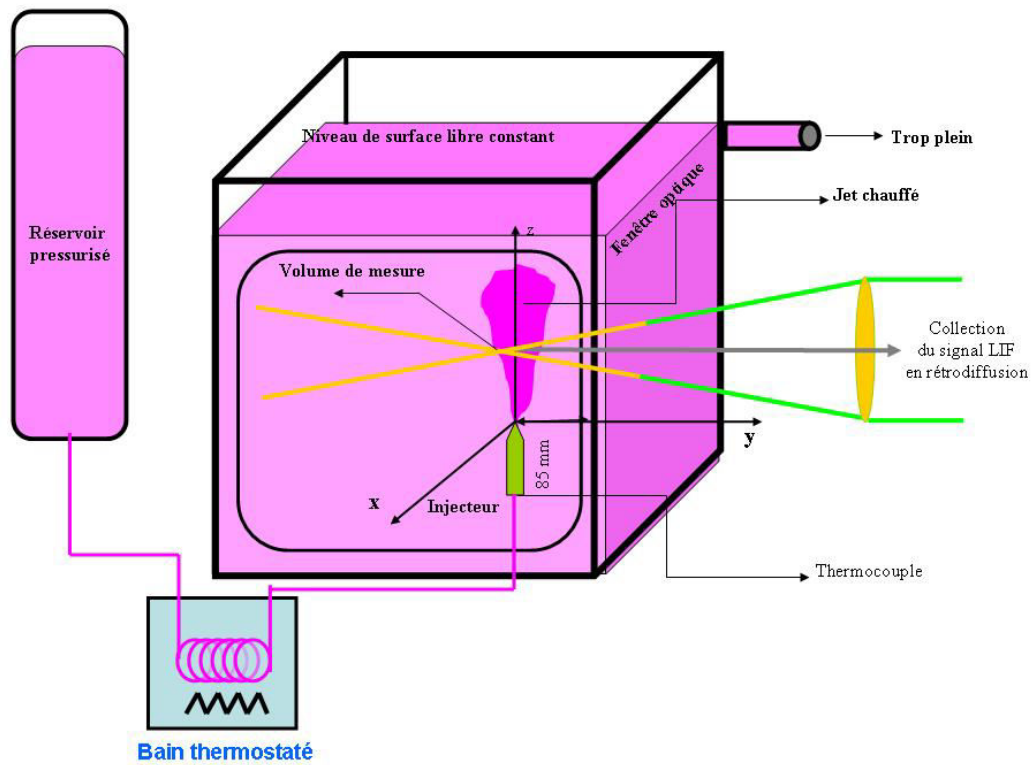


Figure 3.14 : Dispositif expérimental utilisé pour l'expérience du jet turbulent chauffé.

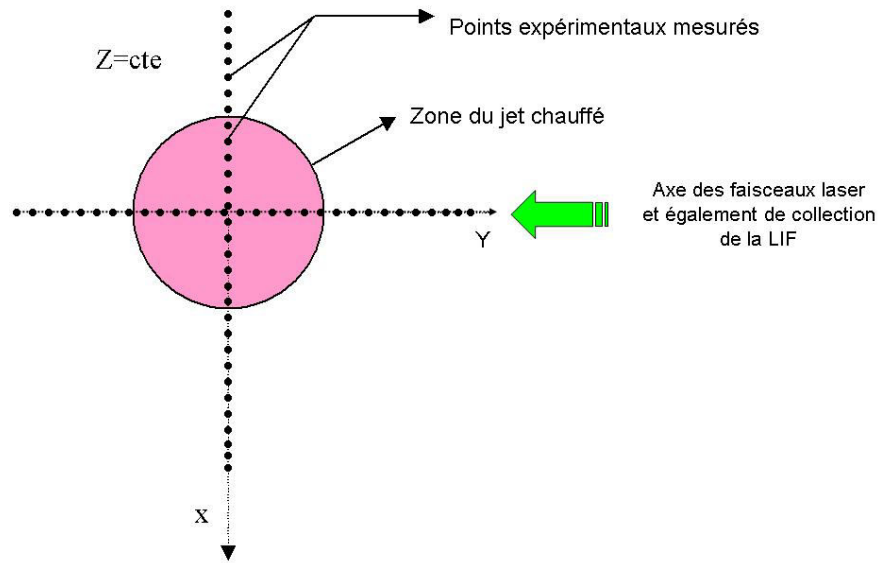


Figure 3.15 : Positions des points de mesures dans le jet chaud.

### 3.5.2 Expérience à concentration constante

Dans cette expérience, le réservoir est rempli d'eauensemencée en rhodamine B ( $C=10^{-6}$  mol/l). L'eau chaude est injectée avec une concentration identique à celle contenue dans le réservoir. Cette expérience est réalisée en utilisant de préférence de l'eau désionisée. Les conditions d'injection sont :

- température d'injection  $T_{inj}=71^{\circ}\text{C}$
- vitesse d'environ  $V_{inj}=5.5$  m/s
- température de l'eau dans le réservoir  $T_0=27^{\circ}\text{C}$ .

Le point de référence ( $C_0, T_0, y_0, R_{120}$  et  $R_{130}$ ) est pris dans le réservoir à  $y=0$  mm ce qui évite tout phénomène lié à la réabsorption de la fluorescence.

### 3.5.3 Expérience à concentration variable

Dans ce cas, le réservoir est rempli d'eau désionisée ne contenant pas de colorant. L'eau chaude injectée est une solution d'eauensemencée en rhodamine B ( $C=10^{-6}$  mol/l). Les conditions d'injection sont :

- température d'injection  $T_{inj}=75^{\circ}\text{C}$
- vitesse d'environ  $V_{inj}=5$  m/s
- température de l'eau dans le réservoir  $T_0=25^{\circ}\text{C}$ .

Dans ce cas, la référence doit être mesurée différemment: une cuve rectangulaire est remplie d'une solution identique à celle injectée. La température dans la cuve (mesurée à l'aide d'un thermocouple) est  $T_0$  et la concentration en traceur  $C_0=10^{-6}$  mol/l. De plus, la mesure de référence est acquise à  $y=0$  afin d'éviter la réabsorption de la fluorescence.

### 3.5.4 Résultats expérimentaux

#### 3.5.4.1 Commentaires généraux

Etant donné que la température de la solution contenue dans le réservoir évolue continuellement en raison de l'injection de liquide chaud, seule l'évolution de la température relative par rapport à la température ambiante locale du jet chaud a un sens. La température de l'eau du réservoir est enregistrée en temps réel afin de corriger la température relative en chaque point de mesure.

A titre d'exemple, des profils de température mesurés selon l'axe  $y$  sont présentés sur la figure 3.16 pour 4 hauteurs à partir de l'orifice d'injection ( $z = 15, 35$  et  $75$  mm) et ce pour les deux expériences.

La direction  $y$  a été sélectionnée car elle correspond à la direction où il y a absorption de la fluorescence. La température décroît selon l'axe du jet et la diffusion latérale du jet est nettement visible. La symétrie correcte des profils de température montre que le phénomène de réabsorption de la fluorescence dans la direction  $y$  est correctement corrigé par la technique à trois couleurs, y compris pour de faibles  $\Delta T$ , de l'ordre de  $2^\circ\text{C}$ .

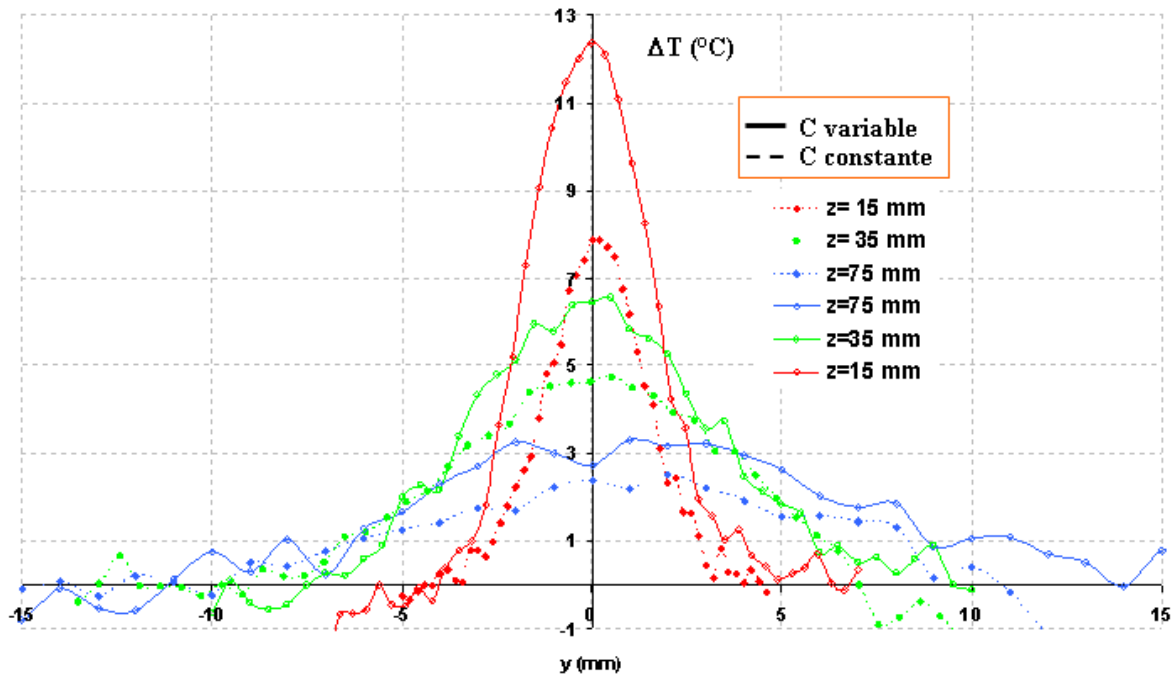


Figure 3.16 : Profils de température (relatifs à la température ambiante) mesurés dans la direction  $y$  de l'axe de symétrie du jet (expériences à concentration 'constante' et 'variable').

La température axiale du jet selon dans la direction  $z$  (figure 3.17), mesurée pour les deux expériences (concentration constante et variable), décroît de manière régulière suivant une tendance hyperbolique. Une différence entre les températures mesurées dans les deux expériences est mise en évidence et peut être attribuée à la différence de température d'injection. ( $T_{inj}=71^\circ\text{C}$  pour l'expérience à 'concentration constante' et  $T_{inj}=75^\circ\text{C}$  à 'concentration variable').

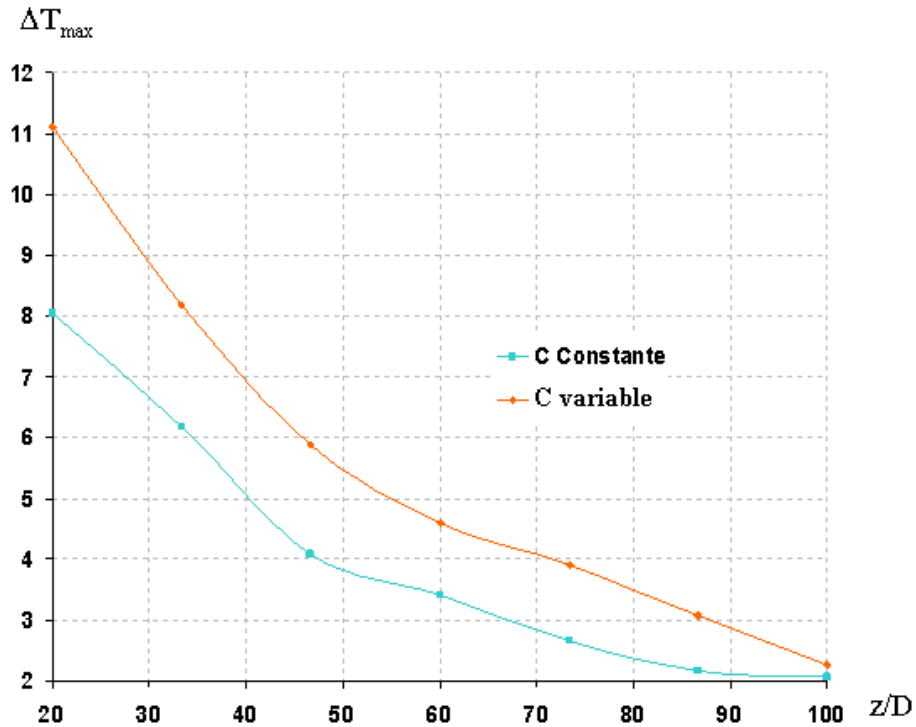


Figure 3.17 : Décroissance axiale de la température du jet chaud pour l'expérience à concentration constante et à concentration variable.

Afin de comparer les deux expériences en s'affranchissant notamment des conditions aux limites et de vérifier la validité de la distribution de température mesurée au centre du jet avec les résultats issus de la littérature, la température a été normalisée de la façon suivante :

$$T^* = \frac{T_{inj} - T_0}{T - T_0} \quad (3.21)$$

où  $T$  est la température locale du jet,  $T_{inj}$  la température d'injection et  $T_0$  la température ambiante. L'abscisse verticale  $z$  du jet est quant à elle normalisée par le diamètre  $D$  de la buse d'injection. Avec cette normalisation (figure 3.18), la décroissance de la température mesurée lors des deux expériences présente un comportement linéaire, en accord avec différents résultats de la littérature (Corsin et Uberroi, 1950 ; Forstall et Gaylord, 1955 ; Chua et Antonia, 1990 ; Antoine, 1999). Les résultats de Chua et Antonia (1990) sont également reportés à la figure 3.18. Une partie de la dispersion des mesures peut être attribuée à la difficulté de positionner le volume de mesure sur le centre du jet et aux faibles dimensions de l'écoulement. Une différence modérée existe entre les résultats des expériences à concentration constante et variable, qui peut être attribuée à la difficulté de reproduire des conditions expérimentales similaires.

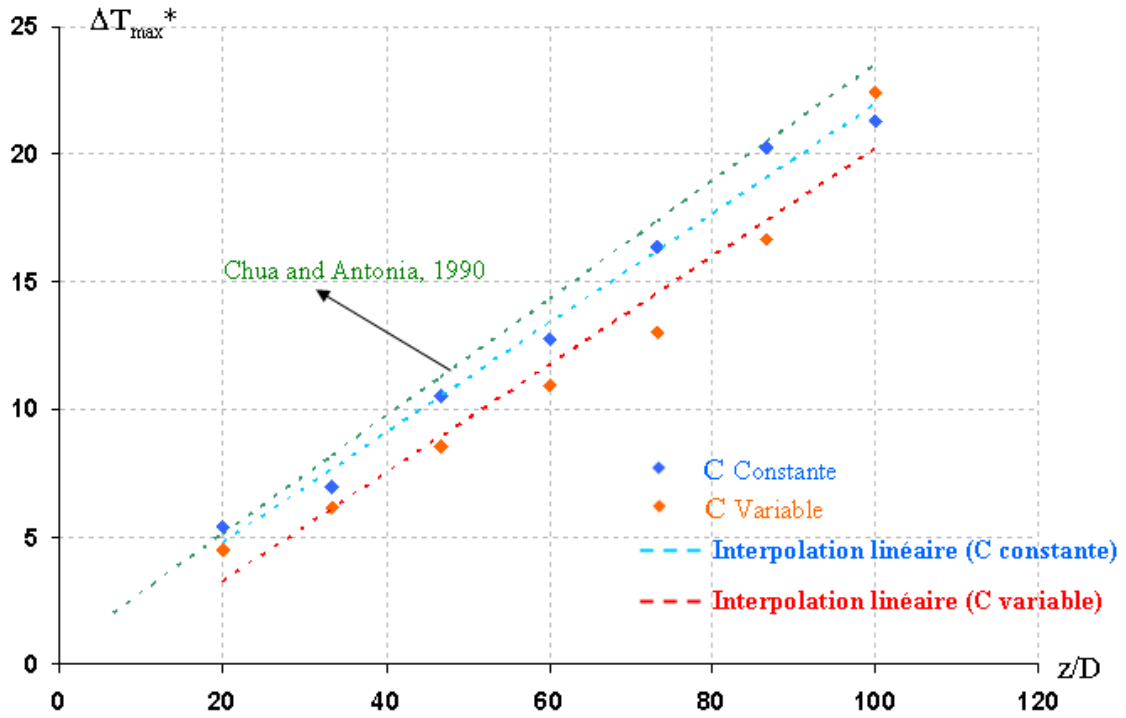


Figure 3.18 : Décroissance axiale de la température normalisée pour l'expérience à concentration constante et à concentration variable.

L'expansion latérale du jet est caractérisée par l'évolution du demi-rayon  $R_{1/2}$  défini par :

$$\frac{\Delta T}{\Delta T_{\max}}(R_{1/2}) = \frac{1}{2} \quad (3.22)$$

L'évolution du rayon  $R_{1/2}$  dans les directions  $x$  et  $y$  en fonction de la distance à l'orifice d'injection ( $z/D$ ) est représentée sur la figure 3.19 pour les deux expériences.

Comme mentionné dans plusieurs références de la littérature (Forstall et Gaylord, 1955 ; Hinze, 1975), cette évolution est linéaire, et ce dans les directions  $x$  et  $y$  de l'écoulement.



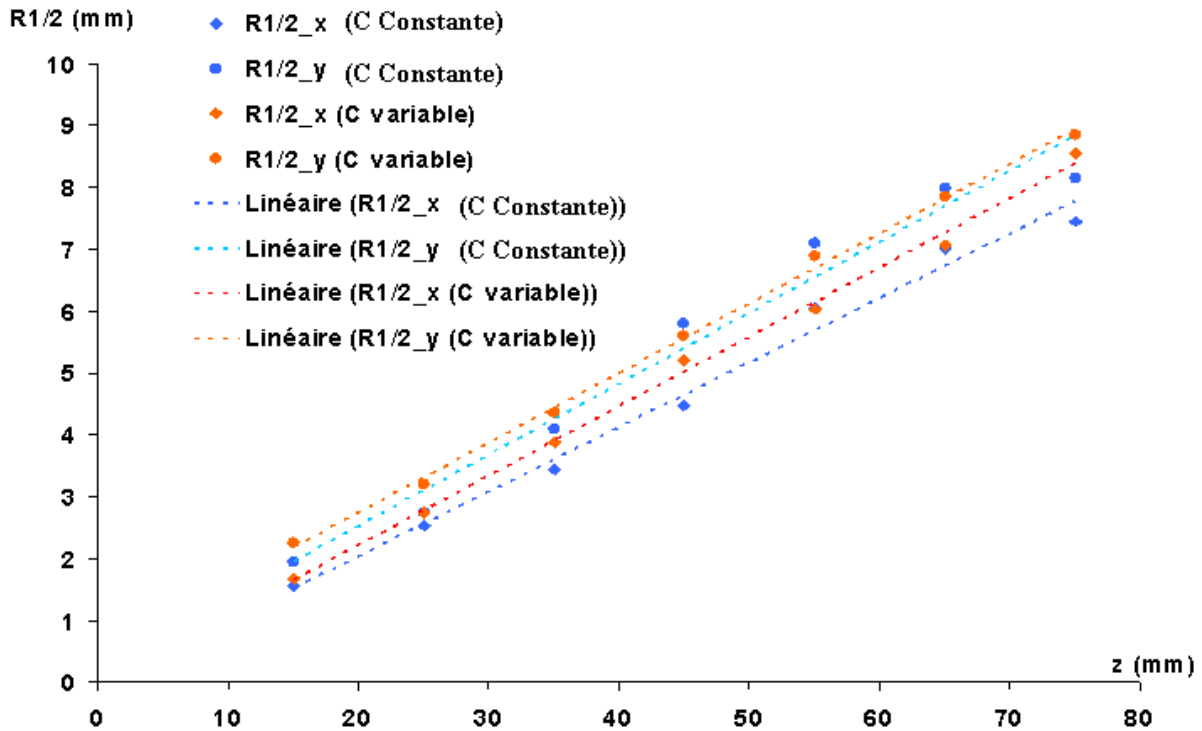


Figure 3.19 : Expansion latérale du jet mesurée dans les directions x et y (pour les deux expériences à concentration constante et variable).

Le facteur d'expansion, correspondant à la pente de l'évolution de  $R_{1/2}$  en fonction de  $z/D$ , est résumé dans le tableau 3.3. Nous pouvons observer que les deux expériences sont en bon accord et présentent la même tendance au niveau de l'expansion mesurée dans les directions x et y. Ces valeurs sont comparables à celles trouvées dans la littérature, de 0.09 à 0.14 environ suivant les auteurs (Hinze et Van Der Hegge Zijnen, 1949 ; Papanicolaou et List, 1988 ; Dowling et Dimotakis, 1990 ; Panchapakesan et Lumley, 1993).

3.5.5 Facteur d'expansion		
	Direction x	Direction y
C constante	0.104	0.115
C variable	0.113	0.112

Table 3.3 : facteurs d'expansion du jet mesurés dans les directions x et y.

Le facteur d'expansion dans la direction y semble légèrement inférieur à celui évalué dans la direction z. Cela peut être attribué aux dimensions non symétriques du volume de mesure dans ces deux directions. Le volume de mesure étant plus large selon y, la moyenne de la température sur le volume de mesure a donc un effet de lissage plus important dans cette direction.

### 3.5.5.1 Normalisation des profils de température

La validité des mesures peut aussi être vérifiée pour les deux expériences en normalisant les profils de température afin de vérifier l'autosimilarité des profils. Les profils de température peuvent donc être tracés selon le système de coordonnées réduites suivant:

$$T^*(y^*) = \frac{\Delta T(y)}{\Delta T_{\max}} \quad \text{et} \quad y^* = \frac{y}{R_{1/2}} \quad (3.23)$$

Seuls les profils dans la direction  $y$  sont présentés sur la figure 3.20 pour l'expérience à 'concentration constante' et sur la figure 3.21 pour l'expérience à concentration variable.

L'autosimilarité semble correctement vérifiée pour les deux expériences et comparable avec les résultats de Chevray et Tutu (1978). Toutefois, les mesures réalisées sur les parties latérales du jet lors de l'expérience à concentration variable semblent particulièrement dispersées, ce qui peut être attribué à une mesure imprécise, là où la concentration en traceur fluorescent devient extrêmement faible, ce qui conduit à des signaux de faibles niveaux.

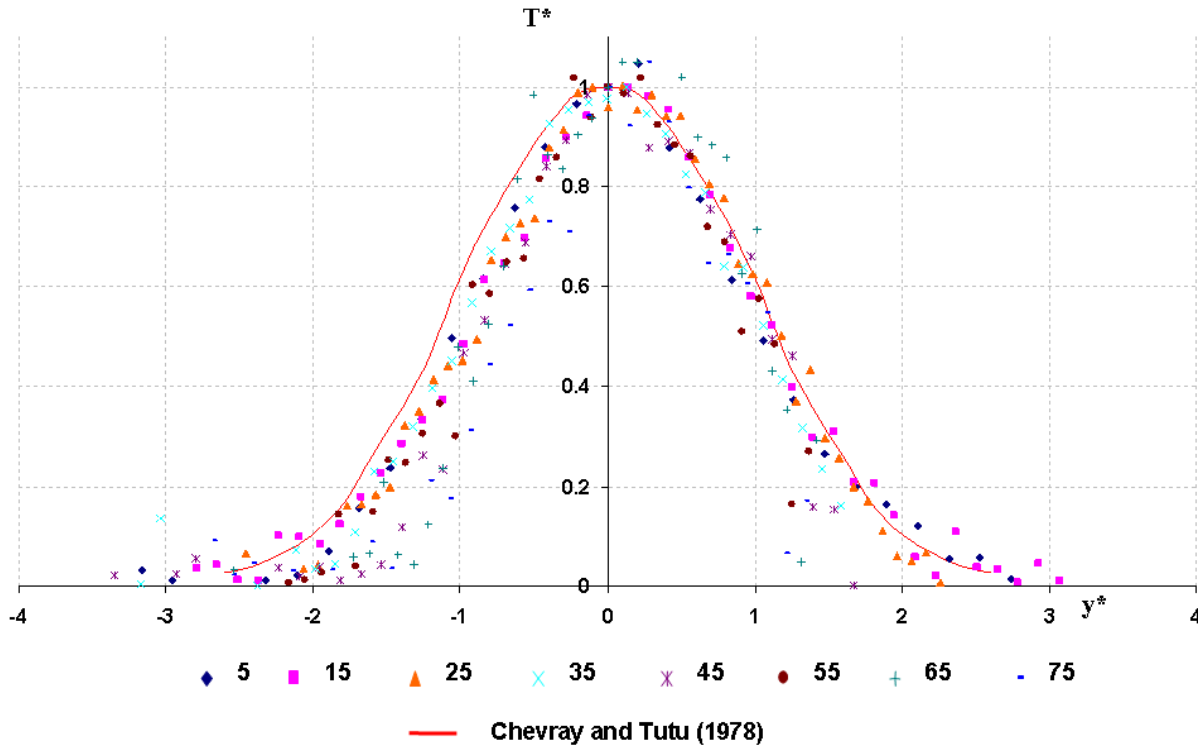


Figure 3.20 : Profils normalisés de température (suivant la direction  $y$ ) pour l'expérience à concentration constante.

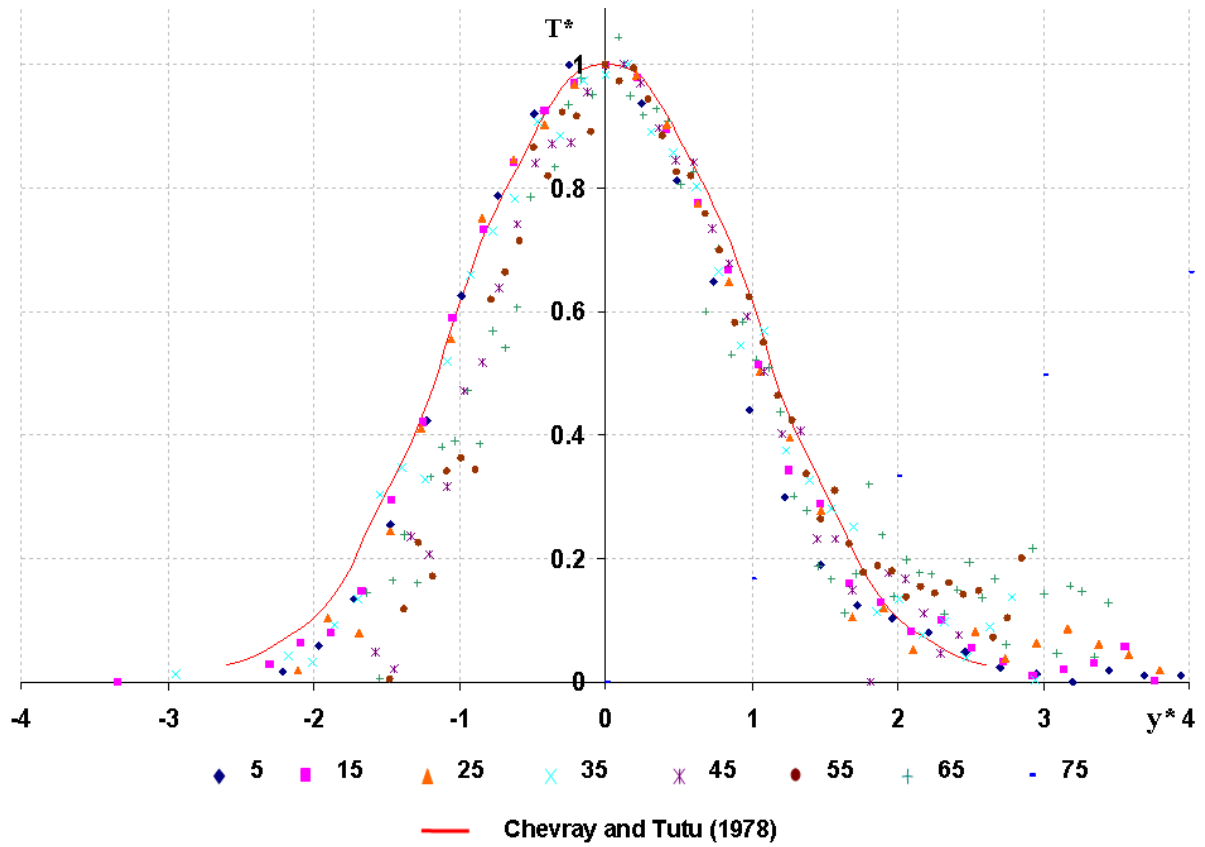


Figure 3.21 : Profils normalisés de température suivant la direction  $y$  pour l'expérience à concentration variable.



## **Chapitre 4**

### **Application de la fluorescence multibande à la mesure de la température dans les sprays**



# Chapitre 4

## Application de la fluorescence multibande à la mesure de la température dans les sprays

### 4.1 Introduction

L'étude et la caractérisation des sprays présentent un intérêt croissant de la part des acteurs industriels et de la communauté scientifique. En effet ces milieux complexes sont présents dans de nombreux procédés industriels.

Parmi ces procédés, on compte l'encapsulation de substances chimiques, par exemple, dans les procédés de séchage, dans la fabrication des poudres ou les procédés de peinture automobile.

D'une manière générale, le passage sous la forme d'un spray augmente de manière considérable la surface de contact entre la phase liquide et la phase gazeuse ou une surface solide. Cette dernière propriété est largement utilisée dans les procédés de refroidissement, notamment dans l'élaboration de produits sidérurgiques ou dans le cas d'accidents nucléaires avec perte du fluide réfrigérant.

L'étude des sprays présente également un intérêt important dans le domaine de la propulsion aérobique, tels que les moteurs aéronautiques ou automobiles. Dans ces derniers, le combustible, stocké sous forme liquide est atomisé en une dispersion de gouttelettes de petites tailles, qui s'échauffent, s'évaporent. La vapeur de combustibles se mélange ensuite au comburant par transferts diffusifs et turbulents puis réagit en phase gazeuse (combustion) en dégageant l'énergie nécessaire à la propulsion. La caractérisation d'un nuage de gouttes passe d'abord par la connaissance de données granulométriques et cinématiques. Des techniques telles que la granulométrie phase Doppler (PDA) donnent accès à la distribution locale en nombre des tailles et des vitesses des gouttelettes ou la vélocimétrie par imagerie de particules (PIV) diphasique permettant d'accéder simultanément à la vitesse des gouttelettes et de la phase porteuse.

Néanmoins, la connaissance et la maîtrise des transferts de chaleur entre un spray et sa phase gazeuse nécessitent également la connaissance de paramètres thermodynamiques. En particulier, la température de la goutte est directement liée à la pression de vapeur saturante au voisinage de sa surface. Dans une chambre de combustion, ce paramètre contrôlera la distribution spatiale de la vapeur de combustible et ainsi la température de combustion locale. Or, il est connu que les zones à fortes températures favorisent l'apparition de polluants tels que les oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>). Il est également reconnu qu'une modélisation adéquate de la phase gazeuse conduira à une bonne prédiction du temps de vie de la gouttelette, alors que la qualité de la modélisation de la phase liquide est essentielle pour prévoir correctement le délai d'auto-inflammation.

Il apparaît donc nécessaire de développer une technique de mesure de température de la phase liquide dans un spray. En effet, dans un spray, les transferts de chaleur et de masse peuvent différer significativement par rapport à ceux rencontrés dans le cas d'une gouttelette individuelle. La littérature comporte de nombreux travaux en ce sens, réalisés sur les trains de gouttelettes monodisperse en interaction (Castanet et al., 2005), sur des gouttes accrochées (Gokalp et al, 1992) ou décrivant l'influence de la phase porteuse sur l'évaporation par

exemple (Wu et al, 2001 ). Différentes techniques de mesure de la température des gouttes dans un spray ont été mises en œuvre ; l'introduction bibliographique a permis d'en examiner un certain nombre. La fluorescence induite par laser à deux couleurs, utilisant un seul traceur fluorescent et deux bandes spectrales de détection de sensibilité différente, a été développée sur des gouttes individuelles par Lavieille et al. (2001). Le traceur fluorescent utilisé était la rhodamine B. Les avantages de cette technique ont largement été décrits précédemment. L'objectif de ce chapitre est de présenter les possibilités d'extension de cette technique au cas des sprays, présentant une polydispersion en taille et vitesse, la direction de passage de la goutte dans le volume de mesure n'étant également pas répétitive.

Pour cela, une analyse rigoureuse du signal de fluorescence provenant d'une goutte sera réalisée avant de montrer les possibilités d'extension de la technique aux sprays. En particulier, nous nous attarderons sur la possibilité de coupler la technique LIF à la granulométrie phase Doppler, l'objectif final étant d'accéder à la température des gouttes par classe de taille. Dans ce manuscrit, l'utilisation de ce couplage sera limitée à des analyses de nature purement métrologique.

## 4.2 Dispositif expérimental

### 4.2.1 Génération de sprays : Injecteur Danfoss

- **Principe de fonctionnement**

La génération du spray de gouttelettes liquides est réalisée à l'aide d'un injecteur de marque Danfoss conçu pour l'injection de fioul dans les chaudières domestiques.

Les caractéristiques nominales sont un débit de 0,5 gal/h (1/h) sous une pression d'injection de 10 bars et une répartition des gouttelettes sur un cône plein d'angle 30 à 45°.

Cet injecteur utilise la technique d'atomisation par jets rotatifs où la force centrifuge permet un déchirement fin du liquide concerné. Dans le cas des atomiseurs Danfoss, le mouvement de rotation est communiqué au liquide par trois fines rainures qui alimentent un entonnoir d'une taille de quelques centaines de microns vers un disque de sortie percé d'un orifice de diamètre de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ . Les rainures ne passant pas par l'axe de symétrie de l'entonnoir, un moment cinétique par rapport à ce dernier apparaît au sein du liquide ce qui le met en rotation. Ce mouvement de rotation est ensuite amplifié par la forme conique de l'entonnoir au fur et à mesure que le liquide est contraint à se rapprocher de l'axe de rotation. L'accélération radiale obtenue peut être gigantesque puisqu'elle peut être estimée à environ 100 000 fois l'accélération de la pesanteur en sortie de buse. Sous l'effet de cette accélération, le liquide se désintègre en fines gouttelettes, à l'exception du liquide présent dans la couche limite, au voisinage de la paroi. Ce liquide périphérique sortira ainsi avec une vitesse de rotation bien plus faible et ruissellera sous forme d'une nappe liquide qui se fragmentera elle en gouttes de tailles bien plus importantes que celles rencontrées au cœur du spray.



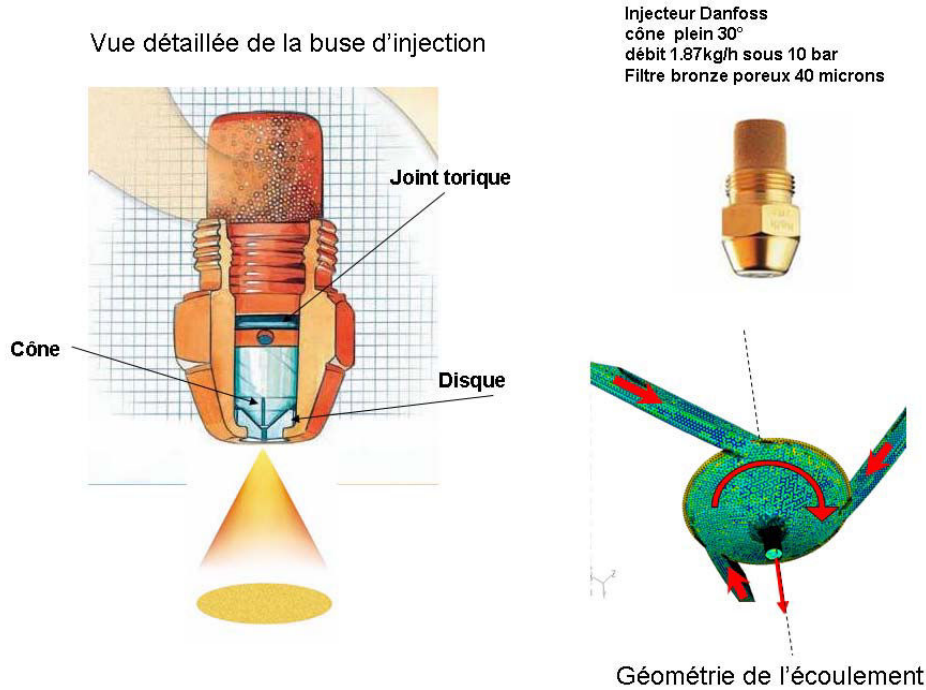


Figure 4.1 : description de l'injecteur Danfoss et de sa géométrie d'écoulement.

- **Alimentation en fluide**

Le système d'alimentation en fluide permet d'obtenir un débit quasi constant de fluide tout en contrôlant la pression et la température du fluide à l'entrée de l'injecteur. Un réservoir d'air comprimé muni d'un détendeur permet de réguler la pression en air comprimé qui pousse le fluide vers l'injecteur. La présence de ce réservoir permet de s'affranchir d'éventuelles fluctuations de pression du réseau d'air comprimé. Un second détendeur permet d'ajuster la pression de sortie dans une gamme variant de 2,5 bar à 6,5 bars.

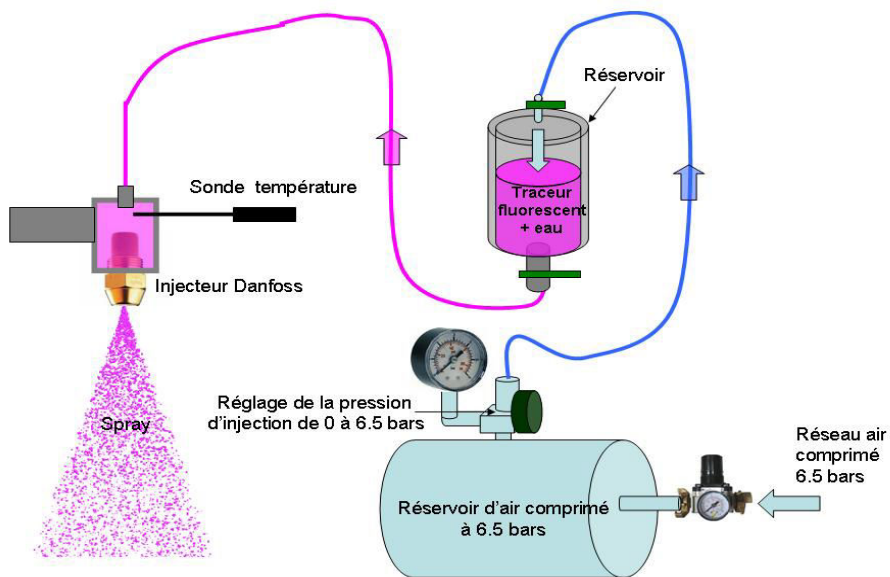


Figure 4.2 : Circuit d'alimentation en fluide de l'injecteur

## 4.2.2 L'injecteur de gouttes monodisperse

Un jet de gouttes monodisperse correspond à des gouttes générées périodiquement et se déplaçant sur une trajectoire rectiligne. Chaque goutte a la même vitesse, le même diamètre, ainsi que le même espacement entre goutte, en un point donné. Leurs propriétés thermodynamiques sont identiques en une position donnée. Ainsi, expérimentalement, des moyennes temporelles aussi précises que désirées peuvent être réalisées (figure 4.3).

L'injecteur utilisé pour réaliser des gouttes monodisperse, conçu par l'ITLR (université de Stuttgart, Allemagne) est constitué d'un élément piézoélectrique relié à un champ électrique oscillant au moyen d'un générateur de fréquences de forte tension (100 V crête). La céramique piézoélectrique entre alors en vibration et ces vibrations se propagent alors dans le corps de l'injecteur jusqu'à son extrémité pour être finalement transmises au jet liquide qui s'échappe de l'orifice calibré d'une membrane. Naturellement instable, le jet liquide se fragmente naturellement en gouttes monodispersées en taille (figure 4.3). La vibration imposée permet de contrôler la désintégration du jet en se plaçant sur une fréquence proche de celle de l'instabilité de Rayleigh. Pour des fréquences de vibration bien choisies, la surface latérale du jet ondule de façon régulière et l'instabilité se propage le long du jet et des gouttes se détachent à intervalles périodiques, formant ainsi un jet de goutte monodisperse (Koenig et al., 1986). La fréquence de formation des gouttes est alors identique à la fréquence du courant imposé à la piézo-céramique.

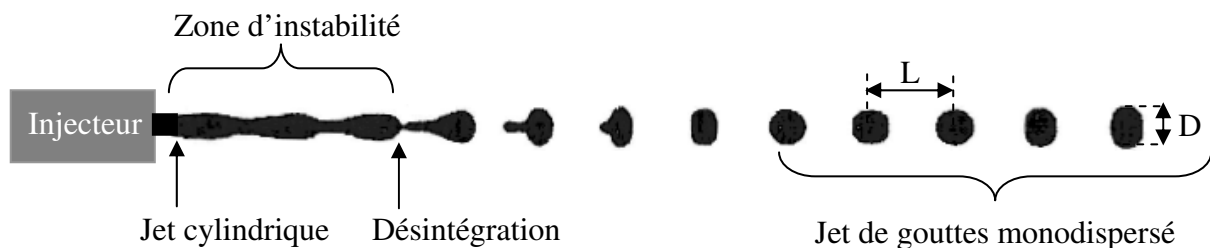


Figure 4.3 : Formation d'un jet monodisperse

Les gouttes ainsi générées deviennent très sphériques en fonction de leur nombre de Weber. Pour chaque orifice calibré utilisé, une plage de fréquence de fonctionnement monodisperse est accessible, ce qui permet de générer différents diamètres de gouttes.

Le diamètre  $D$  des gouttes peut être déterminé simplement par débitmètrie. Le débit volumique liquide  $Q$  est obtenu en mesurant le volume de liquide recueilli pendant un temps donné. Ce débit peut être relié au diamètre des gouttes et à la fréquence de génération  $f$  par :

$$D = \sqrt[3]{\frac{6Q}{\pi f}} \quad (4.1)$$

D'une manière générale, les dispositifs tels que le spray ou l'injecteur monodisperse seront montés sur un banc de déplacement 3D piloté par PC. Les optiques d'émission et de réception seront fixes.

## 4.2.3 Caractérisation granulométrique du spray

### 4.2.3.1 Le granulomètre Phase Doppler

Le granulomètre Phase Doppler utilisé est celui produit par la société DANTEC (PDA). Cette technique permet de déterminer la distribution locale en nombre de tailles de particules. Le système de mesure est constitué d'une source laser couplée à une sonde d'émission, d'une optique de collection (57X10, PDA classique) et d'un processeur de traitement du signal de type P80. L'optique de réception Phase Doppler est une optique non fibrée du type 57X10.

### 4.2.3.2 La sonde d'émission laser

Nous nous attarderons quelques temps sur la description de cette sonde, qui sera également utilisée pour l'excitation de la fluorescence. La source laser est un laser à argon ionisé dont la puissance toutes raies est de l'ordre de 4W. La raie verte à 514,5 nm sera exclusivement utilisée. La sonde d'émission utilisée, de type 'Fiberflow' permet de générer deux paires de faisceaux laser de longueur d'onde différentes. Seule la paire de faisceaux à 514,5 nm sera utilisée. Deux faisceaux d'une même paire sont distants de 60 mm et parallèles. Une lentille convergente (de focale 310 mm dans le cas présent) permet d'obtenir un dispositif de faisceaux croisés avec un demi-angle au sommet  $\theta$  de 5,53°. Cette sonde est reliée par fibres optiques au coupleur laser. Le coupleur laser permet de séparer les longueurs d'onde du laser et de construire pour chacune des paires de faisceaux. L'un des faisceaux passe par une cellule de Bragg afin de le décaler en fréquence de 40 MHz. Ce décalage fréquentiel a pour but d'éliminer l'ambiguïté sur le signe du vecteur vitesse. Ces deux paires de faisceaux sont ensuite couplées aux fibres optiques reliées à la sonde d'émission.

Le volume d'excitation laser résulte ainsi de la zone de croisement des deux faisceau laser au foyer de la lentille convergente. Les deux faisceaux, étant cohérent, interfèrent dans cette zone de croisement qui s'apparente à une ellipsoïde dont les dimensions sont précisées (figure 4.4). La distribution d'énergie dans cet ellipsoïde est gaussienne.

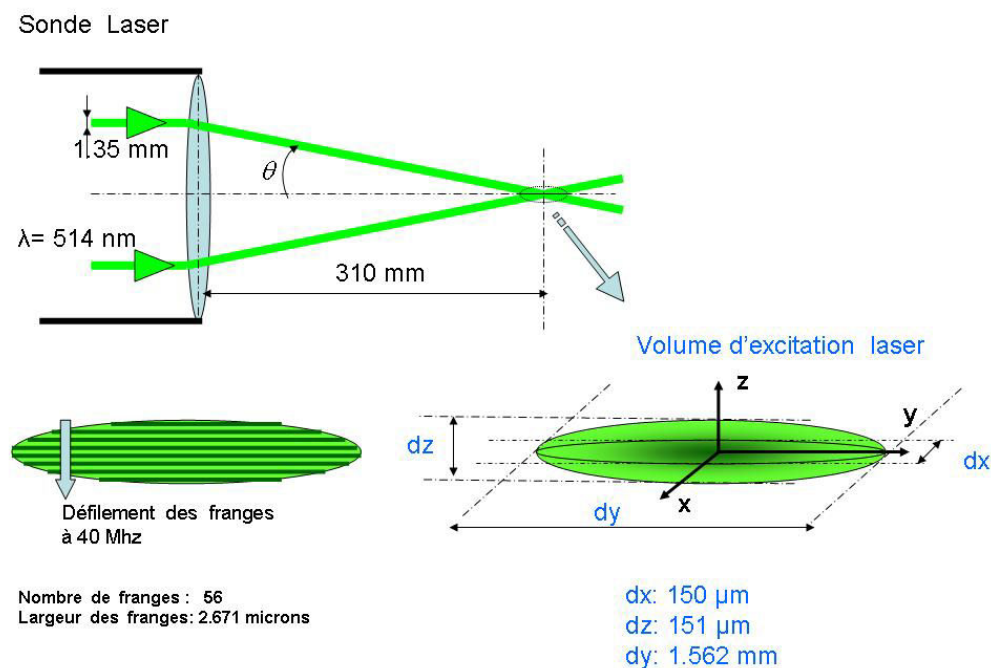


Figure 4.4 : illustration du volume d'excitation Laser

### 4.2.3.3 Principe de la mesure phase Doppler

L'ellipsoïde de croisement des faisceaux laser est le lieu de création d'un réseau de franges d'interférence. Au point de focalisation des deux faisceaux laser, les fronts d'onde sont à peu près plan et le réseau d'interfranges est alors constitué de franges planes orientées parallèlement à la bissectrice de l'angle formé par les deux faisceaux incidents qui défilent à la fréquence de 40 Mhz. La traversée d'un tel réseau de franges par des particules permet la mesure de leur vitesse par analyse de la fréquence Doppler. La mesure de la taille s'obtient par analyse de la différence de phase de la lumière diffusée par la particule.

- **Mesure de la vitesse**

La distance  $\delta_f$  entre deux franges consécutives dépend directement de la longueur d'onde  $\lambda$  de la lumière laser et de l'angle  $\theta$  formé par les deux faisceaux.

$$\delta_f = \frac{\lambda}{2 \sin \frac{\theta}{2}} \quad (4.2)$$

Les gouttes qui traversent le réseau de franges d'interférence (figure 4.5) diffusent de la lumière modulée par l'interfrange et la vitesse de passage des gouttes perpendiculairement au réseau de franges. La lumière diffusée par les particules est détectée par un photomultiplicateur, puis convertie en courant et en tension forme des bouffées Doppler (figure 4.5) qui seront traitées par un analyseur de spectre rapide.

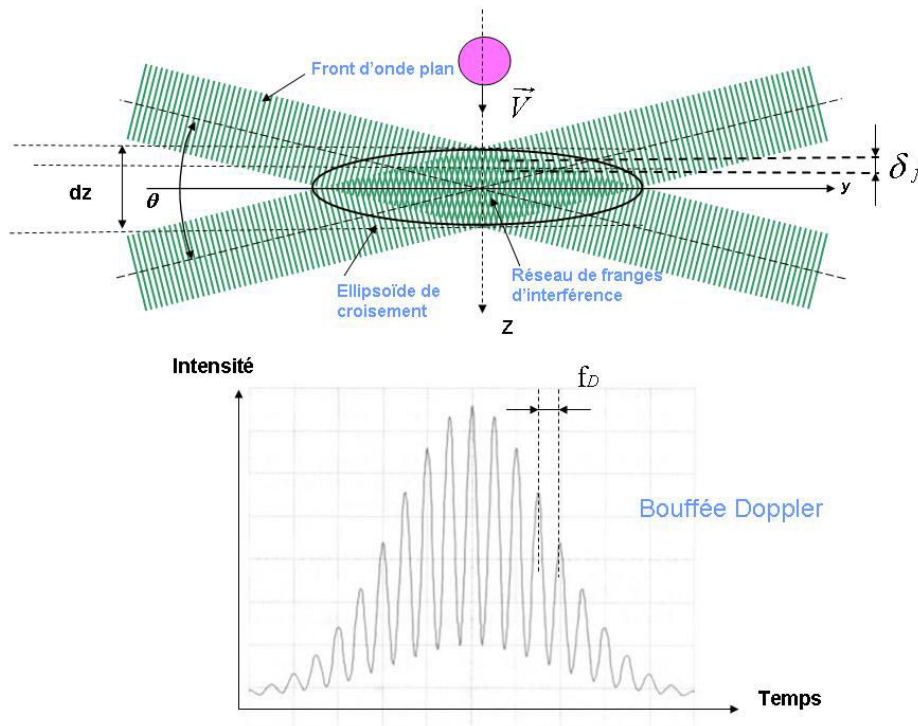


Figure 4.5 : principe de la vélocimétrie laser Doppler.

La fréquence Doppler  $f_D$  est reliée à la composante  $V_x$  de la vitesse perpendiculaire au réseau de franges :

$$f_D = \frac{V_x}{\delta_f} = \frac{2V_x}{\lambda} \sin \frac{\theta}{2} \quad (4.3)$$

• **Mesure du diamètre d'une particule**

La mesure de la taille d'une particule, supposée sphérique, consiste également à analyser non pas la fréquence des bouffées Doppler, mais leur phase. Il s'agit de comparer les signaux Doppler reçus par deux détecteurs placés dans deux positions différentes de l'espace. La fréquence de modulation des signaux reçus par les deux détecteurs est identique, mais cependant il existe un déphasage du fait de la localisation spatiale différente des détecteurs. En effet, pour s'en convaincre, il suffit de considérer le cas d'un rayon lumineux interceptant la particule. L'intensité de ce rayon est bien évidemment modulée par le contraste de frange. La lumière issue de ce rayon est diffusée dans une direction qui évolue au cours du passage de la particule. Parmi toutes les directions successivement prises, une seule correspond à la direction de chaque détecteur, expliquant ainsi le déphasage observé. La figure 4.6 illustre ce phénomène, conformément au sens de déplacement indiqué pour la goutte, c'est-à-dire que le signal reçu sur le détecteur 1 est en avance de phase par rapport à celui reçu par le détecteur 2. ( $t_1$  et  $t_2$  désignent respectivement les instants où la lumière du rayon lumineux atteint les détecteurs 1 et 2,  $t_1 < t_2$ ). Ce déphasage entre les deux capteurs dépend du rayon de courbure de la particule puisque ce sont les rayons réfléchis et réfractés au niveau de l'interface de la particule qui sont vus par les détecteurs.

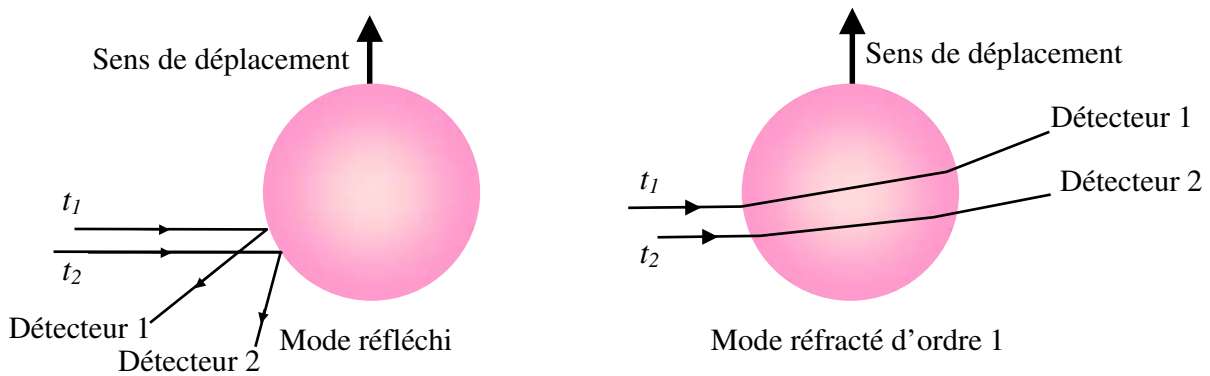


Figure 4.6 : Principe du PDA pour les modes réfracté et réfléchi .

La phase des bouffées Doppler reçues par l'un des détecteurs  $i$  peut s'écrire de la façon suivante:

$$\Phi_i = \alpha \beta_i \tag{4.4}$$

où  $\alpha$  désigne ici le paramètre de taille de la particule qui est défini par:

$$\alpha = \pi \frac{n_a}{\lambda} D \tag{4.5}$$

avec  $n_a$  l'indice de réfraction de l'air,  $\lambda$  la longueur d'onde du faisceau et  $D$  le diamètre de la particule.

Dans l'expression (4.4),  $\beta_i$  désigne le facteur de phase du détecteur  $i$ . Il dépend du mode de diffusion (réflexion, réfraction d'ordre 1 ou 2) et de la disposition géométrique des détecteurs, c'est-à-dire de l'angle  $\theta$  entre les deux faisceaux incidents et de la configuration géométrique des photodétecteurs.

Le déphasage observé entre les deux détecteurs est ainsi proportionnel au diamètre de la particule, supposée sphérique. Si la particule est de grande taille, le déphasage peut dépasser la valeur de  $2\pi$  radian et il n'est alors plus possible de différencier le cas d'une telle particule de celui d'une particule plus petite provoquant le même déphasage. Il s'agit de l'ambiguïté de  $2\pi$ .

