

## ÉCOLE DOCTORALE SST

Équipe 6 du laboratoire : Imagerie et cerveau

# THÈSE

 présentée par :

**Guillaume ROBIN**

soutenue le : 31 mai 2011

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université François - Rabelais**

Discipline/ Spécialité : Sciences de l'ingénieur / Ultrasons

**Méthodes acoustiques auto-calibrées en émission-réception pour  
l'étude et le suivi des propriétés non linéaires des matériaux  
et l'imagerie**

**THÈSE dirigée par :**

**FEUILLARD Guy**

Professeur, ENI Val de Loire

**Co-encadrée par :**

**VANDER MEULEN François**

Maître de conférences, Université François-Rabelais de Tours

**RAPPORTEURS :**

**DUQUENNOY Marc**

Professeur, Université de Valenciennes

**EL GUERJOURA Rachid**

Professeur, Université du Maine

---

**JURY :**

**DUQUENNOY Marc**

Professeur, Université de Valenciennes

**EL GUERJOURA Rachid**

Professeur, Université du Maine

**FEUILLARD Guy**

Professeur, ENI Val de Loire

**VANDER MEULEN François**

Maître de conférences, Université François-Rabelais de Tours

**WILKIE-CHANCELLIER Nicolas**

Maître de conférences, Université de Cergy-Pontoise



« L'expérience, c'est le nom que chacun donne  
à ses erreurs. »

Oscar Wilde



# Remerciements

Ce travail de thèse s'est déroulé au sein de l'équipe Caractérisation Ultrasonore et Piezoélectrisité du laboratoire Imagerie et Cerveau.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à messieurs Guy Feuillard et François Vander Meulen pour avoir dirigé conjointement ce travail. Un grand et chaleureux merci pour ces moments de partage amicaux et scientifiques.

Je remercie vivement monsieur Rachid El Guerjouma pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury ainsi que monsieur Marc Duquennoy pour leurs remarques pertinentes sur ce mémoire. Je remercie également monsieur Nicolas Wilkie-Chancellor pour sa participation à la soutenance de thèse et à la collaboration sur le travail portant sur le thème des matériaux Sol-Gel.

Je voudrais remercier les membres de l'équipe TIM du laboratoire SATIE pour leur collaboration sur le projet sol-gel. Merci pour leur accueil ponctuel au sein de leurs locaux, les colis des précieux mélanges, et leurs critiques autour du travail présenté.

Merci à l'ensemble des collègues de l'équipe pour nos éclats de rire, nos discussions scientifiques ou politiques ...

Merci à l'ensemble des collègues de l'école d'ingénieurs pour le soutien et nos échanges autour de l'enseignement et des questions pédagogiques.

Enfin, merci à mes parents et mon frère pour le soutien, à mes amis pour avoir été compréhensifs et pour les bons moments passés ensemble, à ceux qui me supportent parfois au quotidien.

## REMERCIEMENTS

---

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>21</b>
<b>1 Équations de l'acoustique linéaire et non linéaire</b>	<b>27</b>
1.1 Caractéristiques des ondes ultrasonores . . . . .	28
1.2 Applications au suivi des propriétés par ultrasons . . . . .	29
1.2.1 Vitesse des ondes ultrasonores . . . . .	29
1.2.2 Atténuation des ondes ultrasonores . . . . .	31
1.2.3 Paramètre non linéaire . . . . .	32
1.3 Équations de la propagation d'onde acoustique au deuxième ordre . . . . .	34
1.4 Définition et interprétation du paramètre non linéaire . . . . .	37
1.4.1 Définition du paramètre non linéaire $B/A$ . . . . .	37
1.4.2 Interprétation physique du coefficient non linéaire . . . . .	38
1.5 Équation KZK et ses approximations . . . . .	40
1.5.1 Approximation parabolique . . . . .	40
1.5.2 Approximation quasi-linéaire . . . . .	41
1.6 Décomposition en somme de gaussiennes . . . . .	42
1.6.1 Distribution radiale de la vitesse . . . . .	42
1.6.2 Pression à la fréquence fondamentale . . . . .	45
1.6.3 Pression à la fréquence harmonique 2 . . . . .	49
<b>2 Principe des mesures ultrasonores linéaire et non linéaire</b>	<b>53</b>

## TABLE DES MATIÈRES

---

2.1	Méthode auto-calibrée de mesure du paramètre non linéaire $B/A$ en émission-réception . . . . .	54
2.1.1	Principe . . . . .	54
2.1.2	Sensibilités du transducteur en contact . . . . .	55
2.1.3	Fonctions de transfert en émission et en réception . . . . .	57
2.2	Détermination des paramètres linéaires . . . . .	60
2.2.1	Expression de la pression reçue . . . . .	60
2.2.2	Célérité des ondes ultrasonores . . . . .	61
2.2.3	Atténuation des ondes ultrasonores . . . . .	61
2.3	Détermination du coefficient non linéaire . . . . .	64
2.3.1	Expression de la pression à la fréquence harmonique 2 reçue . . . . .	64
2.3.2	Influence du réflecteur . . . . .	66
2.3.3	Expression du coefficient non linéaire $\beta$ . . . . .	67
<b>3</b>	<b>Présentation du dispositif expérimental et de sa validation</b>	<b>71</b>
3.1	Montage expérimental . . . . .	72
3.1.1	Dimensionnement de la cellule de mesure . . . . .	73
3.1.1.1	Matériau constituant la cellule . . . . .	73
3.1.1.2	Géométrie de la cellule . . . . .	73
3.1.1.3	Dimensionnement de la parois de la cellule . . . . .	75
3.1.2	Génération des signaux ultrasonores . . . . .	76
3.1.2.1	Génération électrique harmonique . . . . .	76
3.1.2.2	Transducteur et ses fréquences d'utilisations . . . . .	78
3.1.3	Acquisition des signaux ultrasonores . . . . .	80
3.1.3.1	Sondes de mesures . . . . .	80
3.1.3.2	Système d'acquisition . . . . .	80
3.1.3.3	Température . . . . .	81



## TABLE DES MATIÈRES

---

3.2	Traitement des signaux ultrasonores . . . . .	82
3.3	Validation du dispositif expérimental . . . . .	85
3.3.1	Mesures des paramètres ultrasonores du méthanol . . . . .	86
3.3.2	Mesures des paramètres ultrasonores de l'eau en fonction de la température . . . . .	90
<b>4</b>	<b>Application aux milieux en évolution : les matériaux «sol-gel»</b>	<b>95</b>
4.1	Caractéristiques du matériau sol-gel . . . . .	96
4.1.1	Historique du procédé sol-gel . . . . .	96
4.1.2	Description du procédé sol-gel . . . . .	97
4.1.3	Évolution de la température lors du procédé sol-gel . . . . .	99
4.1.4	Cinétiques du matériau sol-gel . . . . .	100
4.2	Mesures des paramètres visco-élastiques dans les matériaux sol-gel : État de l'art . . . . .	102
4.3	Mesures des paramètres acoustiques : Résultats expérimentaux . . . . .	106
4.3.1	Protocole expérimental . . . . .	106
4.3.2	Effet de la calibration . . . . .	109
4.3.3	Célérité des ondes ultrasonores . . . . .	111
4.3.4	Atténuation des ondes ultrasonores . . . . .	115
4.3.5	Paramètre non linéaire . . . . .	119
4.3.6	Temps caractéristiques extraits des paramètres acoustiques . . . . .	124
<b>5</b>	<b>Imagerie du paramètre B/A</b>	<b>129</b>
5.1	Étude préliminaire : faisabilité de l'imagerie du paramètre non linéaire . . . . .	130
5.1.1	Principe de la méthode d'imagerie . . . . .	130
5.1.2	Fantômes ultrasonores . . . . .	131
5.1.3	Expression du champ de pression à la fréquence harmonique 2 reçu . . . . .	132
5.1.4	Mesures préliminaires avec un transducteur plan . . . . .	134

## TABLE DES MATIÈRES

---

5.1.5	Modification des expressions pour le calcul des champs de pression d'un transducteur focalisé . . . . .	137
5.2	Dispositif expérimental modifié . . . . .	140
5.2.1	Choix de la fréquence . . . . .	140
5.2.2	Champs de pression à la fréquence fondamentale et harmonique 2 . .	141
5.2.3	Validation expérimentale du dispositif modifié . . . . .	143
5.3	Imagerie du paramètre non linéaire $B/A$ d'un fantôme contenant deux fluides	145
5.3.1	Sensibilité à l'épaisseur de la lame d'eau . . . . .	147
5.3.2	Sensibilité à l'épaisseur du fantôme . . . . .	149
	<b>Conclusion générale</b>	<b>151</b>

# Liste des tableaux

1.1	Les coefficients $A_n$ et $B_n$ de la décomposition en somme de gaussiennes calculés à l'ordre 15. . . . .	44
3.1	Comparaison des différents critères de performances des fenêtres d'analyses pour la transformé de Fourier rapide. . . . .	83
3.2	Célérité et atténuation des ondes ultrasonores dans l'eau et dans le méthanol issues dans la littérature pour une température de 25°C. . . . .	85
3.3	Célérité et atténuation des ondes ultrasonores dans le méthanol issues de la littérature et mesurées par la méthode auto-calibrée pour une température de 25°C et une fréquence centrale de l'impulsion de 2,05 MHz. . . . .	87
3.4	Comparatif des paramètres et coefficients non linéaire extraits de la littérature [Coppens <i>et al.</i> , 1965, Beyer, 1974, Saito <i>et al.</i> , 2006] avec ceux mesurés par la méthode auto-calibrée dans du méthanol à 25°C. . . . .	89
3.5	Atténuation des ondes ultrasonores en Np/m dans l'eau pour trois températures mesurée et celle issue de la littérature [Selfridge, 1985]. . . . .	91
4.1	Temps caractéristiques issus de nos mesures ultrasonores dans un matériau sol-gel avec un taux d'hydrolyse ( $h = 4$ ) pour différentes températures de consigne. . . . .	124

LISTE DES TABLEAUX

---

# Table des figures

1.1	Distorsion non linéaire de l'onde ultrasonore au cours de la propagation dans le domaine temporel et son impact dans le domaine fréquentiel. . . . .	39
1.2	Amplitude normalisée du champ de pression calculée à l'aide de la décomposition en somme de gaussiennes : (a) suivant l'ensemble des dimensions spatiales, (b) suivant l'axe de propagation, (c) à la surface du transducteur et (d) sur l'axe transversale à la distance de la limite du champ proche du transducteur. . . . .	46
1.3	Comparaison de la fonction de diffraction calculée sur l'axe de propagation par l'expression exacte de Lommel (vert) et celle par la décomposition en somme de gaussiennes (bleu). . . . .	48
1.4	Amplitude normalisée du champ de pression de la fréquence harmonique reçu par un transducteur (trait plein) et par un récepteur ponctuel (pointillé) sur l'ensemble de la propagation calculée à l'aide de la décomposition en somme de gaussiennes. . . . .	49
2.1	Schéma électrique du transducteur acoustique définissant sa source de tension et son impédance électrique et décrivant le principe de la méthode auto-calibrée ainsi que les courants et tensions de l'entrée et de sortie aux bornes du transducteur. . . . .	55
2.2	Mesure de l'atténuation dans un matériau sol-gel avec (noir) et sans (rouge) la prise en compte de la fonction de transfert du transducteur. . . . .	62

## TABLE DES FIGURES

---

2.3	Propagation de la pression à la fréquence harmonique 2 générée à l'intérieur dans un mélange eau/méthanol simulant l'état initial du matériau d'étude calculée grâce à la décomposition en sommes de gaussiennes avec un réflecteur (aluminium) dont l'impédance acoustique est plus grande que celle du matériau d'étude. . . . .	65
2.4	Propagation de la pression à la fréquence harmonique 2 générée à l'intérieur du matériau d'étude calculé grâce à la décomposition en sommes de gaussiennes avec un réflecteur (air) dont l'impédance acoustique est plus faible que celle du matériau d'étude. . . . .	67
3.1	Schéma du dispositif expérimental assurant la mesure des paramètres ultrasonores linéaires et non-linéaire du matériau placé à l'intérieur de la cellule de mesure. . . . .	72
3.2	Calcul des champs de pression à la fréquence fondamentale normalisé se propageant dans deux matériaux d'étude ayant une vitesse des ondes ultrasonores différentes recueillis à la surface d'un récepteur ponctuel (a) et de dimension finie (b). . . . .	74
3.3	Vue en perspective de la cellule de mesure par la méthode auto-calibrée avec ses dimensions géométriques en millimètres. . . . .	75
3.4	Amplitudes du spectre du courant d'excitation en dB émissent par le générateur de fonctions arbitraires couplé avec l'amplificateur de puissance (rouge) et le SNAP (bleu). . . . .	77
3.5	Réponses fréquentielles normalisées du transducteur (Technisonic, ISL-0303-VHR) d'une impulsion propagée dans 40 mm d'épaisseur d'eau. . . . .	79
3.6	Spectre d'un signal arbitraire ayant une composante harmonique d'ordre deux par la transformé de Fourier rapide utilisant une porte rectangulaire (courbe en bleu), la fenêtre de Hann (courbe en rouge) et la fenêtre flat-top (courbe en noir). . . . .	84

## TABLE DES FIGURES

---

3.7	Signaux temporels émis et reçus aux bornes du transducteur dans le méthanol à $25^{\circ}C$ pour une rampe en tension allant de 30 à 90 Volts : (a) le courant d'entrée, (b) la tension d'entrée, (c) le courant de sortie et (d) la tension de sortie. . . . .	88
3.8	Pression à l'harmonique d'ordre deux reçue en fonction de la pression à la fréquence fondamentale émise au carré dans du méthanol à la température de $25^{\circ}C$ . . . . .	89
3.9	Mesures de la célérité des ondes ultrasonores dans l'eau en fonction de la température dans le fluide (en point bleu) et la modélisation du comportement de la célérité par Lubbers [Lubbers et Graaff, 1998] (en point noir). . .	91
3.10	Mesures de l'atténuation des ondes ultrasonores dans l'eau en fonction de la température. . . . .	92
3.11	Mesures ultrasonores du paramètre non linéaire dans l'eau en fonction de la température par la méthode auto-calibrée (en point bleu) et par la méthode thermodynamique proposé par Yoshizumi (en trait pointillé noir). . . . .	93
4.1	Processus de gélification. . . . .	98
4.2	Évolution de la température au cours de la formation d'un gel (type $h = 4$ ) pour une température de consigne de $30^{\circ}C$ . . . . .	99
4.3	Cinétique de réaction en fonction de la température pour un matériau sol-gel à base de silice avec au taux d'hydrolyse égale à 4 [Ould Ehssein <i>et al.</i> , 2006].	100
4.4	Comparaison des temps de gélification $t_g$ (rhéologie de couette) et $t_{vs}$ (résonateur à quartz) en fonction du taux d'hydrolyse pour des matériaux sol-gel type TMOS pour une température de consigne de $25^{\circ}C$ [Ould Ehssein <i>et al.</i> , 2006].	101
4.5	Diagramme du protocole d'acquisition des signaux électriques d'entrées et de sorties aux bornes du transducteur ainsi que de la température du milieu d'étude. . . . .	107
4.6	Module de la fonction de transfert du transducteur en émission pour un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4. . . . .	110

TABLE DES FIGURES

---

4.7	Célérité des ondes ultrasonores et son ajustement mesurés dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 pour une température de consigne de 23°C. . . . .	111
4.8	Variations de la célérité compensées en température dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égale à 4 pour une température de consigne de 23°C. . . . .	112
4.9	Deux mesures de la célérité des ondes ultrasonores dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 pour des conditions de température de consigne identique. . . . .	113
4.10	Mesures de la célérité des ondes ultrasonores dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 pour différentes températures de consigne. . . . .	114
4.11	Variations de la célérité compensées en température dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 pour différentes températures de consigne. . . . .	115
4.12	Mesure de l'atténuation dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 au cours de sa formation pour une température de consigne de 25°C. . . . .	117
4.13	Mesures de l'atténuation au cours du temps dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égale à 4 pour différentes températures de consigne. . . . .	119
4.14	Mesure du paramètre non linéaire dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 au cours de sa formation pour une température de consigne de 23°C. . . . .	120
4.15	Mesures du paramètre non linéaire dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 dans les mêmes conditions de température de consigne soit 23°C. . . . .	122
4.16	Mesures du paramètre non linéaire $\beta$ un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 pour différentes températures de consigne. . . . .	122



## TABLE DES FIGURES

---

4.17	Temps caractéristiques issus des paramètres ultrasoniques comparés avec ceux issus de la littérature pour des matériaux sol-gel à base de silice avec un taux d'hydrolyse de 4 pour différentes températures de consigne. . . . .	125
4.18	Temps caractéristiques issus de la mesure de célérité comparés avec ceux issus de la littérature pour des matériaux sol-gel à base de silice avec un taux d'hydrolyse de 4 en fonction de l'inverse de la température de consigne.	126
4.19	Temps caractéristiques issus de la mesure de l'atténuation comparés avec ceux issus de la littérature pour des matériaux sol-gel à base de silice avec un taux d'hydrolyse de 4 en fonction de l'inverse de la température de consigne.	127
4.20	Temps caractéristiques issus de la mesure du paramètre non linéaire comparés avec ceux issus de la littérature pour des matériaux sol-gel à base de silice avec un taux d'hydrolyse de 4 en fonction de l'inverse de la température de consigne. . . . .	128
5.1	Schéma de principe permettant l'imagerie du paramètre non linéaire d'un fantôme ayant des propriétés visco-élastiques différentes suivant la direction $y$ . . . . .	130
5.2	Pression à la fréquence harmonique 2 reçue en fonction du carré de la pression émise à la fréquence fondamentale dans un fantôme d'eau (bleu) et un fantôme de méthanol (rouge) calculée par la décomposition en somme de gaussiennes (trait plein) et mesurée par un transducteur plan (plus) avec une température de 20°C. . . . .	135
5.3	Simulation des champs de pression normalisés à la fréquence harmonique 2 générés dans la lame d'eau (rouge) et dans le fantôme (noir) dans le cas d'un transducteur plan (pointillé) et d'un transducteur focalisé (trait plein) suivant la distance de propagation $z$ . . . . .	136
5.4	Fonction de diffraction calculée sur l'axe de propagation à partir de la décomposition en somme de gaussiennes en bleu et par le modèle de Schmerr en rouge pour un transducteur faiblement focalisé avec une distance focale de 1,2". . . . .	138

## TABLE DES FIGURES

---

5.5	Schéma du dispositif expérimental permettant l'imagerie du paramètre non linéaire $B/A$ d'un fantôme. . . . .	140
5.6	Amplitudes normalisées du champ de pression à la fréquence fondamentale (bleu) et harmonique à l'ordre deux (rouge) du transducteur focalisé à 1,2" dans l'eau suivant l'axe $z$ mesurés par l'hydrophone (trait plein) et calculés par la décomposition en somme de gaussiennes (tirets). . . . .	141
5.7	Cartographie du champ de pression à la fréquence fondamentale émis (a) et à la fréquence harmonique 2 généré (b) dans l'eau suivant l'axe transversal, $y$ , du transducteur focalisé à 1,2" calculée par la décomposition en somme de gaussiennes. . . . .	142
5.8	Pression à la fréquence harmonique 2 reçue en fonction du carré de la pression à la fréquence fondamentale émise mesurée dans un fantôme d'eau (plus bleu) et dans le fantôme de méthanol (plus rouge); et calculée par ajustement de $\beta_f$ à partir de la décomposition en somme de gaussiennes pour déterminer le paramètre non linéaire (trait plein). . . . .	144
5.9	Mesure du paramètre non linéaire $B/A$ lors du balayage vertical du fantôme contenant deux fluides. . . . .	145
5.10	Photographie du fantôme centrée sur l'interface en les deux fluides. . . . .	146
5.11	Champs de pression à la fréquence harmonique 2 générés à travers la lame d'eau près-fantôme (rouge), dans le fantôme de méthanol (noir), à travers la lame d'eau post-fantôme (magenta) et totale (bleu) en fonction de l'épaisseur de la lame d'eau. . . . .	147
5.12	Amplitudes normalisées du champ de pression à la fréquence fondamentale (bleu) et harmonique d'ordre deux (rouge) dans l'eau sur l'axe $z$ calculées par la décomposition en somme de gaussiennes pour un transducteur en émission-réception. . . . .	148

TABLE DES FIGURES

---

5.13 Champs de pression à la fréquence harmonique 2 générés à travers la lame d'eau près-fantôme (rouge), dans le fantôme de méthanol (noir), à travers la lame d'eau post-fantôme (magenta) et totale (bleu) en fonction de l'épaisseur du fantôme. . . . . 149

## TABLE DES FIGURES

---

# Introduction

Le Contrôle Non Destructif (CND) regroupe un ensemble de techniques et procédés aptes à fournir des informations sur la santé, le dimensionnement et la mesure des paramètres physiques d'une structure. Il assure une surveillance des propriétés sans altérer l'intégrité de la structure ou du matériau. Concernant les applications industrielles, le contrôle s'effectue généralement sur des pièces en fonctionnement et dans leur environnement ou bien dans le suivi du processus de fabrication. Il permet ainsi de surveiller la structure avant qu'elle n'atteigne un niveau de dégradation critique. Parmi les différentes techniques de CND, les ultrasons occupent une place importante en raison de leurs caractéristiques. En effet, les ultrasons ne sont pas ionisant, ils ne présentent donc aucun risque pour les utilisateurs. De plus leur coût est relativement modeste par rapport à d'autres techniques de CND comme les rayons X. Enfin, les ultrasons sont faciles à mettre en oeuvre et ne nécessitent pas de lourde infrastructure. Certains dispositifs regroupent seulement un capteur couplé avec un appareil de mesure portatif assurant une mobilité et un usage rapide.

Afin de mettre en oeuvre un contrôle non destructif, il faut répondre, quelque soit la technique utilisée, aux objectifs de fiabilité et de reproductibilité assurant les performances du contrôle. Le CND peut aussi permettre de localiser, d'identifier ou de caractériser les défauts. Une démarche universelle en quatre étapes est à employer quand une technique CND est utilisée. Elle se définit par la mise en oeuvre du procédé physique permettant le contrôle (excitation du milieu), l'altération des propriétés physiques par les défauts par exemple (réponse du milieu), la détection de ces modifications par un capteur associé (réception et acquisition de la réponse) et enfin le traitement des signaux et leurs interprétations (interprétation de la réponse). Les propriétés physiques à contrôler sont définies dans la suite de ce chapitre conditionnant la technique ultrasonore à utiliser.

Le développement des techniques ultrasonores doit dans une large mesure son essor dans les années 60 à l'imagerie médicale répondant aux besoins d'images pour mieux assurer le bien être des patients. Les ultrasons constituent une bonne alternative aux rayons X du fait qu'ils sont non invasifs. L'échographie est la méthode la plus utilisée assurant la mise en image des échos successifs des interfaces. Le contraste informe sur les caractéristiques des milieux sondés. L'effet Doppler couplé à l'échographie permet d'explorer les flux sanguins. Ainsi la direction et le débit des flux sont déduits des mesures Doppler ultrasonores. Les techniques s'avèrent être également performantes pour des applications industrielles (matériaux dégradés, détection de microstructures). A partir de l'échogramme d'une structure ses dimensions peuvent être déterminées, ses éventuels défauts de structure ou de fatigue être identifiés. Des mesures temporelles rendent possibles le suivi des défauts dans le temps.

La métrologie ultrasonore repose sur la mise en oeuvre d'outils permettant la mesure des grandeurs : vitesse, atténuation et paramètre non linéaire. Des transducteurs assurent l'émission et la réception du signal acoustique sondant le milieu d'étude. Dans cette étude, l'instrumentation ultrasonore choisie est dictée par la volonté d'accéder aux grandeurs absolues du paramètre non linéaire. La calibration du transducteur, permettant la mesure du champ de pression absolu, est donc nécessaire.

Deux grands principes de méthode peuvent assurer la mesure absolue des paramètres acoustiques : la méthode à deux épaisseurs et celle d'insertion-substitution. Une première méthode consiste à mesurer le niveau de la génération harmonique sur des échantillons d'épaisseurs différentes. La variable de l'étude dans ce cas est la distance entre l'émetteur et le récepteur. La seconde méthode repose sur la mesure ultrasonore à épaisseur constante avec un milieu de référence. La distance entre émetteur et le récepteur est déterminé et fixé pour l'ensemble des mesures. Le milieu de référence est connu. Cependant, sa charge acoustique doit être très proche de celle étudiée pour s'assurer que les caractéristiques des transducteurs soient inchangées [Bou Matar *et al.*, 2001]. Ces deux principes peuvent être déclinés en transmission ou en émission-réception. Dans le premier cas, deux transducteurs

sont placés de part et d'autre du milieu d'étude pour émettre et recevoir les ondes ultrasonores. Dans le deuxième, un transducteur garantit les deux fonctions émission et réception après réflexion des ondes sur un réflecteur acoustique.

La méthode d'insertion substitution avec auto-calibration du transducteur en émission-réception est privilégiée dans notre étude [Vander Meulen et Haumesser, 2008]. Ce choix s'effectue suivant les applications visés. En effet, cette méthode a pour but de suivre temporellement les propriétés acoustiques de matériaux en évolution. Le principe de mesure à deux distances s'avère difficile à mettre en oeuvre dans ce cas particulier. La combinaison du principe d'insertion-substitution et de l'émission-réception permet de diviser le volume de mesure sans réduction de la distance de propagation des ondes. Dans notre étude, le milieu de référence est le milieu d'étude à son instant initial ( $t = 0$ ). Il est défini et bien connu par une étude préliminaire. Ainsi, l'évolution de la charge acoustique du transducteur est pris en compte.

Afin de déterminer les champs de pressions à la fréquence fondamentale et harmonique deux, une procédure de calibration du transducteur est réalisée aux deux fréquences. La réponse d'un transducteur dépend de la taille de l'élément actif, de la fréquence utilisée et de la charge acoustique en surface. La procédure de calibration assure la caractérisation des fonctions de transferts du transducteur émetteur et récepteur aux deux différentes fréquences. Le niveau absolu de la pression émis dans le milieu et reçu par le transducteur après propagation sont déduits. Les processus de formation du matériau en question produit obligatoirement une évolution de la charge acoustique donc des fonctions de transferts du transducteur. Il est donc important de prendre en compte les fonctions de transfert du transducteur à chaque instant car le milieu est en formation.

Dans cette étude, les ultrasons sont choisis pour suivre l'évolution des propriétés visco-élastiques de matériau. Suivre au cours du temps des propriétés mécaniques aide à la compréhension de la formation du matériau ainsi que son vieillissement. La connaissance des mécanismes de formation du matériau permet durant la fabrication d'agir sur les processus de fabrication en les contrôlant. L'instrumentation ultrasonore envisagée dans l'étude a été

justifiée afin de considérer les différentes contraintes liées à un suivi des paramètres linéaires et non linéaire d'un milieu dont les propriétés visco-élastiques évoluent au cours du temps.

Un dispositif expérimental a été conçu afin de répondre à l'ensemble des contraintes liées à l'instrumentation ultrasonore utilisée. Les hypothèses théoriques, comme par exemple l'hypothèse d'onde plane, de génération effectuée dans le régime quadratique, ont été prises en compte dans cette étude. Ces hypothèses imposent un certain nombre de contraintes et de précautions expérimentales se répercutant sur les choix technologiques de la cellule de mesure, les dimensions doivent permettre la génération cumulative de la pression harmonique deux après un aller et retour dans le milieu d'étude. Pour cela, le fond de la cellule de mesure constitue d'un réflecteur dont l'impédance acoustique est plus élevée que celle que le matériau d'étude [Breazeale et Lester, 1961]. La dimension des parois de la cellule de mesure permet de découpler temporellement les signaux acoustiques s'étant propagés uniquement dans le matériau d'étude, de ceux propagés dans le matériau d'étude et le réflecteur. L'étude se focalise sur la mesure du paramètre non linéaire d'un matériau en évolution. Le niveau de nonlinéarité parasite doit être très faible devant la nonlinéarité provenant du milieu d'étude qu'elle provienne de la génération électrique. Afin d'évaluer le niveau d'harmonique parasite, il est démontré comme plus faible que l'harmonique deux générée dans le milieu. Le choix technologique de la source de tension implique une source faiblement non linéaire conçue pour ce genre d'étude. Un traitement des données approprié permet de réduire le rapport signal à bruit.

La première application consiste à suivre l'évolution de matériaux sol-gel à base de silice. Le procédé sol-gel caractérise les matériaux entre les solutions et les solides. Ces matériaux se forment par des processus chimiques permettant leur passage de l'état liquide à l'état solide. En se basant sur l'état de l'art du suivi des propriétés des matériaux sol-gel, les caractéristiques du matériau peuvent être extraites afin de respecter les conditions de sa formation. En prenant en compte les effets de la calibration du transducteur, les paramètres ultrasonores linéaires ( célérité et atténuation) et non linéaire peuvent être déterminés. De ces paramètres sont extraits les temps caractéristiques à la formation du matériau. Ils sont comparés aux temps de caractéristique liés à la formation avec ceux de la littérature.

La deuxième application consiste à mettre en oeuvre un système d'imagerie du pa-



paramètre non linéaire à partir de la méthode auto-calibré précédemment mise en oeuvre. Les propriétés du milieu d'étude ne varient plus dans le temps mais suivant ses directions géométriques. Ce choix est motivé pour mettre en oeuvre une imagerie du paramètre  $B/A$  proche des conditions présentées dans la première application. Bien que le principe reste identique, des évolutions du dispositif expérimental sont nécessaires. Le matériau n'est plus directement en contact avec le transducteur : une lame d'eau est intercalé entre le transducteur et le fantôme permettant un déplacement du transducteur dans le plan perpendiculaire à la propagation (en mode C-scan). Ce déplacement assure la formation de l'image. Pour avoir une image locale du paramètre non linéaire et minimiser l'impact de la lame d'eau sur la détermination du paramètre, un transducteur focalisé est utilisé. Une étude de la tâche focale du transducteur assure ses dimensions ainsi que le choix de la distance d'exploration. Un fantôme formé de deux milieux homogènes est exploré. Une image du paramètre non linéaire  $B/A$  est ainsi formée.



## Chapitre 1

# Équations de l'acoustique linéaire et non linéaire

Ce premier chapitre permet, après un état de l'art des applications au suivi des propriétés par ultrasons, d'exposer les équations de la propagation d'une onde acoustique à l'ordre deux dans un milieu fluide. A partir de l'équation de propagation non linéaire, le paramètre non linéaire est défini. L'équation KZK défini par Zabolotskaya, Khokhlov et Kuznetsov permet de prendre en compte les différents effets liés à la propagation d'une onde acoustique dans un fluide. Ces effets sont la diffraction, l'atténuation et la nonlinéarité du milieu. La solution est décrite dans la base des gaussiennes. La décomposition de cette base permet l'expression des champs de pression à la fréquence fondamentale et harmonique.

### 1.1 Caractéristiques des ondes ultrasonores

Les ultrasons sont des ondes mécaniques qui se propagent avec des vitesses dépendantes des caractéristiques du milieu. Ces ondes mécaniques sont générées par une surface vibrante, typiquement un transducteur électro-acoustique [Royer et Dieulesaint, 1999] qui assurent l'émission et la réception des ondes acoustiques. Le CND ultrasonore utilise le plus souvent des transducteurs constitués de céramiques piézoélectriques. Cet effet piézoélectrique, découvert en 1880, est la propriété pour certains matériaux de se déformer sous l'action d'un champ électrique et inversement.

Les ondes ultrasonores générées ont typiquement des fréquences allant de la centaines de kilohertz à la dizaine de mégahertz. En se propageant, l'onde mécanique ainsi engendrée se modifie en fonction de la nature du milieu rencontré. En volume deux types de polarisation existent : les ondes longitudinales se propageant dans la même direction que le déplacement des particules ; et les ondes transversales avec une direction de vibration perpendiculaire à la propagation. Les caractéristiques de ces ondes dépendent du type de liaisons existant entre les molécules. Ainsi, dans un solide les deux ondes sont présentes quelque soit la nature de l'excitation mais dans un fluide, seule la vibration longitudinale prédomine. Concernant, l'onde transversale, la propagation est assimilable à un cisaillement de proche en proche. La propagation de l'onde longitudinale est comparable à des déplacements de compression et de décompression de la matière.

La propagation de l'onde acoustique dépend de la nature du milieu. L'onde acoustique se propage à une vitesse dépendante des propriétés intrinsèques du matériau : la densité, le coefficient de poisson et le module d'élasticité (solide) ou le coefficient de compressibilité (fluide). Dans une majorité des études, la densité du matériau est considérée constante. A densité constante, le Module de Young s'évalue à partir de la connaissance de la vitesse des ondes ultrasonores dans le matériau.

Les vibrations de l'onde acoustique s'amortissent au cours de la propagation dans le matériau. Cette diminution d'amplitude et d'intensité acoustique est plus généralement connue sous le terme d'atténuation des ondes acoustiques. Pour un milieu homogène, elle résulte de processus d'absorption liés à la viscosité, la conduction thermique et éventuellement

la relaxation moléculaire. Un autre phénomène à prendre en compte dans la propagation acoustique est la diffraction se traduisant par une répartition spatiale de l'énergie acoustique non uniforme. La génération des ondes acoustiques s'effectue par un transducteur de dimension finie. Le transducteur est souvent considéré comme assimilable à un piston plan qui rayonne dans le milieu suivant une directivité liée à ces caractéristiques de diffraction.

L'investigation non linéaire regroupe de nombreuses méthodes qui ont montré leurs capacités notamment à la détection de phénomènes précoces liés au vieillissement des matériaux. Ces méthodes reposent sur la génération et l'analyse harmonique. Bien souvent, l'hypothèse des faibles perturbations est faite en acoustique non linéaire. La déformation de l'onde ultrasonore est faible ne va pas jusqu'à l'apparition d'une discontinuité (onde de choc).

Les ultrasons sont clairement sensibles aux propriétés visco-élastiques des matériaux. L'investigation des paramètres acoustiques linéaires et non linéaire permet d'obtenir des informations sur l'évolution structurelle au cours du temps, du milieu contrôlé.

