

Développement de la Technique Raman /MDR pour la Mesure de la Taille et de la Composition Chimique de Gouttes de Carburant Multi-Composant

Usa Makmool, Sawitree Saengkaew, Frédéric Grisch, Gérard Gréhan

UMR CNRS6614/CORIA/INSA-Rouen Avenue de l'Université, Saint Etienne du Rouvray, 76801 France

frederic.grisch@coria.fr

1 Introduction

De nombreuses avancées ont été réalisées au cours de ces deux dernières décennies sur les performances des systèmes d'injection de carburant liquide grâce notamment aux diagnostics optiques permettant d'obtenir une meilleure compréhension sur la physique des sprays. Citons entre-autres l'Anémométrie Doppler laser, la vélocimétrie par image de particules, la fluorescence induite par laser, la technique d'arc en ciel... [1]. Ces techniques donnent accès à des grandeurs scalaires comme la taille, la vitesse et la température des gouttes. Par contre, ces diagnostics ne permettent pas de caractériser l'évolution temporelle de la composition chimique des gouttes pendant leur évaporation. Ces grandeurs physiques revêtent en effet d'une grande importance pour l'étude et le contrôle de systèmes d'injection de nouvelle génération mais également pour la validation des modèles d'évaporation des carburants multi-composants.

La présente étude vise à développer un diagnostic optique innovant permettant de mesurer simultanément la composition chimique et le diamètre des gouttes. Deux diagnostics optiques sont envisageables pour mesurer la concentration : la diffusion Raman spontanée et la fluorescence induite par laser (LIF). Comparée à la diffusion Raman spontanée, la LIF permet de produire des signaux de mesure avec des SNR (signal-to-noise ratio) élevés, mais cette technique n'est applicable que sur des carburants naturellement fluorescents et/ou optiquement transparents dans lesquels sont introduites une ou plusieurs molécules fluorescentes [2, 3]. A l'opposé, la majorité des molécules sont actives en spectroscopie Raman. Les signaux de diffusion Raman spontanée étant dépendants des fréquences de vibration des molécules excitées, cette technique permet de mesurer la composition chimique d'un carburant liquide malgré une faible efficacité optique du processus Raman imposant des durées longues d'enregistrement des mesures. Cette limitation peut être levée par une illumination de la goutte par un faisceau laser intense servant à produire des processus optiques non-linéaires à l'intérieur de la goutte. Des signaux Raman stimulée se produisent alors avec un taux de conversion de la radiation incidente de 10% et plus. De plus, la goutte étant assimilée à une particule sphérique transparente, celle-ci va se comporter comme une microcavité, dans laquelle des modes résonants d'intensité vont apparaître au voisinage de sa surface. Ces modes vont induire une exaltation des signaux Raman avec un gain de 10^6 - 10^7 à des longueurs d'ondes discrètes correspondantes aux modes résonants [4-6]. Ces modes étant fonction des paramètres physiques de la goutte (morphologie, taille, indice de réfraction), une analyse de leurs positions spectrales conduira à une information sur le diamètre des gouttes alors que l'intensité du signal de diffusion Raman stimulée permettra de mesurer la concentration des constituants chimiques du carburant. L'objectif de cette étude consiste à évaluer les performances de la diffusion Raman linéaire (spontanée) et non-linéaire (stimulée) lorsqu'elle est appliquée au dosage de gouttes liquides multi-composants. Les mesures sont réalisées pour plusieurs composés purs et sur des mélanges ternaires. L'analyse des mesures en termes de concentration et de taille de gouttes est finalement discutée.

2 Rappels théoriques

2.1 Diffusion Raman spontanée

Lorsqu'un échantillon est illuminé par un faisceau lumineux intense, la lumière diffusée contient des fréquences différentes de celle de la source d'excitation [7]. Ces composantes sont appelées Stokes ou anti-Stokes selon qu'elles sont décalées vers les fréquences plus faibles ou plus élevées par rapport à la lumière incidente. Le processus correspondant est schématisé sur la Fig.1. Le processus de diffusion Raman-Stokes consiste dans l'absorption d'un photon correspondant à la transition de l'état fondamental 1 vers un niveau virtuel, puis à l'émission d'un photon correspondant à la transition du niveau virtuel vers un niveau 2. La diffusion Raman-anti-Stokes consiste en la transition d'un niveau 2 vers l'état fondamental 1 *via* un niveau virtuel associé à un niveau 3. Comme la population du niveau 2 est plus faible que celle du niveau 1 d'un facteur de Boltzmann, les transitions anti-Stokes sont beaucoup plus faibles que les transitions Stokes. Usuellement, l'écart d'énergie entre les états 1 et 2 correspond à un quantum de vibration de la molécule analysée, d'où la notation ω_v sur la Fig. 1. Ainsi, la différence d'énergie entre les radiations absorbée et diffusée nous renseigne sur les énergies de vibration des molécules présentes dans l'échantillon qui sont caractéristiques des groupements chimiques et de leur environnement.