La distance entre les deux photodétecteurs influe fortement sur la valeur du facteur de phase  $\beta_i$ . Lorsque ceux-ci sont proches,  $\beta_i$  est faible, ce qui permet une mesure sur une grande gamme de diamètre, mais avec une faible précision. En revanche, s'ils sont plus éloignés, la valeur de  $\beta_i$  augmentera et la détermination du diamètre s'effectuera avec une plus grande précision mais sur une gamme de fonctionnement en taille plus restreinte, du fait de l'ambiguïté de  $2\pi$ . La solution retenue par les constructeurs pour lever cette ambiguïté consiste à introduire un troisième détecteur. Ce troisième photomultiplicateur  $P_3$  est placé entre les deux premiers  $P_1$  et  $P_2$ , relativement proche de  $P_1$  de sorte que le déphasage  $\phi_{13}$  entre  $P_1$  et  $P_3$  présente certes une sensibilité modérée à la taille mais une large plage de mesure. A l'inverse, les détecteurs  $P_1$  et  $P_2$  permettront d'obtenir un déphasage  $\phi_{12}$  important mais dans une gamme de taille restreinte. Le déphasage  $P_1$ - $P_3$  donnera une valeur approximative du diamètre qui sera ensuite affinée par la mesure de phase entre  $P_1$  et  $P_2$  (figure 4.7).

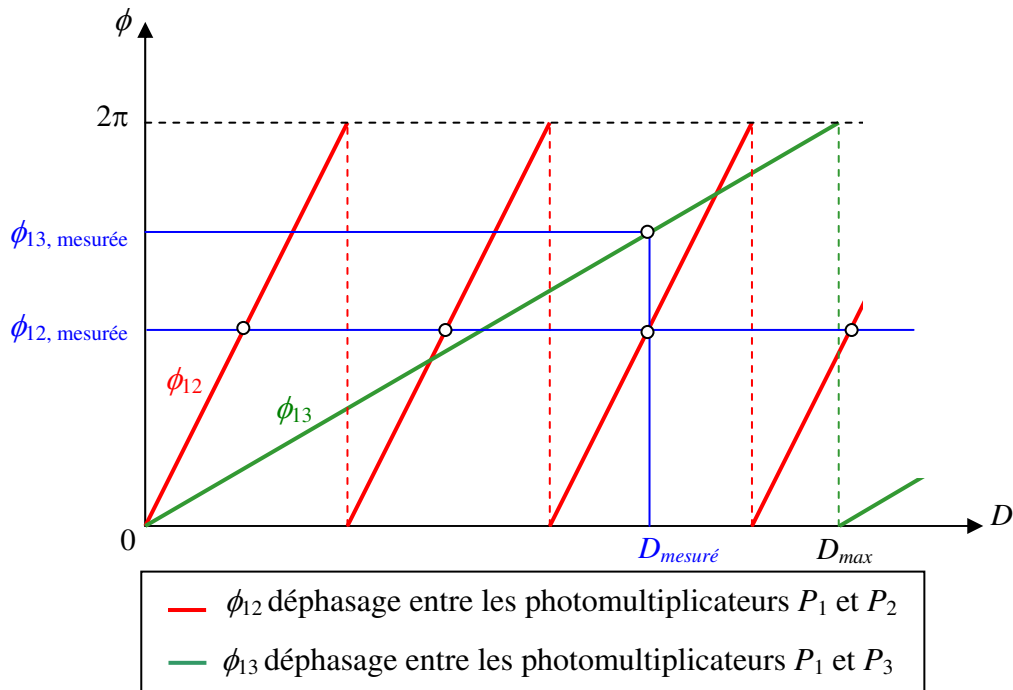


Figure 4.7 : Relation entre les déphasages et le diamètre et illustration de l'ambiguïté de  $2\pi$ .

• **Mode de diffusion de la lumière**

Le mode de diffusion de la lumière (réflexion, réfraction d'ordre 1 ou 2) influence également le facteur de phase et l'intensité de la lumière diffusée dans une direction donnée. La figure 4.8 montre la répartition polaire de l'intensité correspondant aux différents modes de diffusion de la lumière pour une particule sphérique d'eau dans l'air. Ce résultat a été obtenu par l'optique géométrique pour une goutte de  $50\ \mu\text{m}$ . L'intensité diffusée en fonction de l'angle de diffusion  $\gamma$  est représentée avec une échelle logarithmique.

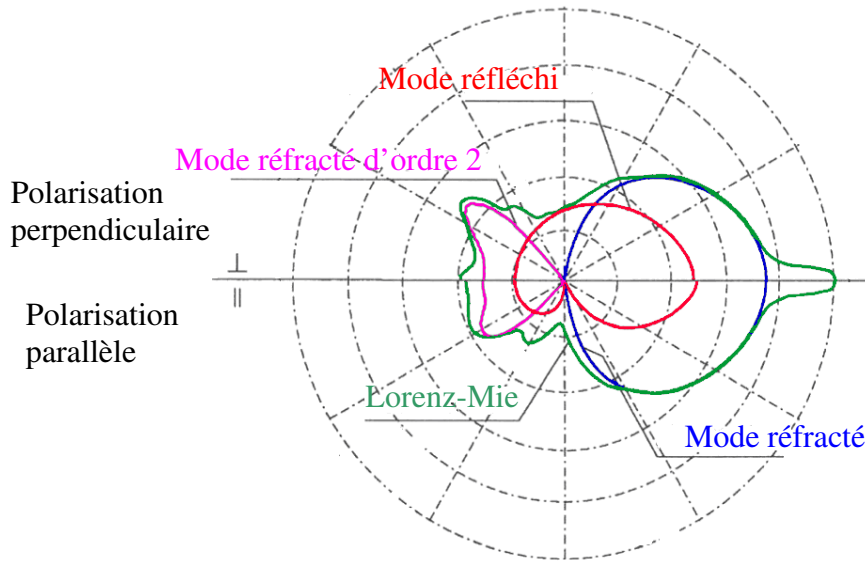


Figure 4.8 : Répartition polaire de l'intensité diffusée par une goutte d'eau dans l'air pour une polarisation parallèle et perpendiculaire pour les différents modes de diffusion (échelle logarithmique).

Dans le cas de particules de petite taille, la proportion des rayons interagissant avec la goutte est faible et il est alors souhaitable de placer les détecteurs dans des directions privilégiées où le signal reçu est relativement important. Nous travaillerons en polarisation parallèle et l'optique de collection du PDA sera positionnée sur le premier mode réfracté. L'angle entre les faisceaux incidents et l'axe l'optique de réception  $\varphi$  est fixé à  $50^\circ$  pour des raisons d'encombrement géométrique. De plus, au voisinage de cet angle, les facteurs de phase sont pratiquement indépendants de l'indice de réfraction du liquide qui est susceptible de varier avec la température. Dans le cas de gouttelettes d'eau, cette configuration géométrique et optique permet de mesurer des diamètres allant jusqu'à  $186 \mu\text{m}$ .

#### 4.2.3.4 Volume de mesure du PDA

L'optique de collection Dantec 57X10 (figure 4.9) est constituée d'une fente de largeur  $L_f$  jouant le rôle de filtre spatial, ce qui permet de définir une zone de collection sur le volume d'excitation laser précédemment défini (figure 4.10). Le volume de mesure est le résultat de la projection de cette fente de largeur  $L_f=120 \mu\text{m}$  par un doublet optique sur l'ellipsoïde d'excitation laser générée par la sonde Dantec Fiberflow. La projection de cette fente est affectée par le grandissement du dispositif optique qui est constitué de deux lentilles accolées ( $L_1$  et  $L_2$ ) de distance focale respective  $f_1$  et  $f_2$ . Le grandissement du dispositif  $G_{pda}$  est alors  $G_{pda} = f_1 / f_2 = 510 / 310 = 1,64$ , lorsqu'une lentille frontale  $L_1$  d'une focale de 510 mm est utilisée, la seconde lentille  $L_2$  ( $f_2=310 \text{ mm}$ ) étant fixe.

Ainsi la largeur  $L_p$  de la fente projetée sur le volume d'excitation est donnée par  $L_p = G_{pda} L_f$ .

Compte tenu de l'angle  $\varphi$  entre les faisceaux incidents et l'optique de collection, la largeur projetée selon le grand axe de l'ellipsoïde d'excitation est  $L_m = L_p / \sin\varphi = 257 \mu\text{m}$  pour la configuration optique présentée précédemment.



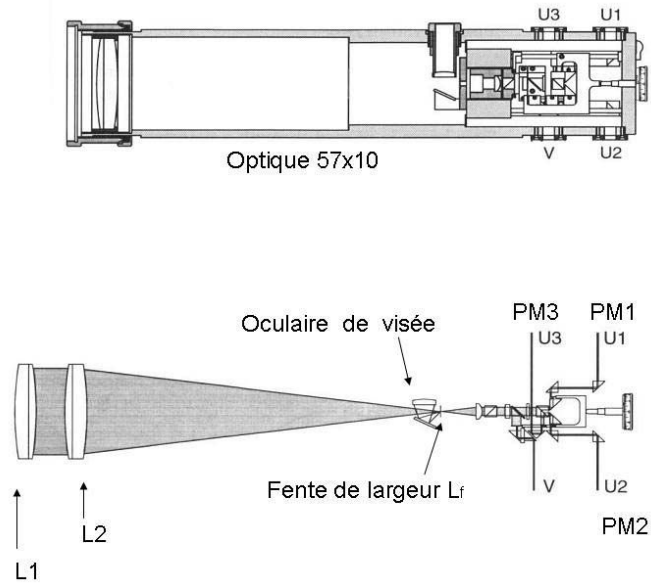


Figure 4.9 : Optique de réception 57X10

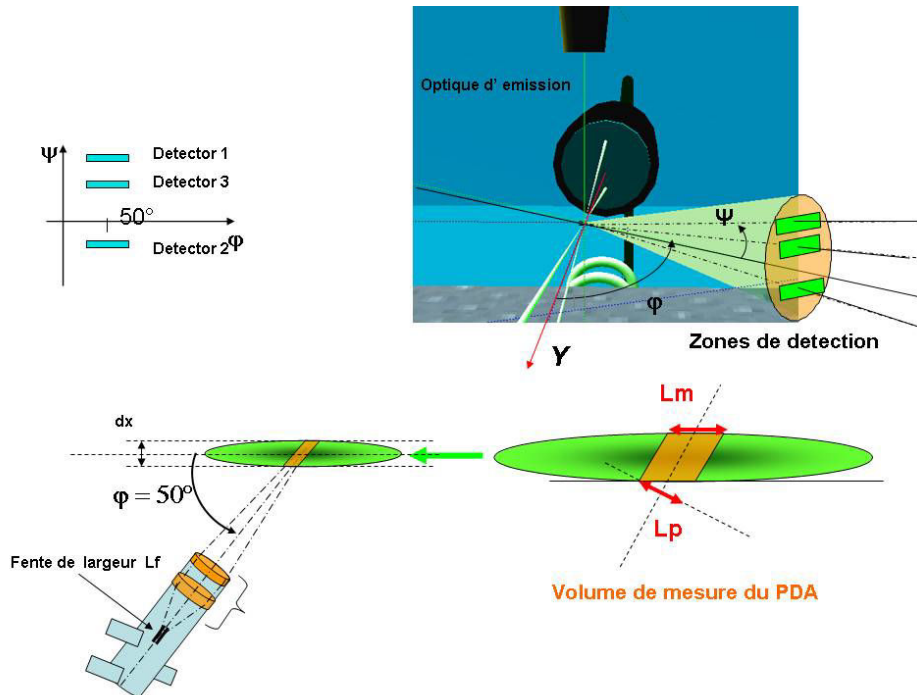


Figure 4.10 : Définition du volume de mesure et configuration géométrique du PDA.

#### 4.2.3.5 Données granulométriques du spray issus de l'injecteur Danfoss

Cette étude a été menée avec une pression d'injection maintenue constante à 5bars. Les résultats concernant l'évolution des diamètres statistiques  $D_{10}$  et  $D_{32}$  est présenté figure 4.11. Nous constatons une diminution du diamètre moyen  $D_{10}$  de le long de l'axe vertical d'environ une dizaine de microns. De même, la taille des gouttes augmente nettement lorsque l'on s'écarte de l'axe central, ce qui est compatible avec le fonctionnement de ce type d'injecteur swirlé. L'évolution de la vitesse axiale sur les axes verticaux et horizontaux ( $z = 30$  mm) est représentée sur la figures 4.12. La vitesse axiale sur l'axe central évolue de 13,5 m/s au



voisinage du point d'injection et décroît jusqu'à 4,5 m/s à 90 mm de la sortie de la buse. De même, les gouttes ont des vitesses plus faibles à la périphérie du spray.

La figure 4.13 représente l'histogramme granulométrique (en terme de densité de probabilité) du spray selon l'axe vertical  $z$  et pour différentes positions sur l'axe horizontal à une hauteur  $z=30\text{mm}$ .

Le PDA permet également de donner une estimation de la concentration particulaire locale, en dépit des différents biais connus de cette mesure. La figure 4.14 présente l'évolution de ces paramètres respectivement sur les axes verticaux et horizontaux. La concentration particulaire est élevée au voisinage de la buse d'injection et sur l'axe central (environ  $47000$  particules/cm<sup>3</sup>) et diminue fortement lorsque l'on s'éloigne du point d'injection ou de l'axe central.

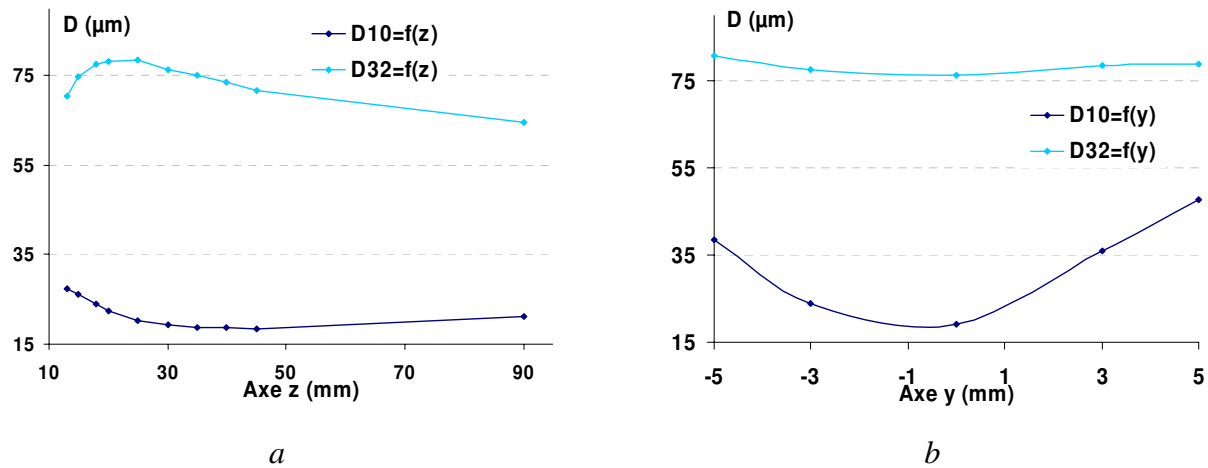


Figure 4.11 : a) évolution des diamètres statistiques le long de l'axe  $z$  central du spray et b) le long de l'axe horizontal  $y$  (pour  $z=30\text{mm}$ ).

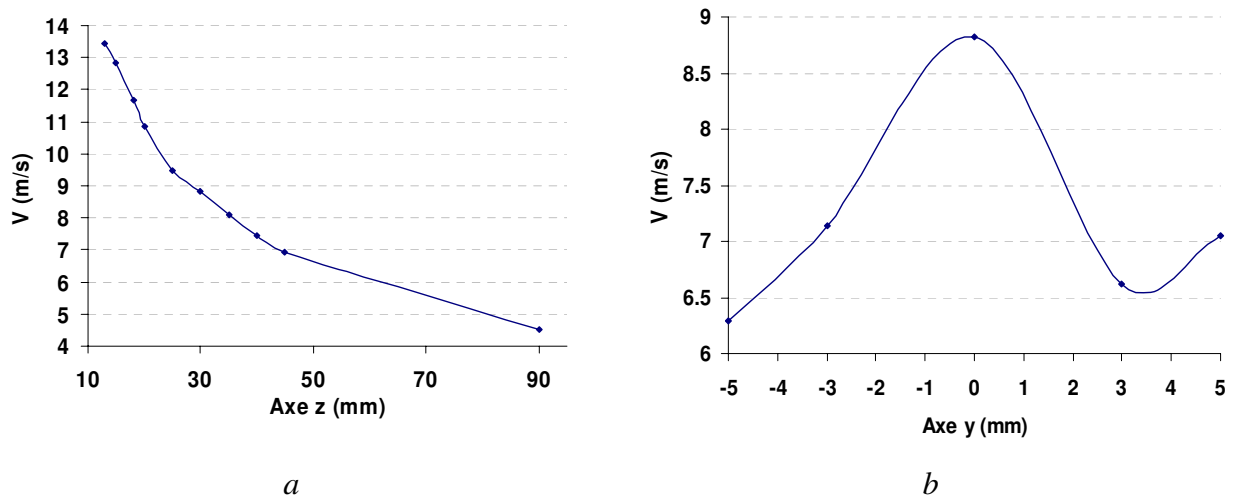


Figure 4.12 : a) évolution de la vitesse moyenne le long de l'axe  $z$  central du spray et b) le long de l'axe horizontal  $y$  (pour  $z=30\text{mm}$ ).

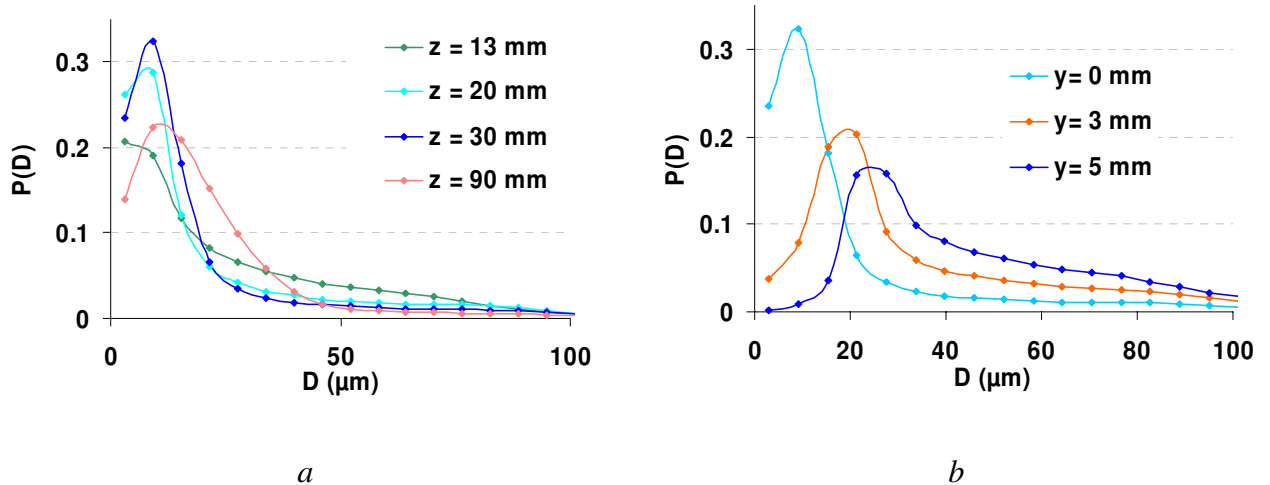


Figure 4.13 : a) densité de probabilité le long de l'axe  $z$  central du spray et b) le long de l'axe horizontal  $y$  (pour  $z = 30$  mm).

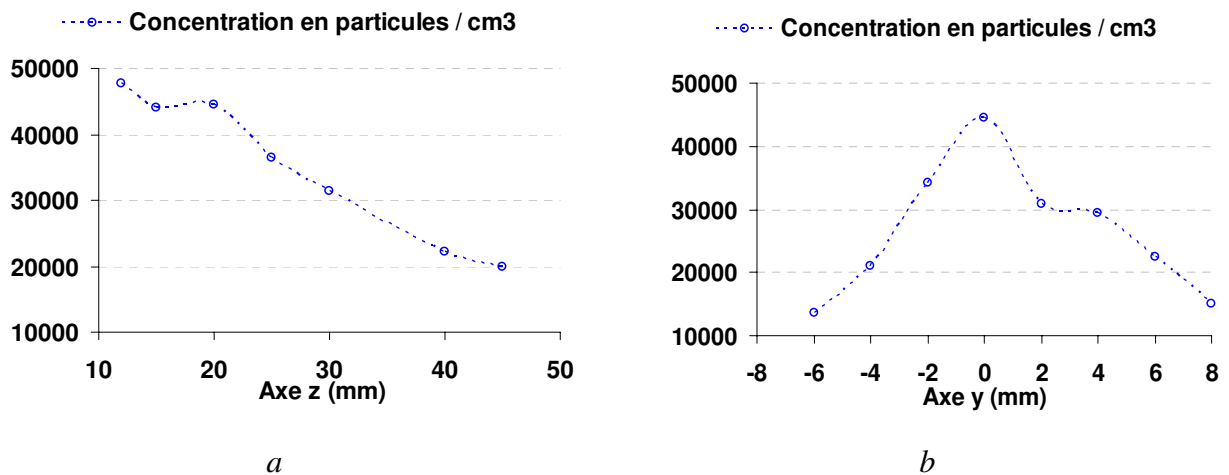


Figure 4.14 : a) Concentration en particules/cm<sup>3</sup> le long de l'axe  $z$  central du spray et b) le long de l'axe horizontal  $y$  (pour  $z = 20$  mm).

## 4.2.4 Fluorescence induite par laser multibande

L'objectif est d'utiliser la fluorescence induite par laser à deux couleurs afin de mesurer la température des gouttelettes dans un spray. Nous serons amenés à conduire des expériences sur des gouttes calibrées de taille différentes afin d'examiner la structure et la dynamique du signal de fluorescence.

Le fluide principalement utilisé dans cette étude est de l'eau. Le traceur fluorescent qui a été sélectionné est la sulforhodamine B ou Kiton red, colorant distribué par la société Exciton. Ce traceur a été préféré à la rhodamine B pour l'étude des sprays du fait du décalage spectral par rapport à la longueur d'onde excitatrice significativement plus important.

### 4.2.4.1 Dispositif expérimental

- **La Sonde d'émission laser**

La sonde laser est identique à celle utilisée pour la mesure PDA. La plupart des mesures de fluorescence ont été réalisées avec une lentille de focale 310 mm. Le volume d'excitation

laser, dans cette configuration optique aura donc les dimensions suivantes :  $dx=150 \mu\text{m}$ ,  $dz=151\mu\text{m}$ ,  $dy=1.562 \text{ mm}$ .

- **Dispositif de collection de la fluorescence**

La sonde de collection de la fluorescence est un doublet achromatique couplé à une fibre optique jouant le rôle de pinhole (figure 4.15). Le doublet forme l'image du cœur de la fibre optique (diamètre  $70 \mu\text{m}$ ) sur le volume d'excitation laser. Le doublet est composé d'une lentille frontale de focale variable ( $f_1=300 \text{ mm}$  dans le cas présent) et d'une lentille fixe de focale  $f_2=100 \text{ mm}$ . En considérant le grandissement  $G_{if} = f_1/f_2=3$  du dispositif, l'image du cœur de fibre sur le volume d'excitation laser aura un diamètre de  $210 \mu\text{m}$ . Etant donné le faible diamètre du volume d'excitation et la grande profondeur de champ de l'optique de collection, le volume de mesure pourra être assimilé à un cylindre de diamètre  $210 \mu\text{m}$  et d'une hauteur égale au petit axe de l'ellipsoïde d'excitation laser.

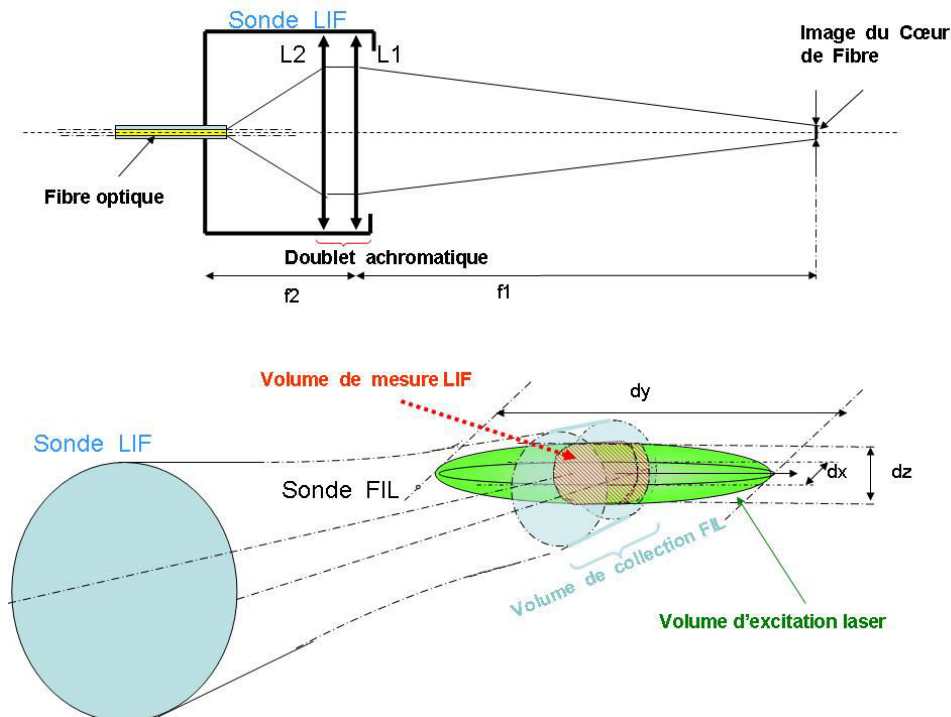


Figure 4.15 : illustration du volume de mesure de l'optique de collection de la fluorescence.

- **Séparations des bandes spectrales**

La lumière collectée par la sonde de fluorescence est composée de la longueur d'onde excitatrice ( $514,5\text{nm}$ ) diffusée par les gouttes ainsi que la totalité du spectre d'émission de fluorescence du traceur utilisé. Un filtre holographique de type Super Notch Plus (Kayser Optical), présentant une densité optique de 6 sur une bande spectrale  $8 \text{ nm}$  entourant la longueur d'onde laser est placé en sortie de fibre optique afin de d'éliminer la diffusion à  $514,5 \text{ nm}$ . Ensuite est positionné un séparateur de couleurs dont le rôle est de diviser l'intensité de fluorescence en trois bandes spectrales. L'objectif de cette troisième bande spectrale sera présenté ultérieurement dans ce chapitre. Le séparateur de couleur est composé de deux cubes dichroïques (figure 4.16) afin d'obtenir une première séparation des couleurs. Des filtres interférentiels de faible largeur spectrale et de bon facteur de qualité sont ajoutés sur chacune des voies de mesures afin d'affiner la bande spectrale désirée. La fluorescence induite par laser à deux couleurs sera mise en œuvre sur les bandes spectrales 1 et 2 dont les caractéristiques ont été sélectionnées afin de d'optimiser la sensibilité en température du rapport de fluorescence. Les caractéristiques des bandes spectrales utilisées sont résumées dans le tableau 4.1 suivant.

Bande spectrale 1 (nm)	535-545
Bande spectrale 2 (nm)	> 615
Bande spectrale 3 (nm)	555-575

*Tableau 4.1 : Bandes spectrales utilisées*

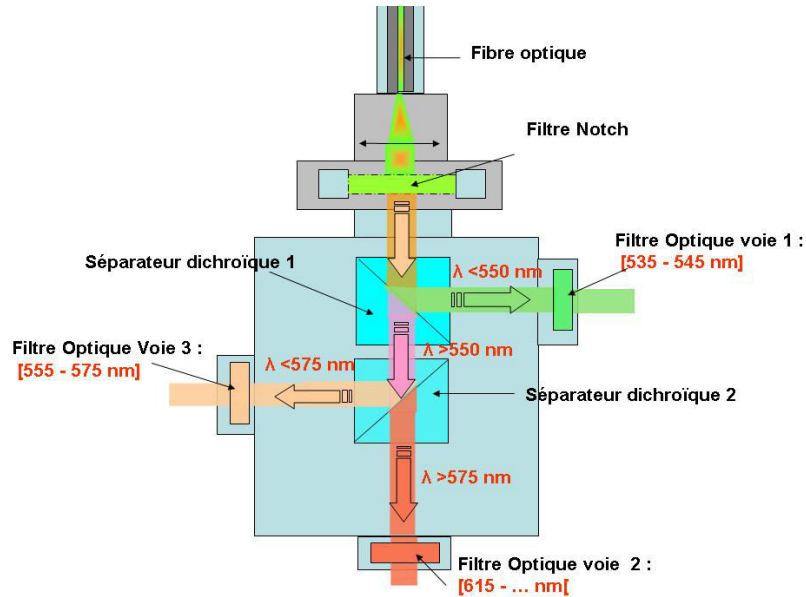


Figure 4.16 : Le séparateur de couleurs

• **Les photomultiplicateurs (PM)**

Chacune des sorties du séparateur de couleur correspondant à une bande spectrale est reliée à un photomultiplicateur Hamamatsu de type H7422-40. Ce type de photomultiplicateur est équipé d'un dispositif Peltier situé a proximité du tube qui permet par son refroidissement de réduire le bruit thermique de la photocathode. Ce photomultiplicateur présente une excellente efficacité quantique proche de 40% ainsi qu'un très bon rapport signal/bruit, ce qui permet de détecter de très faibles flux lumineux sur une bande spectrale [300 nm, 720 nm]. La figure 4.17 représente sensibilité de la photocathode en fonction de la longueur d'onde. cette sensibilité apparaît bien adaptée au domaine spectral d'utilisation.

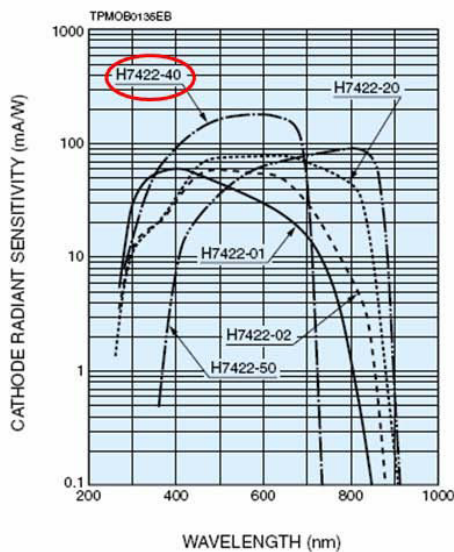


Figure 4.17 Photomultiplicateur Hamamatsu H7422-40 : réponse spectrale et gain

• **Les Amplis transimpédances :**

Les amplificateurs transimpédances ont pour fonction d’amplifier le courant issu des photomultiplicateurs ( $I_{max} = 2\mu A$ ) en une tension mesurable par la carte d’acquisition qui digitalise sur une tension symétrique de  $\pm 1V$ . Ces amplificateurs ont été développés spécifiquement pour cette étude. En effet cette application nécessite d’extraire le signal issu du passage des gouttes dans le volume d’excitation laser. L’amplification du courant a pour effet de diminuer la bande passante, qui dans cette application doit rester de l’ordre de 500 kHz afin de retranscrire de manière correct le signal correspondant au passage des gouttes dans la zone d’excitation, sans déformation. De plus, la technique de mesure de la température par fluorescence induite par laser implique de mesurer le rapport des intensités collectées simultanément sur plusieurs voies de mesure. Les amplificateurs doivent donc avoir exactement la même réponse sur la bande passante envisagée. Pour cela, les composants électroniques des trois amplificateurs (résistances, capacités...), ont été appariés avec une faible tolérance.

Le circuit développé est un circuit classique d’amplification de courant à deux étages d’amplification. Le gain total de l’amplificateur est de  $2.10^6$  Volt/Ampère. Ce gain tient compte de l’adaptation d’impédance nécessaire afin d’éliminer tout phénomène de rebond qui serait susceptible de déformer le signal. Ainsi pour un courant maximal de  $2\mu A$ , la sortie en tension sera de 4V. La figure 4.17 présente le schéma électronique simplifié des amplificateurs transimpédances qui ont été développés.

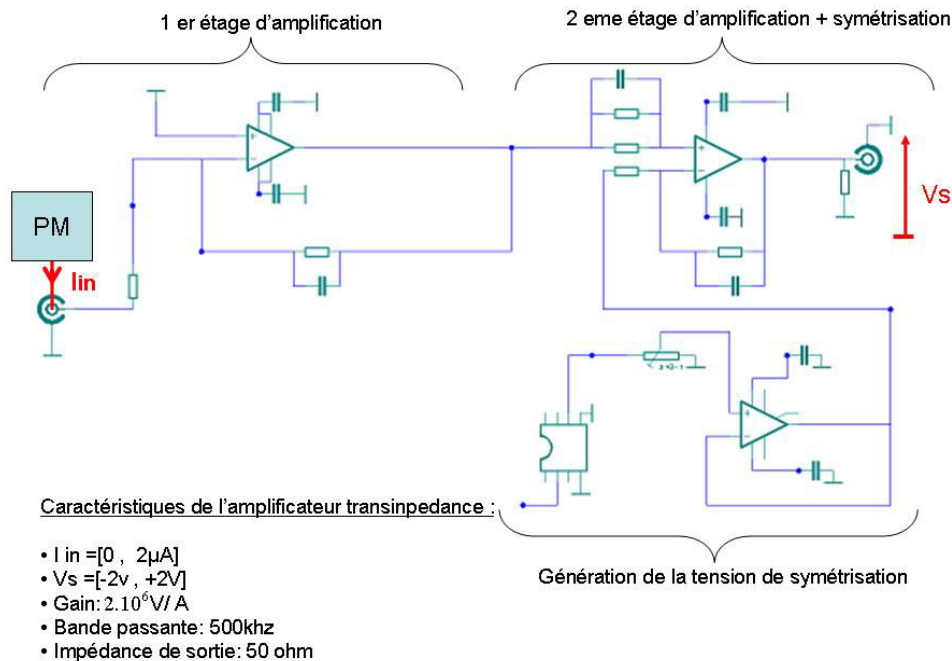


Figure 4.18 : Schéma et caractéristiques des amplis transimpédances

• **La carte d’acquisition des données**

L’acquisition des signaux de fluorescence est réalisé sur une carte d’acquisition ADlink 9812 (figure 4.19). Celle ci dispose de fonctionnalités adaptées aux mesures de fluorescence dans les sprays de gouttelettes. Cette carte est équipée d’un convertisseur analogique numérique Burr-Brown ADS800, qui permet d’échantillonner indépendamment sur 4 voies le signal à une fréquence de 20MHz. La numérisation est codée sur 12 bits. Chaque échantillon de mesure représente 2 octets de mémoire, car en plus des 12bits nécessaires à la numérisation du signal, 4 bits supplémentaires configurés en entrée logique sont utilisables pour synchroniser des événements extérieurs durant l’acquisition.



Figure 4.19 : La carte d'acquisition PCI 9812

En pratique, la fréquence d'échantillonnage de 20 MHz permet de numériser un signal sur un temps défini. A cette fréquence, les mesures ne peuvent être que séquentielles, car le transfert continu des données de la carte vers la mémoire vive du PC est limité par la bande passante du Bus PCI 32bits, qui est de 133Mo/s. En effet à raison de deux octets par échantillon de mesure, la quantité de mémoire circulant sur le bus PCI serait de 160Mo en une seconde. Pour ces raisons, la fréquence d'échantillonnage permise sera limitée à 10 MHz. La carte PCI 9812 dispose également d'options qui seront utilisées pour la synchronisation des mesures LIF et PDA. L'horloge qui cadence les convertisseurs peut être substituée par une horloge externe sinusoïdale ou TTL : de plus, l'acquisition peut être lancée par un changement d'état sur l'entrée trigger de la carte.

Un schéma récapitulatif de la chaîne de mesure de fluorescence induite par laser multibande est présenté figure 4.20.

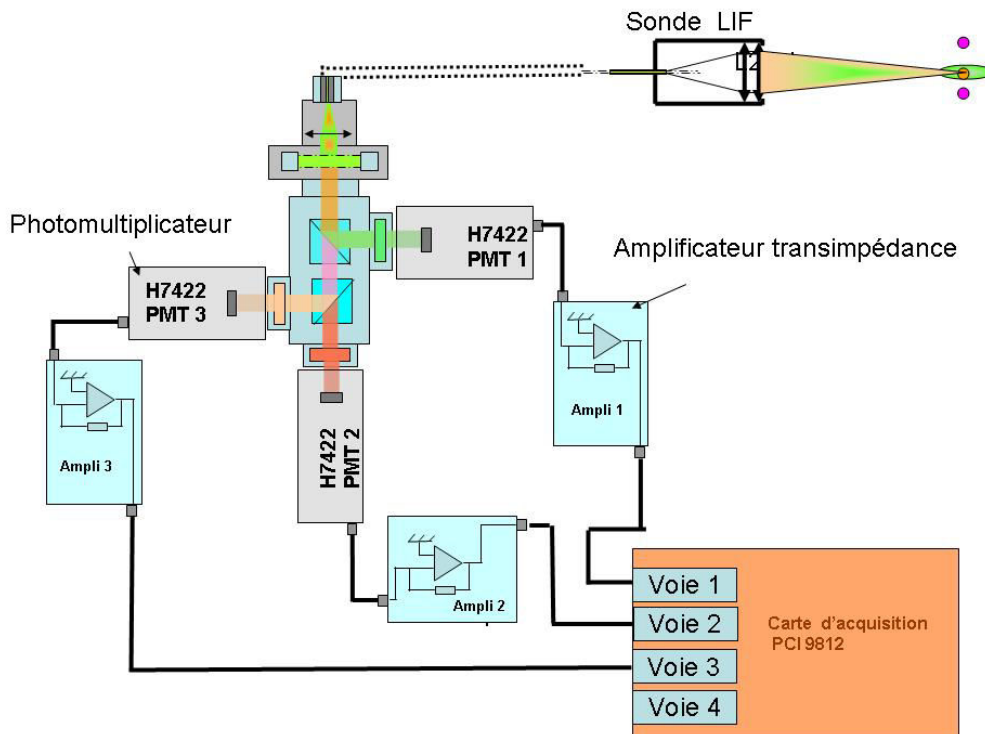


Figure 4.20 : Chaîne de mesure de la fluorescence induite par laser multibande.



## 4.3 Caractéristique de la chaîne de mesure

### 4.3.1 Mesure du signal de fluorescence en milieu monophasique

L'objectif est de tester la chaîne de mesure sur les trois bandes spectrales de détection sélectionnées. Nous examinerons le bruit dans le noir, la convergence statistique des signaux de fluorescence sur chacune des voies de mesure ainsi que celle du rapport de fluorescence. Il est important d'effectuer cette étude pour des paramètres réalistes de la chaîne de mesure, tels que par exemple les hautes tensions appliquées aux photomultiplicateurs. Pour cela ces hautes tensions seront réglées à un niveau permettant une détection et un niveau de signal correct sur les trois bandes spectrales. Ces paramètres seront réglés pour la sulforhodamine B en solution dans l'eau, pour une concentration  $C=5.10^{-6}$  mol/l. La solution est placée dans une cuve parallélépipédique maintenue en température et la chaîne de mesure précédemment décrite est utilisée.

Ainsi, les hautes tensions affectées à chaque photomultiplicateur, exprimées en % de la haute tension maximum sont répertoriées dans le tableau qui suit.

Voie 1	55 %
Voie 2	35 %
Voie 3	43 %

Tableau 4.2 :Hautes tensions

- **Bruit dans le noir**

Une mesure du bruit dans le noir est réalisée lorsque le laser est coupé et la pièce obscurcie. La figure 4.21 présente l'enregistrement temporel du bruit sur 500 échantillons, soit 50  $\mu$ s compte-tenu de la fréquence d'échantillonnage de 10 MHz, pour les voies 1 et 2 uniquement. Le bruit moyen calculé sur chacune des voies a également été reporté. On peut noter que le bruit moyen qui est calculé en sommant les intensités et en divisant cette somme par le nombre d'échantillons se situe à environ 50 niveaux par rapport aux 4095 niveaux sur lesquels il est possible de digitaliser les signaux.

Sur l'enregistrement temporel, on peut constater la présence d'une oscillation périodique dont la fréquence est de l'ordre de 330kHz sur les bruits mesurés. Ce signal parasite dont l'amplitude est de l'ordre de environ 90 niveaux sur la voie 1 et de 30 niveaux sur la voie 2 provient de l'alimentation haute tension à découpage des photomultiplicateurs. La haute tension appliquée sur la voie 1 étant plus importante, le signal parasite est donc davantage amplifié sur celle-ci.

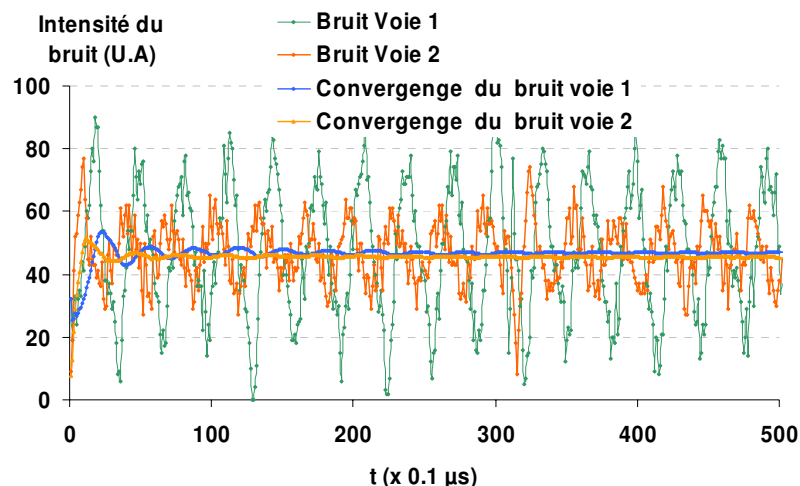


Figure 4.21 : Signal temporel correspondant au bruit de fond.

• **Intensités de fluorescence**

Dans les milieux monophasiques, le fluideensemencé en traceur fluorescent occupe la totalité du volume de mesure. Si la concentration en traceur est maintenue constante, l'émission de fluorescence sera en principe continue dans le temps. Ainsi, les intensités de fluorescence mesurées devraient se caractériser par un signal continu. Cependant, l'arrivée des photons de fluorescence sur les détecteurs correspond à un ensemble d'événements indépendants et équiprobables, obéissant à une statistique poissonnienne (Gaskey et al., 1990). Ainsi, afin d'obtenir des valeurs moyennes des intensités statistiquement convergées, il faudra accumuler un certain nombre d'événements, d'autant plus grand que le flux photonique est faible. On peut en particulier noter que le flux provenant de la voie 1 est nettement plus faible que celui provenant des voies 2 ou 3. L'obtention de la convergence statistique sur cette voie sera donc d'autant plus critique. De plus, le faible niveau de signal oblige à travailler à un fort niveau de haute tension PM afin d'améliorer la détectivité mais au détriment du rapport signal/bruit. L'analyse a essentiellement porté sur les voies 1 et 2 sur 15000 échantillons, soit un temps de 1,5 ms. L'analyse des deux premiers moments statistiques (moyenne et écart type) des 15000 échantillons confirme les affirmations précédentes :

$$\begin{aligned} \bar{I}_1 &= 633 \\ \bar{I}_2 &= 1736 \\ \sigma_1 &= \sqrt{\bar{I}_1} = 190 \\ \sigma_2 &= \sqrt{\bar{I}_2} = 71 \end{aligned}$$

On peut également observer la distribution des intensités instantanées en fonction du niveau des intensités sur les voies 1 et 2 (figure 4.22). Ces distributions sont quasi-gaussiennes.

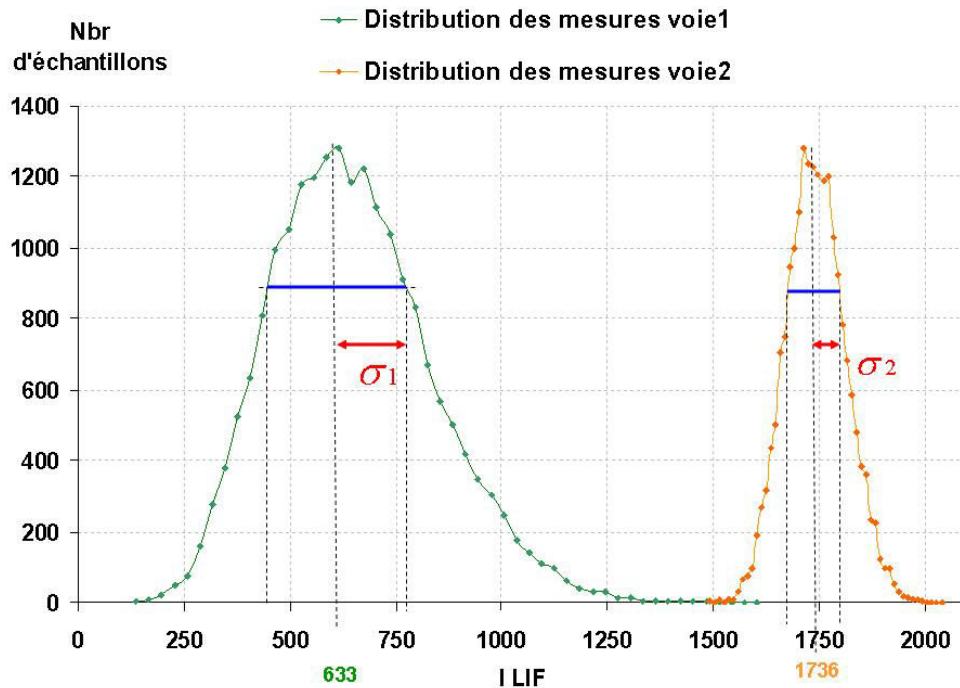


Figure 4.22 Distribution des intensités instantanées de fluorescence.



Notons que les valeurs moyennes  $\bar{I}_1$  et  $\bar{I}_2$  ont été déterminées sur un très grand nombre d'échantillons. La figure 4.23 présente un enregistrement temporel de 15 ms des signaux de fluorescence sur les voies 1 et 2. La moyenne glissante  $\mu(t_i)$  au temps  $t_i$  correspondant au  $i^{\text{ème}}$  échantillon a été superposée :

$$\mu(t_i) = \frac{\sum_{j=1}^i I(t_j)}{i} \quad (4.6)$$

De plus, l'écart entre la moyenne glissante au  $i^{\text{ème}}$  échantillon et la valeur moyenne  $\bar{I}$ , calculée par la relation :

$$Ecart(\%) = \frac{\mu(t_i) - \bar{I}}{\bar{I}} \cdot 100 \quad (4.7)$$

a été ajouté sur le second axe de la figure 4.23.

On peut constater un bruit de photon, combiné au bruit de détection plus important sur la voie 1 que la voie 2. En effet, le faible niveau de signal recueilli sur la bande spectrale de la voie 1 impose une haute tension plus importante sur cette voie et donc un bruit de détection plus important. Cependant, les intensités de fluorescence convergent très rapidement vers la moyenne, l'écart entre la valeur moyenne (calculée sur 1,5 ms) et la valeur moyenne étant de 0,2%.

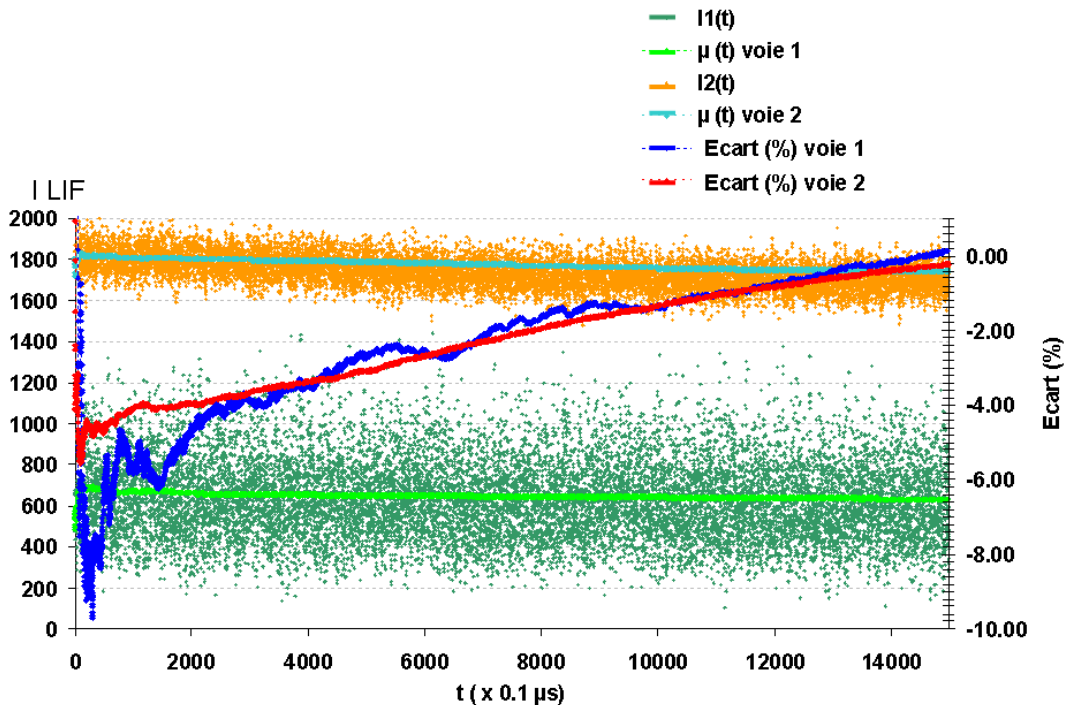


Figure 4.23 : Convergence des signaux de fluorescence (voies 1 et 2)

De même, le rapport des intensités de fluorescence au  $i^{\text{ème}}$  échantillon a été évalué de la manière suivante :

$$R_{12i} = \frac{\sum_{j=1}^i I_{1i}}{\sum_{j=1}^i I_{2i}} \quad (4.8)$$

L'évolution de ce rapport en fonction du nombre d'échantillons utilisé dans les moyennes est représentée figure 4.24 . On peut constater que l'écart de ce rapport avec celui calculé sur un très grand nombre d'échantillon devient très faible à partir de 1 ms (10000 échantillons).

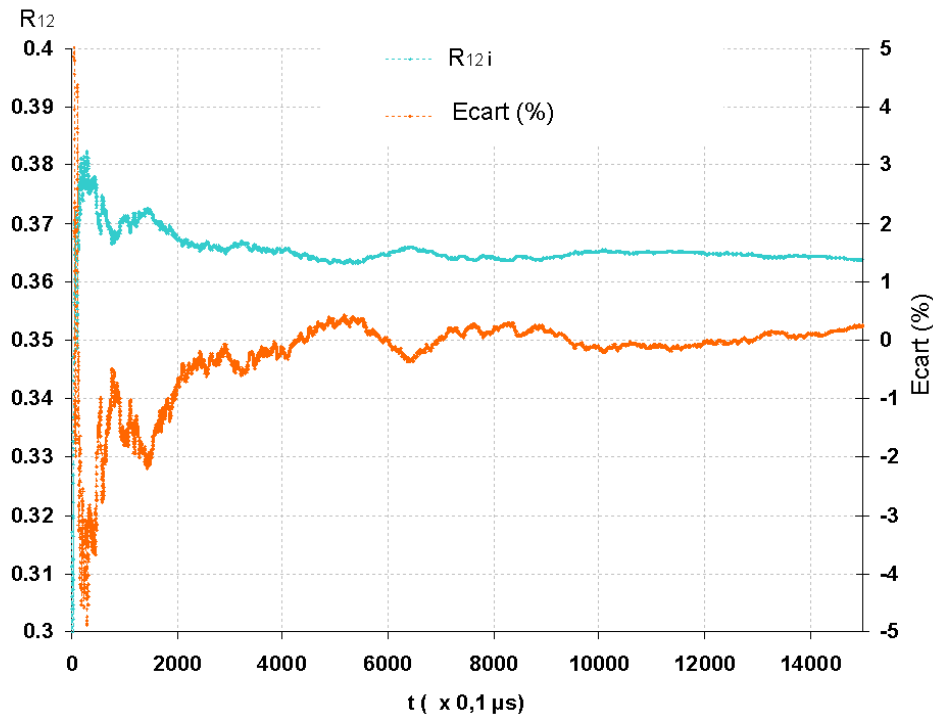


Figure 4.24 : Evolution du rapport de fluorescence en fonction du nombre d'échantillons.

## 4.3.2 Mesure du signal de fluorescence issu de gouttes

### 4.3.2.1 Remarques liminaires

Dans un premier temps, afin d'analyser la structure du signal de fluorescence issu de gouttelettes, un jet de gouttes monodisperse a été utilisé. L'orientation du jet peut être ajustée afin de centrer la trajectoire rectiligne des gouttes sur le centre du volume d'excitation laser.

Le signal de fluorescence résultant du passage d'une goutte dans le volume de mesure se présente sous la forme d'une courbe en cloche (figure 4.25). A l'instant où la goutte est parfaitement centrée dans le volume d'excitation laser, le signal de fluorescence est maximum.