## 1.2 Applications au suivi des propriétés par ultrasons

Le suivi ultrasonore des propriétés visco-élastiques d'un matériau consiste en le contrôle spatial et temporel des grandeurs physiques (vitesse, atténuation et paramètre non linéaire). Dans ce paragraphe, un état de l'art des mesures ultrasonores assurant la détermination de grandeurs physiques est effectué.

### 1.2.1 Vitesse des ondes ultrasonores

La vitesse des ultrasons est l'un des paramètres les plus utilisés dans le domaine de l'acoustique car facilement mesurable. Généralement, elle se détermine par une simple mesure de temps de vol en émission-réception ou en transmission. Citons Selfridge qui a mesuré les vitesses des ondes ultrasonores dans un grand nombre de matériaux à partir de trains d'ondes ultrasonores en émission-réception [Selfridge, 1985].

L'analyse des échos successifs permet de déterminer la vitesse des ondes ultrasonores dans les matériaux. Une classification des matériaux a été établie à partir de la mesure

leur vitesse. En effet, la vitesse étant l'image de la compressibilité du milieu, le classement s'effectue sur l'image du module d'élasticité.

Le changement de propriété de liquide à solide peut-être déterminé par des mesures ultrasonores. Une mesure de temps de vol grâce à une méthode en mode émission-réception est utilisée dans le suivi de l'évolution de la congélation [Sigfusson *et al.*, 2004]. L'onde ultrasonore se propage en parcourant les différentes couches de la matière congelée ou non. Ainsi, une interface née d'une couche dont le milieu est congelé et celle dont l'état est liquide. A cette interface, les ondes ultrasonores se réfléchissent produisant différents échos d'aller-retour. L'analyse de ces échos successifs détermine l'évolution de la congélation de la structure. Ce suivi de la congélation trouve une application dans l'hygiène alimentaire.

De nombreuses applications issues de l'industrie assurent le suivi des propriétés au cours de la formation d'un matériau. La fabrication de matériau nécessite la connaissance de l'état du processus à tout moment. Les résines epoxy sont un exemple du suivi de la polymérisation par des mesures de vitesses ultrasonores [Rokhlin *et al.*, 1986] [Sidebottom, 1993] [Nguyen *et al.*, 1996]. L'analyse de la vitesse au cours de la polymérisation permet de décrire le comportement de la résine. Le système est excité à différentes fréquences, l'amplitude de la vitesse apparaît dépendante de la fréquence pour un comportement comparable. La détermination de la vitesse ultrasonore permet de revenir aux propriétés rhéologique dans le ciment [Labouret *et al.*, 1998, Reinhardt *et al.*, 2000].

De la vitesse et de l'atténuation, le module complexe de cisaillement est déterminé assurant le lien entre la structure et les mécanismes de formation. L'étude de la cinétique de la coagulation du lait est un exemple d'application direct [Ochendusko et Buckin, 2010]. Le module de cisaillement complexe est extrait du suivi de l'impédance mécanique mesurée par un résonateur à quartz [Ould-Ehssein *et al.*, 2006]. Le module visco-élastique assurent le suivi par exemple de la formation du yaourt.

Les techniques Doppler ultrasonores sont utilisées pour mesurer les grandeurs dans des systèmes de productions en flux. Grâce à des séries d'émetteurs et de récepteurs placées de part et d'autre du fluide en circulation, la vitesse du fluide est déduite ainsi que la direction du flux [Luque de Castro et Capote, 2007]. De la connaissance de la vitesse des fluides, une régulation des débit des fluides de production s'effectue [Wiklund *et al.*, 2010].

Des mesures de vitesse permettent non seulement de comprendre l'évolution du matériau mais aussi d'appréhender l'apparition de fissures dégradant ces performances. Il est possible de fatiguer un matériau par des bancs de sollicitation mécanique reproduisant un vieillissement accéléré. Dans le cas d'une plaque d'aluminium, la croissance de fissures a été suivie par des ondes de surface [Rokhlin et Kim, 2003]. La fissure est surveillée à partir de la réflexion acoustique. Le suivi de la vitesse dans le béton assure le contrôle de l'altération de la structure au cours du temps [Breysse et Abraham, 2005].

### 1.2.2 Atténuation des ondes ultrasonores

Les mesures de l'atténuation des ondes ultrasonores sont généralement couplées à celles de la vitesse. Cependant, l'atténuation fait l'objet de moins d'applications. En effet, l'atténuation des ondes ultrasonores est parfois difficile à mesurer et à relier à la nature physique des phénomènes en jeu. La difficulté de mesure s'explique par deux raisons. La première est la faible atténuation des ondes ultrasonores dans les milieux contrôlés. La seconde est la dépendance de l'atténuation à la fréquence d'observation. En effet, l'atténuation ultrasonore des fluides homogènes est souvent proportionnelle au carré de la fréquence d'excitation quand celle des solides est à la fréquence et celle des matériaux diffusants au cube de la fréquence [Selfridge, 1985]. La difficulté de la mesure réside à la fois pour les faibles atténuations mais aussi pour les fortes atténuations. Pour les faibles atténuations, les signaux ultrasonores varient peu pouvant introduire un biais dans la détection des amplitudes. Dans le cas des atténuations fortes, la difficulté n'est plus de mesurer la variation d'amplitude entre deux signaux mais la détection du signal lui-même. Un compromis sur la fréquence d'utilisation doit être réalisé pour assurer une atténuation détectable et une propagation ultrasonore.

Le suivi des variations de l'atténuation ultrasonore lors de la formation de gels acryliques a été mise en oeuvre par Bacri [Bacri *et al.*, 1980]. Dans cette étude, la fréquence d'excitation est de l'ordre de la centaine de mégahertz assurant une réponse différente entre la phase sol et la phase gel. Ainsi, un changement d'état de la transition sol-gel est établie.

Dans le cas de résine époxy, le suivi de la polymérisation s'effectue aussi par des mesures d'atténuation des ondes ultrasonores [Rokhlin *et al.*, 1986].

L'étude de changement de propriétés visco-élastiques intéresse aussi le domaine médical dans le cadre de l'imagerie. Le suivi s'effectue par exemple sur la coagulation du sang [Calor-Filho et Machado, 2006]. Les auteurs se focalisent sur la mesure l'atténuation du plasma sanguin durant la coagulation. Le système expérimental est basé sur des techniques de mesures en émission-réception. D'autres techniques comme l'élastographie permet de comprendre les effets de la variation d'hématocrite ou de l'addition d'héparine sur la coagulation du sang [Gennisson *et al.*, 2006].

### 1.2.3 Paramètre non linéaire

L'investigation non linéaire se décline sous plusieurs formes. L'objet de l'étude se porte sur les phénomènes harmoniques cumulatifs suivant la distance de propagation de l'onde ultrasonore. Une onde ultrasonore monochromatique est propagée dans un milieu d'étude étant non linéaire. Il perturbe l'onde à son passage produisant une génération des composantes harmoniques dans le spectre de l'onde ultrasonore.

Dans les fluides, le paramètre non linéaire  $B/A$  est le rapport entre les coefficients quadratique et linéaire des termes de la série de Taylor utilisé dans l'équation d'état du milieu considéré. Ainsi, les ondes ultrasonores traversant le milieu subissent une distortion produisant une génération d'harmoniques se propageant au sein du milieu. Cette génération se cumule au cours de la distance de propagation.

Les premières mesures du paramètre non linéaire par des méthodes d'amplitudes finies ont été effectuées dans des milieux biologiques [Law *et al.*, 1981]. A la même époque, des méthodes alternatives, comme par exemple des méthodes thermodynamiques, ont été mises en œuvre [Zhu *et al.*, 1983]. Ces principes ont montrés que la pression est dépendante de la vitesse ultrasonore ce qui permet une investigation du matériau et assure sa caractérisation. Le paramètre non linéaire a été mesuré dans des fluides par d'une méthode en émission-réception [Saito *et al.*, 2006]. La détermination du paramètre non linéaire impose une connaissance de la vitesse et de l'atténuation du milieu d'étude directement lié à l'expression des équations de propagation au second ordre.

L'investigation non linéaire ultrasonore a montré qu'il était possible de détecter de façon précoce des changements de propriétés au sein d'un milieu comme une évolution



structurale du type vieillissement ou fissure.

Cette évolution du paramètre non linéaire en fonction de la structure du milieu a été mise en évidence par exemple dans la sédimentation [Hovem, 1979, Kim et Yoon, 2009]. Il a été estimé dans l'eau saturée en sédiment montrant que l'évolution du paramètre non linéaire est corrélée à la densité de sédiment présent dans l'eau.

Le suivi du processus de l'hydratation du béton a été effectué par des méthode linéaire et non linéaire [Van Den Abeele *et al.*, 2009]. Ils montrent que l'évolution du paramètre non linéaire peut être logiquement corrélée à l'évolution de la structure mécanique lié aux réactions chimiques et aux processus mécaniques.

Au sein de l'équipe, des études non linéaire ont été menées sur la reprise d'hydrique de résines phénoliques [Fortineau *et al.*, 2006, Fortineau *et al.*, 2008]. La mesure fait apparaître une sensibilité du paramètre non linéaire à l'évolution de la quantité d'eau.

Le paramètre non linéaire a été estimé dans des tissus biologiques (foie de porc) en fonction de l'évolution de la température [Liu *et al.*, 2008]. Les auteurs montrent la possibilité de faire une image en mode C-scan du paramètre non linéaire par une méthode d'insertion-substitution à amplitude finie. La calibration s'effectue à l'aide d'un hydrophone.

### 1.3 Équations de la propagation d'onde acoustique au deuxième ordre

Dans un milieu homogène et compressible, les ondes acoustiques exercent une déformation d'un volume élémentaire autour de son point d'équilibre qui se propage de proche en proche. Cette déformation est considérée infinitésimale. L'équation de propagation du champ acoustique dans un milieu fluide thermo-visqueux est décrite en exprimant les quatre équations : conservation de la masse, conservation de la quantité de mouvement, conservation de l'énergie et l'équation d'état. Un développement de ces équations à l'ordre deux permet de décrire la génération d'harmonique dans l'équation de propagation.

– Conservation de la masse :

$$\frac{D\rho}{Dt} + \rho \nabla \cdot v = 0, \quad (1.1)$$

où  $v$  est le vecteur vitesse du fluide,  $\rho$  la densité du fluide et  $\frac{D\rho}{Dt} = \frac{\partial}{\partial t} + v \cdot \nabla$  la dérivée temporelle matérielle.

– Conservation de la quantité de mouvement :

$$\rho \frac{Dv}{Dt} = \nabla \cdot \mathbf{T}. \quad (1.2)$$

$\mathbf{T}$  est le tenseur de contraintes et s'exprime par :  $\nabla \cdot \mathbf{T} = -\nabla P + \left(\frac{1}{3}\eta + \xi\right) \nabla (\nabla \cdot v) + \eta \nabla^2 v$  où  $\eta$  et  $\xi$  sont les coefficients de viscosité de cisaillement et de volume.

– Conservation de l'énergie :

$$\rho T \frac{Ds}{Dt} = \kappa \nabla^2 T + \xi (\nabla \cdot v)^2 + \frac{1}{2} \eta \left( \frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \frac{\partial v_k}{\partial x_k} \right)^2, \quad (1.3)$$

où  $s$  est l'entropie,  $T$  la température et  $\kappa$  la conductivité thermique.

– Équation d'état :

Dans le cas général, la fluctuation de pression n'intervient pas dans les échanges thermiques. Dans le cas des processus ultrasonores, la transformation est supposée adiabatique et l'équation d'état s'écrit :

$$P = P(\rho, s). \quad (1.4)$$

### 1.3. ÉQUATIONS DE LA PROPAGATION D'ONDE ACOUSTIQUE AU DEUXIÈME ORDRE

---

L'équation de propagation décrivant les champs acoustiques d'amplitude finie à l'ordre deux peut-être calculée en considérant l'onde ultrasonore comme une petite perturbation autour des valeurs au repos (notée avec un indice 0) des grandeurs caractéristiques du milieu,  $P = P_0 + p$ ,  $\rho = \rho_0 + \rho'$ ,  $T = T_0 + T'$ ,  $s = s_0 + s'$ ,  $v = v + v'$ , où les variables  $p$ ,  $\rho'$ ,  $T'$ ,  $s'$  et  $v'$  représentent respectivement les fluctuations de pression, de densité, de température, d'entropie et de vitesse. En substituant ces relations dans les équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement, nous obtenons respectivement à l'ordre deux :

$$\frac{\partial \rho'}{\partial t} + \rho_0 \nabla \cdot v' = -\rho \nabla \cdot v' - v' \cdot \nabla \rho', \quad (1.5)$$

$$\rho_0 \frac{\partial v'}{\partial t} + \nabla p = \left( \frac{4}{3} \eta + \xi \right) \nabla^2 v' + \left( \frac{1}{3} \eta + \xi \right) \nabla \times \nabla \times v' - \frac{1}{2} \rho_0 \nabla^2 v' - \rho' \frac{\partial v'}{\partial t} + \rho_0 v' \times \nabla \times v'. \quad (1.6)$$

En absence de tourbillons  $\nabla \times v' = 0$ . Ainsi, la propagation est supposée irrotationnelle. La deuxième équation se simplifie :

$$\rho_0 \frac{\partial v'}{\partial t} + \nabla p = \left( \frac{4}{3} \eta + \xi \right) \nabla^2 v' - \frac{1}{2} \rho_0 \nabla^2 v' - \rho' \frac{\partial v'}{\partial t}. \quad (1.7)$$

Loin des surfaces solides, l'équation de conservation de l'énergie devient à l'ordre deux :

$$\rho_0 T_0 \frac{\partial s}{\partial t} = \kappa \nabla^2 T'. \quad (1.8)$$

Enfin, l'équation d'état du fluide autour de son état d'équilibre  $(\rho_0, s_0)$  devient par développement de la série de Taylor en négligeant les termes d'ordre trois :

$$p = c_0^2 \rho' + \frac{c_0^2}{\rho_0} \frac{B}{2A} \rho'^2 + \left( \frac{\partial P}{\partial s} \right)_{\rho,0} s'. \quad (1.9)$$

Le paramètre non linéaire,  $B/A$ , représente le terme quadratique du développement de la série de Taylor. Ce terme sera discuté dans le paragraphe suivant.

Ces équations développées à l'ordre deux sont introduites dans les membres de droite des équations (1.5) et (1.6).

$$\frac{\partial \rho'}{\partial t} + \rho_0 \nabla \cdot v' = \frac{1}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial p^2}{\partial t} + \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial L}{\partial t}, \quad (1.10)$$

### 1.3. ÉQUATIONS DE LA PROPAGATION D'ONDE ACOUSTIQUE AU DEUXIÈME ORDRE

---

$$\rho_0 \frac{\partial v'}{\partial t} + \nabla p = -\frac{1}{\rho_0 c_0^2} \left( \frac{4}{3} \eta + \xi \right) \nabla \frac{\partial p}{\partial t} - \nabla L, \quad (1.11)$$

avec  $L$ , la densité Lagrangienne, définie par :

$$L = \frac{1}{2} \rho_0 v'^2 - \frac{p^2}{2\rho_0 c_0^2}. \quad (1.12)$$

En soustrayant le gradient de l'équation (1.10) de la dérivée par rapport au temps de l'équation (1.11), nous obtenons l'expression suivante :

$$\frac{\partial^2 \rho'}{\partial t^2} - \nabla^2 p = \frac{1}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2} + \left( \nabla^2 + \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) L + \frac{1}{\rho_0 c_0^4} \left( \frac{4}{3} \eta + \xi \right) \frac{\partial^3 p}{\partial t^3}. \quad (1.13)$$

D'autre part, en combinant les équations d'état (1.9) et de conservation de l'énergie (1.8), nous pouvons en déduire l'expression reliant la variation de densité  $\rho'$  à la variation de pression  $p$ .

$$\rho' = \frac{p}{c_0^2} - \frac{1}{\rho_0 c_0^4} \frac{B}{2A} p^2 - \frac{\kappa}{\rho_0 c_0^4} \left( \frac{1}{C_v} - \frac{1}{C_p} \right) \frac{\partial p}{\partial t}, \quad (1.14)$$

avec  $C_v$  et  $C_p$  sont respectivement les capacités calorifiques à volume et pression constante.

En substituant cette dernière expression dans l'équation précédente, l'équation de propagation non linéaire s'exprime sous la forme déterminée par Aanonsen [Aanonsen *et al.*, 1984].

$$\boxed{\nabla^2 p - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} + \frac{\delta}{c_0^4} \frac{\partial^3 p}{\partial t^3} = -\frac{\beta}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2} - \left( \nabla^2 + \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) L,} \quad (1.15)$$

où  $\delta$  est la diffusivité du son :

$$\delta = \frac{1}{\rho_0} \left( \frac{4}{3} \eta + \xi \right) + \frac{\kappa}{\rho_0} \left( \frac{1}{C_v} - \frac{1}{C_p} \right). \quad (1.16)$$

L'évolution tridimensionnelle du champ de pression dans un fluide est décrite par l'équation (1.15). Les termes de cette équation représentent respectivement l'atténuation ( $\delta/c_0^4 \cdot \partial^3 p/\partial t^3$ ), les effets non linéaires cumulatifs ( $-\beta/\rho_0 c_0^4 \cdot \partial^2 p^2/\partial t^2$ ) ou locaux ( $\left( \nabla^2 + \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) L$ ).  $\beta$  est le coefficient non linéaire.

## 1.4 Définition et interprétation du paramètre non linéaire

### 1.4.1 Définition du paramètre non linéaire $B/A$

Le paramètre non linéaire acoustique  $B/A$  est le rapport des termes quadratiques et des termes linéaires dans le développement en séries de Taylor de l'équation d'état liant les variations de pression aux variations de masse volumique correspondant à la réponse de la sollicitation du milieu par une onde acoustique.

Le processus de propagation d'une onde haute fréquence (pression  $p$ , masse volumique  $\rho$  ou vitesse particulaire  $v$ ) est considéré comme un phénomène isentropique. Le développement en série de Taylor de l'équation d'état  $P = P(\rho, s)$ , à entropie  $s$  et à densité constantes, s'écrit :

$$p = P - P_0 = \left( \frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_{\rho_0, s_0} (\rho - \rho_0) + \frac{1}{2!} \left( \frac{\partial^2 p}{\partial \rho^2} \right)_{\rho_0, s_0} (\rho - \rho_0)^2 + \dots, \quad (1.17)$$

$P_0$  et  $\rho_0$  sont respectivement les valeurs de la pression et de la densité à l'équilibre. Les dérivées partielles de l'équation (1.17) sont évaluées pour l'état non perturbé  $(\rho_0, s_0)$ . Cette équation devient :

$$p = P - P_0 = A \left( \frac{\rho'}{\rho_0} \right) + \frac{B}{2!} \left( \frac{\rho'}{\rho_0} \right)^2 + \dots, \quad (1.18)$$

où  $\rho' = \rho - \rho_0$  est la variation de masse volumique et

$$A = \rho_0 \left( \frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_{s,0} = \rho_0 c_0^2, \quad (1.19)$$

et

$$B = \rho_0^2 \left( \frac{\partial^2 p}{\partial \rho^2} \right)_{s,0}. \quad (1.20)$$

Ainsi, le paramètre non linéaire  $B/A$  s'écrit sous la forme :

$$\boxed{\frac{B}{A} = \frac{\rho_0}{c_0^2} \left( \frac{\partial^2 p}{\partial \rho^2} \right)_{s,0}}. \quad (1.21)$$

Le célérité de l'onde  $c$  se définit par :

$$c^2 = \left( \frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_s, \quad (1.22)$$

nous pouvons écrire :

$$\left( \frac{\partial^2 p}{\partial \rho^2} \right)_s = \left( \frac{\partial c^2}{\partial \rho} \right)_s = \left( \frac{\partial c^2}{\partial p} \right)_s \left( \frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_s = c^2 \left( \frac{\partial c^2}{\partial p} \right)_s = 2c^3 \left( \frac{\partial c}{\partial p} \right)_s. \quad (1.23)$$

## 1.4. DÉFINITION ET INTERPRÉTATION DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

---

En introduisant cette équation 1.23, la définition du paramètre non linéaire (équation 1.21) devient :

$$\frac{B}{A} = 2\rho_0 c_0 \left( \frac{\partial c}{\partial p} \right)_{s,0} . \quad (1.24)$$

Ainsi, la dérivée partielle de la vitesse par rapport à la pression à entropie constante s'exprime en fonction des variations isothermes de la vitesse par rapport à la pression et en fonction de la température à pression constante.

### 1.4.2 Interprétation physique du coefficient non linéaire

Le paramètre non linéaire  $B/A$  est défini par les équations (1.24) et (1.18) relatif au développement en série de Taylor de l'équation d'état. Ainsi, nous pouvons écrire :

$$\frac{c^2}{c_0^2} = 1 + \frac{B}{A} \left( \frac{\rho'}{\rho_0} \right) + \dots . \quad (1.25)$$

En effectuant un développement limité pour  $\frac{c^2}{c_0^2} \approx 1$ , le rapport  $\frac{c}{c_0}$  devient :

$$\frac{c}{c_0} = 1 + \frac{B}{2A} \left( \frac{\rho'}{\rho_0} \right) + \dots . \quad (1.26)$$

Pour une onde plane progressive où  $v = \frac{p}{\rho_0 c_0}$  est la vitesse particulière, la relation  $\rho'/\rho_0$  est égale à  $v/c_0$ . Ainsi, la vitesse du son s'écrit :

$$c = c_0 + \frac{B}{2A} v. \quad (1.27)$$

La variation de célérité  $\Delta c = c - c_0$  peut être reliée à la variation de pression  $\Delta p$  (équation 1.24) par :

$$\Delta c = \frac{1}{2\rho_0 c_0} \frac{B}{A} \Delta p, \quad (1.28)$$

soit :

$$c = c_0 + \frac{1}{2\rho_0 c_0} \frac{B}{A} \Delta p. \quad (1.29)$$

L'expression (1.29) montre que la célérité du son  $c$  diffère de  $c_0$  par un terme qui est proportionnel à l'excès local de pression et au paramètre non linéaire  $B/A$  du milieu. Par exemple, dans une phase de compression,  $\delta p$  est positif donc  $c > c_0$ , inversement,  $\delta p$  est négatif et donc  $c < c_0$ . Ainsi, certaines parties de l'onde se propagent plus ou moins rapidement que l'onde dans son ensemble produisant immédiate une déformation du front

#### 1.4. DÉFINITION ET INTERPRÉTATION DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

---

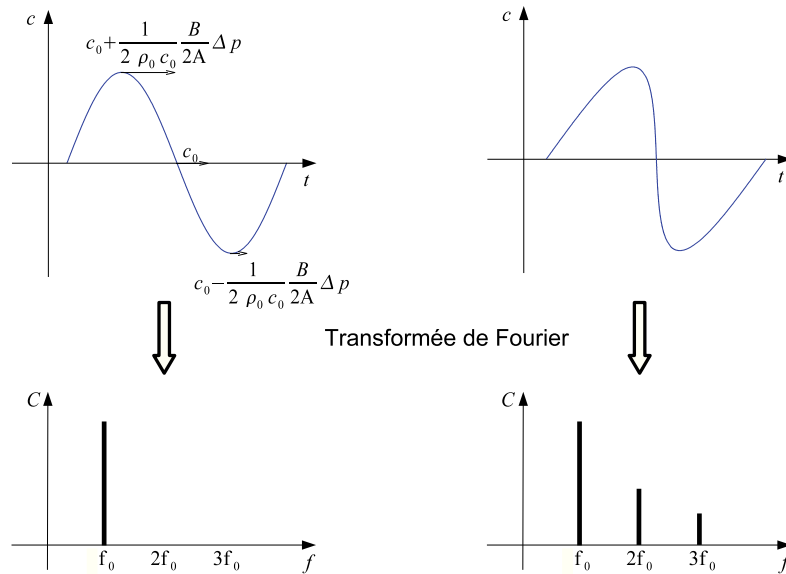


FIGURE 1.1 – Distorsion non linéaire de l'onde ultrasonore au cours de la propagation dans le domaine temporel et son impact dans le domaine fréquentiel.

d'onde. Nous constatons alors à un raidissement du front d'onde (figure 1.1). La déformation d'une onde de forme sinusoïdale dans le domaine temporel se traduit directement dans le domaine fréquentiel par l'apparition de composantes harmoniques multiples de la fréquence fondamentale de l'onde émise.

Le coefficient non linéaire est définie comme  $\beta = 1 + B/(2A)$  caractérisant la non-linéarité globale du milieu.

## 1.5 Équation KZK et ses approximations

Les équations décrivant la propagation non linéaire d'ondes acoustique dans un fluide dans le cas d'un transducteur faiblement focalisé sont exprimée par l'équation définie par Zabolotskaya et Khokhlov [Zabolotskaya et Khokhlov, 1969]. L'équation KZ prend en compte la faible diffraction et les effets non linéaire du fluide. Kuznetsov [Kuznetsov, 1971] prend en compte les effets d'atténuation en décrivant l'équation de la propagation non linéaire KZK.

### 1.5.1 Approximation parabolique

Considérons un faisceau ultrasonore relativement directif, se propageant dans un fluide suivant la direction  $O_z$ . L'approximation parabolique considère l'onde comme quasiment plane sur des distances de l'ordre de sa longueur d'onde et que son profil ne se modifie pas suivant sa direction de propagation. De plus, les variations transversales (suivant  $O_x$  et  $O_y$ ) sont plus rapides que celles intervenant dans la direction axiale. Pour traduire cela, un changement de variables est effectué sur l'équation (1.15) :  $x' = \sqrt{\epsilon}x$ ,  $y' = \sqrt{\epsilon}y$ ,  $z' = \epsilon z$  et  $\tau = t - z'/c_0$ .

L'équation de propagation ultrasonore non linéaire d'ordre deux dans un milieu fluide s'exprime :

$$\frac{\partial^2 p}{\partial z' \partial \tau} = \frac{c_0}{2} \nabla_{\perp}^2 p + \frac{\delta}{2c_0^3} \frac{\partial^3 p}{\partial \tau^3} + \frac{\beta}{2\rho_0 c_0^3} \frac{\partial^2 p^2}{\partial \tau^2}, \quad (1.30)$$

avec  $\nabla_{\perp}^2 = (\partial^2/\partial x'^2) + (\partial^2/\partial y'^2)$  l'opérateur Laplacien transverse bidirectionnel. Les paramètres qui définissent le milieu sont la diffusivité  $\delta$ , la célérité  $c_0$ , la densité  $\rho_0$  et le coefficient non linéaire  $\beta$ .

Cette équation est nommée l'équation KZK en l'honneur de ces auteurs Kuznetsov [Kuznetsov, 1971], Zabolotskaya et Khokhlov [Zabolotskaya et Khokhlov, 1969]. Les effets de la diffraction, de la dissipation et de la non-linéarité sur la propagation acoustique sont décrits dans l'équation de propagation ultrasonore non linéaire à l'ordre 2. L'équation KZK est adaptée aux ondes quasi-planes (transducteurs plans ou faiblement focalisés).



### 1.5.2 Approximation quasi-linéaire

Les champs de pression utilisés dans l'étude sont de faibles amplitudes. Dans ce cadre, l'approximation quasi-linéaire permet la résolution de l'équation KZK. La résolution s'effectue en combinant l'approximation et la décomposition en somme de faisceaux gaussiens explicitée dans le paragraphe suivant. Cette méthode introduite par Burvingt [Burvingt, 1976] présente l'avantage de fournir des expressions analytiques des champs de pression à l'harmonique 2, rayonnés par une source axisymétrique.

Dans le cadre de la méthode des approximations successives, la pression, restant faible, s'exprime sous la forme  $p = p_1 + p_2$  où  $p_1$  est la solution de l'équation KZK linéaire et  $p_2$  la solution de l'équation à l'ordre 2. L'hypothèse de régime quasi-linéaire indique que  $|p_2| \ll |p_1|$ .

L'approximation de l'équation KZK au premier et second ordre donne :

$$\frac{\partial p_1}{\partial z} + \frac{j}{2k} \nabla_{\perp}^2 p_1 + \alpha_1 p_1 = 0, \quad (1.31)$$

et

$$\frac{\partial p_2}{\partial z} + \frac{j}{4k} \nabla_{\perp}^2 p_2 + \alpha_2 p_2 = j \frac{\beta k}{\rho_0 c_0^2} p_1^2, \quad (1.32)$$

où  $\alpha_n = \delta n^2 \omega^2 / 2c_0^3$  est l'atténuation à la fréquence  $n\omega$ , et  $k$  est le nombre d'onde. La mise en équation implique qu'aucune pression harmonique n'existe à la surface du transducteur ( $z = 0$ ) se traduisant par  $p_2(r, 0, t) = 0$ .

La solution de ces équations est donnée à partir de la fonction de Green par les expressions suivantes :

$$p_1(r, z) = 2\pi \int_0^{\infty} p_1(r', 0) G_1(r, z|r', 0) r' dr', \quad (1.33)$$

et

$$p_2(r, z) = j \frac{2\pi k \beta}{\rho_0 c_0^2} \int_0^z \int_0^{\infty} p_1^2(r', z') G_2(r, z|r', z') r' dr' dz'. \quad (1.34)$$

La fonction de Green associée aux équations du champs de pression à l'ordre  $n$  s'écrit :

$$G_n(r, z|r', z') = \frac{jnk}{2\pi(z-z')} J_0\left(\frac{nkrr'}{z-z'}\right) e^{-\alpha_n(z-z') - \frac{jnk(r^2+r'^2)}{2(z-z')}}. \quad (1.35)$$

Les champs de pression à la fréquence du fondamental et du deuxième harmonique sont calculés par convolution du terme de source et la fonction de Green associée. L'approxi-

mation parabolique de la fonction de Green est gaussienne (équation 1.35). L'ensemble des calculs des champs de pression s'effectue dans la base de faisceaux gaussiens.

## 1.6 Décomposition en somme de gaussiennes

Wen et Breazeale sont à l'origine de la description du champ rayonné par un transducteur axisymétrique en une somme de faisceaux Gaussiens. Effectuer une telle décomposition permet de conserver les avantages des faisceaux gaussiens pour le calcul du faisceau ultrasonore et de la génération du second harmonique. Après détermination de la distribution radiale de la vitesse grâce aux coefficients complexes  $A_n$  et  $B_n$ , les expressions analytiques sont obtenues pour les champs de pression émis et reçus par un récepteur ponctuel ou de dimension finie. Ces expressions ont déjà été obtenues dans la littérature [Coulouvrat, 1991, Ding, 2000].

### 1.6.1 Distribution radiale de la vitesse

Considérons un transducteur ultrasonore comme un piston circulaire rigide axisymétrique de rayon  $a$ , le potentiel de vitesse s'exprime :

$$\phi = u(r, z) e^{(jkz)}, \quad (1.36)$$

où  $z$  est la direction de propagation du transducteur et  $r$  est l'axe orthogonal à la propagation.

L'équation d'onde en régime harmonique, dans un domaine qui n'est pas soumis à des forces extérieures, est définie par l'équation d'Helmholtz homogène.

$$\nabla^2 \phi + k^2 \phi = 0. \quad (1.37)$$

Le transducteur étant axisymétrique,  $\nabla^2 \phi$  devient  $\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial \phi}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2}$ . Les termes de l'équation (1.36) sont introduits dans l'équation d'Helmholtz homogène (1.37). Ainsi, l'équation devient :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + 2jk \frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial u}{\partial r} \right) = 0. \quad (1.38)$$

## 1.6. DÉCOMPOSITION EN SOMME DE GAUSSIENNES

---

Cette équation se simplifie car le terme  $\frac{\partial^2 u}{\partial z^2}$  est négligeable,  $(ka)^2$  étant très grand devant 1. Ainsi, l'équation (1.38) devient :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial u}{\partial r} \right) + 2jk \frac{\partial \phi}{\partial z} = 0. \quad (1.39)$$

La solution de l'équation parabolique (1.39) s'écrit :

$$u(r, z) = \frac{A}{B + 2jz/k} e^{-\frac{r^2}{B + (2jz/k)}}. \quad (1.40)$$

Ainsi, le potentiel de vitesse devient :

$$\phi(r, z) = \frac{A}{B + 2jz/k} e^{-\frac{r^2}{B + (2jz/k)}} e^{(jkz)}. \quad (1.41)$$

L'équation (1.41) décrit le potentiel de vitesse pour un terme de la décomposition. En pratique, le potentiel de vitesse s'écrit sous la forme d'une somme de  $N$  gaussiennes :

$$\phi(r, z) = \frac{j}{k} \sum_{n=1}^N \frac{A'_n}{B'_n + 2jz/k} e^{-\frac{r^2}{B'_n + (2jz/k)}} + jkz. \quad (1.42)$$

Un changement de variables est posé :

$$\delta = z/z_r = (2z)/(ka^2), \quad (1.43)$$

où  $z_r = (ka^2)/2$  est la distance de Rayleigh.

Le potentiel de vitesse devient :

$$\phi(r, \delta) = \frac{j}{k} \sum_{n=1}^N \frac{A_n}{1 + jB_n \delta} e^{-\frac{B_n(r/a)^2}{1 + jB_n \delta}} + jkz_r. \quad (1.44)$$

Wen et Breazeale [Wen et Breazeale, 1988] ont calculé les coefficients  $A_n$  et  $B_n$ .  $N$  est choisi égal à 15. La configuration expérimentale de ce travail assure qu'à cet ordre, la description du champ de pression fondamental par la décomposition en somme de gaussiennes est proche du résultat exact de Lommel pour un piston circulaire rigide [Rogers et Buren, 1974]. Ces derniers sont disponibles dans le tableau 1.1 jusqu'à l'ordre 15.

