



**HAL**  
open science

## Granulométrie optique des écoulements

Fabrice Onofri

► **To cite this version:**

Fabrice Onofri. Granulométrie optique des écoulements. Techniques de l'Ingénieur, 2023, r2165, 10.51257/a-v1-r2165 . hal-04193902

**HAL Id: hal-04193902**

**<https://hal.science/hal-04193902>**

Submitted on 1 Sep 2023

**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.

---

**Version amandée, révisée et publiée :**

Fabrice ONOFRI, Granulométrie optique des écoulements. Techniques de l'ingénieur Mesures physiques, 2023. base documentaire : **TIP672WEB** (ref. article : r2165).

<https://doi.org/10.51257/a-v1-r2165>

---

# Granulométrie optique des écoulements

## *Optical particle characterization in flows*

par **Fabrice ONOFRI**

Fonction : Directeur de Recherche au CNRS

Affiliation (Laboratoire IUSTI, UMR 7343 CNRS/Aix-Marseille Université, Marseille, France)

### Résumé

Cet article traite des techniques de mesure optique de la taille, la morphologie, la concentration, les flux et l'indice de réfraction des particules microscopiques (gouttes, bulles, particules et agrégats) dans les écoulements et systèmes dilués. Elles sont classées en fonction des gammes de taille (du nanomètre au millimètre), des grandeurs mesurées simultanément, des principes de mesure utilisés et des modes d'obtention des statistiques. Parmi ces techniques on compte l'interférométrie phase Doppler, l'imagerie ombroscopique, la diffractométrie à l'angle d'arc-en-ciel et la spectrométrie d'extinction.

**Mots-clés : Granulométrie, particules, écoulements, optique, laser**

### *Abstract*

*This paper reviews techniques for the optical characterization of the size, morphology, concentration, fluxes and refractive index of microscopic particles (drops, bubbles, particles and aggregates) in dilute flows and systems. They are classified according to the size range (from the nanometer to millimeter scale), the quantities measured simultaneously, the measurement principles used and the methods of obtaining statistics. These techniques include notably the phase Doppler interferometry, shadowgraph imaging, diffractometry at the rainbow angle and light extinction spectrometry.*

**Keywords : Particle sizing, particle, flow, optical, laser**

## Table des matières

<b>1</b>	<b><i>Classement des techniques de granulométrie optique</i></b>	<b>4</b>
1.1	Taille, forme et composition des particules	4
1.2	Propriétés de diffusion et d'absorption de la lumière	5
1.3	Principes physiques et quantités mesurées	9
<b>2</b>	<b><i>Techniques de diffraction</i></b>	<b>11</b>
2.1	Diffraction vers l'avant (ou diffraction laser)	12
2.2	Diffraction (ou réfraction) à l'angle d'arc-en-ciel	15
2.3	Diffraction (ou réfraction) à l'angle critique	18
<b>3</b>	<b><i>Techniques interférométriques</i></b>	<b>19</b>
3.1	Interférométrie (ou anémométrie) Phase Doppler	19
3.2	Imagerie interférométrique en défaut de mise au point	23
3.3	Holographie numérique en ligne	26
<b>4</b>	<b><i>Techniques d'imagerie incohérente</i></b>	<b>28</b>
4.1	Ombroscopie	28
4.2	Imagerie ombroscopique Doppler 1D	30
4.3	Imagerie par ratio de fluorescence et diffusion élastique	31
<b>5</b>	<b><i>Autres méthodes</i></b>	<b>33</b>
5.1	Spectrométrie d'extinction	33
5.2	Techniques polarimétriques (ou d'ellipsométrie)	35
5.3	Incandescence induite par laser	36
5.4	Diffusion dynamique de la lumière	36
<b>6</b>	<b><i>Conclusion</i></b>	<b>37</b>

## **Introduction**

*La granulométrie a pour objet la mesure de la répartition statistique de la taille et de la forme de - particules - un terme générique désignant ici indifféremment des gouttes, des bulles, des particules et agrégats solides. Quand elle est optique et appliquée aux écoulements à phase(s) dispersée(s), elle doit caractériser de manière in-situ ces particules, sans perturber l'écoulement qui peut être réactif et distant, et ceci, avec une réponse temporelle adéquate du point de vue de la dynamique du système étudié. La détermination de la concentration locale en particules et autres statistiques normées nécessite de déterminer les dimensions effectives du volume optique de mesure de la technique. Ce volume de mesure est certainement l'un des paramètres les plus difficiles à obtenir avec précision car il évolue constamment, avec les caractéristiques des particules mais aussi les conditions de la mesure. L'existence de corrélations taille-vitesse nécessite la détermination de la dynamique des particules, pour obtenir les flux, mais aussi pour fiabiliser les statistiques.*

*La plupart des techniques de granulométrie optique, à l'exception de certaines techniques d'imagerie, nécessitent une description précise des propriétés de diffusion et d'absorption des ondes électromagnétiques par les particules. En effet, à partir d'une simple intensité lumineuse diffusée, d'un interféromètre ou d'un spectre d'extinction, il faut pouvoir en déduire, en quelques micro ou millisecondes, des propriétés intrinsèques ou extrinsèques parfois complexes. Ce qui explique que nombre de techniques granulométriques n'ont véritablement été opérationnelles qu'à partir des années 90, avec les progrès des modèles de diffusion de la lumière et des méthodes de régularisation, l'augmentation des capacités des ordinateurs personnels, mais aussi de l'électronique de détection et des sources laser.*

*Les techniques de granulométrie optique sont toutes limitées à une gamme de taille et de concentration, et des morphologies de particules données. Il y a trois raisons principales à cela. Premièrement, si caractériser des particules nano à millimétriques revient à couvrir six ordres de grandeur dimensionnels, cela correspond approximativement à près de vingt-quatre ordres de grandeur en terme d'intensité diffusée - une dynamique impossible à mesurer. Deuxièmement, les modes de diffusion de la lumière des particules dépendent fortement de leur taille et morphologie. Troisièmement, la densité optique de l'écoulement particulaire perturbe la propagation des faisceaux laser mais aussi le flux diffusé par les particules et notre capacité à interpréter des signaux brouillés par la diffusion multiple.*

*Pour toutes ces raisons, la granulométrie optique des écoulements est une discipline complexe, avec de très nombreuses ramifications et cas particuliers. Cet article se focalise sur les principales techniques employées pour caractériser les écoulements optiquement dilués où les particules sont essentiellement nano à micrométriques, voire millimétriques. La première partie introductive de cet article porte sur les caractéristiques des particules à analyser, leurs propriétés de diffusion de la lumière, les différentes grandeurs statistiques d'intérêt et une classification des principales techniques de granulométrie. La seconde partie traite des techniques de diffraction dans le champ lointain; la troisième, des techniques interférométriques; la quatrième, des techniques d'imagerie et la cinquième, de techniques complémentaires basées sur l'extinction, l'incandescence induite par laser, la polarisation ou le mouvement brownien. Viennent ensuite une conclusion générale et des éléments bibliographiques.*

# 1 Classement des techniques de granulométrie optique

## 1.1 Taille, forme et composition des particules

Les notions de taille et forme des particules sont à évaluer à l'aune de la longueur d'onde du faisceau d'éclairage et du principe de la mesure. Pour des particules sphériques de diamètre  $D$ , la valeur de leur paramètre de taille  $\alpha = \pi D / \lambda_e$  conditionne ainsi fortement leurs propriétés de diffusion de la lumière. Avec, pour les longueurs d'onde visibles dans l'air,  $\lambda_0 \sim 0.38 - 0.78 \mu m$  et celles dans le milieu fluide d'indice  $m_e$ ,  $\lambda_e = \lambda_0 / m_e$ . Ainsi, pour  $\alpha \ll 1$ , l'intensité diffusée par une particule transparente est globalement proportionnelle à  $D^6$ , on parle de régime de diffusion de Rayleigh, alors que pour  $\alpha \gg 1$ , elle est proportionnelle à  $D^2$ , on parle de régime de diffusion de Mie. Pour  $\alpha \sim 1$ , le régime de diffusion est dit transitoire, voir la Figure 1. Il n'existe pas de critère aussi simple pour classer les effets attendus de la forme des particules. Cependant, force est de constater que nombre de granulomètres optiques et même de théories de la diffusion de la lumière ont été développés pour des particules dont tout écart dimensionnel à la sphéricité est très inférieur à la longueur d'onde. Ce peut être pour raisons mathématiques, du fait de l'utilisation d'une méthode de séparation des variables ou de relations de récurrences géométriques par exemple. Ou bien pour des raisons plus prosaïques, comme la multiplicité et la complexité des paramètres nécessaires à la description de l'état de surface, de la forme et de l'orientation de particules irrégulières. Ce peut être aussi par manque d'intérêt pour ces propriétés qui sont rarement prises en compte par la mécanique des fluides numérique. En pratique, ces granulomètres sont pour la plupart limités à la mesure de particules fluides (gouttes, bulles), billes ou fibres industrielles, pour lesquelles la tension superficielle assure (ou a permis d'assurer) un état de surface parfait jusqu'à l'échelle moléculaire. Comme nous le verrons, il existe néanmoins quelques solutions pour des particules aux formes aciculaires, sphéroïdales, cristallines ou des agrégats.

Les écoulements transportent des particules dont la taille peut aller des échelles nanométrique (colloïdes, nanocristaux, suies), micrométrique (pollens, ciment, gouttelettes) à millimétrique (gouttes, bulles, scories). Ces six ordres de grandeur dimensionnels correspondent à 24 ordres de grandeurs pour l'intensité diffusée. Une telle dynamique en intensité est totalement inaccessible à l'expérience. Les granulomètres ne peuvent pas mesurer toutes ces particules en même temps. Leur dynamique maximale dépasse rarement deux à trois ordres de grandeurs et, pour un réglage et une expérience donnée, un ou deux ordres de grandeur (c.-à-d. que  $D_{\max} / D_{\min} < 10 - 100$ ). Bien d'autres facteurs peuvent encore réduire cette dynamique.

Avec le paramètre de taille, le seul autre nombre adimensionnel d'importance est l'indice complexe relatif des particules,  $\tilde{m} = m + i\kappa$  avec  $i^2 = -1$ . La partie réelle  $m = m_0 / m_e$  et la partie imaginaire  $\kappa = \kappa_0 / m_e$  de l'indice de la particule sont respectivement responsables des phénomènes de diffusion et d'absorption. De manière générale, la partie réelle de l'indice est assez corrélée à la densité du matériau des particules, mais ce n'est pas le cas de la partie imaginaire qui est liée à des bandes d'absorption moléculaires. Beaucoup de granulomètres nécessitent une parfaite connaissance des différents indices (et donc de la composition des particules et du milieu fluide), ce qui peut être très problématique dans les applications industrielles aux matériaux mal connus et fortement variables. Fort heureusement, il existe quelques bases de données sur l'indice complexe des matériaux, voir à ce propos la bibliographie. De plus, certains granulomètres, basés sur la diffraction vers l'avant ou l'imagerie incohérente par exemple, sont moins sensibles à ce paramètre. D'autres encore, comme la diffractométrie aux angles d'arc-en-ciel et critique, permettent même

de l'estimer en plus de la taille.

## 1.2 Propriétés de diffusion et d'absorption de la lumière

A contrario des techniques de vélocimétrie utilisées pour caractériser la dynamique des écoulements, les techniques de granulométrie nécessitent une description précise et numériquement efficace de l'interaction lumière-matière. Il existe de nombreuses approches pour modéliser et inverser leurs signaux. Si l'optique géométrique est la plus utilisée pour expliquer les principes, sa résolution est rarement suffisante pour des mesures de qualité. A l'inverse, les approches électromagnétiques sont précises, mais peu intuitives, limitées et très coûteuses en ressources informatiques. Les approches asymptotiques et hybrides constituent parfois des alternatives pertinentes.

### 1.2.1 Optique Géométrique

L'optique géométrique s'applique aux particules très grandes devant la longueur d'onde et dont la surface est continue et dérivable [1, 2]. Elle décompose l'onde incidente en rayons réfléchis, réfractés et absorbés par la particule. Les directions des rayons sont obtenues avec les relations de Snell-Descartes, avec pour la réfraction:  $m \cos \tau' = \cos \tau$  [2], où  $\tau$  et  $\tau'$  sont les compléments des angles d'incidence et de réfraction classiques, Figure 1 a. Un rayon incident est donc partiellement réfléchi (ordre de diffusion noté  $p=0$ ), partiellement transmis par réfraction sans réflexion (ordre  $p=1$ ), partiellement transmis par réfraction après  $p-1$  réflexion(s) interne(s) (ordre  $p>1$ ). On peut ainsi suivre le parcours des rayons (« ray tracing » en anglais). L'ajout de l'amplitude complexe des rayons requiert la prise en compte de quatre contributions. La première est liée aux coefficients de Fresnel de l'interface milieu fluide – matériau de la particule. La seconde prend en compte la courbure de cette interface, via un terme de divergence du front d'onde. La troisième traduit l'absorption éventuelle des rayons  $p \geq 1$  le long de leur parcours géométrique  $\ell_p$ . La quatrième est la phase des rayons, qui dépend de leur parcours optique (entre les plans d'onde de référence  $\Sigma$  et  $\Sigma'$ ) mais aussi des points et lignes focales de la particule [2]. En sommant un grand nombre d'ordres de diffusion pour différents paramètres d'impact, on obtient un bon accord avec la TLM dans les régions angulaires où les effets ondulatoires (diffraction, caustiques, ondes de surface) ne sont pas dominants [3, 4]. L'optique géométrique est très utilisée pour modéliser la réponse des techniques interférométriques, voir le §3.1.2. Ses développements portent sur les particules de forme plus complexes ou des approches hybrides [5-8].

### 1.2.2 Approximations d'optique physique

Parmi les approximations d'optique physique, la théorie scalaire de diffraction est certainement la plus connue. La diffraction « pure » est un phénomène ondulatoire lié à la discontinuité des constantes optiques à l'interface milieu fluide – particule [9, 10]. Seul le contour de la particule contribue au phénomène. La fonction de transmission de la particule est de valeur unitaire sur toute sa surface et nulle au-delà. En ce sens, la diffraction complète les contributions géométriques liées exclusivement aux rayons arrivant sur la surface de la particule. Suivant la distance d'observation et la précision souhaitée, il en existe différentes approximations (de Fraunhofer, Fresnel ou Rayleigh-Sommerfeld par exemple)[9], qui peuvent être calculées quasi-analytiquement pour les particules de forme simple, et numériquement dans le cas contraire. Pour des particules sphériques, la diffraction produit vers l'avant des franges circulaires, centrées sur l'axe de propagation de l'onde incidente, dont l'ouverture et l'espacement angulaire dépendent fortement de la taille et dans une moindre mesure de l'indice des particules, voir à ce propos le §2.1 sur la diffractométrie laser.

Selon la théorie d'Airy de l'arc-en-ciel [11], ce dernier est un phénomène purement ondulatoire lié à l'existence d'un angle de réfraction limite (fronce ou « cusp » en anglais)[4] pour tous les rayons  $p \geq 2$  - la particule étant grande devant la longueur d'onde, parfaitement sphérique et d'indice  $m > 1$ . Son profil d'intensité est calculé à l'aide de la théorie de diffraction scalaire avec, pour la fonction de transmission, une approximation analytique du front d'onde des rayons  $p=2$  au voisinage de l'angle d'arc-en-ciel  $\theta_{a,p}$  prédit par l'optique géométrique. De forme cubique, il forme à l'infini une caustique (« cusp caustic ») composée de franges circulaires dont les caractéristiques dépendent fortement de la taille et de l'indice des particules, voir à ce propos la Figure 5 et le §2.2.

Selon l'Approximation d'Optique Physique de la diffusion critique [12, 13], cette dernière est un phénomène purement ondulatoire liée à la non-dérivabilité des coefficients de Fresnel à l'angle de réflexion totale des rayons  $p=0$  - la particule étant grande devant la longueur d'onde, parfaitement sphérique et d'indice  $m < 1$ . Le profil d'intensité correspondant est calculé avec la théorie de la diffraction scalaire avec, pour la fonction de transmission, une approximation de la forme du front d'onde des rayons  $p=0$ . De forme quadratique, ce dernier est obtenu en calculant le déphasage des rayons  $p=0$  au voisinage de l'angle critique  $\theta_c$  prédit par l'optique géométrique. Il forme à l'infini une caustique faible (en anglais « weak caustic ») composée de franges circulaires dont les caractéristiques dépendent fortement de la taille et de l'indice des particules, voir à ce propos la Figure 5 et le §2.3.

### 1.2.3 Théories électromagnétiques et approximations

La théorie de Mie, ou de Lorenz-Mie (TLM), fait référence [14, 15]. Elle traite de manière exacte le problème de la diffusion d'une onde plane harmonique par une sphère homogène, isotrope, à matériel local et linéaire, placée dans un milieu environnant non absorbant (on parle d'un diffuseur de Mie). Cette théorie électromagnétique consiste à résoudre l'équation d'onde en coordonnées sphériques avec une méthode de séparation des variables et des conditions limites reliées par les équations de Maxwell. Elle est très largement utilisée pour calculer : les diagrammes de diffusion  $I(\theta)$ , c.-à-d. dire l'intensité diffusée  $I$  en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$  (et de la polarisation parallèle ou perpendiculaire de l'onde incidente), Figure 1 b et Figure 1 c ; les coefficients d'absorption  $Q_a = C_a / \pi a^2$ , de diffusion  $Q_s = C_s / \pi a^2$  et d'extinction  $Q_e = C_e / \pi a^2$  de la particule, Figure 1 c. Les sections efficaces  $C_a, C_s, C_e = C_a + C_s$  [ $m^2$ ] quantifient la fraction de la surface de l'onde incidente pour lesquelles le flux énergétique incident est absorbé, diffusé ou éteint par la particule. Parmi les comportements marquants, la TLM montre que les diagrammes de diffusion sont très sensibles à l'état de polarisation de l'onde incidente, fortement anisotropes et d'autant plus irréguliers (nombre de lobes croissant) que le paramètre de taille  $\alpha$  augmente, voir la Figure 1 b. L'évolution de leur intensité croît aussi de manière non-linéaire avec la taille des particules, avec des comportements asymptotiques marqués, Figure 1 c, alors que le coefficient d'extinction tend vers 2 quelle que soit la composition des particules, Figure 1 d. La TLM a été généralisée aux faisceaux gaussiens circulaire [16] et feuille laser [17], ainsi qu'aux particules à cœur et multicouches [18], avec inclusions [19], sphéroïdales [20] ou cylindriques [21], Figure 1 e. La théorie (ou décomposition de) Debye [22] est très similaire à TLM. Elle s'en distingue par sa capacité à identifier - à l'instar de l'optique géométrique pour les rayons - les contributions des ondes électromagnétiques partiellement réfléchies et diffractées de celles qui sont réfractées par la particule.

La méthode de la T-Matrice [23] détermine la matrice de transfert entre champ interne et champ externe par des approches basées sur l'intégration des conditions limites du problème de diffusion.

Si, a contrario de la DDA, elle nécessite un modèle géométrique de la forme de la particule, elle permet de simuler les propriétés de diffusion de particules bien plus grandes ( $\alpha < 10 - 100$ ) [23, 24]: sphéroïdes, cylindres tronqués, agrégat de sphères...

La théorie de Rayleigh, cas limite de la TLM, assimile la diffusion d'une particule au rayonnement d'un dipôle électrique placé dans un champ quasi-statique - la particule étant très petite devant la longueur d'onde [14]. Elle a été la première à rendre compte de trois phénomènes optiques remarquables. Premièrement, la diffusion est proportionnelle au carré de la polarisabilité d'une particule, elle-même proportionnelle au volume de la particule, d'où une diffusion en  $D^6$  des molécules et nanoparticules. Deuxièmement, l'extinction et la diffusion évoluent en  $\lambda^{-4}$ . Troisièmement, l'anisotropie de la diffusion dépend fortement de la polarisation de l'onde incidente, avec une diffusion nulle pour la polarisation parallèle lorsque  $\theta = 90^\circ$ , Figure 1 b.

L'approximation de Rayleigh-Gans-Debye (RDG) est une généralisation de la théorie de Rayleigh dans le cas de particules peu diffusantes - qui déphasent essentiellement la lumière (en anglais « soft-particle »). Il en existe une version spécifique pour les agrégats fractals : la RDG-FA [25, 26]. Ne prenant pas en compte les effets de la diffusion multiple au sein des agrégats, elle est limitée aux agrégats de petite dimension (de moins de quelques longueurs d'onde) et de dimension fractale modérée.

L'approximation par dipôles discrets (DDA) est une méthode numérique généralisant la théorie de Rayleigh [27, 28]. La particule, décomposée en plusieurs milliers à millions de dipôles, peut être de forme quelconque mais son indice complexe doit rester modéré  $|\tilde{m} - 1| < 2$  et sa taille relativement petite  $|\tilde{m}\alpha| < 0,25$ .

#### 1.2.4 Densité optique des milieux particuliers

L'hypothèse de diffusion simple est commune à la quasi-totalité des granulomètres : dans le milieu optiquement dilué, les diffusions multiples sont négligeables, les particules diffusent comme si elles étaient isolées.