Le temps de transit  $T_{tr}$  à travers le volume de mesure d'une gouttelette de diamètre  $D$  se déplaçant à la vitesse  $V$  est défini comme le temps durant lequel la goutte interagit avec le volume d'excitation laser :

$$T_{tr} = (D + dz) / V \quad (4.3)$$

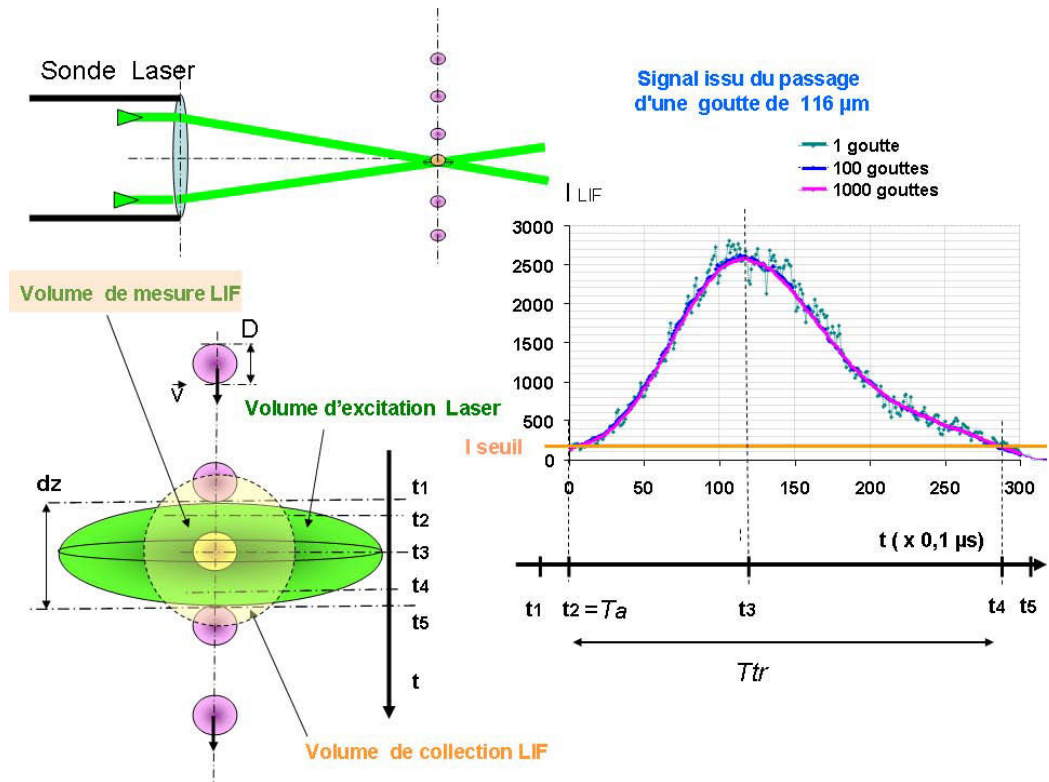


Figure 4.25 : Passage d'une goutte sphérique centrée dans le volume d'excitation laser, définition du temps de transit.

L'instant où la goutte pénètre la zone d'excitation laser sera appelé le temps d'arrivée  $T_a$  de la goutte, et l'intervalle de temps pendant lequel la goutte est présente dans le volume de mesure sera nommé le temps de transit.

#### 4.3.2.2 Signaux de fluorescence issus d'une goutte

Un jet de gouttes (diamètre : 116  $\mu\text{m}$ ) monodisperse a été utilisé. Les signaux de fluorescence sont échantillonnés à 10 MHz sur les voies 1 et 2. Un enregistrement temporel du signal sur 6000 échantillons (0,6 ms) est présenté figure 4.26. La structure du signal correspond au passage alterné des gouttelettes. Plusieurs options de traitement se présentent :

1- Un traitement analogue aux milieux monophasiques, qui consisterait à sommer les intensités de fluorescence sur chacune des voies de mesures. Après soustraction du bruit moyen sur chacune des bandes spectrales, le rapport des intensités serait calculé. Cette solution, particulièrement simple ne sera pas retenue, car elle ne permet pas de conserver l'information propre à chaque gouttelette traversant le volume de mesure.

2- Le signal utile correspondant à chaque goutte peut être extrait et conservé. Cette dernière solution a été retenue. De plus, cela permet de ne garder en mémoire que le signal utile et d'éviter un grand nombre d'échantillons qui correspondraient à des instants où il n'y a aucune goutte dans le volume de mesure.

La détection des gouttes est effectuée à partir d'une valeur de seuil appliquée sur la voie 2 de mesure (figure 4.27), celle-ci présentant le meilleur rapport signal/bruit. Cette valeur seuil est fixée par l'utilisateur au dessus du niveau de bruit moyen. Ensuite, le traitement consiste à sommer tout les échantillons dont la valeur est supérieure au seuil. Cette valeur somme sur une goutte sera appelée 'intégration' (figure 4.27).

Ainsi pour chaque goutte traversant le volume de mesure, une intensité  $I_{1g}$  et  $I_{2g}$  est calculée :

$$I_{1g} = \sum_{i=1}^k I_{1i} \quad (4.9)$$

$$I_{2g} = \sum_{i=1}^k I_{2i} \quad (4.10)$$

avec :

$I_{1i}$ : intensité instantanée sur la voie 1 pour le  $i^{\text{ème}}$  échantillon de la goutte traversant le volume de mesure,

$I_{2i}$ : intensité instantanée sur la voie 2 pour le  $i^{\text{ème}}$  échantillon de la goutte traversant le volume de mesure,

$k$ : nombre d'échantillons pour la goutte traversant le volume de mesure.

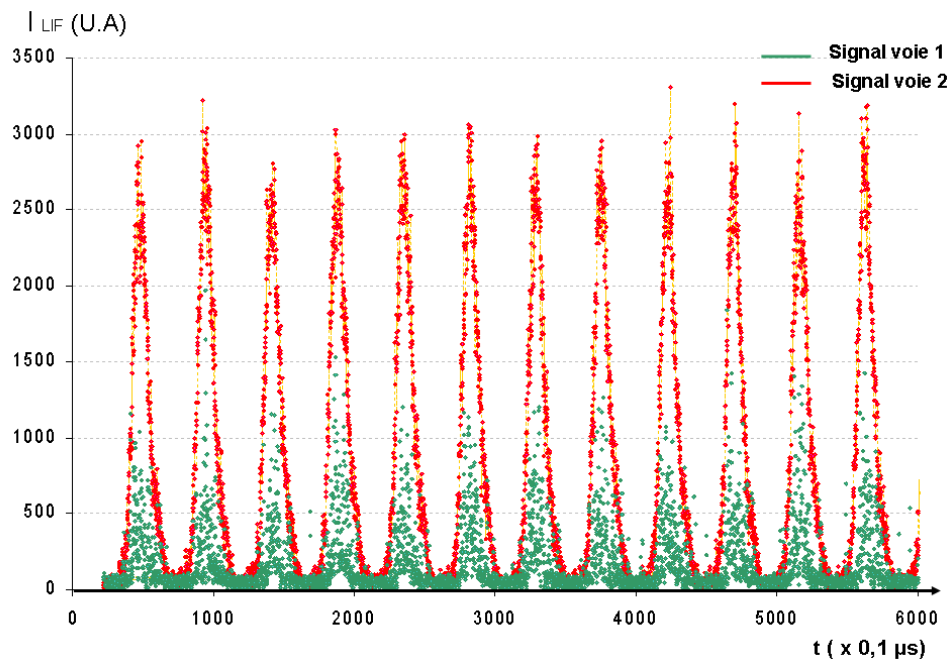


Figure 4.26: signaux de fluorescence issus de gouttelettes monodisperses (diamètre 116 µm).

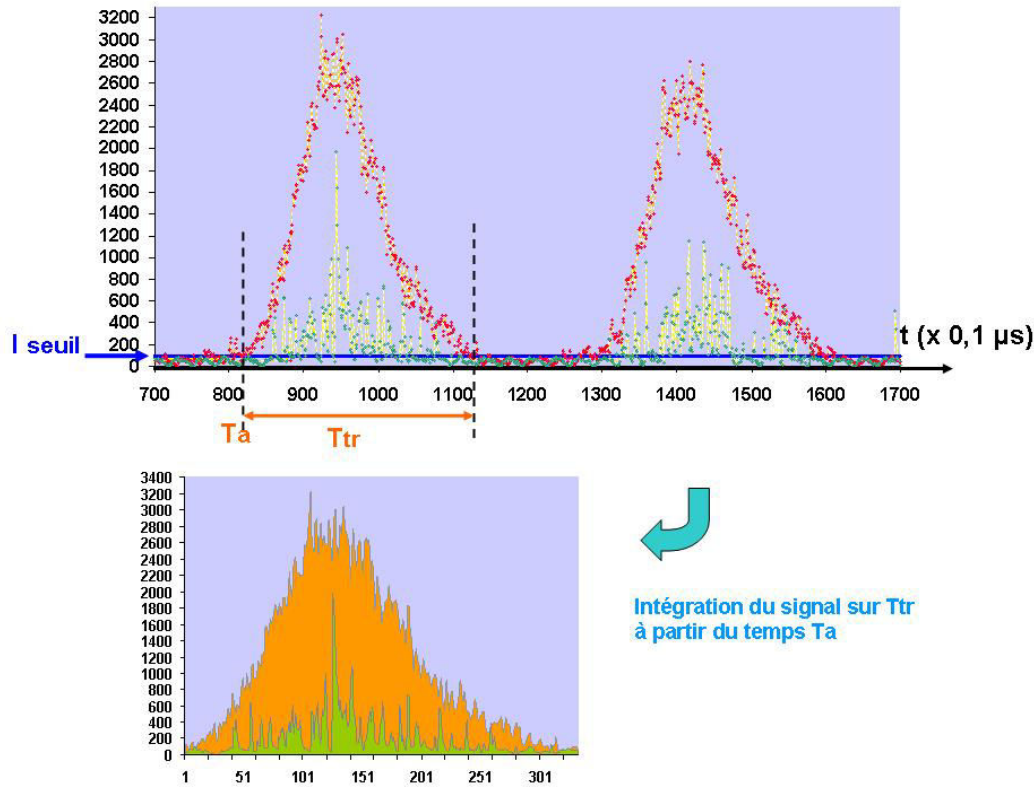


Figure 4.27 : exemple de seuillage sur la voie 2 et intégration du signal sur le passage d'une goutte

Ainsi, pour chaque goutte traversant le volume de mesure, les données suivantes sont conservées en mémoire :

- $T_a$ : temps d'arrivée de la goutte
- $T_{tr}$ : temps de transit de la goutte
- $I_{1g}$ : intégration du signal voie 1
- $I_{2g}$ : intégration du signal voie 2

Afin d'améliorer la convergence statistique du signal, une valeur moyenne des intensités de fluorescence correspondant au passage de  $n$  gouttes à travers le volume de mesure est calculée. Ensuite, le bruit moyen ('Bruit') correspondant à chacune des voies est retranché :

$$I_1 = \frac{\sum_{j=1}^n I_{g1j}}{\sum_{j=1}^n T_{trj}} - \text{Bruit}_1 \quad \text{et} \quad I_2 = \frac{\sum_{j=1}^n I_{g2j}}{\sum_{j=1}^n T_{trj}} - \text{Bruit}_2 \quad (4.11)$$

Le rapport de fluorescence  $R_{12}$  s'obtient ensuite par  $R_{12} = I_1 / I_2$ .

### 4.3.2.3 Convergence statistique des signaux

La convergence statistique des signaux de fluorescence issus de gouttes a également été considérée. La question est de connaître le nombre de gouttes nécessaire pour obtenir une convergence statistique satisfaisante des intensités de fluorescence et du rapport de fluorescence.

Toujours dans le même cas (gouttes monodispersées de diamètre 116  $\mu\text{m}$ ), une moyenne glissante des intégrations sur chacune des deux voies de mesure a été réalisée (figure 4.28).

Sur la figure 4.28, sont également portés le nombre d'échantillons et les écarts (%) entre la moyenne glissante et une valeur moyenne calculée sur un très grand nombre d'échantillons. Nous constatons que les intensités de fluorescence convergent à mieux de 0,2 % pour un nombre d'échantillons de l'ordre de 500000, alors qu'il n'était de 15000 pour la mesure dans un milieu monophasique. Ce phénomène tient évidemment à la nature discrète du signal, de nombreux échantillons étant proches ou égaux au bruit ne contribuant pas à la convergence. La figure 4.29 permet de se faire une idée de la distribution des gouttes en fonction des intégrations sur les voies 1 et 2 ; ce calcul a été mené sur 8000 gouttes. Comme attendu, les niveaux d'intégration sont faibles sur la voie 1. De plus, la distribution des intégrations sur chacune des voies semble gaussienne. Une analyse similaire a été réalisée pour le rapport de fluorescence (figure 4.30): une moyenne glissante pour  $n$  gouttes prises en compte a été réalisée et comparée à une moyenne réalisée sur un très grand nombre d'échantillons. Environ 1500 gouttes (50000 échantillons) sont nécessaires pour obtenir une convergence acceptable du rapport de fluorescence. Ceci semble comparable au résultat trouvé par les intensités individuelles sur chacune des voies. En effet, le fait de calculer un rapport permet d'éviter une dérive éventuelle du centrage des gouttes dans le volume de mesure. La convergence sur le rapport est donc qualitativement comparable à celle sur les intensités.

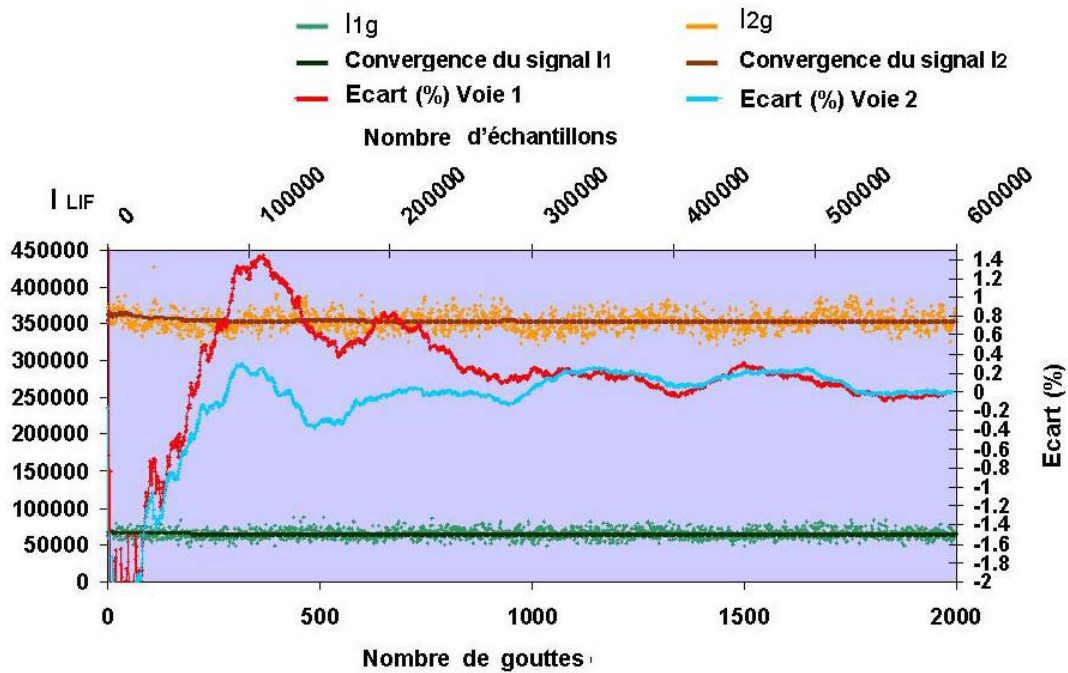
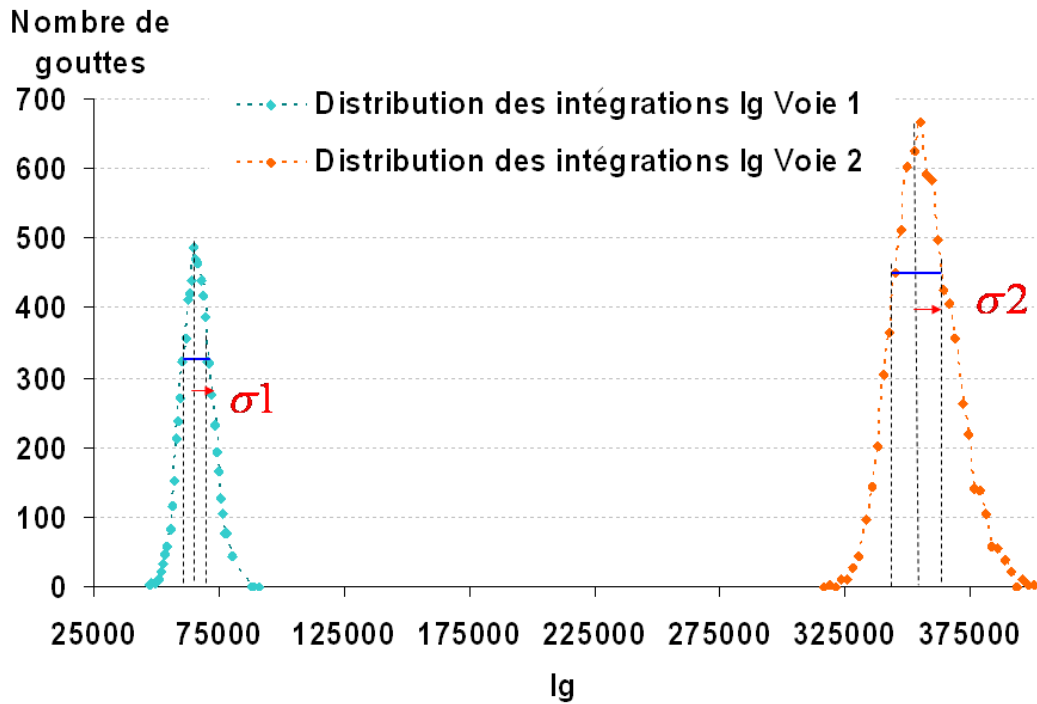


Figure 4.28 : Convergence des intensités de fluorescence en fonction du nombre de gouttes et du nombre d'échantillons pris en compte.





$$\overline{I_{1g}} = 65187$$

$$\overline{I_{2g}} = 353199$$

$$\sigma_1 = \sqrt{I_{1g}^2} = 6079$$

$$\sigma_2 = \sqrt{I_{2g}^2} = 12380$$

Figure 4.29 : Distribution des gouttes en fonction des intégrations sur les voies de mesure 1 et 2.

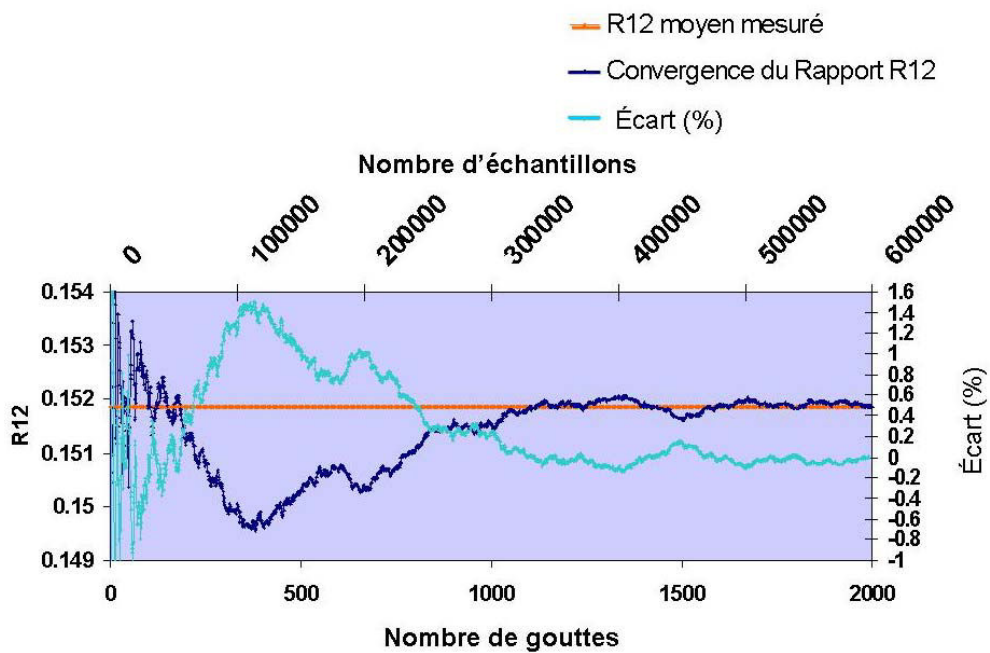


Figure 4.30 Convergence du rapport  $R_{12}$  en fonction du nombre de gouttes et du nombre d'échantillons pris en compte.

### 4.3.3 Evolution du signal de fluorescence émis par une goutte en fonction du diamètre de la goutte : conséquences métrologiques

La dynamique de la réponse du signal de fluorescence au passage d'une gouttelette est théoriquement volumique pour une température donnée. Ainsi, en principe, lorsque l'on multiplie le diamètre de la goutte par 2, l'énergie émise par fluorescence est multipliée par 8. On parle d'une dynamique en  $D^3$ . Cependant, en régime linéaire, l'émission fluorescente est également proportionnelle à l'intensité locale excitatrice. Or le champ d'excitation interne de la goutte résulte de l'interaction d'un faisceau laser gaussien focalisé et d'une particule sphérique. Ce champ peut être calculé en tout point de la goutte par la Théorie Généralisée de Lorentz-Mie (TLMG), développée initialement au CORIA, à Rouen (Gouebest et Grehan, 2000 ; Mees et al., 2001).

#### 4.3.3.1 Détermination du champ interne d'une goutte par la TLMG

L'hypothèse de base du modèle de fluorescence repose sur une proportionnalité entre le champ excitateur local et l'émission locale de fluorescence. La densité locale d'énergie excitatrice interne  $\omega(x, y, z)$  pour une goutte sphérique excitée par un faisceau laser Gaussien peut être calculée en tout point  $(x, y, z)$  de la goutte à l'aide de la TLMG. Pour cela, nous avons utilisé le logiciel développé par le CORIA, spécifiquement adapté pour la configuration de deux faisceaux croisés. Le champ excitateur interne sera calculé lorsque la goutte est centrée dans le volume d'excitation laser.

Les paramètres de calcul correspondent à la configuration des faisceaux laser utilisés expérimentalement déjà décrite précédemment :

- $\lambda=514,5$  nm
- Diamètre des faisceaux au col : 150  $\mu\text{m}$
- Demi-angle de croisement des faisceaux :  $\theta=5,53^\circ$
- Nombre de mailles de calcul dans chacune des directions  $x$ ,  $y$  et  $z$  : 100
- Indice de réfraction de l'eau  $n=1,335$

Le champ d'excitation interne au sein de la goutte  $\omega(x, y, z)$  a été calculé pour différents diamètres allant de 20  $\mu\text{m}$  à 240  $\mu\text{m}$ . En conservant l'hypothèse que l'intensité de fluorescence est proportionnelle au champ d'excitation interne, l'intensité de fluorescence  $I_i$  sera proportionnelle à la somme des contributions locales du champ excitateur :

$$I_i \propto \int_V \omega(x, y, z) dx dy dz$$

où  $V$  désigne le volume de la goutte.

Ce calcul reste bien évidemment valable tant que le diamètre de la goutte reste inférieur au diamètre des faisceaux laser au col. Les calculs effectués sont reportés sur la figure 4.31 en fonction du diamètre de la goutte et comparés à une dynamique en  $D^3$ . L'évolution de l'intensité émise par une goutte s'écarte assez rapidement d'une évolution en  $D^3$ , ceci du fait de la distribution gaussienne de l'énergie dans le faisceau laser. Il apparaît que la dynamique observée semble plus proche d'une évolution en  $D^{2,75}$ . La dépendance de l'émission de fluorescence d'une goutte sera représentée par une fonction empirique  $I = \xi(D)$  ( $I \approx D^{2,75}$ ).



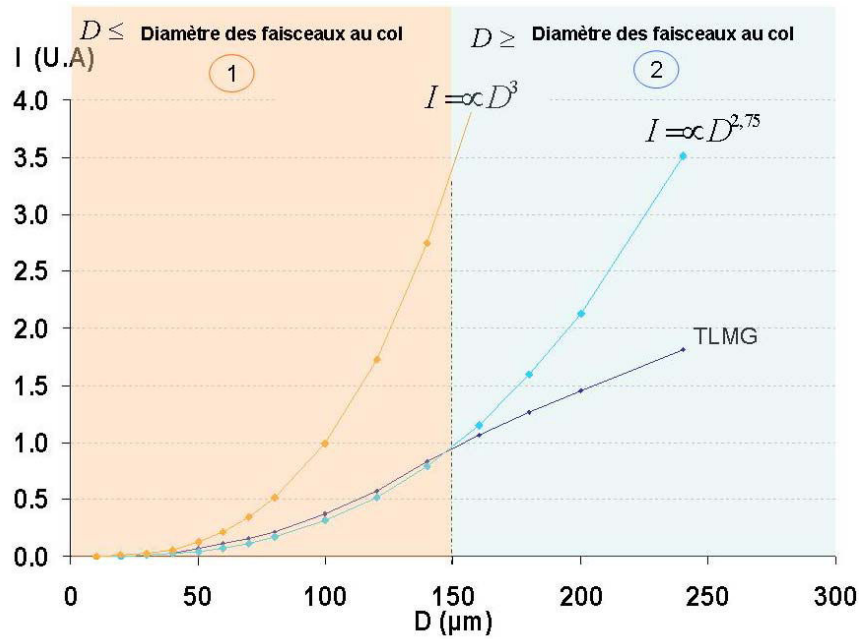


Figure 4.31 : Evolution de l'énergie émise par fluorescence d'une goutte en fonction de son diamètre, calculée par la TLMG. Comparaison avec une dynamique en  $D^3$

1)  $D \leq$  Diamètre des faisceaux au col :

*La dynamique suit une loi puissance  $I \approx D^{2.75}$ .*

2)  $D \geq$  Diamètre des faisceaux au col :

*La dynamique ne suit plus une loi puissance puisqu'une partie du volume de la goutte est en dehors du volume d'excitation laser.*

#### 4.3.3.2 Etude expérimentale pour différentes tailles de goutte

Les calculs précédents effectués par la TLMG ont été comparés à une étude expérimentale sur des gouttes calibrées obtenues à l'aide de l'injecteur monodisperse. Différentes tailles de gouttes comprises entre 65 $\mu\text{m}$  et 135  $\mu\text{m}$ , de taille inférieure au diamètre des faisceaux laser au col seront considérées. Pour les différentes tailles de gouttes envisagées, les hautes tensions des photomultiplicateurs seront conservées à une valeur fixe afin de ne pas modifier les constantes optiques ; en revanche, la puissance laser incidente sera ajustée de manière à adapter le niveau de signal de fluorescence détecté en fonction de la taille de la goutte. En parallèle la puissance laser incidente a été mesurée à l'aide d'un wattmètre. Le signal d'intensité de fluorescence a été moyenné 1000 gouttes, de manière à suivre l'évolution temporelle de la traversée du volume d'excitation laser par la goutte. Un exemple d'un tel traitement sur les trois voies de mesure est donné figure 4.32. On peut notamment y observer les signaux acquis sur le passage d'une goutte unique et le résultat de la moyenne correspondant au passage de 1000 gouttes. L'instant  $t=0$ , correspond au premier point à partir duquel, le signal de la voie 2 a dépassé le seuil de détection (fixé à 50 ici). Afin de rendre comparables les différentes mesures, celle-ci ont été normalisées par la puissance laser mesurée. Ce travail a été réalisé pour cinq diamètres de gouttes ( $D=65, 75, 79, 116$  et  $136 \mu\text{m}$ ). Pour chacun des diamètres, le maximum d'intensité de fluorescence a été relevé sur chacune des trois voies de mesure figures 4.33 (a, b, c d et e). Ces résultats sont répertoriés dans le tableau 4.3.

	D=65 $\mu\text{m}$	D=75 $\mu\text{m}$	D=79 $\mu\text{m}$	D=116 $\mu\text{m}$	D=136 $\mu\text{m}$
$I_{\text{max}}$ voie 1 (U.A.)	<b>190</b>	<b>209</b>	<b>193</b>	<b>460</b>	<b>525</b>
$I_{\text{max}}$ voie 2 (U.A.)	<b>834</b>	<b>1068</b>	<b>1252</b>	<b>3010</b>	<b>3959</b>
$I_{\text{max}}$ voie 3 (U.A.)	<b>359</b>	<b>404</b>	<b>414</b>	<b>994</b>	<b>1260</b>

Tableau 4.3 : maxima obtenus sur chaque voie de mesure (bruit retranché)

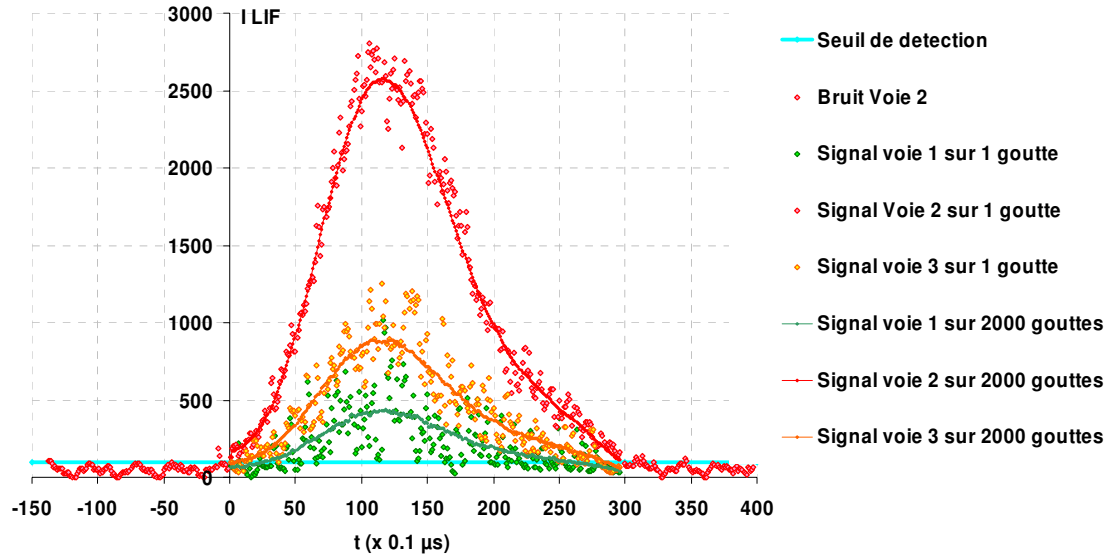


Figure 4.32 : Signal généré par le passage d'une goutte, puis moyenné sur le passage de 2000 gouttes.

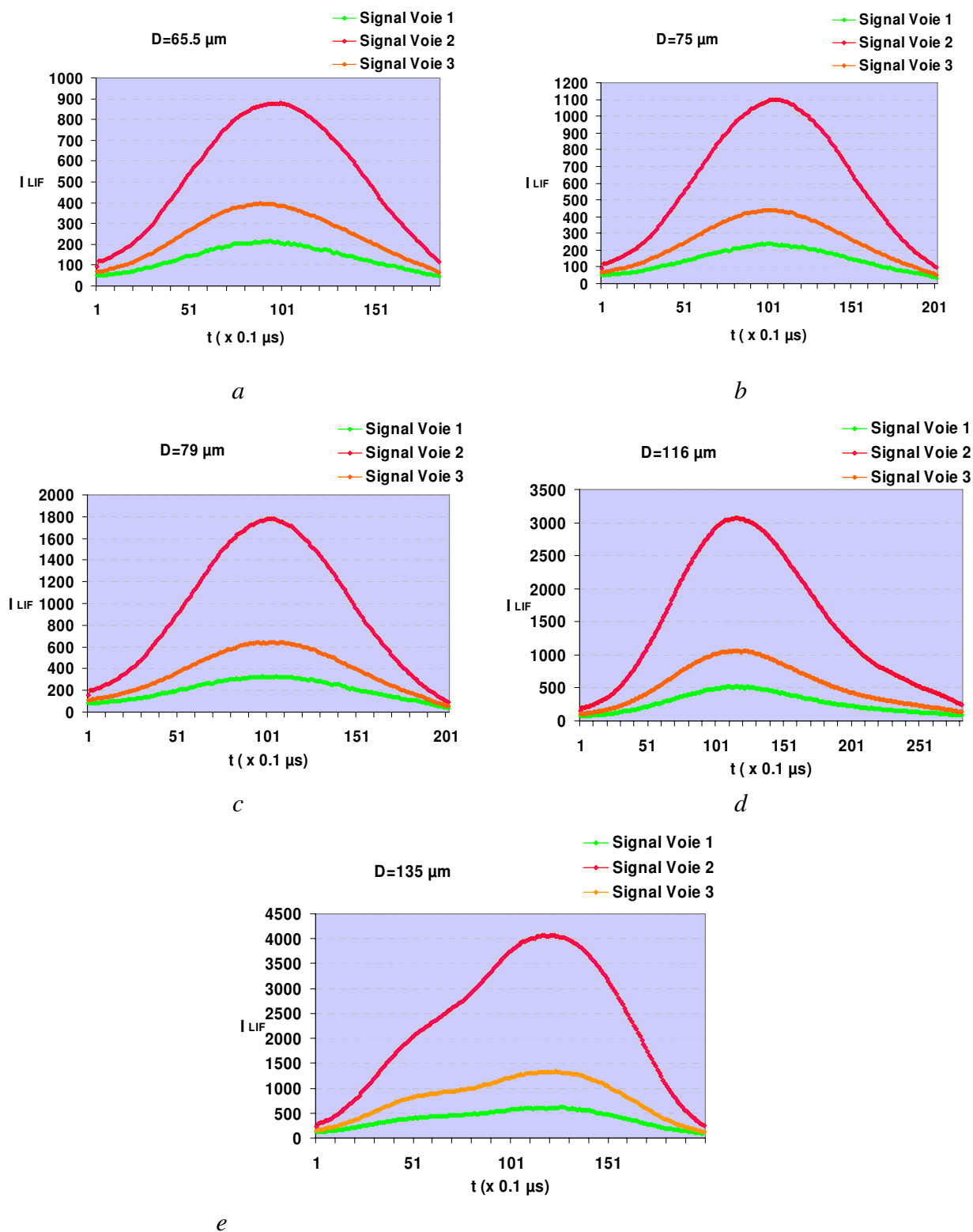


Figure 4.33 a, b, c, d, e : Evolution temporelle des intensités de fluorescence normalisées par la puissance laser sur les trois voies de mesure, résultant de la traversée du volume d'excitation laser par une goutte (moyenne de 2000 gouttes).

Afin de rendre la comparaison entre les calculs effectués par TLMG et les données expérimentales quantitatives, les calculs ont été recalés sur les intensités expérimentales obtenues pour la goutte de plus gros diamètre (136  $\mu\text{m}$ ) et ce pour chacune des voies de mesure. La figure 4.34 présente cette comparaison.

Nous pouvons constater un bon accord entre les calculs effectués par TLMG et les mesures expérimentales obtenues sur la deuxième voie de mesure. Un écart plus important peut être observé sur les voies 1 et 3, bien que la tendance soit globalement bien conservée. Afin de rendre cette comparaison plus objective, les écarts entre le calcul et la mesure ont été portés sur la figure 4.34. L'écart est calculé par la relation :

$$Ecart(\%) = \frac{(Calcul) - (Expé)}{(Calcul)} \cdot 100$$

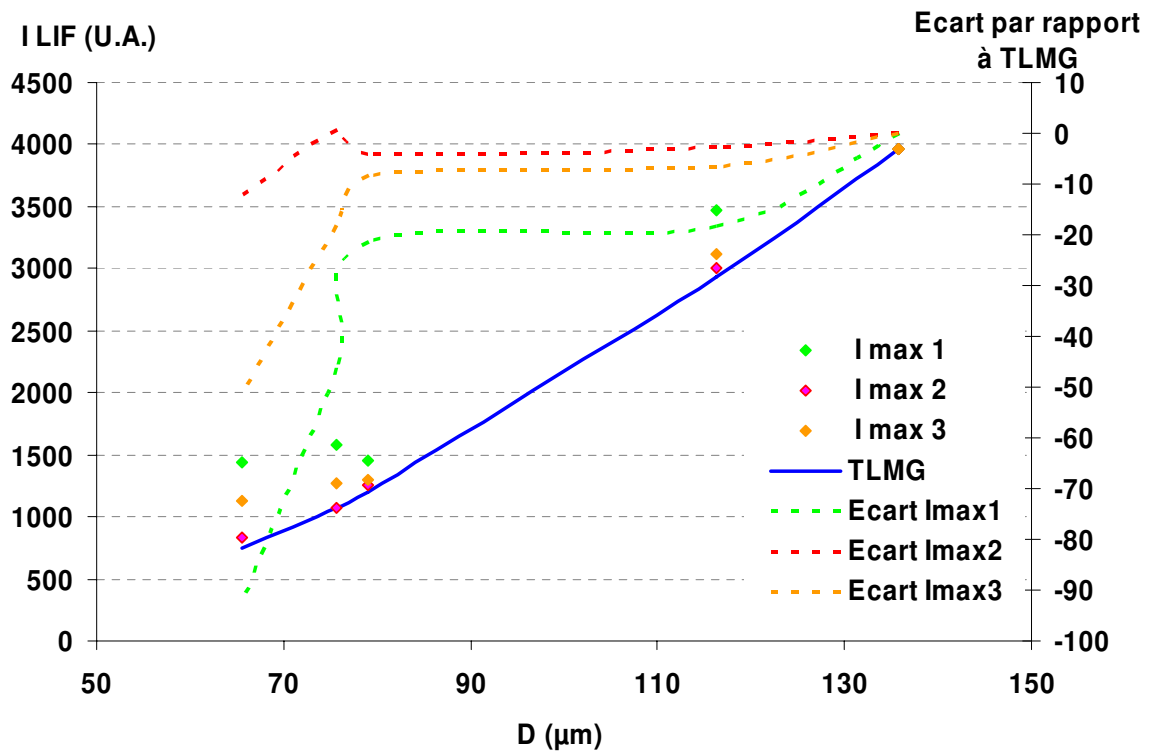


Figure 4.34 : Comparaison du maximum d'intensité de fluorescence mesuré au calcul obtenu à l'aide de la TLMG.

La figure 4.34 montre clairement que l'adéquation entre le calcul TLMG et l'intensité mesurée sur la bande 2 est très bonne, avec un écart inférieur à 5%, à l'exception de la plus petite taille de goutte où celui-ci avoisine 11%. Cet accord se dégrade significativement pour la bande spectrale 3 et l'écart devient maximum pour la première bande spectrale. Ainsi, pour les bandes 1 et 3, il n'est plus possible de supposer qu'il y a proportionnalité entre l'intensité d'excitation et l'intensité de fluorescence. Ce phénomène inattendu fera l'objet d'une étude ultérieure dans ce mémoire, mais préfigure des difficultés relatives à l'extension de la mesure par LIF deux couleurs en présence d'une forte polydispersion en taille de gouttes.

#### 4.3.3.3 Dynamique de la mesure par LIF en terme de taille de goutte

La dynamique de la mesure en terme de taille de goutte dépendra évidemment de la dynamique 'physique' traitée précédemment, mais également de celle du système de mesure.

Le système de mesure utilise un seuil de détection  $S$  choisi au dessus du bruit des systèmes de photodétection.

Les hautes tensions des systèmes de photodétection sont réglées de telle manière que les signaux les plus hauts en intensité, correspondant à ceux des plus grosses gouttes détectées, arrivent au maximum de l'intensité  $I_{max}$  pouvant être détectée sans saturation du dispositif (en l'occurrence 4096 niveau de quantifications). La dynamique de mesure en intensité du système sera donc donnée par  $I_{max}/S$ .

En terme de diamètre de goutte, on aura ainsi:  $I_{max} = \xi(D_{max})$  et  $S = \xi(D_{min})$ . La dynamique de mesure en terme de diamètre de goutte pourra être décrite par:

$$\frac{D_{max}}{D_{min}} = \xi^{-1}\left(\frac{I_{max}}{S}\right) \quad (4.12)$$

Dans le système de mesure actuelle,  $I_{max}=4096$  et la valeur  $S$  du seuil est fixée à 100. En utilisant l'approximation  $\xi \propto D^{2,75}$  (voie 2), la dynamique du système de mesure en terme de diamètre est de l'ordre de 3,85. Cette dynamique pourra être légèrement modifiée pour les voies de mesure 1 et 3, car les résultats expérimentaux s'écartent des calculs réalisés par la TLMG.

#### 4.3.4 Application aux sprays polydispersés en taille

Le processus de traitement du signal est tout à fait identique à celui décrit précédemment pour les gouttes monodispersées : détection des gouttes par seuillage, calcul des intégrations (Equations (4.9) et (4.10)) et des valeurs moyennes (Equation (4.11)).

##### 4.3.4.1 Conséquences de la polydispersion en taille et en vitesse

L'étude granulométrique précédemment réalisée à l'aide du PDA montre que le spray généré par l'injecteur Danfoss présente une polydispersion en taille s'étendant de quelques microns à environ 150  $\mu\text{m}$ . Les gouttes dont la taille est inférieure à 30  $\mu\text{m}$  sont majoritaires en nombre. Les distributions des vitesses mesurées dans les mêmes conditions montrent la présence de gouttes se déplaçant à des vitesses de l'ordre de 20 m/s lorsque la pression d'injection atteint 6.5 bar. Ainsi, il est possible de déterminer le plus petit temps de transit que l'on peut attendre, ce qui permettra de vérifier l'adéquation de la bande passante de la chaîne de mesure. Celle-ci est beaucoup moins contraignante que dans le cas de la détection de bouffées Doppler, où la modulation en fréquence à l'intérieur de la bouffée doit être suffisamment résolue. Pour une mesure de fluorescence, une bonne résolution spatiale de l'enveloppe de la bouffée est suffisante. Une évaluation du temps de transit minimum attendu a été réalisée à l'aide de la relation (4.3) avec les paramètres  $d_z=150 \mu\text{m}$ ,  $D=30 \mu\text{m}$  et  $V=20 \text{ m/s}$ , ce qui conduit à un temps de transit  $T_r=9 \mu\text{s}$ . Ce temps de transit est probablement surévalué car il ne tient pas compte de l'aspect gaussien de la distribution d'énergie dans volume d'excitation laser. De plus, cette estimation fait l'hypothèse que la goutte passe de manière centrée dans le volume de mesure, avec une trajectoire perpendiculaire au grand axe de l'ellipsoïde. Le temps de transit réel est donc certainement plus proche de la moitié de la valeur déterminée précédemment, soit  $T_r=4,5 \mu\text{s}$ . Le théorème de Nyquist-Shannon énonce que la fréquence d'échantillonnage d'un signal doit être égale ou supérieure au double de la fréquence maximale contenue dans ce signal, afin de convertir ce signal d'une forme analogique à une forme numérique, ce qui conduit à une fréquence de l'ordre de 400 kHz. Ainsi, les trois amplificateurs transimpédances ont été conçus pour disposer d'une bande passante fixée à 500 kHz afin de ne pas altérer le signal. La figure 4.34 donne une distribution des temps de transit

mesurés sur une population de 13000 gouttes, à  $z=15$  mm sur l'axe central du spray et à une pression d'injection de 6 bars.

Il apparaît qu'environ 30% des gouttes collectées présentent des temps de transit inférieur à  $2,5 \mu\text{s}$ . Il s'agit de gouttes dont seuls quelques échantillons sortent du bruit.

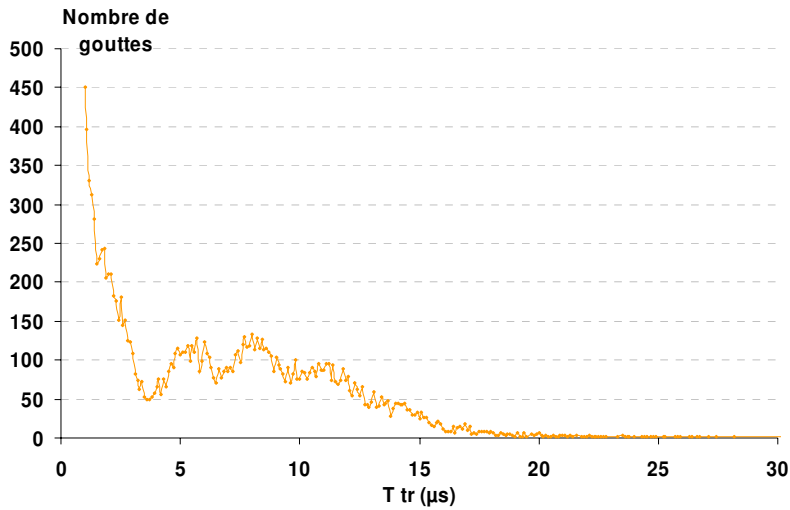


Figure 4.34 : Distribution des temps de transit sur 13000 gouttes dans le spray  $z=15$  mm, axe centrale,  $P=5$  bars.

Ainsi, comme le montre la figure 4.35, présentant un enregistrement temporel du signal sur une durée de 1 seconde, l'une des conséquences de la polydispersion en taille est un signal d'amplitude très variable, grossièrement proportionnel à  $D^3$ . Beaucoup de gouttes de faible taille, correspondant à de petits temps de transit, émergent à peine du bruit de fond peuvent être observées. Ceci est cohérent avec la distribution granulométrique du spray.

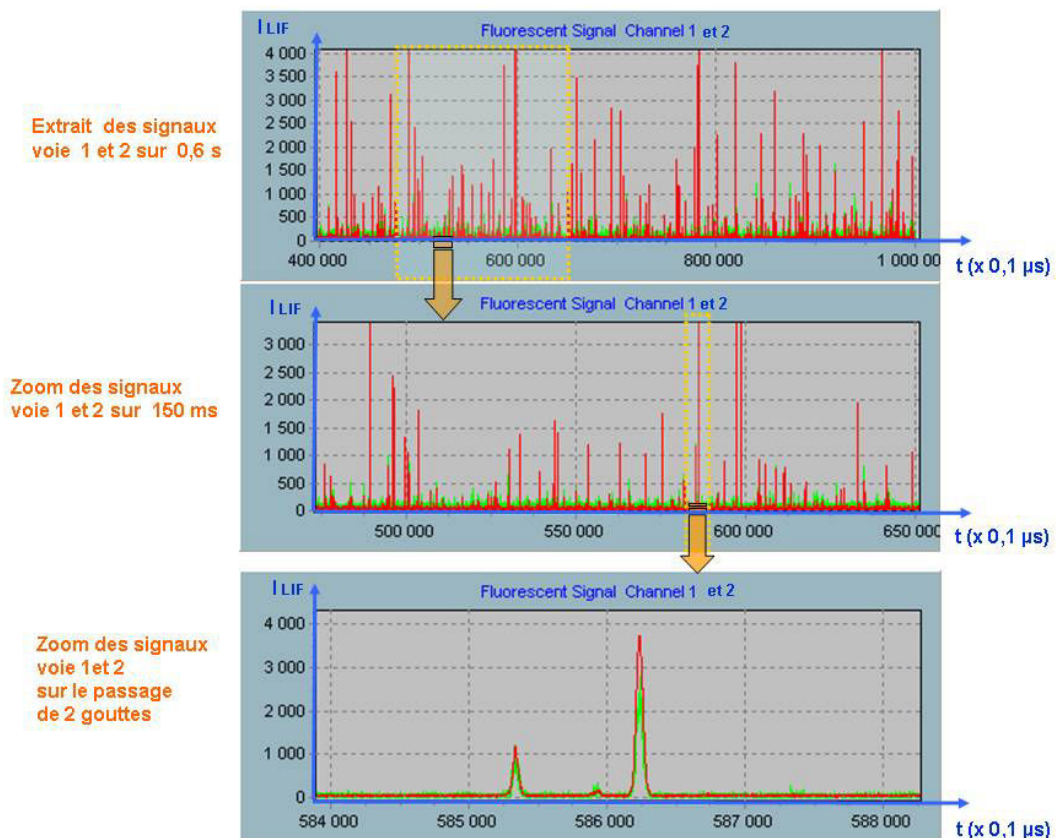


Figure 4.35 : Enregistrement temporel du signal de fluorescence dans le spray ( $z=15\text{mm}$ , axe centrale,  $P=5\text{bars}$ ).

#### 4.3.4.2 Exemple de traitement des gouttes et convergence statistique

Les intégrations correspondant à 15000 gouttes détectées ayant traversées le volume de mesure ont été calculées suivant les relations (4.9) et (4.10), puis représentées figure 4.36 pour le signal sur la voie 1 et figure 4.37 pour le signal sur la voie 2. La moyenne glissante calculée sur  $n$  gouttes a été superposée. On peut constater que celle-ci se stabilise à une valeur constante, ce qui indique bien un régime permanent pour le fonctionnement de l'atomiseur du point de vue de la distribution granulométrique. Chacune des intégrations étant quasi-proportionnelle au volume de la goutte, cette moyenne pourrait ainsi être directement reliée au débit liquide volumique de liquide en un point donné de l'espace. On constate aisément que la détection d'environ 500 gouttes est suffisante pour assurer la stabilisation de la valeur moyenne sur la voie 2, alors qu'un minimum de 2500 sera nécessaire pour assurer la convergence sur la voie 1. Ceci tient au fait que le niveau de signal sur la voie 1 est bien plus faible, si bien que de nombreuses gouttes apparaissent très proches du bruit de fond, ce qui conduit à une grande dispersion des intégrations et donc à un nombre nécessaire de gouttes beaucoup plus important.

L'histogramme des intégrations pour les voies 1 et 2 (figure 4.38) montre également une forte proportion de gouttes ayant une intégration faible, ce qui est cohérent avec la distribution granulométrique. Le rapport de fluorescence a été ensuite calculé à partir des moyennes des intensités calculées sur  $n$  gouttes (équation (4.11)). Une convergence correcte est obtenue pour environ 5000 gouttes, soit environ 30000 échantillons. L'écart à la moyenne par rapport à une mesure effectuée sur un très grand nombre d'échantillons est alors meilleur que 0,2%.

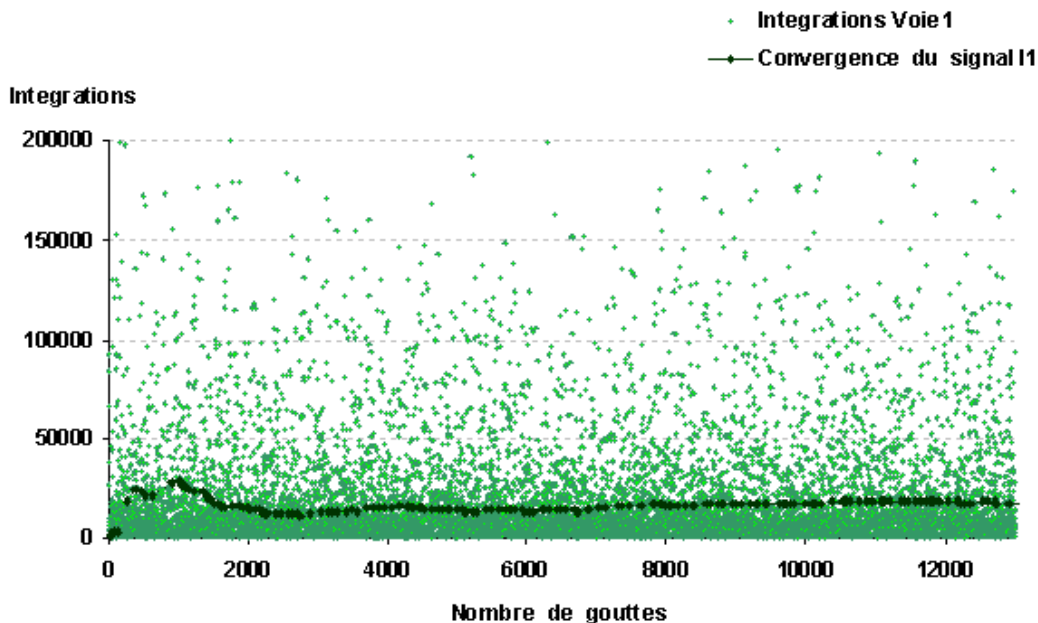


Figure 4.36 : Distribution des intégrations sur la voie 1 sur 15000 gouttes et établissement de la moyenne.



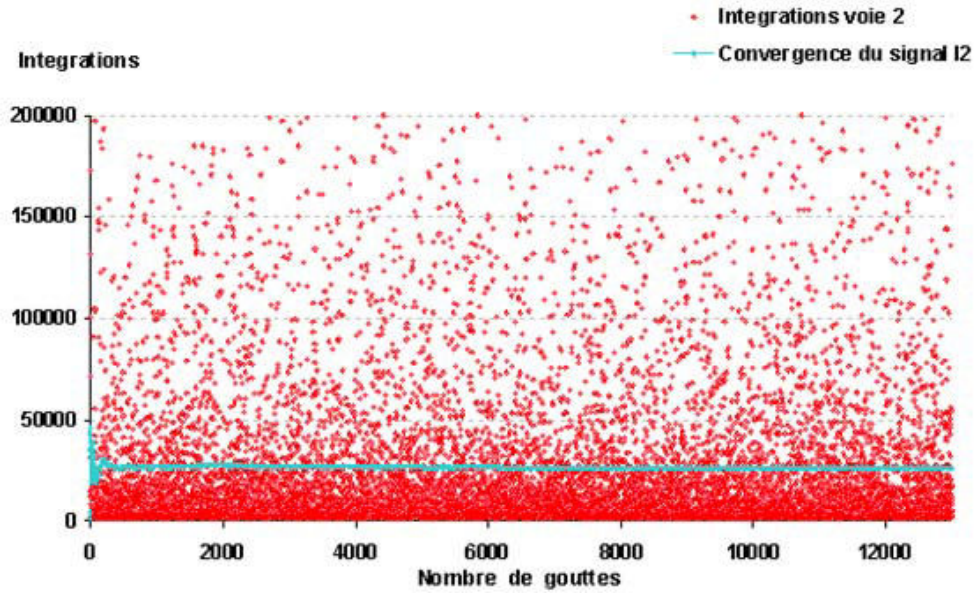


Figure 4.37 : Distribution des intégrations sur la voie 2 sur 15000 gouttes et établissement de la moyenne.

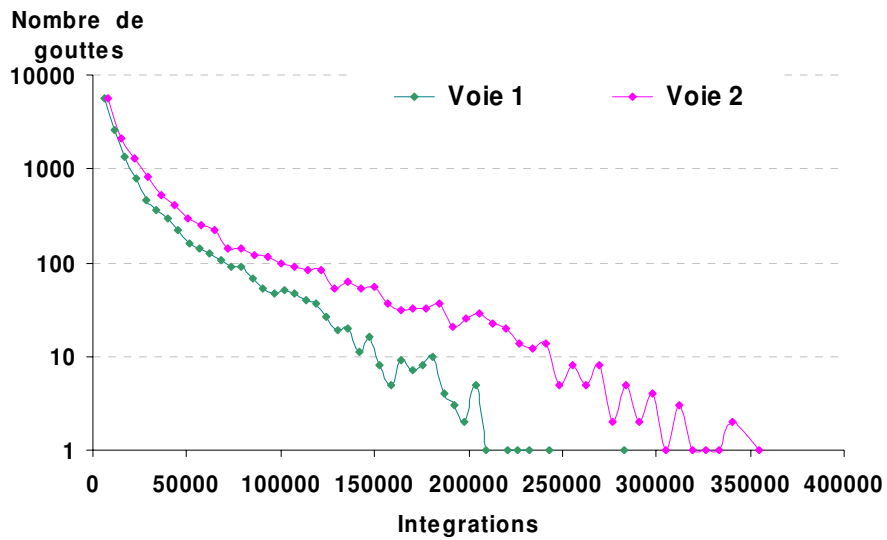


Figure 4.38 : Distribution du nombre de gouttes en fonction des intégrations.