## 1.6. DÉCOMPOSITION EN SOMME DE GAUSSIENNES

---

TABLE 1.1 – Les coefficients  $A_n$  et  $B_n$  de la décomposition en somme de gaussiennes calculés à l'ordre 15.

n	$A_n$	$B_n$
1	$-2,9716 + 8,6187i$	$4,1869 - 5,1560i$
2	$-3,4811 - 0,9687i$	$3,8398 - 10,8004i$
3	$-1,3982 - 0,8128i$	$3,4355 - 16,3582i$
4	$0,0773 - 0,3303i$	$2,4618 - 27,7134i$
5	$2,8798 + 1,6109i$	$5,4699 + 28,6319i$
6	$0,1259 - 0,0957i$	$1,9833 - 33,2885i$
7	$-0,2641 - 0,6723i$	$2,9335 - 22,0150i$
8	$18,019 + 7,8291i$	$6,3036 + 36,7772i$
9	$0,0518 + 0,0182i$	$1,3046 - 38,4650i$
10	$-16,9438 - 9,9384i$	$6,5889 + 37,0680i$
11	$0,3708 + 5,4522i$	$5,5518 + 22,4255i$
12	$-6,6929 + 4,0722i$	$5,4013 + 16,7326i$
13	$-9,3638 - 4,9998i$	$5,1498 + 11,1249i$
14	$1,5872 - 15,4212i$	$4,9665 + 5,6855i$
15	$19,0024 + 3,6850i$	$4,6296 + 0,3055i$

La condition limite introduite par l'acoustique exprimée ci-dessous est introduite dans l'équation du potentiel de la vitesse (1.44).

$$V_0(r) = -\frac{\partial\phi}{\partial z}\Big|_{z=0} = -\frac{1}{z_r} \frac{\partial\phi}{\partial\delta}\Big|_{\delta=0}. \quad (1.45)$$

La distribution radiale de la vitesse à la surface du transducteur s'écrit sous la forme suivante :

$$V_0(r) = \sum_{n=1}^N A_n e^{-B_n\delta} \left( 1 - \frac{2B_n}{(ka)^2} \left( 1 - B_n \left( \frac{r}{a} \right)^2 \right) \right). \quad (1.46)$$

La condition  $(ka)^2 \gg 1$  permet de réduire l'équation 1.46 à l'équation suivante :

$$V_z(r, 0) = V_0 \sum_{n=1}^N A_n e^{-B_n \left( \frac{r}{a} \right)^2}. \quad (1.47)$$

### 1.6.2 Pression à la fréquence fondamentale

La notation utilisée dans la suite de cette étude indique la fréquence choisie qu'elle soit fondamentale ou harmonique, simple ou double. Les indices 1 et 2 identifient les fréquences respectivement fondamentale et harmonique. Les indices  $I$  et  $II$  représentent respectivement la fréquence d'excitation simple et double du transducteur. Ainsi, la pression à la fréquence fondamentale associée à la fréquence simple est notée  $P_{I,1}$  et celle associée à la fréquence double,  $P_{II,1}$ .

A partir de l'équation KZK et de la distribution radiale de la vitesse à la surface du transducteur émetteur, la pression à la fréquence fondamentale à la surface du transducteur s'écrit sous la forme :

$$P_{I,1}^{emi}(0) = \rho_{\omega} c V_0 \sum_{n=1}^N A_n e^{-B_n \left(\frac{r}{a}\right)^2}. \quad (1.48)$$

Considérons un récepteur ponctuel, typiquement un hydrophone, la pression à la fréquence fondamentale recueillie est :

$$P_{I,1}^{emi}(r, \delta, t) = \rho_{\omega} c V_0 \sum_{n=1}^N \frac{A_n}{1 - j B_n \delta} e^{-\frac{B_n \left(\frac{r}{a}\right)^2}{1 - j B_n \delta}} e^{j(\omega t - kz)}. \quad (1.49)$$

Les figures 1.2 montrent l'amplitude du champ de pression à la fréquence fondamentale du transducteur en différents points de la propagation dans le cas d'un transducteur avec une surface active de diamètre  $2a = 0,375''$  calculée par l'expression (1.49). L'amplitude normalisée du champ de pression en fonction de la distance de propagation est décrite en figure 1.2 (b). Le champ proche est clairement identifiable avec sa limite de champ proche de l'ordre de 40 mm. La figure 1.2 (d) montre le champ de pression émis suivant l'axe transversal du transducteur à la distance de sa limite de champ proche. Grâce à cette expression, la distribution du champ de pression émise à la surface du transducteur suivant l'axe transversal du transducteur est simulée en figure 1.2 (c). Le champ de pression émis à la surface du transducteur est bien sous la forme d'un piston.

Considérons un récepteur avec une dimension finie, typiquement un transducteur. Contrairement au récepteur ponctuelle, la surface du récepteur n'est plus négligeable. Le rayon du récepteur,  $b$ , est très grand devant la longueur d'onde. La pression reçue est alors recueillie sur l'ensemble de sa surface. De plus, le récepteur est considéré aligné avec l'émetteur. La

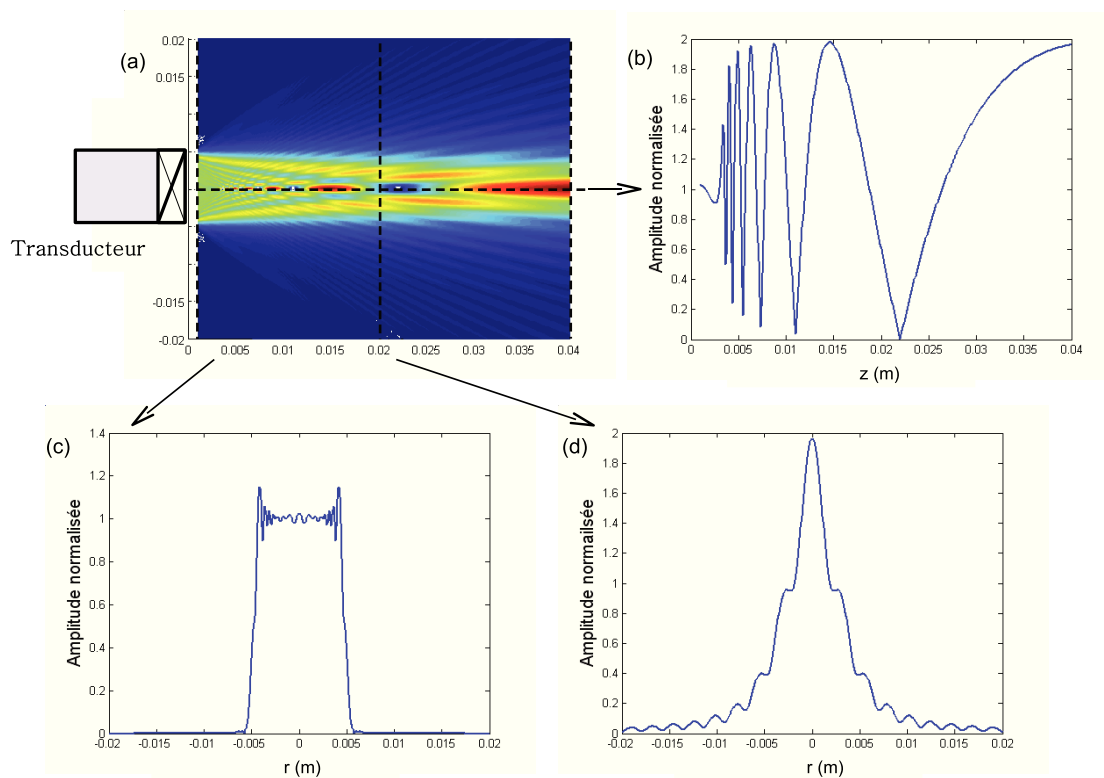


FIGURE 1.2 – Amplitude normalisée du champ de pression calculée à l'aide de la décomposition en somme de gaussiennes : (a) suivant l'ensemble des dimensions spatiales, (b) suivant l'axe de propagation, (c) à la surface du transducteur et (d) sur l'axe transversale à la distance de la limite du champ proche du transducteur.

pression moyennée à la surface du transducteur à la fréquence fondamentale se définit par :

$$\bar{P}_{I,1}^{rec}(r, \delta, t) = \int \int_S P_{I,1}^{emi}(r, \delta, t) \partial s. \quad (1.50)$$

Soit,

$$\bar{P}_{I,1}^{rec}(r, \delta, t) = \frac{\rho_\omega c V_0}{\pi b^2} \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^M \int_0^{2\pi} \int_0^b A_m e^{-B_m (\frac{r}{b})^2} \frac{A_n}{1 - j B_n \delta} e^{-\frac{B_n (\frac{r}{a})^2}{1 - j B_n \delta}} r \partial r \partial \varphi e^{j(\omega t - kz)}. \quad (1.51)$$

Dans le cas particulier où l'émetteur et le récepteur sont identiques, comme par exemple quand le transducteur est le seul à émettre et recevoir les champs de pression. Le diamètre de la surface active,  $a$ , est analogue à l'émission et à la réception. Après intégration suivant  $\varphi$  et  $r$ , la pression moyennée à la fréquence fondamentale devient :

$$\bar{P}_{I,1}^{rec}(r, \delta, t) = \bar{P}_0 = \rho_\omega c V_0 C \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^N \frac{A_m A_n}{B_m + B_n - j \delta B_n B_m} e^{j(\omega t - kz)}, \quad (1.52)$$

avec,  $C$  une constante donnée par :

$$C = \sum_{m=1}^N \frac{A_m}{B_m} (1 - e^{-B_m}). \quad (1.53)$$

La décomposition des champs de pression en somme de gaussiennes permet d'introduire les intégrations de somme de gaussiennes successives dans l'expression de la fonction de diffraction, la rendant dépendante de la géométrie du transducteur. Ainsi, la fonction de diffraction pour la fréquence fondamentale s'exprime sous la forme suivante :

$$D_G(z) = \sum_{m=1}^N \frac{A_m}{B_m} (1 - e^{-B_m}) \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^N \frac{A_m A_n}{B_m + B_n - j \delta B_n B_m} e^{j(\omega t - kz)}. \quad (1.54)$$

Cette fonction de diffraction est directement comparable avec l'expression exacte de la diffraction de Lommel. L'expression exacte de la fonction de diffraction de Lommel est décrite analytiquement par l'expression d'un piston circulaire rigide [Rogers et Buren, 1974].

$$D_L = 1 - e^{-2j\pi/s} \left[ J_0 \left( \frac{2\pi}{s} \right) + j J_1 \left( \frac{2\pi}{s} \right) \right], \quad (1.55)$$

où  $s$  est égale à  $4\pi d/(ka^2)$ . Et  $J_\nu$  est la fonction de Bessel à l'ordre  $\nu$ . Elle s'écrit :

$$J_\nu(z) = \left( \frac{z}{2} \right)^\nu \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\left( \frac{-z^2}{4} \right)^k}{k! \Gamma(\nu + k + 1)}. \quad (1.56)$$

Une comparaison entre l'expression exacte de la fonction de diffraction de Lommel et celle déterminée par la décomposition en somme de gaussiennes est effectuée pour un transducteur ayant un diamètre actif de 0,375" avec une fréquence de 2 MHz. La figure 1.3 représente la fonction de diffraction calculée par l'expression exacte de Lommel en vert et celle par la décomposition en somme de gaussiennes en bleu.

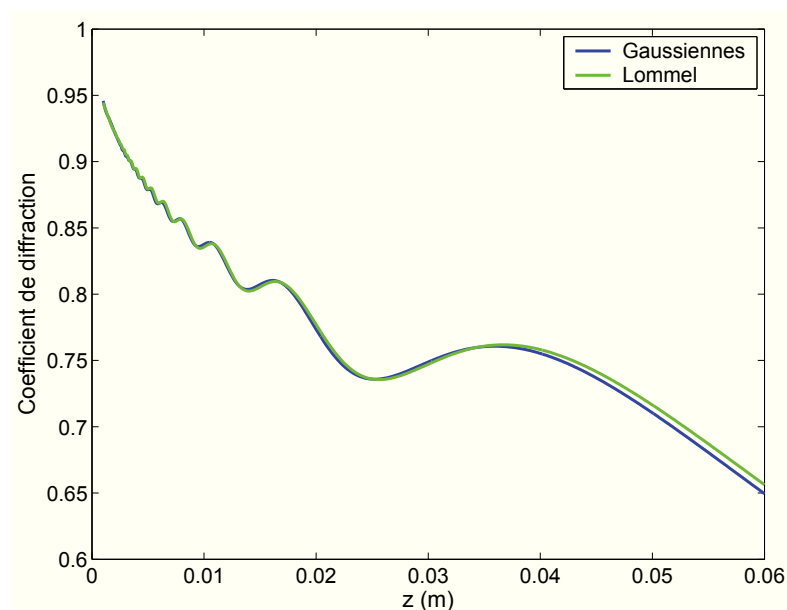


FIGURE 1.3 – Comparaison de la fonction de diffraction calculée sur l'axe de propagation par l'expression exacte de Lommel (vert) et celle par la décomposition en somme de gaussiennes (bleu).

L'écart de calcul entre les fonctions de diffraction est moins de 0,5% assurant que la fonction de diffraction déterminée par la décomposition en somme de gaussiennes correspond à la fonction de diffraction exact d'un transducteur.



### 1.6.3 Pression à la fréquence harmonique 2

La pression à l'harmonique s'exprime à partir de la solution de l'équation KZK et de la décomposition en somme de gaussiennes. La pression moyennée à la fréquence harmonique 2 reçue par un transducteur plan de rayon,  $a$ , s'exprime sous la forme [Coulouvrat, 1991, Bou Matar *et al.*, 2001, Labat *et al.*, 2000] :

$$\bar{P}_{I,2}^{rec}(z) = \int_0^{2\pi} \int_0^a \sum_{l=1}^N A_l e^{-B_l \left(\frac{r}{a}\right)^2} P_{I,2}^{rec}(r, z) r \partial r \partial \varphi. \quad (1.57)$$

La figure 1.4 montre le champ de pression harmonique normalisé reçu par un transducteur (trait plein) et par un récepteur ponctuel (pointillé) calculé par la décomposition en somme de gaussiennes. Une croissance de la pression harmonique apparaît au cours de la propagation dans le milieu non linéaire telle que l'eau.

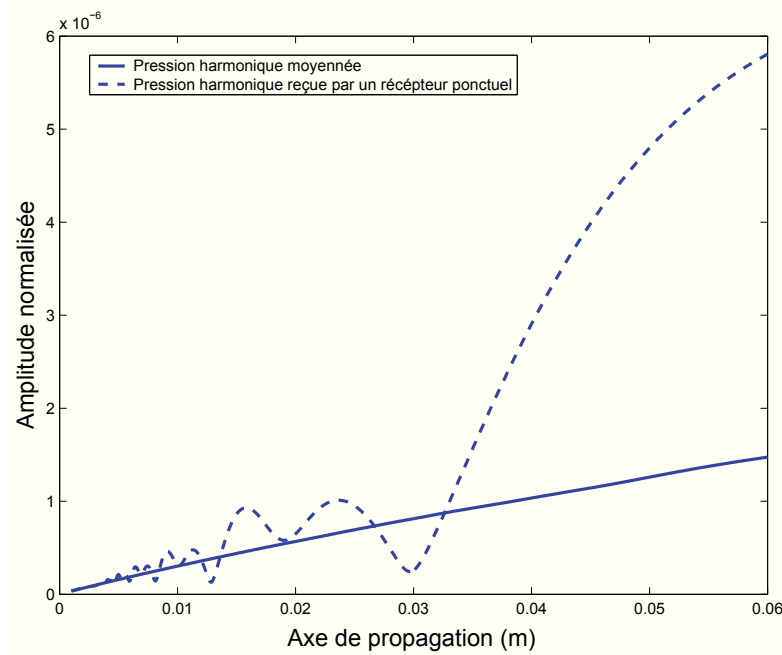


FIGURE 1.4 – Amplitude normalisée du champ de pression de la fréquence harmonique reçu par un transducteur (trait plein) et par un récepteur ponctuel (pointillé) sur l'ensemble de la propagation calculée à l'aide de la décomposition en somme de gaussiennes.

Après intégration suivant  $\varphi$  et  $r$ , la pression moyennée à la fréquence harmonique 2 s'écrit alors :

$$\bar{P}_{I,2}^{rec}(z) = \frac{\beta k \left( \bar{P}_{I,1}^{emi}(0) \right)^2}{2\rho c^2} z F(z), \quad (1.58)$$

avec  $c$  la célérité,  $\alpha$  le coefficient d'atténuation,  $\rho$  la densité et  $k$  le nombre d'onde.  $F(z)$  est le terme comportant l'atténuation et la diffraction exprimé en sommes de gaussiennes.

Le terme  $F(z)$  équivaut à la diffraction suivant la distance de propagation  $z$  quand la distribution de pression à la fréquence fondamentale est très proche d'une onde plane [Dunn *et al.*, 1981]. Impliquant que les effets de diffraction et d'atténuation sont additionnels et indépendants.

La pression moyennée à la fréquence harmonique devient :

$$\bar{P}_{I,2}^{rec}(z) = \frac{\beta k \left( \bar{P}_{I,1}^{emi} \right)^2}{2\rho c^2} \frac{e^{2\alpha_1 z} - e^{\alpha_2 z}}{\alpha_2 - 2\alpha_1} D_{I,2}(z). \quad (1.59)$$

Seul le facteur correctif lié à la diffraction,  $D_{I,2}$ , est en fonction de la géométrie du transducteur. Ce terme correspond à la fonction de diffraction de la pression harmonique générée dans le matériau d'étude.

Considérant le champ de pression reçu à l'harmonique, la fonction de diffraction définie par la décomposition en somme de gaussiennes s'exprime :

$$D_{I,2}(z) = \frac{ld}{z} \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^N \sum_{l=1}^N \frac{A_n A_m A_l}{a_{nml}} e^{\alpha \frac{b_{nml}}{a_{nml}} ld} \left[ E_1 \left( \alpha \frac{b_{nml}}{a_{nml}} ld \right) - E_1 \left( \alpha \left( z + \frac{b_{nml}}{a_{nml}} ld \right) \right) \right], \quad (1.60)$$

où les termes  $a_{nml}$  et  $b_{nml}$  sont respectivement définis par les coefficients de Wen et Breazeale :

$$\begin{aligned} a_{nml} &= 2z/(lh)B_n B_m B_l + jB_l(B_n + B_m) + j4B_n B_m, \\ b_{nml} &= -2B_l + jzB_l(B_n + B_m) - 2(B_n + B_m). \end{aligned} \quad (1.61)$$

### **Conclusion**

Dans ce chapitre, les équations de l'acoustique non linéaire ont été présentées. Le formalisme introduit par Zabolotskaya, Khokhlov et Kuznetsov assure que l'expression de l'équation KZK prend en compte les effets de diffraction, d'atténuation et non linéaire dans un fluide. La décomposition en somme de gaussiennes exprime la solution de l'équation KZK. Ainsi, le champs de pression à la fréquence fondamentale et harmonique est déduit. Afin de déterminer les paramètres acoustiques linéaires et non linéaire, le principe des mesures ultrasonores est exposé dans le chapitre suivant.



## Chapitre 2

# Principe des mesures ultrasonores linéaire et non linéaire

Afin de déterminer le paramètre non linéaire, il est nécessaire de mesurer le champ de pression à la fréquence harmonique deux générée dans le matériau d'étude. Une méthode assurant la calibration du transducteur a été choisie afin d'obtenir les pressions absolues afin de déterminer le coefficient non linéaire. La charge acoustique variant au cours de la formation du matériau, la calibration doit être possible à chaque instant. La méthode de mesure choisie est une méthode en émission-réception. Elle ne requiert qu'un transducteur assurant l'émission et la réception du signal acoustique. La détermination des paramètres acoustiques linéaires et non linéaire est présentée dans ce chapitre.

## 2.1 Méthode auto-calibrée de mesure du paramètre non linéaire $B/A$ en émission-réception

La méthode auto-calibrée de mesure de  $B/A$  en émission-réception présentée ici est basée sur le principe de réciprocité décrit pour la première fois par MacLean en 1940 [MacLean, 1940]. Le concept a été généralisé pour un transducteur électroacoustique par Foldy et Primakoff [Carstensen, 1947, Foldy et Primakoff, 1945, Drost et Milanowski, 1980] et adapté aux solides en contact [Dace *et al.*, 1991]. La calibration du transducteur en contact a été étendue et validée dans le domaine temporel [Bou Matar *et al.*, 2002]. Van Neer a proposé récemment une méthode de mesure de la phase d'un transducteur ultrasonore en émission-réception [van Neer *et al.*, 2010].

Calibrer un transducteur permet de quantifier sa transduction électro-acoustique. Grâce à des mesures électriques, il est possible de connaître avec précision les niveaux de pressions générés et reçus par un transducteur à la fréquence fondamentale et à l'harmonique chargé par le milieu à caractériser. Cette calibration est nécessaire à la mesure du paramètre non linéaire  $B/A$ .

Les fonctions de transferts en émission et en réception du transducteur dépendent de son environnement électrique et mécanique. Lors des expériences, l'environnement électrique est gardé identique, mais le milieu de propagation est en évolution. Dans ce cas, la calibration doit être réalisée à chaque instant pour permettre de déterminer les valeurs absolues des paramètres acoustiques tout le long de l'évolution du milieu.

### 2.1.1 Principe

La méthode auto-calibrée est ici utilisée avec un unique transducteur en émission-réception. Une onde acoustique est générée dans le milieu à caractériser. Les ondes ultrasonores se propagent puis sont réfléchies par un réflecteur acoustique. Le champ de pression effectue le trajet retour avant de solliciter la surface du transducteur en tant que récepteur.

Maclean [MacLean, 1940] à l'origine de l'utilisation du principe de réciprocité établit la relation entre l'excitation électrique et la pression absolue délivrée par le transducteur électroacoustique. Le rapport des sensibilités du transducteur en émission et en réception

## 2.1. MÉTHODE AUTO-CALBRÉE DE MESURE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ EN ÉMISSION-RÉCEPTION

---

est indépendant de la caractéristique du transducteur. Il est uniquement dépendant du milieu à travers lequel se propage l'onde acoustique.

Le schéma électrique équivalent transcrivant le champ de pression reçu en énergie électrique est décrit figure 2.1. Une source de tension de Thevenin équivalente,  $E^{in}$ , délivre une tension aux bornes du transducteur. Le transducteur est modélisé par son impédance électrique,  $Z_t$ . En émission, les courant et tension mesurés à l'entrée sont notés respectivement  $I^{in}$  et  $V^{in}$ . En réception, les courant et tension à la sortie sont  $I^{out}$  et  $V^{out}$ .

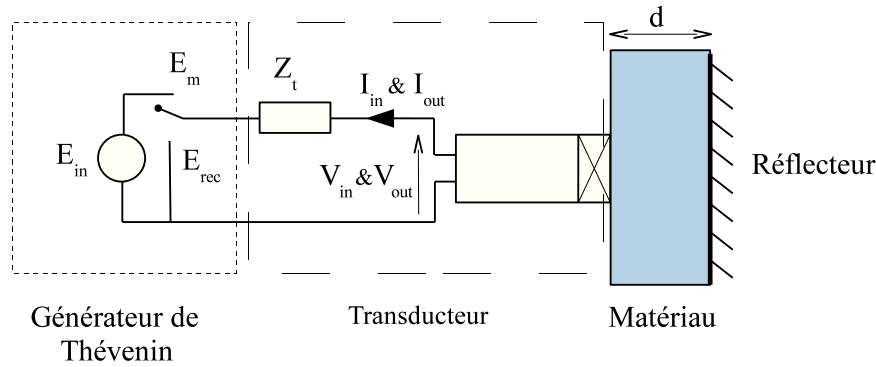


FIGURE 2.1 – Schéma électrique du transducteur acoustique définissant sa source de tension et son impédance électrique et décrivant le principe de la méthode auto-calibrée ainsi que les courants et tensions de l'entrée et de sortie aux bornes du transducteur.

### 2.1.2 Sensibilités du transducteur en contact

Toutes les fonctions de transferts sont exprimées en fonction du courant de sortie du transducteur,  $I^{out}$ . Afin d'établir les fonctions de transfert du transducteur en émission et en réception, les sensibilités du transducteur doivent être définies.

En émission, la sensibilité du transducteur,  $S(Z_t)$ , se définit avec une pression reçue nulle sur la surface du transducteur.

$$S(Z_t) = \left( \frac{P^{emi}}{E^{in}} \right)_{p_r=0}. \quad (2.1)$$

$P^{emi}$  est la pression que le transducteur va émettre pour une excitation  $E^{in}$  délivrée par la source de tension de Thevenin équivalente.

## 2.1. MÉTHODE AUTO-CALBRÉE DE MESURE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ EN ÉMISSION-RÉCEPTION

---

En réception, la source de tension de Thevenin équivalente est considérée éteinte pour définir la sensibilité du transducteur,  $M(Z_t)$ .

$$M(Z_t) = \left( \frac{I^{out}}{P^{rec}} \right)_{E^{in}=0}. \quad (2.2)$$

Le rapport des sensibilités s'exprime par :

$$\frac{M(Z_t)}{S(Z_t)} = J, \quad (2.3)$$

avec  $J$  étant la constante de réciprocité. Si le rayon du transducteur est très grand devant la longueur d'onde, nous pouvons considérer la propagation ultrasonore en onde plane. La constante de réciprocité est alors égale à  $2A/Z_{mat}$ . Les grandeurs sont respectivement  $A = \pi a^2$ , la surface active du transducteur de rayon  $a$ ; et  $Z_{mat}$ , l'impédance acoustique du milieu chargeant le transducteur.

La pression reçue par le transducteur en fonction de la pression émise s'exprime par :

$$P^{rec} = P^{emi} e^{-j2kd} e^{-2\alpha d} D R, \quad (2.4)$$

où  $D$  est la fonction de diffraction et  $R$  le coefficient de réflexion défini par :

$$R = \frac{Z_{refl} - Z_{mat}}{Z_{refl} + Z_{mat}}, \quad (2.5)$$

avec  $Z$  les impédances acoustiques du réflecteur et du matériau notées respectivement  $Z_{refl}$  et  $Z_{mat}$ .

La sensibilité en émission du transducteur peut alors s'écrire :

$$S(Z_t) = \left( \frac{P^{emi}}{E^{in}} \right)_{p_r=0} = \frac{P^{rec}}{I^{out}} \frac{I^{out} e^{jk2d} e^{2\alpha d}}{E^{in} D R}, \quad (2.6)$$

où, la force électromotrice de la source de tension de Thevenin équivalente,  $E^{in}$  est égale à :

$$E^{in} = V^{in} - Z_t I^{in}, \quad (2.7)$$

avec  $Z_t$ , l'impédance électrique du transducteur valant :  $V^{out}/I^{out}$ .

En utilisant les équations (2.2) et (2.3) avec l'équation de la sensibilité du transducteur en émission (2.6), nous obtenons :

$$S^2(Z_t) = \frac{I^{out} Z_{mat} e^{2\alpha d} e^{j2kd}}{2A E^{in} D R}. \quad (2.8)$$



## 2.1. MÉTHODE AUTO-CALIBRÉE DE MESURE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ EN ÉMISSION-RÉCEPTION

---

Ainsi, la sensibilité du transducteur en émission est donnée par l'expression suivante en fonction du courant de sortie :

$$S(Z_t) = \sqrt{\frac{I^{out} Z_{mat} e^{2\alpha d} e^{j2kd}}{2A E^{in} D R}}. \quad (2.9)$$

En partant de la définition de la sensibilité du transducteur en réception, nous pouvons écrire :

$$M(Z_t) = \left( \frac{I^{out}}{P^{rec}} \right)_{E^{in}=0} = \frac{E^{in}}{P^{emi}} \frac{I^{out}}{e^{-jk2d} e^{-2\alpha d} E^{in} D R}. \quad (2.10)$$

En combinant les équations (2.2), (2.3) et (2.1), nous obtenons :

$$M(Z_t) = \sqrt{\frac{I^{out} 2A}{E^{in} D R Z_{mat} e^{-2\alpha d} e^{j2kd}}}. \quad (2.11)$$

Après avoir déterminé, les sensibilités du transducteur, les fonctions de transfert du transducteur peuvent être définies.

### 2.1.3 Fonctions de transfert en émission et en réception

Les expressions des fonctions de transfert se déduisent des sensibilités respectives en émission et réception du transducteur (équations 2.9 et 2.11). La fonction de transfert du transducteur en émission est ici définie par le rapport de la pression émise sur le courant de sortie :

$$H^{emi} = \frac{P^{emi}}{I^{out}}. \quad (2.12)$$

Ainsi, en utilisant la définition de la sensibilité en émission (équation 2.1) et son expression (équation 2.9), la fonction de transfert du transducteur en émission s'écrit :

$$H^{emi} = \sqrt{\frac{Z_{mat} E^{in}}{2A I^{out} D R}} e^{\alpha d} e^{jkd}. \quad (2.13)$$

La fonction de transfert du transducteur en réception est définie comme le rapport de la pression reçue sur le courant de sortie :

$$H^{rec} = \frac{P^{rec}}{I^{out}}. \quad (2.14)$$

De la même manière que précédemment en utilisant les expressions (2.2) et (2.11), nous obtenons :

$$H^{rec} = \sqrt{\frac{Z_{mat} E^{in} D R}{2A I^{out}}} e^{-\alpha d} e^{jkd}. \quad (2.15)$$

## 2.1. MÉTHODE AUTO-CALIBRÉE DE MESURE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ EN ÉMISSION-RÉCEPTION

---

Dans le cas ci-dessus, les fonctions de transfert sont définies à partir des courants et des tensions d'entrée et de sortie aux bornes du transducteur.

Dans le chapitre 1.6.3, l'expression de la pression harmonique reçue,  $P_{I,2}^{rec}$ , par le transducteur (équation 1.59) dépend notamment du paramètre non linéaire  $\beta$  et de la pression fondamentale au carré,  $(P_{I,1}^{emi})^2$ . Une calibration du transducteur en émission et en réception aux fréquences fondamentale et double permettent de déterminer les niveaux de pression émis et reçus par le transducteur. Soit la pression émise à la fréquence fondamentale est définie par :  $P_{I,1}^{emi} = H_I^{emi} I_{I,1}^{out}$  et la pression reçue à la fréquence double par  $P_{II,1}^{rec} = H_{II}^{rec} I_{II,1}^{out}$ . Le paramètre  $\beta$  peut alors être déduit.

Par conséquent, les fonctions de transfert suivantes sont définies comme :

- $H_I^{emi}$  est la fonction de transfert du transducteur en émission associée à la fréquence fondamentale,
- $H_I^{rec}$  est la fonction de transfert du transducteur en réception associée à la fréquence fondamentale,
- $H_{II}^{rec}$  est la fonction de transfert du transducteur en réception associée à la fréquence double.

Notons que  $H_I^{emi}$  et  $H_{II}^{rec}$  assurerons la détermination les paramètres acoustiques linéaires par la prise en compte de la variation de la charge acoustique. Elles s'expriment par :

$$H_I^{emi} = \frac{P_{I,1}^{emi}}{I_{I,1}^{out}} = \sqrt{\frac{Z_{mat} E_I^{in}}{2A I_{I,1}^{out} D_{I,1} R_1}} e^{\alpha_1 d} e^{jk_1 d}, \quad (2.16)$$

et,

$$H_I^{rec} = \frac{P_{I,1}^{rec}}{I_{I,1}^{out}} = \sqrt{\frac{Z_{mat} E_I^{in} D_{I,1} R_2}{2A I_{I,1}^{out}}} e^{-\alpha_1 d} e^{jk_1 d}. \quad (2.17)$$

Les fonctions de transfert  $H_I^{emi}$  et  $H_{II}^{rec}$  quant à elles permettent de déterminer le niveau de pression respectivement du champ de pression émis à la fréquence fondamentale et reçu à la fréquence harmonique. Cette dernière s'écrit sous la forme :

$$H_{II}^{rec} = \frac{P_{II,1}^{rec}}{I_{II,1}^{out}} = \sqrt{\frac{Z_{mat} E_I^{in} D_{II,1} R_2}{2A I_{II,1}^{out}}} e^{-\alpha_2 d} e^{jk_2 d}. \quad (2.18)$$

La procédure de calibration assure la détermination des fonctions de transfert du transducteur en émission et en réception. La connaissance de ces dernières permet de calculer

## 2.1. MÉTHODE AUTO-CALBRÉE DE MESURE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ EN ÉMISSION-RÉCEPTION

---

les paramètres acoustiques linéaires et ainsi, de prendre en compte la variation de la charge acoustique du matériau en évolution. De plus, connaissant de  $H_I^{emi}$  et  $H_{II}^{rec}$  et des courants de sortie, les champs de pressions émis et reçus sont déduits respectivement aux fréquences fondamentale et harmonique.

## 2.2 Détermination des paramètres linéaires

Dans ce paragraphe, la détermination des paramètres linéaires est présentée. La célérité et l'atténuation des ondes ultrasonores sont déterminées à partir de la mesure de la pression reçue par le transducteur.

### 2.2.1 Expression de la pression reçue

La pression reçue aux bornes du transducteur s'exprime sous la forme suivante :

$$P_I^{rec} = P_I^{emi} e^{-jk_I 2d} e^{-\alpha_1 2d} R_1 D_I, \quad (2.19)$$

Afin d'assurer une homogénéité des expressions, les fonctions de transfert sont définies à partir des courants de sortie (équations 2.12 et 2.14).

Les propriétés du matériau d'étude sont variables au cours du temps. La charge mécanique appliquée à la surface du transducteur dépend aussi de cette évolution. Cette variation de charge induit des variations sur la pression à l'émission et à la réception et donc sur le courant de sortie au cours de l'évolution du matériau. La pression reçue est comparée avec sa valeur au premier instant de la réaction. Les variables évaluées au premier instant de la réaction sont notées  $\tilde{X}$ . Dans le cas contraire, la valeur dépendra du temps. Le rapport des courants de sortie entre le premier instant et les instants aux cours de l'évolution ( $t \neq 0$ ) devient :

$$\frac{P_I^{rec}}{\tilde{P}_I^{rec}} = \frac{P_I^{emi}}{\tilde{P}_I^{emi}} e^{-j2d(k_I - \tilde{k}_I)} e^{-(\alpha_1 - \tilde{\alpha}_1)2d} \frac{R_1}{\tilde{R}_1} \frac{D_I}{\tilde{D}_I}. \quad (2.20)$$

L'équation (2.20) montre que les variations de la pression reçue,  $P_I^{rec}$ , dépendent des variations du coefficient de réflexion, de la diffraction. Grâce à la définition des pressions, les fonctions de transfert en émission et en réception sont introduites :

$$\frac{P_I^{rec}}{\tilde{P}_I^{rec}} \frac{\tilde{P}_I^{emi}}{P_I^{emi}} = \frac{H_I^{rec}}{\tilde{H}_I^{rec}} \frac{\tilde{H}_I^{emi}}{H_I^{emi}}. \quad (2.21)$$

Les différents rapports :  $R_1/\tilde{R}_1$ ,  $D_I/\tilde{D}_I$ ,  $H_I^{emi}/\tilde{H}_I^{emi}$  et  $H_I^{rec}/\tilde{H}_I^{rec}$  ne peuvent plus être considéré constant pour des matériaux dont les propriétés visco-élastiques évoluent au cours du temps. Ils doivent être déterminés à chaque instant.