Cela revient à considérer que le libre parcours moyen  $A = (C_N C_e)^{-1}$  de la lumière est très supérieur  $A \gg L$  à la dimension caractéristique  $L$  du milieu sondé, ou de manière équivalente, que le taux de transmission d'un faisceau direct doit être important  $T \gg \exp(-C_N C_{ext} L)$ . Dans le cas contraire, pour se ramener dans le cadre de la diffusion simple, il faut réduire l'épaisseur optique  $C_N C_e L$  du milieu en diminuant  $L$ , ou la concentration en nombre de particules  $C_N$  ou la section efficace de ces dernières (en changeant, par exemple, de longueur d'onde ou en ajustant  $m_e$  pour obtenir que  $m \approx 1$ ). A noter que ces critères sont à prendre comme des ordres de grandeur plutôt que des bornes strictes car de nombreux autres facteurs peuvent entrer en jeu. Il existe quelques méthodes pour modéliser, limiter ou corriger des effets de la diffusion multiple (méthode de Monte Carlo, réduction de l'angle solide de la détection, photons balistiques, corrélations croisées) [29-31].



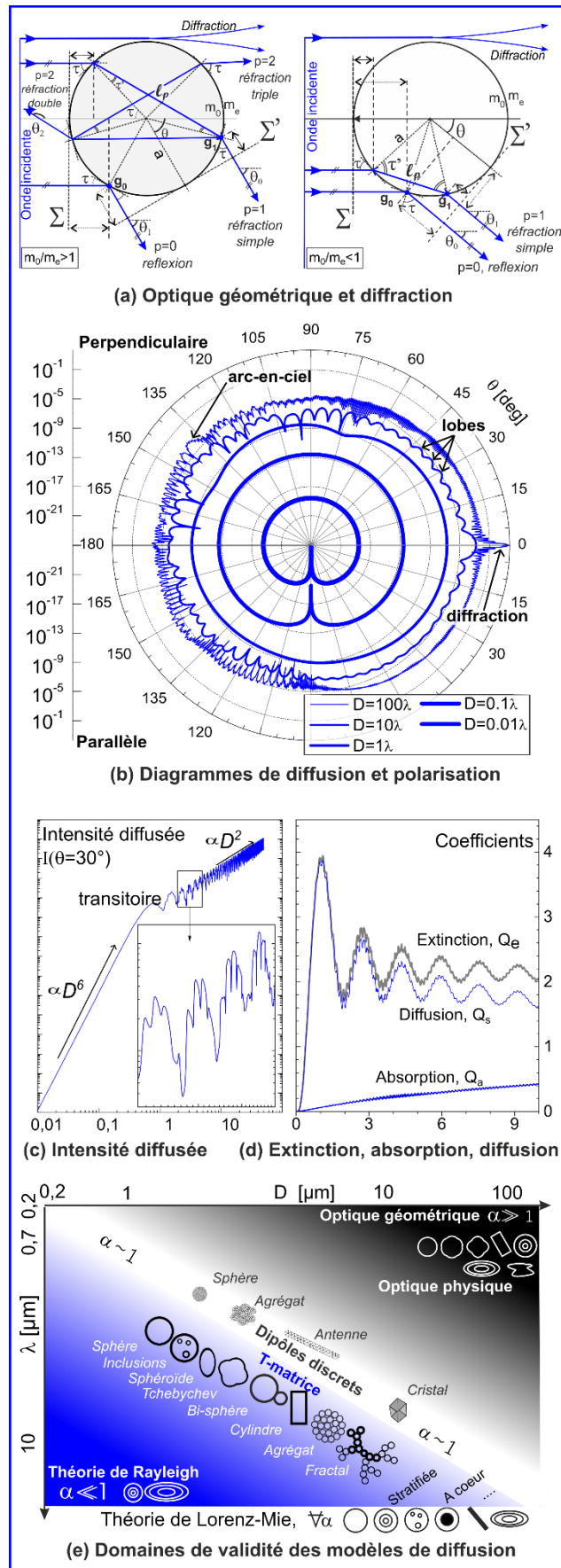


Figure 1 [1 COL] Propriétés optiques des particules et domaine de validité des principaux modèles de diffusion de la lumière.

## 1.3 Principes physiques et quantités mesurées

### 1.3.1 Quantités mesurées

La lumière prélève différentes informations sur le système particulaire. Elle les véhicule vers le photodétecteur où elles sont analysées au travers de la distribution spatiale, angulaire ou spectrale de son intensité statique, de son état de polarisation, de sa fréquence ou ses propriétés de cohérence et de phase. Les techniques analysant la même propriété de la lumière ont souvent des avantages et limites en commun.

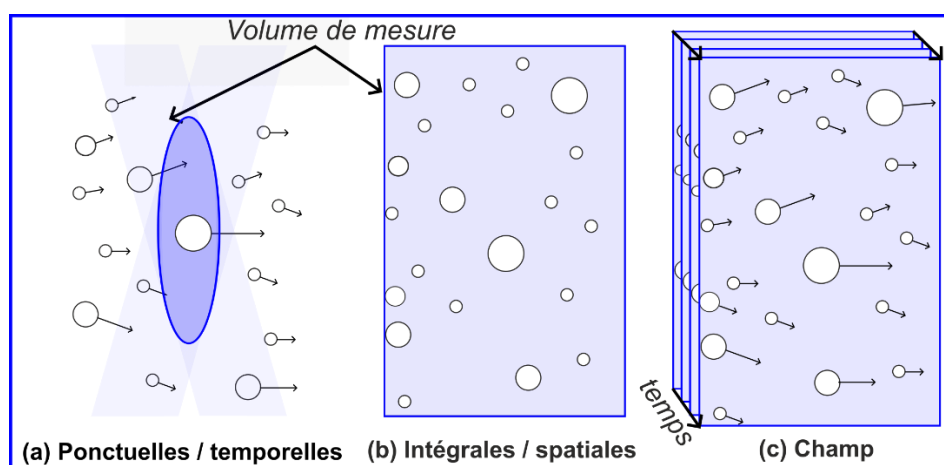


Figure 2 [1COL] Nature, échelle et mode d'obtention des statistiques.

### 1.3.2 Nature et mode d'obtention des statistiques

La granulométrie d'un système est souvent résumée par un diamètre moyen et un écart type. Le diamètre moyen est généralement un diamètre équivalent sphérique, c'est-à-dire le diamètre moyen d'une population de particules sphériques en même nombre, de même surface moyenne ou bien de même volume équivalent. La pondération pour le calcul du diamètre moyen dépend donc de la propriété que l'on souhaite au mieux synthétiser :

$$\bar{D}_f^e = \left( \frac{\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} D^e n(D) dD}{\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} D^f n(D) dD} \right)^{\frac{1}{e-f}} \quad (1)$$

où  $e \neq f$  avec  $e$  et  $f = 1, 2, 3, 4$  et  $n(D)$  la distribution granulométrique en nombre.  $\bar{D}_0^1$  ( $e=1$  et  $f=0$ ) est qualifié de diamètre arithmétique ou de diamètre en nombre. Il correspond à une moyenne classique, sans pondération. Physiquement, le  $D_0^2$ , qualifié de surfacique, rend mieux compte des effets surfaciques (évaporation, trainée) et le  $D_0^3$ , qualifié de volumique ou massique, des effets correspondants (transfert de masse, effets inertiels). Le diamètre de Sauter  $D_2^3$  établit un rapport entre effets volumiques et surfaciques. La distribution est l'objectif ultime, elle peut être en nombre, en volume... Elle est généralement qualifiée de monodisperse lorsque l'écart type relatif est faible ( $\sigma/\bar{D} < 0,1$ ) et de polydisperse dans le cas contraire, même si cette notion reste subjective et dépend beaucoup du domaine d'étude. La distribution est monomodale lorsqu'elle présente un seul mode (c.-à-d. pic) et multimodale dans le cas contraire [32, 33].

Les techniques ponctuelles caractérisent les particules individuellement. La distribution granulométrique est obtenue par intégration dans le temps de leurs propriétés lorsqu'elles passent, une à une, dans un petit volume de mesure. Qualifiées aussi de techniques temporelles ou

techniques de comptage, elles mesurent naturellement des flux en nombre de particules, Figure 2 a. Lorsqu'elles permettent de mesurer simultanément la vitesse de chaque particule détectée et les dimensions du volume de mesure (comme l'interférométrie phase Doppler par exemple), elles restituent également les flux nets et la concentration volumique locale de l'écoulement en particules. Ces techniques ont une forte résolution spatiale et une forte résolution temporelle.

Les techniques intégrales, ou spatiales, mesurent de manière quasi instantanée la distribution granulométrique de l'ensemble des particules présent dans un volume d'écoulement plus ou moins grand et de forme plus ou moins complexe. L'acquisition du signal vise à figer l'écoulement, Figure 2 b. Elles ne permettent donc pas de mesurer les corrélations tailles/vitesses et donc les flux. Dans cette catégorie, seule la diffractométrie vers l'avant fournit une mesure absolue de la concentration en particules.

Mesures	Forme des particules	Diamètres (µm)						Statistiques			Vitesses	Flux	Conc.	Indice	Cas d'usage	
		10 <sup>-3</sup>	10 <sup>-2</sup>	10 <sup>-1</sup>	1	10 <sup>1</sup>	10 <sup>2</sup>	10 <sup>3</sup>	T	S						C
Interférométrie Phase Doppler												1C, 2C, 3C	1-3D	Absolue (faible-intermed.)	Connu mesurable	(1-3)
Ellipsométrie												-	-	Relative (faible)	Connu mesurable	(4, 7)
Diffracton avant												-	-	Absolue (faible)	Peu sensible	(1-3, 4, 8)
Diffracton arc-en-ciel												-	-	Relative (faible)	Mesuré	(1)
Diffracton critique												-	-	Relative (faible)	Mesuré	(2)
Imagerie ombroscopique												2C	2D	Relative (très faible)	Peu sensible	(1-3, 8)
Imagerie interférométrique												2C	2D	Relative (très faible)	Connu	(1-2)
Holographie												3C	3D	Absolue (très faible)	Peu sensible	(1-3, 5)
Spectrométrie Extinction												-	-	Absolue (faible)	Connu très sensible	(4-7)
Spectrométrie Correl. Photons												-	-	Absolue (faible à élevée)	Peu sensible	(5, 8)
Imagerie : Fluor./Elastique												2C	2D	Relative (très faible)	Sensible (traceurs)	(1)
Incandescence Induite Laser												-	-	Relative (faible)	Connu sensible	(4, 6, 7)

Figure 3 [2COL] Classification des principales techniques de granulométrie optique des écoulements particulaires avec principaux cas d'usage: (1) pulvérisations, combustion diphasique ; (2) écoulements à bulles, cavitation ; (3) fluidisation (zone diluée); (4) aérosols ; (5) colloïdes, suspensions ; (6) suies; (7) plasma poussiéreux ; (8) biophysique.

Des techniques intermédiaires émergent. Parfois qualifiées de méthodes de champ,, elles permettent d'enregistrer à haute cadence les caractéristiques et positions d'un grand nombre de particules. Couplées à une méthode de suivi de particules (en anglais « Particle Tracking Velocimetry », PTV), elles permettent de remonter au diamètre, à la position (2D ou 3D) et à la vitesse de chaque particule présente dans le volume observé. La mesure est ponctuelle, dans le sens où chaque information enregistrée est parfaitement localisée spatialement et temporellement. Mais il s'agit également d'une mesure intégrale, car le post-traitement des données permet de calculer des moyennes temporelles avec la résolution souhaitée ou bien simplement des moyennes spatiales et temporelles globales. Elles mesurent naturellement une concentration (grandeur spatiale), les flux sont obtenus si la cadence d'acquisition est suffisante. Dans ce dernier cas, on peut parler de méthodes spatio-temporelles.

Le tableau de la Figure 3 synthétise les caractéristiques des principales techniques abordées en termes de : forme des particules analysables (en sombre : en standard, en clair : possible en laboratoire sous certaines conditions), gamme granulométrique maximale, nature des statistiques (T : temporelle, S : spatiales, C champ), d'obtention corrélée ou non de la dynamique des particules

( $n_C$ : composantes de la vitesses;  $n_D$ : dimensions pour les flux, avec  $n=1-3$ ), le type de concentration mesurée (aucune, relative ou absolue), de connaissance et sensibilité à l'indice ou éventuellement sa mesure (en laboratoire uniquement, sauf pour la diffractométrie à l'angle d'arc-en-ciel). Les cas d'usage les plus fréquents observés sont également indiqués : pulvérisations, combustion diphasique ; écoulements à bulles, cavitation ; fluidisation (zone diluée) ; aérosols ; colloïdes, suspensions ; suies ; plasma poussiéreux ; biophysique..

Les propriétés optiques des particules diffèrent fortement suivant qu'elles sont plus petites, de l'ordre de ou très grandes devant la longueur d'onde. Il est en de même du principe et similarité entre les techniques de mesure.

L'épaisseur optique d'un milieu dépend de sa densité en particules mais aussi des propriétés optiques de celles-ci, de l'angle et des distances observation.

Peu de techniques sont capables d'estimer les dimensions de leur volume de mesure et donc de fournir des statistiques normalisées.

La nature des statistiques restituées : en nombre, en surface, en volume, ponctuelle, spatiale, corrigée ou pas des vitesses, est déterminante pour l'interprétation des résultats.

La qualité des modèles de diffusion et des méthodes directes ou inverses a un rôle déterminant sur la qualité des mesures.

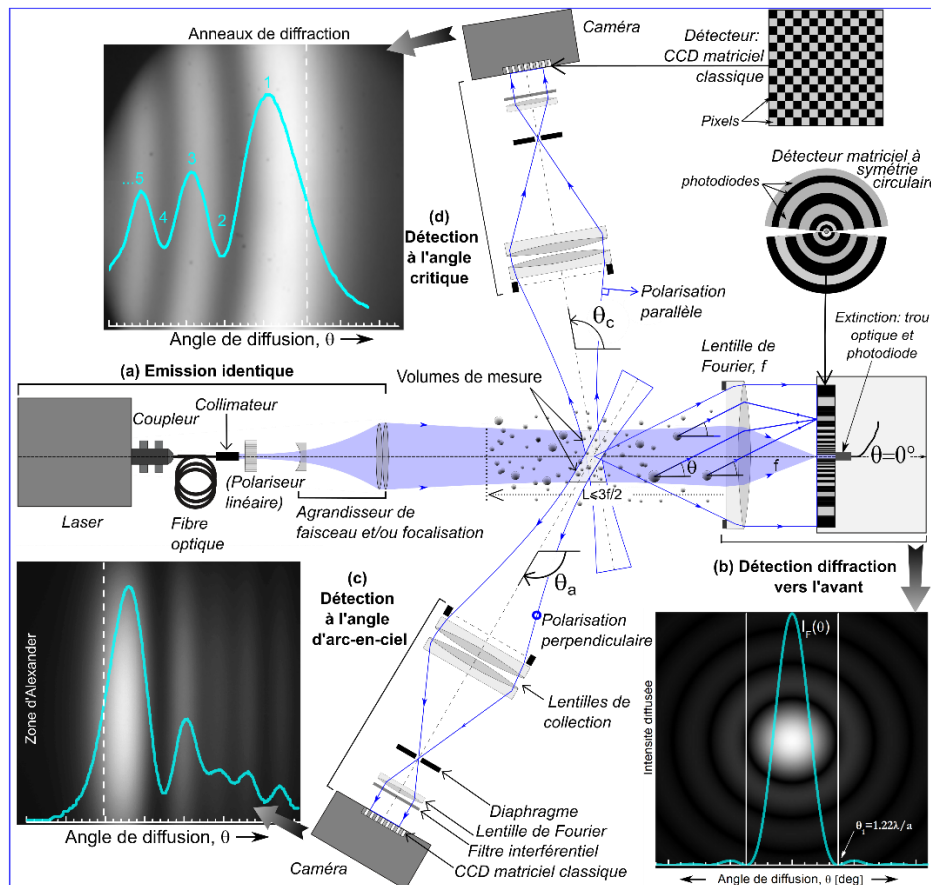


Figure 4 [2COL] Techniques de diffraction vers l'avant, aux angles d'arc-en-ciel et critique

## 2 Techniques de diffraction

## 2.1 Diffractométrie vers l'avant (ou diffractométrie laser)

### 2.1.1 Principe

Cette technique, assez largement documentée dans la littérature, repose sur l'analyse du diagramme de diffraction produit, vers l'avant ( $\theta \approx 0^\circ$ ), par une particule ou un nuage de particules. Le faisceau d'éclairage est généralement non polarisé et d'une longueur de cohérence supérieure aux dimensions des particules, sa puissance allant de quelque milliwatts (nuage de particules) à quelques centaines de milliwatts (particules individuelles) [32]. Dans le second cas, l'optique d'émission focalise ce faisceau dans l'écoulement alors que dans le premier cas elle le collimate et l'agrandit pour éclairer un grand nombre de particules (cas schématisé dans la Figure 4 a). L'optique de détection est essentiellement constituée d'une caméra matricielle (type CCD ou CMOS) placée derrière une lentille de Fourier, c.-à-d. dire à une distance égale à la focale effective  $f$  de cette lentille, voir la Figure 4 b. Le capteur est ainsi à l'infini du point de vue optique, ce qui permet de mesurer précisément des angles et rend les diagrammes de diffraction insensibles à la position relative des particules dans le volume de mesure (en anglais « remote sensing approximation »). L'approximation de Fraunhofer donne pour le profil angulaire d'intensité du diagramme de diffraction d'une particule de rayon  $a$  avec  $a \gg \lambda$  :

$$I(\theta) = I_0 \left[ \frac{2J_1(ka \sin \theta)}{ka \sin \theta} \right]^2 \quad (2)$$

où  $I_0$  est l'intensité locale du faisceau d'éclairage,  $J_1$  la fonction de Bessel sphérique du premier ordre et  $k = 2\pi/\lambda$  la norme du vecteur d'onde. Cette fonction de révolution est maximale pour  $\theta = 0^\circ$ , c'est-à-dire le lobe principal de la diffraction. Son intensité décroît ensuite très rapidement avec l'angle de diffusion  $\theta$ , en oscillant. Pour de petits angles, le rayon angulaire de la première frange noire (ou limite du lobe central) est donné par  $\theta_1 \approx \sin \theta_1 \approx 1,22\lambda / a$  [rad]. De la mesure de cet angle, on peut déduire le rayon de la particule.

Les techniques de diffraction analysent les diagrammes de diffusion à l'infini, dans des régions angulaires dominées par une singularité optique. Elles utilisent le même dispositif d'éclairage cohérent et collimaté, les mêmes méthodes d'enregistrement et d'analyse des signaux. Elles se distinguent par le positionnement angulaire de l'optique de détection et l'indice de réfraction relatif des particules qu'elles peuvent caractériser : vers l'avant et quel que soit l'indice pour la diffractométrie classique, au voisinage de l'angle d'arc-en-ciel et pour des indices  $m > 1$  pour la diffractométrie à l'angle d'arc-en-ciel, au voisinage de l'angle critique et pour des indices  $m < 1$  pour la diffractométrie à l'angle critique. Le passage entre caractérisation de particules individuelles, ou de nuages de particules, se fait en élargissant/focalisant le faisceau d'éclairage et en ajustant le taux de filtrage spatial de la détection. Ainsi, d'une technique directe, ponctuelle, avec restitution de moyennes temporelles par comptage, on passe à une technique inverse, intégrale, avec restitution de moyennes spatiales.

De fait, les diffractomètres commercialisés sont désormais exclusivement conçus pour caractériser un nuage de particules. Ils enregistrent donc le diagramme global produit par l'ensemble des particules situées dans la zone éclairée par le faisceau incident et une distance de l'ordre de  $L \leq 3f/2$  de la lentille de Fourier. Pour un milieu optiquement dilué et des particules distribuées aléatoirement dans ce volume de mesure, ce diagramme est approximé par la sommation incohérente des contributions individuelles. Il s'agit donc d'une intégrale de Fredholm du premier type :

$$\bar{I}(\theta) \propto I_0 P_v C_N \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} I(D; \theta, \tilde{m}) n(D) dD \quad (3)$$

où  $C_N$  [part./m<sup>3</sup>] est la concentration en nombre des particules présentes dans le volume de mesure

de volume  $P_v [m^3]$ . Pour remonter à la distribution granulométrique en nombre  $n(D)$ , il faut résoudre un problème inverse.