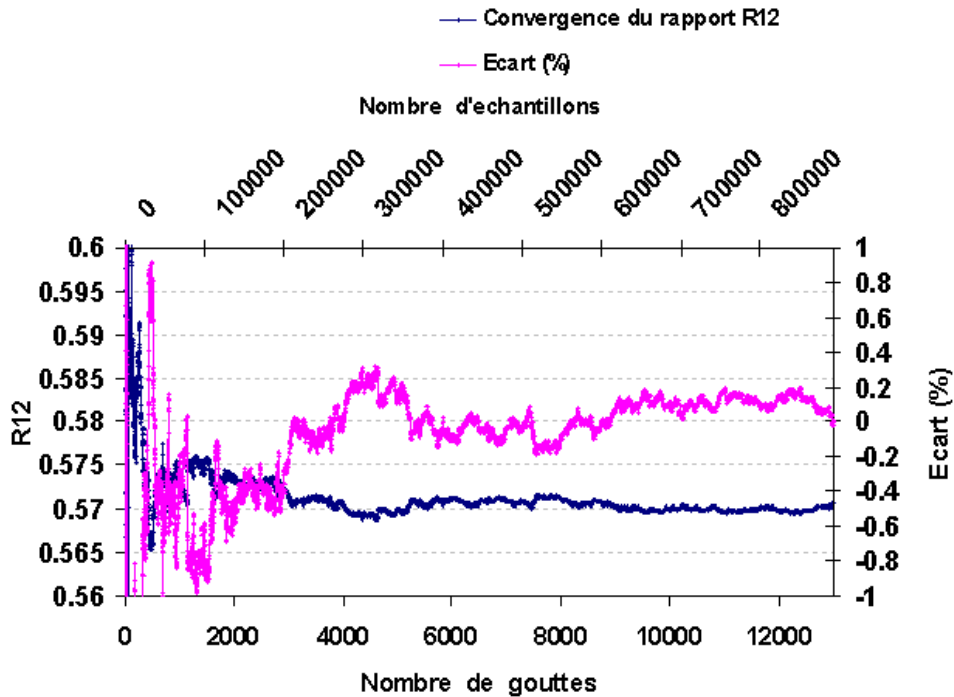


Figure 4.39 : Convergence statistique du rapport de fluorescence dans le spray

#### 4.3.4.3 Traitement des données dans le spray

- **Concepts généraux**

La qualité de la mesure et sa convergence statistique dépend du nombre de gouttes collectées. Le temps de mesure associé sera directement lié à la densité locale du spray et à la vitesse locale des gouttes. La fréquence d'échantillonnage étant de 10 MHz, ce qui permet de décrire de manière optimale l'enveloppe des bouffées représentant la traversée du volume de mesure par une goutte. A une telle fréquence, une minute d'acquisition représenterait 4.8 GO de mémoire, ce qui n'est pas envisageable. Nous n'avons pas choisi d'effectuer des mesures séquentielles sur des durées plus courtes dans le but de conserver une mesure absolue du temps d'arrivée de chaque goutte. L'intérêt d'un tel protocole est de pouvoir coupler temporellement la mesure associée à une goutte à une mesure externe d'un autre paramètre de cette goutte, par exemple sa taille mesurée à l'aide du PDA.

La technique d'acquisition retenue permet cette fonctionnalité, à condition de traiter le signal plus rapidement qu'il ne faut pour l'acquérir.

- **Réglages et mesures préliminaires**

Le logiciel développé en langage DELPHI permet d'effectuer un certain nombre de réglages préliminaires. La visualisation des signaux sur une durée de 250 ms lorsque la puissance laser est au maximum possible permet le réglage des hautes tensions des photomultiplicateurs sur les 3 voies de mesure. Ces tensions sont ajustées de manière à saturer les plus grosses gouttes (moins 5% du nombre total de gouttes). Les hautes tensions étant fixées, une mesure du bruit dans le noir est réalisée sur les trois voies de mesure.

- **Paramètres de détection des gouttes**

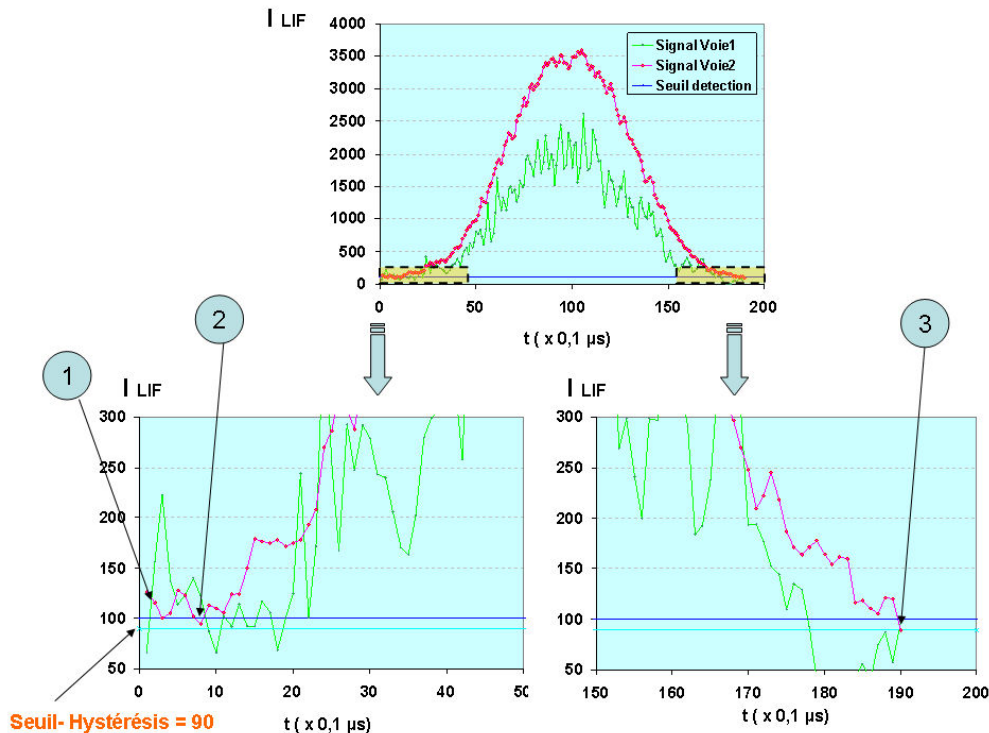
A partir de la visualisation des signaux de fluorescence, un seuil de détection sur la voie 2, choisi juste au dessus du bruit de fond moyen, est défini. Ce seuil est en général de l'ordre de 100 niveaux. Un second critère est ensuite appliqué sur les voies 2 et/ou 3 afin de s'assurer qu'il s'agit bien d'une goutte et non d'un pic parasite sur le photomultiplicateur, pouvant provenir par exemple de rayonnements électromagnétiques ionisants. Ainsi, il est vérifié que

le maximum d'intensité obtenu pour une goutte donnée sur une des deux autres voies de mesure, dépasse également un certain valeur seuil, fixée par l'utilisateur. La seconde raison de la présence de ce second critère de détection tient au fait que le niveau de signal sur la voie 1 est nettement plus faible que sur les autres voies; ainsi, il s'agira d'éviter qu'une goutte soit détectée sur une voie et ne le soit pas sur une autre.

Chaque goutte ayant rempli les critères précédents devra ensuite être décrite par un nombre minimum d'échantillons ; ce nombre, fixé par l'utilisateur est en général de 10.

Le bruit instantané sur chacune des voies de mesure présentant un caractère fortement aléatoire, de même que le signal de fluorescence, il est nécessaire de s'assurer de la continuité de la détection sur une goutte donnée. Ainsi, il est possible de fixer un paramètre qui permet de collecter le signal en dessous du seuil détection. Ce paramètre, appelé 'hystérésis' permet de fixer le niveau minimum d'intensité en dessous duquel la détection sera arrêtée. Empiriquement, ce paramètre est fixé à 10 ; ainsi, l'acquisition sur une goutte donnée cessera quand la valeur de l'intensité atteindra la valeur (Seuil détection – Hystérésis). Le mécanisme de l'hystérésis est illustré figure 4.40.

Il est également possible de paramétrer initialement une acquisition sur un temps donné ou sur un nombre de gouttes détectées donné.



**Figure 4.40 :** Illustration du fonctionnement du paramètre 'hystérésis'.

Commentaires sur la figure :

- 1) le signal de la voie 2 est au dessus du seuil de détection : début de l'intégration.
- 2) le signal de la voie 2 repasse à un niveau en dessous du seuil de détection en raison du bruit mais l'intégration des intensités continue.
- 3) Le signal de la voie 2 passe en dessous de la valeur (Seuil – Hystérésis) : fin du passage.

• **Processus d'acquisition des données**

Une fois les réglages préliminaires effectués, le logiciel procède au paramétrage de la carte PCI 9812 et lance l'acquisition à la fréquence d'échantillonnage de 10MHz. L'acquisition des données, ainsi que le traitement, s'effectuent au travers d'un processus particulier qui permet de s'affranchir de l'utilisation conjointe de l'ordinateur hôte du logiciel. Une priorité supérieure est affectée à cette tâche afin de conserver la continuité temporelle de l'acquisition.

Les données issues de la carte d'acquisition sont transférées par paquets de l'espace mémoire 'FIFO' de la carte vers une zone mémoire allouée par le logiciel. L'espace mémoire alloué, dit 'buffer de réception' est dimensionné comme étant un multiple de la taille mémoire 'FIFO' de la carte d'acquisition. Lorsque le flux de données arrive dans le buffer de réception et atteint la moitié de son espace mémoire, la première moitié du buffer de réception est disponible pour être traité. Pendant que le traitement s'effectue, le flux de données continue de remplir la deuxième moitié de l'espace mémoire du buffer de réception. Lorsque celui ci est totalement rempli, la deuxième moitié est disponible pour le traitement et le flux de données est à nouveau inscrit au début de l'espace mémoire du buffer de réception. Cette technique présente l'avantage d'utiliser peu d'espace mémoire et offre la possibilité d'échantillonner des signaux à haute cadence (10 MHz) sur une longue durée, sans perdre d'information. Le nombre d'échantillons correspondant à un demi-buffer est toujours identique et représente une durée mesurée très précisément. Cette durée de 82 ms pour un demi buffer, peut être incrémentée à chaque traitement d'un demi-buffer, ce qui permet d'indexer de manière absolue le temps d'arrivée des gouttes par rapport à l'instant initial de la mesure. Le processus d'acquisition des données mis en œuvre est illustré figure 4.41.

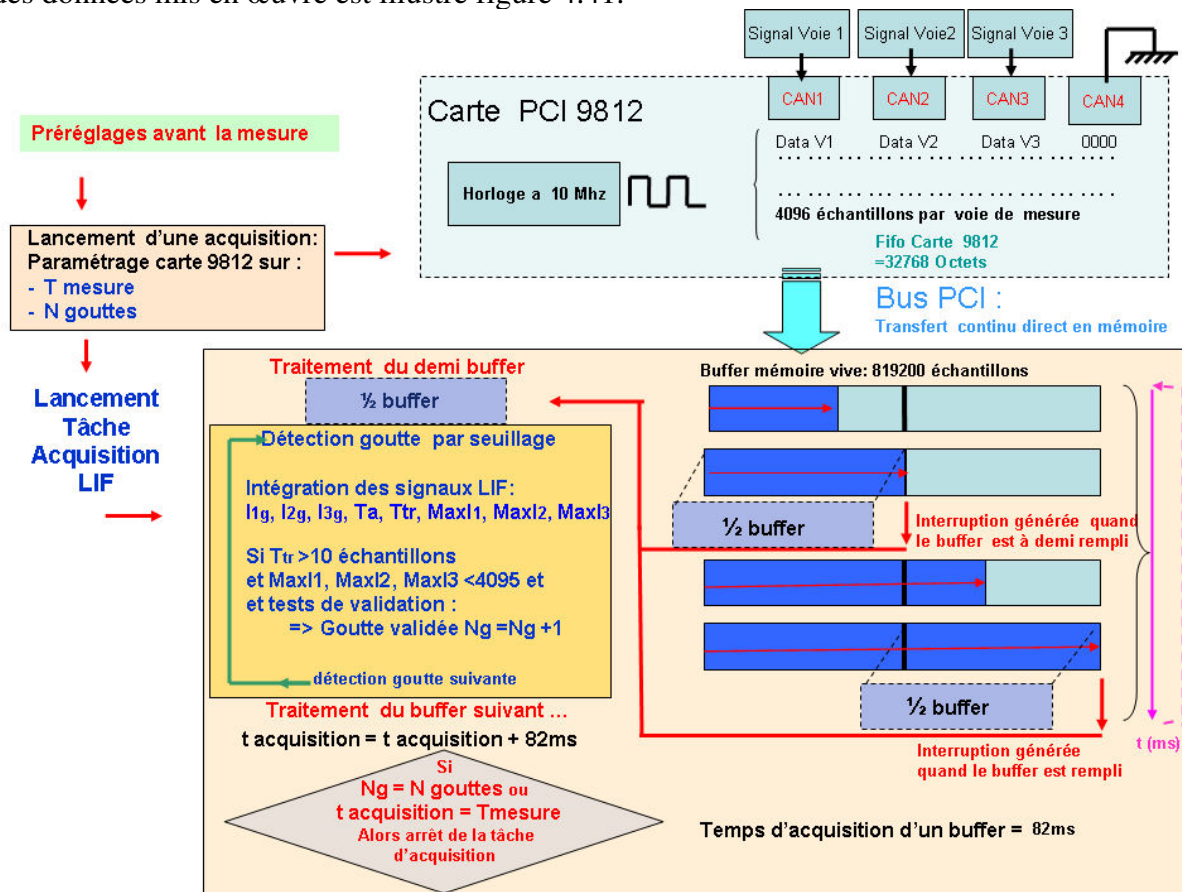


Figure 4.41 : Processus d'acquisition des signaux de fluorescence.

$N_g$  : Nombre de gouttes collectées

#### • Traitement des données

Lorsqu'un buffer de réception est disponible, celui ci peut être traité. Le traitement s'effectue suivant deux phases:

1- La première phase consiste à détecter la présence de gouttes dans le signal à l'aide du seuil. Afin d'accélérer cette phase de détection, où la condition sur le seuil est testée sur chaque point de mesure, un saut de la moitié du nombre de points minimum toléré pour une goutte validée (10 points) est effectué.

2- La deuxième phase consiste, lorsqu'une goutte est détectée, à sommer toutes les intensités instantanées sur les 3 voies de mesure jusqu'à ce que l'intensité de la voie 2 (dite voie de détection) redescende en dessous du seuil de détection, compte tenu de l'hystérésis. Les maxima d'intensité instantanée sur chacune des voies sont déterminés durant l'intégration des 3 signaux. Pour chacune des gouttes détectées, trois critères de validation sont appliqués :

i- Temps de transit minimum (10 échantillons)

ii- Si l'un des maxima déterminés a atteint le niveau maximum de 4095 (dit 'niveau de saturation'), alors la goutte est rejetée.

iii- Test de confirmation sur les voies 2 et/ou 3

Lorsque les trois critères sont remplis simultanément, la goutte est validée. Le logiciel stocke alors en mémoire les intégrations sur les trois voies de mesure ( $I_{1g}$ ,  $I_{2g}$ ,  $I_{3g}$ ), le nombre de points de la goutte correspondant au temps de transit, le temps d'arrivée de la goutte, et également le maximum de l'intensité instantanée atteint sur la voie 2.

Lorsque le nombre de gouttes à collecter ou le temps d'acquisition initialement spécifié est atteint, l'acquisition prend fin. Le logiciel peut alors calculer les intensités de fluorescence moyennes obtenues sur chacune des voies de mesure ainsi que le rapport  $R_{12}$ .

## 4.4 Couplage de la technique de fluorescence et du PDA

### 4.4.1 Principes

La technique phase Doppler, comme la technique de fluorescence, est une méthode optique ponctuelle non intrusive. Du point de vue de la mesure, on y retrouve un certain nombre de similitudes. Le signal mesuré est issu de la traversée par une goutte du volume d'excitation laser. L'optique du PDA détecte la bouffée Doppler qui est le résultat de la diffusion de la lumière laser par la goutte, lorsque celle-ci traverse le volume de mesure. D'autre part, l'émission fluorescente de la goutte, quand celle-ci traverse le volume d'excitation, est détectée par l'optique de fluorescence. Ces deux phénomènes, compte-tenu de la vitesse de la lumière et la durée de vie de l'état excité de la fluorescence (de l'ordre de  $10^{-9}$ s), peuvent être considérés comme instantanés devant le temps de passage de la goutte dans le volume de mesure. Ces deux types de signaux sont observés par deux dispositifs optiques différents et numérisés par deux systèmes d'acquisition différents. Cependant, si l'on suppose que les deux volumes de mesure coïncident spatialement, la traversée du volume de mesure par une goutte vue par les deux techniques, se produit simultanément.

Une analyse des chronogrammes représentant les temps d'arrivée des gouttes, permet d'associer les gouttes qui ont été vues simultanément par les deux techniques. Les informations telles que la taille, la vitesse, les intensités de fluorescences sont alors associées, ce qui offre la perspective de traiter l'information des intensités de fluorescence par classe de taille de goutte ou de vitesse.

### 4.4.2 Faisabilité de la méthode

Les deux techniques de mesure reposent sur un traitement des données qui extrait le signal utile qui est détecté lorsque celui-ci est supérieur à un seuil de détection en intensité. Les événements correspondant aux passages des gouttes sont alors datés par le temps d'arrivée et le temps de transit de la goutte dans le volume de mesure.

Le processeur PDA échantillonne les bouffées Doppler à une fréquence très importante (70 MHz). Le passage de la bouffée est détecté suite au franchissement d'un seuil qui déclenche l'ouverture d'une porte logique TTL. Le temps d'ouverture de cette porte, qui correspond

exactement au temps de transit de la goutte dans le volume de mesure, est mesuré par un compteur dont l'horloge est cadencée à 10 MHz. La résolution temporelle de la mesure du temps de transit est ainsi de 100 ns. De plus, les événements de passage sont repérés chronologiquement, par un compteur 32 bits qui détecte l'arrivée de la goutte avec une base de temps de 1  $\mu$ s. Tous les 16.8 s, le compteur se remet à zéro et une incrémentation de  $2^{24}$   $\mu$ s est additionnée pour définir les temps d'arrivée des gouttes suivantes. Les informations sur la taille, la vitesse, le temps d'arrivée et le temps de transit sont mémorisées pour chacune des gouttes détectées. Les acquisitions sont définies au préalable soit sur nombre de gouttes à acquérir, soit par une durée sur laquelle la mesure est effectuée. La première des deux conditions rencontrée entraîne l'arrêt de l'acquisition.

Du point de vue de l'acquisition des signaux de fluorescence, les 2 ou 3 signaux d'intensité sont digitalisés avec une carte d'acquisition 12 bits. Celle-ci permet d'échantillonner le signal à une fréquence de 10 MHz sur chacune des voies de mesure. Le logiciel d'acquisition développé pour l'étude des sprays utilise une technique d'acquisition dite de « double buffer » qui permet d'extraire le signal utile sur chacune des bandes spectrales de détection. Le passage d'une goutte est détecté par franchissement d'un seuil atteint sur la voie de mesure présentant le meilleur rapport signal/bruit. Ainsi, il devient possible de dater les événements correspondant au passage d'une goutte, par un temps d'arrivée absolu par rapport à l'instant initial de la mesure et sur une durée d'acquisition variable. De la même manière que pour la technique phase Doppler, les acquisitions sont définies au préalable, soit sur le nombre de gouttes à acquérir, soit par une durée sur laquelle la mesure est effectuée.

L'intégrale du signal sur le temps de passage d'une goutte et sur chacune des voies spectrales de détection, ainsi que le temps d'arrivée et le temps de transit de la goutte sont mémorisés chronologiquement.

Au vu de ces considérations, il apparaît possible, à partir des chronogrammes datant l'arrivée des gouttelettes dans le volume de mesure, d'extraire les événements détectés par chacune des techniques et qui ont coïncidé temporellement. Lorsqu'un événement est coïncident, il est réputé correspondre à la même goutte qui a été détectée par les deux techniques. Ainsi, les informations physiques correspondant à la goutte, sont regroupées : intensités de fluorescence, taille et vitesse de la goutte.

Un tri statistique suivant des classes de diamètres est ensuite effectué, ce qui, pour un nombre d'événements suffisant permet d'obtenir une convergence des intensités de fluorescence pour chacune des classes de taille. Dans chaque classe de taille, un ou deux rapports de fluorescence sont calculés puis convertis en température. Une température par classe de taille de goutte peut alors potentiellement être obtenue.

### **4.4.3 Aspect pratique du couplage des deux techniques**

L'objectif est d'avoir la même base de temps et le même instant initial pour les deux types d'acquisition: signaux de fluorescence et signaux de diffusion pour le granulomètre phase Doppler.

La première condition nécessaire est d'avoir la possibilité de démarrer les deux acquisitions exactement au même instant. Pour ce faire, une sortie TTL peut être configurée sur le processeur PDA et l'état de cette sortie passe d'un niveau bas à un niveau haut juste au moment où l'acquisition phase Doppler débute. Cette sortie permet de déclencher l'acquisition LIF en utilisant l'entrée «Trigger» de la carte d'acquisition.

Dans cette configuration, les deux types de signaux sont numérisés avec leur propre horloge. Une analyse des résultats montre que la qualité de la synchronisation n'est pas parfaite, car les horloges à quartz utilisées se déphasent légèrement dans le temps.

La carte d'acquisition offre la possibilité d'échantillonner les signaux à l'aide d'une horloge externe. L'utilisation de cette horloge externe est possible, mais la fréquence retenue qui échantillonnera les signaux LIF, sera divisée par 2. Le processeur PDA peut être configuré pour générer une sortie «horloge» sinusoïdale cadencée à 10 MHz, qui est un sous multiple de la base de temps utilisée en interne par le processeur PDA pour digitaliser et dater les bouffées Doppler. Cette configuration permettra ainsi un échantillonnage des signaux LIF à 5MHz.

#### 4.4.4 Difficultés de mise en œuvre

- **Sensibilité différente des deux techniques par rapport à la taille des gouttes**

L'utilisation indépendante des deux techniques met en évidence un taux de détection de gouttes plus faible pour la technique de fluorescence que pour le PDA. En effet les deux techniques ne sont pas sensibles de la même manière à la taille des gouttes. L'intensité de fluorescence est approximativement liée au volume de la goutte, alors que l'intensité diffusée est sensible à la section droite de la goutte.

La dynamique en taille de PDA est de l'ordre de 40 (guide d'utilisation du PDA). Cela signifie que si l'on détecte un diamètre de goutte maximum de 150  $\mu\text{m}$ , la plus petite taille détectable sera de l'ordre de 4  $\mu\text{m}$ . Pour la fluorescence, la dynamique a été étudiée préalablement (section 4.3.3.3). Dans le meilleur des cas, une dynamique de l'ordre de 3,85 peut être obtenue ; si des gouttes de 150  $\mu\text{m}$  peuvent être détectées sans saturation, alors le diamètre détecté le plus petit correspondra à environ 30  $\mu\text{m}$ . On comprend alors que la technique de fluorescence ne pourra détecter qu'une partie de la distribution en taille donnée par le PDA.

- **Critère de sphéricité des gouttes vue par la technique phase Doppler**

Les mesures de diamètre à l'aide du PDA n'ont de sens que si les gouttes sont sphériques. La mesure des phases  $\Phi_{13}$  permet d'estimer le diamètre de la particule en levant l'ambiguïté de  $2\pi$  et celles de  $\Phi_{12}$  permet de réajuster cette valeur plus finement. Le critère de sphéricité consiste à accepter une marge d'erreur entre ces deux mesures. Si l'écart est trop important, la goutte, considérée comme non sphérique, est rejetée.

Dans les mesures par fluorescence, la sphéricité n'intervient pas. Il faut donc également envisager qu'une goutte détectée par la technique de fluorescence ne soit pas forcément détectée par la technique phase Doppler. Par exemple, si le spray généré présente un grand nombre de particules non sphériques, le couplage des deux techniques présentera un faible taux de gouttes coïncidentes.

- **Coïncidence spatiale des deux volumes de mesures**

La sonde de réception PDA est une optique DANTEC classique (c'est à dire sans utilisation de fibres optiques). Le volume de mesure est le résultat de la projection d'une fente de largeur 120  $\mu\text{m}$  sur l'ellipsoïde d'excitation généré par la sonde laser du type Dantec Fiberflow. La largeur de la fente projetée sur le volume d'excitation est  $L_m = 257 \mu\text{m}$ . Compte tenu des optiques utilisées, le volume de mesure engendré par la sonde de collection du signal de fluorescence correspond à un cylindre de diamètre 210  $\mu\text{m}$  dont la hauteur est donnée par le diamètre du volume d'excitation laser qui de 150  $\mu\text{m}$ .



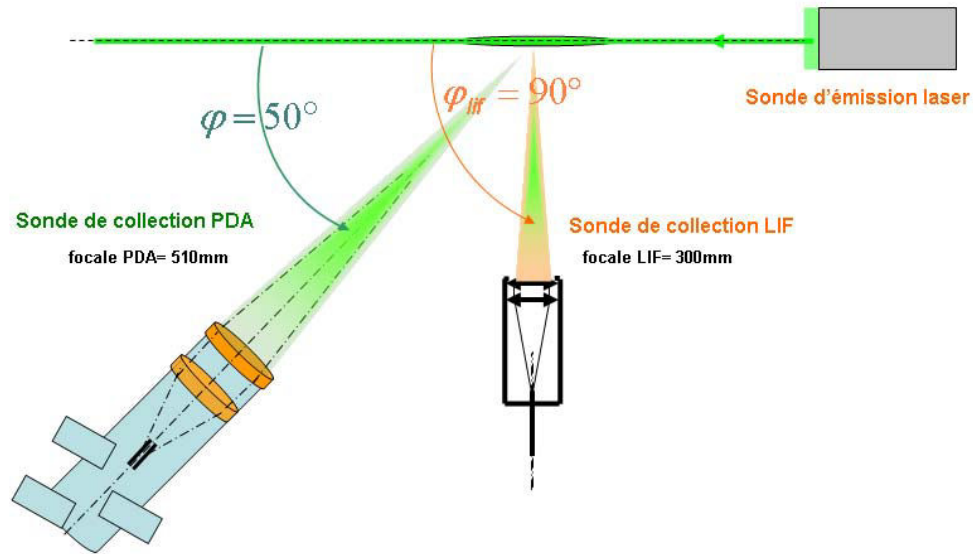


Figure 4.42 (a) : Configuration des optiques de collection LIF et PDA pour les couplages

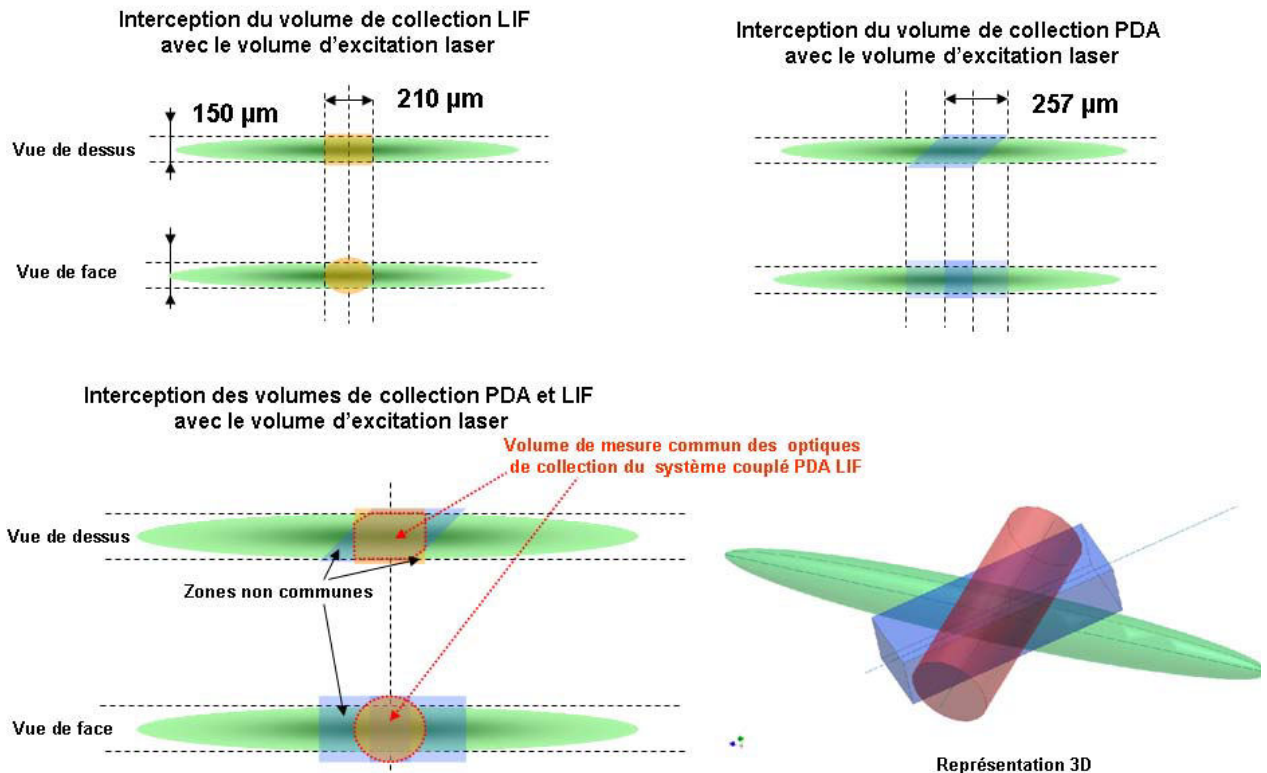


Figure 4.42 (b): Schéma interception des deux volumes

La possibilité de synchroniser ces deux techniques repose sur la condition de faire coïncider spatialement les deux volumes de mesure. Les événements coïncidents seront d'autant plus nombreux que le volume de mesure commun aux deux techniques sera optimisé.

Les réglages optiques de ces deux techniques sur la zone de croisement des deux faisceaux laser se réalisent à travers des oculaires de visualisation et le positionnement est rendu possible par des déplacements mécaniques fins. Les deux volumes de mesure étant de morphologie sensiblement différente, il existera, par nature, des gouttes traversant les zones non communes pour l'une ou l'autre des techniques de mesure. La figure 4.42(a) présente la

configuration spatiale des sondes de collection LIF et PDA retenue pour les mesures couplées des deux techniques. La figure 4.42(b) donne un aperçu de l'interception des deux volumes de mesure

- **Difficultés d'ordre informatique**

Les mesures de fluorescence dans les sprays sont effectuées à l'aide d'un logiciel qui pilote la carte d'acquisition. La technique d'acquisition décrite précédemment impose une fréquence d'échantillonnage à 5MHz sur chacune des voies de mesure. Le traitement des données doit être effectué plus rapidement que l'acquisition afin de conserver la cohérence temporelle du signal. Cette tâche d'acquisition mobilise de manière importante le processeur du PC sur lequel est installée la carte d'acquisition. Les mesures phase Doppler sont réalisées à l'aide du logiciel BSA Flow fourni par DANTEC. L'acquisition et le traitement des bouffées Doppler sont réalisés par un processeur dédié (DANTEC P80) et les données sont récupérées sur le PC par liaison réseau. Cependant dans cette configuration, il est nécessaire de faire fonctionner ces deux logiciels en même temps pour obtenir des mesures synchronisées. Les sorties graphiques du logiciel BSA flow mobilisent également de manière importante la mémoire vive du PC. L'utilisation conjointe des deux logiciels sur un même PC est donc délicate et ne constitue pas la meilleure solution. De plus, dans cette configuration d'acquisition, l'extraction des événements de passage de gouttes coïncidentes ne peut se faire qu'à l'aide d'un post-traitement qui intervient après la mesure. Ainsi, la qualité du couplage et en particulier le taux de coïncidence qui dépend fortement des réglages optiques initiaux ne pourra être connu qu'après l'acquisition et la séquence de post-traitement.

- **Amélioration du traitement des données :**

Ces différentes difficultés ont conduit à la recherche d'une solution plus sophistiquée. Les principales difficultés rencontrées sont:

- 1- La difficulté de faire cohabiter les deux logiciels d'acquisition (LIF et PDA) sur la même machine.
- 2- La difficulté d'aligner correctement les deux volumes de mesure sans un outil donnant instantanément le taux de coïncidence des événements détectés par chacune des deux techniques.

Afin de lever cet ensemble de difficultés, la société DANTEC a développé un nouvel outil informatique. Cet outil informatique permet de piloter le processeur PDA à partir de différents langages informatiques.

L'implémentation de cet outil a été réalisée directement dans le logiciel développé pour la mesure de la fluorescence dans les sprays. Ainsi ce logiciel peut également collecter de manière très rapide les données issues du processeur PDA à l'aide de la liaison réseau avec le processeur. Les données issues d'une part de la carte d'acquisition des signaux de fluorescence et celles recueillies au niveau du processeur PDA, sont traitées directement dans la mémoire vive de l'ordinateur à partir du même logiciel et une procédure d'extraction rapide des événements coïncidant a été développée.

L'accès aux mesures couplées de manière rapide à partir du même logiciel a permis de mettre au point une procédure d'optimisation des réglages optiques. En effet, pour optimiser l'interception spatiale des deux volumes de mesure, le temps de la mesure '*Tmes*' est défini sur un temps court par l'utilisateur (quelques secondes) et l'acquisition LIF/PDA couplée est répétée par cycle. Ainsi le logiciel d'acquisition LIF affiche graphiquement le taux de coïncidence des gouttes détectées par les deux techniques. L'évolution du taux de coïncidence vers un maximum, consécutif à des modifications manuelles fines des points de visée des deux optiques, témoigne l'optimisation de l'interception spatiale des deux volumes de



mesures. La figure 4.43 reprend les différentes liaisons entre le processeur Dantec P80 et l'ordinateur hôte du logiciel d'acquisition des signaux de fluorescence.

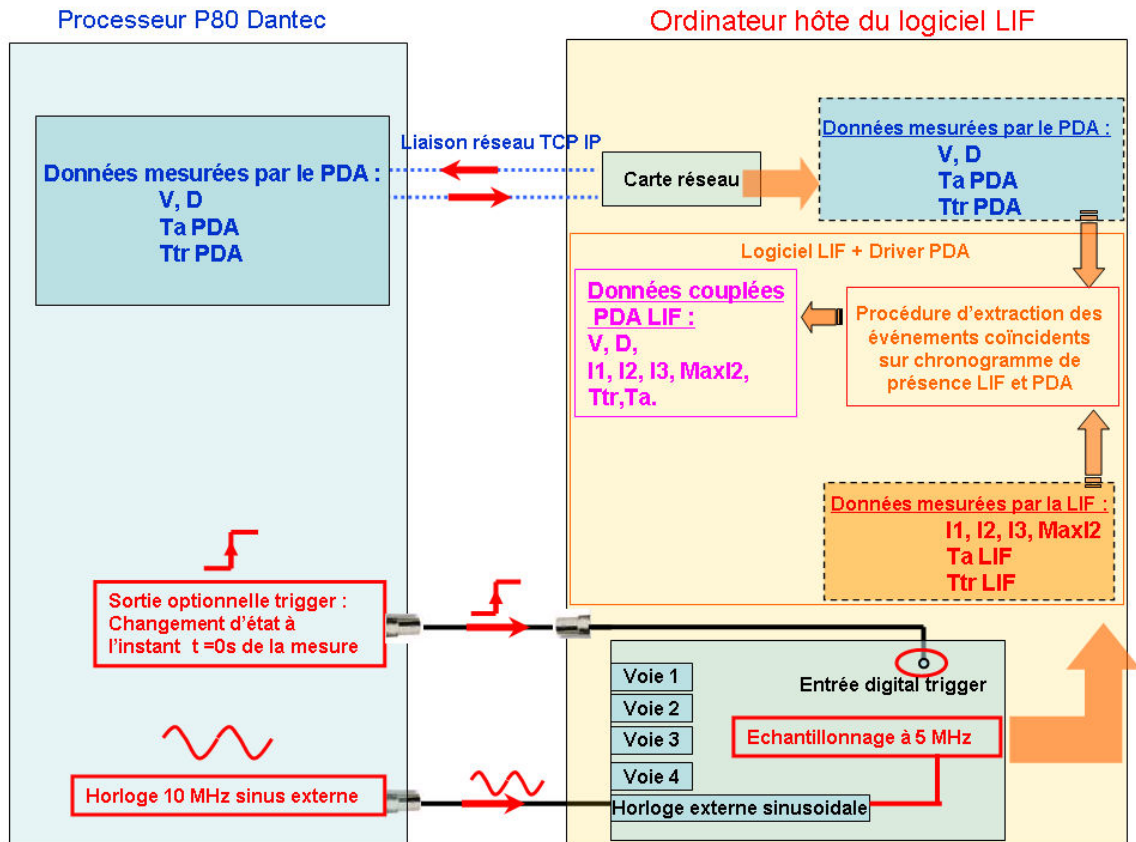


Figure 4.43 : Schéma fonctionnel du système développé pour le couplage des deux techniques

Un événement correspondant au passage d'une goutte est commun lorsqu'il est détecté simultanément sur les chronogrammes du signal de fluorescence et du PDA. Un certain nombre de critères sont appliqués afin d'éliminer les éventuelles ambiguïtés. Ces critères sont résumés sur la figure 4.44 .

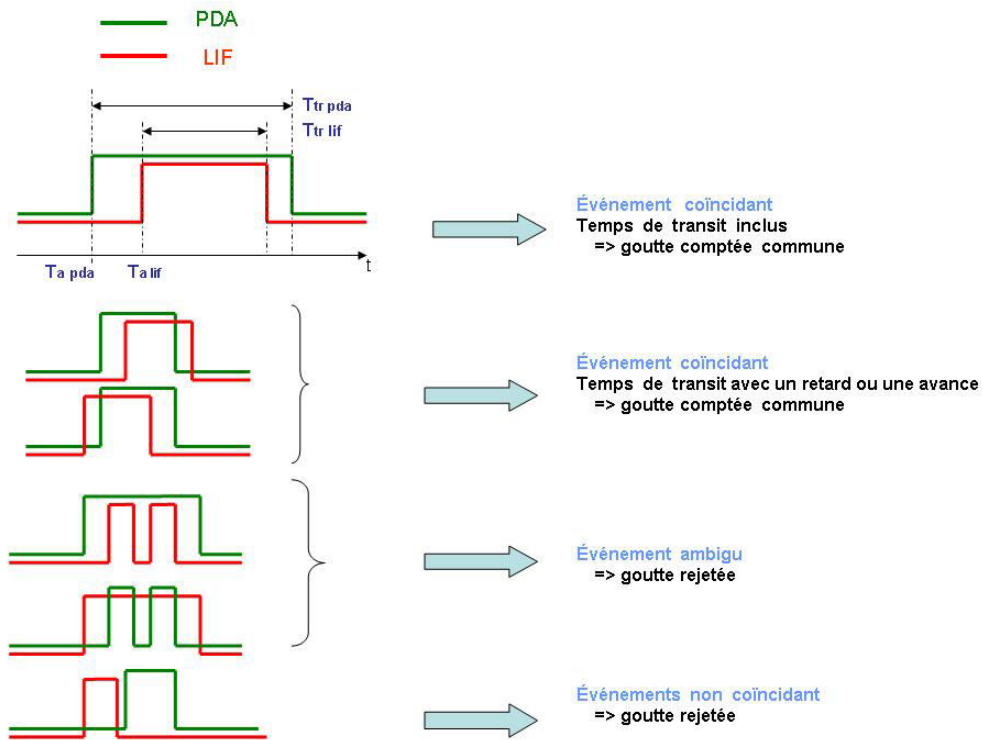


Figure 4.44 : critères de détermination des événements communs LIF/PDA.

La figure 4.45 présente les chronogrammes des événements détectés par les deux techniques sur une durée de 30 ms. Les événements considérés comme communs sont représentés. Cette mesure a été effectuée dans le spray généré par l'injecteur Danfoss pour une pression d'injection de 4.5 bars à une hauteur de 20 mm en dessous de la buse d'injection.

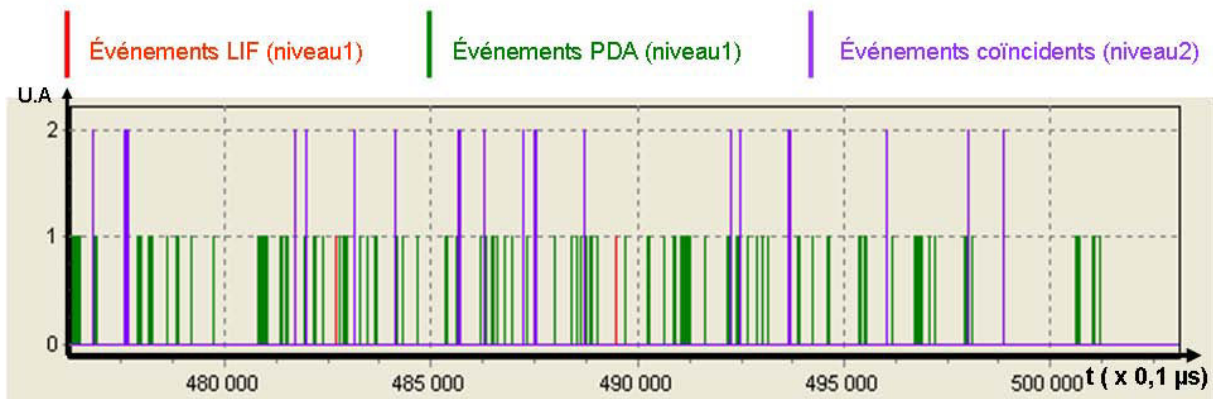


Figure 4.45 : Chronogramme des événements LIF et PDA sur 0,5 s.

- **Analyse statistique sommaire**

Toujours à une distance de 20 mm du point d'injection et pour une pression d'injection de 4,5 bars, le temps cumulé correspondant au passage des gouttes, pour l'une ou l'autre des deux techniques a été estimé sur un échantillon représentatif. Celui ci a été comparé au temps total de mesure  $T_{mes}$ .

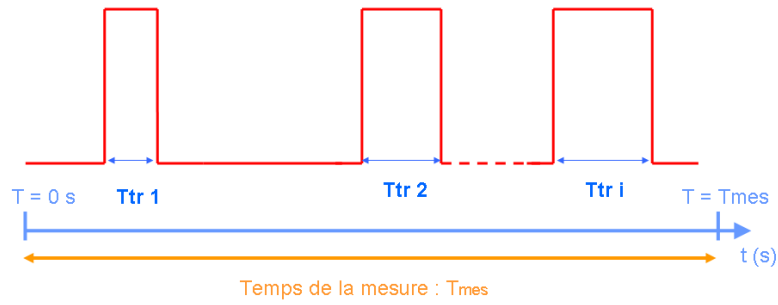


Figure 4.46 : Temps de transit et temps de la mesure.

Les taux de présence des gouttes détectées par la technique LIF ( $\tau_{LIF}$ ) et le technique PDA ( $\tau_{PDA}$ ) sont donnés par :

$$\tau_{LIF} (\%) = \left( \sum_{i=1}^n T_{ti} / T_{mes} \right) \cdot 100 \quad (4.13)$$

$$\tau_{PDA} (\%) = \left( \sum_{i=1}^n T_{ti} / T_{mes} \right) \cdot 100 \quad (4.14)$$

où  $T_{ti}$  représente le temps de transit de la  $i^{\text{ème}}$  goutte.

Les calculs effectués à cette position du spray conduisent à  $\tau_{LIF} = 0,7\%$  et  $\tau_{PDA} = 8,3\%$ .

Ces données sont bien évidemment dépendantes de la densité du spray. Il apparaît clairement que le taux de présence des gouttes détectées par la technique LIF est très inférieur à celui correspondant au PDA. En effet la technique de fluorescence présente une dynamique de détection beaucoup plus faible que la technique phase Doppler en terme de taille, si bien que les gouttes de petites tailles, qui sont majoritaires dans ce spray, sont ignorées.

En revanche, il est possible de constater que la majorité des gouttes détectées par la LIF (60%) coïncident avec un événement PDA et qu'à l'inverse peu d'événements PDA (10%) coïncident avec une goutte détectée par la LIF et que ces taux de couplage sont relativement constants durant la mesure. On observera la figure 4.47 donnant l'enregistrement du taux de coïncidence sur un temps de mesure de 120 s. La figure 4.48 présente le schéma fonctionnel des interactions entre le processeur PDA et le dispositif LIF.

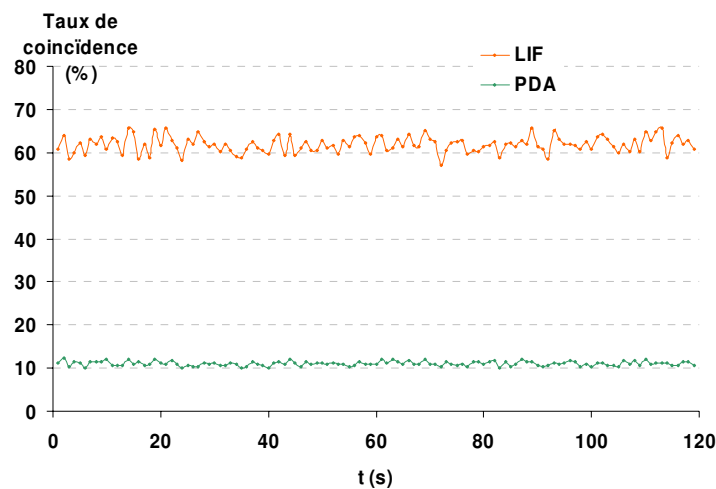


Figure 4.47 : Taux de coïncidence des techniques LIF et PDA enregistré sur 120 s.

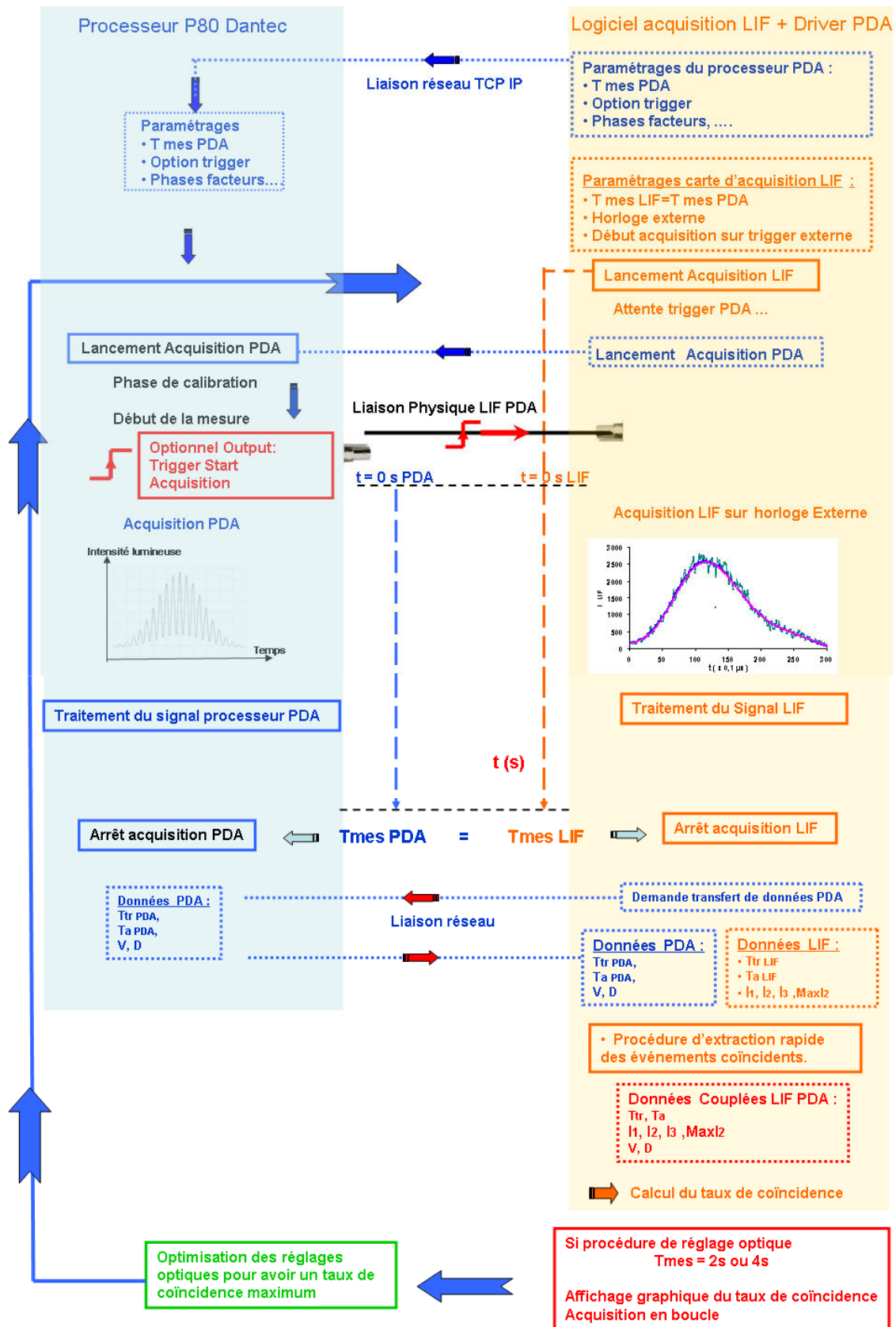


Figure 4.48 : Principe d'une mesure couplée PDA/LIF et procédure d'optimisation des réglages optiques

## 4.5 Application de la technique de fluorescence à la mesure de la température dans le spray

### 4.5.1 Expériences préliminaires

- **Evolution du rapport de fluorescence en fonction de la pression d'injection**

Les mesures présentées dans cette section sont effectuées en utilisant le spray Danfoss décrit précédemment (section 4.2.1). Le fluide utilisé est de l'eau déminéralisée ensemencée par de la sulfo-rhodamine B dont la concentration est  $C = 5 \cdot 10^{-6}$  mol/l.

Une première phase de réglage est effectuée dans le spray : les gouttes sont visualisées et les hautes tensions des PM sont ajustées de telle manière à ne saturer que 1 ou 2 % des gouttes sur les trois voies de mesure.

Pour l'injecteur précédemment décrit, le volume de mesure est positionné sur l'axe central du spray à 15 mm du point d'injection (figure 4.49). A cette position, La pression d'injection du spray est ensuite modifiée dans une gamme de 2.5 bars à 7 bars.

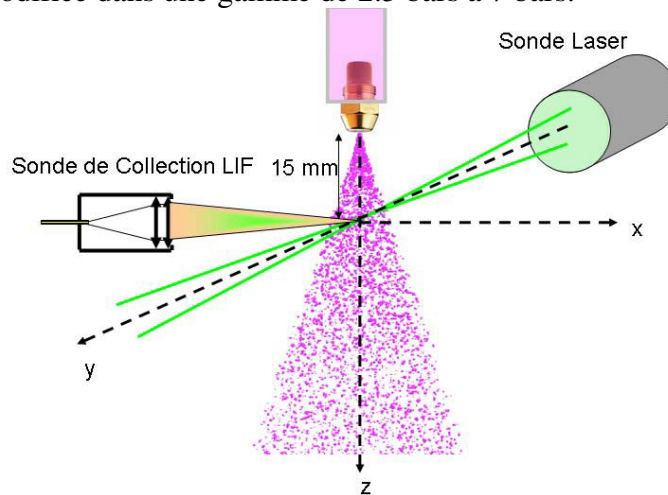


Figure 4.49 : Position du volume de mesure dans le spray, et visualisation des axes d'exploration des mesures lif

Sur la figure 4.50, nous constatons une variation très importante du rapport de fluorescence  $R_{12}$  avec la pression d'injection. Cette variation devient effective à partir d'une pression supérieur a 3.5 bars.

La figure 4.50 présente également l'évolution des intensités moyennes  $\bar{I}_1$  et  $\bar{I}_2$ . Les intensités de fluorescence ont tendance à décroître lorsque la pression d'injection augmente. Il apparaît clairement que le taux de variation des intensités sur la voie 1 et la voie 2 est différent, ce qui conduit à un rapport de fluorescence qui augmente de manière monotone en fonction de la pression d'injection. La tendance décroissante des intensités de fluorescence s'explique essentiellement pour la diminution du diamètre des gouttes. A titre d'exemple, l'évolution de  $\bar{I}_2$  en fonction de  $D_{10}$  (figure 4.51) montre clairement cette corrélation. En raison du type de traitement des données adopté, où la somme des intensités est rapportée au nombre d'échantillons détectés, les intensités de fluorescence moyenne ne sont pas corrélées au débit volumique de liquide qui augmente lorsque la pression d'injection croît. En revanche, le nombre de gouttes détectées par seconde augmente clairement avec le débit ou la pression d'injection (figure 4.52).