### 2.2.2 Célérité des ondes ultrasonores

L'équation (2.20) devient :

$$e^{(\alpha_1 - \tilde{\alpha}_1)2d} e^{j2d(k - \tilde{k})} = \frac{H_I^{emi}}{\tilde{H}_I^{emi}} \frac{R_1}{\tilde{R}_1} \frac{D_I}{\tilde{D}_I} \frac{\tilde{H}_I^{rec}}{H_I^{rec}}. \quad (2.22)$$

Afin de déterminer l'expression de la célérité des ondes ultrasonores dans le matériau d'étude en évolution, l'argument de l'équation (2.22) est évalué :

$$c = \frac{1}{\frac{1}{c} + \frac{+arg(D_I/\tilde{D}_I) + arg(H_I^{emi}/\tilde{H}_I^{emi}) + arg(\tilde{H}_I^{rec}/H_I^{rec})}{2\omega d}}. \quad (2.23)$$

Dans notre cas, la gamme de fréquence utilisée est proche de la fréquence de résonance du transducteur. A la fréquence de résonance du transducteur, l'argument de la fonction de transfert est de zéro degré. La partie imaginaire de l'impédance d'entrée du transducteur étant proche de zéro cela signifie que la pression et le courant peuvent être considérés en phase. Ainsi, les arguments des rapports des fonctions de transfert sont négligeables. De plus, les matériaux d'étude étant faiblement atténuant, la variation de phase est faible. Ainsi, la célérité des ondes acoustiques sera exprimée par :

$$c = \frac{1}{\frac{1}{c^{init}} + \frac{arg(D/D^{init})}{2\omega d}}. \quad (2.24)$$

### 2.2.3 Atténuation des ondes ultrasonores

L'expression de l'atténuation des ondes ultrasonores est définie à partir du module de l'équation (2.22) :

$$\alpha = \tilde{\alpha} - \frac{1}{2d} \ln \left( \frac{\tilde{H}_I^{emi}}{H_I^{emi}} \frac{H_I^{rec}}{\tilde{H}_I^{rec}} \frac{\tilde{R}_1}{R_1} \frac{\tilde{D}_I}{D_I} \right). \quad (2.25)$$

Pour calculer l'atténuation absolue, il faut prendre en compte l'influence de la charge acoustique du transducteur. Ainsi, la détermination de l'atténuation passe par la connaissance du coefficient de réflexion, du coefficient de diffraction et des fonctions de transfert du transducteur. Les deux coefficients de réflexion et de diffraction sont directement évalués à partir de leurs expressions mentionnées dans le chapitre précédent (paragraphe 1.6). Les fonctions de transfert du transducteur en émission et en réception (équations 2.13 et 2.15)

## 2.2. DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES LINÉAIRES

dépendent de l'atténuation dans le milieu. Une procédure récursive est par conséquent mise en place pour déterminer l'atténuation.

Dans un premier temps, l'atténuation est évaluée seulement à partir des coefficient de réflexion.

$$\alpha_{est} = \tilde{\alpha} - \frac{1}{2d} \ln \left( \frac{\tilde{R}_1}{R_1} \right). \quad (2.26)$$

Cette valeur estimée (équation 2.26) permet le calcul des fonctions de transfert du transducteur au cours de la formation du matériau. Ainsi, la valeur de l'atténuation (équation 2.25) peut être déterminée à partir de la connaissance des fonctions de transfert  $H_I^{emi}$  et  $H_I^{rec}$  au cours du temps. La valeur ainsi obtenue permet de calculer à nouveau les fonctions de transfert du transducteur. Ces dernières recalculées permettrons de déterminer l'expression de l'atténuation (équation 2.25). Il suffit de 5 itérations pour que le calcul converge avec une précision de 0,5%.

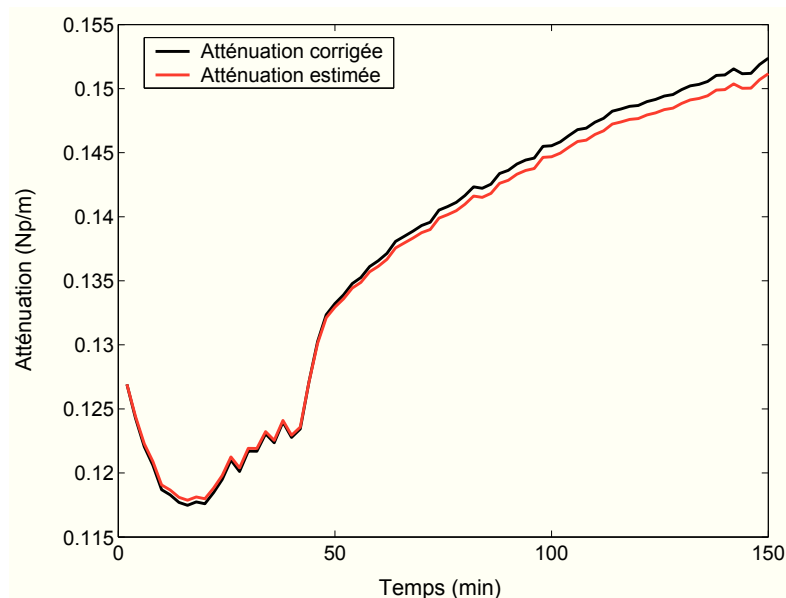


FIGURE 2.2 – Mesure de l'atténuation dans un matériau sol-gel avec (noir) et sans (rouge) la prise en compte de la fonction de transfert du transducteur.

La figure 2.2 montre dans un cas expérimental l'influence de la prise en compte de la fonction de transfert sur le calcul de l'atténuation. Les courbes en rouge et en bleu représente respectivement l'atténuation estimée à partir de l'équation (2.26) et l'atténuation

## 2.2. DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES LINÉAIRES

---

corrigée prenant en compte la fonction de transfert. L'évolution de la charge implique une évolution de la fonction de transfert. Cette évolution influence directement la mesure de l'atténuation. Dans la suite de notre étude, l'atténuation des ondes ultrasonores est déterminée à partir de l'expression de l'atténuation corrigée (équation 2.25).

## 2.3 Détermination du coefficient non linéaire

Le coefficient non linéaire est déduit de l'expression de la pression à la fréquence harmonique 2 reçue par le transducteur après propagation à travers le milieu d'étude. La pression est déterminée à partir de la fonction de transfert,  $H_{II}^{rec}$ , et de la composante du second harmonique du spectre de  $I_I^{out}$  (paragraphe 2.1.3). Grâce à la décomposition en sommes de gaussiennes, le coefficient non linéaire est déduit des mesures de la pression à la fréquence harmonique 2 reçue.

### 2.3.1 Expression de la pression à la fréquence harmonique 2 reçue

Dans la méthode en émission-réception, les ondes ultrasonores sont générées et se propagent à travers le milieu d'études puis sont réfléchies avant d'être recueillies à la surface du transducteur. Dans l'hypothèse de régime quasi-linéaire, la pression à la fréquence harmonique reçue 2 se décompose en deux termes :

$$P_{I,2}^{rec} = P_{I,2}^A + P_{I,2}^R. \quad (2.27)$$

Les deux pressions  $P_{I,2}^A$  et  $P_{I,2}^R$  introduites par l'équation (équation 2.27) respectivement la pression à la fréquence harmonique 2 générée dans le milieu lors de la propagation aller des ondes ultrasonores et celle générée dans le milieu de propagation lors du retour des ondes ultrasonores sont données par les équations suivantes [Vander Meulen et Haumesser, 2008] :

$$P_{I,2}^A = \frac{-jk_2^2 \beta \left( P_{I,1}^{emi} \right)^2 R_1}{8\pi \rho c^2} e^{2\alpha_2 f^2 h} e^{-2jk_2 h} D_1, \quad (2.28)$$

et,

$$P_{I,2}^R = \frac{-jk_2^2 \beta \left( P_{I,1}^{emi} R_1 \right)^2}{8\pi \rho c^2} e^{2\alpha_2 f^2 h} e^{-2jk_1 h} e^{\alpha_1 (2f)^2 h} e^{-2jk_2 h} D_2. \quad (2.29)$$

Lors de l'aller, les ondes mécaniques se propagent jusqu'au réflecteur. Elles sont alors réfléchies. La propagation des ondes allant du réflecteur au transducteur est qualifiée de propagation retour.

Afin d'illustrer la propagation des champs de pressions à la fréquence harmonique 2, le calcul a été effectué sur un matériau inerte, modèle utilisé comme référence dans l'application au chapitre 4. Ce matériau modèle inerte est un mélange d'eau et de méthanol dans



### 2.3. DÉTERMINATION DU COEFFICIENT NON LINÉAIRE

les proportions volumiques 90/10 simulant le matériau d'étude dans son état initial. Ces caractéristiques vitesse, atténuation et densité sont connues.

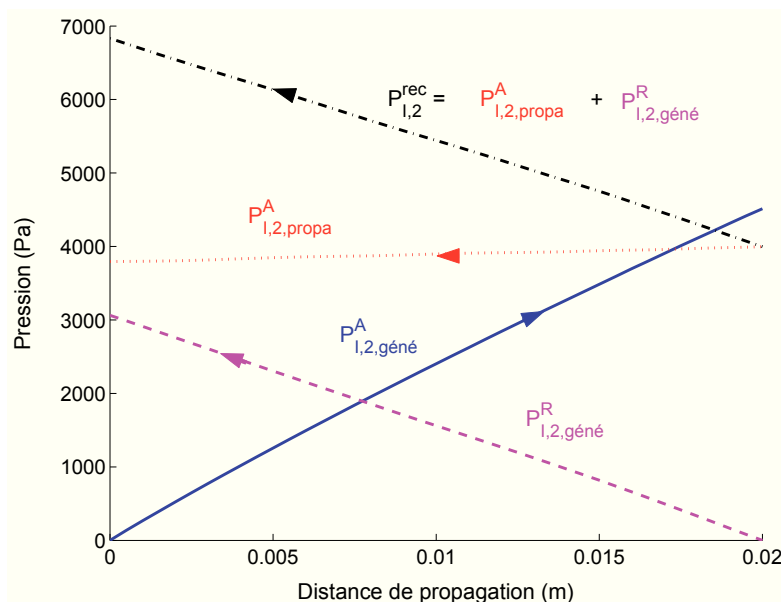


FIGURE 2.3 – Propagation de la pression à la fréquence harmonique 2 générée à l'intérieur dans un mélange eau/méthanol simulant l'état initial du matériau d'étude calculée grâce à la décomposition en sommes de gaussiennes avec un réflecteur (aluminium) dont l'impédance acoustique est plus grande que celle du matériau d'étude.

La figure 2.3 montre les pressions générées au cours de la propagation dans un matériau d'étude. Sur l'axe des abscisses, la distance de propagation dans le milieu avec à gauche le transducteur et à droite la surface réfléchissante est représentée. L'amplitude des pressions représentée sur le graphique est indiquée sur l'axe des ordonnées.

Considérons les pressions se propageant lors de l'aller, en trait plein est représenté la pression à la fréquence harmonique 2 générée,  $P_{I,2,géné}^A$ . Cette pression est alors réfléchi à l'interface entre le milieu d'étude et l'aluminium. La pression à la fréquence harmonique 2 générée lors de l'aller se propage linéairement après réflexion,  $P_{I,2,propa}^A$ . Après réflexion des ondes ultrasonores, la pression générée au retour à partir de la pression à la fréquence fondamentale réfléchi est notée  $P_{I,2,géné}^R$ . La somme des deux pressions  $P_{I,2,propa}^A$  et  $P_{I,2,géné}^R$  représente la pression à la fréquence harmonique 2 reçue par le transducteur après propagation aller-retour dans le milieu d'étude,  $P_{I,2}^{rec}$ .

Lors de l'aller, la pression à la fréquence harmonique 2 générée,  $P_{I,2,gene}^A$ , croît jusqu'à la surface de réflexion pour atteindre 4500 Pa. Le coefficient de réflexion est dans ce cas proche de 1 (ici 0,89), la pression à la fréquence harmonique 2 générée lors de l'aller se réfléchit quasiment sans perte. Cette pression se propage linéairement jusqu'à la surface du transducteur. La pression à la fréquence fondamentale se réfléchit à l'interface aluminium et le matériau d'étude. Lors du retour, la pression à la fréquence fondamentale après réflexion génère dans le matériau d'étude une pression à la fréquence harmonique 2 croissante,  $P_{I,2,gene}^R$ . Ainsi, la pression à la fréquence harmonique 2 générée dans l'ensemble du matériau est la somme des pressions à la fréquence harmonique 2 générées lors de l'aller et du retour. Elle représente dans cet exemple 7000 Pa.

La génération non linéaire se cumule lors de l'aller et du retour des ondes mécaniques de pressions. Si les ondes sont en phase, alors la génération est croissante.

#### 2.3.2 Influence du réflecteur

Le rapport des impédances acoustiques entre le matériau d'étude et l'aluminium influence directement sur le coefficient de réflexion. Afin d'avoir une réflexion optimale des ondes, le contraste acoustique doit être élevé. De plus, il faut que les ondes mécaniques soient en phase afin que la génération non linéaire soit constructive. Ainsi, deux types de réflecteurs peuvent être différenciés : ceux dont l'impédance acoustique est plus faible et ceux dont l'impédance acoustique est plus grande que celle du matériau d'étude. Dans le paragraphe précédent, la propagation des pressions à la fréquence harmonique 2 générée dans le matériau d'étude a été décrite quand le réflecteur a une impédance acoustique plus grande que celle du matériau.

La figure 2.4 montre la propagation des pressions à la fréquence harmonique 2 générées à l'intérieur du matériau d'étude avec un réflecteur dont l'impédance acoustique est plus faible que celle du matériau d'étude. Lors de l'aller, la génération de la pression à la fréquence harmonique 2 s'effectue comme dans le cas précédent. En effet, la pression croît pour atteindre une pression générée lors de l'aller à la surface du réflecteur de 4500 Pa. Cette pression à la fréquence harmonique 2,  $P_{I,2,propa}^A$ , se propage linéairement lors du retour. La pression à la fréquence fondamentale émise et propagée lors de l'aller génère une

### 2.3. DÉTERMINATION DU COEFFICIENT NON LINÉAIRE

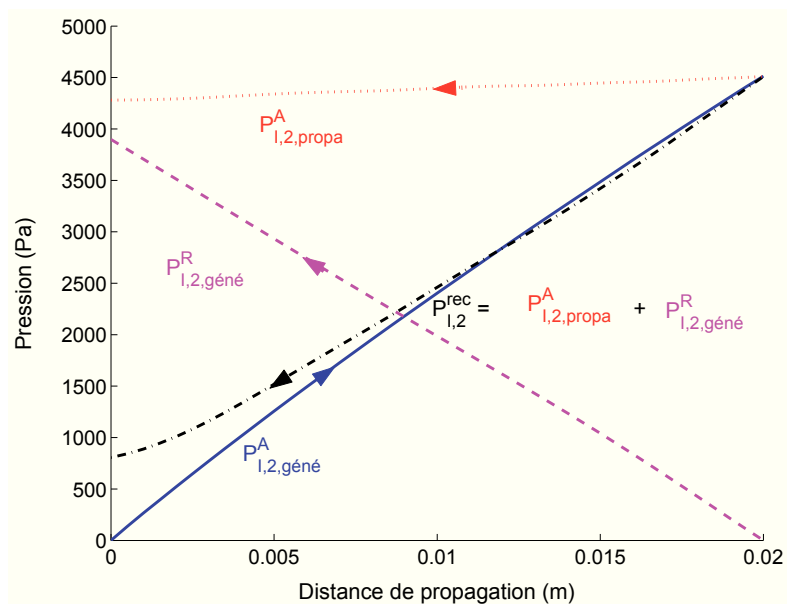


FIGURE 2.4 – Propagation de la pression à la fréquence harmonique 2 générée à l’intérieur du matériau d’étude calculé grâce à la décomposition en sommes de gaussiennes avec un réflecteur (air) dont l’impédance acoustique est plus faible que celle du matériau d’étude.

pression à la fréquence harmonique 2 lors du retour,  $P_{I,2,gene}^R$ .

Quand le réflecteur est de l’air (réflexion à la surface du liquide), l’impédance acoustique du réflecteur est de 387,9 MRa. L’impédance acoustique est plus faible que celle du matériau d’étude, même si le rapport des impédance acoustique est grand, le coefficient de réflexion est alors peu différent de  $-1$ . Les ondes ultrasonores réfléchies ne sont alors plus en phase. De cette opposition de phase, la pression à la fréquence harmonique 2 totale se ne cumule pas entre l’aller et le retour.

Ainsi, l’impédance acoustique du réflecteur doit être plus grande que celle du matériau d’étude pour assurer la condition cumulative des effets non linéaires après la réflexion des ondes ultrasonores.

#### 2.3.3 Expression du coefficient non linéaire $\beta$

Afin de déterminer le coefficient non linéaire, revenons à l’expression de la pression à la fréquence harmonique 2 reçue par le transducteur après propagation aller et retour dans le matériau d’étude (équation 2.27). L’expression dépend des pressions générées lors

### 2.3. DÉTERMINATION DU COEFFICIENT NON LINÉAIRE

---

des trajets aller (équation 2.28) et retour (équation 2.29). Le coefficient non linéaire apparaît dans ces deux équations, après les avoir additionnées. L'expression du coefficient non linéaire s'exprime par :

$$\beta = \frac{-8\pi\rho c^2}{jk_2^2} \frac{1}{R_1 e^{2\alpha_2 f^2 h} e^{-2jk_2 h} (D_1 + R_1 e^{-2jk_1 h} e^{\alpha_1 (2f)^2 h} D_2)} \frac{P_{I,2}^{rec}}{\left(P_{I,1}^{emi}\right)^2}. \quad (2.30)$$

L'expression du coefficient non linéaire fait apparaître différents termes déjà exposés précédemment. Les deux premiers termes dépendent de la célérité,  $c$ , de l'atténuation du milieu d'étude,  $\alpha$ , ainsi que du coefficient de diffraction,  $D_1$ , et de réflexion,  $R_1$ . Pour assurer la détermination du coefficient non linéaire, il faut que l'ensemble des paramètres soient déterminés.

La célérité et l'atténuation des ondes ultrasonores au sein du matériau sont mesurées et déterminées par les expressions (équations 2.23 et 2.25). Les fonctions de transfert du transducteur assure la détermination exacte de la célérité et de l'atténuation. L'expression de la fonction de diffraction est décrite lors d'une propagation avec un transducteur émetteur et récepteur de même dimension par l'intégration en sommes de gaussiennes (équation 1.60). Le coefficient de réflexion est la combinaison des impédances acoustiques du matériau d'étude et du réflecteur (équation 2.5).

Le troisième terme de l'expression du coefficient non linéaire (équation 2.30) dépend des pressions à la fréquence harmonique 2 reçues,  $P_{I,2}^{rec}$ , et des pressions à la fréquence fondamentales émises,  $P_{I,1}^{emi}$ . La détermination des pressions nécessite la calibration du transducteur. Ainsi connaissant la fonction de transfert du transducteur en émission associée à la fréquence à la fréquence fondamentale, (équation 2.16), et celle en réception associée à la fréquence double, (équation 2.18), ainsi que la mesures des courants de sortie, les pressions sont déterminées. Nous constatons de l'expression que le coefficient non linéaire est proportionnelle au rapport des pressions  $P_{I,2}^{rec} / \left(P_{I,1}^{emi}\right)^2$ .

## Conclusion

Dans ce chapitre, la méthode assurant la détermination absolue des paramètres linéaires et non linéaire à partir de mesures acoustiques en émission-réception a été présentée. Cette méthode est basée sur la calibration du transducteur et permet de déterminer le niveau des champs de pressions à la fréquence fondamentale et harmonique 2. La calibration du transducteur doit être effectuée à chaque mesure pour des matériaux en évolution au cours du temps car leurs charges acoustiques évoluent au cours du temps.

### 2.3. DÉTERMINATION DU COEFFICIENT NON LINÉAIRE

---

## Chapitre 3

# Présentation du dispositif expérimental et de sa validation

La méthode auto-calibrée en émission-réception choisie est mise en œuvre. Le dispositif expérimental et l'instrumentation utilisée pour les mesures sont détaillés. La cellule de mesure a été conçue afin de répondre aux différents critères assurant l'optimisation de la mesure des paramètres acoustiques pour des matériaux dont les propriétés varient lentement dans le temps.

La description de l'instrumentation est suivie des choix technologiques prenant en compte les différentes contraintes. Ainsi, le choix de la source de tension et du transducteur font partie intégrante de la discussion. Il en va de même pour l'appareillage assurant l'acquisition des signaux et les techniques de traitement de signaux.

Enfin, une validation du dispositif expérimental est effectuée sur le méthanol et l'eau. La mesure du paramètre non linéaire dans le méthanol permet de détailler la procédure et de revenir sur l'expression du paramètre. Le paramètre non linéaire dans l'eau est dépend de la température. Une mesure du  $B/A$  dans l'eau en fonction de la température assure une validation dynamique du dispositif.

### 3.1 Montage expérimental

Le dispositif expérimental mis en place pour la détermination des différents paramètres ultrasonores ( célérité, atténuation, paramètre non linéaire) au cours du temps est décrit par la figure 3.1.

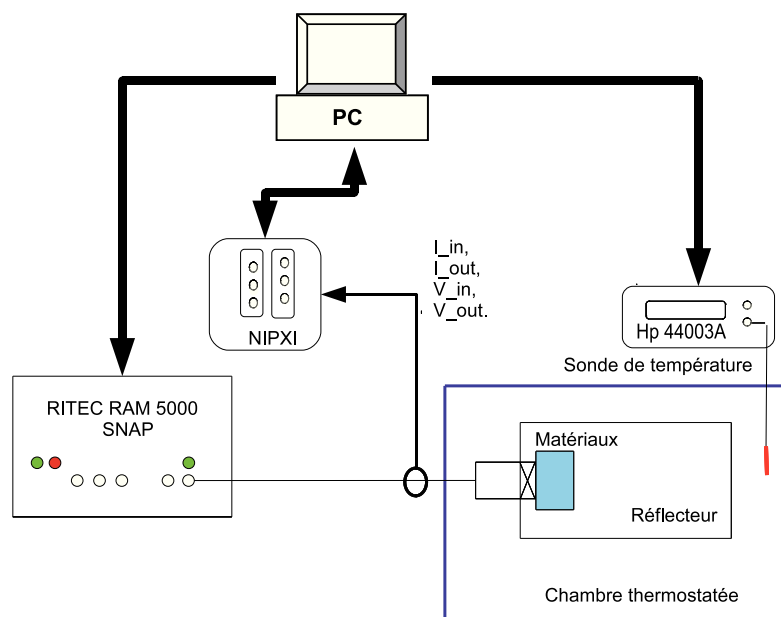


FIGURE 3.1 – Schéma du dispositif expérimental assurant la mesure des paramètres ultrasonores linéaires et non-linéaire du matériau placé à l'intérieur de la cellule de mesure.

Le fluide à caractériser est placé dans une cellule de mesure en aluminium. Un transducteur ultrasonore fonctionnant en émission-réception est positionné en contact avec le fluide à caractériser. Il est excité par un système de génération de train d'onde bien adapté à la mesure de propriété non linéaire. L'acquisition est effectuée à l'aide d'une carte d'acquisition. L'ensemble cuve, fluide, transducteur est placé dans une étuve thermostatée garantissant une température de l'environnement constante et contrôlée.



### 3.1.1 Dimensionnement de la cellule de mesure

Le dimensionnement de la cellule de mesure nécessite de respecter un ensemble de contraintes :

- l'impédance acoustique du matériau utilisé pour la conception de la cellule de mesures doivent être connues afin de pouvoir connaître le coefficient de réflexion au fond de la cellule,
- les dimensions doivent permettre l'acquisition d'un train d'onde ayant effectué un aller-retour dans le fluide sans superposition d'échos parasites.

#### 3.1.1.1 Matériau constituant la cellule

Il résulte du paragraphe 2.3.2 que l'impédance acoustique du réflecteur doit être plus grande que celle du matériau d'étude pour assurer la condition cumulative des effets non linéaires après la réflexion des ondes ultrasonores.

Le matériau de conception de la cellule est l'aluminium. Il permet d'obtenir un coefficient de réflexion élevé et d'assurer la génération harmonique cumulative. La densité de l'aluminium est de  $\rho_{refl} = 2740 \text{ kg/m}^3$  et la célérité des ondes longitudinales à  $c_{refl} = 6190 \text{ ms}^{-1}$ . L'impédance acoustique du réflecteur en aluminium est de  $Z_{refl} = 16,9 \text{ MRa}$ .

Lorsque le fluide est l'eau, dont les caractéristiques sont  $\rho_{eau} = 1000 \text{ kg/m}^3$  et  $c_{eau} = 1496,8 \text{ ms}^{-1}$  à  $20^\circ\text{C}$ , l'impédance acoustique est de  $Z_{eau} = 1,5 \text{ MRa}$ . Le coefficient de réflexion donné par l'expression (2.5) est alors égal à  $R = 0,8$ . Pour le méthanol, dont les caractéristiques sont  $\rho_{meth} = 791 \text{ kg/m}^3$  et  $c_{meth} = 1103 \text{ ms}^{-1}$ , l'impédance acoustique est de  $Z_{meth} = 0,87 \text{ MRa}$ . Ainsi, le coefficient de réflexion devient  $R = 0,9$ .

Les matériaux d'études sont constitués d'eau et de méthanol. La valeur du coefficient de réflexion d'un mélange constitué d'eau et de méthanol aura une valeur intermédiaire entre celle de l'eau et celle du méthanol.

#### 3.1.1.2 Géométrie de la cellule

Le caractère cumulatif des effets non linéaires impose une distance de propagation minimum afin de garantir une mesure satisfaisante de l'harmonique à l'ordre deux. Ici, le

### 3.1. MONTAGE EXPÉRIMENTAL

---

fluide étudié est contenu dans la cellule en aluminium, la distance de propagation des ondes ultrasonores est conditionnée par le volume de la cellule. Or ce volume doit être faible car le matériau n'est disponible qu'en faible quantité. Cependant, le trajet de l'onde doit être le plus grand possible pour assurer une croissance de l'harmonique d'ordre deux et un champ maximal. Pour assurer la condition d'ondes planes (hypothèse introduite lors de la mise en équation du problème), le transducteur est placé à la limite du champ proche.

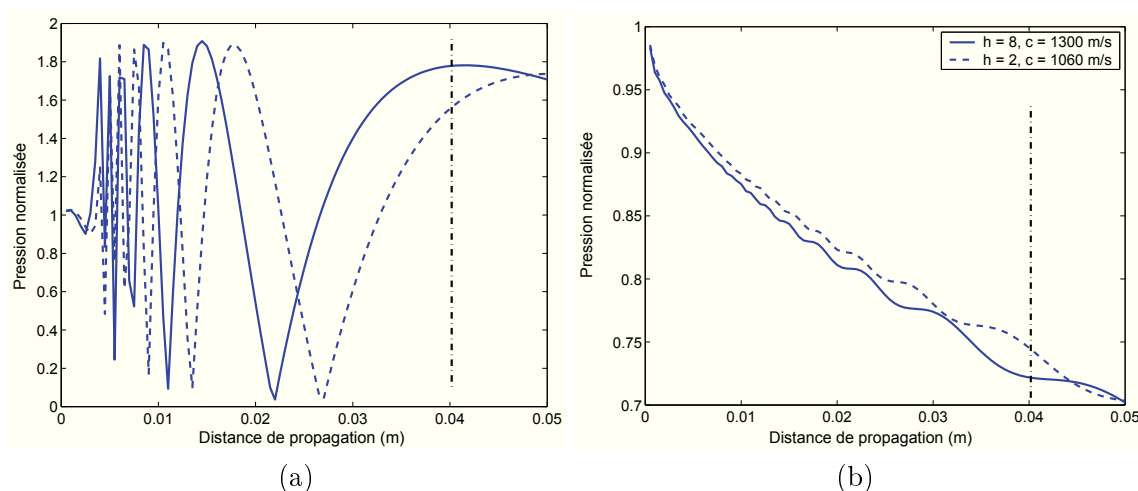


FIGURE 3.2 – Calcul des champs de pression à la fréquence fondamentale normalisé se propageant dans deux matériaux d'étude ayant une vitesse des ondes ultrasonores différentes recueillis à la surface d'un récepteur ponctuel (a) et de dimension finie (b).

La figure 3.2 représente le calcul des champs de pression normalisés reçus à la surface d'un récepteur ponctuel à gauche et moyenné sur la surface du transducteur à droite. Ces champs de pression sont calculés pour deux cas extrêmes du matériau d'étude dont les vitesses sont connues et comprises entre  $1060 \text{ ms}^{-1}$  (tirets) et  $1300 \text{ ms}^{-1}$  (trait plein). Le calcul a été effectué avec un transducteur de fréquence centrale (3,5 MHz). Ce choix technologique lié au transducteur est discuté dans le paragraphe suivant.

La figure 3.2 (a) représente le champ de pression fondamental reçu par un récepteur ponctuel. Pour les distances proches de la surface du transducteur jusqu'à 15 mm, le champ de pression est dans la zone de Fresnel. La limite de champ proche est comprise entre 43 mm et 53 mm suivant les deux cas limites. La figure 3.2 (b) représente le champ de pression à la fréquence fondamentale normalisé et moyenné sur la surface d'un transducteur identique à

### 3.1. MONTAGE EXPÉRIMENTAL

---

celui utilisé pour l'émission. La pression recueillie à la surface du transducteur est quasiment indépendante de la variation de la vitesse du matériau d'étude. Il existe une variation de 3% sur la pression à la fréquence fondamentale recueillie à la surface du transducteur entre les milieux extrêmes.

Une distance de propagation de 40 mm semble être un bon compromis tenant en compte des effets non linéaires cumulatifs et du champ de pression moyenné à la surface du transducteur. Ainsi, l'épaisseur de la cellule de mesure est choisie à 20 mm. Cette distance de propagation assure un champ de pression à la fréquence fondamentals maximal pour un volume de matériau à caractériser de seulement 20 ml.

#### 3.1.1.3 Dimensionnement de la parois de la cellule

A l'interface du matériau d'étude et du réflecteur, la réflexion n'est pas totale. Une partie du train d'onde se propage dans le bloc d'aluminium. Il est nécessaire de découpler, d'un point de vue temporel, le signal s'étant propagé uniquement dans le fluide à étudier et celui propagé dans l'aluminium.

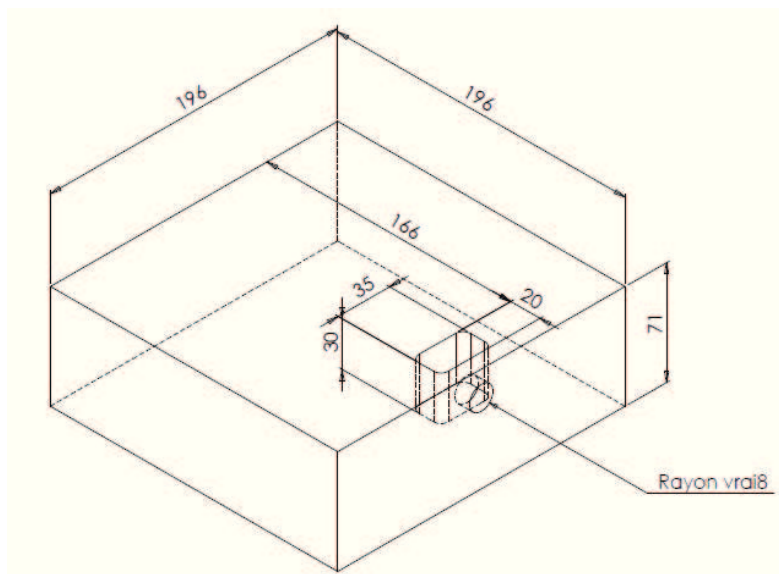


FIGURE 3.3 – Vue en perspective de la cellule de mesure par la méthode auto-calibrée avec ses dimensions géométriques en millimètres.

La vitesse des ondes ultrasonores étant plus rapide dans l'aluminium que dans le ma-

### 3.1. MONTAGE EXPÉRIMENTAL

---

tériau d'étude, la distance de propagation dans l'aluminium des ondes ultrasonores doit être plus grande. Le bloc d'aluminium a des dimensions assez grandes pour assurer une propagation des ondes ultrasonores dépourvue d'échos parasites dans la fenêtre temporelle d'analyse.

La figure 3.3 est une représentation en perspective de la cellule de mesure construite par CAO pour assurer sa fabrication. Les dimensions du bloc d'aluminium sont :  $196 \times 196 \times 71$  mm. La propagation des ondes ultrasonores se fait sur 40 mm aller-retour. La distance entre l'interface de réflexion (matériau d'étude/réfecteur aluminium) et l'extrémité du bloc d'aluminium (bloc d'aluminium/air) est de 166 mm. Dans le bloc d'aluminium, les ondes ultrasonores mettent  $54 \mu\text{s}$  pour se propager entre cette distance. Ces dimensions du bloc d'aluminium permettent l'exploitation d'un train d'ondes d'une longueur de 40 cycles à une fréquence de 2,05 MHz.

#### 3.1.2 Génération des signaux ultrasonores

Dans le cadre de l'étude de phénomènes non linéaire, l'instrumentation utilisée est choisie en fonction de plusieurs critères :

- la source de génération électrique doit être adapté à l'impédance d'entrée du transducteur ultrasonore,
- la source doit assurer une faible génération d'harmonique parasite et ceux même à des amplitudes élevées,
- la génération électrique doit s'effectuer dans le régime quadratique,
- le transducteur doit être large bande et sensible au champ de pression à la fréquence harmonique 2 reçu.