### 2.1.2 Inversion

A l'origine, le noyau  $I$  de l'équation intégrale (3) était exclusivement calculé avec la théorie de Fraunhofer (cf. Eq. (2)). Désormais, les diffractomètres utilisent aussi la TLM (surtout pour les petites particules). Pour diminuer le nombre de conditionnement de la matrice de diffusion, il est préférable de rechercher la distribution granulométrique en volume,  $v(D)$ , normalisée à 1, plutôt que celle en nombre. Avec, pour des particules sphériques :

$$\bar{I}(\theta) \propto \frac{6C_V}{\pi} \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} \frac{I(D; \theta, \tilde{m})}{D^3} v(D) dD \quad (4)$$

où  $C_V [m^3/m^3]$  est la concentration volumique en particules. La forme algébrique du problème intégral est  $\bar{I} \equiv I \cdot V$  avec pour la distribution volumique  $V = \mathcal{G}C_V v(D) [m^3/m^3]$  :

$$\bar{I}_i = \mathcal{G}C_V \sum_{j=1}^M I_{i,j} v_j \quad (5)$$

où  $\mathcal{G} = 6/\pi$  et la quantité à déterminer est écrite sous la forme d'un vecteur  $v_j$  avec  $j = 1, 2, \dots, M$ .  $I$  est une matrice de diffusion dont les dimensions sont égales à  $N \times M$  et les éléments  $I_{i,j} = I(\theta_i, D_j; \tilde{m})/D_j^3$  sont calculés pour un angle de diffusion donné et la classe des diamètres centrés sur  $D_j$ . Du fait du bruit expérimental et numérique, résoudre directement  $\bar{I} \equiv I \cdot V$  est très délicat. Il est préférable de converger vers la solution en minimisant la différence entre le vecteur mesuré  $I_{\text{exp}}$  et le vecteur modélisé  $\bar{I}$ . A cette étape, pour s'affranchir du problème de la concentration, il est également préférable de normaliser l'intégrale de ces deux vecteurs à 1. Classiquement, la minimisation est opérée à l'aide d'une méthode de moindres carrés avec solution non négative (Non Negative Least-Square problem : NNLSQ) :  $\min_{V>0} \|\bar{I} \cdot V - I_{\text{exp}}\|^2$ . La méthode de régularisation de Phillips–Twomey, équivalente à celle de Tikhonov[34], rajoute une matrice de lissage  $H$  et un paramètre  $\gamma$  de régularisation (ou de Lagrange) au problème de minimisation :

$$\min_{V>0} \left\| (\bar{I}^T \bar{I} + \gamma H) V - I_{\text{exp}}^T I_{\text{exp}} \right\|^2 \quad (6)$$

La matrice identité ou ses dérivées sont utilisées pour la matrice de lissage qui vise à limiter (régulariser) les fluctuations de la solution finale. La détermination de la valeur optimale pour  $\gamma$  est beaucoup plus problématique. Les méthodes classiques du gradient-conjugué et de la L-Curve aident à sa détermination [34, 35]. Pour contraindre encore plus le problème, la forme de la distribution granulométrique peut également être présupposée. Dans le cas d'une distribution Log-Normale, par exemple, le problème revient alors à déterminer uniquement le diamètre moyen et l'écart-type plus, éventuellement, les bornes de la distribution. Soit deux à quatre paramètres, au lieu des poids de toutes les classes de taille d'une distribution de forme indéterminée [36, 37].

Toujours dans le cadre d'un milieu optiquement dilué, le taux moyen de transmission  $\bar{T}$  du faisceau à travers le nuage particulaire est donné par la loi de Beer-Lambert (voir § 5.1):

$$\bar{T}(\theta = 0^\circ) = \bar{I}(0) / I_0(0) = \exp(-C_N \bar{C}_e L) \quad (7)$$

avec

$$C_N \bar{C}_e = \mathcal{G}C_V \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} C_e(D; \tilde{m}) \frac{v(D)}{D^3} dD \quad (8)$$

où  $\bar{I}_0(0)$  et  $\bar{I}(0)$  représentent l'intensité du faisceau qui serait mesurée par un photodétecteur central (qualifié de capteur d'extinction) sans et avec particules dans l'écoulement ;  $C_e$  et  $\bar{C}_e$  les sections efficaces d'extinction d'une particule individuelle et de l'ensemble des particules dans le



volume de mesure respectivement. L'analyse de la forme du diagramme de diffraction a permis d'obtenir  $v(D)$  et d'en déduire  $n(D)$ . Ce résultat et la mesure du taux de transmission expérimental  $T_{\text{exp}}$  donnent la concentration volumique  $C_V$  et par suite  $V(D)$  :

$$C_V = -\ln T_{\text{exp}} / \left\{ \mathcal{G}L \int_{D_{\text{min}}}^{D_{\text{max}}} C_e(D; \tilde{m}) \frac{v(D)}{D^3} dD \right\} \quad (9)$$

### 2.1.3 Réalisation

La quasi-totalité des diffractomètres disponibles sur le marché sont des appareils de laboratoire conçus pour réaliser l'analyse d'échantillons de poudres ou suspensions. Pour limiter les problèmes de sédimentation et d'agrégation, l'échantillon est dispersé dans un liquide sous agitation ultrasonore, ou bien vibré puis pulvérisé avec une buse avant d'être dirigé vers une cellule optique d'analyse à faces parallèles. Pour caractériser les plus petites particules, mais aussi stabiliser l'inversion, ils peuvent intégrer d'autres détecteurs placés à des angles de diffusion plus importants, voire plusieurs lasers avec des longueurs d'onde différentes. Ce type de diffractomètre est peu adapté à la caractérisation in situ de particules en écoulement. Hormis les systèmes développés par les laboratoires [38, 39], seul le système Spraytec de la société Malvern Panalytical répond à ce besoin. Ses optiques d'émission et de détection, disposées de part et d'autre de l'écoulement, sont reliées mécaniquement par un banc optique. L'alignement se réduit à optimiser le taux de transmission du faisceau direct. Le bruit électronique du capteur obturé et le bruit de fond optique sont ensuite mesurés et soustraits aux mesures proprement dites. Ce qui suppose que l'ambiance thermique et lumineuse ne change pas durant l'expérience. En guise d'ordre de grandeur, dans sa version originelle, ce système utilise une diode laser de quelques mW de puissance et un capteur placé derrière une lentille de Fourier de focale 100, 300 ou 500 mm. Le capteur est composé de 32 photodiodes à symétrie circulaire, en forme de portion d'anneau, dont la surface croît avec l'angle de diffusion pour compenser la diminution drastique de l'intensité du signal. Le détecteur central est utilisé pour mesurer l'extinction et donc  $T_{\text{exp}}$ . Suivant la focale de la lentille de Fourier, ce diffractomètre permet de caractériser des écoulements libres d'une largeur de 150 à 675 mm pour une gamme granulométrique annoncée de, respectivement, 0,5 – 300  $\mu\text{m}$  à 3 – 850  $\mu\text{m}$ . La précision annoncée par le constructeur est de 3% pour une reproductibilité de 0.5%, pour un taux d'acquisition de 2,5 à 10 kHz. Il intègre un algorithme de correction des premiers effets de la diffusion multiple (épaisseur optique pouvant atteindre 4). Il peut également numériser de manière synchrone différents signaux externes (température, pression, etc.).

### 2.1.4 Conclusion

Un des atouts essentiels de cette technique, outre son caractère statistique instantané, est que les particules analysées peuvent s'écarter notablement de la sphéricité et de la composition attendue, sans que la qualité de la mesure n'en soit trop affectée. Cela peut se comprendre intuitivement si l'on admet que la diffraction vers l'avant est un phénomène « de bord » et que la surface projetée moyenne de particules irrégulières orientées aléatoirement s'apparente à celle de particules sphériques équivalentes. Ceci n'est plus vrai, par exemple, pour des particules à fort rapport d'aspect orientées par l'écoulement. Autre atout d'importance, la concentration mesurée est une grandeur absolue, parfaitement définie et relativement fiable. Du point de vue des écoulements, cette technique est limitée par deux aspects. Elle ne restitue aucune information sur les corrélations taille-vitesse et elle intègre les propriétés sur un volume relativement long, ce qui rend difficile toute étude locale et l'expose rapidement aux effets de la diffusion multiple. Ses développements portent sur l'amélioration de la procédure d'inversion, la prise en compte des propriétés de diffusion de particules de formes complexes, des systèmes de détections couvrant une plus grande plage angulaire [29, 38-41].

## 2.2 Diffraction (ou réfraction) à l'angle d'arc-en-ciel

### 2.2.1 Principe

#### 2.2.1.1 Particules individuelles

Le premier arc-en-ciel produit par une particule sphérique est formé de deux réseaux de franges. Le premier, de basse fréquence et de forte intensité, est caractéristique de l'arc-en-ciel. Son contraste est maximal pour la polarisation perpendiculaire lorsque  $m \geq 1,1$  (systèmes liquide- ou solide-gaz) et pour la polarisation parallèle lorsque  $m < 1,1$  (systèmes liquide-liquide). De pas angulaire non régulier, il est dû à la caustique associée aux rayons  $p = 2$  et assez bien décrit par la théorie d'Airy [11], voir le §1.2.2 :

$$I(\theta) = \frac{cE_0^2}{R^2} \left( \frac{3}{\pi b^2} \right)^{1/3} \left( \frac{D}{\lambda} \right)^{7/3} Ai^2 \left[ - \left( \frac{\pi^2}{12} \right)^{1/3} \zeta \right] \quad (10)$$

où  $R$  est la distance à l'observateur (on prend  $R = 1 \gg \lambda$  pour les comparaisons),  $Ai$  la fonction d'Airy,  $b = 3 \tan \theta_a / (4 \cos^2 \theta_a)$  un paramètre géométrique qui ne dépend que de l'angle d'arc-en-ciel  $\theta_a$  prédit par l'optique géométrique et donc de l'indice de réfraction réel de la particule,  $\zeta = 4 \sqrt{3 \lambda a^2 / 4b} (\theta - \theta_a) / \lambda$  est une variable introduite par Airy pour établir un développement limité de la forme du front d'onde des rayons  $p = 2$ . L'optique géométrique donne pour la position de l'arc-en-ciel d'ordre  $p - 1 > 1$  (il existe en effet une infinité d'arcs-en-ciel d'ordre  $p - 1$ ) :

$$\theta_{a,p} = q_1 \left[ 2 p \tan^{-1} \left( \sqrt{p^2 \frac{m^2 - 1}{p^2 - m^2}} \right) - 2 \tan^{-1} \left( \sqrt{\frac{m^2 - 1}{p^2 - m^2}} \right) - 2 q_2 \pi \right] \quad (11)$$

où  $q_2$  un entier naturel et  $q_1 = \pm 1$  permettent d'obtenir un angle de diffusion dans l'intervalle  $0 - 180^\circ$  [7]. L'équation (11) indique que les franges de l'arc-en-ciel correspondent aux oscillations de la fonction d'Airy et que l'intensité du phénomène croît en  $D^{7/3}$ . De fait, l'angle  $\theta_{a,p}$  ne correspond pas au maximum de la fonction d'Airy, mais au point d'inflexion de la première frange d'Airy bordant la zone sombre d'Alexander. Le second réseau, d'intensité plus faible et de plus haute fréquence, est plus régulier. Il résulte de l'interférence des rayons réfractés  $p = 2$  et des rayons  $p = 0$  réfléchis par la particule. Il peut aussi être utilisé pour tester la sphéricité de cette dernière même si cette structure d'ondulation (« ripple » en anglais) est bien souvent perçue comme nuisible pour la localisation des franges d'Airy [42]. Classiquement, s'agissant de phénomènes d'interférence et de diffraction, le diamètre et l'indice de la particule sont déduits de la mesure de la position angulaire de la première et de la deuxième frange. L'indice peut également être obtenu directement de la mesure, très délicate, de la position angulaire du premier point d'inflexion. En pratique, il vaut mieux comparer l'ensemble de l'arc-en-ciel [36, 43]. Afin de minimiser les effets de trajectoire et la probabilité d'avoir plus d'une particule en même temps dans le volume de mesure, la taille de ce dernier doit être ajustée pour être de l'ordre de 3-5 fois celle des plus grosses particules à analyser. En pratique, la caractérisation de particules individuelle est plutôt réservée à l'étude de problèmes académiques.

La mesure de la partie réelle de l'indice de réfraction est utilisée pour reconnaître le matériau, la fraction de mélange ou la température des particules.



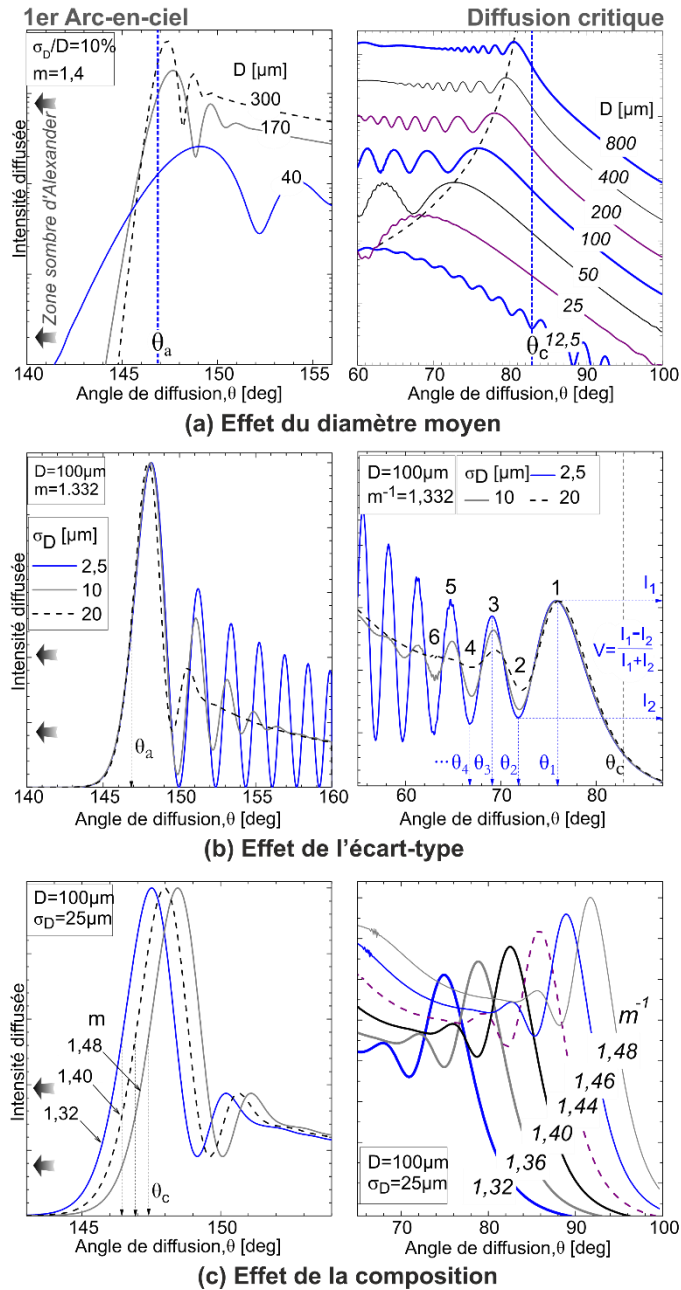


Figure 5 [1COL] Diffractométrie à l'angle d'arc-en-ciel (à gauche) ou angle critique (à droite). Effets sur les diagrammes globaux : (a) du diamètre moyen, (b) de l'écart-type et de (c) l'indice de réfraction du nuage de particules. Distributions log-normales de moyenne  $100\mu\text{m}$  lorsque non précisé.

### 2.2.1.2 Ensemble de particules

Pour l'analyse intégrale d'ensembles de particules [44], comme pour la diffraction vers l'avant, il faut agrandir les dimensions du faisceau d'éclairage et passer à une méthode inverse d'analyse des signaux. Seule différence, on diminue aussi le taux de filtrage spatial de l'optique de détection en ouvrant le diaphragme limitant la zone d'écoulement (l'image) observée. La théorie d'Airy peut être utilisée pour les nombreux calculs nécessaires à la détermination de la matrice de diffusion, mais la qualité de ses prédictions décroît assez rapidement à mesure que l'on s'éloigne de l'angle d'arc-en-ciel prédit par l'optique géométrique et lorsque la taille de la particule diminue. Il vaut donc mieux utiliser la TLM, ce qui demande de créer des abaques conséquents, ou bien utiliser d'autres approximations ou modèles hybrides [45, 46]. La TLM permet de mettre en évidence les effets des caractéristiques du nuage de particules sur le signal arc-en-ciel : le diamètre moyen joue sur son

étalement angulaire, la polydispersité sur sa modulation, et l'indice de réfraction, sur sa position angulaire globale, Figure 5. Il s'agit, a priori, d'une technique restituant des moyennes spatiales. Le volume de mesure excédant difficilement le centimètre cube, les statistiques, purement spatiales, manquent de robustesse. Augmenter le temps de pose du capteur permet de moyenniser les propriétés d'un plus grand nombre de particules, mais ceci introduit une sensibilité aux corrélations taille-vitesse cachées. Les statistiques deviennent spatio-temporelle. Dans tous les cas, elles sont relatives.

### 2.2.2 Réalisation

La cohérence du laser, de polarisation linéaire, doit être à minima de quelques centimètres. En mode comptage, sa puissance doit être de plusieurs centaines de milliwatts voire plusieurs watts pour palier à la faiblesse du signal arc-en-ciel. Le détecteur est une caméra matricielle avec une forte dynamique (12 à 16 bits) et haute résolution. Quelques millions de pixels sont nécessaires pour échantillonner correctement la structure fine de l'arc-en-ciel tout en couvrant un champ angulaire important, typiquement de  $\Delta\theta = 10 - 30^\circ$ , en fonction de la gamme des tailles et indices. L'utilisation d'une caméra linéaire (une seule ligne de pixels) à haute cadence d'acquisition est possible, mais cela pose des problèmes d'alignement et des difficultés pour diagnostiquer les signaux biaisés par les effets de trajectoire ou d'occultation par exemple [47]. L'optique de détection se compose tout d'abord de lentilles formant l'image du volume de mesure, sur un diaphragme, afin d'en contrôler sa dimension latérale. Une lentille de Fourier permet ensuite d'enregistrer l'arc-en-ciel à l'infini. Un filtre interférentiel peut être ajouté pour augmenter le rapport signal-sur-bruit des signaux en bloquant le flux des sources parasites. Pour la caractérisation d'ensemble de particules, il faut augmenter les dimensions du volume de mesure en élargissant le faisceau laser et en ouvrant le diaphragme. La puissance laser nécessaire est alors réduite à quelques dizaines de milliwatts. La résolution de la caméra peut également être réduite car la structure d'ondulation, et même les franges d'Airy, sont lissées par les effets de moyennage optique. A l'heure actuelle, seule la société Rainbow-visions commercialise deux diffractomètres basés sur l'analyse de l'arc-en-ciel global. Ils sont optimisés pour la mesure simultanée de la granulométrie et de la température de pulvérisations de gouttes. Le premier est optimisé pour de faibles variations d'indice (autour d'une valeur choisie) et une gamme granulométrique de  $10 - 300 \mu m$  à une distance de mesure de  $7 - 10 cm$ . Le second est optimisé pour couvrir une plus large plage d'indices  $1,3 - 1,5$ , pour des gouttes comprises entre  $10 - 300 \mu m$ , une distance de mesure de  $15$  ou  $18 cm$  et un volume de mesure de l'ordre de  $1 mm^3$ . Les précisions annoncées par le constructeur,  $5 \cdot 10^{-4}$  sur l'indice (soit une précision moyenne de  $1^\circ C$  pour un liquide organique) et  $2 - 5 \mu m$  sur les diamètres, semblent autoriser l'étude de phénomènes complexes comme la capture du  $CO_2$  et le givrage de gouttes ou leur comportement thermique en combustion diphasique [48, 49].

### 2.2.3 Conclusion

Actuellement, cette technique présente la plus forte sensibilité à l'indice de réfraction (et donc la composition et température) de toutes les méthodes basées sur la diffusion élastique. Simple et peu coûteuse à mettre en place, elle est particulièrement intéressante pour les études nécessitant d'analyser la composition et la granulométrie de particules ou gouttes. Elle est cependant limitée par son incapacité à caractériser les particules qui ne sont pas parfaitement sphériques et homogènes. De même, comme la plupart des techniques de granulométrie optique, ses statistiques ne sont pas normées, elle ne fournit pas encore d'information sur la dynamique des particules et leur concentration absolue. Les développements portent sur la prise en compte des gradients internes et la non sphéricité [3, 50, 51].