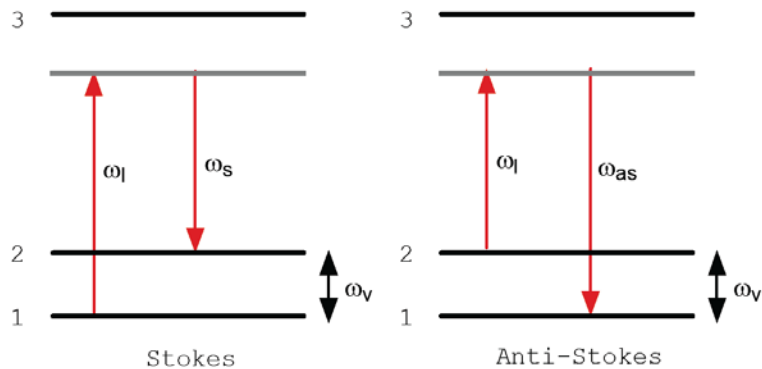


Figure 1 – Diagramme des niveaux d'énergie pour les effets Raman Stokes et anti-Stokes

Dans la limite de la diffusion Raman linéaire, le nombre de photons Raman diffusés par seconde, N_R (s^{-1}), dans un angle solide $\Delta\Omega$ (sr) dépend de l'éclairement du laser incident, I_0 ($W.cm^{-2}$), la fréquence de la lumière incidente, ν (s^{-1}), le nombre de molécules actives dans le volume échantillonné, N (molécules. cm^{-3}), le diamètre du faisceau laser, s (cm^2), la section efficace de diffusion Raman diffusion ($\partial\sigma/\partial\Omega$) ($cm^2 sr^{-1}$), et la longueur d'interaction L (cm).

$$N_R = \left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega} \right) \Delta\Omega \frac{I_0(\lambda)}{h\nu} NSL \quad (1)$$

Comme le processus Raman n'est pas résonant avec deux états de la molécule active, une source laser spectralement fine de longueur d'onde arbitraire suffira à produire les signaux Raman. L'une des difficultés majeures de cette technique de mesure lors de son application réside alors dans le filtrage sélectif des signaux Raman vis-à-vis des signaux de diffusion élastique de la lumière (Rayleigh et Mie) qui sont plusieurs ordres de grandeurs plus intenses.

2.2 Diffusion Raman stimulée

Dans le cas de gouttes micrométriques, les gouttes à symétrie sphérique peuvent agir comme des cavités optiques pour le rayonnement lumineux avec laquelle elles sont éclairées. Par effet tunnel optique, le voisinage extérieur de la goutte éclairé par un rayonnement lumineux de longueur d'onde λ provoque une onde évanescente (avec une profondeur de pénétration de l'ordre de λ) redevenant propageante loin de la goutte, à une distance dépendante du confinement radial du mode et pouvant être aussi grande que N fois le rayon de la sphère. Une onde stationnaire circulant à l'intérieur de la goutte avec une longueur de trajet multiple d'un nombre entier de λ se met alors en place. Ce processus physique est appelé résonance morphologiquement dépendante

(MDR) ou mode de galerie (Whispering Gallery Mode), ce dernier terme provenant de l'observation par Lord Rayleigh de réflexions très efficaces des ondes sonores le long des parois de la grande galerie ceinturant la base du dôme de la cathédrale Saint-Paul, à Londres [8]. Ces modes représentent les états propres du moment angulaire de la lumière par rapport au centre de la goutte, que l'on repère suivant les règles à deux nombres quantiques : l et $m=-l, \dots, 0, \dots, l$ décrivant la projection du moment angulaire sur un axe choisi. Le nombre l peut prendre la valeur maximale Nx , x étant le paramètre de taille de la goutte. D'autres modes sont également possibles, et on repère leur degré de pénétration à l'intérieur de la sphère, par un nombre radial n . Pour exemple, la Figure 2 illustre la distribution interne des modes de galerie au voisinage de l'interface de la goutte pour une goutte de $100 \mu\text{m}$.