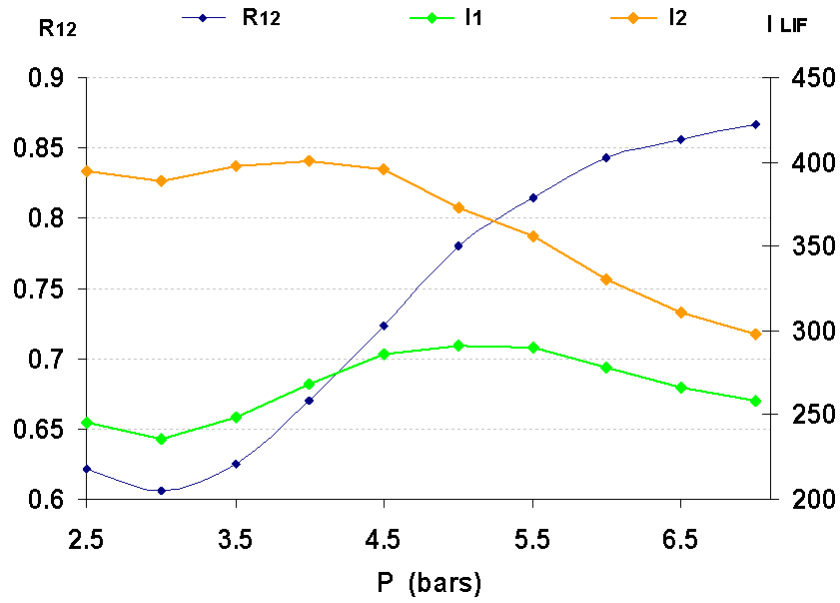


Figure 4.50 : Evolution des intensités de fluorescence  $I_1$ ,  $I_2$  en fonction de la pression d'injection

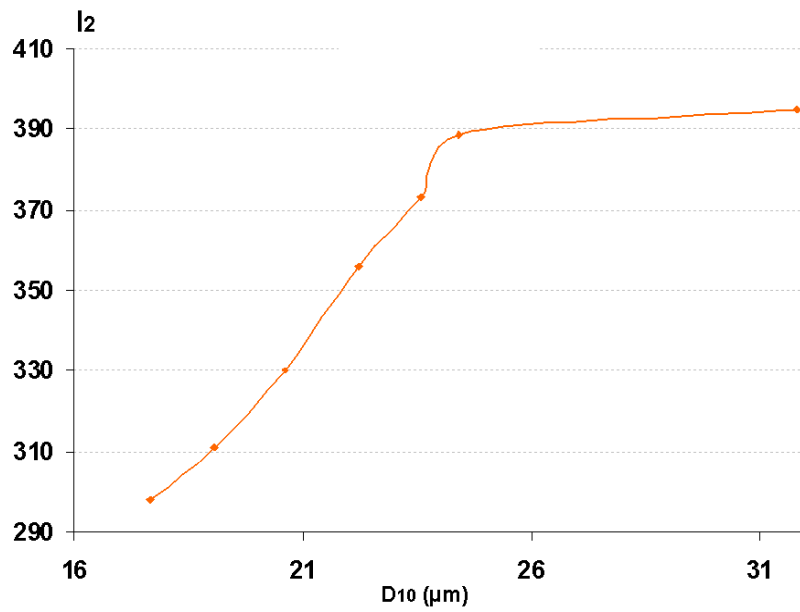


Figure 4.51 : Evolution de l'intensité  $I_2$  en fonction du diamètre statistique  $D_{10}$

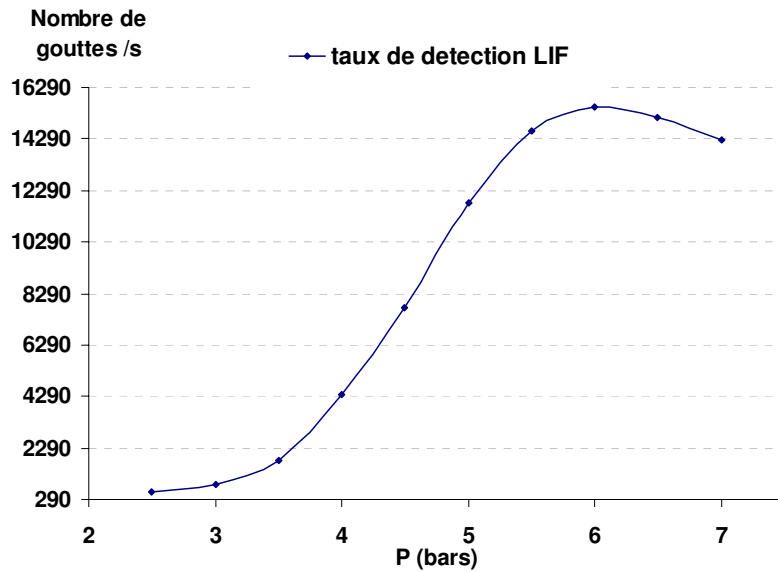


Figure 4.52 : Evolution du taux de détection en goutte /s avec la pression d'injection

• **Etude spectrale**

Les résultats présentés précédemment mettent en évidence une variation notable du rapport de fluorescence. Une étude spectrale a donc été réalisée en utilisant un spectromètre qui nous donne accès à l'ensemble du spectre de fluorescence avec une résolution de l'ordre du nanomètre. Celui-ci est connecté directement à la fibre optique qui transmet le signal de fluorescence. Le filtre coupe bande notch est conservé afin de s'affranchir de la diffusion de la raie excitatrice (514,5 nm).

Le spectre de référence est comparé figure 4.53 avec le spectre de fluorescence obtenu lors d'une mesure au centre du spray à  $z=15\text{mm}$  en dessous de l'injecteur, à une pression de 4 bars.

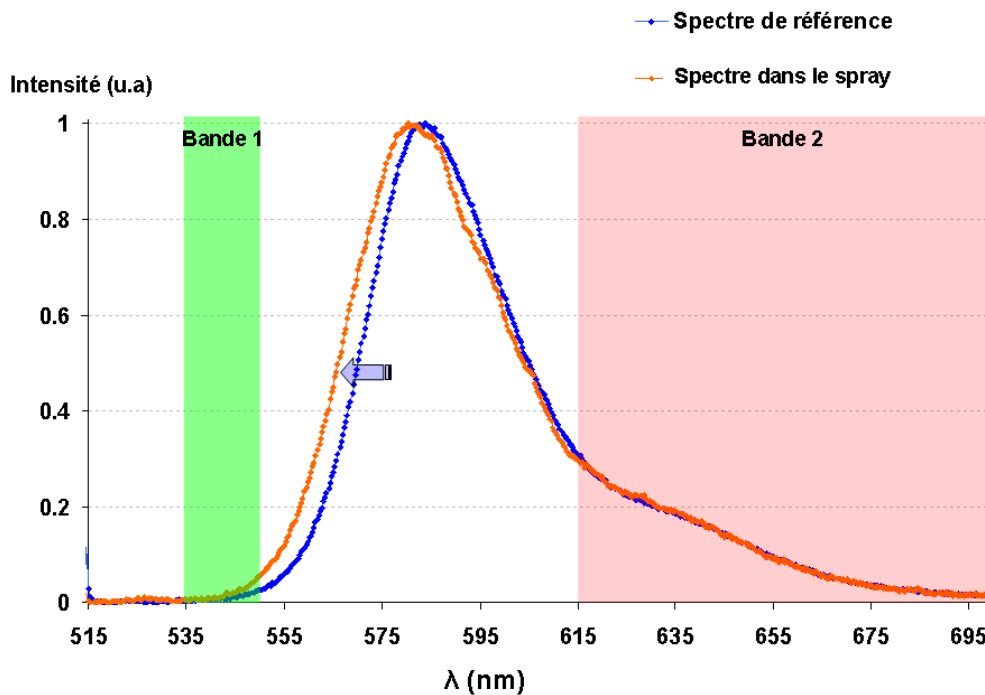


Figure 4.53 : Spectre de référence comparé au spectre obtenu dans le spray ( $z=15\text{mm}$ ) axe central,  $P=4$  bars)

Afin de rendre possible une première comparaison, les spectres ont ici été simplement normalisés par rapport à la valeur maximum atteinte. Un décalage vers les basses longueurs d'onde est mis en évidence.

De plus, du fait du recouvrement partiel des spectres d'émission et d'absorption, le signal de fluorescence peut être partiellement absorbé, et ce principalement sur la première bande spectrale. L'influence de la réabsorption de l'émission de la fluorescence sur le rapport  $R_{12}$  est de l'ordre de 1 % pour un trajet optique de 97  $\mu\text{m}$ , quand la concentration en traceur est de  $C=5.10^{-6}$  mol/l. Le positionnement du faisceau laser au plus proche de la paroi de la cellule de référence afin de limiter le chemin optique, s'avère parfois délicat. Afin de vérifier la position du spectre de référence, et mettre en évidence l'influence du phénomène d'absorption, des spectres de fluorescence ont été mesurés pour différents trajets optiques  $y$  (figure 4.54). Le spectre de référence est celui correspondant au plus petit trajet optique réalisable, c'est-à-dire en plaquant les faisceaux laser sur la paroi de la cuve. Lorsque le chemin optique est augmenté, un décalage vers les grandes longueurs d'onde est nettement observable, dû fait de l'absorption croissante du signal sur dans la zone spectrale correspondant à la bande d'absorption maximale de la sulfo-rhodamine B. L'influence de l'absorption devient significative à partir de  $y=2\text{mm}$ .

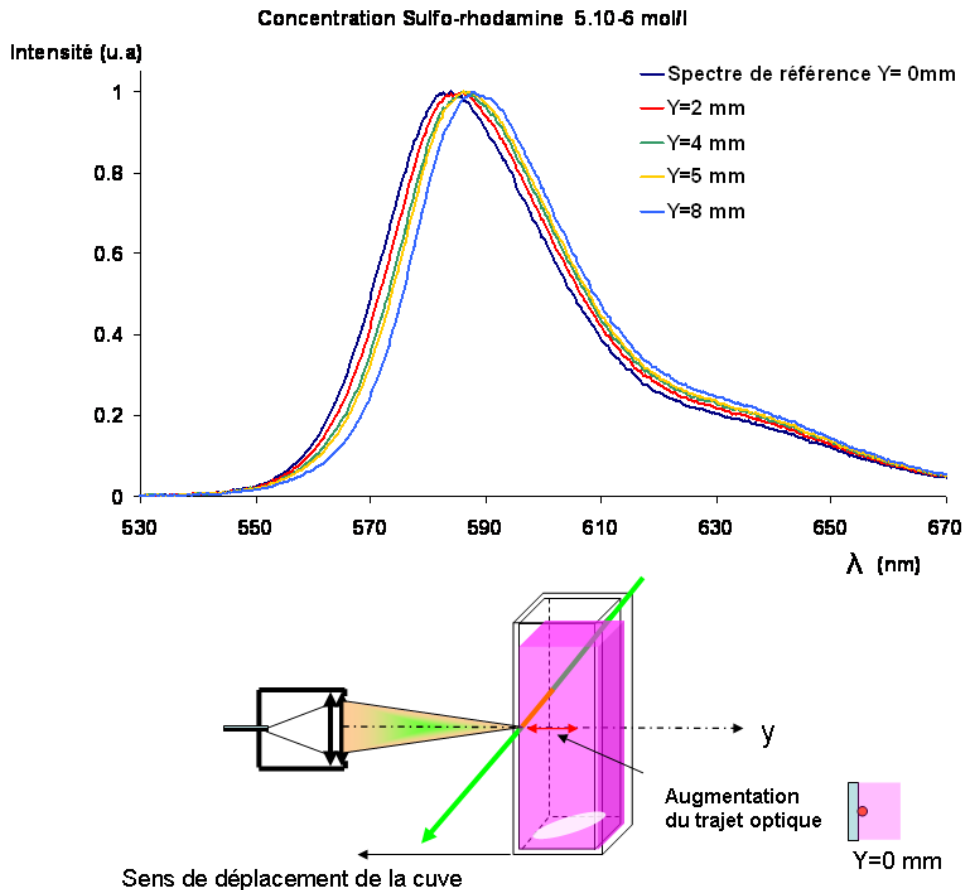


Figure 4.54 : Comparaison de spectres de fluorescence pour différents chemins optiques  $y$ . Influence de la réabsorption.

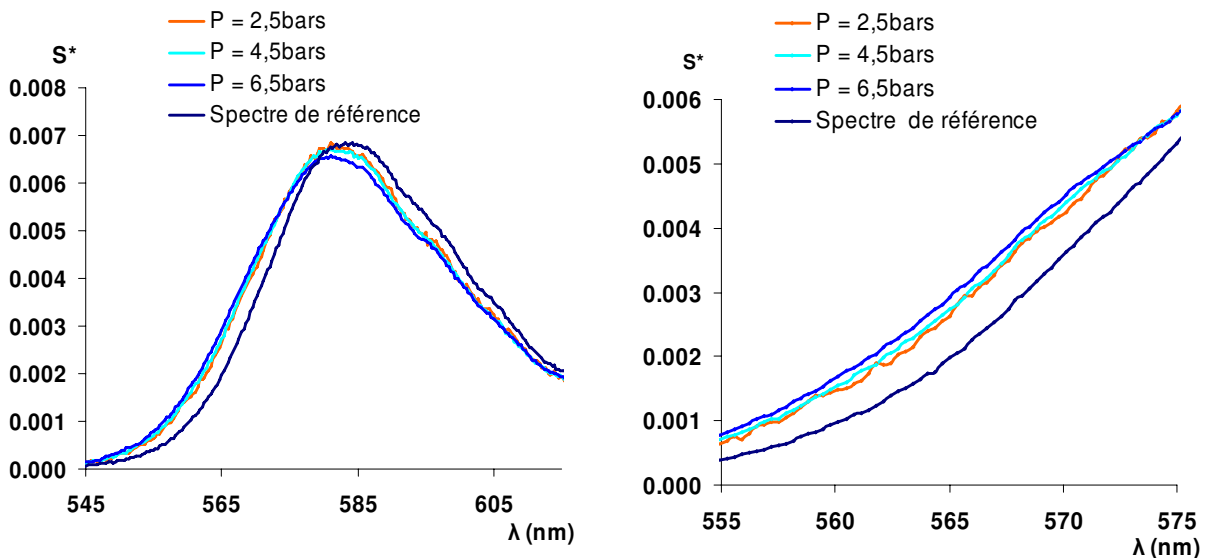
Afin de compléter l'étude précédente qui met en évidence une déformation du spectre de fluorescence dans le spray, différents spectres ont été obtenus en plaçant le volume de mesure à la même position dans le spray ( $z=15\text{ mm}$ ) et pour les pressions d'injection allant de 2,5



bars à 6,5 bars. Afin de comparer les spectres entre eux, ceux-ci sont normalisés par l'intégrale de l'intensité sur la deuxième bande spectrale de détection :

$$S^*(\lambda) = \frac{S(\lambda)}{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} S(\lambda) d\lambda} \quad (4.15)$$

où  $S(\lambda)$  est le spectre de fluorescence et  $S^*(\lambda)$  le spectre normalisé. Dans le cas présent,  $\lambda_1=615$  nm et  $\lambda_2=750$  nm. Les spectres réalisés à différentes pressions ont été comparés à celui réalisé dans une cuve de calibration agitée. Cette dernière mesure, réalisée en cuve doit faire l'objet de précautions particulières, afin d'éviter le plus possible le phénomène de réabsorption de la fluorescence décrit précédemment, sur la première bande spectrale notamment. La figure 4.55 met en évidence un net décalage spectral vers les faibles longueurs d'onde entre le spectre de référence et ceux enregistrés dans le spray à différentes pressions d'injection. Lorsque la pression d'injection augmente, le 'décalage vers le bleu' augmente, ce qui est corrélé avec l'augmentation du rapport de fluorescence observée précédemment.



. Figure 4.55 : Spectres normalisés de fluorescence mesurés dans le spray pour différentes pressions d'injection( à  $z= 15$  mm de la buse, axe centrale) et comparaison au spectre de référence.

Les intensités collectées sur chacune des bandes spectrales de détection peuvent être évaluées en intégrant sur ces bandes les spectres de fluorescences obtenus. Pour chacune des pressions étudiées, il est possible de calculer le rapport de fluorescence correspondant. La figure 4.56 compare l'évolution de ce rapport en fonction de la pression à celui obtenu avec la chaîne de photodétection de fluorescence induite par laser. Les rapports ont été divisés par un rapport de référence mesuré en cuve afin de rendre comparable ces deux évolutions. Les tendances observées avec les deux dispositifs sont identiques, le rapport de fluorescence croît avec la pression d'injection. Cependant, il apparaît clairement que les dynamiques observées sont différentes, ce qui peut s'expliquer par deux phénomènes :

- l'intensité optique sur la voie 1 est faible, et le spectroscope qui utilise un capteur CCD n'est pas linéaire pour ces faibles niveaux de lumière, contrairement au PM,
- les fenêtres spectrales utilisées pour l'intégration des spectres sont rectangulaires, ce qui n'est pas le cas des filtres interférentiels réellement utilisés.

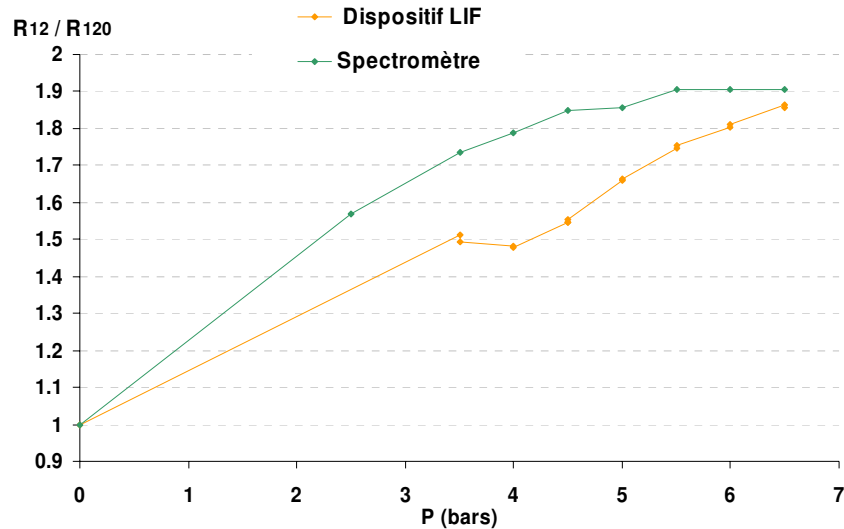


Figure 4.56 : Evolution du rapport  $R_{12}$  de fluorescence en fonction de la pression mesurée avec le dispositif LIF et par intégration des spectres de fluorescence. ( $R_{120}$  : Rapport correspondant à la mesure de référence en cellule agitée)

## 4.5.2 Hypothèse de la diffusion de l'émission fluorescente

- **Remarques préliminaires**

Les causes et les paramètres influençant le phénomène montré précédemment, une déformation du spectre d'émission fluorescente lorsque celui-ci est mesuré dans le spray, doivent faire l'objet d'investigation. L'une des hypothèses concerne la diffusion de la fluorescence à la traversée du spray, entre le point d'émission et l'optique de collection. Cette diffusion pourrait présenter une dépendance à la longueur d'onde, ce qui pourrait effectivement déformer le spectre mesuré. Les travaux numériques menés par Chen (2005) se sont intéressés à ce phénomène et ont porté sur l'étude de la diffusion de la fluorescence émise par une goutte unique à la traversée du brouillard de gouttes. La configuration retenue par Chen correspond à celle de la fluorescence multibande développée au LEMTA. La distribution spatiale de l'émission de fluorescence d'une goutte est calculée par résolution de l'équation de transfert radiatif. Le terme d'absorption dû à la présence du traceur fluorescent et de diffusion de chacune des longueurs d'onde composant le spectre de fluorescence ont été pris en compte dans le calcul. Puis, un algorithme de type semi-Monte Carlo est utilisé pour simuler, pour chacune des longueurs d'onde, le comportement des rayons lumineux issus de la goutte fluorescente dans le brouillard de gouttelettes. Les probabilités d'absorption, de ré-émission et de diffusion sont alors intégrées dans l'algorithme. L'ensemble des photons parvenant dans l'angle solide de détection est sommé par longueur d'onde afin de restituer la distribution spectrale de l'intensité de fluorescence collectée. La distribution de taille des gouttes (supposée Gaussienne), la concentration particulaire ainsi que la concentration molaire du traceur fluorescent peuvent être paramétrées individuellement, ce qui permet de tester séquentiellement l'influence respective de chacun des paramètres. Ainsi, les travaux de Chen ont montré que la distribution spatiale de l'émission fluorescente est fortement anisotrope. Des effets notables sur la distribution de l'intensité de fluorescence détectée apparaissent lorsque la concentration molaire du traceur fluorescent est supérieure à  $3 \cdot 10^{-4}$  mol/l (pour une concentration particulaire de  $10^9$  particules/m<sup>3</sup>) ou la concentration particulaire atteint  $10^{10}$  particules/m<sup>3</sup> ( $C=5 \cdot 10^{-5}$  mol/l).

Dans tous les cas, ces effets conduisent à un décalage du spectre de fluorescence vers le rouge qui peut être essentiellement attribué à la partie imaginaire de l'indice de réfraction.

Les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction ont été prises en compte. Le cas précis de la sulforhodamine B en solution aqueuse, de la distribution granulométrique et des bandes spectrales considérées dans cette étude a été envisagé. En particulier, l'effet de la concentration particulaire et de la concentration du colorant a été testé ; cependant l'augmentation forte de l'un ou l'autre de ces deux paramètres dans des proportions très importantes conduit à une déformation du spectre au niveau des grandes longueurs d'onde, effet plutôt lié à la partie imaginaire de l'indice de réfraction.

• **Vérification expérimentale**

Afin de vérifier les effets spectraux liés à la diffusion de la fluorescence dans le spray, l'expérience suivante a été conduite : une source de lumière blanche colimatée est positionnée comme indiqué sur la figure 4.57. L'optique de collection est focalisée sur la source de lumière ; le spectre de la source est enregistré au préalable comme spectre de référence (figure 4.57 : 1) en l'absence de spray puis en présence du spray (figure 4.57 : 2), pour différentes pressions d'injection. Les différents spectres obtenus sont représentés sans normalisation figure 4.58. La présence du spray provoque une atténuation de la lumière collectée du fait du phénomène de diffusion de la lumière par le spray, correspondant en fait à une redistribution spatiale de l'émission lumineuse. Lorsque ces différents spectres sont normalisés, par leur maximum ici (figure 4.59), nous pouvons constater leur superposition parfaite. Le phénomène de diffusion est donc bien mis en évidence, mais il n'engendre aucune déformation du spectre.

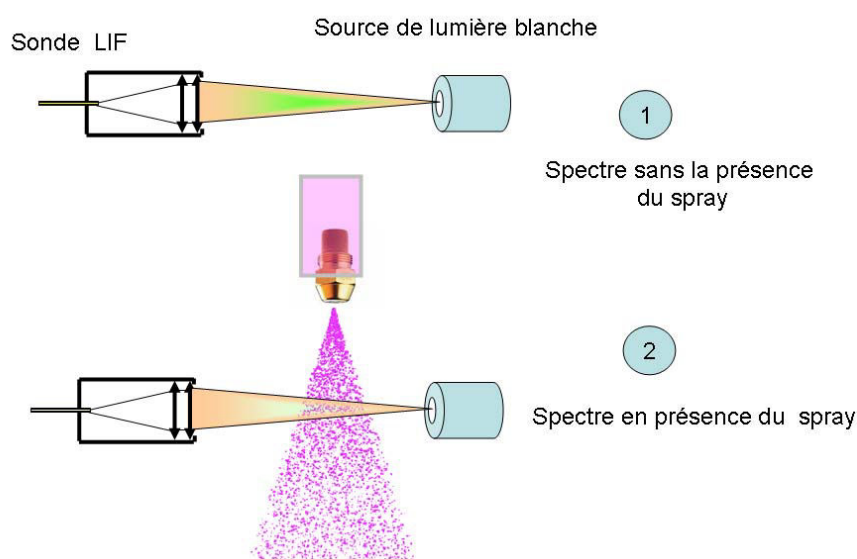


Figure 4.57 : Dispositif de mise en évidence de la diffusion à travers le spray.

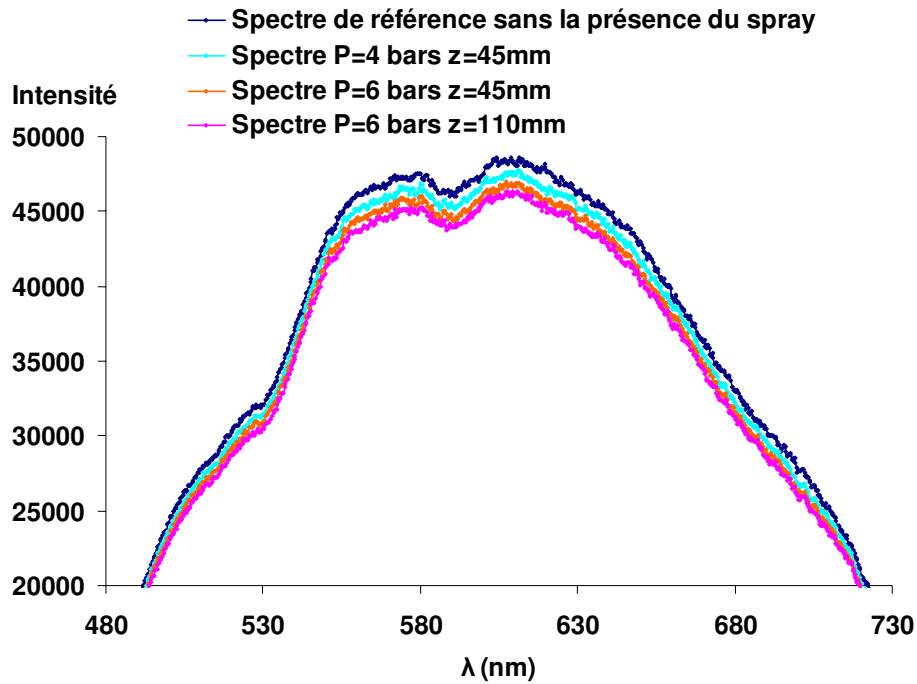


Figure 4.58 : Spectres de fluorescence de la lumière blanche traversant le spray à différentes pressions d'injection

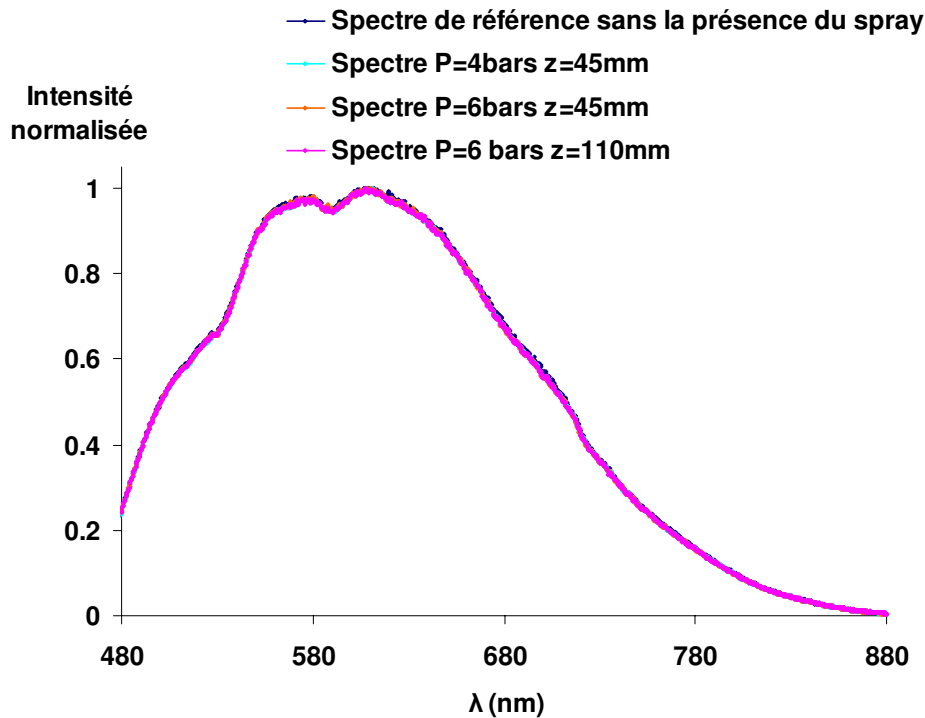


Figure 4.59 : Spectres de fluorescence normalisés de la lumière blanche traversant le spray pour différentes pressions d'injection. Comparaison au spectre en l'absence de spray.

### 4.5.3 Influence de la distribution granulométrique des gouttes

La modification de la pression d'injection du liquide modifie en fait la distribution granulométrique du spray. En plus du spray Danfoss alimenté à différentes pressions d'injection, plusieurs autres types d'atomiseurs ont été utilisés afin d'obtenir des distributions

sensiblement différentes. La distribution granulométrique a été obtenue pour chacun des sprays à l'aide du PDA dans la configuration décrite précédemment.

La variation du rapport de fluorescence normalisé par le rapport en cuve,  $R_{12}/R_{120}$  est représentée en fonction du diamètre statistique  $D_{10}$  sur la figure 4.60. Le rapport normalisé décroît lorsque  $D_{10}$  augmente et tend vers le rapport mesuré dans la cellule de référence ( $R_{12}/R_{120} = 1$ ) pour les plus gros  $D_{10}$ . Notons que la différence de dynamique entre la technique PDA et la technique LIF fait que le diamètre statistique  $D_{10}$  effectivement détecté par la technique LIF est certainement différent. Il est très probable que  $(D_{10})_{PDA} < (D_{10})_{LIF}$ . Le rapport de fluorescence, contre toute attente, semble donc varier avec la distribution granulométrique des gouttes.

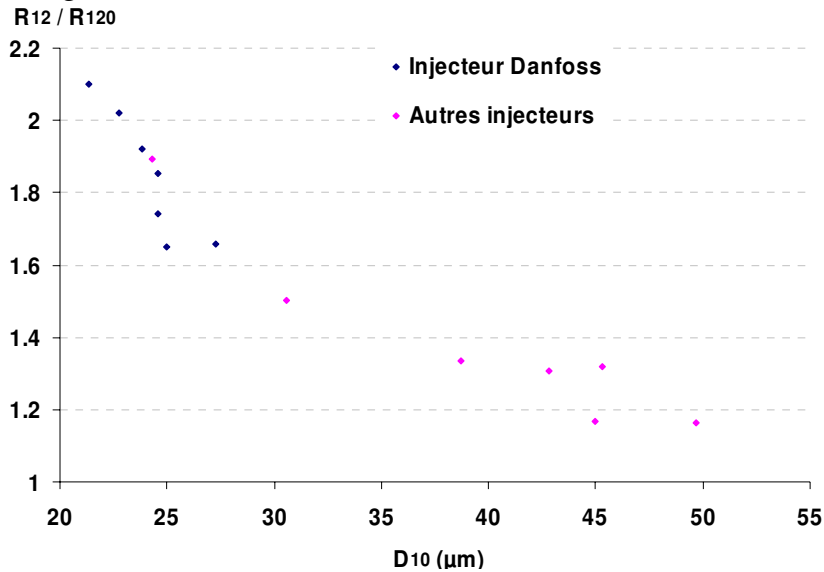


Figure 4.60 : Variation du rapport de fluorescence normalisé avec le diamètre statistique  $D_{10}$ .

#### 4.5.4 Influence de la concentration du traceur fluorescent

La concentration en traceur fluorescent utilisée était de  $C=5.10^{-6}$  mol/l pour les mesures précédentes. Nous avons voulu étudier l'effet de la concentration sur l'amplitude de la variation du rapport de fluorescence en fonction de la pression, pour des concentrations multipliées par 10 et par 100. Les variations du rapport de fluorescence en fonction de la pression d'injection sont représentées figure 4.61, pour les trois concentrations du traceur envisagées :  $C=5.10^{-6}$ ,  $C=5.10^{-5}$  et  $C=5.10^{-4}$  mol/l. Il apparaît clairement que la variation du rapport de fluorescence avec la pression est réduite significativement lorsque la concentration du traceur fluorescent est augmentée. De même, plus la concentration en traceur fluorescent est importante, plus le rapport est proche de celui mesuré dans la cellule de référence. Pour la concentration  $C=5.10^{-4}$  mol/l, le rapport de fluorescence est égal à celui obtenu dans la cellule de référence pour les plus faibles pressions ( $P < 4$  bars).

L'amplitude de la variation relative du rapport de fluorescence avec la pression a été évaluée pour chaque concentration testée ainsi que la différence par rapport à la mesure de référence.

C (mol/l)	Variation du rapport de fluorescence avec la pression $P$ [2 bars ; 7 bars]	Ecart du rapport de fluorescence par rapport à la référence (%)
$5.10^{-6}$	31 %	116%
$5.10^{-5}$	22 %	38%
$5.10^{-4}$	15,5 %	10%

Tableau 4.3 : Variation et écart du rapport de fluorescence par rapport à la référence

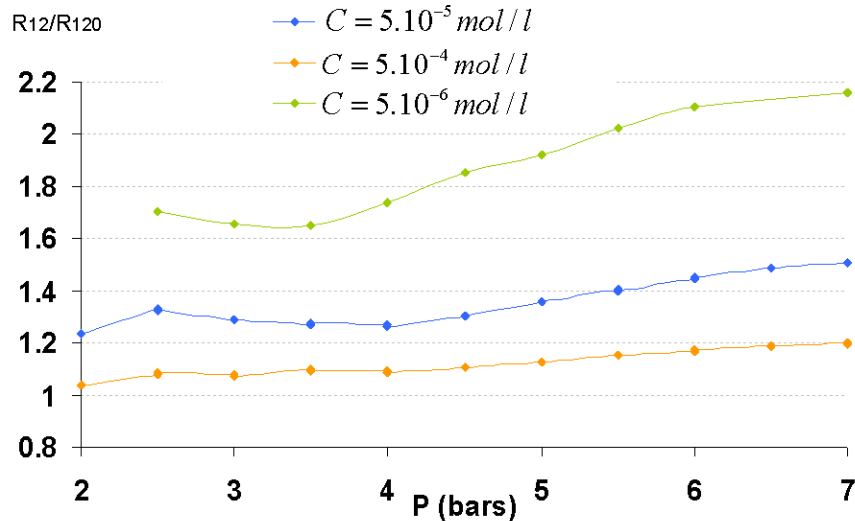


Figure 4.61 : Evolution du rapport de fluorescence en fonction de la pression d'injection pour différentes concentrations du traceur fluorescent.

#### 4.5.5 Expériences sur des gouttes individuelles calibrées

La mesure des rapports de fluorescence, conjointement à la mesure du diamètre moyen  $D_{10}$  par la technique phase Doppler nous révèle une augmentation du rapport  $R_{12}$  quand la taille moyenne des gouttes diminue. Afin de confirmer et de quantifier précisément ce phénomène, une série d'expériences sur des gouttes calibrées de tailles connues ont été menées. Pour cela, l'injecteur monodisperse, muni de différents orifices calibrés a été utilisé afin d'examiner l'influence de la taille des gouttes.

Dans un premier temps, la concentration du traceur fluorescent de la solution utilisée est fixée à  $C=5.10^{-6} \text{ mol/l}$ , les hautes tensions des PM étant maintenues constantes pour tous les diamètres de goutte envisagés. L'amplitude du signal évoluant grossièrement avec le cube du diamètre des gouttes, a été ajustée en modifiant la puissance laser. Pour chaque diamètre de goutte généré, les rapports de fluorescence  $R_{12}$  et  $R_{32}$  sont déterminés. Néanmoins, l'utilisation de l'injecteur monodisperse avec de l'eau n'a pas permis d'obtenir des gouttes de très petits diamètres (inférieur à  $60 \mu\text{m}$ ).

- **Influence du diamètre des gouttes**

L'évolution du rapport de fluorescence normalisé par rapport à celui mesuré en cuve est présenté en fonction de la taille de goutte figure 4.62 pour les rapport  $R_{12}$  et  $R_{32}$  respectivement. Une dispersion notable des mesures peut être constatée, lorsque la mesure est répétée plusieurs fois pour des tailles voisines. Celle-ci peut être attribuée au fait que la trajectoire des gouttes peut sensiblement évoluer d'une mesure à l'autre ce qui conduit rapidement à un désalignement du jet par rapport au volume de collection; la trajectoire étant rectiligne, l'ensemble des gouttes considérées dans la mesure (100 000) est affectée par ce phénomène. L'amplitude du signal chutant très rapidement avec le désalignement, le calcul du rapport de fluorescence devient relativement imprécis. Pour cette raison, plusieurs mesures seront réalisées pour des tailles voisines puis moyennées. Une influence significative du diamètre des gouttes sur les rapports de fluorescence peut être constatée dans le cas des gouttes individuelles ; cette tendance évolue dans le même sens que celle constatée dans le spray en faisant varier le diamètre statistique  $D_{10}$ . Le rapport de fluorescence diminue lorsque le taille des gouttes augmente et tend vers le rapport de référence mesuré en cuve pour des diamètres de l'ordre de  $200 \mu\text{m}$ . Pour les plus grosses gouttes, le rapport de fluorescence  $R_{12}$  devient inférieur au rapport de référence du fait de la réabsorption du signal de fluorescence à

l'intérieur de la goutte. A titre d'exemple, pour un trajet optique de  $250\ \mu\text{m}$  et une concentration en traceur de  $C=5.10^{-6}\ \text{mol/l}$ , la réabsorption conduit à une diminution du rapport  $R_{12}$  d'environ 2.5 %. Ce phénomène n'est pas observé pour le rapport  $R_{32}$  du fait de l'important décalage entre les bandes spectrales considérées et le spectre d'absorption du traceur.

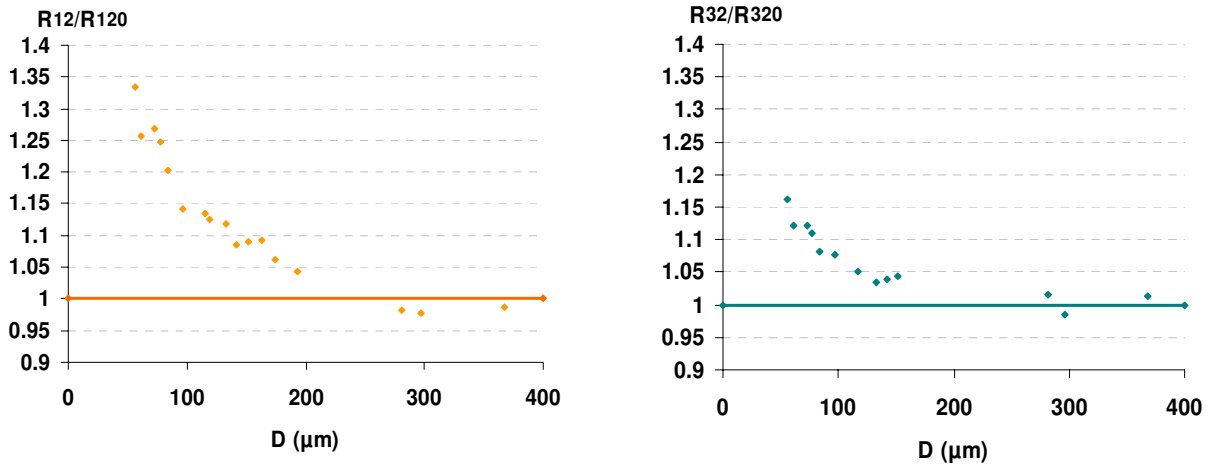


Figure 4.62 : Evolution du rapport  $R_{12}$  et  $R_{32}$  normalisé par la référence en cuve en fonction du diamètre des gouttes.

Le spectre de fluorescence, normalisé selon la relation (4.15) enregistré pour deux tailles de gouttes très différentes peut être comparé au spectre de référence mesuré en cuve (figure 4.63). Il apparaît une nette déformation accompagnée d'un décalage vers le bleu pour le spectre mesuré sur la plus petite taille de goutte ( $D=64\ \mu\text{m}$ ), alors que le spectre enregistré sur les gouttes de plus gros diamètre ( $D=329\ \mu\text{m}$ ) est tout à fait comparable à celui mesuré dans la cellule de référence agitée.

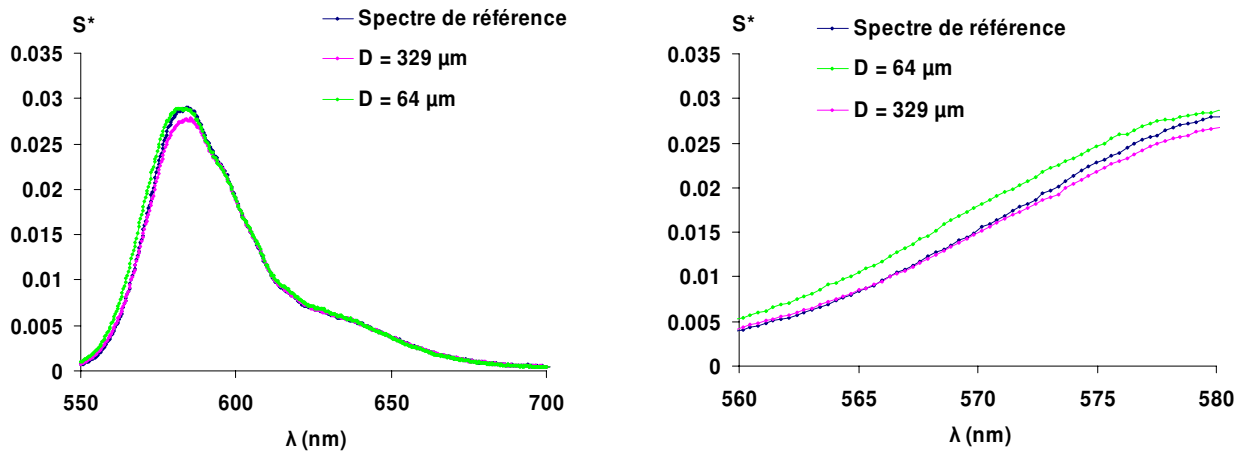


Figure 4.63 : Comparaison des spectres de fluorescence obtenus sur des gouttes de diamètre  $D=64\ \mu\text{m}$ , et  $D=329\ \mu\text{m}$  avec le spectre de référence.

• **Influence de la concentration du traceur**

Tout comme dans les sprays, les mesures des rapports de fluorescence sur des gouttes individuelles calibrées ont été renouvelées avec une concentration en traceur multipliée par 10, soit  $C=5.10^{-5}$  mol/l. Ces résultats sont portés, pour le rapport de fluorescence  $R_{12}$ , sur la figure 4.64 et ont été superposés à ceux obtenus avec une concentration 10 fois plus faible. De même, les résultats pour le rapport  $R_{32}$  sont représentés figure 4.65. Pour des gouttes de diamètre compris entre 75  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$ , le rapport  $R_{12}$  est très proche de la valeur de référence. Pour des gouttes d'un diamètre supérieur, le rapport  $R_{12}$  décroît significativement du fait de la réabsorption de la fluorescence, très importante à une concentration  $C=5.10^{-5}$  mol/l. Ainsi, il semblerait, comme constaté précédemment au cours des mesures effectuées sur le spray, que l'augmentation de la concentration du traceur fluorescent diminue l'influence de la taille des gouttes sur le rapport de fluorescence.

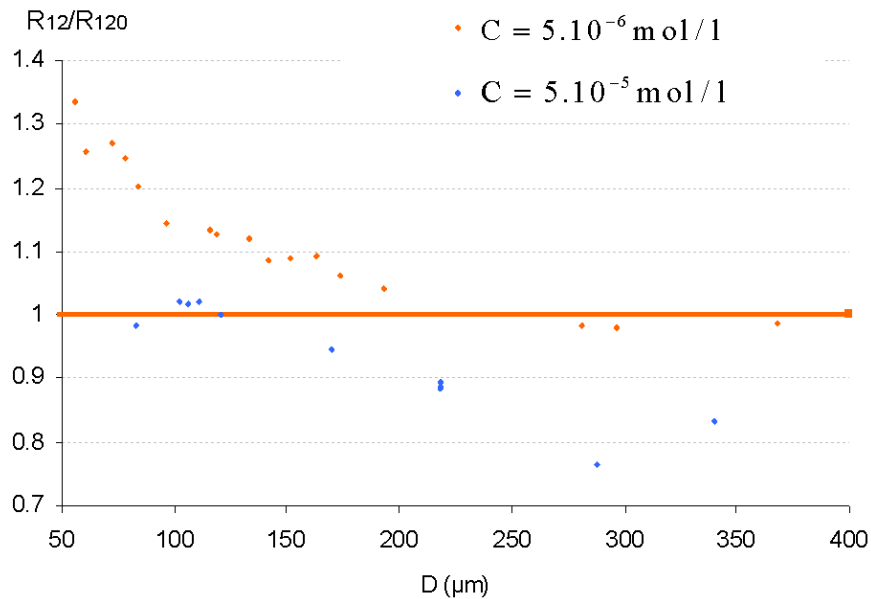


Figure 4.64 : Evolution du rapport normalisé  $R_{12}$  en fonction du diamètre des gouttes pour une concentration en traceur  $C=5.10^{-6}$  mol/l et  $C=5.10^{-5}$  mol/l.

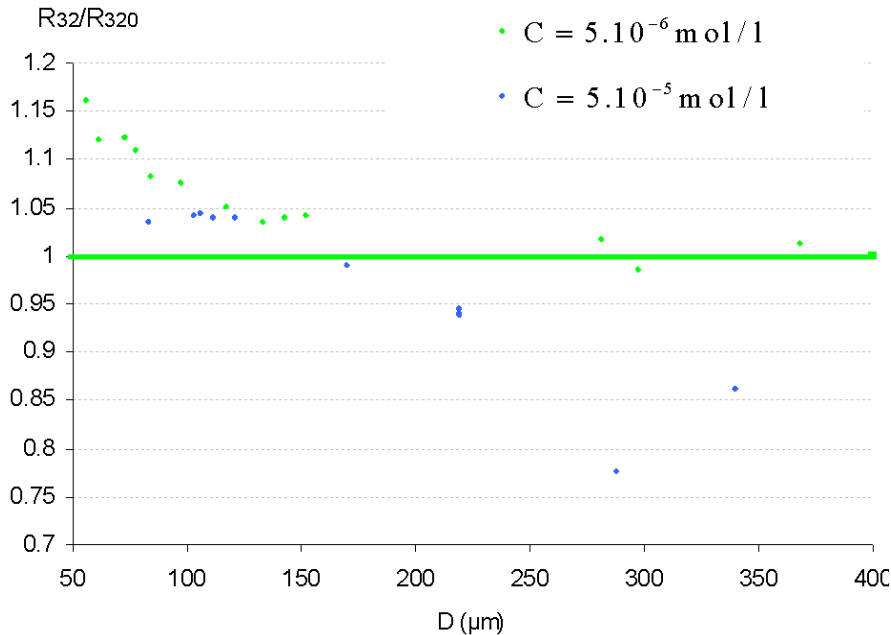


Figure 4.65 : Evolution du rapport normalisé  $R_{32}$  en fonction du diamètre des gouttes pour une concentration en traceur  $C=5.10^{-6}$  mol/l et  $C=5.10^{-5}$  mol/l.



### 4.5.6 Nouvelle approche de la modélisation du signal de fluorescence émis par une gouttelette

Les mesures réalisées dans le spray, puis sur les gouttes individuelles, ont mis en évidence une influence non linéaire et inattendue de la taille des gouttes et de la concentration du traceur fluorescent, ces deux derniers paramètres modifiant de manière conjointe le rapport de fluorescence.

Plus particulièrement, il a été observé une augmentation du rapport de fluorescence quand la taille des gouttes diminue. De plus, l'influence non linéaire de la taille des gouttes diminue lorsque la concentration du traceur fluorescent augmente. Ainsi, il devrait être possible de décrire cette dépendance par une fonction dépendant d'un paramètre unique écrit en fonction de la concentration  $C$  et du diamètre  $D$ . Une approche simple consisterait à écrire ce paramètre sous la forme du produit de deux monômes de type  $C^\alpha D^\beta$ . Une simple analyse dimensionnelle permet de fixer les exposants à  $\alpha = 1/3$  et  $\beta = 1$ .

Par conséquent, il est nécessaire de modifier l'équation rendant compte l'intensité de fluorescence intégrée sur une bande spectrale. Une fonction empirique  $g_i$ , qui caractérise l'effet non linéaire de la taille des gouttes combiné à celui de la concentration du traceur est introduite. Cette fonction est spécifique à la bande spectrale considérée. En supposant une indépendance entre la fonction  $g(C^{1/3}D)$  et la fonction décrivant la sensibilité en température  $f(T)$  de la fluorescence, il est possible de réécrire l'intensité de fluorescence collectée sur une bande spectrale  $i$ :

$$I_{fi} = K_{opt,i} K_{spec,i} V_c I_o C g_i(C^{1/3}D) f_i(T) \quad (4.16)$$

Avec  $f_i(T) = e^{\frac{A_i}{T^2} + \frac{B_i}{T}}$

Les données expérimentales issues des mesures du rapport  $R_{12}/R_{120}$  en fonction du diamètres de la goutte sont retracées figure 4.66 en fonction de ce paramètres adimensionnel  $C^{1/3}.D$ . Cette tendance semble bien vérifiée expérimentalement dans le domaine où la réabsorption a une influence limitée.

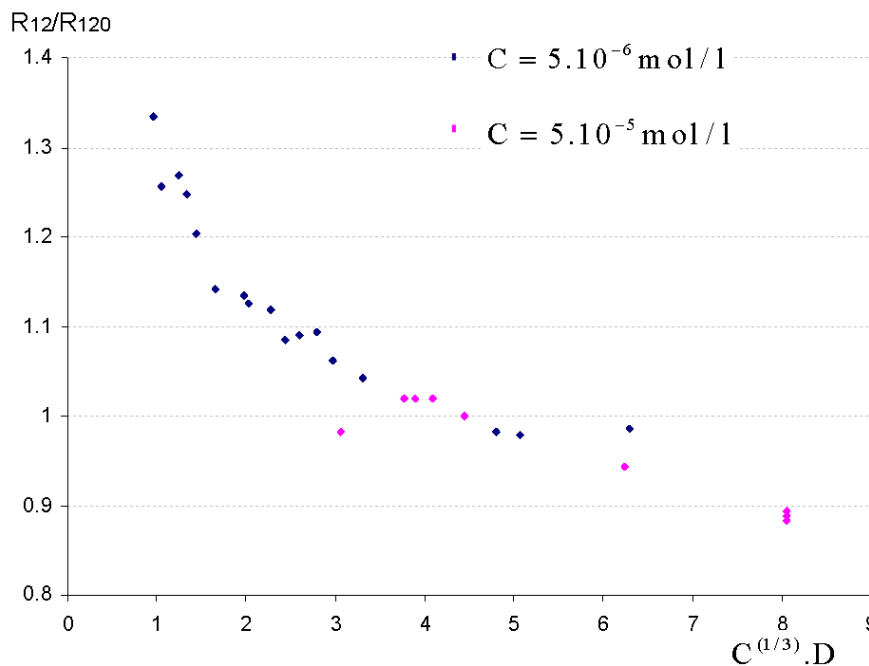


Figure 4.66 : Evolution du rapport normalisé  $R_{12}$  en fonction du paramètre adimensionnel.

### 4.5.7 Tentative d'interprétation physique

La modification de la distribution spectrale de la fluorescence observée dans un spray est directement liée à l'addition de la contribution individuelle de chaque gouttelette traversant le volume d'excitation. Même si le phénomène reste toujours inexpliqué, quelques hypothèses concernant l'interprétation physique de l'origine de l'effet non linéaire de la taille des gouttes sur la distribution spectrale de fluorescence peuvent être discutées.

Une première interprétation du phénomène pourrait tenir à l'apparition d'émissions stimulées au sein de la goutte du fait du développement de modes de résonance morphologique (Azzouz et al., 2006). Quand de petites gouttelettes sont impliquées, une partie de la lumière incidente peut être piégée aux alentours de la surface de gouttelette, au-delà de l'angle limite de réflexion. L'amplification de quelques longueurs d'ondes du spectre de fluorescence peut survenir si la phase de l'onde est inchangée après un nombre entier de rotation dans la goutte. En raison des hauts niveaux d'énergie alors mis en jeu, il peut en résulter une émission stimulée du traceur fluorescent, les gouttelettes se comportant alors comme des microcavités, conduisant à des pics dans le spectre de fluorescence. Ce phénomène, appelé MDR (Morphology Dependent Resonance) est principalement fonction de la taille des gouttes, de la longueur d'onde, de l'absorption et du spectre d'émission du traceur. La présence de MDRs dépend de la concentration en traceur fluorescent. Néanmoins, aucun pic n'a été observé sur les spectres de fluorescence mesurés, probablement à cause de la faible résolution du spectromètre qui est limité à environ 1 nm et du fait que les spectres ne sont pas enregistrés sur une gouttelette seule, mais sur une collection de plusieurs milliers de gouttelettes. L'émission stimulée est fortement réduite, voire complètement supprimée en augmentant les pertes le long du chemin optique, qui croît lorsque la concentration en traceur augmente, ce qui est cohérent avec les observations expérimentales. Néanmoins, des études plus poussées doivent être menées afin de tester valablement cette hypothèse, notamment en réalisant des spectres à haute résolution sur des gouttes individuelles.

Une autre interprétation peut être liée à l'augmentation de la densité locale de l'énergie excitatrice en certaines zones de la goutte, en particulier lorsque sa taille décroît. Les zones de fortes intensités excitatrices peuvent influencer les mécanismes de désactivation non radiative. Ce type de phénomène conduit en général à une modification du spectre et à un décalage vers le bleu (longueurs d'ondes plus faibles) ; ce phénomène a en particulier été observé dans le cas de la Rhodamine 6G, dans des conditions statiques en cuve (Hung et al., 2003).

Cependant, cette hypothèse reste peut convaincante étant données que la gouttes est en mouvement, ce qui conduit à un temps d'exposition à l'intensité lumineuse assez faible.

Une dernière hypothèse, nettement plus convaincante provient des travaux antérieurs de Habuchi et al. (2000). La durée de vie de la fluorescence de la rhodamine 6G (R6G) en solution dans des gouttelettes composées d'un mélange d'éthylène glycol et d'eau, dispersées dans une matrice solide, a été mesurée. Une diminution tout à fait significative de la durée de vie de la fluorescence de la R6G a été constatée lorsque le diamètre des gouttelettes diminue. Une influence de la concentration en R6G est également notée. Parallèlement, des mesures de spectrométrie d'absorption révèlent une formation de dimères de la R6G, facilitées par la diminution du diamètre des gouttes et l'augmentation de la concentration en R6G. Ainsi, le dimère aurait tendance à provoquer un important quenching de l'état excité du monomère. Parallèlement, l'étude spectrale révèle une extension du spectre vers les basses longueurs d'onde. L'augmentation du taux de production de dimères lorsque le diamètre des gouttes décroît peut être reliée à l'accroissement des forces liées à la tension superficielle, notamment au voisinage de l'interface. Cette hypothèse devra être également soigneusement testée.