## 2.3 Diffractométrie (ou réfractométrie) à l'angle critique

### 2.3.1 Principe

#### 2.3.1.1 Particules individuelles

Le contraste des signaux de diffusion critique est maximal pour la polarisation parallèle. L'angle de diffusion critique est donné par  $\theta_c = \pi - 2\Phi_c$  [rad], avec  $\Phi_c = \sin^{-1}(m)$ . Pour une bulle d'air dans l'eau  $m \approx 0,75$ ,  $\theta_c \approx 82^\circ$ , ce phénomène est donc observable sur le côté. Pour  $\theta \geq \theta_c$ , le coefficient de réflectivité de la surface de la particule est égal à l'unité pour les rayons  $p=0$ . Cette surface se comporte donc comme un miroir parfait. Pour  $\theta < \theta_c$ , cette réflectivité n'est que partielle et les rayons d'ordre  $p \geq 1$  parviennent à pénétrer la particule. La réflectivité est discontinue en  $\theta = \theta_c$ , ce qui génère au point d'impact critique une onde de surface intense et, dans le champ lointain, une caustique faible observable au voisinage de l'angle critique  $\theta \approx \theta_c$ . L'approximation d'optique physique de ce phénomène, pendant des théories d'Airy et Fraunhofer, donne pour le profil d'intensité de la caustique faible [12, 13]:

$$I(\theta) = I_0 \left( \frac{a}{8R^2} \right) \left[ (C(\omega) + 1/2)^2 + (S(\omega) + 1/2)^2 \right] \quad (12)$$

où  $\omega = \sin(\theta_c - \theta) \sqrt{(a/\lambda) \cos \phi_c}$ ,  $C(\omega)$  et  $S(\omega)$  sont les intégrales de Fresnel en cosinus et en sinus. Les oscillations de ces deux fonctions sont interprétées comme les franges (en fait des anneaux circulaires) de la diffraction à l'angle critique. À partir de cette équation et connaissant l'indice de réfraction relatif de la particule, on peut déduire le rayon de cette dernière de la mesure de la position de la  $n^{\text{ième}}$  frange d'un diagramme expérimental [52]:

$$a_n = \frac{\lambda_0 m \omega_n^2}{\sin^2(\theta_c - \theta_n) \cos \phi_c} \quad (13)$$

où les termes  $\omega_n$  localisent les extrema (franges paires et sombres) de la fonction oscillante,  $\omega_1 = 1,2171983$ ,  $\omega_2 = 1,87252$ ,  $\omega_3 = 2,34485\dots$ . Si l'on ne connaît rien de la particule, on peut déduire son indice et son rayon de la mesure de la position de deux franges du diagramme  $n = \nu, \kappa$  ( $\kappa > \nu$ )

$$m_{\nu\kappa} = \sin \left[ (\pi - \theta_\nu - \Omega_{\nu\kappa}) / 2 \right] \quad (14)$$

$$a_{\nu\kappa} = \lambda_0 m_{\nu\kappa} \frac{\omega_\nu^2 + \omega_\kappa^2 - 2\omega_\nu \omega_\kappa \cos \Delta_{\nu\kappa}}{\sin^2(\Delta_{\nu\kappa}) \sin \left[ (\theta_\nu - \Omega_{\nu\kappa}) / 2 \right]} \quad (15)$$

avec  $\Omega_{\nu\kappa} = \tan^{-1} \left[ \sin \Delta_{\nu\kappa} / (\cos \Delta_{\nu\kappa} - \omega_\kappa / \omega_\nu) \right]$  et  $\Delta_{\nu\kappa} = \theta_\kappa - \theta_\nu$  [52].

#### 2.3.1.2 Ensemble de particules

Le fonctionnement en mode global [53] est identique à celui utilisé pour les signaux arc-en-ciel. La précision de l'équation (12) est suffisante pour des ordres de grandeur mais pas pour des mesures de précision. Pour cela il faut prendre en compte les contributions et interférences des rayons  $p \geq 1$  [7, 52] ou utiliser la TLM [52].

### 2.3.2 Réalisation et conclusion

Le montage est identique à celui mis en place pour l'arc-en-ciel. S'appliquant aux particules avec  $m < 1$ , cette technique de laboratoire est réservée à l'étude des systèmes liquide-liquide ou gaz-liquide (extraction liquide-liquide, écoulements à bulles). Le fait d'avoir une optique dans l'air, et un volume de mesure dans un liquide, tend cependant à réduire le champ angulaire observé par des effets de réfraction classiques. La perte de sphéricité des particules est moins problématique qu'avec la technique à l'angle d'arc-en-ciel car la mesure est essentiellement basée la courbure vue par la réflexion spéculaire [47]. Dans le cas de bulles gazeuses, la gamme des tailles mesurables est typiquement de  $30\mu m - 1\text{ mm}$  pour un volume de mesure de l'ordre de  $1\text{ cm}^3$  et une distance de

mesure de  $10 - 20 \text{ cm}$ . La sensibilité à l'indice de réfraction est comparable à celle obtenue à l'angle d'arc-en-ciel. Les développements portent sur la prise en compte de la non sphéricité et le développement de modèles hybrides [7, 13].

Les techniques de diffraction opèrent à l'infini pour obtenir des mesures angulaires absolues, insensibles à la position relative des particules.

Sur particules individuelles, il s'agit de méthodes directes ; sur nuages de particules, il s'agit de techniques inverses ou paramétriques.

Les techniques de diffraction à l'angle d'arc-en-ciel et l'angle critique permettent de mesurer l'indice des particules et donc d'estimer leur composition.

La diffraction vers l'avant est la seule à pouvoir caractériser des particules dont les formes s'écartent de la sphéricité parfaite.

## 3 Techniques interférométriques

### 3.1 Interférométrie (ou anémométrie) Phase Doppler

#### 3.1.1 Principe

Le principe de l'interférométrie phase Doppler (IPD) est dérivé de celui, bien connu, de la vélocimétrie laser Doppler [54]. Lorsqu'une particule traverse le volume de mesure formé par le croisement de deux faisceaux laser cohérents et de même polarisation, la phase  $\phi$  du signal Doppler hétérodyne qu'elle diffuse dépend de son diamètre  $D$  et, dans une moindre mesure, de son indice relatif  $\tilde{m}$ , Figure 6 a-d. Ce diamètre est déduit de la mesure de  $\phi$  et de la connaissance théorique de la relation théorique phase-diamètre du système. En fait, la mesure d'une phase absolue étant impossible, c'est un déphasage entre les signaux Doppler émis dans des directions différentes qui est mesuré. Pour ce faire, deux détecteurs sont nécessaires, mais on en utilise généralement trois, voire quatre  $S_n$ ,  $n = 1, 2, 3, 4$  [55, 56]. Pour des questions de facilité d'alignement et d'homogénéité des intensités, ils sont placés derrière une même optique de collection, côte à côte, à des angles d'élévation  $\Psi_n$  légèrement différents. Les autres paramètres optiques principaux d'un système IPD sont la longueur d'onde  $\lambda_0$ , la polarisation (parallèle ou perpendiculaire) des faisceaux et leur demi-angle  $\beta$ , l'angle d'ouverture  $\Omega$  de l'optique de détection, l'angle hors-axe moyen  $\Phi$  (ou variables  $\Phi_n$ ) et les angles d'élévation respectifs  $\psi_n$  des détecteurs. La composante de vitesse  $V_x$  de la particule est déduite de la mesure de la fréquence  $\nu_x$  commune des signaux et de la connaissance de l'interfrange  $\delta_f = \lambda_0 / (2m_e \sin \beta)$ . Pour obtenir simultanément la composante de vitesse  $V_y$ , il faut utiliser une deuxième paire croisée de faisceaux de longueur d'onde d'indifférente. Le détecteur  $S_4$  est alors chargé de détecter le signal correspondant. L'utilisation de trois détecteurs pour la mesure de phase permet d'obtenir deux déphasages indépendants. Les détecteurs 1 et 2 étant plus proches, le déphasage  $\phi_{12}$  est moins sensible au diamètre de la particule que le déphasage  $\phi_{13}$ , voir la Figure 6 (c). De la mesure de  $\phi_{12}$  on obtient une première estimation du diamètre. Cette dernière est utilisée pour lever l'indétermination éventuelle à  $2\pi$  près sur  $\phi_{13}$ , et ainsi obtenir une seconde estimation, plus précise, du diamètre. Cette redondance d'information sur le diamètre est aussi utilisée pour valider les signaux Doppler et notamment tester la sphéricité des particules.

Les techniques interférométriques cherchent à déterminer la phase de la lumière diffusée au travers de l'analyse d'un phénomène d'interférence à deux ondes (en règle générale). Il peut s'agir d'une onde sonde et

d'une onde de référence (§3.3), de deux ondes à la fois sonde et référence de l'autre (§3.1), ou de deux ondes produites par des processus de diffusion différents (§3.2). C'est donc de la mesure d'une distance spatiale ou angulaire, ou d'un temps de défilement entre des franges, parallèles ou circulaires, qu'elles remontent aux caractéristiques des particules.

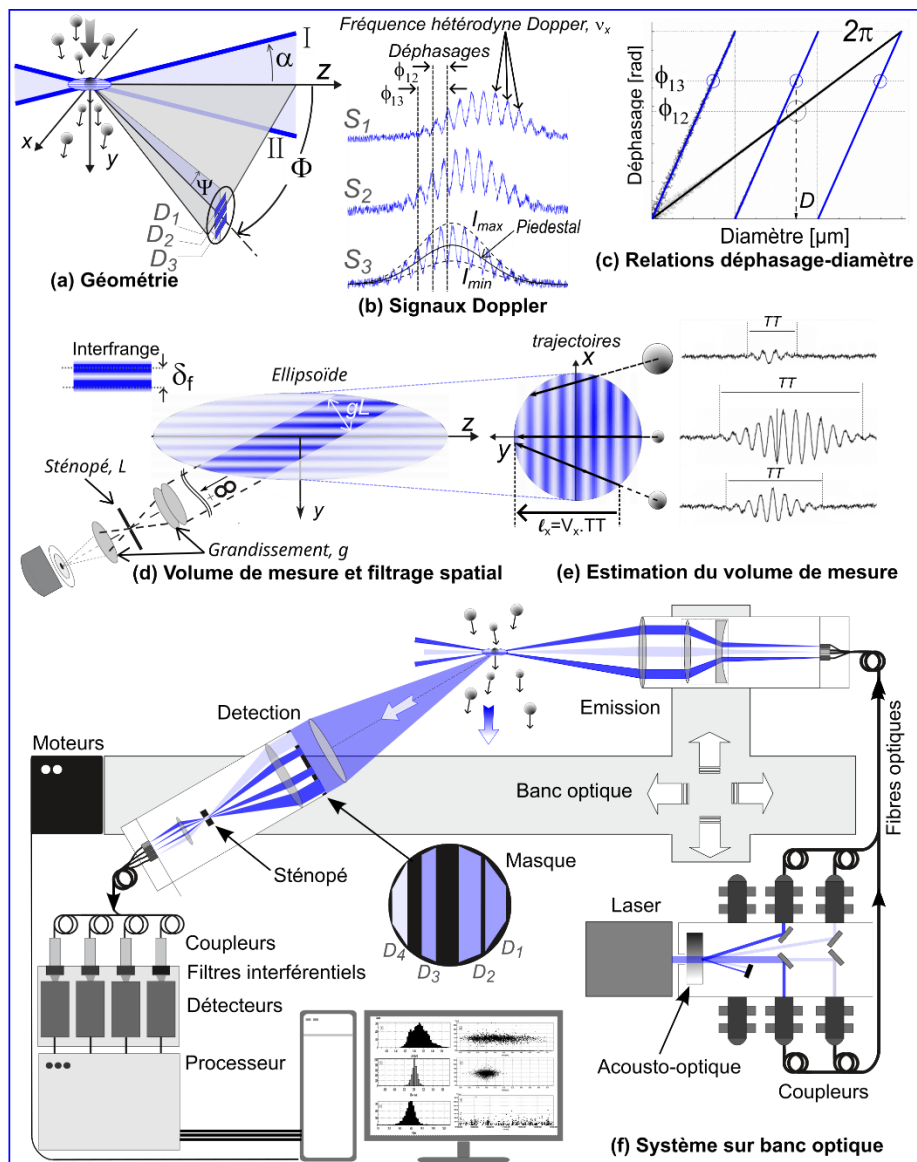


Figure 6 [1 ou 2 COL ?] Principe et éléments clés d'un interféromètre phase Doppler

Les IPD mesurent pour chaque particule détectée son temps de transit  $TT$  dans le volume de mesure ainsi que sa composante de vitesse  $V_x$ . La distance  $\ell_x = V_x TT$  parcourue par la particule suivant l'axe  $X$  peut donc être estimée, voir la Figure 6 (e) [57]. En procédant ainsi pour toutes les particules détectées, la largeur effective du volume de mesure peut être évaluée pour chaque classe de taille. Les mesures de vitesse, de concentration et de flux peuvent donc être normalisées par un volume et une surface mesurés in situ. C'est un des atouts fondamentaux de cette technique.

Pour détecter un signal, il faut que son intensité dépasse un certain seuil. A seuil fixé, les dimensions du volume de mesure dépendent du diamètre de la particule mais aussi de sa trajectoire dans le volume de mesure. En effet, le profil d'intensité nominale de ce dernier est gaussien transversalement et lorentzien axialement. Ses dimensions effectives dépendent aussi de la puissance du laser, du gain de la chaîne de

mesure, de la densité optique globale de l'écoulement et même de l'encrassement des hublots. Cette complexité explique pourquoi la plupart des techniques optiques sont incapables d'estimer les dimensions de leur volume de mesure et donc, in fine, de restituer des statistiques normalisées, des concentrations et flux absolus.

### 3.1.2 Relation déphasage-diamètre

#### 3.1.2.1 Optique géométrique

Le déphasage des signaux est lié à la différence de parcours des rayons qui, provenant des deux faisceaux laser, sont diffusés par la particule sur la surface des détecteurs. Ces rayons y interfèrent pour former un motif d'interférence dont la fréquence et la phase sont caractéristiques de la vitesse et du diamètre de la particule. Les IPD sont réglés pour s'assurer qu'un seul mode de diffusion contribue à la formation de ce motif : la réflexion spéculaire, la réfraction simple ou, plus rarement, la réfraction après une réflexion interne. Dans le cas contraire, on obtient une relation déphasage-diamètre non linéaire. Pour le détecteur  $n$  les cosinus directeurs s'écrivent :

$$\begin{aligned}\cos\theta_{n,I} &= -\sin\beta + \cos\beta \cos\psi_n \cos\Phi_n \\ \cos\theta_{n,II} &= +\sin\beta + \cos\beta \cos\psi_n \cos\Phi_n\end{aligned}\quad (16)$$

La phase du signal produit par le détecteur  $n$  à partir des rayons  $p=0$  issus des deux faisceaux  $I$  et  $II$  est [58]:

$$\phi_{n,p=0} = \frac{\pi}{\lambda_0} m_e D \left[ \sqrt{2(1 - \cos\theta_{n,I,p=0})} - \sqrt{2(1 - \cos\theta_{n,II,p=0})} \right], \quad (17)$$

Pour les rayons d'ordre  $p=1$ :

$$\phi_{n,p=1} = \frac{2\pi}{\lambda_0} m_e D \left[ \begin{aligned} &\sqrt{m^2 + 1 - 2m\sqrt{(1 + \cos\theta_{n,I,p=1})/2}} \\ &-\sqrt{m^2 + 1 - 2m\sqrt{(1 + \cos\theta_{n,II,p=1})/2}} \end{aligned} \right] \quad (18)$$

Et pour les rayons  $p=2$ :

$$\phi_{n,p=2} = \frac{2\pi}{\lambda_0} D \left[ 2m_0 \sin\tau'(\theta_{p=2}) - m_e \sin\tau(\theta_{p=2}) \right] \quad (19)$$

Pour les rayons  $p=2$ , l'angle de diffusion ne peut pas être exprimé explicitement car il est solution d'une équation transcendante en  $\tau$  et  $\tau'$ , avec  $\theta_{p=2} = 4\tau' - 2\tau$ .

Pour obtenir la relation déphasage-diamètre, ou simplement les déphasages, il suffit de soustraire les deux phases correspondantes ainsi on a, par exemple, pour la réflexion :  $\phi_{12} = \phi_{1,p=0} - \phi_{2,p=0}$ .

#### 2.4.2.2. Modèle électromagnétique

La TLM est utilisée pour calculer le vecteur de Poynting des deux champs diffusés par la particule et qui interfèrent sur la surface des détecteurs. La TLM généralisée permet de prendre également en compte le profil des faisceaux et même la présence de gradients d'indice ou d'un cœur absorbant au sein des particules [59]. On obtient pour la forme générique des signaux Doppler [60]:

$$I_n(t) = P_n \left[ 1 + V_n \cos(2\pi\nu_x t + \phi_n) \right] \quad (20)$$

où les quantités intégrales sont dénommées : piédestal  $P_n$ , visibilité  $V_n$  et phase globale  $\phi_n$ .  $P_n$  est une porteuse de forme plus ou moins gaussienne (comme le profil d'intensité des faisceaux laser utilisés).  $V_n$  est un terme de contraste des franges sur la surface des détecteurs, avec pour un détecteur  $V = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min})$ , voir la Figure 6 (b). Cette visibilité des signaux Doppler diminue en oscillant à mesure que  $D / \delta_f$  augmente.



### 3.1.2.2 Optimisation

La relation phase-diamètre n'est linéaire (à  $2\pi$  près) que si l'on a pris soin d'optimiser les paramètres optiques du système. Pour les particules métalliques, ou très fortement absorbantes, il est facile de ne collecter que de la lumière purement réfléchi. Pour cela, il suffit de placer les détecteurs en dehors de la zone de diffraction. En revanche, pour les particules transparentes l'optimisation est beaucoup plus délicate et l'on ne peut qu'essayer de maximiser l'intensité d'un mode de diffusion par rapport à un autre. Pour des particules d'indice supérieur à l'unité, l'optimisation consiste essentiellement à trouver l'angle hors-axe pour lequel la réfraction domine la réflexion. Pour ce faire, on compare les coefficients de Fresnel ou mieux, les termes correspondants de la théorie de Debye (§ 1.2.3). Sa valeur optimale se situe dans l'intervalle  $\Phi = 25 - 75^\circ$  pour  $m = 1,33 - 1,52$  et des faisceaux de polarisation parallèle. Des mesures vers l'arrière  $\Phi = 140 - 165^\circ$  sont possibles [61], mais c'est la position  $\Phi = 30^\circ$  qui est la plus utilisée. Pour les plus petites particules la relation phase-diamètre n'est pas biunivoque.

### 3.1.3 Réalisation

Les IPD récents utilisent des lasers à solides cohérents et polarisés, de quelques centaines de milliwatts à quelques watts. Une optique réalise des paires de faisceaux, de différentes couleurs si nécessaire, dont un des faisceaux est décalé en fréquence par une cellule acousto-optique (cellule de Bragg à 40MHz, ou 80 MHz). Ceci permet de décaler l'origine des fréquences des signaux Doppler, rendant possible la détermination des vitesses nulles et négatives. Les faisceaux sont acheminés à l'aide de fibres monomodes à conservation de polarisation. L'émission permet d'ajuster la position et les dimensions du volume optique de mesure par le contrôle du facteur de grandissement et la distance de focalisation (de 200 à 500mm, voire 1m) des faisceaux dans l'écoulement. La détection se compose d'un masque optique, d'une paire de lentilles formant l'image du volume de mesure sur une fente optique, de fibres multimodes. Ces dernières acheminent les signaux optiques vers des photomultiplicateurs munis de filtres interférentiels centrés sur la longueur d'onde des faisceaux. Les signaux électriques obtenus sont amplifiés, filtrés et numérisés par une électronique intégrant un dispositif de calibration de la phase relative des différents signaux, une banque de filtres fréquentiels (passe-haut, passe-bas) et un convertisseur analogique-numérique. Un ordinateur contrôle le paramétrage et la calibration du système, le post-traitement des mesures brutes, le banc optique pour l'automatisation des mesures séquentielles. Il calcule aussi les statistiques et numérise des signaux externes éventuels. Le volume de mesure, souvent représenté comme un ellipsoïde, est très long, voir la Figure 6 (d). Sa longueur nominale  $l_\chi \sim 2\omega_0 / \tan \beta$  atteint une dizaine de millimètres alors que ses dimensions latérales sont seulement de l'ordre de  $2\omega_0 \approx 30 \sim 800 \mu m$ . C'est la fente optique de la détection qui permet de réduire sa largeur effective en limitant la largeur de la zone de détection à  $gL_\chi$  (soit  $50 \sim 800 \mu m$  pour un grandissement  $g \approx 1 \sim 4$  et une fente de largeur  $L_\chi \approx 50 \sim 200 \mu m$ ). L'optimisation d'un système IPD est assez complexe. Elle vise à maximiser le taux de validation des signaux en choisissant les bons paramètres optiques (taille du volume de mesure, angle hors-axe, masque optique, taille de fente, puissance laser) et électroniques (tension des photomultiplicateurs, banque de filtres, largeur des fenêtres d'analyse pour les FFT...).

### 3.1.4 Conclusion

S'agissant d'une technique ponctuelle, les statistiques sont de nature temporelle. Le post-traitement statistique nécessite la mesure de plusieurs dizaines de milliers de particules. Avec, pour la mesure des flux et de la concentration, la nécessité d'avoir plusieurs dizaines à centaines de particules par classe de taille. Du fait des contraintes de forme et de nature des particules (sphères homogènes d'indice connu), elle est principalement utilisée pour caractériser des pulvérisations de gouttes,

écoulements à bulles, lits fluidisés avec billes industrielles. Les constructeurs annoncent une précision de l'ordre de 1% sur les vitesses et 1~2% sur le diamètre de particules parfaitement sphériques. La plage des diamètres mesurables va de  $D_{\min} \approx 0,5\mu m$  à  $D_{\max} \approx 1-2mm$  pour une dynamique maximale de l'ordre de  $D_{\max}/D_{\min} \approx 30 \sim 50$ . Pour changer de gamme granulométrique, il faut modifier simultanément l'angle entre les faisceaux, les focales des lentilles d'émission et de réception, le masque optique de la détection et le paramétrage de l'électronique. La dynamique maximale sur les vitesses est de l'ordre de  $V_{\max}/V_{\min} \approx 30 \sim 50$  pour  $|V_{\max}| \leq 200 \sim 300m/s$ . La précision sur la mesure des flux, ou de la concentration, est beaucoup plus limitée et problématique. Pour un écoulement peu turbulent, faiblement polydispersé et de faible épaisseur optique, l'erreur sur les flux varie entre 5 et 20%. Pour des écoulements plus complexes, cette erreur peut-être beaucoup plus importante. Cependant, à l'heure actuelle, l'IPD est encore la technique de référence pour la caractérisation simultanée de la dynamique et de la granulométrie des écoulements diphasiques. Au-delà des systèmes commerciaux, les laboratoires ont étendu les capacités de cette technique afin: d'améliorer la mesure des flux qui est biaisée par les effets de trajectoire [55, 62] ou un échantillonnage aléatoire des grandeurs eulériennes [55, 63, 64]; permettre la mesure simultanée de la partie réelle et/ou imaginaire de l'indice de réfraction des particules [65-67]; et, dans une moindre mesure, caractériser des particules non homogènes ou non sphériques [68-72].