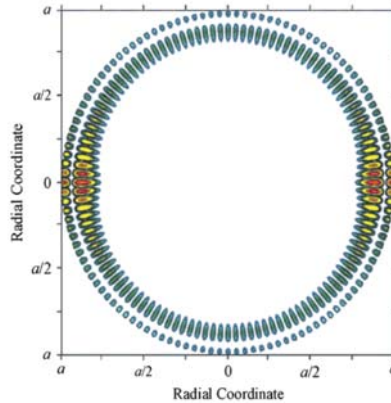


Figure 2 – Distribution interne du rayonnement lumineux dans la goutte en présence de résonances de Mie

Les modes sont référencés avec un facteur de qualité Q , défini comme le rapport de l'énergie W stockée dans le mode avec les pertes d'énergie occasionnées pendant une période :

$$Q = \frac{W}{\frac{\lambda}{2\pi c} \frac{dW}{dt}} \quad (2)$$

Pour des paramètres de taille élevés, la probabilité qu'un photon sorte par effet tunnel est très faible, ce qui impose des valeurs élevées des surintensités ($\sim 10^6$ à 10^7) des signaux Raman [9]. Ce facteur de qualité est fonction de la durée de vie du mode par la relation suivante

$$\tau = Q \frac{\lambda}{2\pi c} \quad (3)$$

Les durées de vie des résonances sont typiquement comprises entre 10 ns et 1 μs . Les valeurs élevées de Q observées dans les microsphères induisent des flux importants dans les modes, ce qui avantage la production des processus non-linéaires dans la goutte. Citons entre-autres les processus de diffusion de Brillouin stimulée [10], de génération d'harmoniques [11], de sommes de fréquences [12], d'émission laser [13] et également de diffusion Raman stimulée Stokes [14] et anti-Stokes [15]. Dans ce dernier cas, les photons émis par diffusion Raman spontanée à une fréquence donnée servent à stimuler l'émission d'autres photons à même fréquence. Ce phénomène, rapporté par [16] provoque un signal Raman avec une intensité $I_{SRS}(\lambda)$ égale à

$$I_{SRS}(\lambda) = I_0(\lambda) \exp[(IG - L)z] \quad (4)$$

Dans ce cas, $I_0(\lambda)$ est l'intensité du signal de diffusion Raman spontanée à λ , I est l'intensité laser, G est le facteur de gain induit par la microcavité, L décrit les pertes et z est la distance d'interaction avec le milieu. Le facteur de gain est fonction de la concentration de la molécule Raman diffusante et de la section efficace Raman. Il est également observé que la diffusion Raman stimulée s'établit lorsque le gain par unité de longueur d'interaction est plus élevé que les pertes d'énergie dans la cavité, c'est à dire lorsque $IG > L$.

Pour exemple, la Fig. 3 illustre les mécanismes de production des MDR dans une goutte d'eau. Dans le cas d'un éclairage de la goutte par un laser continu (CW) de faible énergie empêchant

d'atteindre la condition de seuil en énergie, le spectre collecté est celui d'un spectre classique de diffusion Raman spontanée (Figure 3a). Si maintenant le gain est suffisamment élevé dans la cavité optique (augmentation de l'énergie du faisceau laser), des pics de résonance régulièrement espacés le long du profil du spectre de diffusion Raman spontanée vont apparaître. Un éclaircissement de la goutte avec un laser impulsif de forte énergie provoquera une amplification de ces pics d'intensité (Figure 3b) ce qui permettra d'obtenir des conditions propices à un enregistrement instantané du spectre.