##### 3.1.2.1 Génération électrique harmonique

Dans ce paragraphe, une comparaison est effectuée entre deux générateurs électriques : le SNAP, générateur amplificateur conçu pour l'étude des phénomènes non linéaire acoustiques (RITEC, 5000 SNAP), et un générateur de fonctions arbitraires (Agilent 33250A) couplé à un amplificateur de puissance de +50 dB (ENI 325LA Power Amplifier).

Un adaptateur  $50 \Omega$  couplé avec un atténuateur  $-8$  dB est placé entre le transducteur

### 3.1. MONTAGE EXPÉRIMENTAL

---

et le générateur électrique. Il permet d'adapter l'impédance électrique de l'excitation avec celui du transducteur.

Pour comparer les deux systèmes, les mesures des signaux électriques d'entrée sont effectuées dans les conditions identiques avec un transducteur chargé par de l'eau à 20°C. La tension électrique délivrée aux bornes du transducteur par l'intermédiaire de la charge 50 Ω assurant l'adaptation d'impédance électrique est de  $V_{in} = 80$  V pour un courant de  $I_{in} = 1$  A. Le taux de répétition du train d'ondes est d'une centaine de Hertz. Les amplitudes des signaux d'excitations sont suffisamment élevées pour assurer de la génération harmonique mais restent cependant dans le régime quadratique évitant les harmoniques parasites issus de la source électrique.

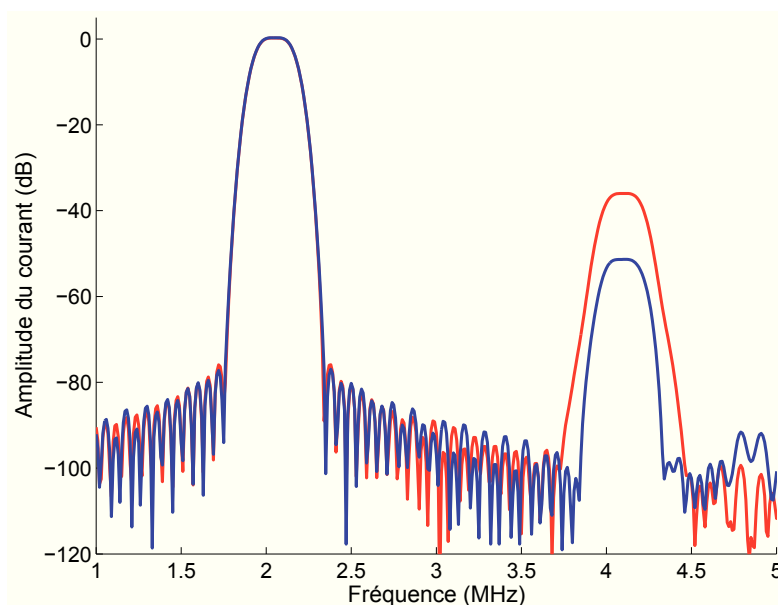


FIGURE 3.4 – Amplitudes du spectre du courant d'excitation en dB émises par le générateur de fonctions arbitraires couplé avec l'amplificateur de puissance (rouge) et le SNAP (bleu).

La figure 3.4 montre les spectres des courants électriques émis par le SNAP en bleu et par le générateur de fonctions arbitraires couplé avec l'amplificateur de puissance en rouge. L'harmonique à l'ordre deux de l'excitation électrique est observée dans les deux cas. Les harmoniques d'ordre supérieurs sont ici ignorés. En effet, les mesures acoustiques se limitent à l'harmonique à l'ordre deux. L'amplitude du spectre de la fréquence à la fréquence

### 3.1. MONTAGE EXPÉRIMENTAL

---

fondamentale est pour les deux systèmes d'excitation à 0 dB assurant que l'excitation électrique fondamentale est identique dans les deux cas. L'amplitude de l'harmonique à l'ordre deux est respectivement de  $-36$  dB et  $-52$  dB pour le générateur de fonctions arbitraires couplé avec l'amplificateur de puissance (rouge) et le SNAP (bleu). Pour une excitation électrique identique, le SNAP génère moins d'harmonique du second ordre, 16 dB en dessous de l'amplificateur de puissance. Afin de calculer le gain, le taux de distorsion est extrait pour les deux excitations. Le taux de distorsion du générateur de fonctions arbitraires couplé à l'amplificateur de puissance de 50 dB, évalué seulement par rapport à l'harmonique du second ordre, est de 0,0268 contrairement à celui du SNAP qui est seulement de 0,0057.

Le SNAP assure donc une excitation électrique harmonique pour de fortes amplitudes des courants et des tensions et délivre un train d'onde à une fréquence  $f$  dans le matériau d'étude. Son taux de distorsion (de l'ordre de 0,6%) permet des mesures de l'harmonique deux provenant du milieu à considérer faiblement entaché d'harmonique parasite venant de l'excitation électrique.

#### 3.1.2.2 Transducteur et ses fréquences d'utilisations

Notre dispositif expérimental repose sur la méthode en émission-réception et sur la procédure de calibration aux fréquences simple et double. Le transducteur est l'élément le plus critique car il assure à la fois l'émission et la réception. Il doit pouvoir à la fois exciter le matériau à la fréquence fondamentale et être sensible à la réponse harmonique du matériau d'étude. La fréquence fondamentale doit être choisie en fonction de cette double exigence. Le transducteur choisi doit assez large bande avec une bonne sensibilité : un Technisonic ayant une fréquence centrale de 3,5 MHz avec un diamètre actif de 0,375" (ISL-0303-VHR).

L'étude des effets non linéaires nécessite d'avoir la meilleure dynamique possible de la fréquence double reçue. Pour ce faire, une analyse fréquentielle du signal reçu est effectuée. Une impulsion est propagée dans l'eau. Après la réflexion de l'impulsion ultrasonores sur l'interface aluminium, elle est reçue à la surface du transducteur. La réponse fréquentielle du transducteur est déduite du signal reçu.

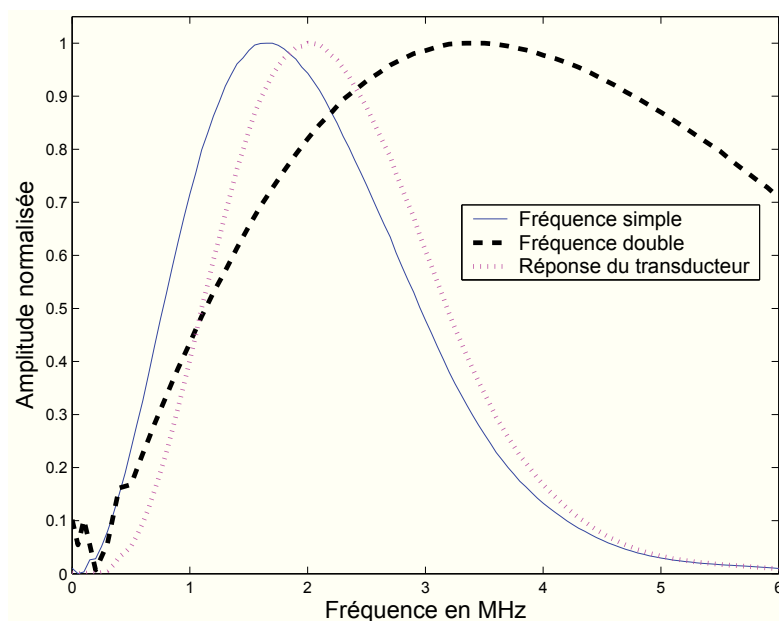


FIGURE 3.5 – Réponses fréquentielles normalisées du transducteur (Technisonic, ISL-0303-VHR) d'une impulsion propagée dans 40 mm d'épaisseur d'eau.

La figure 3.5 montre les réponses fréquentielles normalisées du transducteur à une impulsion propagée dans 40 mm d'épaisseur d'eau. La courbe en trait plein présente la réponse fréquentielle du transducteur, celle en tiret la réponse fréquentielle du transducteur ramenée à la fréquence harmonique. La courbe en pointillé représente le rapport de la réponse fréquentielle avec celle ramenée à l'harmonique. Le rapport de la réponse fréquentielle du transducteur avec celle ramenée à l'harmonique permet de traduire le double compromis assurant une bonne dynamique à la fois pour les signaux aux fréquences émises et reçues par le transducteur. Le transducteur doit pouvoir recevoir l'intégralité des pressions à l'harmonique générées lors de la propagation tout en assurant l'émission d'une pression optimale à la fréquence fondamentale. Le produit fait apparaître un maximum d'amplitude. Dans ce cas, ce maximum correspond à la fréquence fondamentale d'émission du compromis ( $f_I = 2,05$  MHz).

### 3.1.3 Acquisition des signaux ultrasonores

#### 3.1.3.1 Sondes de mesures

La calibration du transducteur nécessite la mesure des courants et des tensions d'entrées et de sorties aux bornes du transducteur noté respectivement  $V_{in}$ ,  $I_{in}$  et  $V_{out}$ ,  $I_{out}$ . Pour assurer l'acquisition de ces signaux, deux sondes sont utilisées : une sonde de tension (Sonde modulaire Electro-PJP S-1021-IEC) et une sonde de courant (Tektronix P6022).

La sonde de tension a une résistance d'entrée haute impédance ( $1\text{ M}\Omega$ ) quand son atténuation est en position  $\times 10$ . Elle possède une bande passante de 150 MHz. La tension maximum d'entrée avec connexion à la terre est de 600 Vp.

La sonde de courant a une résistance d'entrée de  $1\text{ M}\Omega$ . Une terminaison à la sortie de la sonde permet de choisir la sensibilité 1 mA/mV ou 10 mA/mV. Ici, la sensibilité est de  $1\text{ mA} = 1\text{ mV}$ . La bande passante de la sonde de courant est comprise entre 935 Hz et 120 MHz. Le courant maximum d'entrée de la sonde est de 6 A.

#### 3.1.3.2 Système d'acquisition

Le système d'acquisition est choisi en fonction de la profondeur d'analyse et de la fréquence d'échantillonnage du signal. Le numériseur National Instrument assure d'acquisition de signaux avec une profondeur d'analyse de 14 bits et une fréquence d'échantillonnage de 100 MHz. Les oscilloscopes disponibles ont une profondeur d'analyse de 8 bits et une fréquence d'échantillonnage allant jusqu'à 2 GHz. Le choix se porte tout particulièrement sur le numériseur car il assure une meilleure dynamique due à sa quantification sur 14 bits. La fréquence d'échantillonnage de 100 MHz est ici suffisante. En effet, la fréquence maximale mesurée est de 4,1 MHz. Le rapport entre la fréquence d'échantillonnage et la fréquence maximale est de l'ordre de 25. Ainsi, l'échantillonnage est suffisant pour un signal à l'harmonique à l'ordre deux évitant les effets d'aliasing (paragraphe 3.2). La résolution temporelle donné par le constructeur est de 10 ns. Il assure que les paramètres linéaires (célérité et atténuation) soient directement mesurés à partir des signaux électriques acquis.

Le numériseur piloté par ordinateur assure l'acquisition des signaux électriques à intervalle de temps régulier en assurant la meilleure dynamique verticale possible tout en pré-



### 3.1. MONTAGE EXPÉRIMENTAL

---

servant l'échantillonnage des signaux. Les signaux acquis sont moyennés 40 fois améliorant ainsi le rapport signal à bruit. Le signal est moyenné numérique par le biais du programme Labview pilotant le numériseur. Ainsi, le signal est acquis 40 fois puis moyenné. Ce processus est gourmand en temps du fait de la fréquence d'échantillonnage. Il est répété plusieurs fois pour déterminer les paramètres acoustiques du matériau d'étude qui nécessite neuf mesures : les trains d'ondes du courant et de la tension d'entrée et de sortie à la fréquence simple et double ainsi que l'impulsion de sortie du courant. Ainsi, l'intervalle de temps se répète toute les deux minutes assurant un temps de repos au matériau d'études d'une dizaine de secondes.

#### 3.1.3.3 Température

L'ensemble du dispositif (transducteur, cellule, matériau d'étude) est placé dans une chambre thermostastée. La température au sein du matériau d'étude évolue au cours du temps. Une sonde de température type Pt100 couplée à une unité de mesure (temperature meter 4-2, Phywe) permet l'acquisition de la température à l'intérieur du matériau d'étude au cours de l'expérience.

### 3.2 Traitement des signaux ultrasonores

La méthode d'amplitude finie mise en oeuvre dans ce travail nécessite de déterminer l'amplitude de la composante fondamentale et de l'harmonique 2 des signaux acquis. Pour se faire, le spectre des signaux est calculé par un logiciel de traitement en utilisant l'algorithme de la transformée de Fourier rapide (FFT). La nature numérique du signal et la définition même de la FFT introduisent trois effets qui peuvent perturber l'évaluation du spectre du signal : le repliement de spectre (aliasing), l'effet de fuite (leakage) et l'effet palissade (picket fence effect).

L'aliasing (effet parasite dû à la présence de fréquences élevées, dépassant la moitié de la fréquence d'échantillonnage) ne perturbe pas les spectres des signaux que nous avons à traiter, pour au moins deux raisons : la fonction de transfert du transducteur assure un filtrage des fréquences supérieures à l'harmonique 2, et la fréquence d'échantillonnage de la carte de numérisation utilisée (100 MHz) est largement supérieure à toutes les fréquences utiles d'un rapport de l'ordre de 25.

L'effet de fuite est la conséquence de la nature bornée dans le temps du signal numérique. Dans la pratique, borner le signal numérique revient à le multiplier par une fenêtre rectangulaire. Dans le domaine spectral, cette multiplication correspond à la convolution du spectre du signal par la transformée de Fourier de la porte rectangulaire (c'est à dire par une fonction sinus cardinal). L'énergie d'une raie du spectre se retrouve ainsi diminuée et répartie sur les fréquences adjacentes (d'où l'idée de fuite, leakage en anglais). Cet effet peut être très gênant dans les méthodes d'amplitude finie, car il modifie directement l'amplitude des raies spectrales. Pour en minimiser l'impacte, le signal acquis est multiplié par une fonction 'porte' dont la transformée de Fourier perturbe moins l'amplitude des raies du spectre du signal. Le choix de cette fenêtre est évidemment critique, et impacte également la correction du troisième effet parasite.

L'effet palissade (picket fence effect) est la conséquence de l'échantillonnage du spectre. Lorsque la fréquence à mesurer correspond à un nombre exact de périodes dans la fenêtre d'acquisition, elle correspond également à la valeur d'un échantillon. Dans ce cas, il n'y a pas d'effet palissade. Mais dans la pratique, il est difficile d'avoir une fenêtre d'acquisition

### 3.2. TRAITEMENT DES SIGNAUX ULTRASONORES

---

correspondant exactement à un nombre entier de périodes pour chaque fréquence à mesurer. La raie dont l'amplitude est recherchée est alors à une fréquence qui n'est pas le multiple du pas d'échantillonnage en fréquence. Dans ce cas, une fonction 'porte' bien choisie minimise les effets sur la mesure.

Classiquement, la fenêtre de Hann (souvent appelée fenêtre de Hanning) est utilisée car elle offre un bon compromis entre la diminution de l'effet de fuite et la bande passante. En effet, le principal inconvénient de l'utilisation d'une fonction 'porte' est la réduction de la durée effective du signal, qui provoque un élargissement du spectre. Par conséquent, il y a un compromis à trouver entre précision dans la détection de l'amplitude d'une raie et précision fréquentielle. Dans notre cas, la fréquence est fixée par l'excitation. Cela permet d'optimiser la fenêtre de visualisation pour la réduction des effets parasites sur l'amplitude. Le fenêtrage dit 'flat-top' correspond à cette optimisation et est particulièrement efficace dans le cas d'un spectre de raies. Les effets de fuite, et de palissade sont très largement diminués, au détriment de la précision fréquentielle. Le tableau 3.1 compare les caractéristiques de la porte rectangulaire, de la fenêtre de Hann et de la fenêtre flat-top.

TABLE 3.1 – Comparaison des différents critères de performances des fenêtres d'analyses pour la transformé de Fourier rapide.

Fenêtre	bande passante	Effet de palissade (dB)
Rectangular	1,0	3,9
Hanning	1,5	1,4
Flat-top	3,8	0,1

Dans la figure 3.6 (a), les trois fenêtres d'analyse (la porte rectangulaire, de la fenêtre de Hann et de la fenêtre flat-top) sont comparées. Elle présente la FFT d'un signal sinusoïdal harmonique avec la porte rectangulaire (courbe en bleu), la fenêtre de Hann (courbe en rouge) et la fenêtre flat-top (courbe en noir). Le signal sinusoïdal étudié est la somme d'une sinusoïde de fréquence respectivement  $f_I = 2,05$  MHz et  $f_{II} = 4,1$  MHz avec une amplitude respective de 1 et 0,1. Le signal simulé est :

$$s = 0,02 + 1 \cdot \sin(2\pi f_I t + \varphi_1) + 0,1 \cdot \sin(2\pi (2f_I) t + \varphi_2). \quad (3.1)$$

La figure 3.6 (b) est un zoom du spectre du signal simulé centré autour de la fréquence fondamentale. Dans le cas le plus défavorable où le nombre de période du signal n'est pas

### 3.2. TRAITEMENT DES SIGNAUX ULTRASONORES

entier, les fenêtres ne présentent pas la même performance. En effet, le porte rectangulaire et la fenêtre de Hann ne permettent pas d'obtenir l'amplitude du signal avec précision. Le traitement de signal impose un compromis entre la précision de l'amplitude du signal et celle de la bande passante. Ainsi, la FFT avec une porte rectangulaire a une bande passante étroite mais est sensible au effet de palissade. Et inversement, la FFT avec une fenêtre flat-top est peu sensible à l'effet de palissade mais les raies sont élargies.

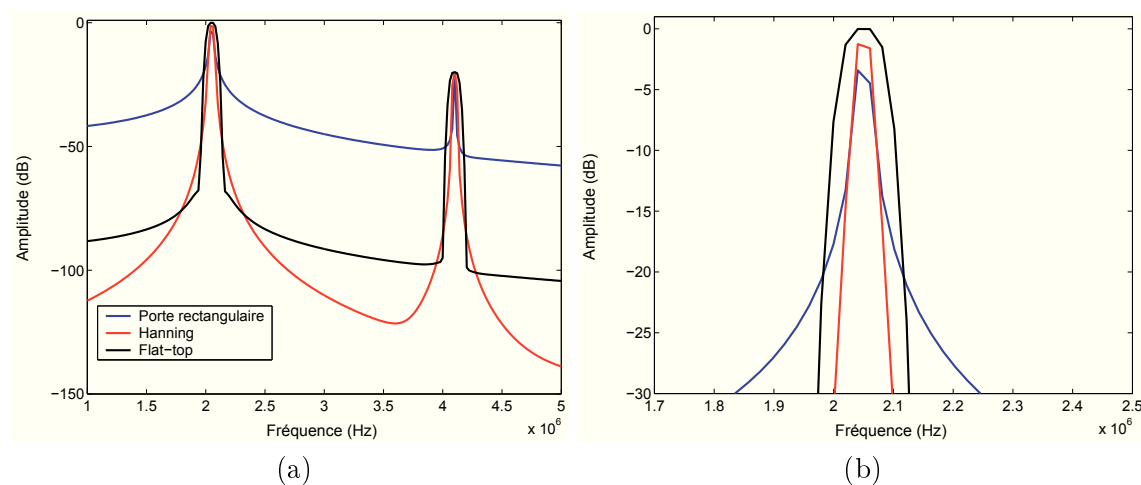


FIGURE 3.6 – Spectre d'un signal arbitraire ayant une composante harmonique d'ordre deux par la transformé de Fourier rapide utilisant une porte rectangulaire (courbe en bleu), la fenêtre de Hann (courbe en rouge) et la fenêtre flat-top (courbe en noir).

L'augmentation du nombre de points du signal acquis améliore le niveau de précision de l'amplitude de la FFT. Cette augmentation s'effectue directement à l'acquisition du signal en augmentant la fréquence d'échantillonnage ou la taille du train d'onde acquis. Généralement, le signal est déjà acquis et est complété par des zéros (zero-padding). L'ajout de zéro permet d'améliorer le niveau de précision de l'amplitude de la FFT. Cependant, l'ajout de zéros dans le signal d'acquisition augment la taille de matrice de données à traiter ce qui est dans notre cas une solution gourmande en temps de calcul.

### 3.3 Validation du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental nécessite une validation sur des fluides connus. Les fluides de références sont l'eau et le méthanol car ils sont à la fois largement étudiés dans la littérature mais sont aussi les deux principales espèces constituantes du milieu d'étude. Le méthanol permet de détailler les mesures effectuées pour la détermination du paramètre non linéaire pour une température donnée. Cette mesure assure la reproductibilité et la répétabilité de la mesure. Les mesures dans l'eau sont effectuées en fonction de la température et permettent la validation dynamique du dispositif expérimental.

Les paramètres linéaires ultrasonores (célérité et atténuation) ont été étudiés pour un grand nombre de matériaux qu'ils soient fluide ou solide. La célérité du méthanol est de  $1103 \text{ ms}^{-1}$  pour une atténuation de  $22 \text{ dB/cm}$  à une température de  $25^\circ\text{C}$  [Selfridge, 1985]. Les auteurs Selfridge, Lubbers, Wilson, Pinkerton, se sont intéressés à la mesure des paramètres linéaires des ondes ultrasonores dans l'eau [Selfridge, 1985, Lubbers et Graaff, 1998, Wilson, 1959, Pinkerton, 1949]. Selfridge les a déterminés, par des mesures de temps de vol. La limite des mesures effectuées par Selfridge est l'hypothèse d'une évolution de la célérité des ondes ultrasonores dans l'eau linéaire avec la température. Lubbers et al. mettent en évidence que l'évolution de la célérité dans l'eau est quadratique en fonction de la température. Pinkerton décrit l'atténuation des ondes ultrasonores dans l'eau en fonction de la température : inversement proportionnelle à la température. Cette évolution est valable pour des fréquences allant de  $7,5$  à  $67,5 \text{ MHz}$ . Les résultats des paramètres linéaires dans l'eau et dans le méthanol issus de la littérature sont regroupés dans le tableau 3.2.

TABLE 3.2 – Célérité et atténuation des ondes ultrasonores dans l'eau et dans le méthanol issues dans la littérature pour une température de  $25^\circ\text{C}$ .

	fluide	célérité (m/s)	atténuation (Np/m)
Selfridge	méthanol	1103	0,075 à 2,5 MHz
Selfridge	eau	1495	0,158 à 2,5 MHz
Lubbers	eau	1496,8	—
Wilson	eau	1497,25	—

Le coefficient non linéaire (équation 1.21) relie la pression à la densité pour un processus adiabatique. Historiquement, la détermination du paramètre a été effectuée par des mé-

### 3.3. VALIDATION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

---

thodes thermodynamiques [Coppens *et al.*, 1965, Beyer, 1974]. Le coefficient non linéaire de nombreux fluides comme l'eau ou les alcools a été étudié [Saito, 1993, Saito *et al.*, 2006]. Le coefficient non linéaire a été estimé par exemple dans de l'eau saturé en sédiment [Hovem, 1979, Kim et Yoon, 2009]. La présence de sédiment dans de l'eau influence nettement le coefficient non linéaire. Les travaux du paramètre non linéaire de la salinité de l'eau peuvent être cités. Les hauts niveaux de pressions sur le fluide à étudier influent sur l'incertitude du paramètre non linéaire allant jusqu'à une erreur de 2.2% pour des pression de 50 MPa dans de l'eau [Plantier *et al.*, 2002]. Le paramètre non linéaire a été étudié par des méthodes thermodynamiques dans un mélange eau-méthanol en fonction de température [Emery *et al.*, 1979]. Il montre un minimum très important pour une concentration d'environ 20% de méthanol qui est peu dépendant de la température. Les travaux de Yoshizumi [Yoshizumi *et al.*, 1987] mettent en évidence l'évolution du paramètre B/A de l'eau et des alcools en fonction de la température. La particularité de l'eau est contrairement aux alcools d'avoir un paramètre B/A dépendant de la température. En effet, l'eau se présenter sous deux formes liée et libre. Les molécules d'eau liée se fixent entre elles et forment des chaînes macromoléculaires. La proportion d'eau liée diminue avec la température. La réorganisation structurel des différentes molécules d'eau entraîne une évolution du paramètre non linéaire. L'eau liée étant moins présente pour les faibles températures implique un paramètre B/A faible.

#### 3.3.1 Mesures des paramètres ultrasonores du méthanol

La mesure des paramètres ultrasonores dans un fluide tel que le méthanol permet d'assurer la mesure sur un fluide proche dont les caractéristiques sont proche de celles du matériau d'étude. A travers la détermination du paramètre non linéaire du méthanol, les mesures effectuées sont détaillées.

Une dizaine de mesures ont été effectuées dans des conditions identiques de température pour assurer leur reproductibilité et ainsi estimer leurs incertitudes. La célérité et l'atténuation des ondes ultrasonores sont déterminées à partir des signaux de courants de sortie. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.3. Ces mesures se montrent en accord avec les valeurs de la littérature.

### 3.3. VALIDATION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

---

TABLE 3.3 – Célérité et atténuation des ondes ultrasonores dans le méthanol issues de la littérature et mesurées par la méthode auto-calibrée pour une température de 25°C et une fréquence centrale de l’impulsion de 2,05 MHz.

	célérité (m/s)	atténuation (Np/m)
Selfridge	1103	0,05
<b>Méthode</b>	1101,8 ± 0,1	0,045 ± 0,002

Dans la paragraphe précédent, les variables nécessaires à la détermination du paramètre non linéaire ont été mises en évidence. Ici, les mesures permettant l’obtention expérimentale du paramètre non linéaire sont détaillées.

Dans notre méthode de mesure auto-calibrée, la génération des courants et des tensions est harmonique. L’amplitude d’excitation électrique varie de 30 à 90 Volt par pas de 10 V. Pour chaque tension d’excitation, les pressions fondamentale émise et harmonique générée au sein du fluide sont déterminées par la calibration du transducteur en émission et réception. Grâce à la décomposition en somme de gaussiennes, le paramètre non linéaire est déduit.

Les figures 3.7 (a) et (b) représentent respectivement les courants et les tensions d’entrée aux bornes du transducteur. La tension d’excitation délivrée par le générateur augmente pour un courant allant de 0,45 à 1,2 Ampère. Les courants et les tensions recueillis aux bornes du transducteur sont respectivement représentés sur les figures 3.7 (c) et (d). Les courants et les tensions d’entrée aux bornes du transducteur ne présente pas de distortion harmonique car l’excitation est très faiblement non linéaire (paragraphe 3.1.2.1). Les courants et les tensions de sortie aux bornes du transducteur présentent temporellement une déformation du front d’onde. Cette déformation implique une présence d’harmonique dans le spectre des courants et des tensions de sortie. Ces harmoniques ont été générées dans le fluide.

Le transducteur est comme la source de tension sujet à émettre des ondes ultrasonores aux fréquences harmoniques. Cependant, en s’appuyant sur les travaux de l’équipe, il a été montré que la génération harmonique parasite provenant du transducteur est négligeable devant la génération harmonique dans de l’eau (impédance proche des matériaux d’études) après quelques longueurs d’onde de propagation [Vander Meulen et Haumesser, 2008].

### 3.3. VALIDATION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

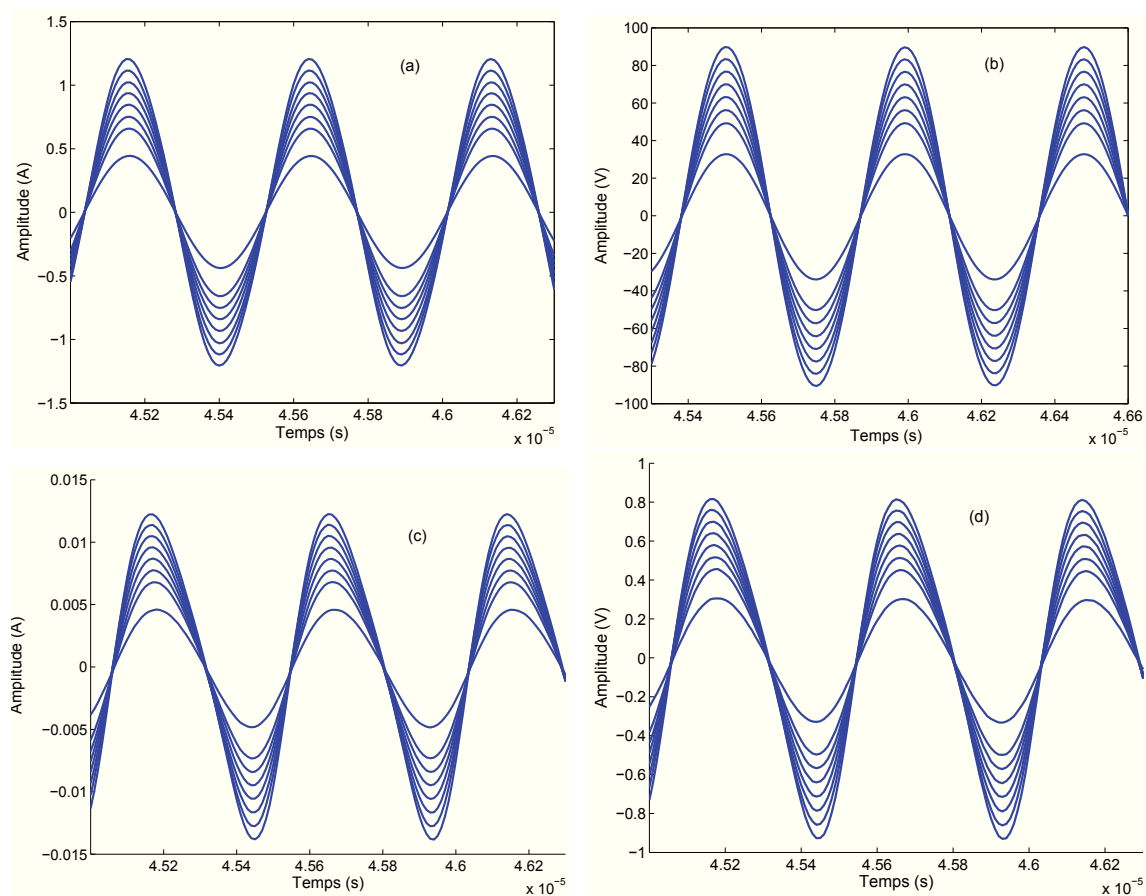


FIGURE 3.7 – Signaux temporels émis et reçus aux bornes du transducteur dans le méthanol à  $25^{\circ}C$  pour une rampe en tension allant de 30 à 90 Volts : (a) le courant d’entrée, (b) la tension d’entrée, (c) le courant de sortie et (d) la tension de sortie.

La figure 3.8 montre la pression reçue à la fréquence harmonique à l’ordre deux ( $P_{I,2}$ ) en fonction de la pression émise à la fréquence fondamentale émise au carré ( $P_{I,1}^2$ ) pour une rampe de huit excitations électriques.

La figure 3.8 montre que la pression à la fréquence harmonique 2 reçue est proportionnelle au carré de la pression à la fréquence fondamentale émise. Cette droite assure que l’excitation électrique s’effectue dans le régime quadratique c’est à dire que la génération électrique reste dans le régime linéaire. De l’expression du paramètre non linéaire (équation 2.30) issue de la formulation de la pression à la fréquence harmonique 2 décrit par la décomposition en somme de gaussiennes, le paramètre est déduit de l’ensemble des mesures. Afin d’améliorer la précision de la mesure, la pente de la droite de la pression à la fré-



### 3.3. VALIDATION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

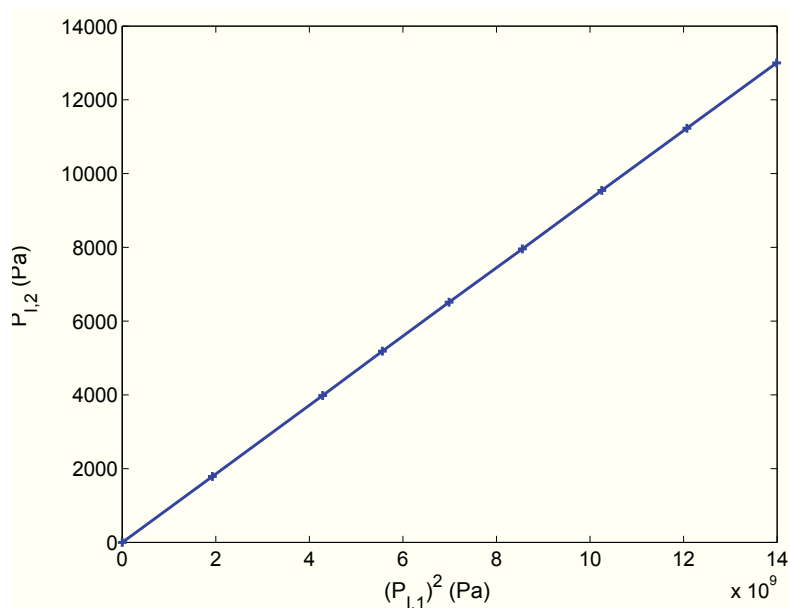


FIGURE 3.8 – Pression à l’harmonique d’ordre deux reçue en fonction de la pression à la fréquence fondamentale émise au carré dans du méthanol à la température de  $25^\circ\text{C}$ .

quence harmonique 2 reçue en fonction du carré de la pression à la fréquence fondamentale émise est déterminée et introduite dans l’expression du paramètre non linéaire. Ainsi, le paramètre  $B/A$  est estimé dans du méthanol à  $9,73 \pm 0,02$ .

TABLE 3.4 – Comparatif des paramètres et coefficients non linéaire extraits de la littérature [Coppens *et al.*, 1965, Beyer, 1974, Saito *et al.*, 2006] avec ceux mesurés par la méthode auto-calibrée dans du méthanol à  $25^\circ\text{C}$ .