## 3.2 Imagerie interférométrique en défaut de mise au point

### 3.2.1 Principe

Cette technique [73, 74] utilise un montage identique à celui de la vélocimétrie par image ou suivi de particules (PIV, PTV)[75]. Une particularité importante : la caméra est placée à un angle de diffusion où les rayons réfléchis et réfractés ont la même intensité, soit par exemple  $\theta \approx 67^\circ$  pour une goutte d'eau dans l'air et la polarisation perpendiculaire. Dans cette configuration et si la mise au point de la caméra est parfaite, le contour de la particule à surface spéculaire (lisse) est invisible, seuls les points de gloire,  $g_0$  et  $g_1$  sont visibles, Figure 7 a. Ces points lumineux correspondent au point d'impact des rayons  $p=0$  et au point de sortie des rayons  $p=1$  diffusés dans la direction de la caméra. L'objectif de cette dernière en forme deux images,  $G_0$  et  $G_1$ . La mesure directe de la distance  $\ell_{01}$  entre  $G_0$  et  $G_1$  permet d'estimer le diamètre de la particule, mais la précision et la dynamique sont limitées [76]. En défocalisant l'optique de la caméra, les images des points de gloire s'élargissent et interfèrent sur le capteur. On obtient un interférogramme (ou disque interférentiel) contenant un nombre  $N$  de franges. Ce nombre dépend des propriétés de la particule et du système optique. Le principe de cette technique est donc de déterminer le nombre de franges contenu dans chaque disque afin d'obtenir la distribution granulométrique, Figure 7 b.

Le diamètre du disque interférentiel  $a_{DK}$  est [9, 56]:

$$a_{DK}(\tilde{z}_p) = A \left| 1 - \tilde{\alpha} \left( f^{-1} - \tilde{z}_p^{-1} \right) \right| \quad (21)$$

Avec  $A, \tilde{\alpha}, f$  et  $\tilde{z}_k$  pour, respectivement, le diamètre d'ouverture de l'objectif, la distance entre l'objectif et le capteur, la focale arrière de l'objectif, la distance entre la particule et l'objectif. Ce diamètre variant avec  $\tilde{z}_k$ , on peut déduire de sa mesure la distance entre la particule et l'objectif. Soit, avec la détermination du centroïde  $(x_k, y_k)$  du disque sur le capteur de la caméra, la position tridimensionnelle de la particule, même si la précision sur la mesure de  $\tilde{z}_p$  reste assez faible.



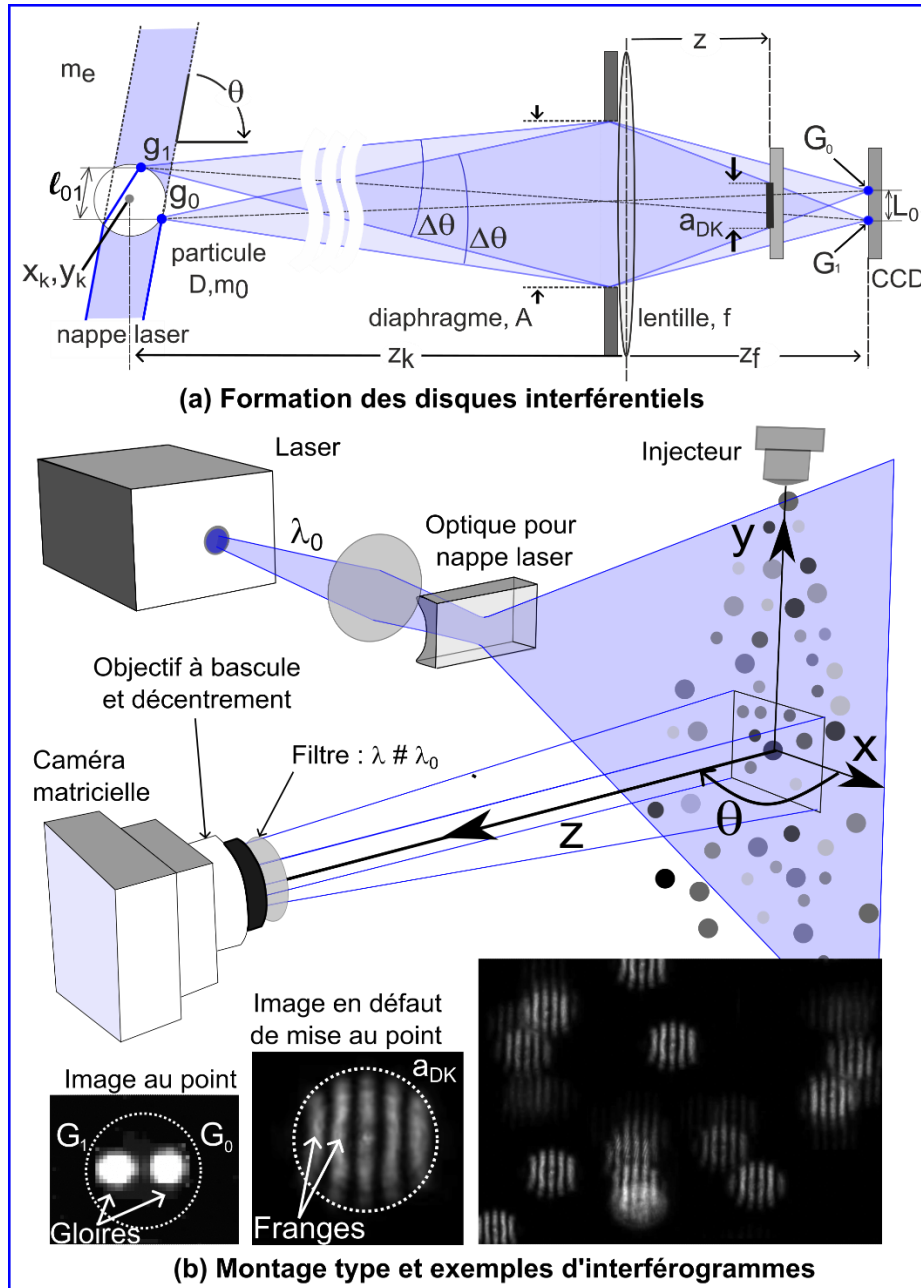


Figure 7 [1COL] Technique d'imagerie interférométrique en défaut de mise au point, schéma pour une particule réfractante ( $m > 1$ ).

Les points de gloire sont des sources quasi-ponctuelles, cohérentes entre elles, qui interfèrent à l'infini. À l'aide de l'optique géométrique et la Figure 7 (a), on peut modéliser les propriétés de ce champ d'interférence [73]. Soit pour le déphasage dans la direction  $\theta$  :

$$\phi_{01} = \phi_0 - \phi_1 = -\frac{2\pi m_e D}{\lambda_0} \left[ \sin(\theta/2) + (-1)^\eta \sqrt{m^2 + 1 - 2m \cos(\theta/2)} \right] \quad (22)$$

avec  $\eta = 1$  pour  $m < 1$  et  $\eta = 2$  pour  $m > 1$ . Pour des rayons de même amplitude, l'intensité de la fonction d'interférence prend la forme classique :  $I(\theta; D, m) = 2I_0 [1 + \cos \phi_{01}]$ .

La recherche de sa périodicité sur une petite plage angulaire  $\Delta\theta \approx 0$  [rad] autour de  $\theta$  :  $d\phi_{01}/d\theta \equiv 2\pi N$  donne pour le diamètre de la particule  $D \approx C \times F_a$  [m].  $F_a = (N/\Delta\theta)$  [rad<sup>-1</sup>] est la fréquence angulaire moyenne des  $N$  franges observées sur l'angle d'ouverture  $\Delta\theta$  de l'objectif, et  $C$  [m.rad] la pente de la relation fréquence-diamètre du système :

$$C \approx (2\lambda_0 / m_2) \left[ \cos(\theta / 2) + \frac{(-1)^n m \sin(\theta / 2)}{\sqrt{m^2 + 1 - 2m \cos(\theta / 2)}} \right]^{-1} \quad (23)$$

Pour un objectif de faible ouverture, on a que  $\Delta\theta \approx \lambda / f = (f / \#)^{-1}$  où  $f / \#$  est son nombre d'ouverture [58].

Selon la TLM, les franges observées correspondent aux oscillations naturelles du diagramme de diffusion (lobes de Mie). L'IIDMP réalise donc simplement un comptage des structures périodiques (lobes de Mie) observées dans une portion du diagramme de diffusion. Pour déterminer la courbe de calibration théorique de cette technique, il suffit donc de mesurer (avec une FFT par exemple) la fréquence caractéristique des diagrammes de diffusion sur la plage angulaire observée par la caméra, pour la polarisation et la longueur d'onde choisies, les indices de réfraction de la particule et du milieu [58].

### 3.2.2 Réalisation et conclusion

Le dispositif expérimental est en tout point identique à un montage de type PIV. En pratique le laser est bien souvent un laser YAG à 532nm, délivrant des impulsions de quelques dizaines de milliwatts, alors que la caméra est une caméra de haute résolution et dynamique. Pour des champs importants, il est recommandé d'utiliser un objectif ou un montage spécifique, à bascule et décentrement (configuration optique de Scheimpflug). Ceci, pour compenser la distorsion liée à une détection qui n'est pas parallèle au plan d'observation. Rappelons en effet que, pour l'eau par exemple, l'angle optimal est de  $\theta \approx 67^\circ$  et non  $\theta \approx 90^\circ$ . Certains constructeurs ou auteurs ont développé des variantes importantes. La première consiste à utiliser une seconde caméra, dont l'objectif est parfaitement au point, pour faciliter les mesures de vitesse avec un algorithme classique de PIV mais aussi pour repérer plus facilement le centroïde des disques interférentiels. La seconde, utilise des masques ou optiques cylindriques pour compresser les interférogrammes suivant la direction des franges [77, 78]. Cela limite la leur superposition et rend possible la caractérisation de sprays plus denses, par zones d'interrogation, de typiquement 10x10 mm, contenant jusqu'à 300 images de gouttes allant de 10 à 150  $\mu\text{m}$ . Troisième variante [79, 80], deux nappes laser se croisent (à la façon d'un IPD), ou se font face, afin augmenter le nombre de franges dans les interférogrammes ou rendre possible la mesure avec des particules opaques. L'équation (23) montre en effet que pour une goutte d'eau de  $D = 20\mu\text{m}$ ,  $m = 1,334$ , et des paramètres classiques,  $\theta = 67^\circ$ ,  $\Delta\theta = 5^\circ$ ,  $\lambda = 0.532\mu\text{m}$ , on obtient seulement 3 franges.

Cette technique, à mi-chemin entre l'imagerie et la diffractométrie, est limitée par différents aspects. Tout d'abord, en standard, elle ne s'applique qu'aux écoulements très dilués, car il faut éviter le recouvrement des différents interférogrammes. De même, elle ne fonctionne pas pour des particules fortement absorbantes, des particules d'indice variable et elle est très sensible à la non sphéricité des particules. Sa gamme granulométrique et sa dynamique sont assez limitées, avec typiquement  $D_{\text{max}} / D_{\text{min}} \leq 10 \sim 15$  et  $D_{\text{min}} \geq 10 \sim 20\mu\text{m}$ . Et cela, que ce soit pour des question d'intensité diffusée, d'un nombre de franges par disque trop faible ou qui n'évolue plus linéairement avec la taille des particules. Elle présente néanmoins deux atouts importants. Premièrement, elle offre une fonction granulométrique, à moindre coût, aux systèmes de type PIV/PTV<sup>1</sup>. Deuxièmement, elle permet d'analyser de grands champs (dilués) sans pour autant diminuer le facteur de grandissement interférométrique utilisé pour la granulométrie [78, 81-83].

### 3.3 Holographie numérique en ligne

#### 3.3.1 Principe

##### 3.3.1.1 Formation et enregistrement des hologrammes

L'Holographie numérique en Ligne (en anglais, « Digital In-line Holography », DIH) enregistre des images en intensité, et à distance finie, des diagrammes de diffraction des particules à caractériser [84-87]. Dans son principe, le nuage particulaire est éclairé par un faisceau collimaté et cohérent. Le système de détection se réduit à un capteur quadratique matriciel, généralement sans optique, placé face à l'onde incidente, à une distance moyenne  $L$  des particules. Les diagrammes enregistrés résultent de l'interférence de deux ondes : l'onde incidente sur le capteur (onde de référence, de champ  $E_r$  et d'intensité  $I_r$ ) et l'onde diffusée par les particules (onde sonde, de champ  $E_s$  et d'intensité  $I_s$ ), Figure 8 a. Pour un écoulement dilué, l'onde incidente est peu perturbée par sa traversée du nuage,  $E_r \approx E_0$  et  $I_r \approx I_0 = E_0 E_0^*$ , et l'intensité du champ diffusé est négligeable face à celle de l'onde incidente,  $I_s/I_0 \approx 0$ . En mesurant  $I_0$  sans particule, l'intensité du champ d'interférence sur le capteur est donnée par :

$$I/I_0 \propto 1 + \Re\{E_0 \bar{E}_s + \bar{E}_0 E_s\} / I_0 \quad (24)$$

Le terme entre accolade est un terme d'interférence à deux ondes, classique. Cependant, on le qualifie « d'hologramme » (et par extension  $I/I_0$ ) dans la mesure ou il résulte principalement de l'interférence des contributions diffractives avec l'onde de référence. Deux approches sont employées pour remonter à la position tridimensionnelle  $x_k, y_k, z_k$  et au rayon  $a_k$  des  $k$  particules.

##### 3.3.1.2 Restitution par rétropropagation et analyse d'images

L'hologramme global est rétropropagé pour toutes les distances  $z < L$  où des particules sont susceptibles d'être présentes (c.-à-d. la zone d'écoulement éclairée). Chaque image obtenue (carré du champ reconstruit) est analysée pour déterminer la présence d'une particule dans ce plan et si son image est au point ou non. La qualité de la mise au point est déterminée à l'aide d'indicateurs basés, par exemple, sur la divergence de la phase du champ reconstruit ou le contraste du profil d'intensité [88-91]. D'où le fait que la DIH soit aussi qualifiée de méthode de « refocalisation numérique » et de méthode « d'imagerie sans lentille ». Une fois qu'une particule est localisée en  $z_k$ , des outils classiques de traitement d'image (transformée de Hough, méthodes convolutives...) sont utilisés pour déterminer son centroïde,  $x_k, y_k$ , et sa forme (en anglais, on parle de « blob analysis »). L'identification des particules sphériques est plus aisée mais l'analyse n'est pas limitée à cette forme. Dans tous les cas, les images reconstruites sont pixellisées et les particules dont les dimensions sont proches de celles des pixels ne peuvent pas être caractérisées avec cette méthode. Cette dernière est également très sensible aux valeurs des seuils utilisés pour éliminer le bruit de fond et détecter les particules. De même, les images obtenues sont également entourées de franges parasites dues à la dimension finie du capteur et à la perte de la phase du champ d'interférence enregistré, Figure 8 c. De fait, le terme entre accolade de l'équation Eq. (24) contient deux termes contrapropagatifs, l'axe du temps étant perdu, comme si la particule était simultanément des deux côtés du capteur [92]. Ainsi, à la reconstruction en  $z_k$  se superpose la figure de diffraction d'une particule virtuelle (dite aussi jumelle) située en  $z' = L - z_k$ . Ces artefacts sont gênants, mais pas rédhibitoires pour nombre de d'applications.

##### 3.3.1.3 Restitution par méthode inverse

Les particules sont caractérisées de manière itérative par minimisation des écarts entre les hologrammes expérimentaux et ceux simulés avec une approximation de la diffraction scalaire [93-96]. Pour converger vers une solution physique globale, cette minimisation algébrique nécessite

une régularisation basée sur toutes les données et a priori disponibles (mesure préalable du bruit des images, forme des particules, bornes attendues pour les distributions granulométriques et spatiales...). L'approche inverse n'est plus limitée par la taille des pixels dans le plan des particules mais plutôt par la précision du modèle de diffusion, les capacités de convergence et la stabilité de la méthode de minimisation. Des particules de l'ordre de la longueur d'onde peuvent être caractérisées si l'on utilise comme modèle de diffusion la TLM et une optique spécifique [93]. Des particules dont le centroïde est en dehors de la surface définie par le capteur matriciel peuvent aussi être caractérisées. La phase et le bruit généré par les images jumelles peut même être soustrait par calcul [97-100]. Les approches inverses sont malheureusement extrêmement coûteuses en ressources informatiques.

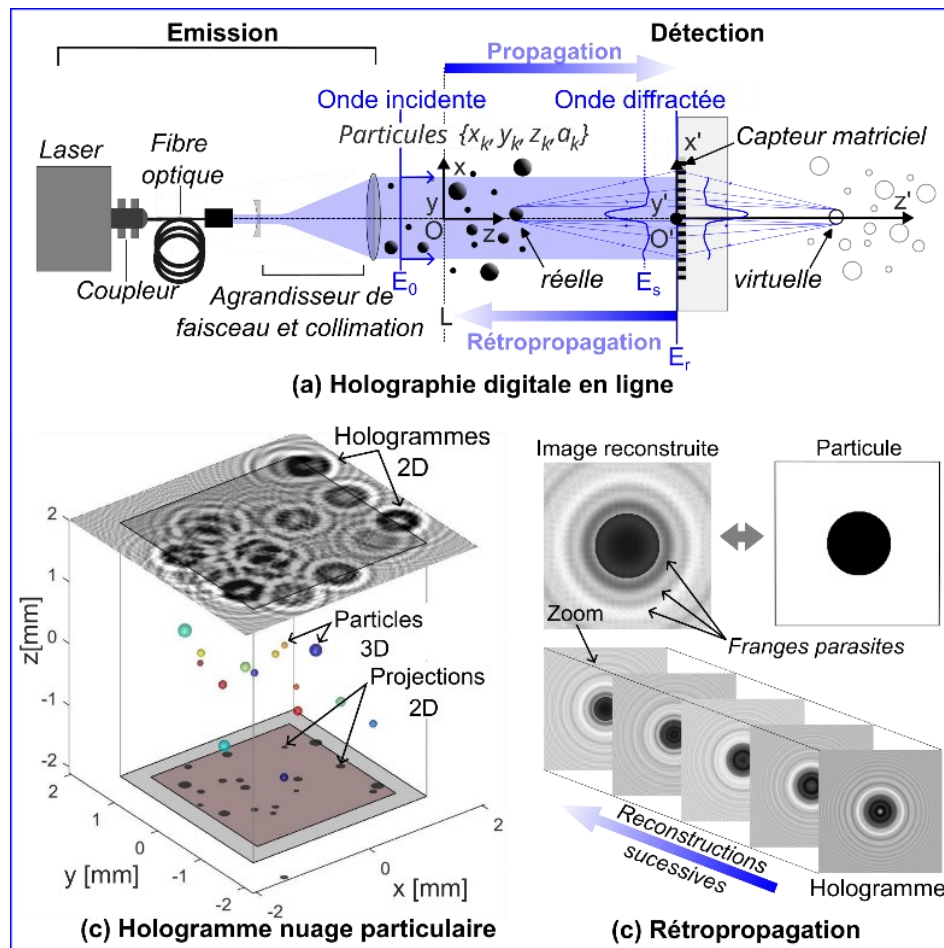


Figure 8 [1COL] Holographie numérique en ligne

### 3.3.2 Réalisation

Le montage le plus simple se compose d'un laser (type He-Ne) de quelques milliwatts à dizaines de milliwatts, non polarisé, dont la longueur de cohérence dépasse largement les dimensions des particules. Le faisceau est fibré pour épurer son profil, puis agrandi et collimaté. Son élargissement permet d'atténuer les gradients d'éclairage dû à son profil gaussien, alors que la collimation permet d'avoir un front d'onde quasi-plan (un col) au niveau de la zone de mesure. La caméra, CCD ou CMOS, haute résolution et haute dynamique (1 Mpixels et 12 bits sont un minimum) est dotée d'un capteur aussi grand que possible. En effet, sans optique devant la caméra, ce sont les dimensions du capteur et la largeur du faisceau qui déterminent les dimensions latérales du champ réel observé. Avant les mesures proprement dites, l'intensité de l'onde de référence sans particules  $I_0$  et celle  $I_b$  du bruit de fond sans particules et laser éteint sont mesurées. Les hologrammes

normalisés sont alors donnés par  $(I - I_b)/(I_0 - I_b)$ .

### 3.3.3 Conclusion

La DIH reste une technique de laboratoire, qui n'est pas encore industrialisée et commercialisée. Il est difficile de chiffrer la limite en concentration et taille de particules qui peuvent être caractérisées tant cela dépend de la gamme granulométrie, de la taille du champ observé, de l'indice relatif des particules et des méthodes de traitement. Néanmoins, pour fixer les ordres de grandeur, un taux d'obscurité de 5-20% semble être une limite haute, l'obscurité étant la somme des surfaces projetées des particules sur le capteur, divisée par la surface de ce dernier [84, 101-103]. La capacité de refocalisation numérique de cette technique la rend irremplaçable pour le suivi et la caractérisation de particules au sein d'écoulements complexes ou lors de l'utilisation de forts grossissements (microscopie holographique). Les développements actuels vont vers l'accélération des temps de calculs (calculs parallélisés et machine Learning)[102, 104], la modélisation des termes de phase et la mesure de l'indice de réfraction (composition) des particules [93, 100, 105, 106].