### 4.5.8 Influence de la profondeur de champ du dispositif optique

Nous venons de constater une influence de la taille des gouttes sur le rapport de fluorescence. Cet effet a été mis en évidence tout d'abord sur un spray puis sur des gouttes individuelles. Cependant, les conditions de mesure du signal de fluorescence dans un spray diffèrent sensiblement de celles rencontrées pour des gouttes individuelles. Dans ce dernier cas, la profondeur de champ de l'optique de collection n'intervient pas.

Dans un spray, la présence de multiples gouttelettes dans un même voisinage provoque des phénomènes de diffusion très importants. Prenons l'exemple d'une goutte centrée dans le volume d'excitation laser. Cette goutte diffuse de manière très intense la lumière laser incidente, qui va à son tour illuminer les gouttes dans un proche voisinage qui vont à leur tour diffuser cette lumière. Il y a donc formation d'un halo de diffusion d'autant plus intense que la densité particulaire du spray est importante. Cette diffusion à la longueur d'onde du laser va donc également induire de la fluorescence en dehors du volume de mesure. A titre d'exemple, la figure 4.67 présente deux images du halo laser et de l'émission fluorescente correspondante. Les deux images ont été réalisées à deux pressions différentes: 2 bars correspondant à une faible densité particulaire et 7 bars correspondant à une forte densité particulaire.

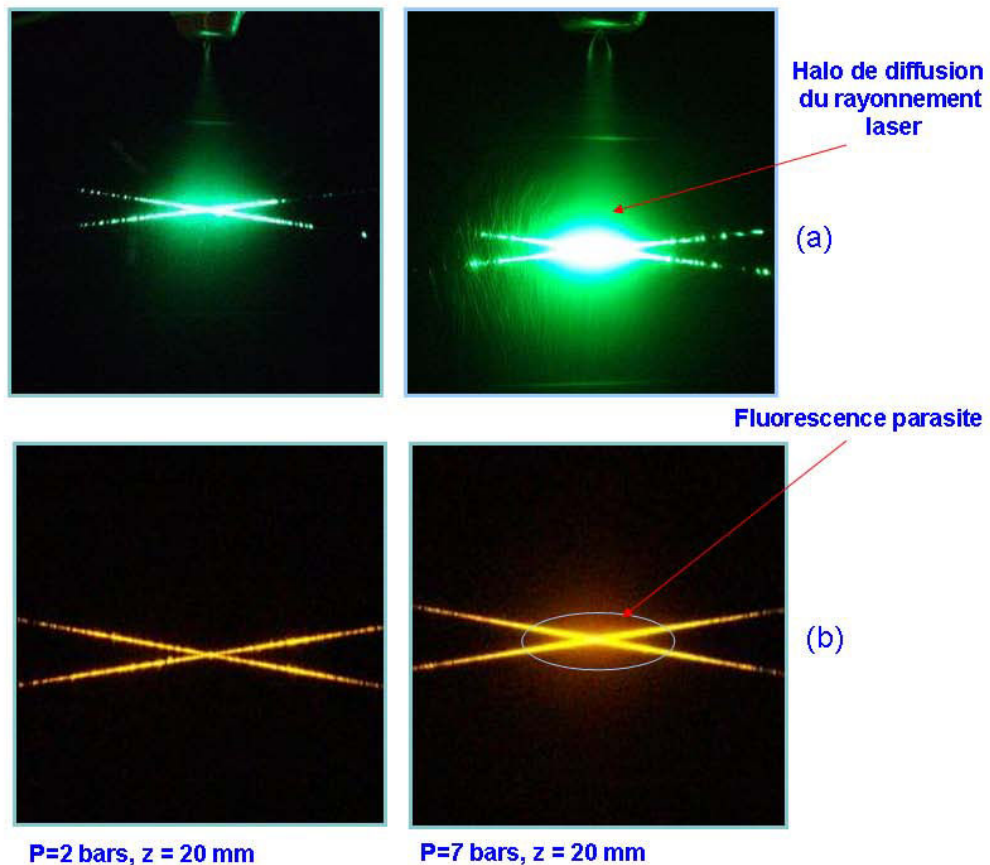


Figure 4.67 : Illustration de la formation du halo laser en fonction de la densité du spray (a) et induction de fluorescence parasite (b).

Même si l'optique de collection est réglée de telle manière que le centre du volume d'excitation laser soit dans le plan focal, la profondeur de champ permettra de détecter du signal de fluorescence hors plan focal.

Quelques expériences simples ont permis d'évaluer cette profondeur de champ et d'en examiner l'influence sur la mesure.

- **Estimation par profondeur de champ**

La source de lumière est un jet de gouttes monodisperse (diamètre 100  $\mu\text{m}$ ), dûment excité en un point par la sonde laser (figure 4.68). Ce dispositif est fixe dans l'espace et l'optique de collection de la fluorescence est réglée sur ce point. Cette optique est ensuite déplacée progressivement de manière à s'éloigner du point source fluorescent (axe  $x$ ). La figure 4.69 représente les intensités collectées sur les voies de mesure 1 et 2 en fonction de la défocalisation  $x$ . L'intensité collectée reste à peu près au même niveau que dans le plan focal sur une distance d'environ 2 mm et devient négligeable au-delà de 6 mm. Il apparaît donc clairement que l'optique de collection peut détecter de l'émission de fluorescence parasite sur un domaine spatial très important. En revanche, le rapport de fluorescence est assez peu affecté par la défocalisation et se maintient à un niveau relativement constant sur plus de 2 mm. Cette courbe peut en quelque sorte être considérée comme la fonction de transfert spatiale de l'optique de collection LIF.

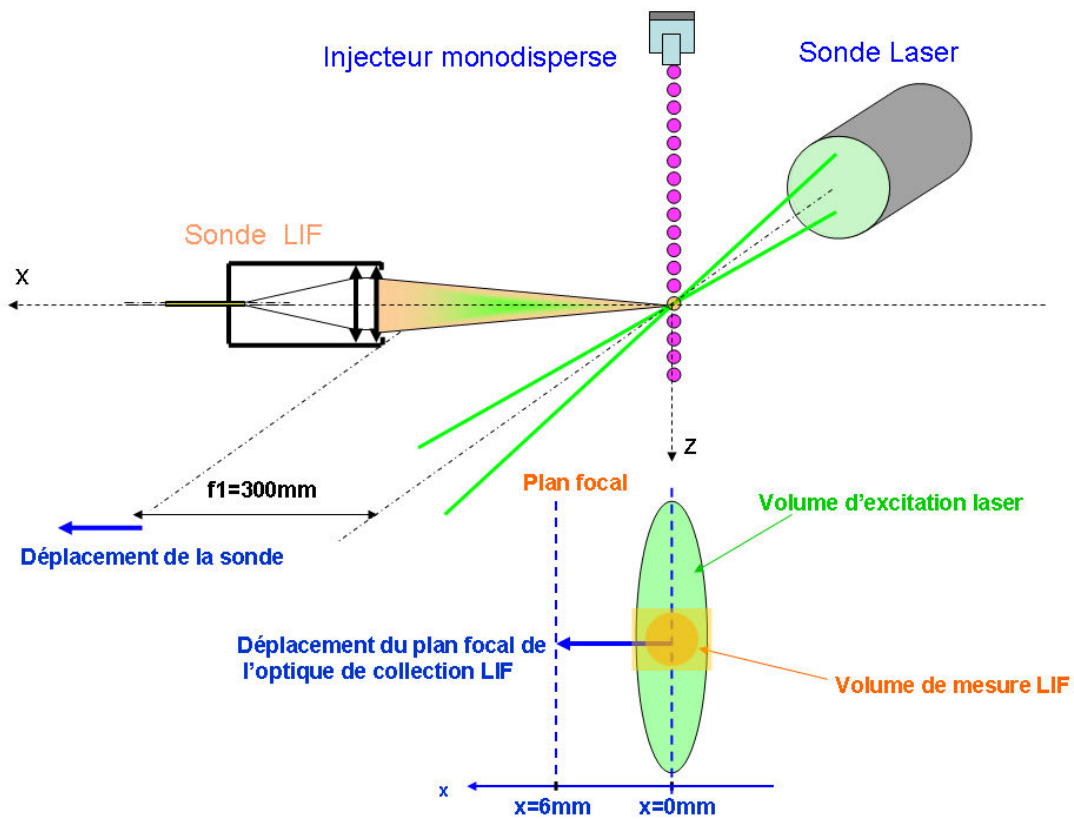


Figure 4.68 : Expérience d'estimation de la profondeur de champ du dispositif de collection de la fluorescence.

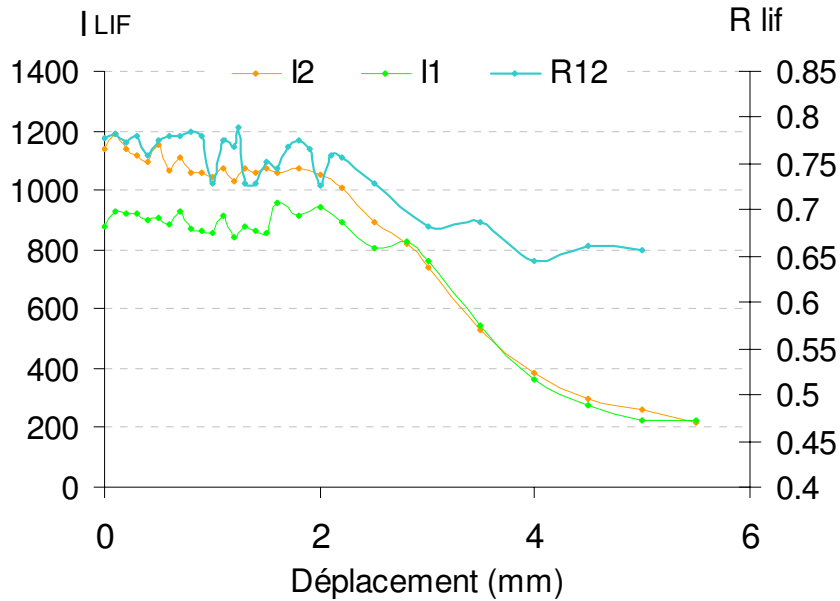


Figure 4.69 : Variation des intensités et du rapport de fluorescence en fonction de la défocalisation de l'optique de collection LIF.

- **Conséquences de la profondeur de champ sur la mesure dans un spray**

Des mesures obéissant à un processus similaire ont été réalisées dans le spray Danfoss à  $z=20$  mm (figure 4.70). Cependant, contrairement à l'expérience précédente, le halo laser induit une fluorescence parasite au voisinage du domaine d'excitation laser. La profondeur de champ de l'optique, estimée précédemment permet alors de voir cette fluorescence parasite.

Les intensités mesurées sur chacune des voies de mesure sont présentées figure 4.71 en fonction de la défocalisation  $x$ . L'intensité détectée diminue régulièrement lorsque la défocalisation augmente. Une intensité correspondant au tiers du maximum est encore détectable à environ 15 mm du plan focal de l'optique. En revanche, le rapport  $R_{12}$  croît régulièrement (10% environ) sur les 15 mm explorés.

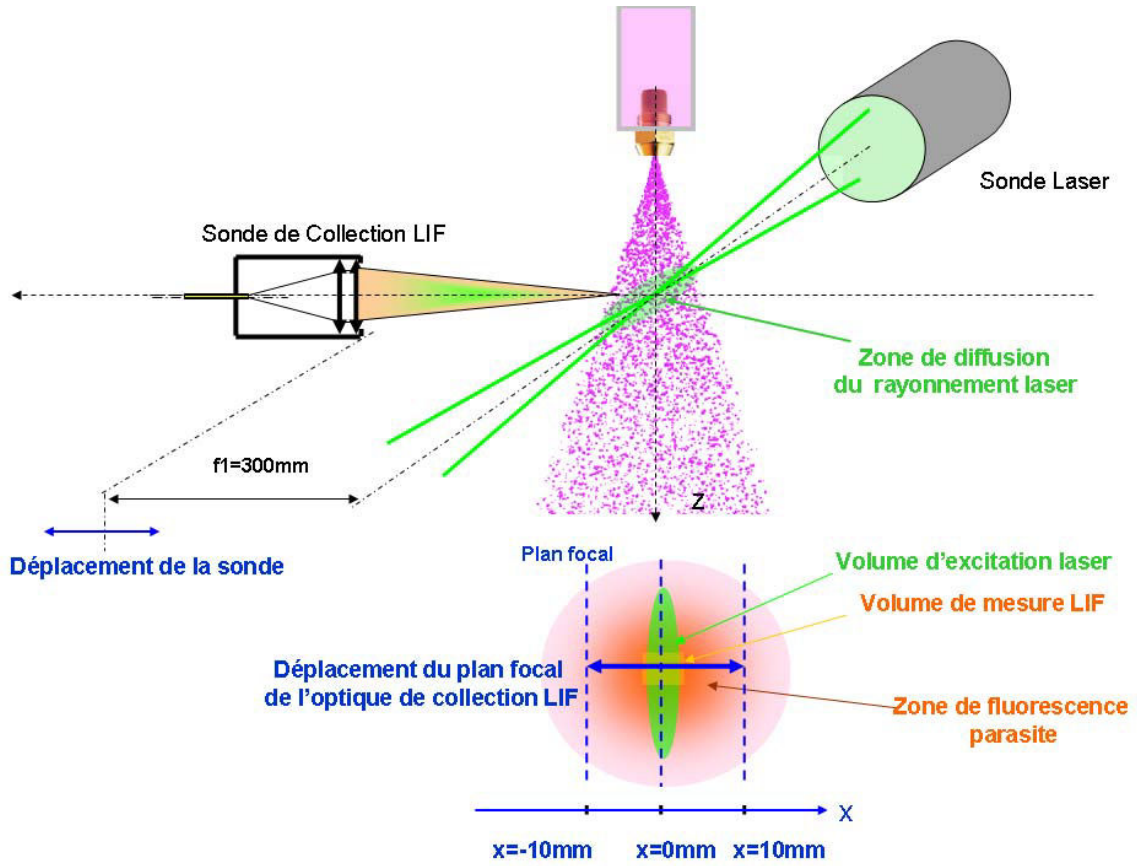


Figure 4.70 : expérience de défocalisation de la sonde LIF dans le spray. Estimation de l'effet de la profondeur de champ sur la mesure du signal de fluorescence dans un spray.

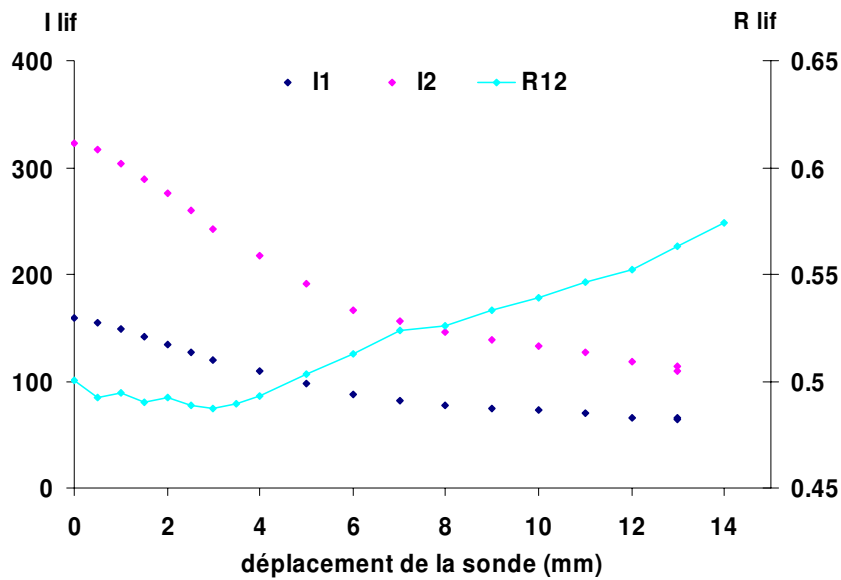


Figure 4.71 : variation des intensités et du rapport de fluorescence en fonction de la défocalisation de l'optique de collection.

### 4.5.9 Conclusion partielle

L'étude menée précédemment s'est déroulée en deux temps :

- 1- Mesure du rapport de fluorescence dans un spray: l'influence non-linéaire et conjointe de la distribution granulométrique des gouttes et de la concentration du traceur fluorescent a été mise en évidence. De plus, la diffusion de la lumière laser conduit à une induction de fluorescence bien au-delà du volume de mesure. L'importante profondeur de champ des optiques de collection utilisées conduit à une détection non négligeable de signal en dehors du volume de mesure.
- 2- L'influence non-linéaire et conjointe de la distribution granulométrique des gouttes et de la concentration du traceur fluorescent a également été mise en évidence pour des gouttes individuelles et calibrées.
- 3- En l'état actuel, il est donc difficile de séparer les différents phénomènes observés dans le spray, ceux provenant de la sommation des effets de gouttes individuelles et les effets collectifs liés à la fluorescence 'parasite' détectée hors du volume de mesure.

La technique de couplage LIF/PDA, décrit précédemment devrait permettre une meilleure compréhension de ces phénomènes.

## 4.6 Mesures couplées LIF/PDA dans le spray

L'ensemble des mesures présentées ci-après a été réalisé avec une concentration en traceur fluorescent  $C=5.10^{-6}$  mol/l.

### 4.6.1 Remarques préliminaires

La dynamique de la technique LIF est différente de celle du PDA : ainsi, les plus petits diamètres détectés par le PDA seront ignorés par la LIF, qui selon les réglages de la chaîne opto-électronique effectués, ne peuvent être inférieurs à environ 30  $\mu\text{m}$ . Un histogramme de taille à  $z=13$  mm et pour une pression d'injection de 4 bars a été déterminé à partir des mesures brutes issues du PDA et sur les mesures PDA coïncidant avec une mesure LIF. Ces deux histogrammes sont comparés figure 4.72. Comme attendu, l'histogramme semble présenter une coupure aux alentours de  $D=30$   $\mu\text{m}$  ; de plus, la densité de probabilité se répartit sur les classes de tailles correspondant aux plus gros diamètres. Néanmoins, un pic assez marqué apparaît en dessous de 30  $\mu\text{m}$ , alors que l'intensité de fluorescence émise par des gouttes d'un tel diamètre ne devrait pas être détectée. Ce phénomène peut-être attribué aux effets de la profondeur de champ de l'optique de collection de la fluorescence, mis en évidence précédemment. En effet, si une goutte de diamètre inférieur à 30  $\mu\text{m}$  traverse le volume de mesure, elle pourra être détectée par le PDA et induire par sa diffusion de la fluorescence sur une goutte de plus gros diamètre située au-delà du volume d'excitation.

Afin de parachever l'interprétation de ce phénomène, l'intensité maximum sur la voie 2, présentant le meilleur rapport signal/bruit, a été représentée en fonction du diamètre  $D$  déterminé à partir des données PDA cumulées à celles de la technique LIF (figure 4.73), lors d'une expérience de couplage des deux techniques. La corrélation entre ce maximum d'intensité et le diamètre des gouttes est très claire entre les diamètres 30  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$ . Le plateau observé au-delà de 100  $\mu\text{m}$  résulte du caractère gaussien du faisceau et du fait que le diamètre de la goutte devient plus grand que le diamètre du faisceau laser au col.

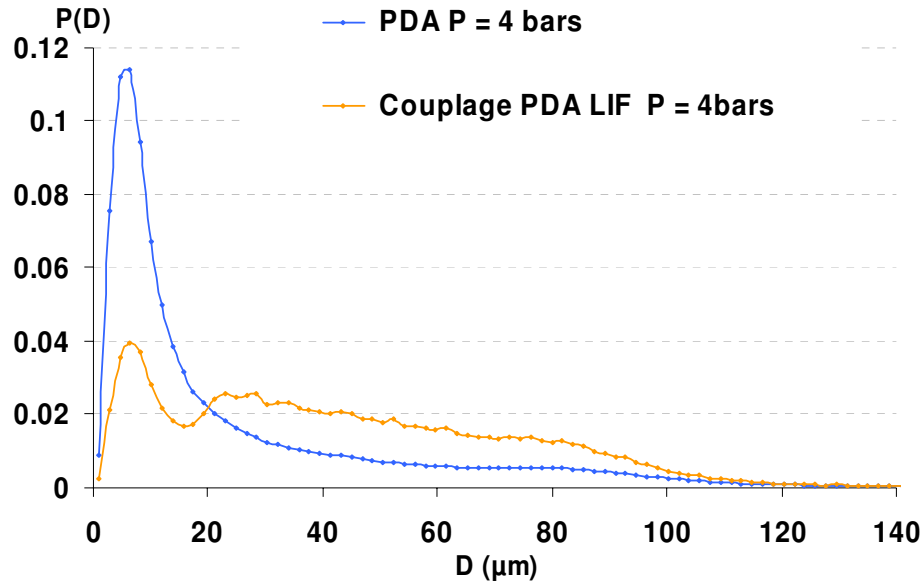


Figure 4.72 : Histogrammes de taille fondés sur les mesures PDA brutes et les mesures PDA et LIF communes.

Pour les diamètres inférieurs à 30  $\mu\text{m}$ , les gouttes de petites tailles, majoritaires dans le spray étudié, détectées par le PDA sont associées à des gouttes détectées par la LIF de plus gros diamètres situées hors du volume de mesure du PDA. C'est pourquoi le maximum de fluorescence croît lorsque le diamètre décroît. Il apparaît que le nombre de gouttes de petites tailles est nettement majoritaire, ce qui nous aidera à interpréter les mesures qui vont suivre.

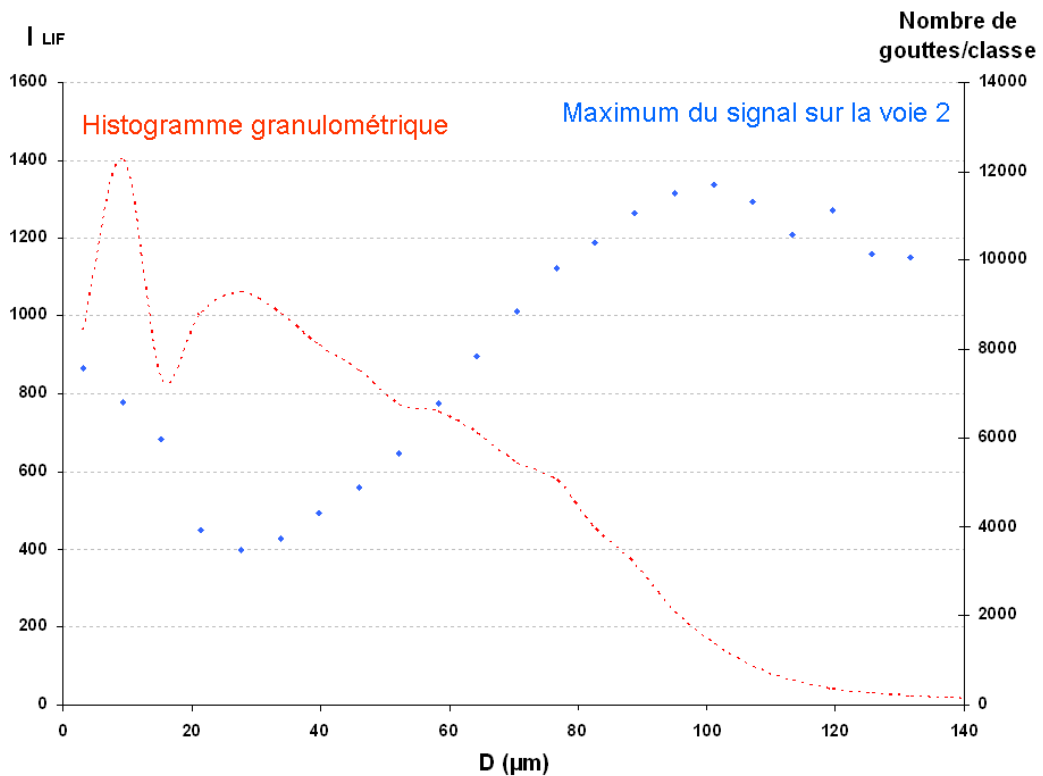


Figure 4.73 : Evolution du maximum d'intensité de fluorescence (voie 2) en fonction du diamètre mesuré par le PDA ( $z=13\text{mm}$  sur l'axe du spray,  $P=4,5$  bars).



L'effet de la différence de dynamique entre les 2 techniques peu être mis en évidence à l'aide de l'expérience suivante. La pression d'injection est modifiée dans la gamme 3 bars à 6,5 bars et les rapports de fluorescence sont mesurés à une position axiale de 13mm en dessous du point d'injection. L'évolution de  $R_{12}$  ou  $R_{13}$  en fonction du diamètre statistique  $D_{10}$  des gouttes est présentée figure 4.74 dans deux cas :

- Lorsque  $D_{10}$  est calculé sur l'ensemble des gouttes détectées par le PDA
- Lorsque  $D_{10}$  est calculé sur l'ensemble des gouttes détectés à partir des événements communs par le système couplé PDA/LIF.

Une claire translation du diamètre  $D_{10}$  apparaît ainsi qu'une modification significative de l'évolution des rapports de fluorescence en fonction de  $D_{10}$ .

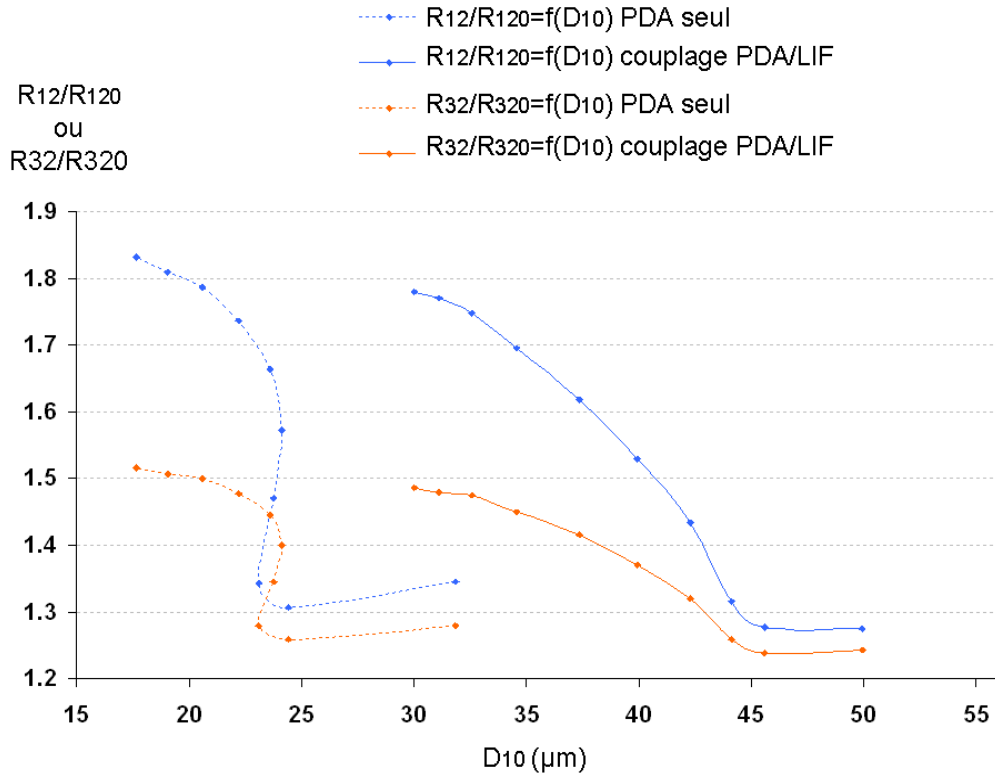


Figure 4.74 : Evolution des rapports LIF en fonction du  $D_{10}$  mesuré pour les différentes pression d'injection. (D10 issu des mesures PDA seul et issu des mesures couplées)

#### 4.6.2 Conséquences métrologiques de l'environnement spray

L'accroissement de la pression d'injection ( $\Delta P = P - P_a$ ) conduit à une augmentation du débit volumique de liquide tel que, grossièrement,  $Q_v \propto \sqrt{\Delta P}$ . Il s'ensuit donc un accroissement de la densité du spray (nombre de particules par unité de volume) lorsque la pression est accrue. La densité particulaire peut être estimée à l'aide du PDA : cette valeur est à considérer avec une grande prudence et de manière relative, étant donné les nombreux biais mis en évidence dans la littérature (Roisman et Tropea, 2001).

La figure 4.75 présente la variation de la densité particulaire estimée à l'aide du PDA, à  $z=13$  mm sur l'axe du spray, lorsque la pression d'injection est augmentée.

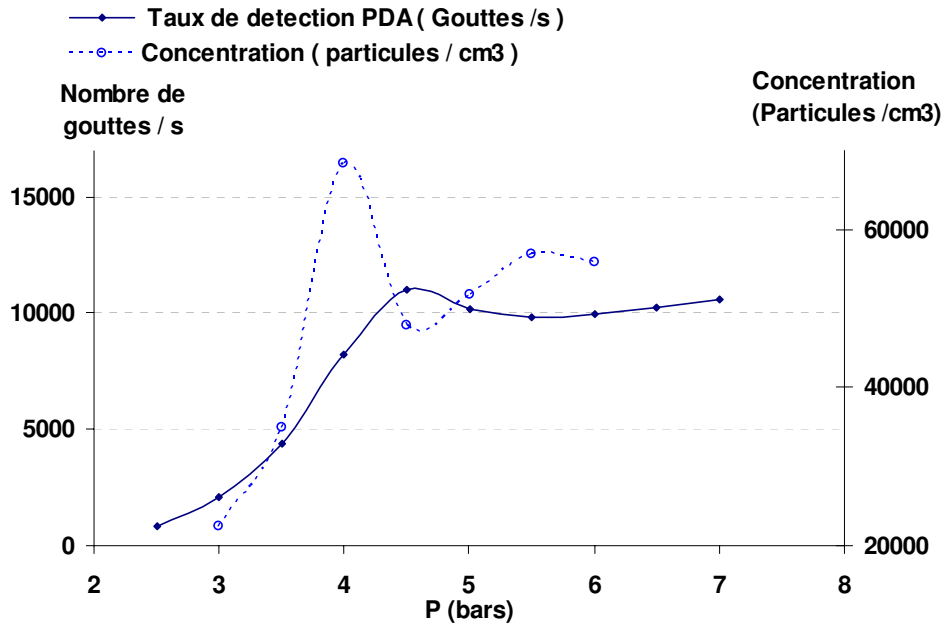


Figure 4.75 : Evolution de la concentration particulaire du taux de détection avec la pression d'injection ( $z=13$  mm, axe central).

Un fort accroissement de la densité particulaire est constaté lorsque la pression est accrue, paramètre assez bien corrélé avec le taux de détection du PDA également porté sur la figure 4.75. Les histogrammes granulométriques mesurés non loin du point d'injection pour des pressions d'injection  $P$  variant de 2,5 bars à 6,5 bars sont relativement voisins (figure 4.76). Sur la figure 4.77, sont également portées les distributions granulométriques correspondant aux distances axiales  $z = 20$  mm, 45 mm et 90 mm pour  $P = 5$  bars. Ainsi, du fait de l'accroissement de la densité particulaire, une goutte de taille donnée aura davantage de gouttes dans son voisinage proche et étant donné les histogrammes de taille observés, il s'agira essentiellement de petites gouttes.

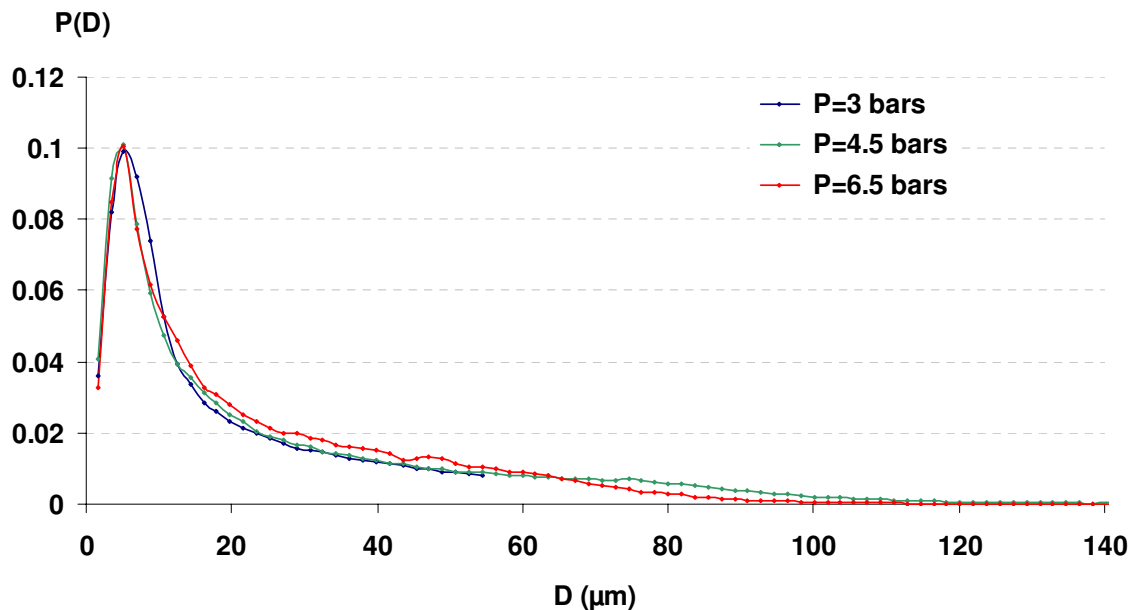


Figure 4.76 : PDF de taille pour différentes pressions à  $z=13$  mm sur l'axe central du spray.

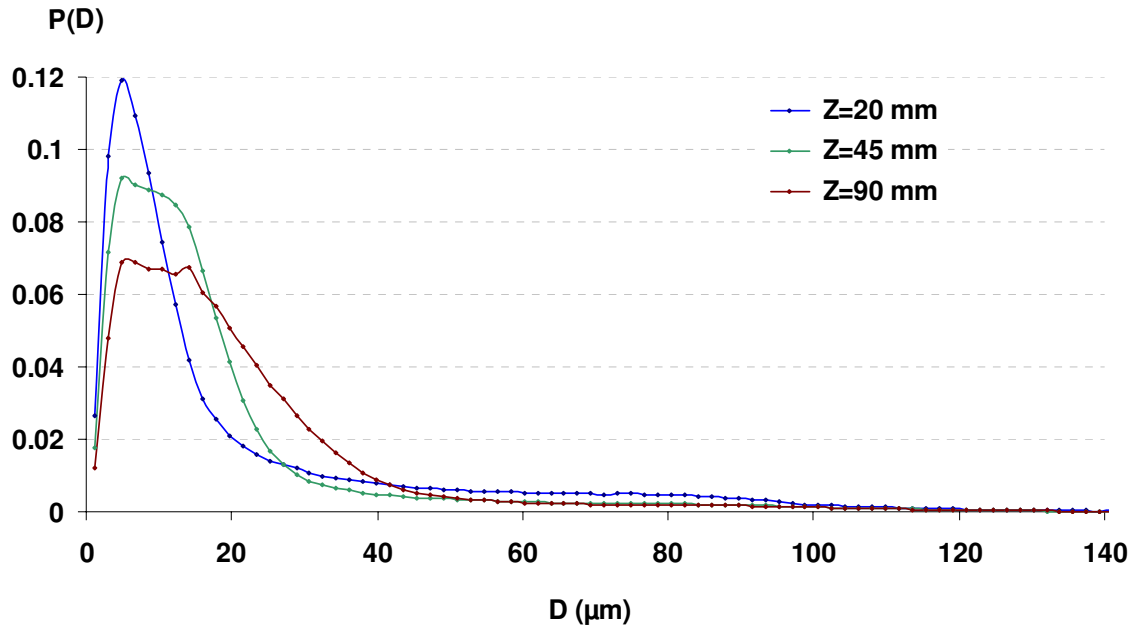


Figure 4.77 : PDF de taille pour différentes positions à  $P=5$  bars sur l'axe central du spray.

Par ailleurs, lorsque l'on considère des positions sur l'axe du spray plus éloignées ( $z=90$  mm) par exemple, la densité particulaire, estimée à l'aide du PDA, diminue (figure 4.78) du fait de l'évasement du spray, phénomène par ailleurs en partie compensé par la diminution de la vitesse des gouttes qui peut être constatée sur les histogrammes de la figure 4.79. L'historgramme granulométrique est modifié dans le sens d'une augmentation de la taille moyenne des gouttes.

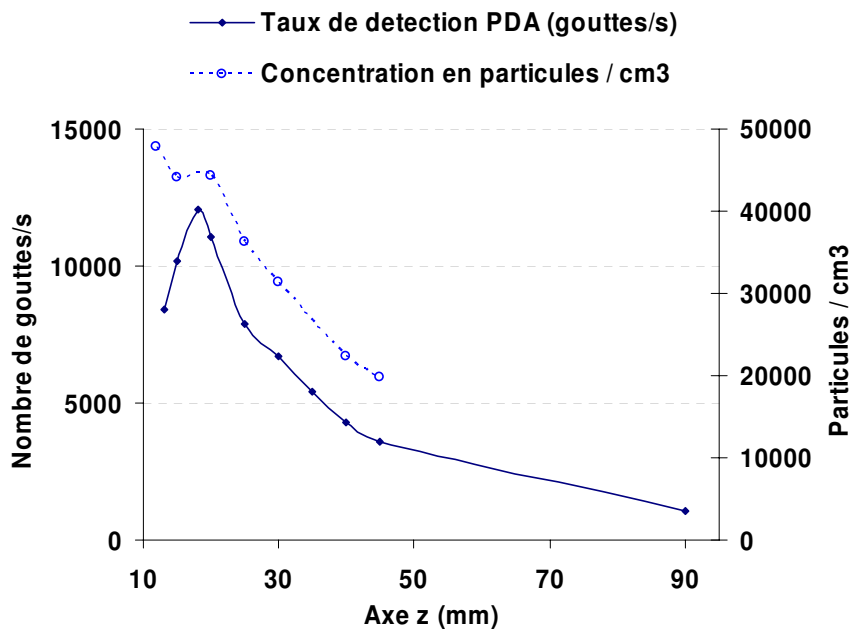


Figure 4.78: Estimation de la densité particulaire le long de l'axe vertical du spray et taux de détection des gouttes issu du PDA.

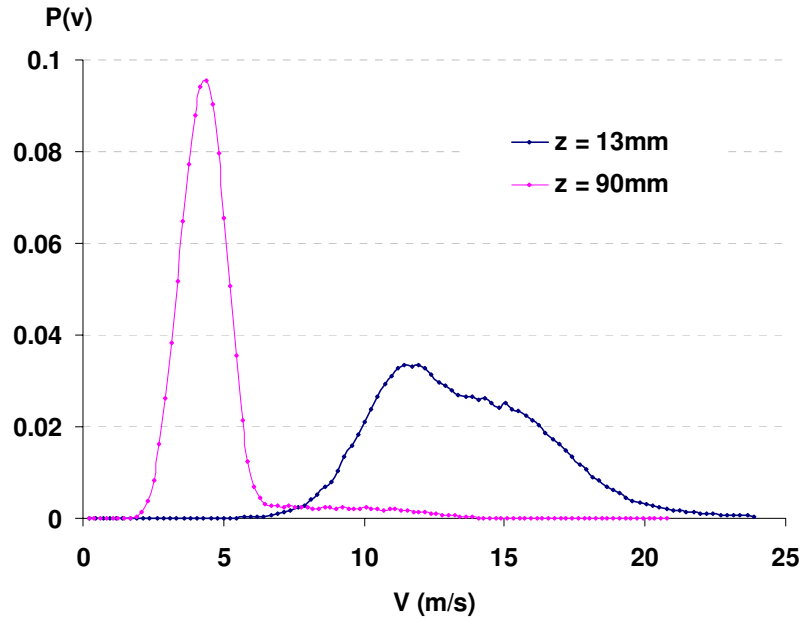


Figure 4.79 : Distribution de vitesse des gouttes dans le spray mesurée à deux distance axiales ( $P=5$  bars).

Il a été montré clairement que la taille de goutte avait une influence marquée sur le rapport de fluorescence ; en effet, celui-ci augmente de manière importante lorsque la taille de goutte diminue (voir figure 4.63). Ce résultat a été obtenu pour des gouttes isolées de l'environnement spray (expérience jet monodisperse).

Lorsque la mesure est effectuée dans un environnement de type spray, le rayonnement laser incident est fortement diffusé, notamment lorsqu'une goutte traverse le volume de mesure, là où la densité d'énergie laser est la plus élevée. Ainsi, lorsque le spray est dense, cette diffusion de l'intensité laser induit une fluorescence « parasite » qui vient s'ajouter à la contribution de la goutte dopée en traceur fluorescent traversant effectivement le volume de mesure. De plus, le phénomène de diffusion est d'autant plus important que la densité du spray est grande. Il s'ensuit davantage de fluorescence parasite provenant de gouttes situées hors du volume de mesure. Une illustration de ce phénomène est donné figure 4.80 : une série de photographies de la région du volume de mesure, réalisées à des pressions croissantes, lorsque le rayonnement laser diffusé est filtré, donne une bonne idée de l'accroissement de la fluorescence parasite. Ajoutons que la profondeur de champ du système optique de collection utilisé permet de voir une partie de la fluorescence parasite, induite par la lumière laser diffusée.

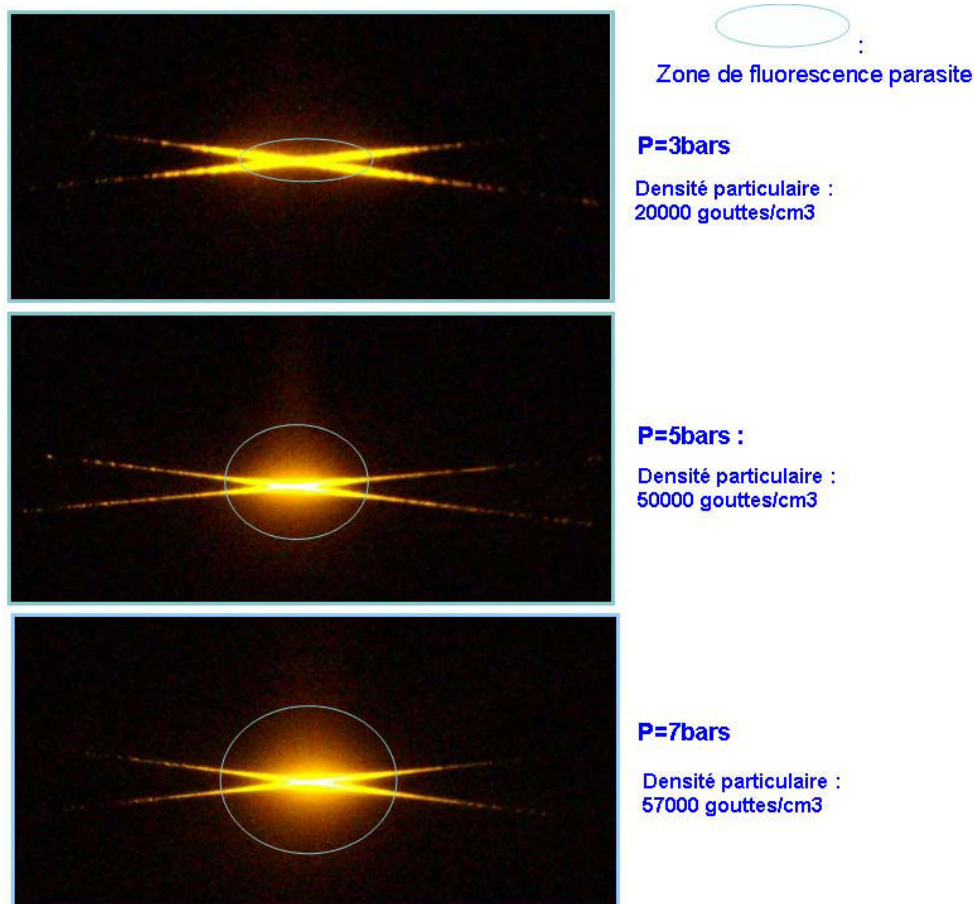


Figure 4.80 : Photographie de la fluorescence au niveau du volume de mesure pour différentes pressions d'injection.

### 4.6.3 Couplages LIF-PDA : résultats et interprétation

Des couplages LIF-PDA permettant d'accéder à la mesure du rapport de fluorescence  $R_{12}$  par classe de taille ont été effectués dans une zone très proche du point d'injection ( $z=13$  mm) pour différentes pressions d'injection. Puis l'opération a été renouvelée pour des positions axiales plus éloignées de la buse (typiquement  $z=20, 45$  et  $90$  mm).

Sur la figure 4.81, il apparaît que l'évolution mesurée à  $z=13$  mm pour une pression  $P=2,5$  bars, coïncide avec celle enregistrée pour les gouttes individuelles. Notons par ailleurs, que pour cette pression, la densité du spray est modérée, il y a donc peu d'influence de la fluorescence parasite issue des gouttes situées hors du volume de mesure. Lorsque la pression est augmentée et pour une même position, l'évolution du rapport de fluorescence normalisé en fonction du diamètre des gouttes semble subir un décalage global vers des valeurs plus élevées. Rappelons également que lorsque la pression d'injection augmente, l'histogramme granulométrique est modifié assez modérément ; il évolue vers des tailles de goutte plus petites, alors que la densité du spray augmente. A titre d'exemple, on examinera sur la figure 4.82 l'évolution du diamètre moyen  $D_{10}$  en fonction de la pression d'injection à  $z=13$  mm, lorsque le calcul est effectué à l'aide des données PDA brutes et des données couplées avec la LIF.

Ce décalage peut être attribué à l'apparition d'un bruit parasite, constitué par la fluorescence de gouttes essentiellement de petites tailles, présentant donc un rapport de fluorescence élevé. Le nombre de ces petites gouttes contribuant fortement à l'augmentation du rapport de fluorescence croît avec la densité du spray et tend donc à augmenter le bruit parasite, ce qui

correspond à translater la courbe d'évolution du rapport en fonction du diamètre mesuré à l'aide du PDA vers des valeurs élevées sans grande modification de la tendance générale (figure 4.81). Notons aussi, qu'individuellement, ces gouttes seraient probablement inférieures au seuil de détection imposé par l'algorithme de traitement du signal, mais leurs contributions cumulées tend à créer le bruit de fond. Ce phénomène est illustré figure 4.83. Sur la figure 4.81, est également représentée l'évolution du rapport de fluorescence moyen normalisé (déterminé sur la population de goutte détectée par le système couplé PDA/LIF) et mesuré dans le spray en fonction du diamètre statistique moyen  $D_{10}$ . La variation de  $D_{10}$  est obtenue par variation de la pression d'injection entre 2,5 bars et 6,5 bars. Il apparaît que la valeur du rapport normalisé évolue entre les valeurs déterminées à l'aide du coulage PDA-LIF pour des classes de taille correspondant au diamètre statistique  $D_{10}$  déterminé dans les conditions décrites précédemment.

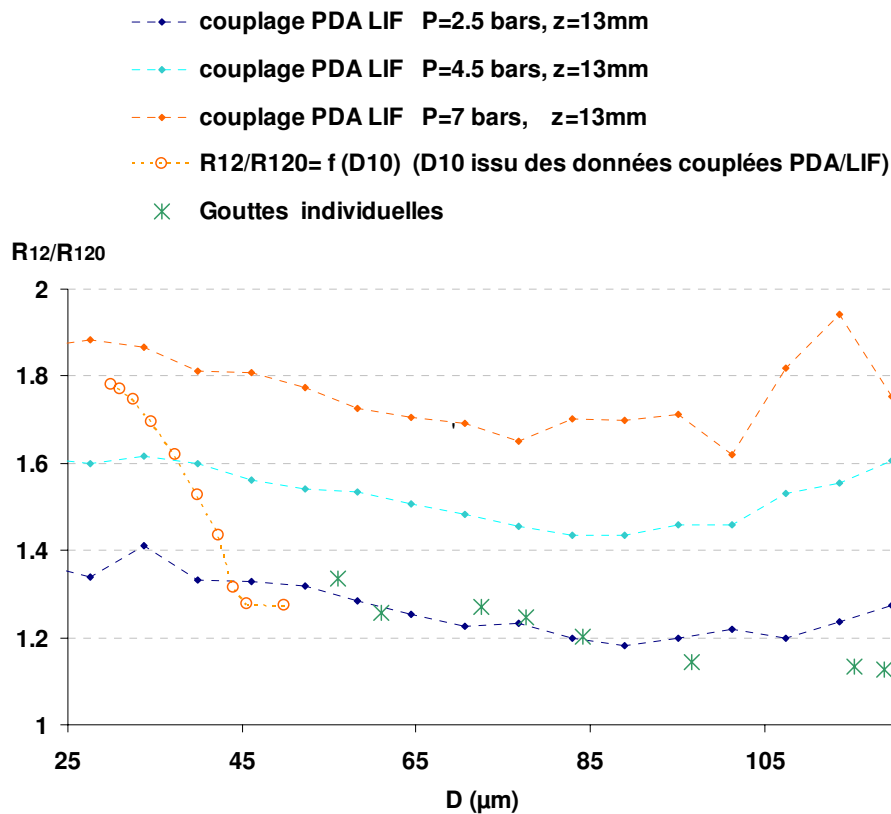


Figure 4.81 : Résultats de couplage LIF-PDA pour différentes pressions d'injection ( $z=13$  mm) : évolution du rapport normalisé en fonction du diamètre des gouttes. Comparaison au cas des gouttes individuelles.

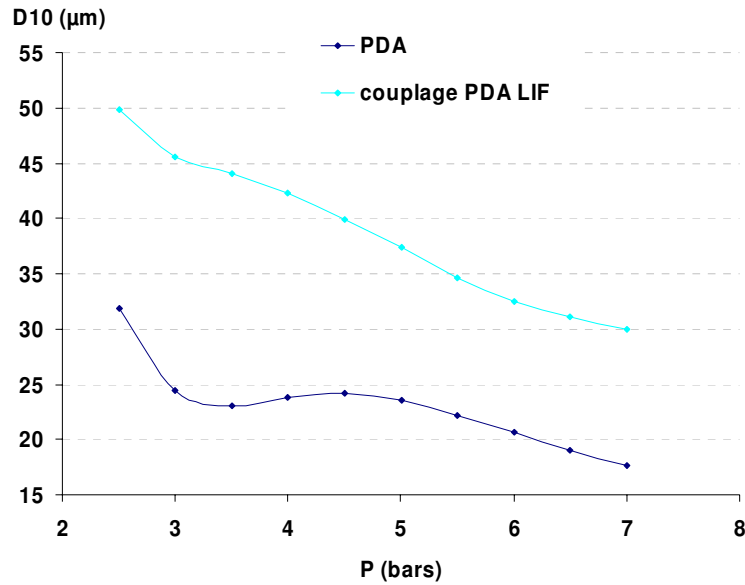


Figure 4.82 : Evolution du diamètre moyen  $D_{10}$  en fonction de la pression d'injection à  $z=13$  mm, calculé sur les données PDA brutes et les données couplées PDA/LIF.

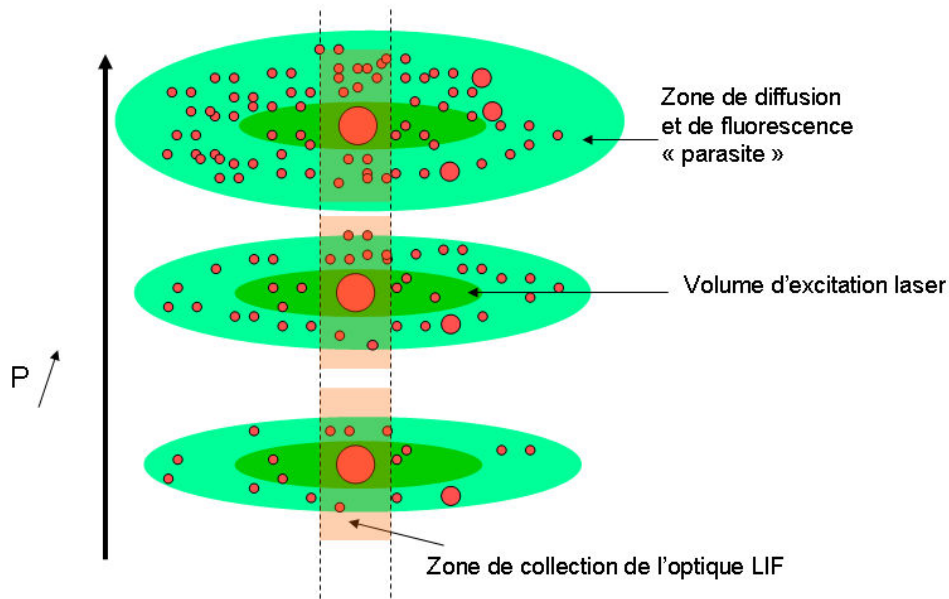


Figure 4.83 : illustration du phénomène de fluorescence parasite.

Ainsi, le diamètre statistique  $D_{10}$  calculé à partir des gouttes détectées simultanément par le dispositif LIF et le PDA semble représenter de manière correcte la population des gouttes contribuant réellement au rapport signal de fluorescence, en y incluant la fluorescence issue des gouttes parasites.

Pour parachever l'interprétation des résultats précédents, ajoutons une remarque supplémentaire : une goutte contribue au signal de fluorescence avec un poids évoluant à peu près en  $D^3$  et diffuse la lumière laser avec une dynamique de l'ordre de  $D^2$ . Le rapport fluorescence/diffusion évolue donc grossièrement comme  $D$ . La diffusion diminue donc moins vite que la fluorescence et sera donc susceptible d'influencer d'avantage les gouttes de petite taille en générant relativement plus de fluorescence parasite par rapport à la fluorescence émise par la goutte traversant effectivement le volume de mesure.

Ce phénomène est peu visible lorsque le spray est très dense ( $z=13$  mm, par exemple), où un nombre significatif de grosses gouttes (ne faisant que peu augmenter le rapport de fluorescence) contribue ainsi à la fluorescence parasite.