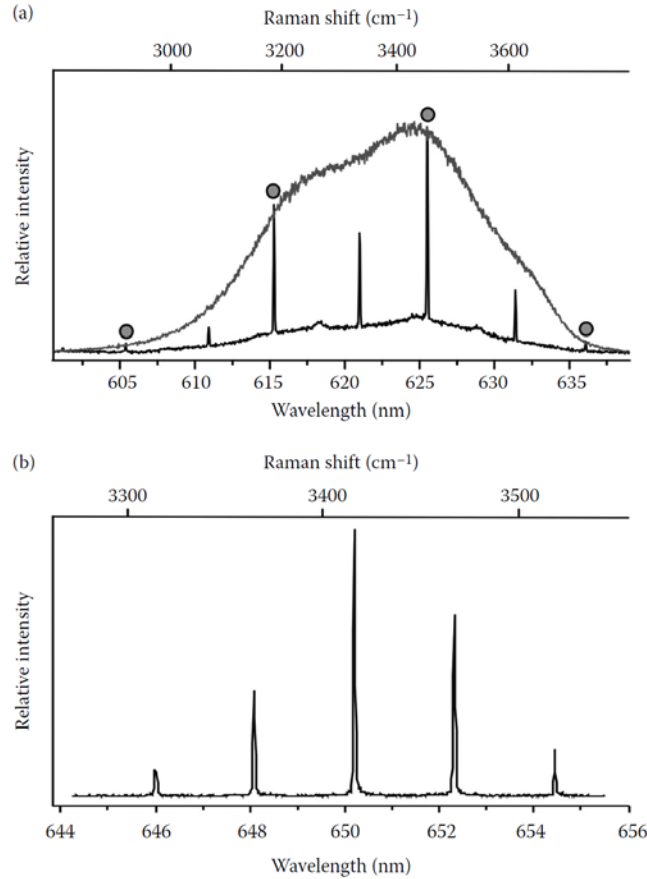


Figure 3 – (a) Distribution spectrale du signal de diffusion Raman dans une goutte d'eau, de rayon $4,68 \mu\text{m}$ excitée par un rayonnement lumineux à $514,8 \text{ nm}$. Les modes de résonance (représentés par les points) suivent le contour de la bande vibrationnelle détectée par diffusion Raman spontanée dans un échantillon liquide. (b) Spectre Raman stimulé enregistré par un faisceau laser impulsif dans une goutte d'eau de $24,5 \mu\text{m}$ de rayon.

La taille de goutte est déterminée à partir de la mesure de l'espacement en fréquence des pics de résonance d'un même ordre. Une estimation de cet écart est obtenue par la formule asymptotique suivante [8]

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2 \tan^{-1}(m^2 - 1)^{1/2}}{2\pi r (m^2 - 1)^{1/2}} \quad (5)$$

où r est le rayon de la goutte, λ la longueur d'onde centrale de la localisation des pics et m l'indice de réfraction de la goutte. Une détermination précise du diamètre de goutte est ensuite obtenue par comparaison de la localisation des pics de résonances contenus dans le spectre Raman avec les positions des MDR calculés par théorie de Lorenz-Mie. La concentration de l'espèce chimique constituant la goutte sera, quant à elle, déduite de l'intensité du signal SRS.

3 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour évaluer les performances de la diffusion Raman consiste en un générateur de gouttes et d'un dispositif optique Raman (Figure 4).

Le générateur de gouttes est un injecteur piézo-électrique, alimenté en liquide de la marque *Microdrop* (MD-E-201-H). La tête d'injection est constituée d'un capillaire en verre, de diamètre interne de 1mm environ, entouré par un cristal piézo-électrique. Le dispositif optique Raman consiste à éclairer les gouttes avec une source laser et à collecter la lumière diffusée par celles-ci avec un spectrographe équipée d'une caméra ICCD. Deux sources lasers sont utilisées: une source laser Nd:YAG continue (Dream Lasers SDL-532-100T) émettant un rayonnement de 100 mW à 532 nm et une source laser impulsionnelle (Big Sky Laser CFR 200), produisant des impulsions lasers intenses de durée égale à 6 ns. Le signal de diffusion Raman produit par les gouttes est collecté avec deux lentilles sphériques plan-convexes. La lentille F_1 collecte le signal Raman issu du volume de mesure et le collimate alors que la lentille F_2 focalise ce signal sur la fente d'entrée d'un spectrographe de longueur focale de 750 mm, ouvert à F/9,7 (Acton SP2750i) et équipé de trois réseaux interchangeables (1800, 1200, and 600 g/mm). Le signal dispersé par le réseau est détecté par une caméra CCD intensifiée 16 bits équipée d'une matrice 1024×1024 pixels. La caméra est utilisée en mode spectroscopie. La matrice CCD collecte selon l'une des directions de la matrice, le spectre Raman des composés chimiques de la goutte et selon l'autre direction, la répartition spatiale de ces signaux sur la longueur imagée dans le milieu. Afin d'améliorer la réjection des signaux parasites, un filtre holographique Super Notch Plus est utilisé pour atténuer les signaux de mesure centrés à la longueur d'onde du laser (Rayleigh, Mie) sur une bande passante de $\pm 100 \text{ cm}^{-1}$ avec un taux d'atténuation de l'ordre de 10^5 .