L'interférométrie phase Doppler est complexe et coûteuse à mettre en œuvre mais elle demeure la technique de référence pour l'analyse de la granulométrie et la dynamique des écoulements réels.

L'imagerie interférométrique en défaut permet d'analyser des champs très dilués en découplant les grossissements du champ observé de celui utilisé pour la granulométrie.

L'holographie numérique permet une refocalisation tridimensionnelle des images des particules et diffuseurs sur une très grande profondeur de champ.

## 4 Techniques d'imagerie incohérente

### 4.1 Ombroscopie

#### 4.1.1 Principe

D'une manière générale, les techniques d'imagerie enregistrent et analysent des images en intensité des objets à caractériser. Pour les écoulements, on privilégie la configuration ombroscopique (en anglais, « shadowgraphy »). L'éclairage est collimaté et provient de l'arrière des particules. La détection utilise une caméra matricielle, munie d'un objectif à fort grossissement, placée en face de la source d'éclairage. Ceci, afin d'observer l'ombre des particules plutôt que leur surface qui est parasitée par les réflexions multiples. La mesure consiste alors à analyser les images enregistrées au moyen de logiciels d'analyse d'images.

Le calcul rigoureux de l'image formée par une lentille simple nécessite des calculs électromagnétiques très lourds [107]. Une alternative consiste à utiliser un modèle simplifié basé sur la réponse impulsionnelle spatiale  $s(x, y)$  (en anglais « point spread function, PSF) du système d'imagerie. Dans cette approche, la particule est assimilée à un disque circulaire de rayon  $a$ , de fonction de luminance  $o(x, y)$  et de taux de transmission  $\tau$ . Son image est obtenue par convolution de ces deux fonctions :  $i(x, y) = o(x, y) \otimes s(x, y)$ , Figure 9 a. Avec  $r = \sqrt{x^2 + y^2}$  pour la distance radiale à l'axe optique, on a  $o(x, y) = \tau$  pour  $r \leq a$  et  $o(x, y) = 1$  au-delà. Pour la PSF, une fonction gaussienne du type  $s(r) = (2/\pi\chi^2) \exp(-2r^2/\chi^2)$  peut convenir avec  $\chi$  pour sa demi-largeur à  $e^{-2}$  [9, 108].  $\chi$  dépend de l'ouverture du diaphragme  $A$ , de la longueur d'onde  $\lambda$  et de la distance relative de la particule au plan objet (écart à la distance  $z_p$  ou défaut de mise au point). Avec  $\rho$  pour la variable d'intégration radiale et  $I_{b,0}$  pour la fonction de Bessel modifiée d'ordre  $n=0$ , on



a pour le profil d'intensité normalisée de l'image :

$$i(\tilde{r}) = 1 - 2(1 - \tau) \exp(-\tilde{r}^2) \int_0^{\tilde{a}} \rho \exp(-\rho^2) I_{b,0}(2\tilde{r}\rho) d\rho \quad (25)$$

avec pour le rayon normalisé, la distance et la variable normalisées :  $\tilde{a} = \sqrt{2}\gamma a/\chi$ ,  $\tilde{r} = \sqrt{2}r/\chi$  et  $\tilde{\rho} = \rho/\gamma a$ . Le profil d'intensité de l'image dépend donc du taux de transmission de la lumière à travers la particule, du rayon de cette dernière, du facteur de grandissement optique et de la largeur de la réponse impulsionnelle de l'optique. La Figure 9 b illustre son évolution pour deux valeurs du taux de transmission et deux rayons. Le taux de transmission joue essentiellement sur le contraste global de l'image, alors que le rayon joue sur le contraste des bords de l'image (c'est-à-dire la largeur de la zone qui apparaît floue, Figure 9 c). A  $\chi$  fixée, les bords d'une petite particule sont donc plus flous (pente faible) que ceux d'une grosse particule. Cette remarque implique que, pour un seuil de détection donné, la profondeur de la zone de mesure dépend de la taille des particules considérées. Si cet effet n'est pas pris en compte, ce qui est généralement le cas, les distributions granulométriques sont biaisées. Réduire l'ouverture du système imageur diminue l'intensité moyenne de l'image mais contribue également à augmenter la profondeur de champ du système (tolérance sur la distance  $\pm \Delta z_p$  de netteté des images). Le rayon de la tâche d'Airy générée par la diffraction de l'objectif, d'ouverture  $f/(2a)$ , est de  $r \approx 1,22\lambda_0 f/(2a)$ . Toute particule dont le rayon est en deçà de cette valeur est donc indiscernable, même si elle peut être détectable.

#### 4.1.2 Réalisation

Des sources d'éclairage continues peuvent-être utilisées si le temps de pose minimum de la caméra (typiquement,  $\delta t \sim 1-100\mu s$ ) permet de limiter le bougé des images des particules. Ce bougé est dépend du produit de la vitesse des particules et du facteur de grandissement de l'optique. Dans bon nombre d'applications, l'éclairage pulsé est assuré par un stroboscope, une lampe flash ou une diode pulsée ( $\Delta t \geq 5-100\mu s$ ), Figure 9 d. Du fait de leur très faible cohérence (largeur spectrale,  $\Delta\lambda \geq 30nm$ ), ces sources ne produisent pas de d'interférences localisées (tavelures, ou en anglais « speckle »). Pour des applications plus rapides, ou des plus grands champs, il peut être nécessaire d'utiliser un laser de type Nd:YAG (pulses plus courts  $\Delta t \sim 3-10ns$  et plus énergétiques, typiquement, de 15 a 200mJ ). Cependant, la trop grande cohérence du faisceau laser ( $\Delta\lambda \leq 0,2nm$ ) produit un speckle intense qui rend difficile la détection des particules. Pour limiter cet effet, on utilise une fibre multimode ou un diffuseur (lame dépolie ou holographique) pour briser la cohérence du faisceau ou, mieux encore, une cellule ou une lame de fluorescence qui l'élargissent spectralement ( $\Delta\lambda_F \geq 30nm$ ). Outre leur coût, ces deux dernières solutions ont pour principaux inconvénients une perte de directivité (collimation) et de fluence (surtout pour la fluorescence) du faisceau d'éclairage. La caméra haute résolution est munie d'un objectif télécentrique, qui limite les effets de parallaxe avec un grandissement constant sur la profondeur de champ, ou d'un objectif de microscopie à visée lointaine. Ce dernier permet d'obtenir des grandissements plus importants mais non constants sur la profondeur de champ. Les dimensions effectives du volume de mesure dépendent bien évidemment du grandissement de l'optique et des caractéristiques du capteur, mais aussi de la taille des particules et de la méthode de traitement des images. Une source double impulsion et une caméra avec un mode PIV permettent de mesurer en sus la vitesse des particules. Pour la granulométrie, les images sont analysées au moyen d'un logiciel de traitement d'images fourni avec le système de mesure ou non. Il existe en effet de nombreuses solutions logicielles alternatives (avec Matlab®, ImageJ par exemple). Le logiciel doit permettre la détection des particules mais aussi la localisation de leur centroïde et la mesure de leur diamètre équivalent sphérique (à partir d'une surface ou d'un périmètre) plus, éventuellement, des analyses morphologiques plus ou moins complexes (rugosité, dimension fractale...)

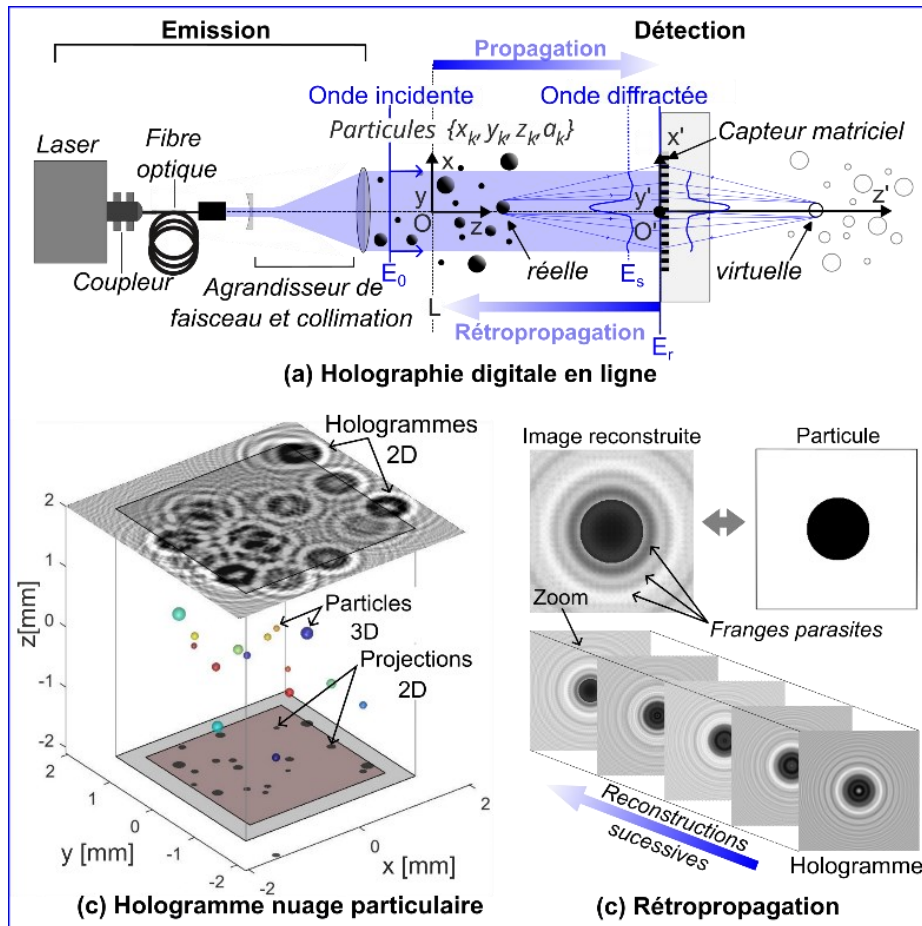


Figure 9 [1COL] Imagerie incohérente : ombroscopie

#### 4.1.3 Conclusion

Les principaux avantages de cette technique sont son caractère versatile et intuitif, sa très grande dynamique et sa capacité inégalée pour caractériser des particules de morphologie complexe et de composition inconnue. Elle utilise de nombreux équipements communs à la PIV, la PTV et l'imagerie interférométrie en défaut de mise au point (§ 3.2), ce qui permet de multiplier à moindre coût les diagnostics possibles. Les constructeurs proposent des solutions clés en main, pour la caractérisation de sprays, de poudres, de cellules biologiques. A titre indicatif, ils annoncent pour cette technique une dynamique maximale de l'ordre de  $D_{\max}/D_{\min} < 100$  pour  $D_{\min} > 5\mu\text{m}$  et une distance de mesure qui peut aller de  $30\text{mm}$  à  $1\text{m}$ . Les dimensions du champ observé, de  $1\text{mm}^2$  à  $1000\text{mm}^2$ , dépendent du grandissement optique et du capteur CCD, du diamètre minimum et la distance de mesure. Pour les vitesses, les limites sont celles de la PTV. Les points faibles de cette technique sont la lourdeur du traitement statistique (temps et stockage), la difficulté du paramétrage de l'analyse, l'impossibilité de caractériser des petites particules et des milieux denses, et de forts biais statistiques. Ces derniers proviennent notamment de la dépendance du volume de mesure avec la taille des particules (qui peuvent être pris en compte par calibration avec une mire) et la plus forte probabilité d'occultation des petites particules qui ne sont que rarement pris en compte.

#### 4.2 Imagerie ombroscopique Doppler 1D

Dans cette variante (en anglais « Shadow Doppler Technique »), l'image est enregistrée avec une caméra linéaire (1D) à haute cadence de ligne mais de résolution limitée (128 pixels à  $64\text{kHz}$ ). L'image 2D de la particule est reconstruite ligne par ligne à partir des images 1D (tomographiques) de sa surface et de la mesure de sa vitesse par vélocimétrie Doppler laser [109]. La caméra peut être déportée, l'image de la particule est alors transmise jusqu'à la caméra par un réseau de fibres

optiques. Seule la société Kanomax commercialise cette technique ponctuelle. Limitée aux écoulements très dilués, elle est résolue en temps et fournit des informations dynamiques sur des particules de forme complexe et d'indice inconnu (composition). D'après le constructeur, pour une distance de mesure de 100 mm, sa résolution est de 4 à 10 % sur le diamètre de particules entre 30–140 μm, sphériques à non sphériques, avec des vitesses pouvant aller jusqu'à 100 m/s.

### 4.3 Imagerie par ratio de fluorescence et diffusion élastique

#### 4.3.1 Principe

L'imagerie par ratio de la fluorescence induite par laser et la diffusion élastique (en anglais, « Spray Paternator ou Planar Droplet Sizing Technique »)[110, 111] est principalement employée pour caractériser la granulométrie et surtout la structuration bidimensionnelle des sprays : homogénéité et angle du cône. La fluorescence est généralement obtenue par ajout de traceurs fluorescents (type Rhodamine 6G) dans le liquide pulvérisé, même si la fluorescence naturelle peut être aussi utilisée. Son principe repose sur l'idée que la fluorescence  $I_f$  d'une goutte est proportionnelle au nombre de molécules fluorescentes qu'elle contient, et donc à son volume, alors que l'intensité de diffusion élastique (dite de Mie)  $I_e$  est proportionnelle à sa surface. On obtient ainsi que  $I_f / I_e \propto D^3 / D^2 = D$ . En pratique, on cherche plutôt à caractériser globalement le spray en utilisant deux caméras pour enregistrer de manière simultanée les intensités des images  $I_e(x, y)$  et  $I_f(x, y)$ , Figure 10. Différentes hypothèses sont faites sur ces intensités globales: elles dépendent uniquement de l'intensité locale de la nappe laser  $I_0(x, y)$ , de la concentration locale  $C_N(x, y)$  en gouttes, et de coefficients  $c_e$  et  $c_f$  englobants la taille du volume de mesure local (maille centrée sur x, y), le gain des deux chaînes de mesure, la température et la concentration en fluorophores dans le cas du signal de fluorescence :

$$\begin{aligned} I_e(x, y) &= c_e I_0(x, y) \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} C_N(x, y) D^2 dD \\ I_f(x, y) &= c_f I_0(x, y) \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} C_N(x, y) D^3 dD \end{aligned} \quad (26)$$

Le ratio des deux images est proportionnel au diamètre de Sauter des gouttes:

$$D_2^3(x, y) \equiv \frac{\int_0^{\infty} C_n(x, y) D^3 dD}{\int_0^{\infty} C_n(x, y) D^2 dD} = \frac{c_f}{c_e} \frac{I_f(x, y)}{I_e(x, y)} \quad (27)$$

#### 4.3.2 Réalisation

Le montage expérimental se compose tout d'abord d'un dispositif d'éclairage similaire à ceux utilisés pour les montages PIV, PTV ou imagerie en défaut de mise au point : source laser impulsienne (type laser Nd-YAG  $\lambda_0 = 532\text{nm}$  ou  $\lambda_0 = 355\text{nm}$  pouvant exciter la fluorescence) et optiques pour la formation d'une nappe laser. Une lame séparatrice ou un filtre dichroïque séparent le flux diffusé aux alentours de  $\theta \approx 90^\circ$  vers une première caméra (avec filtre interférentiel centré sur  $\lambda_0$ ) enregistrant la diffusion élastique, et une seconde caméra (de préférence intensifiée et munie d'un filtre de Notch centré sur  $\lambda_0$  ou d'un filtre passe-haut  $\lambda > \lambda_0$ ) enregistrant la fluorescence induite. Les deux caméras sont équipées d'objectifs à faible grandissement. Après soustraction des bruits électroniques (images de fond avec obturation des objectifs) et optiques (images de fond sans laser), le rapport des deux images débruitées permet de visualiser en niveaux de gris la



répartition granulométrique instantanée dans le spray. Pour obtenir des valeurs absolues et déterminer le coefficient  $c_f/c_e$ , il faut calibrer au préalable le système avec des gouttes monodisperses. Si les gouttes sont identifiables individuellement, l'utilisation d'un laser double impulsion et de caméras avec un mode PIV-PTV permet d'obtenir leur vitesse.

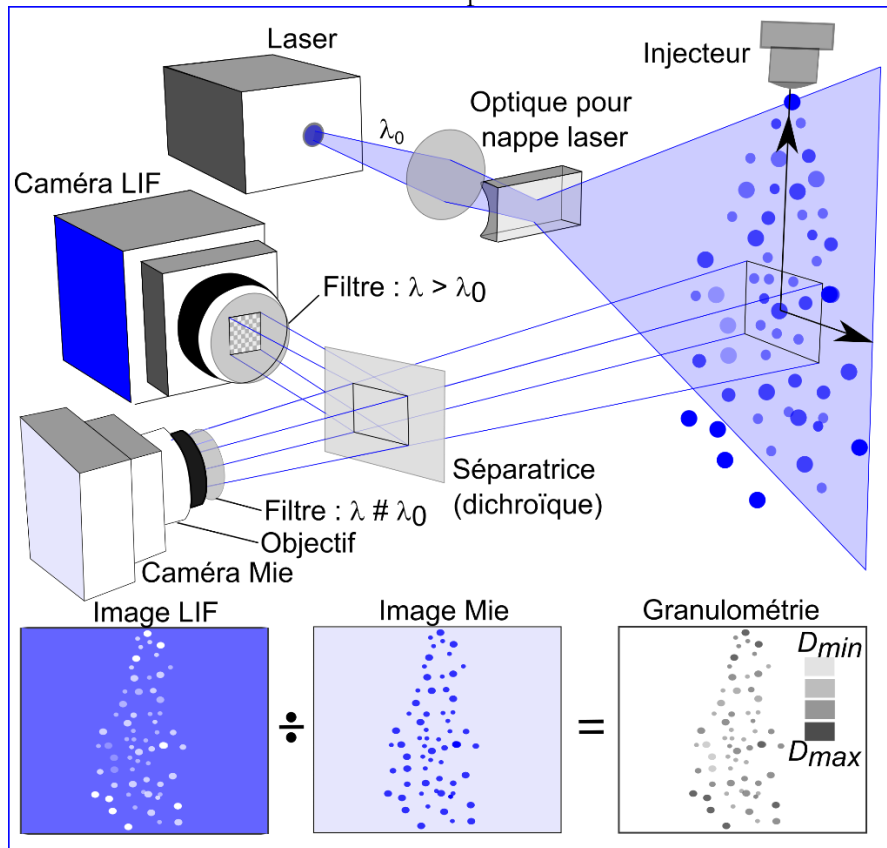


Figure 10 [1COL] Technique par ratio de fluorescence induite par laser et diffusion élastique

### 4.3.3 Conclusion

Cette technique, employée pour l'étude de sprays transitoires est simple et élégante dans son principe mais elle limitée par plusieurs facteurs. Il est impératif de bien doser le traceur, de limiter l'évaporation et travailler à température constante. Le signal de fluorescence est en partie réabsorbé par les gouttes environnantes, voire la phase vapeur. Ce qui impose de se limiter à des milieux optiquement dilués. La relation  $I_f \propto D^2$  n'est pas vérifiée pour les petites particules,  $D < 10 \sim 20 \mu\text{m}$ , du fait des résonances de Mie qui sont très importantes à  $\theta \approx 90^\circ$ . L'amplitude de ces résonances peut être atténuée en dosant plus fortement le traceur mais dans ce cas des effets géométriques et de quenching apparaissent (absorption surfacique, saturation du traceur) et faussent la relation  $I_f \propto D^3$  [112, 113]. Les différentes étapes de calibration (dosage du traceur, coïncidence des champs observés, contrôle de l'homogénéité de la nappe laser, production de gouttes calibrées) sont fastidieuses. La dynamique des caméras est une autre limite importante. En effet, une dynamique de 12 bits, ne donne au grand maximum que  $D_{\text{max}} / D_{\text{min}} = \sqrt[3]{2^{12}} \approx 16$  pour la fluorescence. En fait, cette dynamique est réduite par bien d'autres facteurs (bruit électronique, profil d'intensité de la nappe laser...). Au final, il est très difficile de préciser la résolution et la dynamique de cette technique, même si cette dernière est assez faible  $D_{\text{max}} / D_{\text{min}} < 5 - 10$  avec  $D_{\text{min}} > 10 - 20 \mu\text{m}$ . Cette technique n'est plus commercialisée mais elle est encore très utilisée pour caractériser les sprays. Ses développements portent principalement sur la correction des effets de la diffusion multiple [114].

L'imagerie incohérente est la technique la plus intuitive et versatile mais elle souffre de nombreux biais statistiques. Une calibration avec des mires ou particules de référence est indispensable mais pas toujours suffisante.

Le montage avec éclairage arrière (ombroscopie) permet un meilleur contraste, une plus grande dynamique et un traitement simplifié.