Le phénomène est beaucoup plus marqué pour des positions axiales plus éloignées du point d'injection où le spray présente moins de gouttes de grosses tailles dans la contribution de la fluorescence parasite. A titre d'exemple, la courbe correspondant à  $z=90$  mm ( $P=5$  bars) a été reportée sur la figure 4.84. Pour les grosses tailles de gouttes, la valeur du rapport de fluorescence normalisé coïncide pratiquement avec le cas des gouttes individuelles. Ce rapport augmente ensuite fortement pour les petites tailles de goutte: ceci peut s'expliquer par l'accroissement de la contribution de la diffusion induisant de la fluorescence parasite, par rapport à la fluorescence de la goutte traversant effectivement le volume de mesure. Cette très forte augmentation du rapport normalisé est également à rapprocher de l'augmentation du poids relatif des gouttes de petite taille (autour de  $10 \mu\text{m}$ ) qui contribuent ainsi avec un rapport de fluorescence élevé. Cette forte augmentation du rapport de fluorescence peut-être déduite de l'extrapolation de la courbe décrivant l'évolution du rapport normalisé des gouttes individuelles en fonction du diamètre; en effet, les expériences pour des gouttes allant jusqu'à  $10 \mu\text{m}$  de diamètre n'ont pas été possibles avec de l'eau (figure 4.85). Ces observations sont confirmées par l'analyse du comportement des couplages LIF-PDA correspondant à la pression d'injection  $P=5$  bars. La diminution de la densité du spray entre  $z=45$  mm et  $z=90$  mm permet de mettre en évidence l'accord entre l'évolution du rapport normalisé mesuré dans le spray et celui mesuré sur les gouttes individuelles. Pour les plus petites tailles de goutte, ce rapport tend à augmenter fortement et ceci de manière corrélée au décalage de l'histogramme granulométrique vers les petites tailles de goutte (figure 4.86).

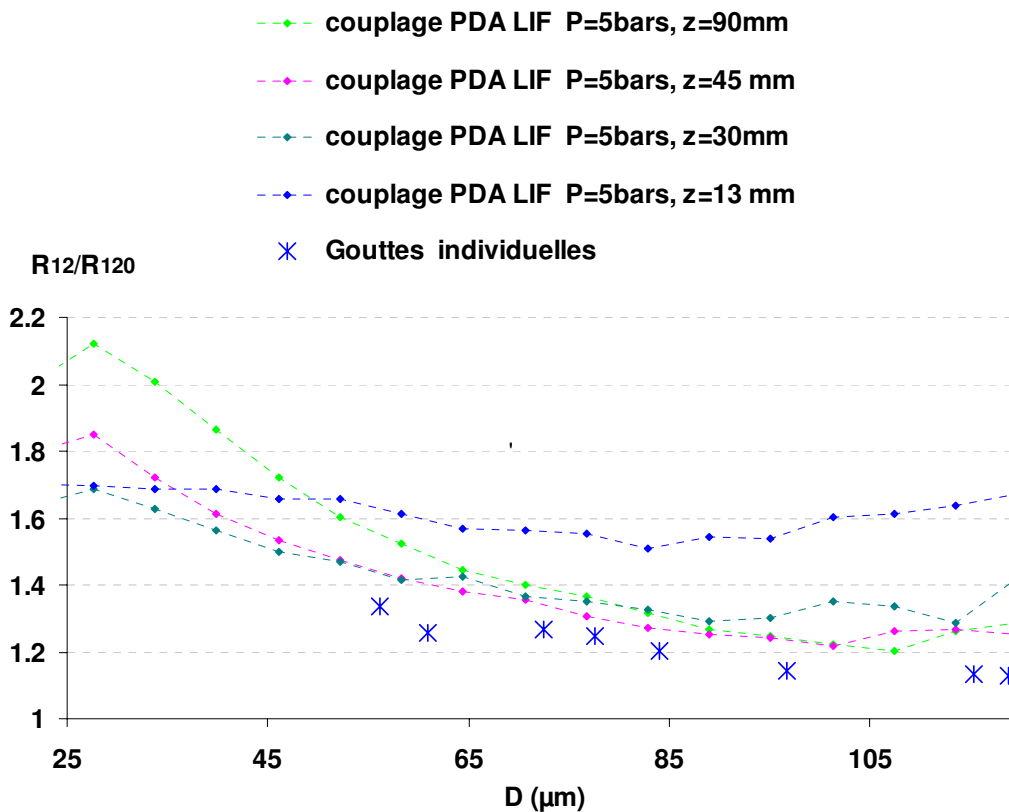


Figure 4.84 : résultats de couplage LIF-PDA pour  $P=5$  bars et à différentes distances axiales du point d'injection : évolution du rapport normalisé en fonction du diamètre des gouttes. Comparaison au cas des gouttes individuelles.



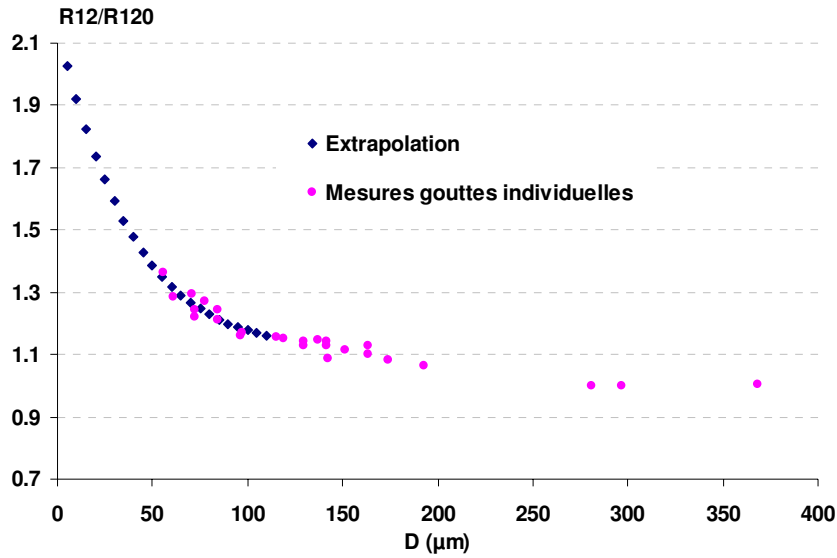


Figure 4.85 : Mesure de l'évolution du rapport normalisé de fluorescence en fonction du diamètre et extrapolation de la courbe jusqu'à  $D=5 \mu\text{m}$ .

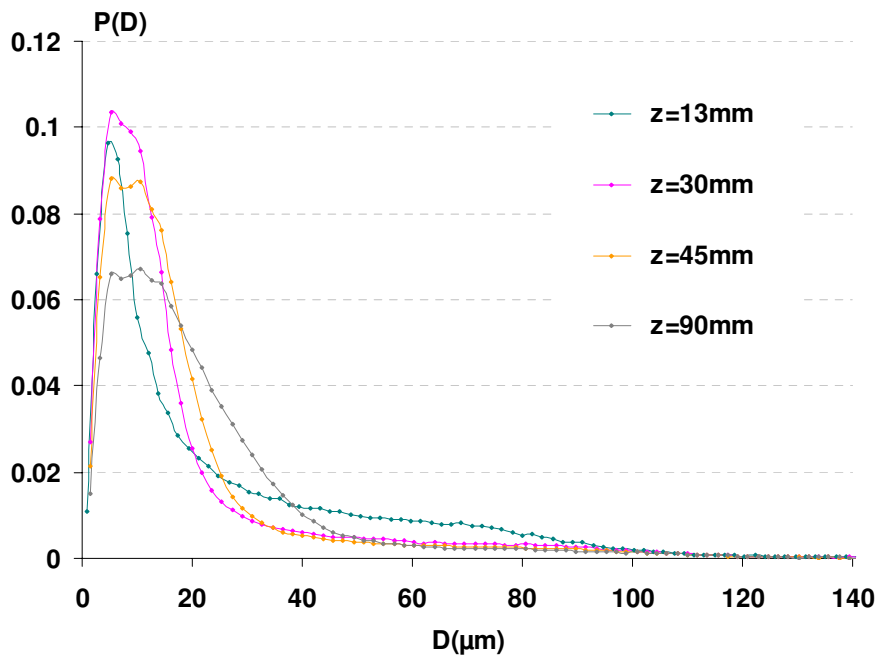


Figure 4.86 : Histogramme granulométrique correspondant aux différentes positions de mesure effectuées à  $P=5 \text{ bars}$ .

#### 4.6.4 Utilisation d'une troisième bande spectrale de détection

Comme vu précédemment, l'effet de la taille de la goutte sur le rapport de fluorescence correspond à une déformation globale du spectre de fluorescence, essentiellement visible pour des longueurs d'ondes inférieures à 580 nm. L'idée est de trouver une troisième bande spectrale de détection présentant également une dépendance à l'effet non linéaire de la taille des gouttes, mais qui diffère de celle observée sur la première bande spectrale.

Une troisième bande spectrale (notée bande 3) a été choisie, de manière légèrement décalée par rapport à la première. Les caractéristiques de cette bande sont:

- centre : 565 nm
- largeur de bande 20 nm

Le rapport de fluorescence  $R_{32}$  calculé entre les intensités émises respectivement sur la troisième et la deuxième bande spectrale est également sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes, comme le montre la figure 4.63 obtenue pour des gouttes individuelles. Néanmoins, notons que cette sensibilité est plus faible que pour le rapport  $R_{12}$ , du fait de la position des bandes de détection 2 et 3 dans le spectre d'émission, produisant donc un effet moindre du décalage vers le bleu. En revanche, une calibration effectuée dans la cellule contrôlée en température a montré que le rapport  $R_{32}$  était peu sensible à la température (figure 4.87).

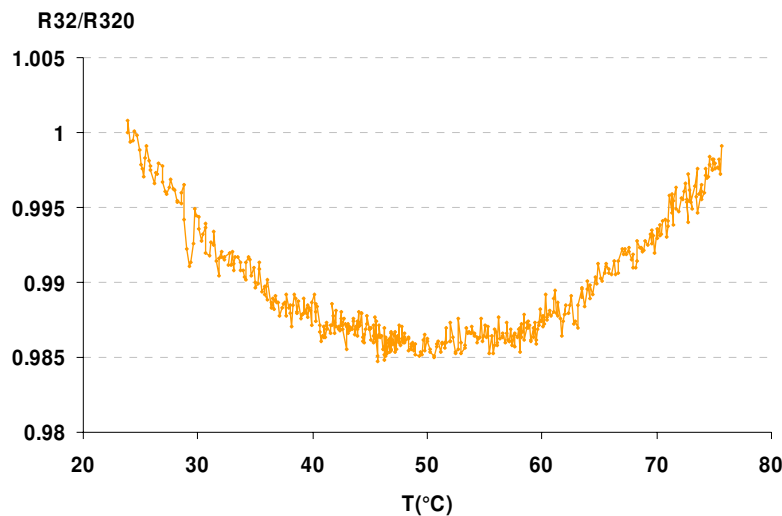


Figure 4.87 : Evolution du rapport  $R_{32}$  en fonction de la température.

L'évolution du rapport  $R_{32}$  en fonction du diamètre des gouttes a été mesurée dans le spray à l'aide de couplages LIF-PDA (figure 4.88).

Les conclusions sont relativement identiques à celles formulées pour le rapport  $R_{12}$ , à savoir :

- une bonne adéquation de l'évolution du rapport de fluorescence normalisé en fonction du diamètre mesuré à faible pression d'injection ( $P=2,5$  bars) avec celle obtenue pour des gouttes individuelles,
- un décalage global du rapport de fluorescence normalisé vers des valeurs élevées du rapport normalisé lié à l'augmentation de la densité du spray lorsque la pression d'injection augmente,
- une forte augmentation du rapport de fluorescence normalisé pour les petites classes de taille et les positions éloignées du point d'injection, corrélée au glissement de la distribution granulométrique vers les petites gouttes.

De même, l'évolution du rapport de fluorescence moyen normalisé mesuré dans le spray à  $z=13$  mm, c'est-à-dire dans des conditions à peu près isothermes, en fonction du diamètre statistique moyen  $D_{10}$ , calculé à partir des gouttes détectées par le dispositif couplé PDA/LIF, a été reportée sur la figure 4.89.

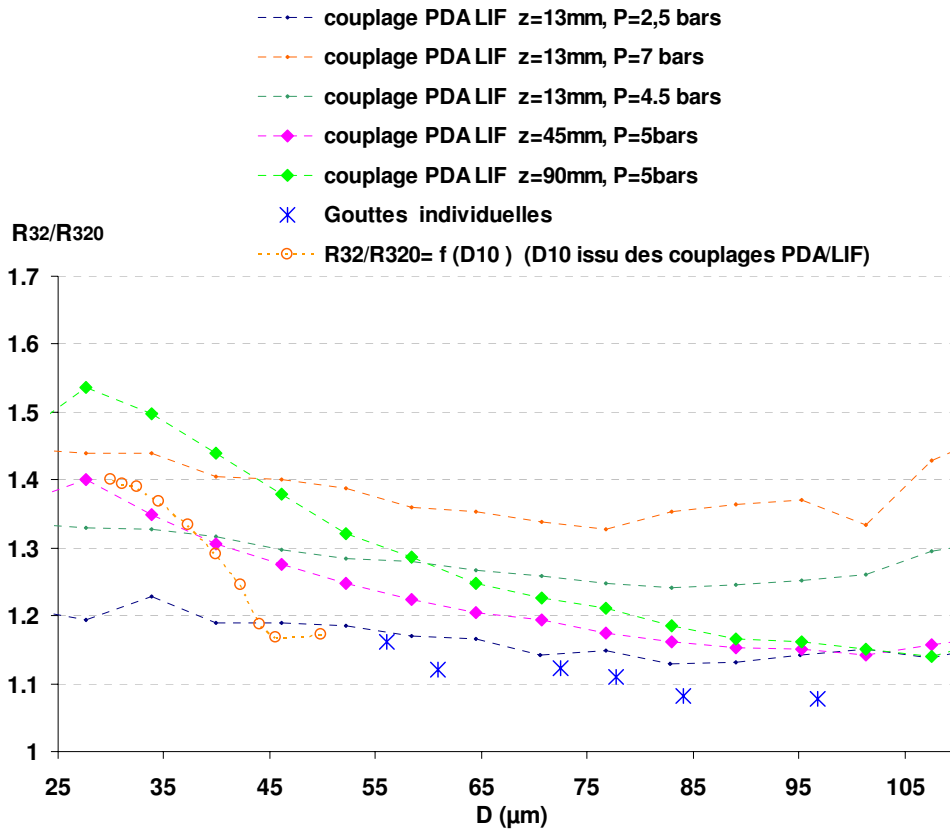


Figure 4.88 : résultats de couplage LIF-PDA pour différentes pressions d'injection ( $z=13$  mm) et à différentes distances axiales du point d'injection : évolution du rapport normalisé  $R_{32}$  en fonction du diamètre des gouttes. Comparaison au cas des gouttes individuelles.

La variation de  $D_{10}$  calculé comme indiqué précédemment, est obtenue par variation de la pression d'injection entre 2,5 bars et 6,5 bars. Il apparaît que la valeur du rapport normalisé  $R_{32}/R_{320}$  évolue entre les valeurs déterminées à l'aide du couplage PDA-LIF pour des classes de taille correspondant au diamètre statistique  $D_{10}$ . Ainsi, tout comme pour l'évolution du rapport  $R_{12}$ , le diamètre statistique  $D_{10}$  semble représenter de manière correcte la population des gouttes contribuant réellement au rapport de fluorescence, en incluant la fluorescence des gouttes parasites. Cette propriété semble extrêmement intéressante et sera exploitée.

Dans la gamme de pression d'injection envisagée ( $2,5 \text{ bars} \leq P \leq 6,5 \text{ bars}$ ), chacune des pressions correspondant à une certaine distribution granulométrique, le rapport de fluorescence normalisé  $R_{12}/R_{120}$  évolue grossièrement entre 1,3 et 1,8 alors que  $R_{32}/R_{320}$  évolue seulement entre 1,25 et 1,5. Les deux rapports  $R_{12}$  et  $R_{32}$  évoluent donc de manière différente et monotone en fonction du diamètre statistique  $D_{10}$  calculé sur les données couplées LIF-PDA (figure 4.89), diamètre qui représente de manière correcte la population des gouttes contribuant effectivement au signal de fluorescence, en incluant la fluorescence des gouttes parasites.

Il est donc possible de construire une évolution monotone du rapport  $R_{12}$  en fonction du rapport  $R_{32}$  qui représenterait l'effet non linéaire de la taille des gouttes sur le signal de fluorescence, en incluant la contribution des gouttes parasites (figure 4.90). Cette évolution sera nommée courbe de « calibration dynamique ». Notons également que les rapports de fluorescence basés uniquement sur les événements communs détectés par les systèmes LIF et PDA suivent également parfaitement cette tendance.

Sur cette figure, on été ajoutés les points correspondant aux positions  $z=20$  mm, 35 mm, 45 mm et 90 mm ( $P=5$  bars). Ces points sont proches de la courbe de calibration dynamique (aux

variations éventuelles de température près) et le diamètre statistique  $D_{10}$  relevé pour ces positions s'inscrit dans la continuité de l'évolution du diamètre statistique  $D_{10}$  également reporté sur cette courbe.

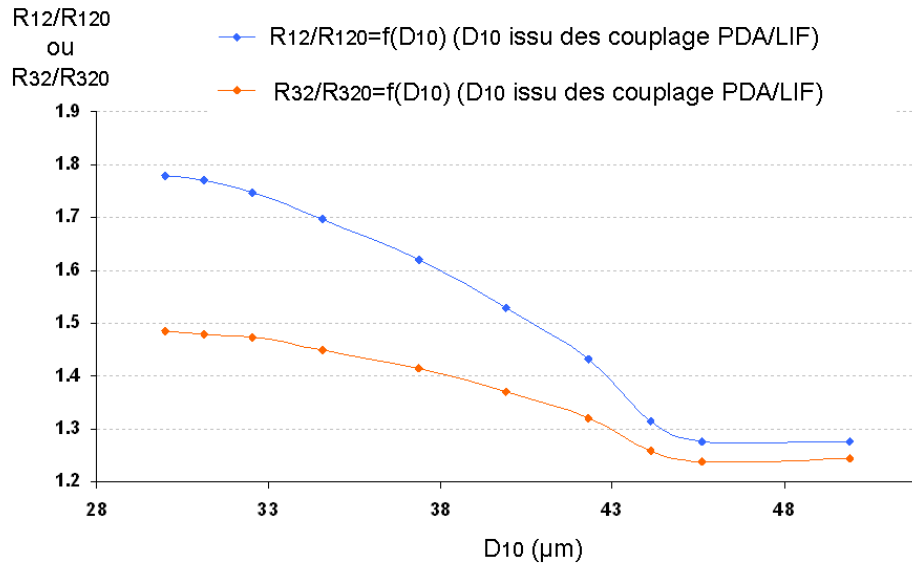


Figure 4.89 : Evolution des rapports de fluorescence normalisés  $R_{12}$  et  $R_{32}$  en fonction du diamètre  $D_{10}$  calculé à partir des données couplées LIF-PDA.

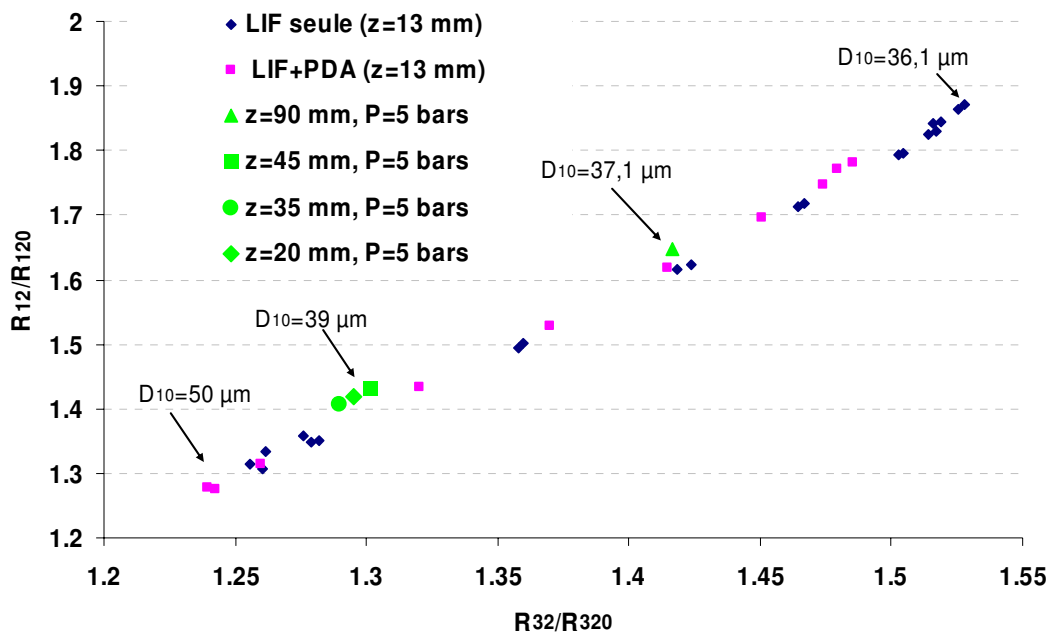


Figure 4.90 : Evolution du rapport de fluorescence normalisé  $R_{12}$  en fonction de  $R_{32}$  à  $z = 13 \text{ mm}$ , obtenue par modification de la pression d'injection. Mesures réalisées à d'autres distances axiales.

#### 4.6.5 Essais complémentaires avec un autre type d'injecteur

Afin de conforter nos hypothèses, nous avons utilisé une autre technologie d'injecteur permettant la réalisation de gouttes de tailles plus importantes. La création du brouillard de gouttes est réalisée à l'aide d'un injecteur ultrasonique type « Sonics » (Figure 4.9).

La buse de l'injecteur est de type méplat ce qui engendre un spray dont l'angle de génération est d'environ 60°.

L'amplitude de l'alimentation, fixée à 20%, permet d'obtenir un diamètre moyen  $D_{10}$  des gouttes de l'ordre de 90  $\mu\text{m}$ , leur diamètre moyen de Sauter  $D_{32}$  étant d'environ 120  $\mu\text{m}$  et leur vitesse  $U$  de l'ordre de 2,8 m/s à 40 mm de la zone d'injection.



Figure 4.91 : Injecteur ultrasonique et son alimentation

Pour un même débit de liquide, l'amplitude des vibrations a été fixée à trois valeurs : 30%, 70% et 80%.

Lorsque l'amplitude est modifiée, il apparaît clairement une modification de la morphologie du spray. Lorsque l'amplitude est faible, le spray se présente sous la forme d'un cylindre assez compact ; ce cylindre prend une forme conique de plus en plus évasée lorsque l'amplitude est augmentée. Il s'ensuit une modification de la densité du spray évaluée qualitativement à l'aide du PDA à 50 mm sur l'axe central.

Amplitude A (%)	Densité (gouttes/cm <sup>3</sup> )	$D_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	$R_{12}/R_{120}$
30 %	100335	51,67	1,28
70 %	27470	55,46	1,23
80 %	7458	52,62	1,21

Les histogrammes de taille de goutte, mesurés à l'aide du PDA, sont présentés figure 4.92 pour les différentes conditions opératoires testées. Pour l'ensemble des conditions testées, ces histogrammes sont relativement semblables, avec un diamètre  $D_{10}$  de l'ordre de 53  $\mu\text{m}$  (voir tableau précédent), notablement supérieur à celui obtenu avec l'injecteur Danfoss pour  $P=4$  bars ( $z=13$  mm) dont l'histogramme granulométrique est également reporté sur la figure 4.92. Pour ces mêmes conditions, le rapport de fluorescence moyen normalisé ( $R_{12}/R_{120}$ ) a également été déterminé et est reporté dans le tableau précédent. Le rapport de fluorescence s'éloigne clairement du rapport de référence lorsque la densité du spray augmente, mais de manière assez modérée, comparativement aux observations réalisées sur le spray Danfoss. Ceci peut être attribué au fait que les gouttes du spray ultrasonique ont une taille significativement plus importante ; les gouttes d'arrière plan contribuent donc avec un rapport

de fluorescence plus proche de celui de la goutte effectivement présente dans le volume de mesure.

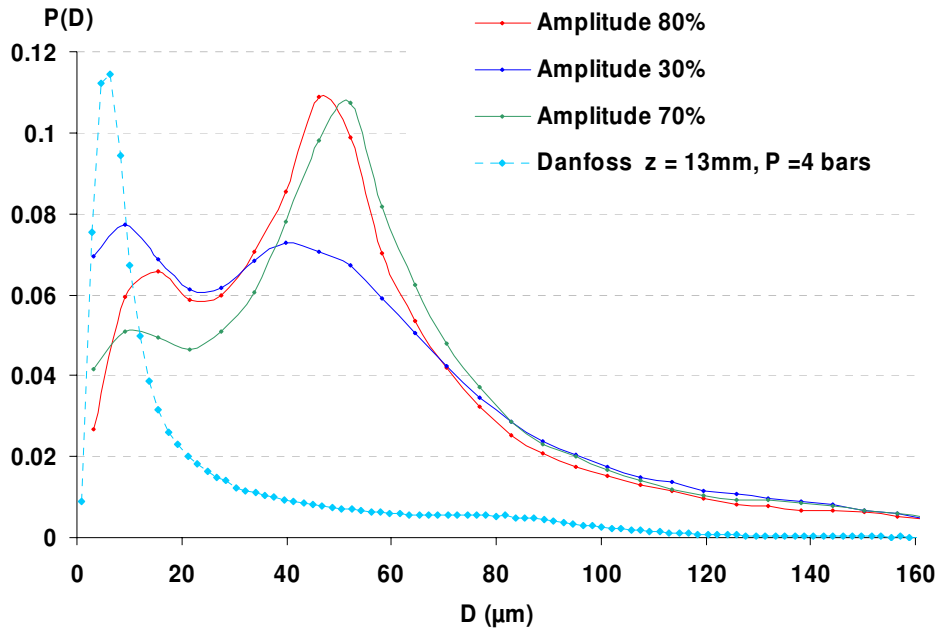


Figure 4.92: Histogrammes granulométriques issus de l'injecteur ultrasonique pour différentes conditions opératoires.

Des couplages LIF/PDA ont permis de déterminer le rapport moyen de fluorescence normalisé par classe de taille de goutte. Ces résultats sont présentés figure 4.93 pour les différentes conditions testées et comparés aux données obtenues pour des gouttes individuelles. L'évolution observée est très comparable au cas des gouttes individuelles, notamment dans les cas des  $A=70\%$  et  $A=80\%$ . Une légère translation de la courbe vers le haut peut être observée pour la densité la plus importante, du fait de l'accroissement de la contribution de la fluorescence parasite des gouttes hors du volume de mesure.

La superposition de l'histogramme de taille brut et celui correspondant aux événements simultanément détectés par les systèmes LIF et PDA pour  $A=70\%$  est reportée figure 4.94. Ces histogrammes sont relativement semblables, à l'exception d'une coupure nettement visible aux alentours de 40  $\mu\text{m}$ . Cette coupure est due à la dynamique de la fluorescence induite par laser : en effet pour des gouttes dont le diamètre maximum détecté est de 180  $\mu\text{m}$ , les gouttes détectables les plus petites seront de l'ordre de 45  $\mu\text{m}$  de diamètre (équation 4.11). En conclusion, ces essais supplémentaires effectués sur l'injecteur ultrasonique montrent que lorsque les gouttes sont d'une taille plus importante, conduisant à un biais sur le rapport de fluorescence plus faible, les couplages PDA/LIF permettant de restituer le comportement du rapport de fluorescence en fonction du diamètre se rapprochent des mesures effectuées dans le cas de gouttes individuelles. Il conviendra ainsi, à l'avenir de découpler au mieux les effets liés à la profondeur de champ et à l'effet non linéaire de la taille de goutte.

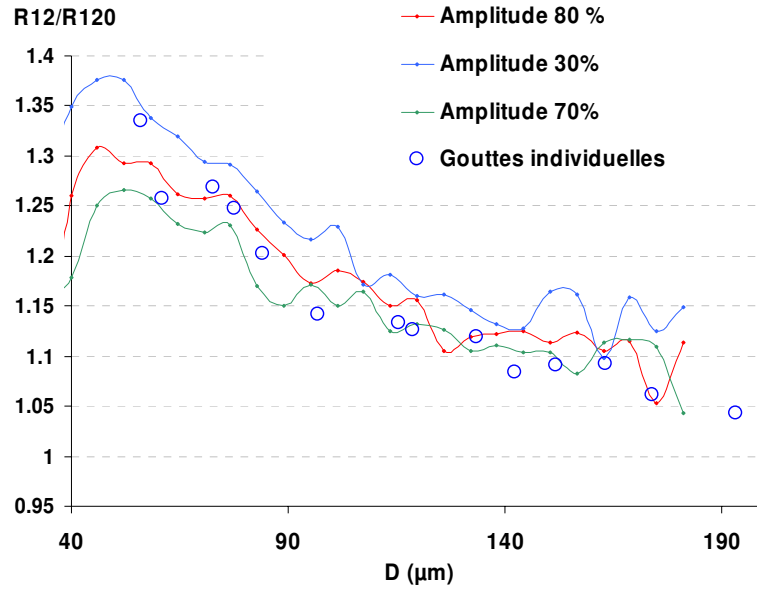


Figure 4.93 : Résultats des couplages LIF/PDA dans le cas de l’injecteur ultrasonique pour les trois conditions opératoires et comparaison au cas des gouttes individuelles.

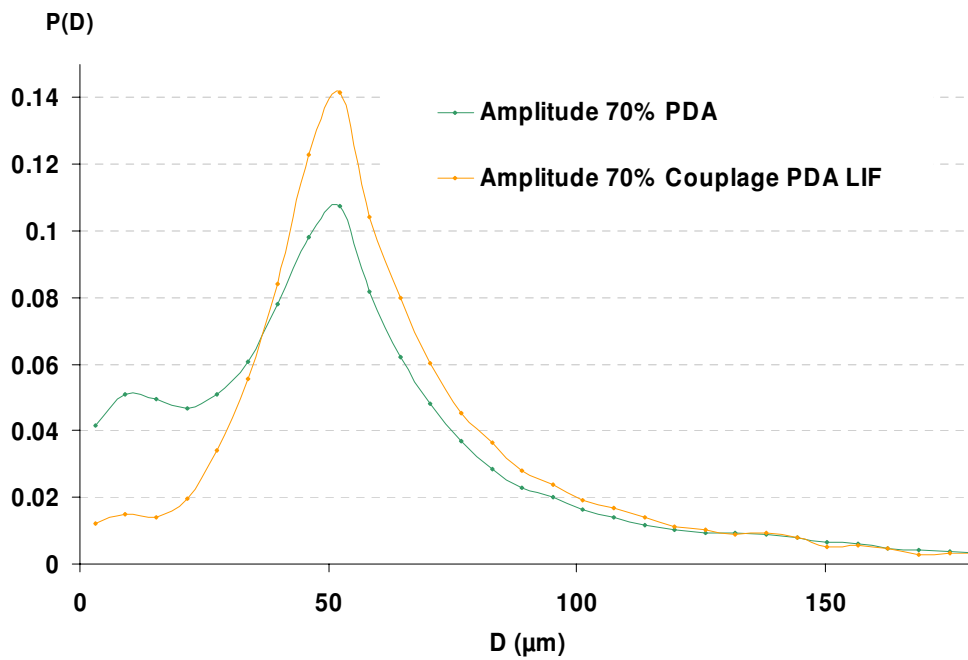


Figure 4.94 : Comparaison de l’histogramme granulométrique brut et de l’histogramme basé sur les événements simultanément détectés par les systèmes LIF et PDA.

## 4.7 Fluorescence induite par laser à trois couleurs appliquée aux sprays

### 4.7.1 Principes généraux

Dans le développement qui suivra, la concentration  $C$  du traceur fluorescent sera considérée comme constante.

Dans le spray, l'effet non linéaire de la taille des gouttes sur le signal de fluorescence intégré sur une bande spectrale semble pouvoir être décrit de manière empirique par une fonction  $g'(D_{10})$  où  $D_{10}$  est le diamètre moyen des gouttes détectées simultanément par les systèmes LIF et PDA. Cette fonction  $g'(D_{10})$  est différente de la fonction  $g(D)$  (équation (4.16)) puisque comme vu précédemment, elle intègre la contribution de la fluorescence parasite.

Ainsi, trois bandes spectrales de détection ont été définies avec les critères suivants:

- bande 1: peu sensible à température, très sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes
- bande 2: sensible à température, sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes
- bande 3: sensible à température, peu sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes

La position des trois bandes spectrales choisies est résumée figure 4.95 et superposée aux spectres d'absorption et d'émission de la sulfo-rhodamine B.

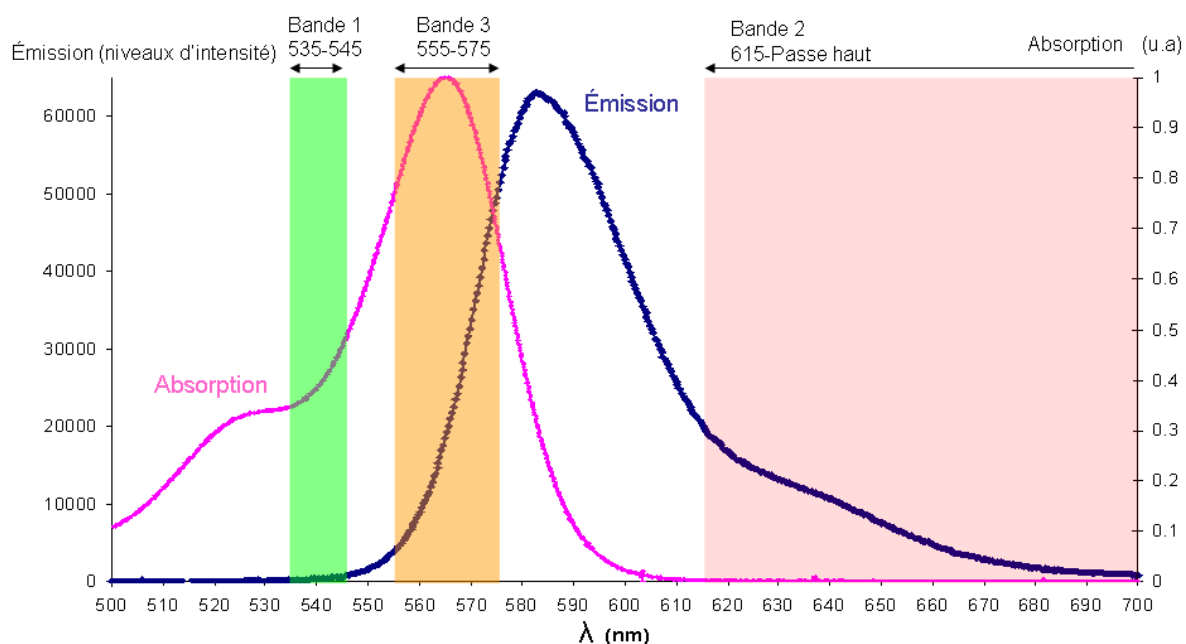


Figure 4.95 : Spectres d'absorption et d'émission de la sulfo-rhodamine B et position des trois bandes spectrales de détection choisies.

Ainsi, deux rapports de fluorescence pourront être calculés :

- $R_{12} = I_1/I_2$ , rapport sensible à la température et très sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes,
- $R_{32} = I_3/I_2$ , rapport très peu sensible à la température et sensible à l'effet de la taille des gouttes.



Ces rapports de fluorescence  $R_{ij}$  s'expriment par:

$$R_{ij} = \frac{K_{opti} K_{speci} g'_i(D_{10}) f_i(T)}{K_{optj} K_{specj} g'_j(D_{10}) f_j(T)} \quad (4.17)$$

Ce rapport fait apparaître une fonction à priori inconnue correspondant au rapport des fonctions  $g'_i$ . Ce rapport sera noté  $g'_{ij} = g'_i / g'_j$ .

Rappelons également que la fonction  $f_i$  représente la sensibilité en température du traceur sur la bande spectrale  $i$ , sous la forme:

$$f_i(T) = e^{\frac{A_i + B_i}{T}} \quad (4.18)$$

## 4.7.2 Mesures de référence

La mesure conjointe des rapports  $R_{12ref}$ ,  $R_{32ref}$ , ainsi que la température  $T_{ref}$ , dans une cellule de référence où la température est contrôlée permet de s'affranchir des constantes optiques et spectroscopiques  $K_{opt}$  et  $K_{spec}$ . Cette mesure de référence est effectuée pour les mêmes réglages optoélectroniques de la chaîne de mesure (hautes tensions des photomultiplicateurs, focale des lentilles de collection, filtres optiques). Lorsque la mesure est effectuée dans la cellule de référence, les fonctions  $g'_i(D_{10})$  n'ont plus lieu d'être ( $g'_{12} = g'_{32} = 1$ ). Le rapport de fluorescence, après normalisation par les conditions de référence peut s'écrire :

$$\frac{R_{ij}}{R_{ijref}} = \frac{f_j(T_{ref})}{f_j(T)} \frac{f_i(T)}{f_i(T_{ref})} g'_{ij}(D_{10}) = \frac{f_{ij}(T)}{f_{ij}(T_{ref})} g'_{ij}(D_{10}) \quad (4.19)$$

## 4.7.3 Courbe de calibration dynamique

Comme cela a été montré précédemment, la courbe de calibration dynamique consiste à déterminer une relation entre les fonctions  $g'_{ij}$  pour deux rapports de fluorescence,  $R_{12}$  et  $R_{32}$ .

Ces deux rapports doivent être déterminés simultanément pour différents diamètres statistiques moyens  $D_{10}$  relatifs à la taille des gouttes. Il a été observé précédemment que la variation de la pression d'injection du liquide modifiait directement l'histogramme granulométrique et donc le diamètre moyen  $D_{10}$ . D'autre part, il faut s'assurer que les effets thermiques par transfert convectif forcé et par vaporisation, liés à la modification de la pression d'injection sont négligeables, afin d'enregistrer la courbe de calibration dynamique dans des conditions quasi isothermes. Pour cela le volume de mesure est placé à proximité du point d'injection ( $z=13$  mm sur l'axe central). La température au point de mesure est contrôlée à l'aide d'un thermocouple dont la mesure peut être considérée comme fiable étant donnée la grande densité du liquide non loin du point d'injection. Cette température sera notée  $T_0$  et pourra différer de la température de référence.

L'application de la relation (4.19) conduit à:

$$g'_{12} = \frac{R_{12}}{R_{12ref}} \frac{f_{12}(T_{ref})}{f_{12}(T_0)} \quad \text{et} \quad g'_{32} = \frac{R_{32}}{R_{32ref}} \frac{f_{12}(T_{ref})}{f_{12}(T_0)} \quad (4.20)$$

Il est alors possible de représenter graphiquement l'évolution de  $g'_{12}$  en fonction de  $g'_{32}$  pour chaque valeur de pression correspondant à une valeur de  $D_{10}$  et ainsi d'obtenir la courbe de 'calibration dynamique' (figure 4.96). Les températures  $T_{ref}$  et  $T_0$  étant connues, cette relation peut être ajustée empiriquement par un polynôme du deuxième degré de coefficients  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  qui permettra ainsi de relier les rapports  $R_{12}$  et  $R_{32}$ :

$$g'_{12} = \alpha g'^2_{32} + \beta g'_{32} + \gamma \quad (4.21)$$

Cette calibration est effectuée une seule fois et considérée comme valable pour un liquide, un traceur, des bandes spectrales et un dispositif optique donnés.

L'utilisation conjointe des relations (4.19) et (4.21) conduit à une équation reliant les rapports de fluorescence et la température :

$$\frac{R_{12}}{R_{12ref}} \frac{f_{12}(T_{ref})}{f_{12}(T)} = \alpha \left[ \frac{R_{32}}{R_{32ref}} \frac{f_{32}(T_{ref})}{f_{32}(T)} \right]^2 + \beta \frac{R_{32}}{R_{32ref}} \frac{f_{32}(T_{ref})}{f_{32}(T)} + \gamma \quad (4.22)$$

où les rapports  $R_{12}$  et  $R_{32}$  sont les rapports mesurés expérimentalement à une position donnée du spray. La température inconnue  $T$  est ensuite déterminée par résolution de l'équation (4.22).

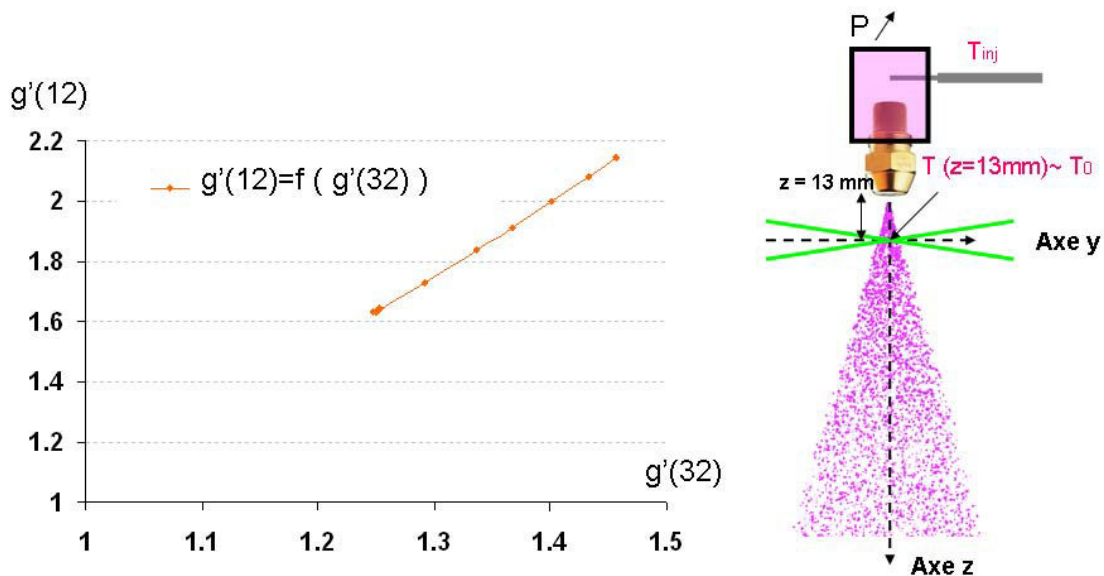


Figure 4.96 : Détermination de la courbe de calibration dynamique pour l'injecteur Danfoss.

#### 4.7.4 Test de la technique de fluorescence induite par laser à trois couleurs

Nous avons démontré précédemment la possibilité d'apporter une correction à la technique de fluorescence induite par laser à deux couleurs afin de prendre en compte l'effet non linéaire lié à la taille des gouttes couplé avec la profondeur de champ. Cette correction est opérée grâce à l'ajout d'une troisième bande spectrale présentant une sensibilité différenciée par rapport à la taille de goutte. Nous avons testé cette technique dans des conditions bien contrôlées, c'est-à-dire dans un spray chauffé injecté dans des conditions de saturation et de température maîtrisées.

##### 4.7.4.1 Dispositif expérimental

Le spray issu de l'injecteur Danfoss est injecté dans une enceinte conçue et réalisée au Laboratoire (figure 4.97), l'objectif étant de mettre en œuvre la technique de LIF à trois couleurs afin de réaliser des mesures de température du spray dans des conditions de saturation en vapeur. Ainsi le spray est injecté à une température identique à celle de l'air ambiant qui sera saturé en vapeur d'eau. La quasi-égalité des températures du liquide et de l'air permet de limiter les transferts convectifs forcés et la saturation en vapeur doit bloquer

l'évaporation du liquide. Les conditions créées dans l'enceinte visent donc à limiter le plus possible les transferts thermiques et ainsi de contrôler la température du spray.

L'enceinte est munie d'un orifice supérieur permettant l'injection du spray. Le socle de l'enceinte, réalisé en AU4G de forte épaisseur est disposé sur une plaque chauffante munie d'un dispositif d'agitation magnétique. De l'eau est disposée sur 1 cm de profondeur au fond de l'enceinte en contact avec cette surface chauffée afin de générer de la vapeur. Un dispositif de trop plein a été prévu afin de conserver cette hauteur de liquide constante. Les deux parois latérales sont amovibles et montées sur rails ; elles sont munies d'une fente de faible largeur, mais suffisante pour laisser entrer et sortir les deux faisceaux laser incidents. L'intérêt est de pouvoir déplacer le volume de mesure latéralement tout en conservant une ouverture de faible largeur afin de limiter les pertes thermiques avec l'extérieur. L'optique de collection de la LIF est disposée à 90° et la détection se fait à l'aide d'une fente similaire à celle décrite précédemment. Cette fente est également montée sur une paroi mobile. Avant l'injection, le liquide circule dans un échangeur de chaleur plongeant dans un bain thermostaté, afin de la porter à la température d'injection  $T_{inj}$ .

Les parois latérales de l'enceinte sont également munies d'orifices permettant le passage de thermocouples. Ces thermocouples donnent accès à des mesures de température en différents points de l'enceinte afin de contrôler l'homogénéité de la température de l'air saturé en vapeur d'eau. La position de ces prises de température est donnée sur la figure 4.97 :

- $T_1$  : Thermocouple juste à côté du point d'injection
- $T_2$  : Thermocouple situé dans une zone latérale de la cellule, en position haute
- $T_3$  : Thermocouple situé dans une zone latérale de la cellule en position basse

La saturation en vapeur de la cellule s'effectue selon le protocole suivant :

- Réglage de la température du bain thermostaté et mise à l'équilibre thermique de la température d'injection  $T_{inj}$ .
- Injection du spray
- Ajustement progressif de la température de la plaque chauffante afin de porter les quatre mesures de température  $T_{inj}$ ,  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_3$  sensiblement à la même valeur, tout en observant la condensation de vapeur sur les parois de la cellule ,ce qui témoigne de l'état de saturation.

Le système n'étant pas parfait, compte tenu des ouvertures optiques de l'enceinte et des diverses régulations PID en température, des ajustements sont souvent nécessaires afin de conserver l'équilibre en température de l'enceinte. De même la température  $T_{inj}$  peut légèrement évoluer pendant les mesures.

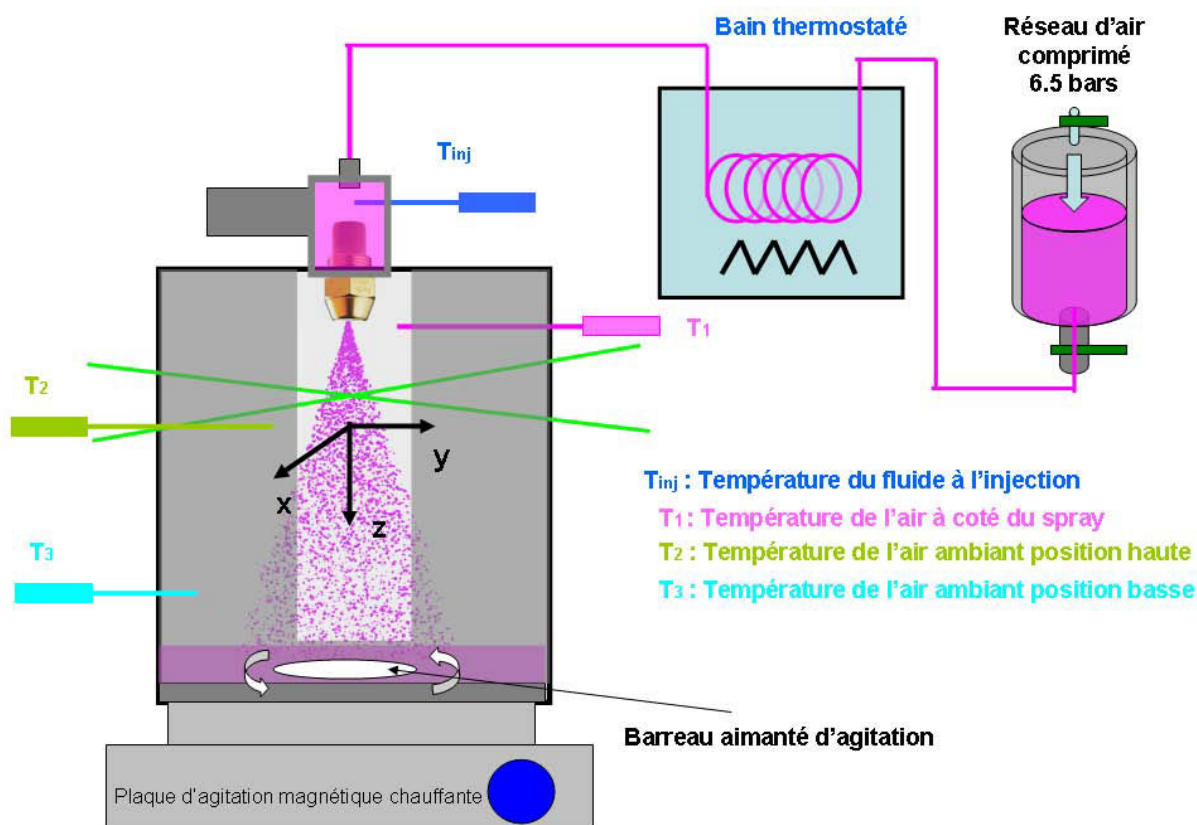


Figure 4.97: Dispositif expérimental d'injection du spray dans une cellule saturée.

#### 4.7.4.2 Expériences liminaires

Dans un premier temps, l'injection du spray sera réalisée dans de l'air à la température ambiante, sans saturation en vapeur. Le liquide est injecté sous une pression de 5 bars, initialement à température ambiante ; sa température est alors chauffée jusqu'à environ 50°C en modifiant la consigne du bain thermostaté. Une courbe de calibration dynamique est initialement réalisée en suivant le protocole défini à la section 4.7.3.

Le volume de mesure LIF est placé proche du point d'injection ( $z=15$  mm), dans la zone où l'évasement du spray est encore faible. Un thermocouple ( $T_{spray}$ ) est disposé juste en dessous du volume de mesure de la fluorescence, de manière à ce que seule l'extrémité (1 cm) du thermocouple pénètre dans la zone de présence des gouttelettes. Ainsi, le spray étant très dense à cette position, la température du thermocouple donnera une bonne indication de la température du liquide. Un autre thermocouple est situé dans la cellule et donne accès à la température de l'air ambiant ( $T_{air}$ ).

Afin de limiter le nombre des opérations de prise de référence, qui permet d'éliminer les constantes optiques et spectroscopiques, la référence peut être prise directement dans le spray, là où la température peut être mesurée de manière fiable à l'aide d'un thermocouple lorsque le spray est dense (typiquement à  $z=15$  mm). La prise de référence est ainsi réalisée en même temps que l'opération de calibration dynamique. Dans ce cas, la prise de référence et la calibration dynamique sont réalisées à la même température  $T_{ref}$  et dans le spray à  $z=15$  mm. Un des points de la calibration dynamique, effectuée dans des conditions isothermes à la température  $T_{ref}$ , est choisi comme référence, pour laquelle le diamètre statistique moyen de référence est  $D_{10ref}$ . Les relations (4.20) deviennent alors :

$$\frac{R_{12}}{R_{12ref}} = \frac{g'_{12}(D_{10}) \cancel{f_{12}(T_{ref})}}{g'_{12}(D_{10ref}) \cancel{f_{12}(T_{ref})}} \text{ et } \frac{R_{32}}{R_{32ref}} = \frac{g'_{32}(D_{10}) \cancel{f_{32}(T_{ref})}}{g'_{32}(D_{10ref}) \cancel{f_{32}(T_{ref})}} \quad (4.23)$$

L'équation de calibration dynamique (4.22) s'obtient alors par une équation empirique du second degré du type :

$$\frac{g'_{12}(D_{10})}{g'_{12}(D_{10ref})} = \alpha \left[ \frac{g'_{32}(D_{10})}{g'_{32}(D_{10ref})} \right]^2 + \beta \left( \frac{g'_{32}(D_{10})}{g'_{32}(D_{10ref})} \right) + \gamma \quad (4.24)$$

Une mesure des rapports  $R_{12}$  et  $R_{32}$  dans le spray correspondant à la température inconnue  $T$  sera alors normalisée par rapport aux conditions de référence ( $R_{12ref}$ ,  $R_{32ref}$ ,  $T_{ref}$ ) suivant :

$$\frac{R_{12}}{R_{12ref}} = \frac{g'_{12}(D_{10}) f_{12}(T)}{g'_{12}(D_{10ref}) f_{12}(T_{ref})} \text{ et } \frac{R_{32}}{R_{32ref}} = \frac{g'_{32}(D_{10}) f_{32}(T)}{g'_{32}(D_{10ref}) f_{32}(T_{ref})} \quad (4.25)$$

Il reste ensuite à reporter les rapports de fluorescence déterminés précédemment dans l'équation (4.24), soit :

$$\frac{R_{12}}{R_{12ref}} \frac{f_{12}(T_{ref})}{f_{12}(T)} = \alpha \left[ \frac{R_{32}}{R_{32ref}} \frac{f_{32}(T_{ref})}{f_{32}(T)} \right]^2 + \beta \frac{R_{32}}{R_{32ref}} \frac{f_{32}(T_{ref})}{f_{32}(T)} + \gamma \quad (4.26)$$

L'équation (4.26) peut ensuite être résolue afin d'obtenir la température inconnue  $T$ .

Afin d'évaluer la plus-value apportée par la correction liée à l'utilisation de la troisième bande spectrale, la température mesurée par LIF a été déterminée de deux manières lorsque la température d'injection est progressivement augmentée:

- $T_{LIF\ NC}$ : température non corrigée déterminée avec l'utilisation des bandes spectrales 1 et 2 uniquement
- $T_{LIF}$ : température LIF déterminée avec l'utilisation des trois bandes spectrales.

Les résultats de cette expérience sont résumés sur la figure 4.98.