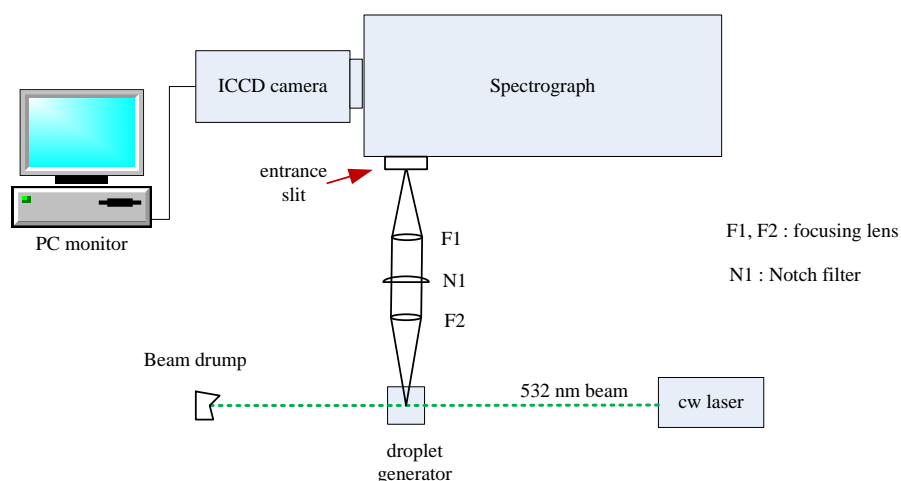


Figure 4 – Dispositif expérimental de diffusion Raman

4 Résultats

Le dosage des composants liquides ainsi que la mesure du diamètre des gouttes par diffusion Raman ont été étudiés avec deux configurations expérimentales. La première série d'expériences a permis d'étudier les potentialités de la mesure de concentration des produits entrant dans la composition des carburants. Les mesures ont été réalisées en cuve optique et en appliquant le diagnostic de diffusion Raman spontanée. La seconde série d'expériences a permis de reproduire des MDR dans le cas où l'éclairage lumineux est appliqué à des gouttes de carburants liquides.

4.1 Mesures en cuve

Les spectres Raman de plusieurs composés organiques entrant dans la composition des carburants (gasoil, essence, kérosène, ...) ont été analysés par diffusion Raman spontanée. Les mesures sont réalisées en cuve optique avec utilisation du laser continu (CW). En raison de la faible efficacité du processus de diffusion Raman spontanée, les spectres sont enregistrés en intégrant les signaux sur une durée de 1 s pour obtenir un SNR élevé. Pour exemple, les Figs.5a-c présentent les spectres Raman du toluène, 1,2,4 triméthylbenzène et n-undécane. On observe sur chaque spectre plusieurs bandes spectrales situées aux fréquences de vibration des molécules testées. Les bandes les plus intenses correspondent aux fréquences de vibration des modes d'étirement des liaisons C-H. Malheureusement, celles-ci étant positionnées dans le même domaine de longueur d'onde, il sera impossible de les analyser séparément lorsque ces molécules

seront mélangées. En revanche, les bandes spectrales présentant un décalage Raman compris entre 500 et 1500 cm^{-1} apparaissent à des longueurs d'ondes distinctes ce qui en théorie facilite leur analyse en terme de mesure de concentration.