Les techniques comparant la diffusion élastique et la diffusion inélastique souffrent de nombreux biais mais demeurent intéressantes pour visualiser les phénomènes.

## 5 Autres méthodes

### 5.1 Spectrométrie d'extinction

#### 5.1.1 Principe

La spectrométrie d'extinction (en anglais, « Light extinction spectrometry », LES) mesure le taux de transmission,  $T(\lambda)$ , d'un faisceau collimaté, polychromatique, à la traversée d'un milieu particulaire optiquement dilué et globalement homogène [115-117]. D'intensités spectrales initiale  $I_0(\lambda)$  et finale  $I_T(\lambda)$ , le faisceau se déplace suivant  $z$ , Figure 11. Sur une tranche d'épaisseur  $dz$ , son intensité décroît proportionnellement au nombre  $C_N$  de particules par unité de volume et à leur section efficace d'extinction moyenne  $\bar{C}_e$  :  $I_T(z+dz) - I_T(z) = -C_N \bar{C}_e(D, \tilde{m}, \lambda) dz$ , Figure 11 a. Si l'intensité du signal diffusé par les particules est négligeable dans la direction  $\theta \approx 0^\circ$ , on obtient par intégration la loi de Beer-Lambert  $I_T(z) = I_0 \exp[-C_N \bar{C}_e(D, \tilde{m}, \lambda) z]$  et le taux de transmission :

$$T(\lambda_i) = I_T(\lambda_i) / I_0(\lambda_i) = \exp(-\tau L) \quad (28)$$

où  $z = L$  est la distance géométrique traversée,  $\tau L$  l'épaisseur optique du milieu et  $\tau = C_N \bar{C}_e$  sa turbidité avec, pour un nuage polydispersé:

$$\bar{C}_e = \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} C_e(D; \tilde{m}, \lambda) n(D) dD \quad (29)$$

L'équation (28) est à nouveau une équation intégrale de Fredholm du premier type. La stratégie d'inversion est de ce fait similaire dans son principe à celle utilisée par les techniques de diffraction (§2.1.2). Pour ce faire, après discrétisation et linéarisation de l'équation (28), la matrice de diffusion est simplement remplacée par une matrice des sections efficace d'extinction [37, 115-117]. La granulométrie et la concentration du milieu sont déduites, respectivement, de la forme de la courbe de transmission et de son intégrale. Pour des particules proches de la sphéricité, la matrice d'extinction est calculée à l'aide de la TLM. Pour des cristaux et agrégats, il faut recourir à la DDA ou la T-Matrice (§1.2.3). Cette technique intégrale, qui restitue des moyennes spatiales, est principalement utilisée pour caractériser des particules dont la taille est de l'ordre des longueurs d'onde utilisées pour les éclairer (§1.2.3 et Figure 1 d).

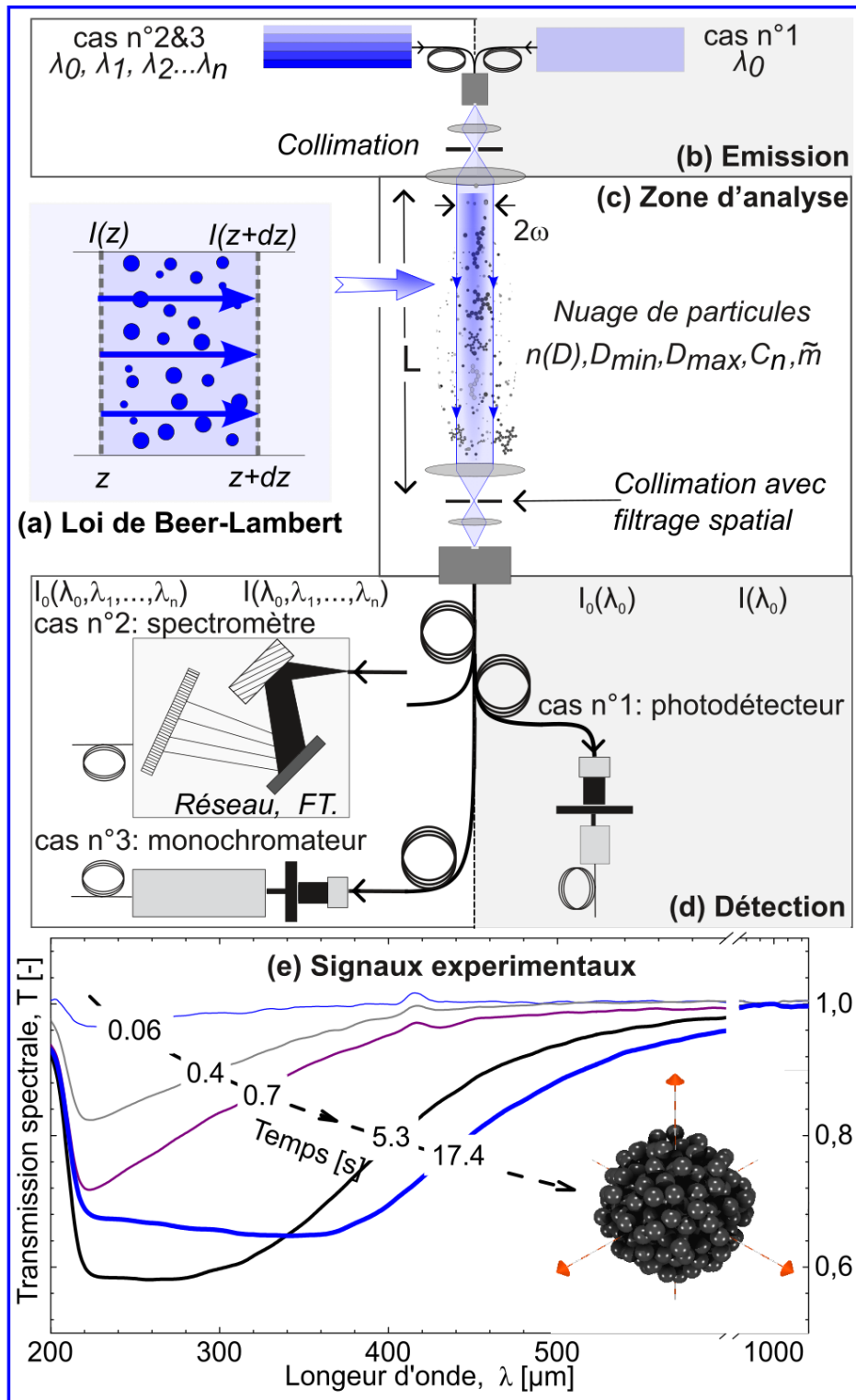


Figure 11 [1COL] Spectrométrie d'extinction.

### 5.1.2 Réalisation

Les systèmes les plus simples utilisent une source de lumière monochromatique, type diode laser (cas n°1, Figure 11 b-d). La détection, placée dans l'axe, se compose d'une optique de collection avec filtrage spatial et photodétecteur. Le filtre spatial limite la collection de la lumière diffusée, et a fortiori multidiffusée par les particules ou surfaces. L'expérience consiste alors à mesurer l'intensité du faisceau sans, puis avec, particules. Les conditions d'éclairage, de température, ou d'encrassement des hublots ne doivent pas changer significativement entre ces deux étapes. Le volume de mesure correspond au cylindre de largeur de  $2\omega$  et de longueur  $L$ , Figure 11 c. Si le

taux de transmission est trop faible, pour des raisons théoriques (diffusion multiple excessive) ou techniques (rapport signal sur bruit trop faible),  $L$  est augmentée et/ou le milieu dilué. La procédure est inverse si la transmission est trop importante. Dans ce dernier cas, une détection synchrone permet d'améliorer le rapport signal sur bruit. Avec une seule longueur d'onde, on ne peut déterminer qu'une seule inconnue : le diamètre des particules dans le cas où la concentration du milieu est préalablement déterminée (par pesée par exemple) et vice et versa. A noter que les turbidimètres et/ou néphélomètres [118] basés sur une mesure de la diffusion sur le côté, à  $\theta \approx 90^\circ$ , ne mesurent par l'extinction optique, qui n'est définie que pour  $\theta = 0^\circ$ . Ils estiment seulement une « turbidité » obtenue par comparaison avec celle d'un échantillon de référence. D'autres systèmes, qualifiés de granulomètres par extinction, sont de simples compteurs qui utilisent les propriétés aérodynamiques ou de mobilité électrique des particules. Les systèmes plus élaborés éclairent le milieu avec un faisceau à large spectre (idéalement, UV-VIS-NIR). Pour ce faire, une source polychromatique stabilisée (lampes halogène et deutérium, lampe xénon à arcs, source supercontinuum) et une optique de collimation achromatique sont utilisées. Le balayage spectral peut alors se faire au niveau de l'émission (cas n°2) ou de la détection (cas n°3). Dans le cas n°3, la lumière issue de la source est dirigée vers un monochromateur (roue porte filtres, réseau mobile). La détection est alors simplement composée d'une optique de collection achromatique et d'un ou deux photodétecteurs (suivant la gamme spectrale à couvrir). Dans le cas n°2, le balayage spectral est effectué au niveau de la détection avec un de ces trois spectromètres : monodétecteur à système dispersif mobile, monodétecteur à transformée de Fourier ou multi détecteurs (barrette CCD ou CMOS) à système dispersif (réseau) fixe.

### 5.1.3 Conclusion

La spectrométrie d'extinction, sous sa forme la plus complète (cas 3), reste encore une technique de laboratoire. Elle est principalement utilisée pour caractériser des aérosols, plasmas poussiéreux et suspensions où la forme des particules s'écarte peu de la sphéricité et leur taille est de l'ordre des longueurs d'onde d'éclairage [37, 119-121]. Pour un spectre UV-VIS-NIR classique,  $\lambda = 0,2 \sim 1\mu m$ , la gamme granulométrique maximale est de l'ordre de  $D = 0,02 \sim 2\mu m$  avec un  $D_{max} / D_{min} < 50$ , mais ces valeurs dépendent fortement du matériau et de la forme des particules, ainsi que de la distance  $L$  qui peut aller de quelques centaines de microns à quelques mètres [119, 120]. A titre d'exemple, la Figure 11 d montre l'évolution de la transmission à travers un plasma de Silane où se forment et croissent des agrégats de nanocristallites de silicium. Les principales limites de cette technique sont la nécessité absolue de connaître avec précision les courbes d'indice de réfraction des particules, ce qui est difficile avec des matériaux industriels, et sa dynamique limitée en concentration si la distance  $L$  ne peut être augmentée à volonté. Pour fixer les ordres de grandeur, pour  $L = 10cm$  et des agrégats compacts de silicium de rayon équivalent sphérique  $5 - 100nm$ , les concentrations mesurables sont dans la gamme  $10^{-8}$  à  $10^{-6} [m^3 / m^3]$ . Ses atouts principaux sont sa capacité à mesurer des concentrations absolues à distance, aussi bien dans des gaz que des liquides, avec des accès optiques limités et pour une gamme granulométrique où il y a peu de techniques concurrentes.

## 5.2 Techniques polarimétriques (ou d'ellipsométrie)

Elles analysent les particules nano- à micrométriques par leur capacité à dépolariiser la lumière. Elles sont peu utilisées pour la caractérisation des particules sphériques, du fait d'une dynamique faible. Dans ce cas, elles se limitent à la mesure et l'analyse du ratio des polarisations parallèle et perpendiculaire de l'intensité diffusée à  $\theta = 90^\circ$ , §1.2.3 [122]. Elles sont en revanche très utilisées par les communautés de la physique de l'atmosphère et de l'astrophysique pour obtenir la granulométrie et la composition d'aérosols et nuages de particules micrométriques irrégulières. Ce

sont alors toutes les composantes de la T-Matrix qui sont mesurées en éclairant et analysant le système particulaire avec différentes polarisations : isotrope, linéaire, circulaire gauche, etc. Dans ce dernier cas, les mesures, peuvent être effectuées à très grande distance mais leur résolution temporelle est faible [123].

### 5.3 Incandescence induite par laser

L'incandescence induite par laser (LII) se produit lorsqu'un faisceau laser chauffe fortement des particules solides. Leur émission, de type corps noir, forme le signal LII. Avec un éclairage pulsé, l'amplitude maximale et le temps caractéristique de décroissance du signal d'incandescence peuvent être reliés à la concentration en volume et à la taille moyenne des particules chauffées [124, 125]. En pratique, suivant la taille du volume de mesure souhaité, l'absorptivité des particules ou encore la température et la pression du milieu environnant, la fluence nécessaire est dans la gamme  $0,05 - 0,7 \text{ J/cm}^2$  (réalisable avec un laser Nd:YAG pulsé à 1064 ou 532 nm). La détection peut être assurée par un photomultiplicateur (mesure ponctuelle) ou une caméra à balayage de fente (« Streak camera » qui fournit une image 1D de la zone de mesure avec une résolution temporelle de quelques nanosecondes). Le rayonnement d'incandescence étant isotrope, la détection est placée à  $\theta = 90^\circ$  pour d'obtenir un volume de mesure de forme simple. L'atout majeur de la LII est sa capacité à caractériser à distance et avec seulement deux accès optiques des particules et des agrégats de quelques nanomètres à quelques centaines de nanomètres, en faible concentration. Commercialisée, elle est utilisée aussi bien en combustion pour la caractérisation des suies, qu'en physique des plasmas poussiéreux pour la caractérisation des monomères et petits agrégats [126]. Dans le cas des suies, Artium Technologies annonce, pour une distance de mesure de l'ordre de 10 cm, une précision de  $\pm 2\%$  sur les mesures de concentration (entre  $0.2 \mu\text{g/m}^3$  à  $20 \text{ g/m}^3$ ) et  $\pm 2\%$  sur la granulométrie de particules de 10–100 nm ayant une surface spécifique de 50–200  $\text{m}^2/\text{g}$ . Les développements actuels portent principalement sur les propriétés optiques des particules (forme et indice), le modèle d'émission (souvent basé sur la théorie de Rayleigh-Gans-Debye) et la réabsorption, la procédure d'inversion [124].

### 5.4 Diffusion dynamique de la lumière

La technique de diffusion dynamique de la lumière (en anglais « Dynamic Light Scattering », DLS) appelée aussi technique de diffusion quasi-élastique ou spectroscopie par corrélation de photons, est une référence pour la granulométrie des systèmes colloïdaux et les suspensions browniennes en général. La largeur spectrale de la lumière diffusée par les systèmes particuliers sujets au mouvement brownien augmente par effet Doppler du fait de l'agitation thermique des particules. Cette perte de cohérence se traduit par une décroissance exponentielle de la fonction d'autocorrélation (en anglais « auto-correlation function », ACF) du signal diffusé [127]. Le temps caractéristique de décroissance  $\Gamma = q^2 D_T$  dépend de la température  $T$  du fluide et des particules qui s'agitent, de la viscosité du fluide  $\eta$ , du coefficient de diffusivité linéaire  $D_T$  des particules dans le fluide et du module du vecteur de diffusion de la lumière diffusée  $q = (4\pi m_e / \lambda_0) \sin(\theta/2)$ . La relation de Stokes-Einstein permet de relier simplement ces quantités au diamètre hydrodynamique  $D_b$  de particules sphériques :  $D \equiv D_b = k_B T / (3\pi\eta D_T)$ , avec  $k_B$  pour la constante de Boltzman. Les systèmes les plus simple sont composés d'une optique focalisant un faisceau laser cohérent dans le milieu à sonder et d'une optique de collection du flux diffusé positionnée à  $\theta = 90^\circ$  ( $\theta = 173^\circ$  pour les milieux multi-diffusifs). La conversion électrique est réalisée par un photomultiplicateur ultra-rapide en mode compteur de photons ou non. Le traitement est réalisé par un autocorrélateur. Dans le cas d'une suspension polydispersée, il faut déterminer par méthode inverse la distribution des temps de décroissance. Dans ce cas, ou lorsque les particules sont irrégulières, des mesures à différents angles de diffusion sont réalisées en plaçant la détection sur un berceau goniométrique

[128]. La durée d'une analyse passe alors de quelques minutes à quelques dizaines de minutes, le fluide devant rester parfaitement immobile à l'échelle macroscopique. La plupart des systèmes commercialisés sont des systèmes de paillasse peu adaptés à l'étude des écoulements. Le système VASCO KIN de Cordouan Technologies semble être le seul à permettre des analyses à distance, 10–20cm, de particules dans la gamme 0.5nm–10µm jusqu'à des concentrations en masse de 40%. Les développements de la DLS portent sur la mesure in situ par fibre optique, la correction des effets d'une composante de vitesse principale ou de la diffusion multiple [129] [127, 130].

La spectrométrie d'extinction est la seule à permettre des mesures absolues et à grande distance de la taille et la concentration de particules nano à micrométriques en mouvement. La nécessité de connaître les spectres d'indice des particules est souvent problématique.

Les techniques polarimétriques sont peu utilisées pour les l'analyse des écoulements du fait, notamment, de leur lenteur.

L'incandescence induite par laser permet de caractériser des particules nano à micrométriques en mouvement. Ces dernières doivent absorber fortement la lumière laser et pouvoir monter très fortement en température.

La diffusion dynamique de la lumière est la référence pour les systèmes browniens mais son utilisation reste limitée aux suspensions figées ou aux écoulements extrêmement contrôlés.

## 6 Conclusion

Cet article dresse un panorama des principes et des cas d'usage des techniques de granulométrie optique de particules en écoulement dont les dimensions vont du nanomètre au millimètre, voir à ce propos le tableau de synthèse de la Figure 3. Beaucoup sont encore des techniques de laboratoire, les offres commerciales étant limitées malgré les besoins très importants dans le domaine. Il n'existe pas de solution couvrant tous les besoins en termes de gamme de taille et morphologie, de distance de mesure et densité optique, ou bien de nature et d'échelle des statistiques. Certaines techniques ont des plages de fonctionnement plus étendues et sont plus versatiles que d'autres. Très peu d'entre-elles fournissent des statistiques normalisées, des concentrations absolues, des corrélations taille-vitesse et flux, des informations dont l'importance est trop souvent sous-estimée.



## Bibliographie

1. Deschamps, G.A., *Ray Techniques in Electromagnetics*. Proc IEEE 1972. **60**(9): p. 1022- 1035
2. van de Hulst, H.C., *Light Scattering by Small Particles*. 1957, New-York: Dover Publications.
3. Onofri, F.R.A., et al., *Experimental validation of the vectorial complex ray model on the inter-caustics scattering of oblate droplets*. Optics Express, 2015. **23**(12): p. 15768-15773.
4. Nye, J.F., *Natural Focusing and Fine Structure of Light: Caustics and Wave Dislocations*. 1999, London: IOP Publishing Ltd.
5. Bi, L., et al., *Scattering and absorption of light by ice particles: Solution by a new physical-geometric optics hybrid method*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2011. **112**(9): p. 1492-1508.
6. Lock, J.A., *Ray scattering by an arbitrarily oriented spheroid. I. Diffraction and specular reflection*. Applied Optics, 1996. **35**(3): p. 500-514.
7. Sentis, M.P.L., et al., *Scattering of light by large bubbles: Coupling of geometrical and physical optics approximations*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2016. **170**: p. 8-18.
8. Ren, K.F., et al., *Vectorial complex ray model and application to two-dimensional scattering of plane wave by a spheroidal particle*. Opt. Lett., 2011. **36**(3): p. 370-372.
9. Goodman, J.W., *Introduction to Fourier Optic*. Mac. Graw-Hill, New York, 1960.
10. Nussenzevig, H.M., *Diffraction effects in semiclassical scattering*. 1992, Cambridge: Cambridge University Press.
11. Adam, J.A., *The mathematical physics of rainbows and glories*. Phys. Rep., 2002. **356**(4-5): p. 229-365.
12. Marston, P.L., *Critical angle scattering by a bubble: physical-optics approximation and observations*. Journal of the Optical Society of America, 1979. **69**(9): p. 1205-1211.
13. Onofri, F.R.A., et al., *Physical-optics approximation of near-critical-angle scattering by spheroidal bubbles*. Optics Letters, 2012. **37**(22): p. 4780-4782.
14. Bohren, C.F. and D.R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*. 1998, New york: Wiley & Sons.
15. Barber, S.C. and P.W. Hill, *Light Scattering by particles : computational methods*. 1990, London: World Scientific.
16. Gouesbet, G., G. Gréhan, and B. Maheu, *Scattering of a Gaussian beam by a Mie scatter center, using a Bromwich formulation*. J. Optics 1985. **16**(2): p. 83-93.
17. Ren, K.-F., G. Gréhan, and G. Gouesbet, *Laser Sheet Scattering by Spherical Particles*. Part. Part. Syst. Charact., 1993. **10**: p. 146-151.
18. Onofri, F., G. Gréhan, and G. Gouesbet, *Electromagnetic scattering from a multilayered sphere located in an arbitrary beam*. Applied optics, 1995. **34**(30): p. 7113-7124.
19. Borghese, F., P. Denti, and R. Saija, *Optical properties of spheres containing several spherical inclusions*. Applied optics, 1994. **33**(3): p. 484-493.
20. Asano, S. and G. Yamamoto, *Light Scattering by a Spheroidal Particle*. Applied optics, 1975. **14**(1): p. 29-49.
21. Cooke, D.D. and M. Kerker, *Light Scattering from Long Thin Glass Cylinders at Oblique Incidence*. Journal of the Optical Society of America, 1969. **59**(1): p. 43-48.
22. Hovenac, E.A. and J.A. Lock, *Assessing the contribution of surface waves and complex rays to far-field scattering by use of the Debye series*. J. Opt. Soc. Am. A, 1992. **9**(5): p. 781-795.
23. Waterman, P.C., *Matrix formulation of electromagnetic scattering*. Proc. IEEE, 1965. **53**(8): p. 805-812.
24. Mishchenko M.I. and Travis L.D., *Capabilities and limitations of a current FORTRAN implementation of the T-matrix method for randomly oriented, rotationally symmetric scatterers*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer., 1998. **60**: p. 309-324.
25. Farias, T.L., Ü.Ö. Köylü, and M.G. Carvalho, *Range of validity of the Rayleigh–Debye–Gans theory for optics of fractal aggregates*. Applied optics, 1996. **35**(33): p. 6560-6567.
26. Sorensen, C.M., J. Cai, and N. Lu, *Light-scattering Measurements of Monomer Size, Monomers per Aggregate, and Fractal Dimension for Soot Aggregates in Flames*. Applied Optics, 1992. **31**(30): p. 6547-6557
27. Yurkin, M.A. and A.G. Hoekstra, *The discrete-dipole-approximation code adda: capabilities and known limitations*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf., 2011. **112**: p. 2234–2247.
28. Draine, B.T. and P.J. Flatau, *Discrete-Dipole Approximation For Scattering Calculations*. Journal of the Optical Society of America A, 1994. **11**(4): p. 1491-1499.
29. Sentis, M., et al., *Organic photo sensors for multi-angle light scattering characterization of particle systems*. Optics Express, 2015. **23**(21): p. 27536-27541.
30. Calba, C., et al., *Ultrashort pulse propagation through a strongly scattering medium: simulation and experiments*. Journal of the Optical Society of America A, 2008. **25**(7): p. 1541-1550.
31. Phillies, G.D.J., *Suppression of multiple scattering effects in quasielastic light scattering by homodyne cross-correlation techniques*. The Journal of Chemical Physics, 1981. **74**(1): p. 260-262.
32. Xu, R., *Particle characterization: Light scattering methods*. 2001, Dordrecht: Kluwer Academic Publishers.
33. Alain, K. and B. Denis, *Granulométrie des particules en mouvement et des aérosols*. Techniques de l'ingénieur Mesures physiques, 1995. **base documentaire : TIP672WEB**(ref. article : r2360).
34. Hansen, P.C., *Discrete Inverse Problems: Insight and Algorithms*. 2010: Society for Industrial and Applied Mathematics (SIAM, 3600 Market Street, Floor 6, Philadelphia, PA 19104).
35. Hansen, P.C., *Regularization tools, a Matlab package for analysis and solution and of discrete ill-posed problems*. Numerical Algorithms, 1994. **6**(1): p. 1-35.
36. Ouattara, M., et al., *Droplet sizing and mixture fraction measurement in liquid flows with rainbow-angle diffractometry*. Applied Optics, 2017. **56**(29): p. 8109-8120.
37. Onofri, F.R.A., et al., *Sizing highly-ordered buckyball-shaped aggregates of colloidal nanoparticles by light extinction spectroscopy*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2013. **126**(0): p. 160-168.
38. Onofri, F., et al., *High-resolution laser diffractometry for the on-line sizing of small transparent fibres*. Optics