Nous pouvons constater que la température issue du modèle LIF 3 couleurs donne des valeurs très proches de la température mesurée dans le spray ( $T_{Spray}$ ), alors que la température évaluée uniquement sur les bandes spectrales 1 et 2 surestime nettement la température mesurée par le thermocouple ( $T_{spray}$ ). En revanche, la température mesurée par le thermocouple et la LIF 3 couleurs sont notablement inférieures à la température d'injection  $T_{inj}$  du liquide dans l'injecteur. Ceci peut être attribué aux transferts convectifs forcés avec l'air ambiant et à l'évaporation de l'eau, en particulier lorsque la température d'injection augmente. Il apparaît également que la température mesurée par LIF 3 couleurs est toujours légèrement supérieure à celle mesurée par le thermocouple  $T_{spray}$ ; en effet, le thermocouple, placé dans un milieu diphasique est également sensible à la température de l'air. Par ailleurs, cette différence s'estompe lorsque la température de l'air ambiant augmente, du fait de l'injection d'un spray chaud et de l'effet de confinement. Notons également que la correction semble assez efficace sur toute la durée de l'expérience, alors que la température du liquide injecté augmente et s'accompagne de la chute de la viscosité, ainsi que des modifications de l'histogramme granulométrique.

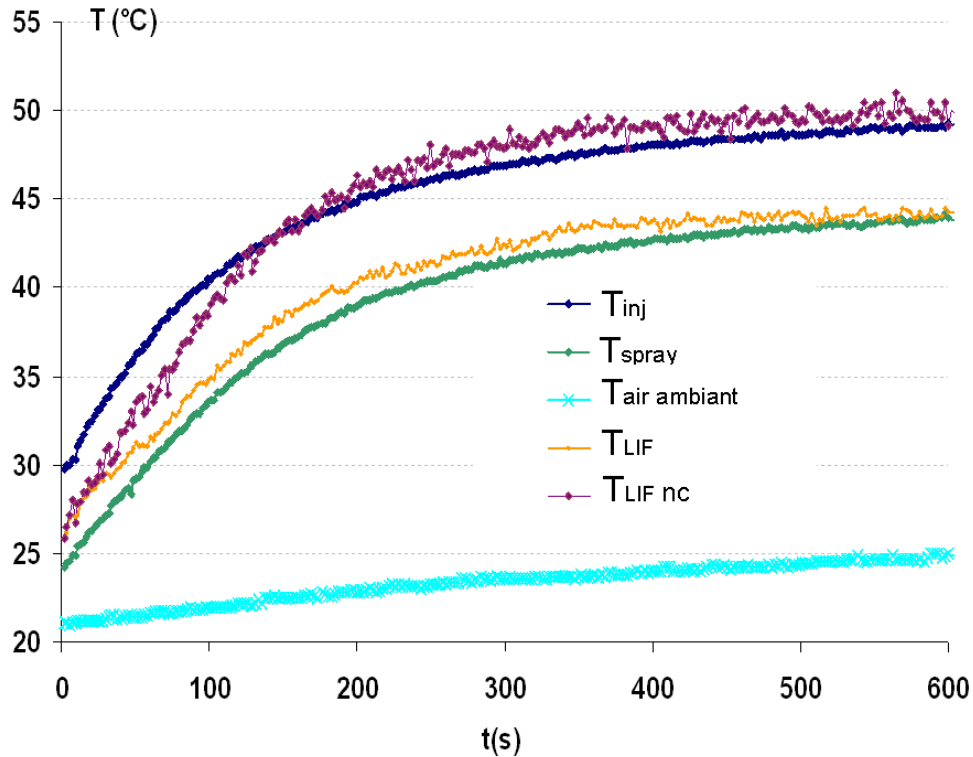


Figure 4.98 : mesures de température à  $z=15$  mm du point d'injection: comparaison des mesures LIF et des mesures effectuées par thermocouple.

Puis, en suivant un protocole expérimental identique, des mesures en injectant le liquide à une température voisine de la température ambiante ( $P=5$  bars,  $T_{inj}=24^{\circ}\text{C}$ ) dans l'enceinte à la température ambiante ( $T_{air}=23^{\circ}\text{C}$ ) sans saturation de vapeur, sont réalisées.

Les résultats obtenus pour un déplacement du volume de mesure suivant l'axe vertical  $z$  sont portés figure 4.99. Afin de prendre en compte les variations modérées de la température ambiante, l'ensemble des températures mesurées sera ramené à la température ambiante. La température ne varie pratiquement pas, les conditions d'injection ne favorisant pas les transferts thermiques. Une exploration radiale suivant les directions  $x$  et  $y$  a été menée à  $z=40$  mm ; les résultats sont portés figure 4.100. Une bonne symétrie des mesures peut être constatée pour les deux directions explorées. Un refroidissement significatif en périphérie du spray est noté, il peut être attribué au fait que les gouttes périphériques ont des vitesses plus faibles et correspondent en partie à des gouttes re-circulées. Leur temps de séjour est donc allongé et ainsi l'évaporation est plus importante, ce qui contribue à la chute de la température. Il existe toujours un décalage par rapport à la température d'injection, qui correspond à l'énergie prélevée au fluide par évaporation durant le processus d'atomisation en gouttelettes.

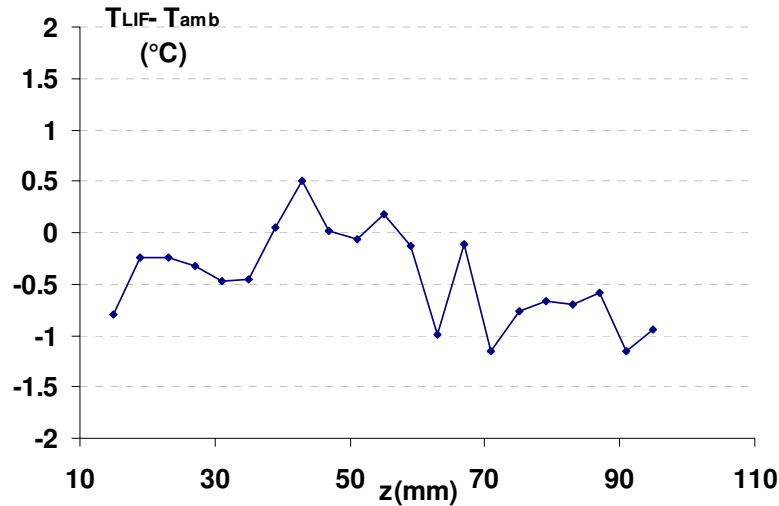


Figure 4.99 : Evolution longitudinale de la température des gouttes mesurée par LIF pour  $P_{inj}=5$  bars,  $T_{inj}=24^{\circ}\text{C}$  et  $T_{amb}=23^{\circ}\text{C}$ .

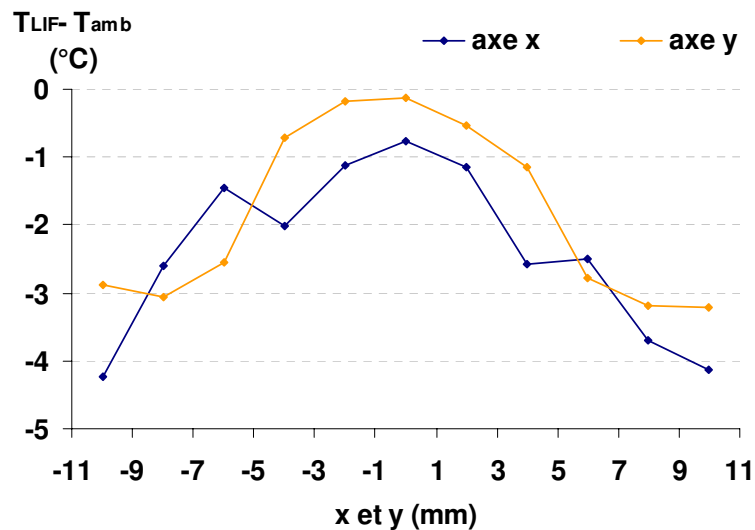


Figure 4.100 : Evolution radiale ( $z=40$  mm) de la température des gouttes mesurée par LIF pour  $P_{inj}=5$  bars,  $T_{inj}=24^{\circ}\text{C}$  et  $T_{amb}=23^{\circ}\text{C}$ .

Puis la technique a été testée pour une température d'injection  $T_{inj}=45^{\circ}\text{C}$ . Le spray est injecté dans l'enceinte à la température ambiante. De la même manière que précédemment, les résultats sont présentés figure 4.101. Nous pouvons constater une diminution significative de la température mesurée par LIF suivant l'axe  $z$ . Le liquide injecté à  $45^{\circ}\text{C}$  se refroidit par transfert convectif forcé au contact de l'air ambiant ( $T_{amb}=24^{\circ}\text{C}$ ) et par évaporation. A une distance de 90 mm du point d'injection, la température des gouttelettes avoisine  $30^{\circ}\text{C}$ , alors qu'elle était de  $43^{\circ}\text{C}$  juste après atomisation. L'exploration radiale (figure 4.102) dans les directions  $x$  et  $y$  indique également un refroidissement plus important des gouttes se trouvant en périphérie du spray, soit environ  $4^{\circ}\text{C}$  de différence par rapport à la position centrale. Ce refroidissement a des causes identiques à celles invoquées pour les mesures effectuées à la température ambiante.

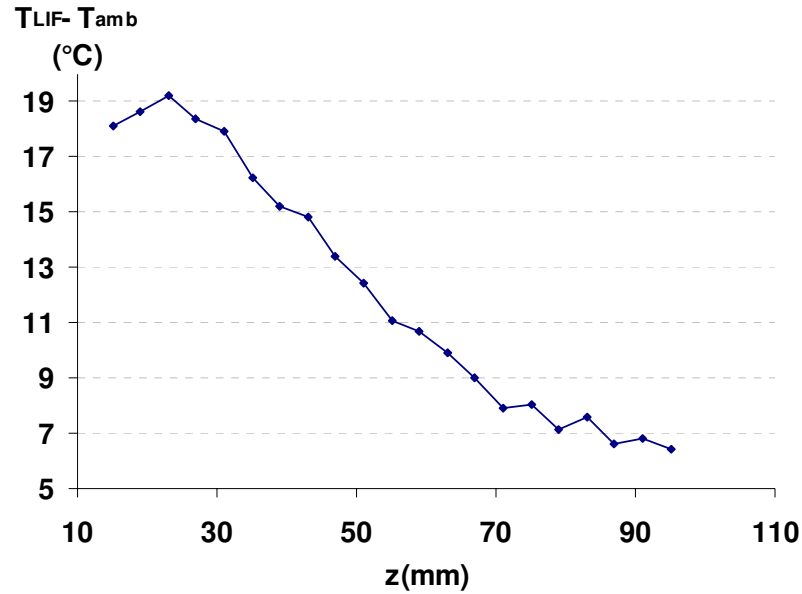


Figure 4.101 : Evolution longitudinale de la température des gouttes mesurée par LIF pour  $P=5$  bars,  $T_{inj}=45^{\circ}\text{C}$  et  $T_{amb}=24^{\circ}\text{C}$ .

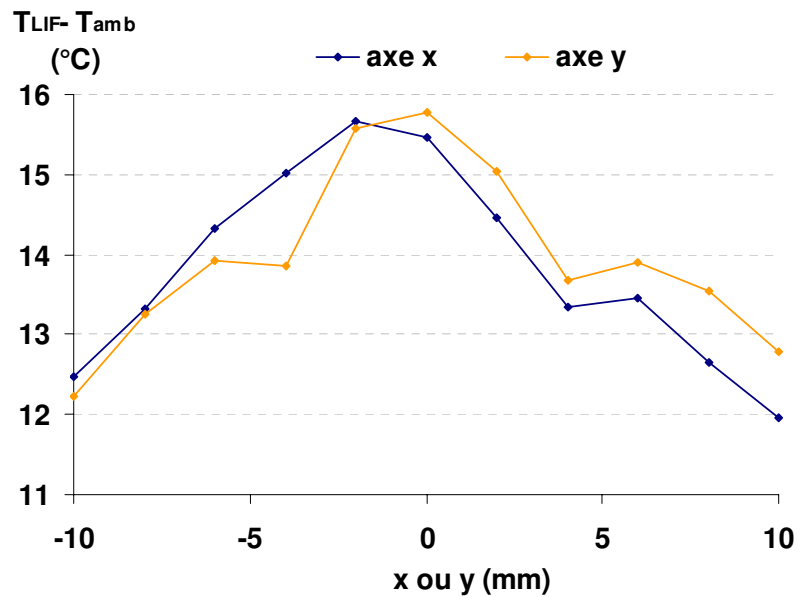


Figure 4.102 : Evolution radiale ( $z=40$  mm) de la température des gouttes mesurée par LIF pour  $P=5$  bars,  $T_{inj}=45^{\circ}\text{C}$  et  $T_{amb}=24^{\circ}\text{C}$ .

#### 4.7.4.3 Mesures dans des conditions de saturation en vapeur

- **Objectif de l'expérience**

L'objectif de cette expérience est de limiter tout les échanges thermiques par transferts convectifs forcés et par évaporation. Ainsi, il sera possible d'imposer et de maîtriser la température des gouttes. Il sera donc possible de valider la technique de fluorescence induite par laser à trois couleurs.



• **Résultats expérimentaux**

Des explorations dans les trois directions de l'espace  $x$ ,  $y$  et  $z$  ont été réalisées lorsque l'équilibre thermique est atteint pour une valeur de la température proche de  $50^{\circ}\text{C}$ .

La figure 4.102 présente l'évolution de la température mesurée par LIF selon l'axe  $z$  du spray. Les températures  $T_{inj}$ ,  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_3$  ( $T_3=T_{amb}$ ) sont également portées sur la figure afin de constater que l'équilibre thermique visé est correctement atteint. Nous pouvons constater que la température mesurée par LIF correspond à la température de la cellule, aux erreurs de mesure près. Sur un déplacement vertical de 90 mm, cette température baisse légèrement, de l'ordre de  $1,7^{\circ}\text{C}$ . Cette baisse peut être mise en relation avec la diminution constatée de la température d'injection  $T_{inj}$  qui évolue de manière identique. La température d'injection et la température du spray demeurent identiques à  $1^{\circ}$  près (figure 4.102).

Les explorations en température dans les directions radiales  $x$  et  $y$ , effectuées à  $z=40$  mm, sont représentées figures 4.103 et 4.104 respectivement. La température des gouttes sur la périphérie du spray ( $x$  ou  $y=\pm 10$  mm) est inférieure d'environ  $1,5^{\circ}\text{C}$  à celle mesurée au centre. Cet écart, plutôt modeste, peut être attribué à un défaut d'homogénéité en température de la cellule, les ouvertures latérales générant des pertes thermiques. Un léger écart quant à la saturation en vapeur peut alors expliquer ces différences.

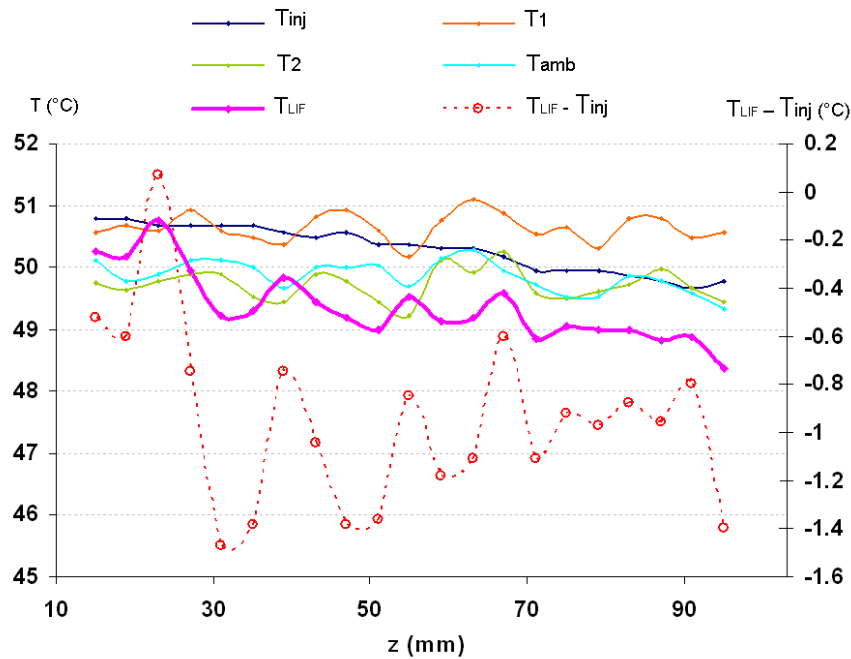


Figure 4.102 : Exploration longitudinale en température du spray, mesurée par LIF, pour  $P=5$  bars et  $T_{inj}=50^{\circ}\text{C}$  dans des conditions de saturation en vapeur. Comparaison à la température mesurée par les différents thermocouples dans la cellule et à la température d'injection du liquide.

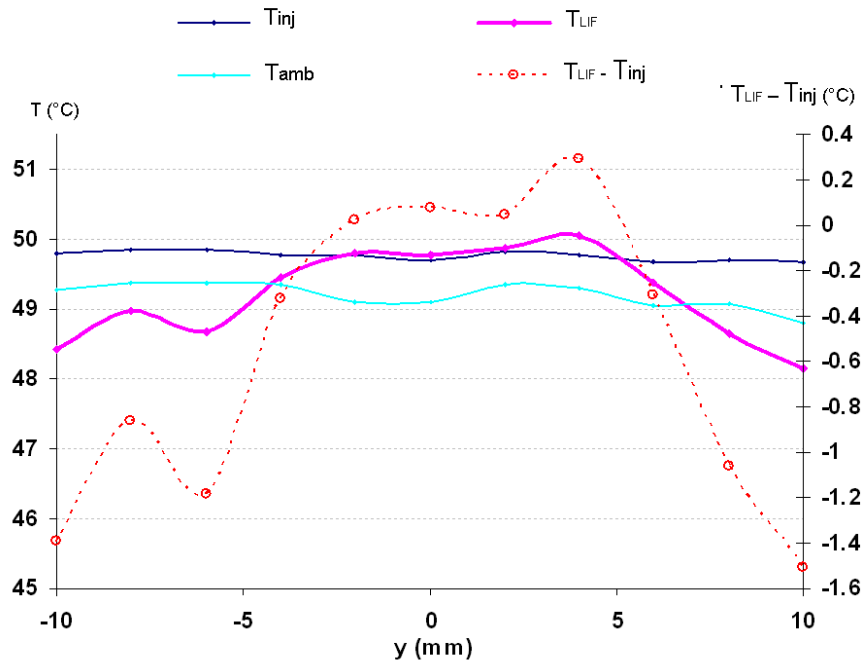


Figure 4.103 : Exploration radiale en température du spray, dans la direction  $y$ , mesurée par LIF, pour  $P=5$  bars et  $T_{inj}=50^{\circ}\text{C}$  dans des conditions de saturation en vapeur. Comparaison à la température mesurée par l'un des thermocouples dans la cellule et à la température d'injection du liquide.

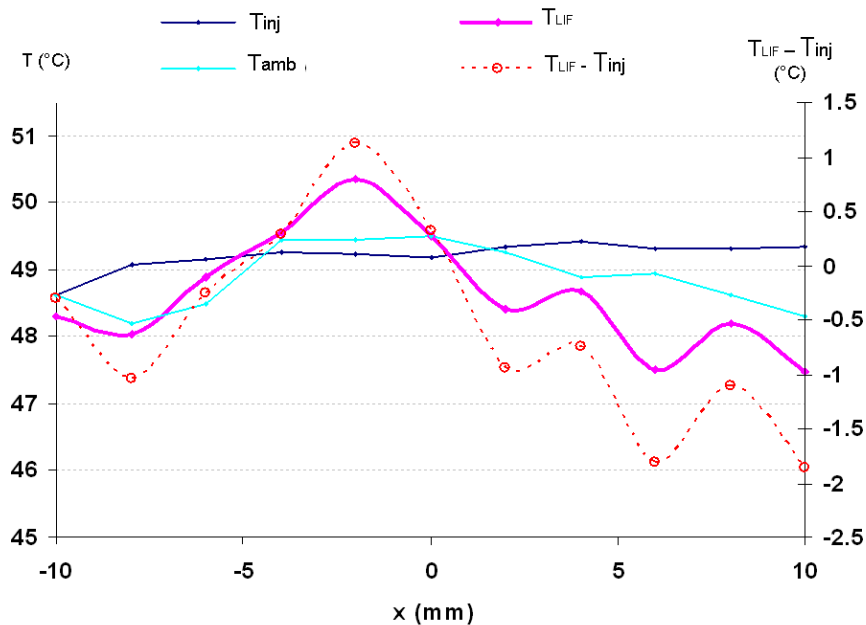


Figure 4.104 : Exploration radiale en température du spray, dans la direction  $x$ , mesurée par LIF, pour  $P=5$  bars et  $T_{inj}=50^{\circ}\text{C}$  dans des conditions de saturation en vapeur. Comparaison à la température mesurée par l'un des thermocouples dans la cellule et à la température d'injection du liquide.

#### 4.7.4.4 Remarques sur la courbe de calibration dynamique

Plusieurs courbes de calibration dynamique ont été réalisées dans des conditions saturées en vapeur, pour une température d'injection  $T_{inj} = 50^\circ\text{C}$ , à différentes positions longitudinales  $z$ . Ces courbes ont été réalisées en faisant varier la pression d'injection  $P$  de 2,5 bars à 6,5 bars. Les résultats obtenus pour les positions  $z=15$  mm,  $z=20$  mm,  $z=30$  mm et  $z=40$  mm sont comparés sur la figure 4.105 avec la même courbe obtenue pour une température ambiante  $T_{amb}=21^\circ\text{C}$ . Ainsi, les courbes réalisées pour des situations différentes (histogrammes granulométriques et densité du spray) s'alignent sur une même tendance. Connaissant les lois d'évolution des rapports  $R_{12}$  et  $R_{32}$  en fonction de la température, il est aisé de ramener cette courbe à une température de  $50^\circ\text{C}$ ; celle-ci obéit également à la même tendance.

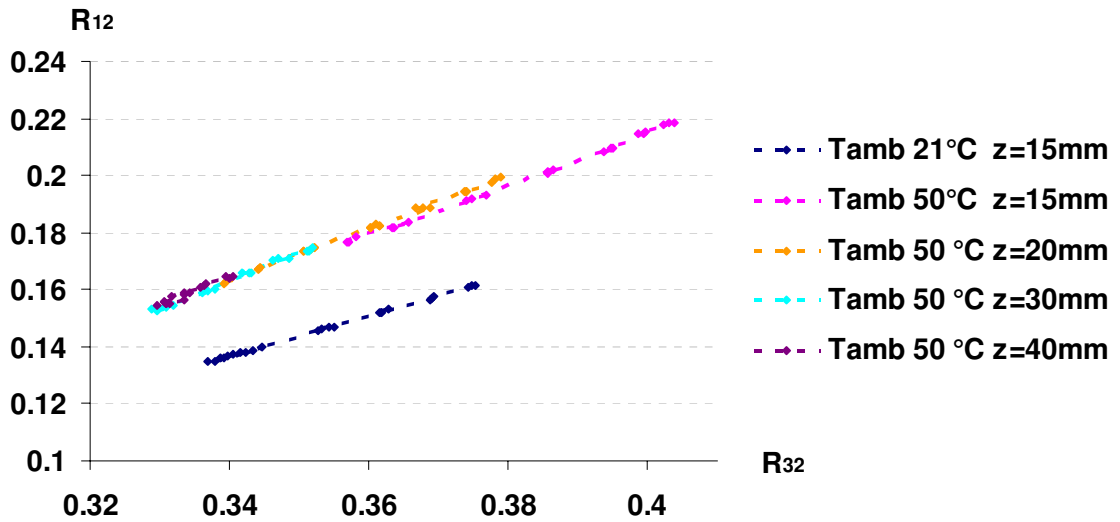


Figure 4.105 : Courbes de calibration dynamique obtenues à différentes positions longitudinales à  $T_{amb}=50^\circ\text{C}$  dans des conditions de saturation en vapeur. Comparaison au résultat obtenu à  $T_{amb}=21^\circ\text{C}$ .

#### 4.7.5 Conclusions

Un effet non linéaire de la taille de goutte a été mis en évidence. Cet effet se conjugue avec d'une part, une fluorescence parasite due à la diffusion de la lumière laser incidente par le spray et d'autre part avec la grande profondeur de champ de l'optique de collection LIF qui détecte cette fluorescence, même si celle-ci est située hors du champ de l'optique.

Un modèle faisant intervenir une troisième voie spectrale de mesure a été développé pour prendre en compte ces phénomènes qui perturbent de manière significative la mesure du rapport de fluorescence.

Ainsi, trois bandes spectrales de détection ont été définies avec les critères suivants:

- bande 1: peu sensible à température, très sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes
- bande 2: sensible à température, sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes
- bande 3: sensible à température, peu sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes

Une calibration qui consiste à déterminer une relation entre les fonctions  $g'_{12}$  et  $g'_{32}$  représentant l'influence de la fluorescence parasite conjuguée à l'effet non linéaire de la taille des gouttes pour les deux rapports de fluorescence  $R_{12}$  et  $R_{32}$  est nécessaire. Elle est considérée comme

valable pour un liquide, un traceur fluorescent, des bandes spectrales de détection et un dispositif optique donnés.

Une expérience de validation où la température des gouttelettes est contrôlée et l'évaporation est bloquée à l'aide d'une atmosphère saturée en vapeur, a permis de valider cette méthode de correction. La technique de fluorescence basée sur ce modèle à trois couleurs semble permettre d'effectuer en temps réel une correction des différents effets perturbant la mesure.

Même si l'effet non linéaire de la taille de goutte sur la distribution spectrale de la fluorescence n'est pas encore expliqué, quelques hypothèses sur son origine ont été évoquées section 4.5.7.

Il n'en demeure pas moins que l'optique utilisée présente une profondeur de champ importante qui couplée à l'induction de fluorescence du fait de la lumière laser diffusée, tend accroître la taille du volume de mesure.

## Conclusions et perspectives

La technique basée sur la fluorescence multibande permet d'accéder à la température de la phase liquide dans des milieux complexes. En effet le rapport des intensités de fluorescence collectées sur les différentes bandes spectrales permet de s'affranchir des variations liées à l'intensité laser excitatrice et à la concentration moléculaire du traceur fluorescent ajouté. De même, l'indépendance au volume d'émission de fluorescence confère un intérêt tout particulier à cette technique pour l'étude de milieux complexes tels que les sprays.

Dans les milieux purement monophasiques, la technique de fluorescence induite par laser à deux couleurs a été étendue pour réaliser des mesures de température sur de grands chemins optiques, variables d'un point de mesure à l'autre. Peuvent varier la distance entre le point de mesure et l'optique de détection ou encore la concentration du traceur fluorescent le long du chemin optique. Cette extension de la technique a été rendu possible par l'adjonction d'une troisième bande spectrale. Les trois bandes spectrales retenues ont été sélectionnées judicieusement de manière à dissocier la sensibilité en température et les effets de la ré-absorption de la fluorescence. Cette nouvelle approche à trois bandes spectrales a été validée avec succès sur une expérience consistant à mesurer les profils de température dans un jet turbulent chauffé injecté ensemencé en rhodamine B dans un réservoir d'eau claire à température ambiante.

Les sprays sont des milieux diphasiques complexes, polydispersés en taille et en vitesse, dont l'étude présente un intérêt important pour de nombreux procédés industriels. Peu de techniques permettent d'accéder à la température de la phase liquide sans perturber l'écoulement. L'application de la technique de fluorescence induite par laser multibandes à la mesure de température dans les sprays, a été envisagée.

Cependant le traitement du signal est rendu plus difficile que dans le cas des mesures en milieu monophasique, car il est nécessaire d'extraire le signal utile issu du passage des gouttes dans le volume d'excitation laser. Le traitement développé permet d'effectuer des mesures sur un grand nombre de gouttes en conservant les informations individuelles concernant chaque goutte détectée.

Plusieurs effets inattendus, perturbant de manière significative la mesure du rapport de fluorescence, ont été mis en évidence. Une étude sur des gouttes individuelles calibrées de différents diamètres a permis de constater une dépendance non linéaire et inattendue du rapport de fluorescence à la taille de la goutte. Cet effet n'est à l'heure actuelle pas encore interprété de manière fiable. Il peut toutefois être décrit empiriquement par une fonction de la variable ( $C^{1/3}D$ ). De plus, l'effet non linéaire lié à la taille des gouttes se conjugue avec deux autres effets :

- l'importante profondeur de champ de l'optique de collection utilisée. En effet la sonde de fluorescence peut collecter du signal de fluorescence issu de gouttes positionnées très en dehors du plan focal.
- le nuage de gouttelettes diffuse de manière importante la lumière laser du volume d'excitation, ce qui induit une fluorescence des gouttes situées dans la profondeur de champ de la sonde LIF. Cette fluorescence, qualifiée de fluorescence parasite, est ainsi collectée par la sonde de fluorescence. Etant donnée la distribution granulométrique du spray envisagé, composé majoritairement de petites gouttes très affectées par l'effet taille, cette fluorescence parasite crée un important biais sur le rapport de fluorescence. Les résultats issus des couplages PDA LIF ont permis de confirmer ce phénomène.

Une correction possible de cet effet est proposée à travers une technique LIF à trois couleurs, assortie d'un modèle spécifique, où une troisième bande spectrale, sensible à la température et peu sensible à l'effet non linéaire de la taille des gouttes est intégrée.

Enfin une expérience de validation de la technique de fluorescence induite par laser à trois couleurs a été réalisée. Un spray chauffé est injecté dans une atmosphère saturée en vapeur, maintenue à une température identique. Les résultats expérimentaux confirment des profils de température de la phase liquide quasi-constant et compatibles avec la température d'injection envisagée.

De plus, la dépendance de l'effet non-linéaire de la taille des gouttes en la variable ( $C^{1/3}D$ ), permet, dans la mesure du possible, de déterminer la concentration opératoire optimale compte-tenu de la connaissance préalable de la distribution granulométrique.

La possibilité de coupler le granulomètre phase Doppler (PDA) avec la LIF trois couleurs a également été envisagé. Cela a été rendu possible en intégrant dans le logiciel d'acquisition de la LIF un module informatique permettant de piloter le processeur PDA, afin d'avoir accès rapidement aux données issues des mesures phase Doppler. L'un des points clef, clairement identifié, permettant de mettre en œuvre avec succès cette technique, est la coïncidence spatiale des volumes de mesure de ces deux techniques. A l'aide de cette technique, il est bien évidemment possible d'envisager la mesure de températures par classe de taille de goutte.

Les perspectives envisagées pour poursuivre ce travail s'articulent essentiellement autour de la métrologie dans les sprays polydisperses :

- (i) Amélioration du dispositif optique dans le but de réduire la profondeur de champ de l'optique de détection. En particulier l'utilisation d'un microscope à visée lointaine devrait permettre d'atteindre ce but. A l'aide d'un tel dispositif, il est possible d'obtenir des grandissements importants (de l'ordre de 15) avec une distance de travail relativement importante (15 à 20 cm) tout en assurant une profondeur de champ effective de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ .
- (ii) La dynamique de détection du signal de fluorescence issu d'une goutte pourra être améliorée en optimisant le rapport signal/bruit du dispositif, notamment en réduisant le bruit dans le noir de la chaîne de photo-détection.
- (iii) La fréquence d'échantillonnage des gouttes et la bande passante des amplificateurs pourront être augmentées pour détecter des gouttes de plus petite taille ou plus rapides. Cela pourra passer par le développement d'un processeur de traitement du signal dédié, équipé de convertisseurs analogiques numériques plus rapides.
- (iv) L'augmentation de la puissance laser disponible devrait permettre d'améliorer le rapport signal/bruit, en particulier dans le cas des gouttes de petite taille, qui deviendraient ainsi accessibles à la mesure.
- (v) L'utilisation d'une optique unique permettant à la fois la détection du signal LIF et du signal PDA devrait permettre d'assurer un volume de mesure commun pour les deux techniques.
- (vi) Enfin, même si quelques hypothèses ont été avancées, l'effet non-linéaire de la taille des gouttes sur la distribution spectrale de la fluorescence doit être finement interprété. Les conséquences physico-chimiques liées à la dimérisation du colorant induite par les forces interfaciales semblent être une hypothèse convaincante qu'il faudra investiguer.

Les applications du couplage des techniques LIF et PDA s'orienteront vers l'analyse du mélange de deux sprays à des températures différentes, dans le but de valider pleinement la technique de couplage et afin d'étudier le mélange d'un scalaire passif (concentration ou température) entre deux sprays incidents.

Cette possibilité de coupler ces deux techniques offre une perspective nouvelle de valider des simulations Euler-Lagrange d'écoulements diphasiques anisothermes.

## Références bibliographiques

**Anders K.**, Roth N., Frohn A. ,(1995), Theoretical and experimental studies of the influence of internal temperature gradients on rainbow refractometry , Proc. Of the optical particle sizing (Nuernberg, Germany), 419-428.

**Antoine Y.** ,(1999), Mise en œuvre de la fluorescence induite par laser couplée à la vélocimétrie laser à effet Doppler. Application à l'étude des propriétés diffusionnelles des écoulements turbulents, pHd theis, Université Henri Poincaré, Nancy, France.

**Antoine Y.**, Lemoine F., Lebouché M. ,(2001), Turbulent transport of a passive scalar in a round jet discharging into a co-flowing stream, European Journal of Mechanics-B/Fluids 20, 275-301.

**Auban O.**, Lemoine F., Vallette P., Fontaine J.R. ,(2001), Simulation by solutal convection of a thermal plume in a confined stratified environment: application to displacement ventilation, Int. J. Heat and Mass transfer 44, 4679-4691.

**Azzouz H.**, Alkhafadiji L, Balslev S, Johansson J, Mortensen NA, Nilsson S, Kristensen A, (2006), Levitated droplet dye laser. Opt Express 14: 4374-4379.

**Capelle G.A.**, Broida H.P. ,(1973), Lifetimes and quenching cross sections of  $I_2(B^3P_{0u}^+)$ , Journal of Chemical Physics 58 (10), 4212-4222.

**Castanet G.**, Lavieille P., Lemoine F., Lebouché M., Atthasit A., Biscos Y., Lavergne G., (2002), Energetic budget on a evaporating monodisperse droplet stream using combined optical methods. Evaluation of the convective heat transfer, International Journal of Heat and Mass Transfer 45, 5053-5067.

**Castanet G.**, Lebouché M., Lemoine F.,(2005), Heat and mass transfer of combusting monodisperse droplets in linear stream, International Journal of Heat and Mass Transfer 48, pp. 3261-3275.

**Castanet G.**, Lebouché M., Lemoine F. ,(2005), Heat and mass transfer of combusting monodisperse droplets in linear stream, International Journal of Heat and Mass Transfer 48, 3261-3275.

**Castanet G.**, Liénart T., Lemoine F. ,(2009), Heating of droplets impacting onto a heated wall, International Journal of Heat and Mass Transfer 52, 670-679.

**Chen L.**,(2005), Study by numerical simulation of impact of multiple scattering on participating media, thèse de l'Université de Rouen.

**Chen G.**, Mazumder Md.M., Chang R.K., Swindal C., Acker W.P.,(1996), Laser diagnostics for droplet characterization : application of morphology dependent resonances, Prog. Energy. Combust. Sci. 22 , 163-188.

- Chevray R.**, Tutu N.K., (1978), Intermittency and preferential transport of heat in a round jet, *Journal of Fluid Mechanics* 88, 133-160.
- Chua L.P.**, Antonia R.A., (1990) Turbulent Prandtl Number in a circular jet, *Int. J. Heat and Mass Transfer* 33, 331-339.
- Chua L.P.**, Antonia R.A.,(1986), The turbulent interaction region of a circular jet, *Int. Commun. Heat and Mass Transfer* 13, 545-558.
- Copetta J.**, Rogers C. ,(1998), Dual emission laser induced fluorescence for direct planar scalar behavior measurements, *Exp. in Fluids* 25, 1-15.
- Corsin S.**, Uberoi M.S., (1950), Further investigations on the flow and heat transfer in a heated turbulent air jet, NACA report 998.
- Deprédurand V.**, Miron P., Labergue A., Wolff M., Lemoine F.,(2008), A temperature sensitive tracer suitable for two colour laser induced fluorescence applied to evaporating droplet temperature measurement, *Measurement Science and Technology* 19, No 10, 105430.
- Dowling D.R.**, Dimotakis P.E.,(1990), Similarity of the concentration field of gas-phase turbulent jets, *Journal of fluid Mechanics* 218, 109-141.
- Duscastel J.** ,(2007), Etude des résonances morphologiquement dépendantes et application à la caractérisation de microparticules en milieu diphasique, Thèse de Doctorat de l'Institut National des Sciences Appliquées de Rouen.
- Escobar S.**, Gonzalez J.E., Rivera L.A.,(2001), Laser-induced fluorescence temperature sensor for in-flight droplets, *Experimental Heat Transfer* 14, 119-134.
- Forstall W.**, Gaylord E.W.,(1955), Momentum and mass transfer in a submerged jet, *Journal of Applied Mechanics*, ASME paper NO. 54-A-38, 161-164
- Gaskey S.**, Vacus P, David R, Villiermaux J, Andrej C ,(1990), A method for the study of turbulent mixing using fluorescence spectroscopy. *Exp Fluids* 9: 137-147
- Glowacki J.** ,(1964), Further investigations into fluorescence quenching of the dyes by neutral salts. *Acta Physica Polonica* 15: 767-780.
- Goklap I.**, Chauveau G., Simon O., Chesneau X. ,(1992), Mass transfer from liquid fuel droplets in turbulent flow, *Combust. Flame* 89 : 286-298.
- Gouebest G.**, Gréhan G.,(2000), Generalized Lorenz-Mie Theories, from past to future, *Atomisation and spray* 1 : 277-333.
- Habuchi H.**, Kim H-B, Kitamura N.,(2000),Chemical size-effect on fluorescence lifetime of rhodamine 6G in ethylene glycol/water microdroplets in polydimethylsiloxane matrix, *Journal of Photochemistry and Photobiology* 133:189-196.



**Hartfield**, R.J., Hollo, S.D. and McDaniel, J.C.,(1993), Planar Measurement Technique for Compressible Flows using Laser-Induced Iodine Fluorescence, AIAA Journal 31 (3), 483-490.

**Hezberg** ,(1951),Spectra of diatomic molecules, 2<sup>nd</sup> edition, D Van Nostrand Compagny.

**Hiller** B., Hanson R.K. ,(1990), Properties of iodine molecule relevant to laser-induced fluorescence experiments in gas flows, Experiments in Fluids 10, 1-11.

**Hiller** W.J., Kovalewski T.A. ,(1986), Simultaneous measurements of temperature and velocity fields in thermal convective flows , Proceedings of the 4<sup>th</sup> international symposium on flow visualization, Vol. 4, 617-622.

**Hinze** J.O., Turbulence, Mac Graw ,(1975), Hill Edition, New York.

**Hinze** J.O, Van der Hegge Zijnen B.G.,(1949), Transport of heat and matter in the turbulent mixing zone of an axially symmetrical jet, Applied Science Research, A1, 425-461.

**Hishida** K., Sakakibara J. ,(2000), Combined planar laser-induced fluorescence-particle image velocimetry technique for velocity temperature fields, Exp. In Fluids 29 (Suppl.), S129-S140.

**Hung** H, Castillo J, Marcanjo Olaizola A ,(2003), Fluorescence spectra of rhodamine 6G for high fluence excitation laser radiation. J Luminescence 101: 263-268

**Karasso** P.S., Mungal M.G. ,(1997), PLIF measurements in aqueous flows using the Nd : YAG laser, Exp. In Fluids 23, 382-387.

**Koenig** G, Anders K, Frohn A,(1986), A new light-scattering technique to measure the diameter of periodically generated moving droplets. J Aerosol Sci 17: 157-167.

**Lattime** S.B., Braun M.J., Dzodzo M.,(1995), Simultaneous visualization on flow and temperature patterns in a shell and tube heat exchanger by TLC, FED-Vol. 218, Experimental and Numerical Flow Visualization, ASME.

**Laurent** C. ,(2008), Contribution au développement et à la validation de modèles d'évaporation multi-composant, Thèse de doctorat de l'Institut Supérieur de l'Aéronautique et de l'Espace (ISAE).

**Lavieille** P., Delconte A., Blondel D., Lebouché M., Lemoine F.,(2004), Non-Intrusive temperature measurements using three-color laser-induced fluorescence. **Experiments in Fluids** 36, pp. 706-716.

**Lavieille**, P., Lemoine, F., Lavergne, G., Virepinte, J.F., Lebouché, M. ,(2000), Température measurements on droplets in monodisperse stream using laser-induced fluorescence, Exp. in Fluids 29, 429.

**Lavieille**, P., Lemoine, F., Lavergne, G., Lebouché, M. ,(2001) Evaporating and combusting droplet temperature measurements using two colors laser-induced fluorescence, Exp. in Fluids, 31, 45.

- Lavieille P.**, Lemoine F., Lebouché M.,(2000), On the use of fluorescent tracers to measure droplets temperature., Comptes Rendus de l'Académie des Sciences, t. 328, Série II b, 55-60.
- Lavieille P.**, Lemoine F., Lebouché M., Lavergne G. ,(2001), Evaporating and combusting droplet temperature measurement using two colors laser-induced fluorescence, Experiments in Fluids 31, 45-55.
- Lavieille P.**, Lemoine F., Lebouché M., Lavergne G. ,(2001), Mesure de la température de gouttelettes en combustion par fluorescence induite par laser à deux couleurs : résultats préliminaires et perspectives, Comptes Rendus de l'Académie des Sciences t.329, Série II b, 557-564.
- Lemoine F.**, Wolff M., Lebouché M.,(1996), Simultaneous concentration and velocity measurements using combined laser-induced fluorescence and laser Doppler velocimetry, Exp. In Fluids 20, 178-188.
- Lemoine F.**, Wolff M., Lebouché M.,(1996), Investigation on a simultaneous temperature and concentration measurement in turbulent flows. Comptes Rendus de l'Académie des Sciences, t.322, série II b, 297-303.
- Lemoine F.**, Antoine Y., Wolff M., Lebouché M. ,(1999), Simultaneous temperature and 2D velocity measurements in a turbulent heated jet using combined laser-induced fluorescence and LDA, Exp. in Fluids 26, 315-323
- Lemoine F.**, Antoine Y., Wolff M., Lebouché M. ,(1999), Simultaneous temperature and 2D velocity measurements in a turbulent heated jet using combined laser-induced fluorescence and LDA, Experiments in Fluids 28, 315-323.
- Lu Q.**, Melton L.A. ,(2000), Measurement of transient temperature field within falling droplets, AIAA Journal 38, No. 1, 95-101.
- Massoli P.**,(1998), Rainbow refractometry applied to radially inhomogeneous spheres : the critical case of evaporating droplets, Applied Optics 37, No 15, 3227-3234.
- Mazumder M.M.**, Gang Chen P.J.,(1995), Droplet temperature determination using thermochromic additives, CLEO'95, USA.
- Mees L.**, Gouesbest G., Gréhan G.,(2001), Interaction between femtosecond pulses and a spherical microcavity : internal fields, opt. Commun 199 :33-38.
- Müller, T.**, Beushausen, V., Hentschel, W. ,(2000), 1D spontaneous Raman Scattering for Comprehensive 2D Spray Characterization, 8<sup>th</sup> International Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Pasadena, CA, USA.
- Murray A.M.**, Melton L.A. ,(1985), Fluorescence methods for determination of temperature in fuel sprays, Applied Optics 24, No. 17 : 2783-2787.
- Nakajima T.**, Ikeda Y., Utsunomiya M., (1993), Simultaneous measurements of velocity and temperature of water using FLDV and fluorescence, Scripta technical, pp 528-542.
- Panchapakesan N.R.**, Lumley J.L.,(1993), Turbulence measurements in axisymmetric jets of air and helium, Part 2 : Helium jet, Journal of Fluid Mechanics 246, 225-247.

**Papanicolaou P.N., List E.J.,(1988),** Investigation of round vertical buoyant jets, *Journal of Fluid Mechanics* 195, 341-391.

**Papanicolaou P.N., List E.J. ,(1988),** Investigations of round vertical turbulent buoyant jets, *J. Fluid Mech.*, 195, 341-391.

**Parigger C., Litchford R, S.M. Jong ,(1998),** Exciplex liquid-phase thermometer using time-resolved laser-induced fluorescence, *Optics Letter* 23, No.1, 76-78.

**Pastel R., Struthers A. ,(2001),** Measuring evaporation rates of laser-trapped droplets bu use of fluorescent morphology-dependent resonances, *Appied Optics* 40, No15 : 2510-2514.

**Ravel O., Naudin N., Farre J., Lavergne G.,(1997),** Infrared temperature measurement of burning droplets, *European Symposium on Environmental Sensing III, Munich, Germany.*  
**Roth N., Anders K., Frohn A. (1991)** Refractive index measurements for the correction of particle sizing methods, *Applied Optics* 30; 4960-4965.

**Roisman I., Tropea C., (2001),** Flux measurements in sprays using phase Doppler techniques, *Atomization and Sprays* 11, Issue 6.

**Roth N., Anders K., Frohn A.,(1992),** Simultaneous determination of refractive index and droplet size using Mie theorie, *Proc. Of the 6<sup>th</sup> International Symposium on Laser Techniques to Fluid Mechanics (Lisbon, Portugal), Vol. 1, 15.5.1-15.5.5.*

**Roth N., Anders K., Frohn A.,(1996),** Size intensitive rainbow refractometry : theoretical aspects, *Proc. Of the 8<sup>th</sup> International Symposium on Laser Techniques to Fluid Mechanics (Lisbon, Portugal), Vol. 1, 9.2.1-9.2.6.*

**Sakakibara J., Hishida K., Maeda M.,(1993),** Measurements of thermally stratified pipe flow using image-processing techniques, *Experiments in fluids.*

**Sakakibara J., Adrian R.J.,(1999),** Whole field measurement of temperature in water using two-color laser-induced fluorescence, *Exp. in Fluids* 26 : 7-15.

**Sakakibara J., Adrian R.J.,(2004),** Measurement of temperature field of a Rayleigh-Bénard convection using two-color laser-induced fluorescence, *Exp. in Fluids* 26 : 331-340.(2004)

**Sankar S.V., Robard D.M., Bacholo W.D.,(1996),** An advanced Rainbow sognal processor for improved accuracy in droplet measurement, *Proceeding of 8<sup>th</sup> international symposium on application of laser techniques to fluid mechanics, (Lisbo, Portugal), 9.3.1-9.3-9.*

**Sankar S.V., Robard D.M., Bacholo W.D.,(1997),** Application of rainbow thermometry to the study of fuel droplets haet-up and evaporation characteristics, *J. Eng. Gas Turbines Power* 119 : 573-584.

**Schweiger G. ,(1990),** Raman Scattering on single aerosol particles and on fowing aerosols : a review, *J. aerosol. Sci.*, 21, No. 4, 483-509.

**Sutton J. A., B., Fisher B. T., Fleming J. W., (2008),** A laser-induced fluorescence measurement for aqueous fluid flows with improved temperature sensitivity, Vol. 45, No 5

**Thomson S.L., Maynes D. ,(2001),** Simultaneous measurements of velocity and temperature in water using molecular tagging velocimetry-thermometry, Proceeding of ASME FEDSM'01, 2001 ASME Fluids Engineering Summer Meeting, New Orleans, USA, Louisiana.

**Valeur B. ,(2004),** Invitation à la fluorescence moléculaire, De Boeck, Bruxelles.

**Van Beeck J., Riethmuller M. ,(1994),** Simultaneous determination of temperature and size of droplets from the rainbow using the Airy theory, Proc. Of the 7<sup>th</sup> International Symposium on Laser Techniques to Fluid Mechanics (Lisbon, Portugal), Vol. 2, 21.5.1-21.5.6.

**Van Beeck J., Riethmuller M. ,(1995),** Non-intrusive measurements of temperature and size of single falling raindrops, Applied Optics 34 : 1633-1639.

**Van Beeck J., Riethmuller M.,(1996),** Rainbow phenomena applied to the measurement of droplet size and velocity and the detection of nonsphericity, Applied Optics 35, No. 13, 2259-2266.

**Van Beeck J., Riethmuller M.,(1997),** Rainbow interferometry with wire diffraction for simultaneous measurement of droplet temperature, size and velocity, Part. Part. Syst. Charact. 14 : 186-192.

**Van Beeck J., Giannoulis, D., Zimmer, L., Riethmuller, M.L.,(2000),** Global rainbow thermometry for average temperature measurement of spray droplets, Proceeding of the 10<sup>th</sup> Symposium on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics, Lisbon, Portugal.

**Van Beeck, J., Giannoulis, D., Zimmer, L., Riethmuller, M.L.,(2000),** Global rainbow thermometry for droplet temperature measurement, Optical Letter 24: 1696-1698.

**Van Beeck, J., Zimmer, L., Riethmuller, M.L.,(2001),** Global rainbow thermometry for mean temperature and size measurement of spray droplets, Part. Part. Syst. Charact. 18: 196-204.

**Vetrano M.R., VanBeeck J., Riethmuller M.L.,(2004),** Global rainbow thermometry: improvements in the data inversion algorithm and validation technique in liquid-liquid suspension, Applied Optics 43: 3600-3607.

**Vetrano M. R., van Beeck J., Riethmuller M., (2005),** Generalization of Rainbow Airy theory to nonuniform spheres, Optics Letters 30: 658-660.

**Walker D.A. (1987)** A fluorescence technique for measurement of concentration in mixing liquids, J. Phys. E. Instr. 20: 217-224.

**Walker D.A. (1987)** A fluorescence technique for measurement of concentration in mixing liquids, J. Phys. E. : Sci. Instrum. 20, 217-224.

**Walker J.D. (1976)** Rainbow from single drops of water and other liquids, Am. J. Phys. 44, 421-433.

**Wells M.R., Melton L.A. (1990)** Temperature Measurements of falling droplets, Transaction of the ASME, Journal of Heat Transfer 112, 1008-1013.

**Wolff M., Delconte A., Schmidt F., Gucher P., Lemoine F. (2007)** High pressure Diesel spray temperature measurements using two-colour laser-induced fluorescence, Measurement Science and Technology 18: 697-706.

**Wu J.-S, Liu Y.-J, Sheen H.-J, (2001)**, Effects of ambient turbulence and fuel properties on the evaporation rate of single droplets, International Journal of Heat and Mass Transfer. 44 4593-4603.



AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE  
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL  
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

oOo

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur Frédéric GRISCH, Maître de Recherche, ONERA, Palaiseau**  
**Monsieur Claude ROZÉ, CORIA, Saint Etienne du Rouvray**

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine,  
autorise :

**Monsieur DELCONTE Alain**

NANCY BRABOIS  
2, AVENUE DE LA  
FORET-DE-HAYE  
BOITE POSTALE 3  
F - 54501  
VANDŒUVRE CEDEX

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE  
LORRAINE, une thèse intitulée :

**"Fluorescence induite par laser multibande appliquée à la mesure de température dans  
les milieux complexes"**

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Mécanique et Energétique »

Fait à Vandoeuvre, le 06 octobre 2009

Le Président de l'I.N.P.L.,

F. LAURENT



# Fluorescence induite par laser multibande appliquée à la mesure de température dans les milieux complexes

## Résumé :

La fluorescence induite par laser multibande est une technique non intrusive permettant d'accéder à la température de la phase liquide dans des milieux complexes. L'application de cette technique dans des liquides monophasiques où le chemin optique est variable (produit de la concentration moléculaire du traceur et de la distance dans le milieu liquide entre le volume de mesure et l'optique de détection) a été considérée. Le rapport des intensités de fluorescence collectées sur deux bandes spectrales permet de s'affranchir de la concentration en traceur fluorescent, de l'intensité laser incidente et du volume de mesure. Une troisième bande spectrale de détection permet de prendre en compte le terme de ré-absorption de la fluorescence dans le cas de chemins optiques non-négligeables et variables.

Puis l'application de la technique à la mesure de la température de la phase liquide d'un spray est présentée. Un traitement spécifique du signal a été développé afin de tenir compte de la nature aléatoire du signal de fluorescence liée à la présence de gouttes dans le volume de mesure. De plus, ce traitement a été adapté afin de rendre possible le couplage des données de fluorescence avec des mesures granulométriques effectuées par la technique phase Doppler dans la perspective finale d'obtenir des températures de goutte par classe de taille.

Cependant plusieurs phénomènes perturbateurs ont été mis en évidence :

- une dépendance inattendue et non linéaire à la taille de goutte du rapport des intensités de fluorescence collectées sur deux bandes spectrales.
- une forte diffusion de la lumière laser incidente par le nuage de gouttelettes induit une fluorescence bien au delà de la zone d'excitation laser. Cette fluorescence parasite est néanmoins détectée dans la profondeur de champ du dispositif optique et se conjugue avec l'effet non-linéaire de la taille des gouttes.

Une stratégie de correction de ces différents phénomènes est proposée et une expérience de validation est réalisée sur un spray chauffé injecté dans une cellule saturée en vapeur.

## Multiband Laser-induced Fluorescence applied to temperature measurement in complex media

### Abstract :

Multiband laser-induced fluorescence is a non-intrusive technique able to provide a measurement of the liquid phase of complex media. The application of this technique in single phase liquids, with a variable optical path (product of the fluorescent tracer molecular concentration by the distance between the probe volume and the collection optics in the liquid) was considered. The ratio of the fluorescence intensities collected on two spectral bands allows removing the influence of the fluorescence tracer concentration, incident laser intensity and probe volume. A third spectral band of detection is used to take into account the re-absorption of the fluorescence in the case of non negligible and variable optical paths.

Then, the application of this technique to the measurement of the temperature of the liquid phase of a spray is presented. A specific data processing was developed in order to take into account the random presence of droplets in the probe volume. Moreover, the processing was adapted to achieve combined fluorescence and droplet size measurements using the phase Doppler technique. The overall foreseen goal is to measure temperature per droplet size class.

However, several disturbing phenomena were highlighted:

- an unexpected non-linear dependence on the droplet size of the ratio of the fluorescence intensities collected on two spectral bands,
- a strong incident laser light scattering by the droplets cloud, which induces a fluorescence beyond the excitation zone. This fluorescence is also collected in the depth of field of the optical device and combines with the non-linear size dependence.

A correction strategy of these phenomena was implemented and a validation experiment on a heated spray injected in a vapour-saturated cell was performed.

**Mots Clés:** fluorescence induite par laser, sulforhodamine B, jet chaud, chemin optique, spray, goutte, phase Doppler

**Key Words:** laser-induced fluorescence, sulforhodamine B, heated jet, optical path, spray, droplet, phase Doppler