	$B/A$	$\beta$
Coppens <i>et al.</i> ; Beyer	9,6	5,8
Saito	$9,82 \pm 0,3$	$5,91 \pm 0,15$
<b>Méthode auto-calibrée</b>	$9,73 \pm 0,02$	$5,86 \pm 0,01$

Le tableau 3.4 permet de comparer nos résultats obtenus par la méthode auto-calibrée et ceux de la littérature. Nos résultats sont en adéquation avec ceux de la littérature. Notre méthode de mesures et le protocole expérimental sont validés par le mesure du paramètre non linéaire dans du méthanol.

#### 3.3.2 Mesures des paramètres ultrasonores de l'eau en fonction de la température

Une étude des paramètres acoustiques est menée dans l'eau en fonction de la température. Cette étude permet de valider notre dispositif expérimental et le protocole de mesures sur un échantillon dont les propriétés acoustiques évoluent dans le temps. La variation de la température produit des changements de comportement sur la vitesse, l'atténuation et le paramètre non linéaire des ondes ultrasonores dans l'eau.

Dans la littérature, la célérité des ondes ultrasonores dans l'eau est décrite comme croissant en fonction de la température. Selfridge reporte la célérité des ondes ultrasonores à  $1496,7 \text{ ms}^{-1}$  et l'atténuation à  $0,158 \text{ Np/m}$  par mesure du temps de vol dans l'eau distillée à  $25^\circ\text{C}$  pour une fréquence d'exploration de  $2,5 \text{ MHz}$ . La variation en fonction de la température est évaluée à  $2,4 \text{ m/s}/^\circ\text{C}$ . Lubbers et Graff reprennent des travaux antérieurs de Wilson [Wilson, 1959] et de Greenspan *et al.* [Greenspan et Tschiegg, 1959] se focalisant sur l'évolution de la célérité en fonction de la température de l'eau [Lubbers et Graaff, 1998]. Ils montrent que l'approximation faite par Selfridge est bonne seulement sur la gamme de température comprise entre  $15$  et  $35^\circ\text{C}$ . Au delà, le comportement nécessite un terme d'ordre deux. Ainsi, la célérité des ondes ultrasonores dans de l'eau distillée est donnée par :

$$c = 1404,3 + 4,7T - 0,04T^2, \quad (3.2)$$

où  $T$  est la température en degré Celsius et  $c$  est la célérité en  $\text{ms}^{-1}$ .

Expérimentalement, la température de consigne de la chambre thermostatée est comprise entre  $5^\circ\text{C}$  à  $45^\circ\text{C}$ . Pendant cette variation progressive, les paramètres acoustiques sont mesurés suivant le protocole expérimental détaillé dans le paragraphe 4.3.1. Le comportement de la célérité en fonction de la température est reporté en figure 3.9.

La célérité des ondes ultrasonores dans l'eau mesurée croit en fonction de la température du matériau en suivant le comportement de la célérité modélisée par l'équation de Lubbers (courbe en point noir). Il existe au plus un écart de  $2 \text{ ms}^{-1}$ , soit une erreur relative maximale de  $0,2\%$ . La célérité des ondes ultrasonores dans l'eau par la méthode auto-calibrée est en adéquation avec celle de la littérature.

### 3.3. VALIDATION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

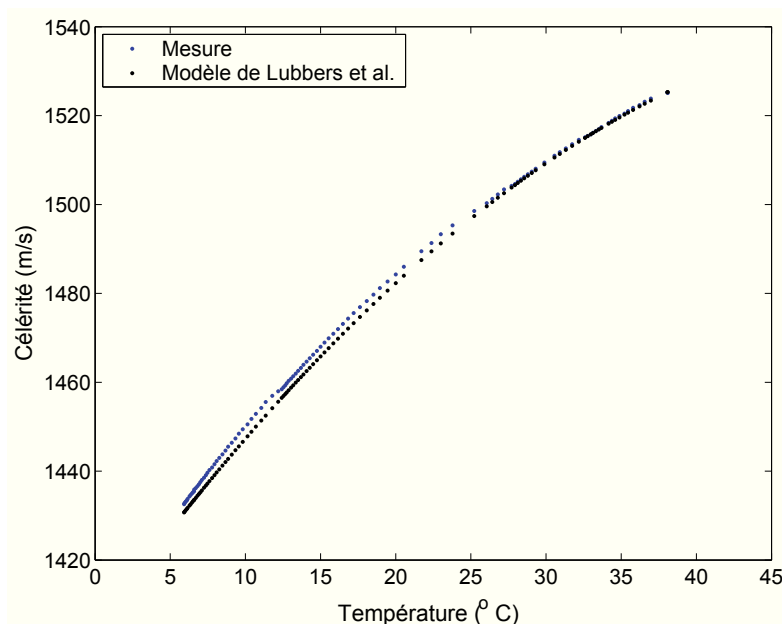


FIGURE 3.9 – Mesures de la célérité des ondes ultrasonores dans l’eau en fonction de la température dans le fluide (en point bleu) et la modélisation du comportement de la célérité par Lubbers [Lubbers et Graaff, 1998] (en point noir).

L’atténuation des ondes ultrasonores a été étudiée, dans la littérature, en fonction de la fréquence d’utilisation [Rudnick, 1958, Selfridge, 1985]. Peu de mesures d’atténuation sont faites en fonction de la température. Pinkerton rapporte dans une publication datant de 1949 la mesure de l’atténuation des ondes ultrasonores dans différents liquides [Pinkerton, 1949]. Les mesures effectuées par l’auteur sont établies sur une gamme de fréquences de l’ordre de la dizaine de mégahertz. L’évolution de l’atténuation est proportionnelle à l’inverse de la température. L’atténuation évolue de façon quadratique par rapport à la fréquence.

TABLE 3.5 – Atténuation des ondes ultrasonores en Np/m dans l’eau pour trois températures mesurée et celle issue de la littérature [Selfridge, 1985].

	25°C	30°C	60°C
Selfridge (Np/m)	0,1064	0,0924	0,0527
<b>Méthode</b> (Np/m)	0,1103	0,1004	–

### 3.3. VALIDATION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

---

Selfridge a reporté l'atténuation des ondes ultrasonores dans l'eau pour trois températures. Les valeurs sont disponibles dans le tableau 3.5. Le comportement de l'atténuation des ondes ultrasonores dans l'eau est reporté comme linéaire dans la littérature pour des fréquences de l'ordre du mégahertz.

La figure 3.10 représente l'atténuation des ondes ultrasonores dans l'eau par la méthode auto-calibrée en fonction de la température. L'atténuation des ondes ultrasonores mesurée dans l'eau apparaît inversement proportionnelle à la température de consigne.

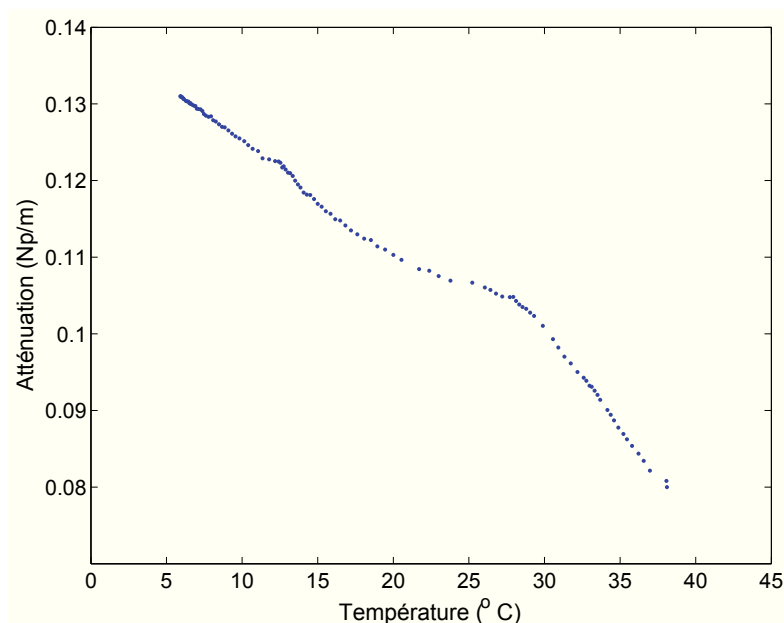


FIGURE 3.10 – Mesures de l'atténuation des ondes ultrasonores dans l'eau en fonction de la température.

Dans notre étude, l'atténuation des ondes ultrasonores n'a pu être mesurée pour des températures allant jusqu'à 60°C. Cependant, nos valeurs d'atténuation des ondes ultrasonores sont cohérentes avec celle de la littérature.

La paramètre non linéaire de l'eau évolue en fonction de la température. Le comportement du paramètre non linéaire n'est pas proportionnel à la température. Cette évolution a été reporté par les travaux de Yoshizumi [Yoshizumi *et al.*, 1987]. La figure 3.11 met en évidence les mesures du paramètre non linéaire effectuées par la méthode auto-calibrée (courbe en point bleu) et celles issues de la méthode thermodynamique proposé par Yoshi-

### 3.3. VALIDATION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

---

zumi (courbe en trait pointillé noir).

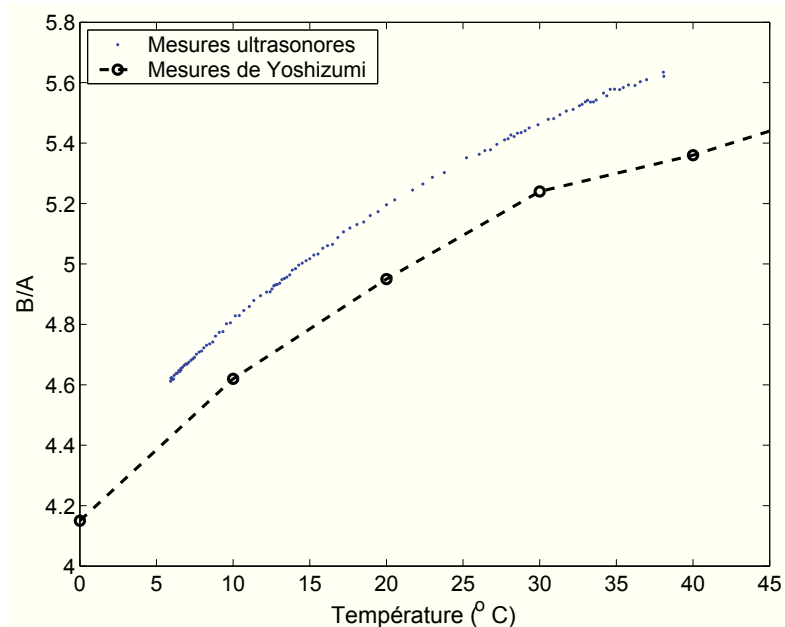


FIGURE 3.11 – Mesures ultrasonores du paramètre non linéaire dans l’eau en fonction de la température par la méthode auto-calibrée (en point bleu) et par la méthode thermodynamique proposé par Yoshizumi (en trait pointillé noir).

Le paramètre non linéaire mesuré par notre méthode auto-calibrée croit en fonction de la température. Le comportement du paramètre non linéaire est identique à celui issu de la littérature. Son évolution en fonction de la température présente une bonne adéquation avec l’évolution du paramètre non linéaire de la littérature. La valeur mesurée par notre méthode est sensiblement plus élevée que la valeur théorique. L’erreur relatif maximum est de 6%. Ce biais sur la valeur du paramètre non linéaire peut s’expliquer par la différence de qualité de l’eau.

Les mesures des paramètres ultrasonores par de la méthode auto-calibrée montrent une bonne adéquation avec ceux de la littérature. Ces mesures permettent de valider le dispositif expérimental ainsi que le protocole de mesure.

## Conclusion

Dans ce chapitre, le dispositif expérimental a été présenté. L'instrumentation mise en oeuvre repose sur des choix technologiques validés par des mesures dans l'eau et le méthanol. Les éléments fondamentaux nécessaires à l'instrumentation ultrasonore sont : le transducteur émetteur-récepteur, la cellule de mesure, la source et l'acquisition couplé au traitement des signaux. Par exemple, il est important que la source de tension soit faiblement non linéaire assurant que ainsi une très faible présence harmonique provenant de la génération électrique. Cette présence harmonique électrique s'avère être faible par rapport à la génération non linéaire cumulative du matériau d'étude. Le choix de la fréquence du transducteur est importante car il doit pouvoir assurer l'émission et la réception des signaux ultrasonores à la fréquence simple et double. Après avoir discuté de chacun des éléments de l'instrumentation, une validation 'statique' et 'dynamique' du dispositif a été effectuée. Le dispositif est donc robuste pour assurer l'étude du paramètre non linéaire  $B/A$  au cours du temps pour des matériaux en évolution.

## Chapitre 4

# Application aux milieux en évolution : les matériaux «sol-gel»

L'application choisi pour mettre en oeuvre l'instrumentation ultrasonore est le suivi des propriétés acoustiques d'un matériau en évolution au cours du temps. Ce matériau sol-gel faiblement atténuant est à base de silice. Le procédé sol-gel est tout d'abord décrit ainsi que les caractéristiques du matériau. Un état de l'art sur la mesure des paramètres visco-élastique du matériau sol-gel est effectué avant d'exposer les résultats des mesures des paramètres acoustiques linéaires et non linéaire.

### 4.1 Caractéristiques du matériau sol-gel

Dans ce paragraphe, les caractéristiques intrinsèques du matériau d'étude sont présentées. Le matériau sol-gel choisi est le TétraMéthOxySilane, noté TMOS. Ce matériau à base de silice est bien connu dans la littérature. Pour s'inclure dans notre démarche de Contrôle Non Destructif, les conditions standards d'élaboration ont été identifiées afin s'assurer la formation fiable et reproductible du matériaux. Certains paramètres influent sur la formation du matériau sol-gel comme la température, le pH, l'évaporation du solvant et du taux de concentration des espèces chimiques. Ainsi, un rappel historique du procédé sol-gel est mené avant la description physico-chimique de ce dernier. Une étude de la température à l'intérieur du matériau sol-gel est décrite en fonction de l'évolution temporelle de celui-ci. Enfin, les grandeurs de cinétique chimique sont introduites, ce qui permettra par la suite d'extraire ces grandeurs de nos mesures acoustiques.

#### 4.1.1 Historique du procédé sol-gel

La fabrication de récipients en verre par le procédé sol-gel fut mis en oeuvre par les travaux systématiques des années 1930 par Schott GmbH. L'utilisation des réactions basées sur l'hydrolyse et la condensation de précurseurs inorganiques en solution à des températures modérées permet d'obtenir des réseaux macromoléculaires. Ainsi, l'obtention de matériaux vitreux peut se faire sans l'étape de la fusion, étape coûteuse en énergie. L'exemple bien connu est la synthèse du verre. Lors de procédé classique de fabrication, pour assurer un mélange homogène, la température doit s'élevée à 1400°C contrairement au procédé sol-gel où une température de 800°C suffit. L'intérêt d'une polymérisation à basse température permet d'élargir la gamme d'applications des matériaux à base de verre. L'utilisation des matériaux sol-gel ne se cantonne pas au domaine optique [Klein, 1994], ils sont aussi utilisé dans l'encapsulation d'anticorps et de protéines [Turniansky *et al.*, 1996]. Les matériaux sol-gel permettent aussi de réaliser des films minces [Gvishi, 2009]. L'autre avantage de ce procédé résulte que l'élaboration se fait en présence de solvants inorganiques. Cette particularité permet de réaliser non seulement des matériaux inorganiques, mais aussi des verres hybrides organo-minéraux [Sanchez *et al.*, 2003].



### 4.1.2 Description du procédé sol-gel

Le procédé sol-gel caractérise les matériaux étant à la frontière entre les solutions et les solides. Lors de leur formation, ces matériaux passent par deux états distincts : la phase «sol» et la phase «gel». L'état «sol» peut-être représenté comme les particules constituant le matériau en suspension dans un solvant. L'état «gel» est constitué de chaînes macromoléculaires inter-connectées piégeant le solvant afin de former un réseau.

La transition de l'état «sol» à l'état «gel» s'effectue par des procédés physico-chimique dépendant du matériau lui-même. Dans le cas des gels chimiques, la transition se produit grâce à des réactions chimiques à température ambiante. L'établissement du réseau macromoléculaire s'effectue par des liaisons chimiques (type covalentes) entre les polymères en solution. Le procédé sol-gel est basé sur deux principales réactions chimiques qui sont l'hydrolyse et la condensation. L'étape d'hydrolyse va permettre introduire des liaisons (OH) au sein des molécules du précurseur grâce aux molécules d'eau libre dans le mélange. L'étape de condensation forme un pont oxo (O-M-O) en libérant une molécule d'eau ou d'alcool. Ces deux étapes de la réaction se font de façon concertées. De plus, les deux étapes de la réaction sont exothermiques. Pour maîtriser le processus, il est indispensable de maîtriser la température du milieu de réaction.

Le matériau sol-gel à base d'alcoxyde de silicium choisi est le TMOS dont la formule chimique est la suivante :  $Si(OCH_3)_4$ . L'alcoxyde de silicium, précurseur de la réaction, se présente sous la forme soluble dans un solvant afin de favoriser la réaction. Le solvant utilisé est un alcool (le méthanol) car le TétraMéthOxySilane n'est pas miscible dans l'eau. Un catalyseur est utilisé afin de garantir un temps de réaction raisonnable (typiquement de l'ordre de l'heure).

Le processus de gélification caractérise la formation du matériau. Les étapes de la formation sont schématisées en figure 4.1. Le matériau se présente sous la forme d'une solution composée de molécules du précurseur (TMOS) dispersées dans le solvant (méthanol). L'ajout du catalyseur avec le précurseur déclenche les réactions chimiques et ainsi active la formation du matériau. En grossissant, les particules ainsi formées vont se connecter les unes aux autres. Durant l'état «sol», l'ensemble des monomères vont réagir et agréger en

#### 4.1. CARACTÉRISTIQUES DU MATÉRIAU SOL-GEL

ramification de polymères. Le temps de gélification est défini comme le moment où l'on peut définir un chemin allant d'une extrémité à l'autre du récipient en passant par les différentes entités polymères. A partir de la première percolation de la chaîne macromoléculaires, le matériau est dans son état «gel».

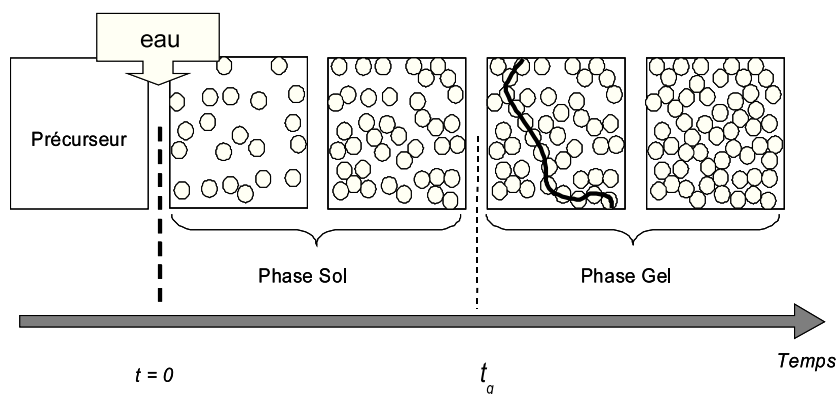


FIGURE 4.1 – Processus de gélification.

Le temps de gélification  $t_g$  est défini comme l'instant où une chaîne macromoléculaire relie les extrémités du récipient. Il dépend de plusieurs paramètres comme le pH, la nature du solvant utilisé, la concentration initiale du précurseur, le taux d'hydrolyse et la température. La température et le taux d'hydrolyse sont des paramètres maîtrisables et nous les ferons varier lors de notre étude. Les autres paramètres tel que le pH et la nature du solvant utilisé sont maintenant identiques pour l'ensemble des matériaux utilisés.

$$h = \frac{[H_2O]_0}{[Si(OCH_3)_4]_0}. \quad (4.1)$$

Le taux d'hydrolyse ( $h$ ) est le rapport entre la concentration massique initiale du catalyseur avec celle du précurseur (équation 4.1).

L'étude réalisée sur les matériaux sol-gel concerne ceux ayant un taux d'hydrolyse égale 4. Un tel choix est motivé par le temps de la mesure en elle-même. Le temps de gel pour ce type de matériau est de 48 minutes pour une température de  $25^\circ\text{C}$ . Ainsi, le suivi des paramètres acoustiques du matériau se fait sur une durée supérieure à trois fois le temps de gel assurant le suivi de l'ensemble de la réaction. Ici, les mesures durent 150 minutes.

### 4.1.3 Évolution de la température lors du procédé sol-gel

La température de consigne est défini comme la température des réactifs avant mélange et à celle à la fin de la réaction. En pratique, l'échantillon est placé avant et pendant les mesures dans une enceinte thermostatée, assurant une température de consigne constante. Seules les températures de début et de fin de la réaction peuvent être maîtrisées. En effet, les réactions assurant la formation du matériau sont exothermiques. Ainsi, la température au sein de matériau évolue au cours de la réaction.

L'évolution de la température au sein un matériau sol-gel avec un taux d'hydrolyse,  $h = 4$ , avec une température de consigne de  $30^{\circ}\text{C}$  est présenté en figure 4.2.

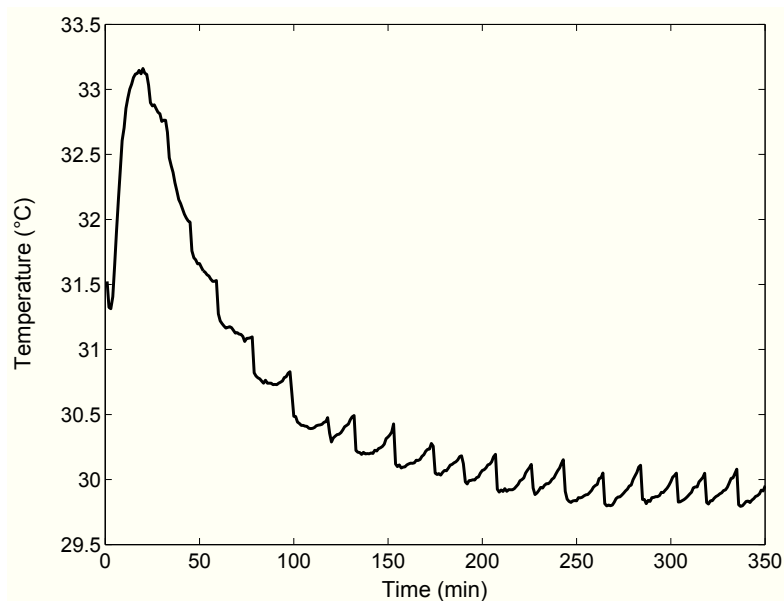


FIGURE 4.2 – Évolution de la température au cours de la formation d'un gel (type  $h = 4$ ) pour une température de consigne de  $30^{\circ}\text{C}$ .

Durant les premières minutes, la température au sein du matériau sol-gel croît rapidement. Cette élévation de température est due au fait que les réactions chimiques, hydrolyse et condensation, sont exothermiques. La température au sein du matériaux décroît pour atteindre la température de consigne de l'étuve. Les oscillations de température sont dues au système de régulation de l'enceinte thermostatée.

#### 4.1.4 Cinétiques du matériau sol-gel

La cinétique des matériaux d'étude est bien connu en fonction du type du précurseur choisi, de la concentration du précurseur, du taux d'hydrolyse, de la température de consigne, du pH et du catalyseur. La cinétique de réaction est décrite par la loi d'Arrhenius et au modèle de Flory-Stockmayer. La loi d'Arrhenius décrit la variation de la vitesse d'une réaction chimique en fonction de la température. Elle est décrite par l'équation suivante :

$$\ln(t_g) = C + \frac{E_a}{R T}, \quad (4.2)$$

avec  $R$  étant la constante des gaze parfaits valant  $8,314 \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-1}$ ,  $t$  le temps de gélification,  $C$  une constante,  $T$  la température en Kelvin et  $E_a$  l'énergie d'activation qui représente la quantité d'énergie nécessaire pour lancer un processus de la réaction chimique.

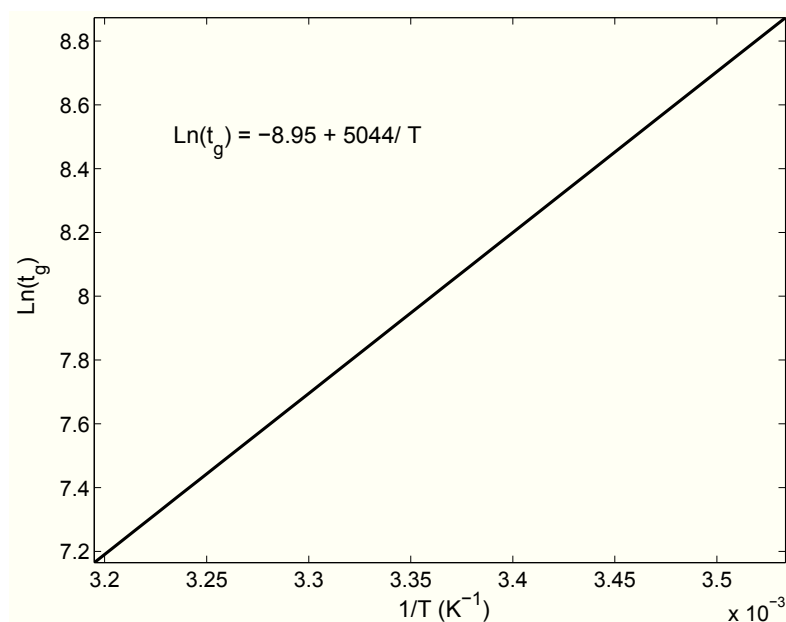


FIGURE 4.3 – Cinétique de réaction en fonction de la température pour un matériau sol-gel à base de silice avec au taux d'hydrolyse égale à 4 [Ould Ehssein *et al.*, 2006].

La figure 4.3 décrit l'évolution du logarithme du temps de gélification en fonction de l'inverse de la température en Kelvin pour un matériau sol-gel ayant un taux d'hydrolyse égal à 4. Dans ce cas, la constante  $C$  est égale à  $-8,95$  et le rapport énergie d'activation sur la constante des gazes parfaits vaut  $5044 \text{ K}$ . L'évolution du temps de gélification en

#### 4.1. CARACTÉRISTIQUES DU MATÉRIAU SOL-GEL

fonction de la température met en évidence l'énergie d'activation apparente de la cinétique de la gélification ( $E_a$ ) qui vaut  $42 \text{ kJmol}^{-1}$ .

Le comportement du temps de gélification est remarquable aussi en fonction du taux d'hydrolyse. Il suit une loi de puissance proportionnelle à  $h^{-1}$ . La figure 4.4 montre le comportement du temps de gélification en fonction du taux d'hydrolyse par deux méthodes de mesures : rhéologie de couette et résonateur à quartz.

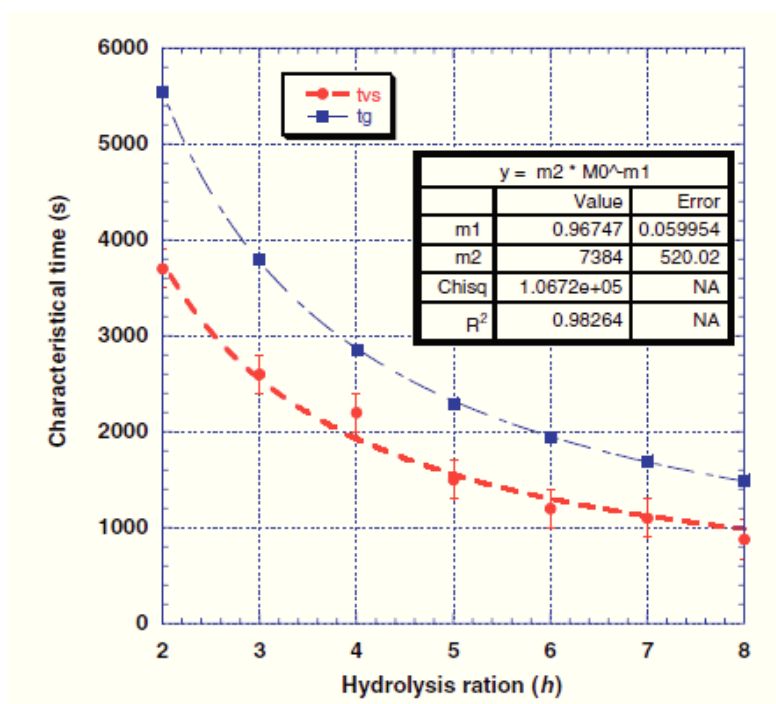


FIGURE 4.4 – Comparaison des temps de gélification  $t_g$  (rhéologie de couette) et  $t_{vs}$  (résonateur à quartz) en fonction du taux d'hydrolyse pour des matériaux sol-gel type TMOS pour une température de consigne de  $25^\circ\text{C}$  [Ould Ehssein *et al.*, 2006].

Le comportement du temps de gélification en fonction de la température et du taux d'hydrolyse permet de connaître la cinétique du matériau sol-gel. Dans les études suivantes, les paramètres acoustiques permettent d'extraire des temps caractéristiques. Leurs analyses en fonction de la température de consigne et du taux d'hydrolyse assurent que ces temps caractéristiques sont liés à la structuration du matériau.

## 4.2 Mesures des paramètres visco-élastiques dans les matériaux sol-gel : État de l'art

Le procédé sol-gel a fait l'objet de nombreuses études destructives et non-destructives afin de quantifier la vitesse de la réaction de gélification. L'étude systématique de la cinétique permet une démarche 'qualité' en vue de l'amélioration du matériau et de sa préparation. Les méthodes de mesure couramment employées utilisent la rhéologie, la fluorescence [Ratajska-Gadomska et Gadomski, 2004], les rayons X, la spectroscopie RMN [Mazur *et al.*, 2000] ou encore l'acoustique comprenant les méthodes ultrasonores. Ici, seules la rhéologie de Couette et les méthodes ultrasonores sont reportées. Pour les méthodes ultrasonores, les paramètres linéaires sont les seuls à être étudiés à notre connaissance.

La rhéologie de Couette, considéré comme la mesure de référence, s'effectue à l'aide d'un rhéomètre rotatif de type Couette. Cette rhéologie basse fréquence consiste en l'étude de l'évolution des paramètres visco-élastiques du matériau. Dans ce cas, la cellule de mesure emprisonne, entre les deux cylindres coaxiaux qui la composent, le matériau sol-gel. Le mouvement de rotation d'amplitude de contrainte constante et de fréquence permet d'obtenir un mouvement laminaire de cisaillement. La mesure des modules élastique  $G'$  et visqueux  $G''$  se fait par des cycles de sweep en fréquence allant de 0,2 à 3 Hz. L'étude de l'évolution des modules élastique  $G'$  et visqueux  $G''$  s'effectue en fonction de la fréquence et du temps [Chambon et Winter, 1987, Richtering *et al.*, 1992]. L'analyse de l'évolution des modules élastiques et visqueux montre une croissance des paramètres. La transition sol-gel,  $t_g$ , est définie par l'instant où les grandeurs élastiques changent brutalement.

Gibiat *et al.* ont démontré le potentiel des propriétés acoustiques appliquées aux matériaux aérogel à base de silice proche des matériaux sol-gel [Gibiat *et al.*, 1995]. Dans cette étude, des mesures de vitesse est effectuée dans des matériaux à faible densité. En appliquant une impulsion mécanique au matériau sol-gel, il émet un son caractéristique évoluant au cours de sa formation [Serfaty *et al.*, 1998, Senouci *et al.*, 2001]. Le principe de la mesure consiste à propager une onde acoustique dans la gamme de fréquence de l'audible (50 à 20 kHz) et de détecter les ondes de pressions propagatives avec interférence. Ces interférences permettent de caractériser la transition sol-gel. A partir des signaux électriques d'entrée et

## 4.2. MESURES DES PARAMÈTRES VISCO-ÉLASTIQUES DANS LES MATÉRIAUX SOL-GEL : ÉTAT DE L'ART

---

de sortie, la fonction de transfert complexe  $\tilde{H}(f, t)$  est extraite et représentative des modifications subis par l'onde acoustique propagée en s'affranchissant de son environnement (transducteur et cellule de mesures). La fonction de transfert est extrait à partir d'une soustraction d'une référence, le premier instant de la réaction. L'évolution de la charge du transducteur aux cours de la formation du matériau n'est pas pris en compte dans cette étude. Avec l'addition d'un filtre Savitzky-Golay, la fréquence de résonance est isolée et suivi au cours de la réaction. Ce suivi des pics de résonance de la fonction de transfert fait apparaître une dépendance des propriétés du matériau sol-gel. Ainsi, les paramètres viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  sont déduits et permet de remonter à la cinétique de gélification.

Une méthode de rhéologie ultrasonore basée sur le suivi de la réponse du matériau à une contrainte harmonique de cisaillement s'effectue grâce à un résonateur à quartz. Le résonateur sonde les paramètres élastique et viscoélastique du matériau sol-gel en contact autour de sa fréquence de résonance de l'ordre de 6 MHz [Griesmar *et al.*, 2003, Ould Ehssein *et al.*, 2006]. Le quartz ayant des propriétés piézo-électriques, une onde de cisaillement est générée et propagée dans le milieu en contact. L'impédance électrique du quartz est modifiée par l'impédance mécanique du matériau en contact. Le suivi de la partie réelle et imaginaire de l'impédance électrique assure la détermination des paramètres élastique et viscoélastique. L'évolution des modules élastique  $G'$  et visqueux  $G''$  fait apparaître de fortes variations indépendamment des fréquences des résonances. Ainsi, le suivi des paramètres met en évidence un temps caractéristique lié au temps de gélification. Cette méthode est mise en oeuvre sur l'évolution des paramètres viscoélastiques durant la formation de yaourt [Ould-Ehssein *et al.*, 2006].

Cros *et al.* [Cros *et al.*, 2001] met en évidence une technique d'investigation basée sur l'altération de l'état de résonance d'un cornet acoustique en fonction de l'évolution du matériau. Le cornet acoustique se prolonge d'une sonde qui est plongé dans le matériau d'étude. L'investigation s'effectue sur les maximums de la partie réelle de l'impédance à la résonances. Cette résonance est de l'ordre de la dizaine de kilohertz. L'amplitude des pics de résonances évoluent au cours de la formation du matériau sol-gel. Les auteurs montrent que l'évolution des pics de la première résonance et de la deuxième sont similaires. L'hypothèse permettant de suivre l'évolution est que la viscosité entre l'état fluide et l'état solide soit

homogène. Ainsi, les évolutions des pics de résonances sont sensibles aux pH et aux taux d'hydrolyse mettant en évidence que ce suivi est sensible à la gélification.