- Communications, 2004. **234**(1–6): p. 183-191.
39. Kaye P.H., *Spatial Light Scattering as a Means of Characterising and Classifying Non-spherical Particles*. Meas. Sci. and Technol., 1998. **9**: p. 141-149.
  40. Boualem, A., et al. *An improved Bayesian inversion method for the estimation of multimodal particle size distribution using multi-angle dynamic light scattering measurements*. in *IEEE International Workshop on Statistical Signal Processing*. 2014. Gold Coast, Australia.
  41. Babin, M., et al., *Determination of the volume scattering function of aqueous particle suspensions with a laboratory multi-angle light scattering instrument*. Applied optics, 2012. **51**(17): p. 3853-3873.
  42. van Beeck, J.P.A.J. and M.L. Riethmuller, *Rainbow phenomena applied to the measurement of droplet size and velocity and to the detection of nonsphericity*. Applied optics, 1996. **35**(13): p. 2259-2266.
  43. Wu, Y., et al., *Phase rainbow refractometry for accurate droplet variation characterization*. Optics Letters, 2016. **41**(20): p. 4672-4675.
  44. van Beeck, J.P.A.J., et al., *Global rainbow thermometry for droplet-temperature measurement*. Optics Letters, 1999. **24**(23): p. 1696-1698.
  45. Duan, Q., et al., *Generalized rainbow patterns of oblate drops simulated by a ray model in three dimensions*. Optics Letters, 2021. **46**(18): p. 4585-4588.
  46. Saengkaew, S., et al., *Rainbow refractometry: On the validity domain of Airy's and Nussenzweig's theories*. Opt. Commun., 2006. **259**(1): p. 7-13.
  47. Onofri, F.R.A., et al., *Near-critical-angle scattering for the characterization of clouds of bubbles: particular effects*. Appl. Opt., 2011. **50**(30): p. 5759-5769.
  48. Verdier, A., et al., *Experimental study of local flame structures and fuel droplet properties of a spray jet flame*. Proceedings of the Combustion Institute, 2017. **36**(2): p. 2595-2602.
  49. Ouboukhlik, M., et al., *Local measurement of mass transfer in a reactive spray for CO<sub>2</sub> capture*. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 2015. **93**(2): p. 419-426.
  50. Vetrano, M.-R., J.P.A.J. van Beeck, and M.L. Riethmuller, *Assessment of refractive index gradients by standard rainbow thermometry*. Appl. Opt., 2005. **44**(34): p. 7275-7281.
  51. Yu, H., F. Xu, and C. Tropea, *Simulation of optical caustics associated with the secondary rainbow of oblate droplets*. Optics Letters, 2013. **38**(21): p. 4469-4472.
  52. Onofri, F.A., et al., *Optical characterization of bubbly flows with a near-critical-angle scattering technique*. Exp. in Fluids, 2009. **47**(4-5): p. 721-732.
  53. Onofri, F., M. Krysiak, and J. Mroczka, *Critical angle refractometry and sizing of bubble clouds*. Optics Letters, 2007. **32**(14): p. 2070-2072.
  54. Alain, B. and R. Henri, *Visualisations et mesures optiques en aérodynamique*. Techniques de l'ingénieur Caractérisation des fluides, 1998. **base documentaire : TIB540DUO**(ref. article : r2160).
  55. Tropea, C., et al., *Dual-Mode Phase-Doppler Anemometer*. Particle & Particle Systems Characterization, 1996. **13**(2): p. 165-170.
  56. Albrecht H.E., et al., *Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques*. 2003, Berlin: Springer.
  57. Saffman, M., *Automatic calibration of LDA measurement volume size*. Applied Optics, 1987. **26**(13): p. 2592-2597.
  58. Onofri, F.R.A. and S. Barbosa, *Granulométrie Optique in Métrologie laser pour la mécanique des fluides: granulométrie et techniques spectroscopiques*, A. Boutier, Editor. 2012. p. 98.
  59. Onofri, F., et al., *On the Optical Diagnosis and Sizing of Spherical Coated and Multilayered Particles with phase-Doppler anemometry*. Particle & Particle Systems Characterization, 1996. **13**(2): p. 104-111.
  60. Adrian R. J. and Goldstein R. J., *Analysis of a laser Doppler anemometer*. J. of Phys. E, 1971. **4**: p. 505-511
  61. Bergenblock, T., et al., *Experimental estimation of particle flow fluctuations in dense unsteady two-phase flow using phase Doppler anemometry*. International Journal of Multiphase Flow, 2007. **33**(8): p. 849-872.
  62. Gréhan, G., et al., *Particle Trajectory Effects in Phase Doppler Systems: Computations and experiments*. Particle & Particle Systems Characterization, 1993. **10**(6): p. 332-338.
  63. Roisman I.V. and Tropea C., *Flux measurements in sprays using phase Doppler techniques*. Atomization Spray, 2001. **11**: p. 667-669.
  64. Bergenblock, T., et al., *Averaging of particle data from phase Doppler anemometry in unsteady two-phase flow: Validation by numerical simulation*. International Journal of Multiphase Flow, 2006. **32**(2): p. 248-268.
  65. Naqwi, A., F. Durst, and X. Liu, *Two optical methods for simultaneous measurement of particle size, velocity, and refractive index*. Appl. Opt., 1991. **30**: p. 4949-4959.
  66. Onofri, F., et al., *Phase-Doppler Anemometry with the Dual Burst Technique for measurement of refractive index and absorption coefficient simultaneously with size and velocity*. Particle & Particle Systems Characterization, 1996. **13**(2): p. 112-124.
  67. Naqwi A., Durst F., and Liu X., *Extended Phase-Doppler system for characterization of Multiphase-flows*. Part. Part. Syst. Charact., 1991. **8**: p. 16-22.
  68. Onofri, F., et al., *Size, velocity, and concentration in suspension measurements of spherical droplets and cylindrical jets*. Applied optics, 1999. **38**(21): p. 4681-4690.
  69. Manasse U., Wriedt T., and Baukhage K., *Reconstruction of real size distributions hidden in Phase Doppler Anemometry results Obtained from droplets of Inhomogeneous liquids*. Part. Part. Syst. Charat., 1994. **11**: p. 84-90.
  70. Naqwi A., *Sizing of Irregular Particles Using a Phase Doppler System*. Part. Part. Syst. Charact., 1996. **8**: p. 343-349.
  71. Mignon H., et al., *Mesurement of cylindrical particles with phase Doppler anemometry*. Appl. Opt., 1996. **35**(25): p. 5180-5190.
  72. Onofri, F., et al., *Interferometric Sizing of Single-Axis Birefringent Glass Fibers*. Particle & Particle Systems Characterization, 2003. **20**(3): p. 171-182.
  73. Glover, A.R., S.M. Skippon, and R.D. Boyle, *Interferometric laser imaging for droplet sizing: a method for droplet-size measurement in sparse spray systems*. Applied Optics, 1995. **34**(36): p. 8409-8421.
  74. Kawaguchi T., Akasaka Y., and Maeda M., *Size measurements of droplets and bubbles by advanced*



- interferometric laser imaging technique*. Meas. Sci. Technol., 2002. **13**(3): p. 308-316.
75. Jean-Paul, S., F. Thierry, and F. Corinne, *Mesures de caractéristiques d'écoulement par imagerie numérique*. Techniques de l'ingénieur Mesures physiques, 2007. **base documentaire : TIP672WEB**(ref. article : r2162).
  76. Dehaeck, S. and J.P.A.J. van Beeck, *Designing a maximum precision interferometric particle imaging set-up*. Experiments in Fluids, 2007. **42**(5): p. 767-781.
  77. Kawaguchi, T., Y. Akasaka, and M. Maeda, *Size measurements of droplets and bubbles by advanced interferometric laser imaging technique*. Measurement Science and Technology, 2002. **13**(3): p. 308-316.
  78. Parant, G., et al., *Adaptation of a PTV method for droplets evaporating in vicinity of a flame*. Experiments in Fluids, 2022. **63**(6): p. 100.
  79. Damaschke, N., H. Nobach, and C. Tropea. *Global Phase Doppler Technique for Size and Velocity Measurements*. in *4th International Symposium on Particle Image Velocimetry*, DLR - Institute of Aerodynamics and Flow Technology (editor). 2001.
  80. Dehaeck, S., J.P.A.J. van Beeck, and M.L. Riethmuller, *Extended glare point velocimetry and sizing for bubbly flows*. Experiments in Fluids, 2005. **39**(2): p. 407-419.
  81. Quérel, A., et al., *Real-time global interferometric laser imaging for the droplet sizing (ILIDS) algorithm for airborne research*. Measurement Science and Technology, 2009. **21**(1): p. 015306.
  82. Brunel, M., et al., *Interferometric out-of-focus imaging of freezing droplets*. Optics Communications, 2019. **433**: p. 173-182.
  83. Shen, H., et al., *Interferometric laser imaging for droplet sizing revisited: elaboration of transfer matrix models for the description of complete systems*. App. Opt., 2012. **51**(22): p. 5357-5368.
  84. Fabrice, L., M. Loïc, and F. Corinne, *Holographie numérique en ligne appliquée aux mesures en mécanique des fluides*. Techniques de l'ingénieur Mesures physiques, 2022. **base documentaire : TIP672WEB**(ref. article : r2163).
  85. Pan, G. and H. Meng, *Digital holography of particle fields: reconstruction by use of complex amplitude*. Applied Optics, 2003. **42**(5): p. 827-833.
  86. Hinsch, K.D. and S.F. Herrmann, *Holographic Particle Image Velocimetry*. Measurement Science and Technology, 2004. **15**(4).
  87. Choi, Y.-S. and S.-J. Lee, *High-accuracy three-dimensional position measurement of tens of micrometers size transparent microspheres using digital in-line holographic microscopy*. Optics Letters, 2011. **36**(21): p. 4167-4169.
  88. Dubois, F., et al., *Focus plane detection criteria in digital holography microscopy by amplitude analysis*. Optics Express, 2006. **14**(13): p. 5895-5908.
  89. Sentis, M.P.L., et al., *Digital in-line holography for the characterization of flowing particles in astigmatic optical systems*. Optics and Lasers in Engineering, 2017. **88**: p. 184-196.
  90. Picart, P. and J. Leval, *General theoretical formulation of image formation in digital Fresnel holography*. Journal of the Optical Society of America A, 2008. **25**(7): p. 1744-1761.
  91. Lebrun D., Belaid S., and Özkul C., *Hologram Reconstruction by use of Optical Wavelet Transform*. Appl. Opt., 1999. **38**(17): p. 3730-3734.
  92. Zhang, W., et al., *Twin-Image-Free Holography: A Compressive Sensing Approach*. Physical Review Letters, 2018. **121**(9): p. 093902.
  93. Lee, S.-H., et al., *Characterizing and tracking single colloidal particles with video holographic microscopy*. Optics Express, 2007. **15**(26): p. 18275-18282.
  94. Berdeu, A., et al., *Reconstruction of in-line holograms: combining model-based and regularized inversion*. Optics Express, 2019. **27**(10): p. 14951-14968.
  95. Jolivet, F., et al., *Regularized reconstruction of absorbing and phase objects from a single in-line hologram, application to fluid mechanics and micro-biology*. Optics Express, 2018. **26**(7): p. 8923-8940.
  96. Mallery, K. and J. Hong, *Regularized inverse holographic volume reconstruction for 3D particle tracking*. Optics Express, 2019. **27**(13): p. 18069-18084.
  97. Lатычевская, Т., *Iterative phase retrieval for digital holography: tutorial*. Journal of the Optical Society of America A, 2019. **36**(12): p. D31-D40.
  98. Lатычевская, Т. and H.-W. Fink, *Solution to the Twin Image Problem in Holography*. Physical Review Letters, 2007. **98**(23): p. 233901.
  99. Denis, L., et al., *Numerical suppression of the twin image in in-line holography of a volume of micro-objects*. Measurement Science and Technology, 2008. **19**(7): p. 074004.
  100. Méès, L., et al., *Evaporating droplet hologram simulation for digital in-line holography setup with divergent beam*. Journal of the Optical Society of America A, 2013. **30**(10): p. 2021-2028.
  101. Brunnhofer, G., et al., *Design and Validation of a Holographic Particle Counter*. Sensors (Basel), 2019. **19**(22).
  102. Tian, L., et al., *Quantitative measurement of size and three-dimensional position of fast-moving bubbles in air-water mixture flows using digital holography*. Applied Optics, 2010. **49**(9): p. 1549-1554.
  103. Tribillon J-L. *Développements actuels des matériaux d'enregistrement pour l'holographie* in *Opto92*. 1992. Paris (France).
  104. Yevick, A., M. Hannel, and D.G. Grier, *Machine-learning approach to holographic particle characterization*. Optics Express, 2014. **22**(22): p. 26884-26890.
  105. Sentis, M.P.L., F.R.A. Onofri, and F. Lamadie, *Bubbles, drops, and solid particles recognition from real or virtual photonic jets reconstructed by digital in-line holography*. Optics Letters, 2018. **43**(12): p. 2945-2948.
  106. Tian, L., H. Gao, and G. Barbastathis. *Digital holographic imaging of multi-phase flows*. in *Imaging and Applied Optics*. 2011. Toronto: Optical Society of America.
  107. Schaub, S.A., D.R. Alexander, and J.P. Barton, *Theoretical Model For The Image Formed By A Spherical Particle In A Coherent Imaging System: Comparison To Experiment*. Optical Engineering, 1989. **28**: p. 565.
  108. Fdida, N. and J.-B. Blaisot, *Drop size distribution measured by imaging: determination of the measurement volume by the calibration of the point spread function*. Measurement Science and Technology, 2010. **21**(2): p. 025501.
  109. Hardalupas Y., et al., *Shadow Doppler technique for sizing particles of arbitrary shape*. Appl. Opt., 1994. **33**(36):

- p. 8417-8426.
110. Domann R. and Hardalupas Y., *Quantitative measurement of planar droplet Sauter mean diameter in sprays using planar droplet sizing*. Part. Part. Syst. Charact., 2003. **20**: p. 209-218.
  111. Bazile R. and Stepowski D., *Measurements of vaporized and liquid fuel concentrations in a burning spray jet of acetone using planar laser-induced fluorescence*. Exp. Fluids 1995. **10**: p. 1-9.
  112. Koh H., et al., *Analysis of signal attenuation for quantification of a planar imaging technique*. Meas. Sci. Technol., 2003. **14**: p. 1829–1838.
  113. Labergue, A., et al., *Study of the droplet size effect coupled with the laser light scattering in sprays for two-color LIF thermometry measurements*. Exp. Fluids, 2012. **52**(5): p. 1121-1132
  114. Mishra, Y.N., et al., *Application of SLIP-Based Techniques for Droplet Size, Concentration, and Liquid Volume Fraction Mapping in Sprays*. Applied Sciences, 2020. **10**(4): p. 1369.
  115. Barbosa, S., et al., *An introduction to light extinction spectrometry as a diagnostic for dust particle characterisation in dusty plasmas*. Journal of Plasma Physics, 2016. **82**(4).
  116. Deepak, A. and M.A. Box, *Forwardscattering corrections for optical extinction measurements in aerosol media. 1: Monodispersions*. Applied optics, 1978. **17**(18): p. 2900-2908.
  117. Deepak, A. and M.A. Box, *Forwardscattering corrections for optical extinction measurements in aerosol media. 2: Polydispersions*. Applied optics, 1978. **17**(19): p. 3169-3176.
  118. O'Dell, J.W., *Method 180.1: Determination of Turbidity by Nephelometry*. 1993, Environmental monitoring systems laboratory office of research and development, U.S. environmental protection agency, Cincinnati, Ohio 45268.
  119. Onofri, F.R.A., I. Rodriguez-Ruiz, and F. Lamadie, *Microfluidic lab-on-a-chip characterization of nano- to microparticles suspensions by light extinction spectrometry*. Optics Express, 2022. **30**(2): p. 2981-2990.
  120. Onofri, F.R.A., M. Wozniak, and S. Barbosa, *On the Optical Characterisation of Nanoparticle and their Aggregates in Plasma Systems*. Contributions to Plasma Physics, 2011. **51**(2-3): p. 228-236.
  121. Gienger, J., M. Bär, and J. Neukammer, *Extinction spectra of suspensions of microspheres: determination of the spectral refractive index and particle size distribution with nanometer accuracy*. Applied Optics, 2018. **57**(2): p. 344-355.
  122. Massoli P., Berreta F., and D'Allesio A., *Single droplet size, velocity, and optical characteristics by the polarization properties of the scattered light*. Appl. Opt., 1989. **6**(28): p. 1200-1208.
  123. Mishchenko M.I., Hovenier J.W., and Travis L.D., *Light Scattering by Non Spherical Particles: Theory, Measurements and Applications*. 1999, San Diego, USA: Academic Press.
  124. Michelsen, H., et al., *Modeling Laser-Induced Incandescence of Soot: a Summary and Comparison of LII Models*. Applied Physics B, 2007. **87**(3): p. 503-521.
  125. Liu F., et al., *Heat conduction from a spherical nano-particle: status of modeling heat conduction in laser-induced incandescence*. Applied Physics B, 2006. **83**(3): p. 355-382.
  126. Desgroux, P., et al., *Induced incandescence and cavity ring-down spectroscopy: Effect of pressure on soot formation*. Combust. Flame, 2008. **155**: p. 289-301.
  127. Berne B. J. and Pecora R., *Dynamic Light Scattering: With Applications to Chemistry, Biology, and Physics*. Dover ed. 2000, Toronto, Canada: Dover Inc.
  128. Naim, M., et al., *Multiangle dynamic light scattering for the improvement of multimodal particle size distribution measurements*. Soft Matter, 2015. **11**(1): p. 28-32.
  129. Meyer, W.V., et al., *Multiple-Scattering Suppression by Cross Correlation*. Applied Optics, 1997. **36**(30): p. 7551-7558.
  130. Wolf P-E. and Maret G., *Multiple light scattering from disordered media. The effect of Brownian motion of scatterers*. Zeitschrift für Physik B (Cond. Mat.), 1987. **65**: p. 409-413.