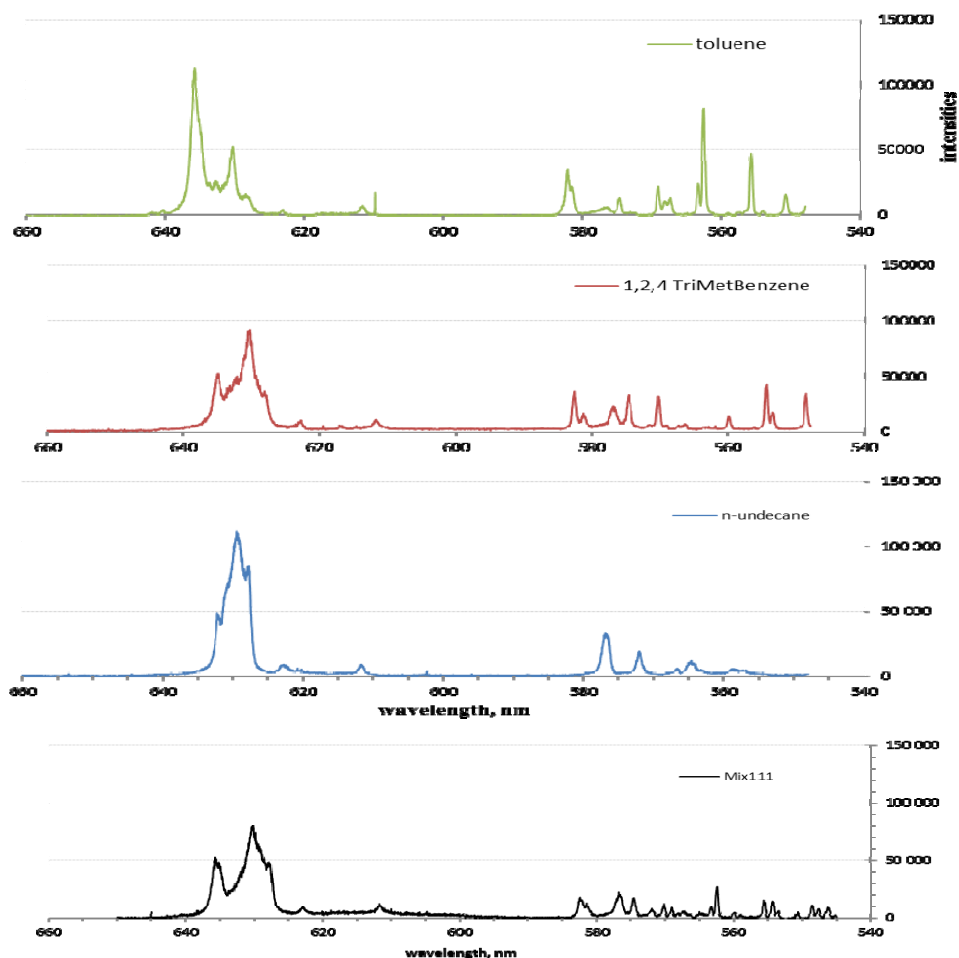


Figure 5 – Spectres Raman de différentes molécules organiques liquides : a) toluène, b) 1,2,4 triméthylbenzène, c) n-undécane, d) mélange des trois composés

Pour illustrer ce dernier propos, le spectre Raman du mélange des trois composés organiques a été enregistré pour plusieurs compositions chimiques. La Figure 5d présente le spectre lorsque les concentrations des trois composants dans le mélange sont identiques. Une analyse quantitative des intensités des bandes de vibration de chaque molécule (celles-ci étant étalonnées avec les signaux obtenus dans le cas des produits purs) permet alors de déduire les concentrations respectives de chaque produit en utilisant l'Eq.1 et en étalonnant les signaux Raman de chaque molécule par leurs spectres Raman respectifs. Le tableau 1 résume les mesures de concentration obtenues pour deux compositions chimiques. Quelque soit le mélange analysé, la technique de mesure permet de mesurer les concentrations des différents composants avec une précision inférieure à 2 %.

	Mélange 1		Mélange 2	
	Théorie	Expérience	Théorie	Expérience
Toluène	0,167	0,171	0,333	0,333
1,2,4 Tryméthylbenzène	0,167	0,166	0,333	0,337
n-undécane	0,666	0,662	0,333	0,329

Tableau 1 – Mesures de concentration par diffusion Raman spontanée

4.2 Mesures sur les gouttes

Comme précisé dans la section 2.2, le spectre Raman stimulé dans une goutte de carburant liquide de taille correspondant au régime de Mie peut présenter des caractéristiques non observables dans le cas du même composé analysé en cuve (voir section précédente). Pour illustrer ce propos, l'heptane a servi de produit de référence. La structure de la bande de vibration C-H intense située à un décalage Raman compris entre 2900 et 3000 cm^{-1} a été analysée en appliquant au liquide plusieurs types d'éclairage (Fig. 6). La Fig. 6a présente le spectre Raman de l'heptane enregistré dans la cuve lorsque celui-ci est éclairé avec le laser continu. On distingue une structure de bande continue s'étalant sur plusieurs nm similaires aux autres composants organiques analysés. Lorsque la cuve d'analyse est remplacée par une goutte d'heptane, le spectre Raman enregistré présente plusieurs pics d'intensité répartis uniformément en fréquence (Fig. 6b). Ces pics d'intensité, caractérisant les modes de résonance de la microcavité qu'est la goutte, se superposent au faible signal de diffusion Raman spontanée. Le temps d'intégration des signaux est équivalent à celui utilisé pour enregistrer le spectre Raman dans la cuve ce qui suppose que le gain produit par la microcavité dépasse légèrement la condition de seuil nécessaire à la production d'un signal de diffusion Raman stimulée. Dans le cas où la goutte est finalement éclairée par un faisceau laser impulsionnel intense (qq mJ par impulsion), les pics Raman se trouvent fortement amplifiés, rendant leur observation instantanée. Pour exemple, la Fig. 6c présente le spectre Raman stimulé de l'heptane suite à son éclairage par une unique impulsion laser de 6 ns de durée. Une comparaison des écarts en fréquence observés expérimentalement avec ceux observés par Acker et al. [17] sur des gouttes de composants organiques possédant des indices de réfraction similaires montre que les gouttes observées dans notre expérience ont un rayon de l'ordre de 45 μm rentrant dans la gamme de diamètre de goutte produite par le système d'injection, c'est-à-dire entre 80 et 120 μm .