Une autre technique d'investigation assure le suivi de l'évolution du matériau sol-gel par l'étude des conditions limites d'une plaque d'aluminium [Wilkie-Chancellor *et al.*, 2006]. Les ondes de Lamb générés par un transducteur se propagent le long de la plaque d'aluminium. Le matériau sol-gel charge la plaque d'aluminium en son extrémité. Ainsi, en fonction de l'évolution du matériau, les conditions limites varient entraînant une variation des amplitudes du mode de Lamb excité,  $A_1$ . Cette étude montre l'importance de prendre en compte l'effet de température dans le matériau. En effet, les réactions formant le matériau sol-gel étant exothermiques, la vitesse des ondes Lamb est dépendante de la température. Après correction des effets de la température, les auteurs mettent en évidence un temps caractéristique lié au processus de gélification. Comme dans le cas du cornet acoustique, plonger une sonde dans le matériau d'étude peut engendrer des problèmes de contact. L'apparition de fissures ou de décollement de matière autour de la sonde est à envisager dans le cas d'étude temporelle longue comme pour l'étude du vieillissement.

Le paramètre majoritairement mesuré dans la communauté est la vitesse des ondes ultrasonores se propageant au sein du matériau. La mesure de ce paramètre est largement répandu car facile à mettre en place. Dans les matériaux sol-gel, la vitesse a fait l'objet de plusieurs études comme par exemple Vollet *et al.* [Vollet *et al.*, 1999] ou Forest *et al.* [Forest *et al.*, 1998]. Seule la connaissance de la célérité ultrasonore ne fait pas obligatoirement apparaître la caractéristique liée à la formation. L'évolution de la vitesse de ondes ultrasonores a été étudiée dans le cas de l'évaporation du solvant lors de la synthèse du matériau sol-gel [Matsukawa *et al.*, 1996]. Le comportement de la vitesse des ondes ultrasonores est différent entre un système ouvert (croissant puis progressivement décroissant une fois la gélification du matériau est établie) et un système fermé (décroissant). Cette différence de comportement s'explique par celle de la réaction quand le système est ouvert ou fermé. La mesure de la vitesse des ondes ultrasonores dans les matériaux sol-gel a été comparée à une étude de fluorescence [Ratajska-Gadomska et Gadomski, 2004]. De cette comparaison, le temps de gélification est clairement identifié sur la mesure de la vitesse ultrasonore en fonction de l'évolution du matériau. La mesure des paramètres linéaires



acoustiques a été mise en oeuvre dans des matériaux proches des matériaux sol-gel à base de TMOS. La transition sol-gel a été surveillé grâce à des mesures de vitesse pour des matériaux type hydrocolloids naturels [Toubal *et al.*, 2003]. La détermination des modules viscoélastiques en est facilement déduite. La mesure d'atténuation des ondes ultrasonores au sein des matériaux sol-gel type TMOS est moins abondante. Cependant, les travaux de Bacri *et al.* mettent en évidence la faisabilité de mesurer l'atténuation à haute fréquence du processus de gélification sur des gels acryliques [Bacri *et al.*, 1980].

Ainsi, dans notre étude, la mesure des paramètres acoustiques linéaires (célérité et atténuation) et non linéaire est mise en oeuvre. La méthode auto-calibrée assure la détermination des champs de pression absolue tout en prenant en compte l'évolution de la charge acoustique.

### 4.3 Mesures des paramètres acoustiques : Résultats expérimentaux

Les paramètres acoustiques mesurés au cours de la formation du matériau sol-gel sont la célérité, l'atténuation des ondes ultrasonores et le paramètre non linéaire. L'évolution des paramètres acoustiques permet d'extraire des temps caractéristiques liés à la cinétique de la réaction chimique. Nous avons vu dans le paragraphe précédent que la cinétique de la réaction du matériau sol-gel dépendait de plusieurs facteurs et notamment la température et la taux d'hydrolyse. Dans un premier temps, le taux d'hydrolyse est fixé et égale à 4. Une série de mesures est effectuée avec différentes températures de consigne. Puis, la température de consigne est fixée à 25°C, une série de mesures est effectuée avec différents taux d'hydrolyse.

Avant de présenter l'évolution des trois paramètres acoustiques durant la formation du matériau sol-gel, le protocole de mesures et l'effet de la calibration sont détaillés. Ce protocole assure une répétabilité de l'expérience et ainsi une bonne répétabilité des mesures. Enfin, après avoir extrait les temps caractéristiques des mesures de la célérité, de l'atténuation et du paramètre non linéaire, ils sont comparés à ceux de la littérature afin d'affirmer qu'ils reflètent la structuration du matériau sol-gel.

#### 4.3.1 Protocole expérimental

Le dispositif expérimental est automatisé afin d'assurer la mesure des signaux électriques avec un intervalle de temps régulier. Un protocole expérimental est mis en place et décrit l'ensemble des mesures à effectuer au cours du temps. L'automatisation permet l'étude de matériaux ayant une évolution temporelle de ses propriétés visco-élastiques. L'évolution du matériau doit être de l'ordre de l'heure. Si l'évolution est plus rapide, l'ensemble des mesures ne peuvent pas être fait dans les conditions idéales. En effet, l'hypothèse utilisée est qu'un point de mesure représenté par des mesures de courants et de tensions d'entrées et de sorties s'effectue sur un matériau qui a peu évolué. Si le matériau se forme trop rapidement, cette hypothèse n'est plus valable.

Les différentes mesures nécessaires pour déterminer les paramètres acoustiques du ma-

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

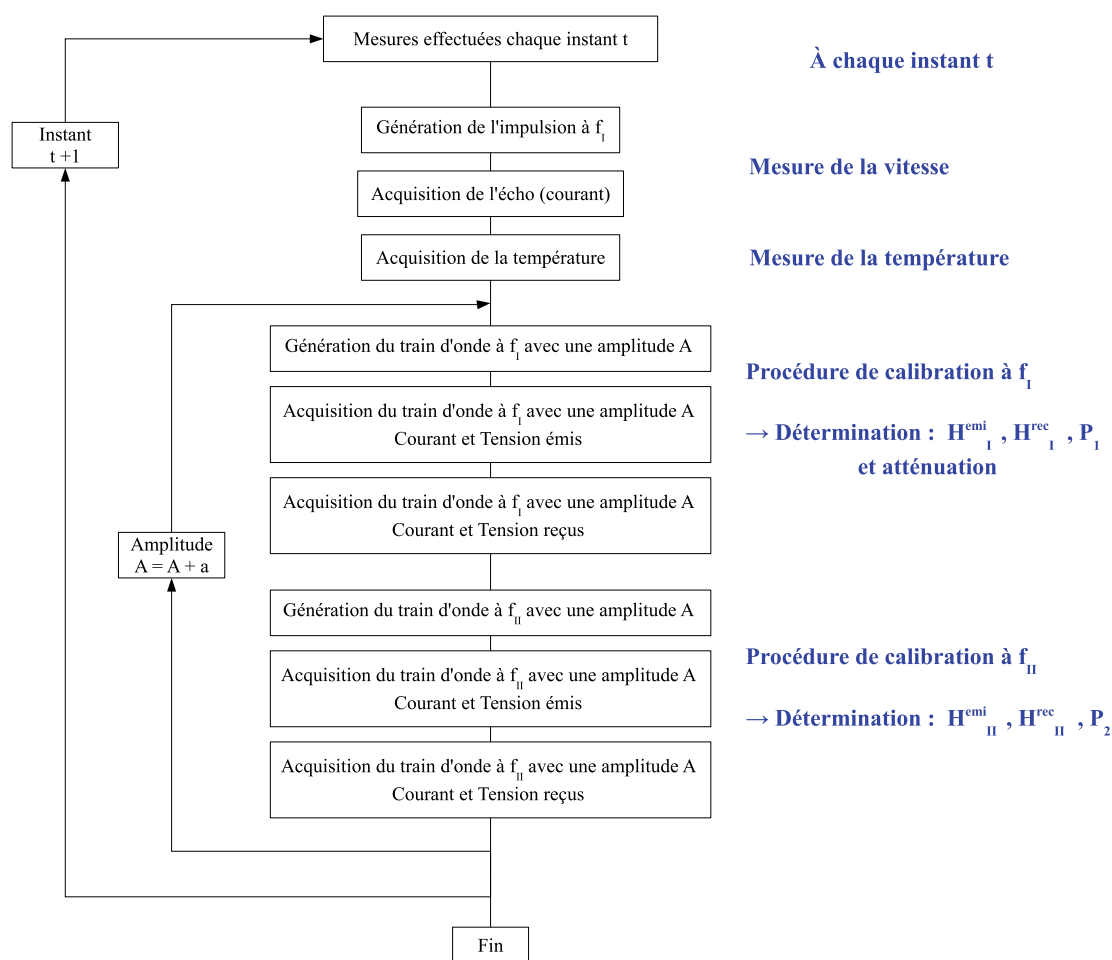


FIGURE 4.5 – Diagramme du protocole d'acquisition des signaux électriques d'entrées et de sorties aux bornes du transducteur ainsi que de la température du milieu d'étude.

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

tériau en prenant en compte les fonctions de transfert du transducteur ont été mis en lumière dans les chapitres précédents. La figure 4.5 présente le diagramme synthétisant des mesures expérimentales effectuées. Les mesures effectuées sont à rapprocher des grandeurs physiques extraites de ces dernières.

La première étape consiste à faire l'acquisition de la célérité et de l'atténuation à partir d'une impulsion à la fréquence simple ( $f_I$ ) générée dans le milieu d'étude. L'acquisition du courant de sortie aux bornes du transducteur est effectuée. La température du milieu est acquise et sauvegardée durant l'étape suivante. La procédure de calibration nécessite l'acquisition des trains d'ondes des signaux d'entrées et de sorties. La calibration doit s'effectuer à la fois en émission et en réception afin de déterminer les fonctions de transfert et les champs de pressions fondamentales et harmoniques. Pour déterminer le paramètre non linéaire, il est important d'évaluer la pente du rapport des pressions harmoniques sur les pressions fondamentales (paragraphes 2.3). Pour obtenir cette pente, différents niveaux d'excitation sont émis à travers le milieu d'étude. Ainsi, un train d'ondes est émis avec une amplitude  $A$  et une fréquence  $f_I$ . Les courants et les tensions émis et reçus sont acquis. Puis l'opération est répétée pour des trains d'ondes à une fréquence  $f_{II}$ . Cette étape est répétée trois fois avec des amplitudes  $A$  différentes afin de déterminer la pente de la pression harmonique à l'ordre deux en fonction de la pression au fondamentale au carré. Cette étape est consommatrice de temps car elle nécessite une moyenne des signaux pour réduire le bruit. Chaque signal acquis est moyenné 40 fois. Ainsi, l'étape mesurant les signaux entrées et sorties aux deux fréquences ( $f_I$  et  $f_{II}$ ) pour deux amplitudes, soit 16 acquisitions, nécessite 45 secondes. Ces trois étapes sont régulièrement répétées pour suivre les paramètres ultrasonores au cours de la formation du matériau. Dans le cas des matériaux sol-gel, ces étapes sont répétées toutes les deux minutes.

La génération harmonique nécessite des niveaux de pression d'amplitude élevées de l'ordre de 0,1 MPa. Techniquement, l'amplitude de la tension d'entrée aux bornes du transducteur est de 100 V pour un courant d'entrée de 1 A. La pression à l'harmonique 2 recueillie aux bornes du transducteur est de l'ordre de 5000 Pa. Les niveaux de pressions générées dans le matériau assurent la génération harmonique tout en préservant l'intégrité du matériau. Les niveaux de pressions générées ne perturbent pas la formation du matériau.

Notons que des précautions doivent être prises concernant l'utilisation du matériau sol-gel. Lors du mélange du catalyseur avec le solvant, de micro-bulles d'eau apparaissent. Ce phénomène s'explique par la nature des espèces chimiques en jeu. Pour cause, le méthanol est peu miscible dans l'eau faisant apparaître des micro-bulles. Ce phénomène peut engendrer une erreur sur la mesure de l'atténuation si le mélange n'est homogène avant le début des mesures.

Le traitement des données acquises lors du suivi des paramètres acoustiques empreinte la même hiérarchie que le protocole de mesures. Ainsi, la célérité et l'évaluation de l'atténuation des ondes ultrasonores sont directement déterminées de l'acquisition du signal à la fréquence  $f_I$  (étape 1). Les procédures de calibration aux fréquences  $f_I$  et  $f_{II}$  assurent respectivement la détermination de la pression à la fréquence fondamentale et harmonique 2 (étape 3). Le paramètre non linéaire est déduit de la rampe en tension combiner avec l'expression du champ de pression décrit par la décomposition en sommes de gaussiennes.

#### 4.3.2 Effet de la calibration

Pendant la formation du matériau, l'impédance acoustique de la charge va évoluer au cours du temps impliquant une variation des fonctions de transfert du transducteur à la fois en émission et en réception. Or, la fonction de transfert est nécessaire à prendre en compte pour déterminer l'atténuation des ondes ultrasonores dans le matériau au cours de son évolution. De même, le coefficient de diffraction est nécessaire à prendre en compte pour déterminer les deux paramètres : célérité et atténuation.

Durant la formation du matériau sol-gel, la célérité des ondes ultrasonores varie de 5%. Cette variation implique de fait une variation identique de l'impédance acoustique. Ainsi, par conséquence les fonctions de transfert en émission et en réception varient chacune de 6%. Cette variation normalisée est illustrée en figure 4.6. Le rapport des fonctions de transfert est introduit dans le calcul de l'atténuation exprimé dans le paragraphe 2.2.3. La procédure permettant de déterminer l'atténuation est aussi précisée dans ce paragraphe.

L'expression de l'atténuation fait apparaître l'influence des effets de diffraction et de réflexion. Ces deux effets peuvent être quantifiés. Les fonctions de diffraction lors de la formation du matériau sol-gel représentent seulement 1,3% de variation. La variation du

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

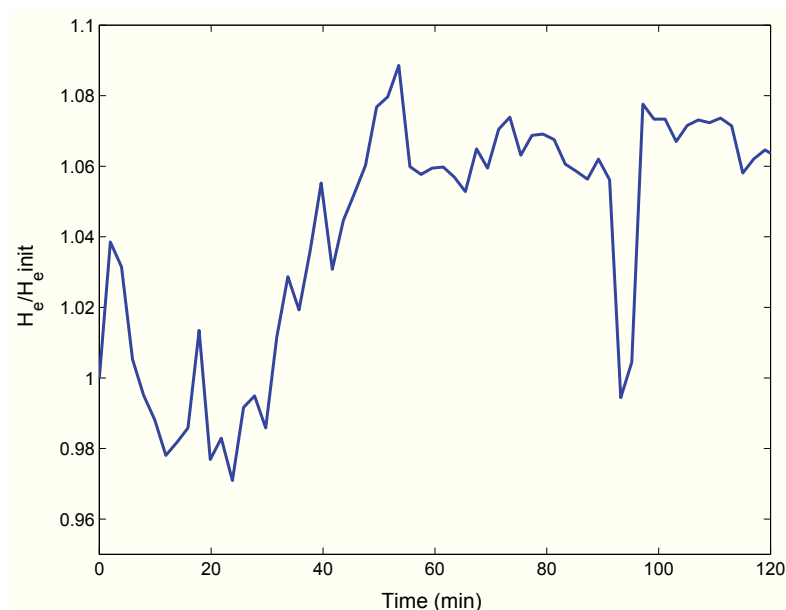


FIGURE 4.6 – Module de la fonction de transfert du transducteur en émission pour un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d’hydrolyse de 4.

coefficient de réflexion est encore plus faible soit de 0,5%. La procédure de calibration met en évidence que les fonctions de transfert du transducteur sont quatre fois plus influent que la fonction de diffraction.

Dans ces mesures, la fonction de transfert du transducteur est prise en compte pour le calcul de l’atténuation. En effet, la célérité des ondes longitudinales ultrasonores est directement déduite des signaux électriques mesurés (courants de sortie aux bornes du transducteur). Pour cause, l’argument du rapport des fonctions de transfert que ce soit en émission ou en réception est négligeable. Le transducteur largement bande est utilisé avec un fonctionnement aux fréquences proches de celle de la résonance. A ce point de fonctionnement, la partie imaginaire de l’impédance électrique du transducteur est proche de zéro. Ainsi, la pression et le courant peuvent être considérés en phase.

Dans les mesures présentées à la fin de ce chapitre, la fonction de transfert est pris en compte pour la détermination de l’atténuation pour les raisons invoquées ci-dessus. La procédure de calibration est nécessaire pour déterminer les pressions émises et reçues.

### 4.3.3 Célérité des ondes ultrasonores

La mesure directe de la phase des courants de sortie permet de suivre l'évolution de la célérité mais aussi de connaître sa valeur absolue. Dans ce paragraphe, la mesure de la célérité des ondes ultrasonores dans les matériaux sol-gel avec un taux d'hydrolyse  $h = 4$  au cours de leurs formations en fonction de la température de consigne est étudié. Dans un premier temps, le comportement de la célérité des ondes est décrit pour une température de consigne donnée. Après avoir montré la répétabilité de la mesure, les résultats de l'étude en fonction de la température de consigne sont présentés. Ils permettent d'extraire un temps caractéristique lié à la structuration du matériau.

La figure 4.7 montre le comportement de la célérité des ondes ultrasonores dans un matériau sol-gel en formation avec une température de consigne de  $23^{\circ}\text{C}$ .

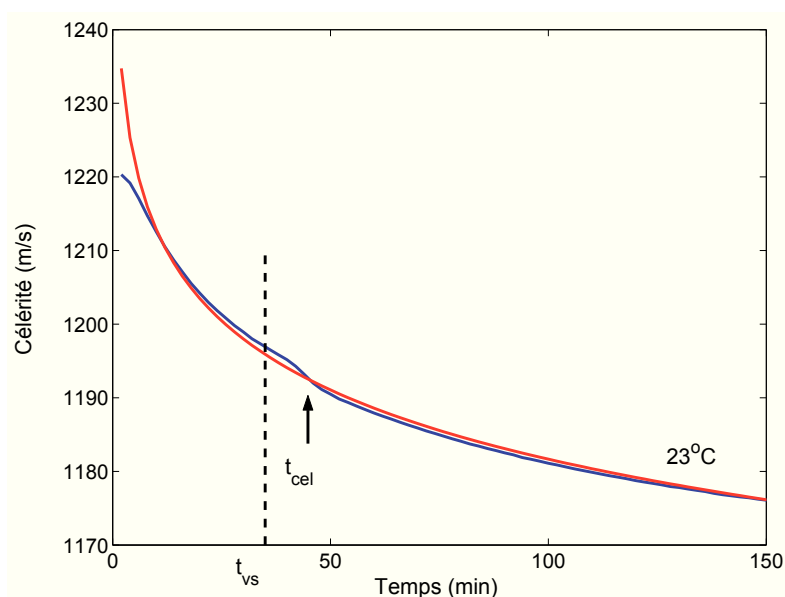


FIGURE 4.7 – Célérité des ondes ultrasonores et son ajustement mesurés dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 pour une température de consigne de  $23^{\circ}\text{C}$ .

Le comportement de la célérité est relié à deux phénomènes qui sont l'évolution de la température au sein du matériau et la formation du réseau macromoléculaire. Lors des premiers instants de la réaction, la célérité décroît rapidement. Ce phénomène est beaucoup plus visible sur les courbes de célérité dans le cas des basses températures de consigne car

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

la réaction est ralentie. Puis, la célérité diminue progressivement pour atteindre une valeur limite. La célérité a une décroissance logarithmique comparable à celle de la température. Le phénomène lié à la formation du réseau macromoléculaire fait apparaître une anomalie de comportement sur la célérité localisée par la flèche noire sur la figure 4.7. Le temps de gélification déterminé par la méthode de rhéologie ultrasonore est indiqué par la marque verticale en pointillé.

La forte augmentation des premiers instants s'explique par la nature exothermique des deux réactions à la base de la formation du matériau sol-gel. Cependant, le comportement de la célérité est aussi lié à la structuration du matériau durant la réaction de gélification. Afin de mettre en évidence la superposition des effets de la température et de la structuration du matériau, le comportement décroissant monotone de la courbe de célérité est ajusté par rapport à une exponentielle décroissante *ad hoc* proportionnelle à la décroissance de la température au sein du matériau. Cet ajustement est soustrait à la mesure de la célérité afin de faire apparaître les variations de la célérité liées à la réaction de gélification. La soustraction entre la mesure de la célérité et son ajustement est disponible en figure 4.8.

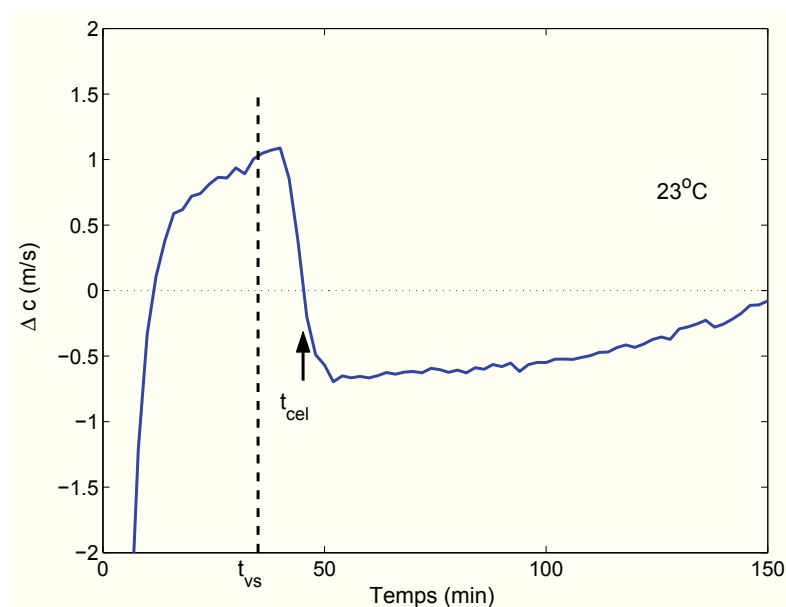


FIGURE 4.8 – Variations de la célérité compensées en température dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égale à 4 pour une température de consigne de 23°C.

La soustraction de la mesure de la célérité avec son ajustement limite l'influence de la



### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

température de la mesure et permet de mieux faire apparaître les variations strictement liées à la structuration du matériau (figure 4.8). Arbitrairement, le temps caractéristique lié à la structuration du matériau est défini par le passage à zéro de la courbe de la célérité compensée en température. Ce temps caractéristique extrait du comportement de la célérité est noté  $t_{cel}$ . Dans le cas de la mesure de la célérité des ondes ultrasonores pour un matériau sol-gel avec un taux d'hydrolyse égal à 4 et une température de consigne de  $23^{\circ}\text{C}$ , la compensation en température fait apparaître un temps caractéristique de 44 minutes.

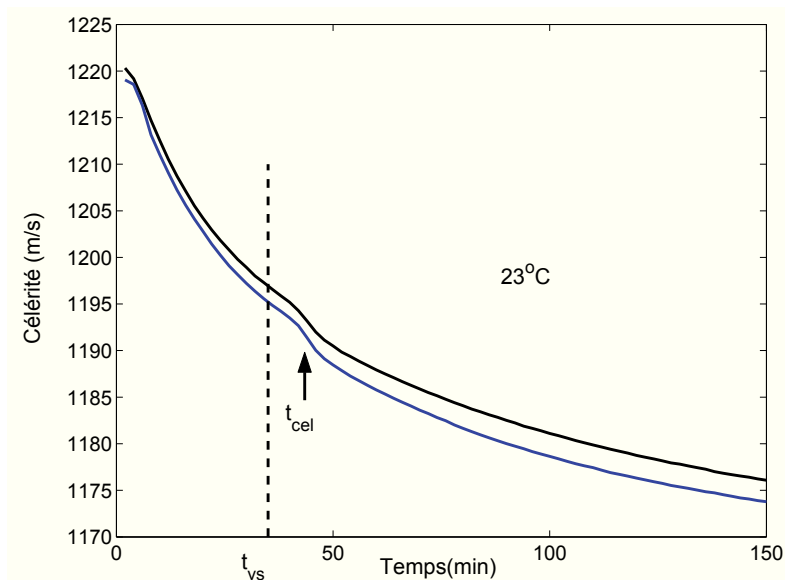


FIGURE 4.9 – Deux mesures de la célérité des ondes ultrasonores dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 pour des conditions de température de consigne identique.

La figure 4.9 montre deux suivis de célérité au cours de la formation du matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 pour des conditions de température de consigne identique soit  $23^{\circ}\text{C}$ . Cette figure montre la répétabilité du comportement des mesures de la célérité des ondes ultrasonores dans un matériau sol-gel. Le comportement de la célérité est identique. Un écart entre les deux expériences apparaît et est évalué à  $2\text{ ms}^{-1}$ . Cet écart de mesure entre deux expériences représente une erreur de 0,2% sur la valeur initiale de la célérité des ondes ultrasonores dans le matériau sol-gel. Dans les deux expériences, le temps caractéristique lié à la structuration du matériau extrait des

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

courbes de la célérité est identique pour les deux mesures et donne 44 minutes. Le temps caractéristique est ici indiqué par le flèche bleue sur la figure 4.9. La marque verticale en pointillée noir indique le temps caractéristique issu des mesures par résonateur à quartz.

La célérité au cours de la formation du matériau sol-gel a été mesurée pour différentes températures de consigne. Les résultats sont reportés sur la figure 4.10.

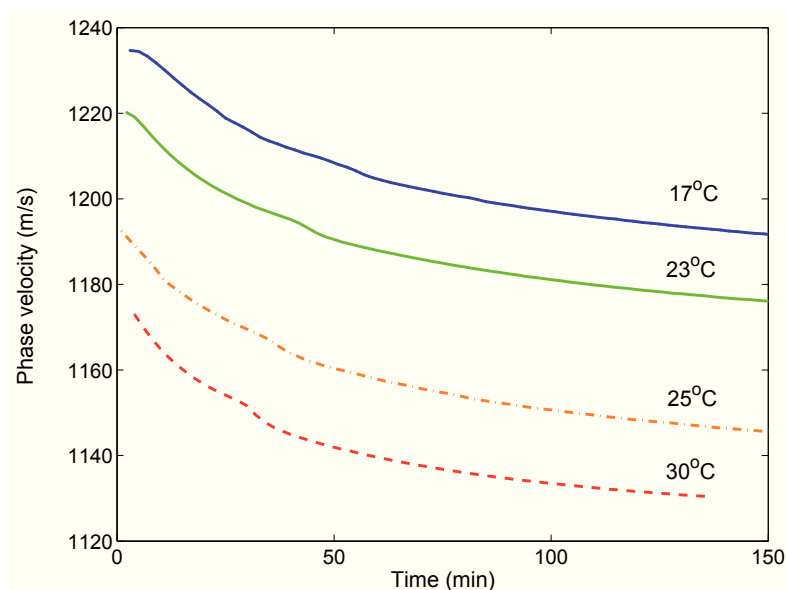


FIGURE 4.10 – Mesures de la célérité des ondes ultrasonores dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 pour différentes températures de consigne.

La célérité décroît durant le formation du matériau sol-gel. L'écart entre la célérité initiale et finale est plus grand pour les températures élevées. La célérité des ondes ultrasonores dépend de la température de consigne du matériau. Typiquement pour un matériau sol-gel avec une température de consigne de 17°C, la célérité dans les premiers instants est de  $1234\text{ms}^{-1}$  et seulement de  $1174\text{ms}^{-1}$  pour 30°C.

De la même façon que pour la célérité des ondes ultrasonores pour le matériau sol-gel avec une température de consigne de 23°C, la célérité compensée en température a été effectuée sur l'ensemble des mesures de célérité pour différentes températures. Des courbes de célérité compensée en température (figure 4.11), un temps caractéristique lié à la structuration du matériau sol-gel est extrait de l'ensemble des mesures pour les différentes températures de consigne.

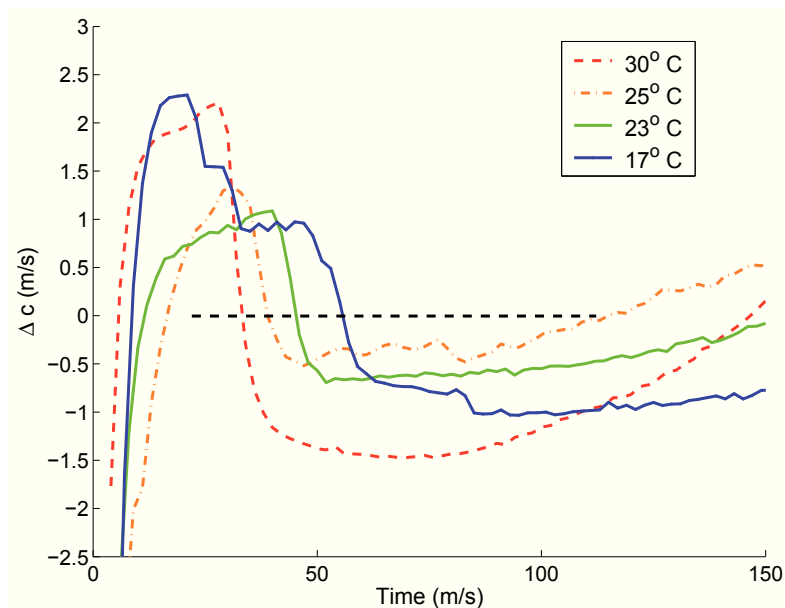


FIGURE 4.11 – Variations de la célérité compensées en température dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 pour différentes températures de consigne.

Les résultats extraits des mesures de la célérité sont présentés dans le tableau 4.1 et sont discutés dans le paragraphe suivant.

#### 4.3.4 Atténuation des ondes ultrasonores

L'atténuation des ondes ultrasonores dans le matériau sol-gel avec un taux d'hydrolyse  $h = 4$  au cours de sa formation est étudiée en fonction de la température de consigne. En faisant varier la température de consigne pour les différentes expériences, nous cherchons à mettre en évidence des variations de cinétique de la réaction formant le matériau. Ces variations sont connues et disponibles dans la littérature. Dans un premier temps, le comportement de l'atténuation des ondes ultrasonores dans un matériau sol-gel est décrit pour une température de consigne de 25°C. Puis, les résultats de l'étude en température sont exposés. La mise en évidence d'un temps caractéristique lié à la formation du matériau sol-gel permettra de le comparer avec le temps de gélification issu de la littérature.

La valeur de l'atténuation dans le milieu à l'instant initial est déterminée par une étude préliminaire avec une méthode conventionnelle des ondes ultrasonores en transmission. Cette technique consiste à envoyer une impulsion à travers le matériau d'étude pour

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

deux distances de propagations différentes. Lors de cette détermination de la valeur de l'atténuation dans le milieu à l'instant initial, le matériau sol-gel est remplacé par un mélange inerte respectant les proportions des espèces chimiques mise en jeu pour éviter la gélification du matériau et ainsi permettre la mesure à deux distances de propagation. Ce mélange est constitué d'eau et de méthanol sans le principe actif. La concentration majoritaire pour la formation de matériaux sol-gel type TMOS est celle du méthanol, soit 90%. Ce mélange, à l'image du matériau sol-gel au premier instant de la réaction, respecte les volumes d'eau et de méthanol utilisés pour la formation du matériau sol-gel avec un taux d'hydrolyse égal à 4. Ainsi, la valeur de l'atténuation au premier instant de la réaction vaut  $3,0210^{-14} f^2 \text{Np/m}$ . Cette valeur de l'atténuation initial du matériau sol-gel est considérée comme indépendante de la température. Notons aussi que l'atténuation des ondes ultrasonores pour des matériaux sol-gel à base de TMOS est faible. L'atténuation initiale est proche de celle de l'eau,  $2,5310^{-14} f^2 \text{NP/m}$ .

Dans le chapitre 2, le principe des mesures ultrasonores linéaires a été décrit. L'importance de prendre en compte la variation de la charge acoustique pour la détermination de l'atténuation des ondes ultrasonores dû à l'évolution du matériau sol-gel a été soulignée. Ainsi, la mesure de l'atténuation s'effectue en deux temps : l'évaluation de l'atténuation à partir des courants de sortie puis la prise en compte de la calibration du transducteur pour déterminer de la valeur de l'atténuation.

La variation globale de l'atténuation des ondes ultrasonores en fonction du temps est plutôt difficile à mettre en oeuvre due à ses faibles variations. Les difficultés de mesurer l'atténuation résident dans la détection des faibles variations de l'amplitude des courants et des tensions de sortie aux bornes du transducteur. La détection des amplitudes est dépendante de l'instrumentation utilisée. Grâce à nos choix technologiques, les variations de l'atténuation sont clairement visibles (figure 4.12). Le comportement de l'évolution au cours du temps de la mesure de l'atténuation  $y$  est présenté pour un matériau en formation avec une température de consigne de  $25^\circ\text{C}$ . L'atténuation reste constante durant les premières minutes de la réaction. Puis l'atténuation croît rapidement. Après cette brusque variation, l'atténuation augmente lentement et de façon monotone. A la fin de la réaction, une décroissance est observée.

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

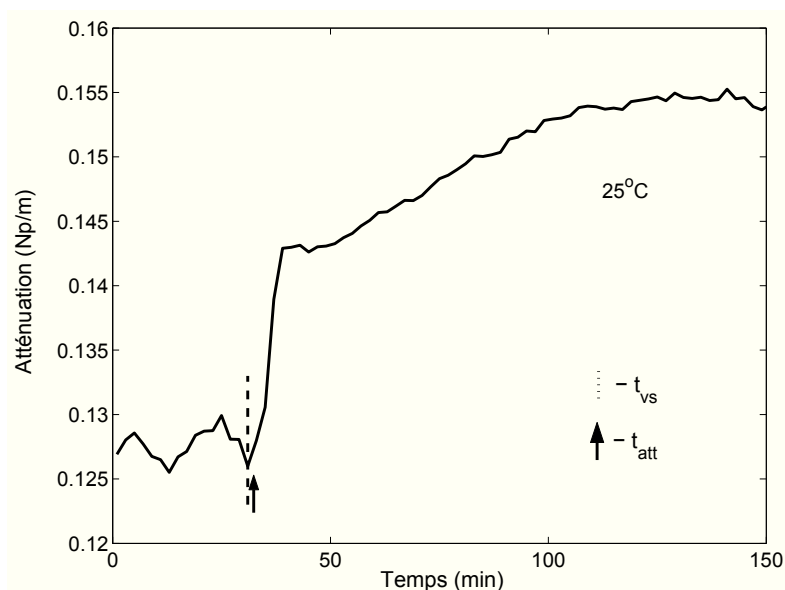


FIGURE 4.12 – Mesure de l'atténuation dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 au cours de sa formation pour une température de consigne de 25°C.