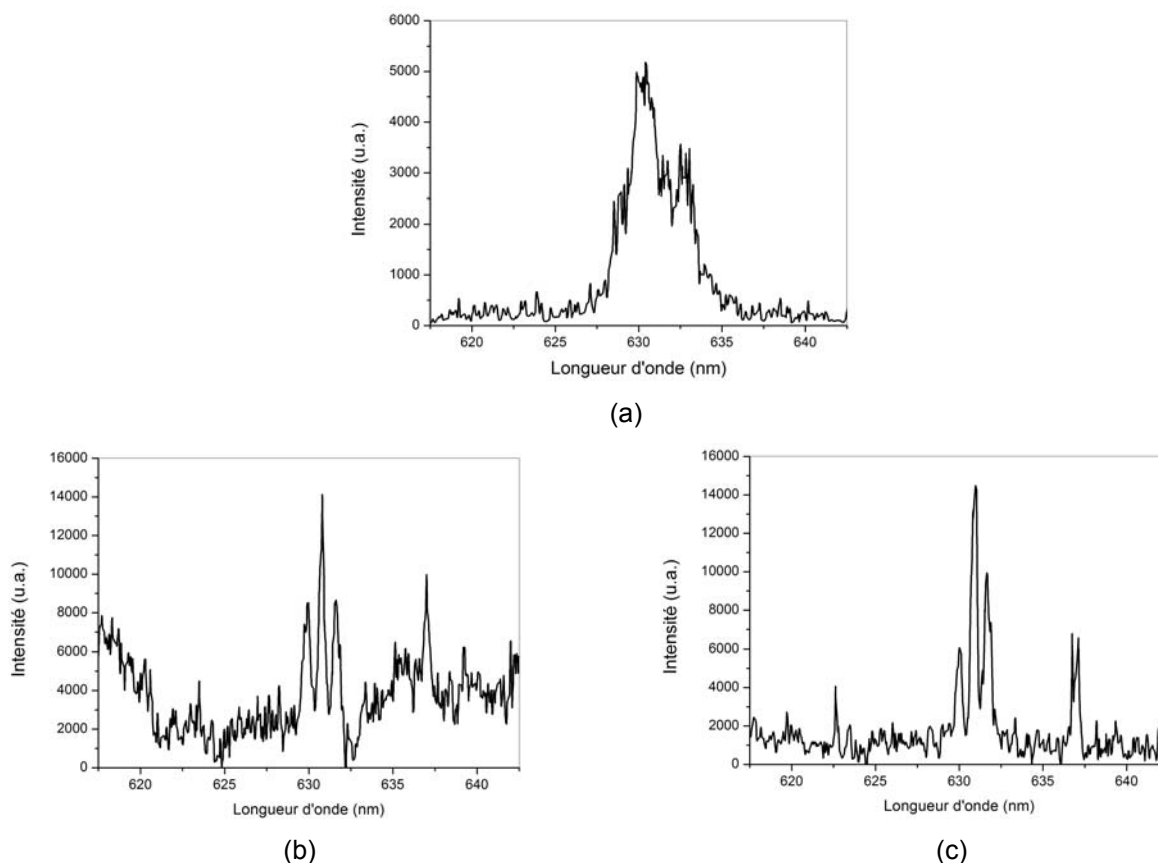


Figure 6 – Spectres Raman de l'heptane : (a) Spectre Raman spontané enregistré en cuve, éclairage avec un laser continu, intégration du signal Raman sur 10 ms (b) expérience sur goutte, éclairage avec un laser continu, intégration du signal Raman sur 10 ms, (c) expérience sur goutte, éclairage avec un laser impulsionnel, mesure sur un tir laser.

5 Conclusion

L'analyse quantitative des gouttes de carburant par diffusion Raman demande une compréhension des propriétés optiques des gouttes. Les performances enregistrées par diffusion Raman spontanée et stimulée ont démontré que cette technique de mesure est attrayante pour mesurer la taille et la concentration des espèces principales chimiques de gouttelettes de carburants multi-composants. Un mélange liquide ternaire toluène/1,2,4 triméthylbenzène/n-undécane a ainsi été utilisé pour évaluer la précision des mesures de concentration. De même, les spectres SRS de gouttelettes d'heptane, obtenus avec une source laser impulsionnelle de longueur d'onde de 532 nm, ont permis d'observer des MDR dans la région spectrale des modes d'étirement des liaisons C-H, ce qui ouvre la perspective de mesurer simultanément les concentrations des composants chimiques et la taille des gouttes. Ces travaux préliminaires vont maintenant se poursuivre dans le futur de manière à combiner simultanément les deux mesures sur des gouttes isolées mais également sur des sprays de manière à définir les limitations d'utilisation de cette technique de mesure. De même, une comparaison de la précision de mesure notamment sur la taille des gouttes avec celles obtenues par la technique d'arc en ciel sera entreprise. L'ensemble de ces travaux permettra alors d'aborder le problème de la dynamique d'évaporation de carburants multi-composants qui revête d'une grande importance pour l'étude et le contrôle de systèmes d'injection de carburants dans les chambres de combustion.

Références

- [1] C. Tropea, "Optical Particle Characterization in Flows", *Annu. Rev. Fluid Mech.* 43, 399-426 (2011).
- [2] G. Castanet, C. Maqua, M. Orain, F. Grisch, F. Lemoine, "Investigation of heat and mass transfer between the two phases of an evaporating droplet stream using laser-induced fluorescence techniques: Comparison with modeling," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 50, 3670-3683, (2007).
- [3] C. Heinisch, J. B. Wills, J. P. Reid, T. Tschudi, C. Tropea, "Temperature measurement of single evaporating water droplets in a nitrogen flow using spontaneous Raman scattering", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 11, 9720-9728 (2009).
- [4] H. B. Lin, A. L. Huston, J. D. Eversole, A. J. Campillo, P. Chylek, "Internal scattering effects on micro-droplet resonant emission structure", *Opt. letters*, 17, 970-972 (1992).
- [5] S.C. Hill, R.K. Chang, "Nonlinear Optics in Droplets", in *Studies in Classical and Quantum Nonlinear Optics*, O. Keller, ed. Nova Science, Commack, N.Y., 171-242 (1995).
- [6] R.J. Hopkins, J.P. Reid, "A comparative study of the mass and heat transfer dynamics of evaporating ethanol/water, methanol/water, and 1-propanol/water aerosol droplets", *J. Phys. Chem. B* 110, 3239-3249 (2006).
- [7] A.C. Eckbreth, "Laser Diagnostics for Combustion temperature and Species", Taylor & Francis (1996)
- [8] S. Hill, R.E. Benner, "Morphology-dependent resonances" in *Optical effects associated with Small Particles* P.W. Barber, R.K. Chang (Eds.) World Scientific (1988).
- [9] J. Z Zhang, D. H. Leach, R. K. Chang, "Photon lifetime within a droplet: temporal determination of elastic and stimulated Raman scattering", *Optics Letters* 13, 270-272 (1988).
- [10] F. H. Wirth, K. A. Juvan, D. H. Leach, J. C. Swindal, R. K. Chang, P. T. Leung, "Phonon retention effects on stimulated Brillouin scattering from micrometer-sized droplets illuminated with multiple short laser pulses", *Optics Letters* 17, 1334-1336 (1992)
- [11] S. C. Hill, D. H. Leach, R. K. Chang, "Third-order sum-frequency generation in droplets :model with numerical third-harmonic generation", *Journal of the Optical Society of America B* 10, 16-33 (1993)
- [12] D. H. Leach, , R. K. Chang, W. P. Acker, S. C. Hill, *Third-order sum-frequency generation in droplets : experimental results*, *Journal of the Optical Society of America B* 10, 34-45 (1993)
- [13] V. Sandoghdar, F. Treussart, J. Hare, V. Lefèvre-Seguin, J.-M. Raimond, S. Haroche, "Very low threshold whispering-gallery-mode microsphere laser", *Physical Review A* 54, R1777-R1780 (1996).
- [14] J. B. Snow, S. X. Quan, R. K. Chang, "Stimulated Raman scattering from individual water and ethanol droplets at morphology-dependant resonances", *Optics Letters* 10, 37-39 (1985)
- [15] S. X. Qian, J. B. Snow, R. K. Chang, "Coherent Raman mixing and coherent anti-Stokes Raman scattering from individual micrometer-size droplets", *Optics Letters* 10, 499-501 (1985).
- [16] G. Eckhardt, R. W. Hellwarth, F. J. McClung, S. E. Schwarz, D. Weiner, E. J. Woodbury, "Stimulated Raman scattering from organic liquids" *Phys. Rev. Lett.* 9, 455-457 (1962).
- [17] W. P. Acker, A. Serpengüzel, R. K. Chang, S. C. Hill, "Stimulated Raman Scattering of Fuel Droplets: Chemical Concentration and Size Determination," *Appl. Phys. B* 51, 9-16 (1990).