Le comportement de l'atténuation s'explique par les transformations physico-chimiques réalisées au sein du matériau. En effet, lors du mélange des deux réactifs, les deux réactions chimiques débutent et forment de petits agrégats de macromolécules. Au premiers instants de la réaction, ces petits amas macromoléculaires ne semblent pas être assez dense pour être visible sur les courbes d'atténuation. Au cours de la réaction, l'accroissement du nombre et de la taille des amas de macromolécules font croître l'atténuation du matériau. Une augmentation de l'atténuation semble être directement lié à la structuration du matériau. A partir de la 32<sup>ème</sup> minute de la formation du matériau sol-gel pour une température de consigne de 25°C, une brusque augmentation d'atténuation est clairement visible. Dans ce genre de matériau sol-gel, le réseau macromoléculaire est formé à 75% quelques minutes après le temps de gélification. Ce qui correspond à la brusque augmentation puis à la croissance progressive de l'atténuation pour les 25% du réseau macromoléculaire à former. Au environ de 120 minutes, une décroissance de l'atténuation apparaît. Elle s'expliquent par le vieillissement du matériau autrement appelé synérèse.

La marque verticale en pointillée sur la figure 4.12 indique le temps de gélification issu de la mesure de résonance à quartz pour un matériau sol-gel avec un taux d'hydrolyse

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

( $h = 4$ ) à une température de consigne identique à notre mesure ( $25^{\circ}\text{C}$ ). La variation brusque de l'atténuation concorde avec le temps de gélification mesuré par la rhéologie ultrasonore à  $25^{\circ}\text{C}$  qui est de 32 minutes.

Le temps de gélification est défini comme l'instant où une chaîne macromoléculaire relie les extrémités du récipient, se traduisant par l'instant de transition entre la phase sol (liquide) et la phase gel (solide). Ce changement de comportement est visible sur l'évolution de l'atténuation en fonction de la formation du matériau. En se basant sur les définitions des différents temps caractérisant la gélification de ces matériaux, un temps caractéristique se dégage du comportement de l'atténuation. Le temps caractéristique extrait de ce paramètre est défini par l'instant où l'atténuation augmente brutalement. Ce temps caractéristique extrait du comportement de l'atténuation est nommé  $t_{att}$ . Pour le matériau sol-gel en formation avec une température de consigne de  $25^{\circ}\text{C}$ , le temps caractéristique,  $t_{att}$ , est de 32 minutes.

Afin de mettre en évidence la cinétique de la structuration du matériau, une étude en fonction de la température de consigne est menée. Ces mesures permettent de confirmer le comportement de l'atténuation du matériau en évolution. Les mesures de l'atténuation pour un matériau sol-gel avec un taux d'hydrolyse égale à 4 en fonction de la température de consigne sont reportées sur le figure 4.13. Elles font apparaître pour l'ensemble des expériences menées une brusque augmentation sur l'ensemble des courbes d'atténuation .

Deux zones, séparées par la brusque variation de l'atténuation, peuvent être identifiées. En effet, durant les premiers instants, l'atténuation reste constante et stable autour d'une valeur proche de la valeur de l'atténuation initiale. Puis une augmentation brutale de l'atténuation apparaît. Après cette augmentation brutale, l'atténuation croît progressivement et lentement. Sur la mesure de l'atténuation à une température de consigne de  $30^{\circ}\text{C}$ , une décroissance apparaît sur le comportement de l'atténuation. Ce phénomène apparaît bien plus tard (à 170 minutes) pour le mesure à une température de consigne de  $17^{\circ}\text{C}$ . Ce comportement est à rapprocher de la fin de la réaction et de la dégénérescence du gel.

La variation de l'atténuation des ondes ultrasonores dépend clairement de la température de consigne dans laquelle est plongée le matériau. Cette température a une influence sur la vitesse de la réaction. Suivant la température de consigne, la variation de l'atté-

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

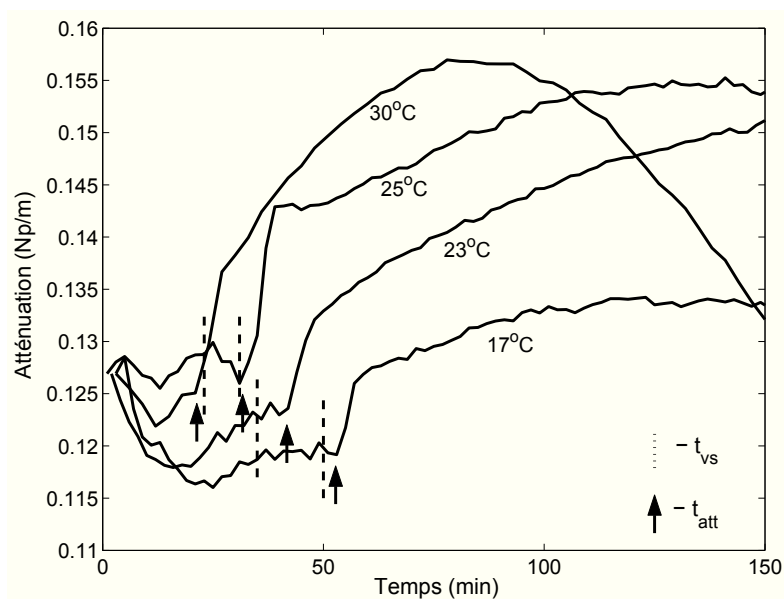


FIGURE 4.13 – Mesures de l'atténuation au cours du temps dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égale à 4 pour différentes températures de consigne.

uation est plus ou moins importante. Plus la température de consigne est élevée, plus les variations de l'atténuation des ondes ultrasonores sont importantes.

Ainsi, les mesures de l'atténuation des ondes ultrasonores dans le matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse de 4 ont permis de mettre en évidence que le comportement de l'atténuation reflétait la cinétique de la structuration du matériau. Un temps caractéristique a été identifié.

#### 4.3.5 Paramètre non linéaire

Dans le paragraphe 2.3, il a été mis en évidence que le paramètre non linéaire mesuré en émission-réception s'exprime en fonction des paramètres linéaires (célérité, atténuation), de la diffraction, du coefficient de réflexion et des pressions fondamentales émises et harmoniques reçues. Afin de déterminer les différentes pressions émises et reçues au sein du matériau, une procédure de calibration est nécessaire. Ainsi, en associant la procédure de calibration aux mesures de courants et de tensions d'entrée et de sortie aux bornes du transducteur, l'ensemble des pressions émises et reçues peuvent être déterminées au cours de l'évolution du matériau. Ainsi, le paramètre non linéaire est déduit grâce aux pressions

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

harmoniques déterminées à partir de la décomposition en somme de gaussienne. L'évolution du paramètre non linéaire est une des préoccupations de l'étude mais il ne faut pas oublier que la valeur absolue du paramètre est ici déterminée. Cette valeur découle de l'ensemble des mesures précédemment citées.

Dans ce paragraphe, les mesures du paramètre non linéaire dans les matériaux sol-gel au cours de leur formation sont mises en avant. De la même façon que pour l'atténuation et la célérité des ondes ultrasonores, le comportement du paramètre non linéaire est décrit pour une température de consigne de  $23^{\circ}\text{C}$ . De ce comportement, un temps lié à la cinétique de la structuration est isolé. Puis, une étude en fonction de la température est réalisée, et les résultats sont analysés et comparés à ceux de la littérature.

L'évolution du paramètre non linéaire au cours de la formation du matériau est décrite pour une température de consigne de  $23^{\circ}\text{C}$  en figure 4.14.

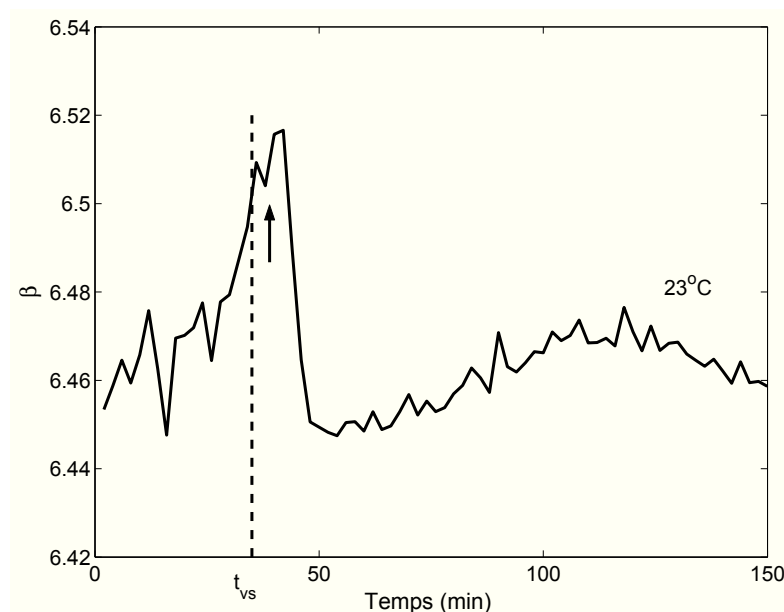


FIGURE 4.14 – Mesure du paramètre non linéaire dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 au cours de sa formation pour une température de consigne de  $23^{\circ}\text{C}$ .

Lors d'une première phase (ici jusqu'à la  $32^{\text{ème}}$  minute), le paramètre non linéaire présente de grande fluctuations qui pourraient être liées au début de la structuration du milieu. Les valeurs mesurées sont comprises entre 6,44 et 6,48. Ensuite, un pic apparaît



### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

entre la 25<sup>ème</sup> minute et la 48<sup>ème</sup> minute. Cette rapide augmentation de  $\beta$  atteint 6,52 puis reprend sa valeur de 6,44. Enfin, après la 48<sup>ème</sup> minute, le coefficient non linéaire croît linéairement et de façon monotone par rapport au temps jusqu'à la 120<sup>ème</sup> minute.

Le processus d'agrégation des macromolécules semble apparaître sur le comportement du paramètre non linéaire. En effet, lors des premiers instants, les réactions chimiques forment de petits amas de molécules. Les variations du paramètre non linéaire s'expliquent par l'aspect légèrement chaotique de la formation du matériau au cours de ces premiers instants (évolution rapide du matériau). Le pic sur le comportement du paramètre non linéaire du matériau sol-gel est corrélé avec le changement de phase exercé au sein du matériau. En effet, le réseau à ce stade du processus est formé environ à 75% expliquant le pic de comportement du paramètre non linéaire. Après la gélification du matériau sol-gel, le réseau macromoléculaire se densifie lentement.

Ainsi, un temps caractéristique,  $t_{beta}$ , extrait du comportement du paramètre non linéaire en fonction du temps peut être identifié. Le temps caractéristique est défini comme le temps où le pic est à son maximum. Dans la figure 4.14, le temps caractéristique se identifié à la 40<sup>ème</sup> minute.

Le comportement du paramètres non linéaire en fonction de l'évolution du matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse  $h = 4$  est répétable en fonction de la température de consigne. La figure 4.15 montre deux expériences ayant les mêmes conditions de température de consigne soit 23°C. Le comportement de ces deux mesures sont identiques entre elles. Notons cependant qu'il existe une différence au niveau des valeurs maximales du paramètre non linéaire. L'écart relatif entre les deux pics identifiant le temps caractéristique est de 0,23%. Cet écart peut s'expliquer par la formation du réseau macromoléculaire en elle-même qui ne prend pas exactement les mêmes chemins. De ces deux expériences, leurs temps caractéristiques sont respectivement de 40 minutes et de 41 minutes pour les courbes en bleu et en noir.

De la même façon que pour les paramètres linéaires, une étude en température a été effectuée. La figure 4.16 montre l'évolution de comportement entre les différents paramètres non linéaire obtenus pour le même type de matériau sol-gel avec différentes températures de consigne. La valeur du paramètre non linéaire au premier instant de la réaction semble

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

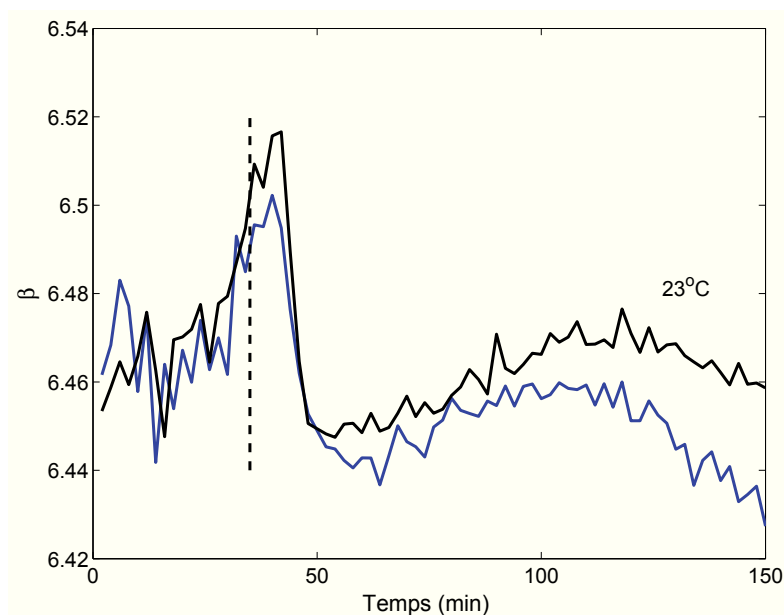


FIGURE 4.15 – Mesures du paramètre non linéaire dans un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 dans les mêmes conditions de température de consigne soit 23°C.

dépendre de la température de consigne à laquelle est stabilisé le matériau sol-gel.

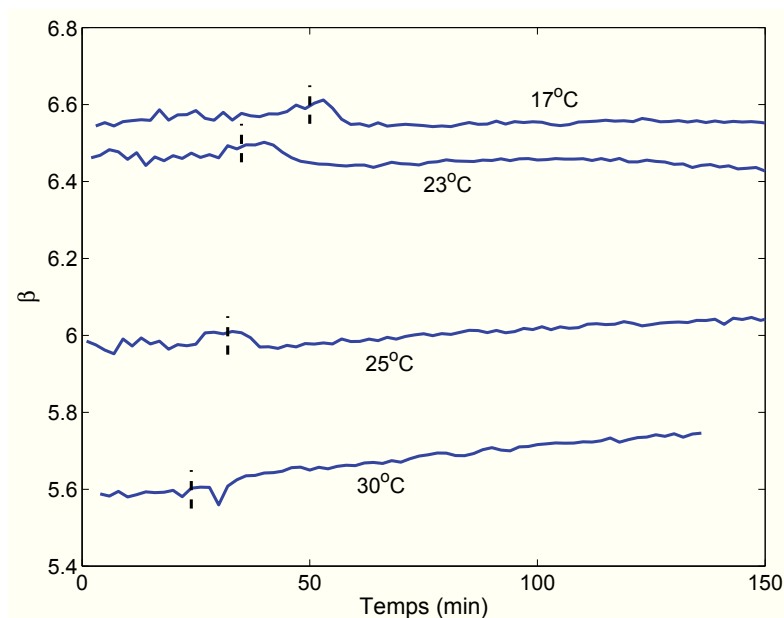


FIGURE 4.16 – Mesures du paramètre non linéaire  $\beta$  un matériau sol-gel type TMOS avec un taux d'hydrolyse égal à 4 pour différentes températures de consigne.

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

Deux comportements liés à la température se dégagent des courbes. Plus la température est basse, plus l'amplitude du pic est élevé. Entraînant pour la courbe du paramètre non linéaire du matériau sol-gel à une température de consigne de 30°C, un pic sensiblement confondu dans les variations du premier instant. Dans la troisième zone où le paramètre non linéaire croît lentement et de façon monotone, la pente est plus forte pour les températures de consigne les plus élevées. Ces deux phénomènes s'expliquent par la cinétique de la structuration du matériau. En effet, pour les températures plus élevées, la structuration du matériau va être plus rapide. Ainsi, la première chaîne macromoléculaire va être entourée de petits amas qui vont se densifier rapidement. Soit une faible amplitude du pic se traduisant par une chaîne avec un milieu contenant de petits amas de macromolécules. Mais la réaction étant plus rapide les amas de macromolécules deviennent plus vite plus importants formant une croissance du paramètre non linéaire après gélification plus grande. À l'inverse quand la température est plus faible, la réaction est plus lente, les amas de macromolécules sont plus gros avant que la première chaîne de macromolécules soit formée. Une fois qu'elle existe les amas de macromolécules plus denses vont rapidement former le réseau. D'où l'amplitude du pic plus importante. La croissance est donc moins importante qu'avec les températures plus élevées car le réseau est déjà totalement formé.

Sur la figure 4.16 est reportée par une marque verticale en pointillé la valeur du temps de gélification mesuré par résonateur à quartz pour des matériaux et des conditions identiques. Une concordance existe entre le temps correspondant aux maxima des pics et aux temps de gélification issus de la littérature. Une comparaison des différents temps caractéristiques est effectuée au paragraphe suivant.

#### 4.3.6 Temps caractéristiques extraits des paramètres acoustiques

Dans les trois précédents paragraphes, un temps caractéristique de la structuration du matériau a été identifié sur les mesures de la célérité, de l'atténuation ainsi que du paramètre non linéaire. Dans la littérature, le comportement du temps de gélification en fonction de la température a été à plusieurs reprises. Afin de vérifier que nos trois temps caractéristiques sont liés à la structuration du matériau, ils sont comparés avec ceux de la littérature.

Dans le tableau ci-dessous, les temps caractéristiques issus de la mesure de la célérité ( $t_{cel}$ ), de l'atténuation des ondes ultrasonores ( $t_{att}$ ) et du paramètre non linéaire sont concaténés ( $t_{\beta}$ ). Les valeurs des temps caractéristiques extraits des trois différentes mesures sont comparables entre elles. Les temps caractéristiques issues des mesures de la célérité se révèlent légèrement plus grands comparés aux deux autres mesures. L'écart relatif entre les temps caractéristiques est de l'ordre de 20%.

TABLE 4.1 – Temps caractéristiques issus de nos mesures ultrasonores dans un matériau sol-gel avec un taux d'hydrolyse ( $h = 4$ ) pour différentes températures de consigne.

Température (°C)	17	23	25	30
$t_{cel}$ (min)	55	44	38	32
$t_{att}$ (min)	53	42	32	22
$t_{\beta}$ (min)	53	40	33	26

Le temps de gélification suit la loi d'Arrhenius décrite par l'équation :

$$\ln(t_{vs}) = C + \frac{E_a}{RT}. \quad (4.3)$$

Afin de comparer nos mesures avec celles de la littérature, les temps caractéristiques extraits de la célérité, de l'atténuation et du paramètre non linéaire sont reportés sur la figure 4.17. Elle montre l'ensemble des temps caractéristiques en fonction de la température de consigne.

La courbe en rouge est le temps de gélification,  $t_g$ , donné par la rhéologie de Couette mesure rhéologique base fréquence de référence pour les matériaux sol-gel. La courbe en bleu représente le temps caractéristique,  $t_{vs}$ , mesuré par un résonateur à quartz. Ces deux méthodes décrivent les lois de comportements d'Arrhenius ainsi que les modèles de Folry-

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

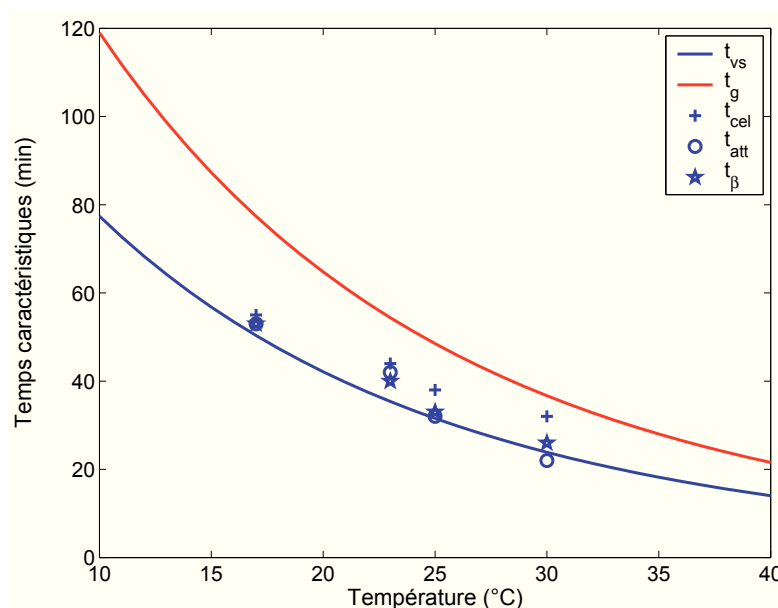


FIGURE 4.17 – Temps caractéristiques issus des paramètres ultrasoniques comparés avec ceux issus de la littérature pour des matériaux sol-gel à base de silice avec un taux d'hydrolyse de 4 pour différentes températures de consigne.

Stockmayer [Ponton *et al.*, 2002, Ould Ehssein *et al.*, 2006]. Les symboles plus, cercle et étoile représentent respectivement les temps caractéristiques extraits des mesures de la célérité, de l'atténuation et du paramètre non linéaire.

Concernant les temps caractéristiques extraits des mesures de l'atténuation et du paramètre non linéaire, le comportement ainsi que les valeurs de temps est proche de celle mesuré par un résonateur à quartz. Les temps caractéristiques issus des mesures de la célérité montre un écart plus important avec celle de la littérature. Cependant, une décroissance logarithmique du temps caractéristique en fonction de la température est observée. Les mesures de temps caractéristiques sont en bonne adéquation avec ceux de la littérature.

Afin de mettre en avant la loi d'Arrhenius, les logarithmes des temps caractéristiques sont exprimés en fonction de l'inverse de la température. Sur les trois figures suivantes, la courbe en rouge est le temps de gélification déterminé par la rhéologie de Couette. La courbe en bleu représente le temps caractéristique,  $t_{vs}$ , mesuré par un résonateur à quartz. Les courbes en noir est l'ajustement de la droite passant par les temps caractéristiques extraites respectivement des mesures de célérité, d'atténuation et du paramètre non linéaire (figures

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

4.18, 4.19 et 4.20).

La figure 4.18 montre le logarithme du temps caractéristique extrait de la célérité en fonction de l'inverse de la température.

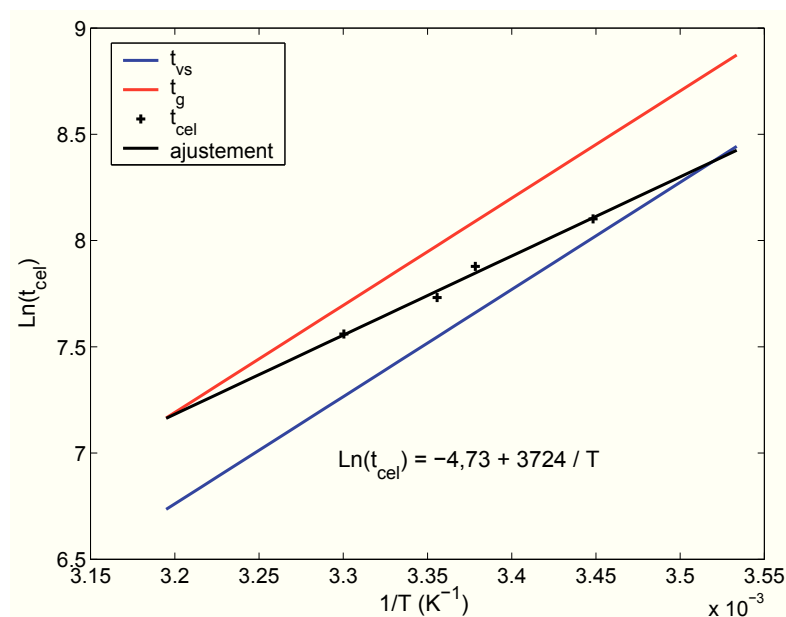


FIGURE 4.18 – Temps caractéristiques issus de la mesure de célérité comparés avec ceux issus de la littérature pour des matériaux sol-gel à base de silice avec un taux d'hydrolyse de 4 en fonction de l'inverse de la température de consigne.

Les temps caractéristiques extraits des mesures de la célérité des ondes ultrasonores se situent entre ceux de la littérature. L'interpolation des temps caractéristiques par une droite affine fait apparaître un coefficient directeur (l'énergie d'activation apparente sur la constante des gaz parfait) de 3424 K. D'où, une énergie d'activation apparente déduit des mesures de la célérité est de 28  $\text{kJmol}^{-1}$ . L'écart relatif sur l'énergie d'activation apparente est de l'ordre de 34%.

La température altère la détermination du temps caractéristique extrait des mesures de la célérité des ondes ultrasonores et ainsi introduisant un biais important sur l'énergie d'activation apparente. Ainsi, l'analyse des résultats fait apparaître une dépendance de la température introduisant un biais sur la détermination du temps lié à la structuration du matériau et son énergie d'activation.

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

La figure 4.19 montre le logarithme du temps caractéristique extrait de l'atténuation en fonction de l'inverse de la température.

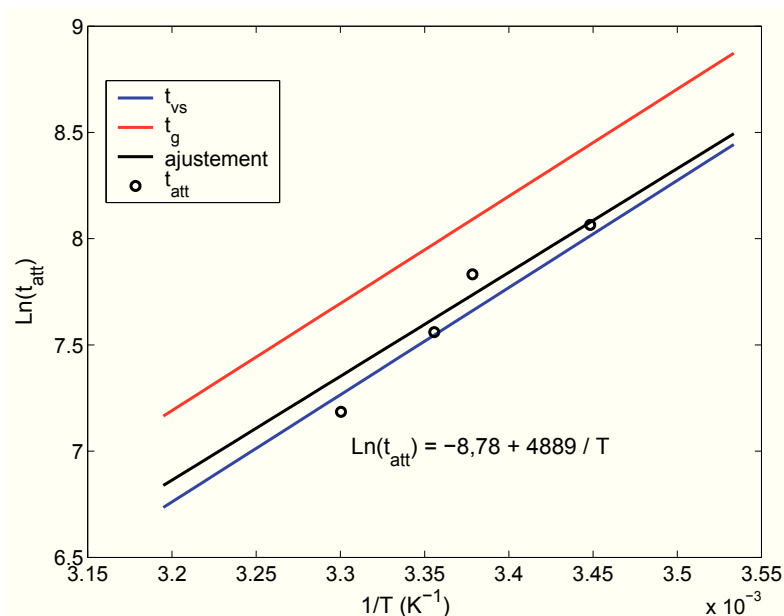


FIGURE 4.19 – Temps caractéristiques issus de la mesure de l'atténuation comparés avec ceux issus de la littérature pour des matériaux sol-gel à base de silice avec un taux d'hydrolyse de 4 en fonction de l'inverse de la température de consigne.

De la même façon que pour le temps caractéristique  $t_{\text{vs}}$ , une interpolation des temps caractéristiques issus des mesures de l'atténuation par une droite affine fait apparaître un coefficient directeur de 4889 K. Ainsi, l'énergie d'activation apparente déduit des mesures est de 41  $\text{kJmol}^{-1}$ . Les temps caractéristiques issus des mesures de l'atténuation présente une dispersion assez importante. Cette dispersion est du à la difficulté de la mesure de l'atténuation des ondes ultrasonores.

La figure 4.20 montre que le temps extrait du paramètre non linéaire est à relier à la structuration du matériau sol-gel. L'énergie d'activation apparente déduit des temps caractéristiques  $t_{\beta}$  est identique à celle issue des temps caractéristiques  $t_{\text{att}}$  soit de 41  $\text{kJmol}^{-1}$  (figure 4.20). Les temps caractéristiques issus de la mesure du paramètre non linéaire présente une faible dispersion. Ce point assure une meilleure description de l'énergie d'activation apparente.

### 4.3. MESURES DES PARAMÈTRES ACOUSTIQUES : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

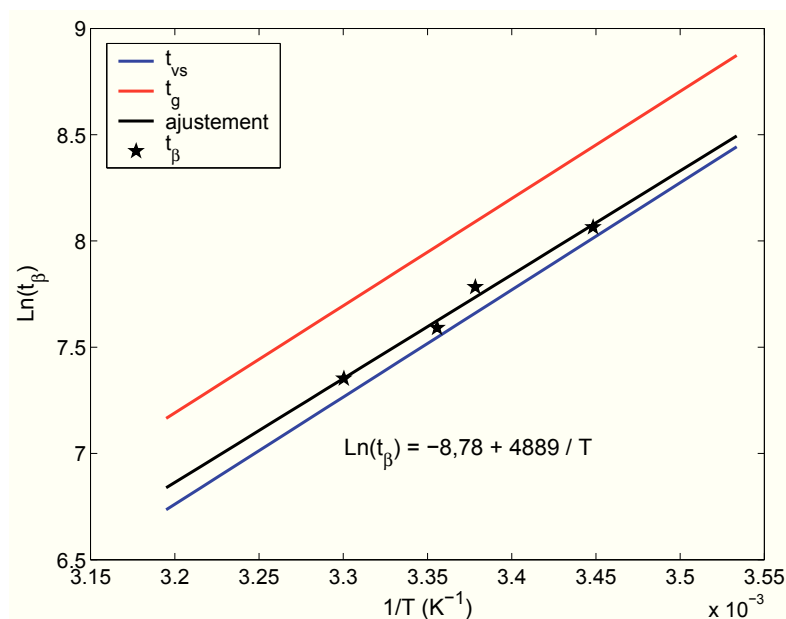


FIGURE 4.20 – Temps caractéristiques issus de la mesure du paramètre non linéaire comparés avec ceux issus de la littérature pour des matériaux sol-gel à base de silice avec un taux d’hydrolyse de 4 en fonction de l’inverse de la température de consigne.

## Conclusion

Ce chapitre expose l’application du suivi des paramètres acoustiques par une méthode auto-calibré en émission-réception du paramètre non linéaire et de son instrumentation ultrasonore pour assurer la mesure absolue. Le processus sol-gel impose des précautions usages afin d’assurer la répétabilité. Les résultats des paramètres acoustiques mettent en évidence leur sensibilité à la structuration du matériau. Leur analyse permet de revenir à un temps caractéristique lié à la formation du matériau sol-gel. Le paramètre non linéaire s’avère être plus robuste dans la détermination du temps de gélification.



## Chapitre 5

# Imagerie du paramètre $B/A$

Ce chapitre présente une application d'imagerie du paramètre non linéaire par la méthode auto-calibrée en émission-réception mise en oeuvre dans les chapitres précédents. Une étude préliminaire assure la faisabilité de cette application. L'instrumentation est adaptée à la problématique de l'imagerie par l'utilisation d'un transducteur focalisé pour assurer une mesure locale du paramètre non linéaire. Les équations de propagation définies dans le cadre de la décomposition en somme de gaussiennes sont modifiées pour tenir compte de la géométrie du transducteur. La résolution de l'image et ses limites sont discutées à partir de l'image d'un fantôme contenant deux fluides.

## 5.1 Étude préliminaire : faisabilité de l'imagerie du paramètre non linéaire

Le suivi des propriétés visco-élastiques est possible par la mesure du paramètre non linéaire dans des milieux en évolution grâce à une méthode auto-calibrée en émission-réception. Une autre mise en œuvre de la même technique de mesure du paramètre non linéaire, est présentée, permettant le suivi des variations spatiales des propriétés visco-élastiques d'un milieu.

### 5.1.1 Principe de la méthode d'imagerie

Afin de valider le principe, l'échantillon est constitué de deux milieux homogènes. Le déplacement du transducteur par rapport à l'échantillon permet le suivi des variations spatiales des propriétés linéaires et non linéaires du milieu et la construction d'une image paramétrique.

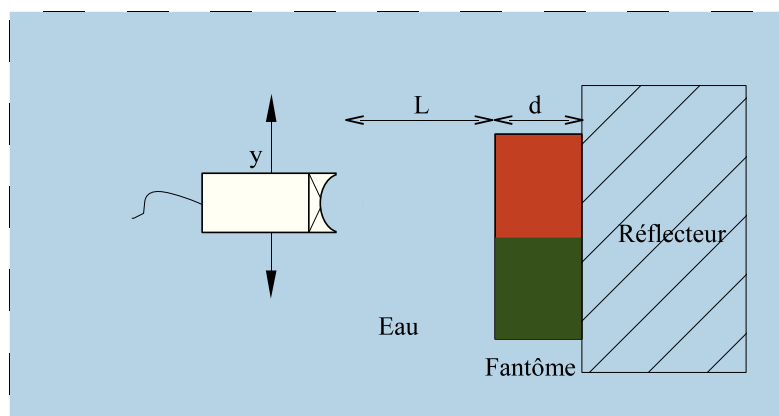


FIGURE 5.1 – Schéma de principe permettant l'imagerie du paramètre non linéaire d'un fantôme ayant des propriétés visco-élastiques différentes suivant la direction  $y$ .

Le milieu à imager (fantôme) est placé entre le transducteur et le réflecteur. Afin de faciliter le déplacement du transducteur, une lame d'eau est intercalée entre le transducteur et le fantôme. La distance entre le transducteur et le fantôme est fixe et égale à  $L$ . Le fantôme, d'épaisseur  $d$ , est accolé au réflecteur en aluminium. Sur le schéma de la figure 5.1, les couleurs symbolisent les deux milieux homogènes le constituant. Le déplacement du transducteur se fait suivant la direction  $y$  assurant le balayage spatial.

## 5.1. ÉTUDE PRÉLIMINAIRE : FAISABILITÉ DE L'IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

---

Les propriétés acoustiques de la lame d'eau comprise entre le transducteur et le fantôme sont supposées connues et entièrement caractérisées. Les ondes ultrasonores se propagent à travers cette lame puis dans le fantôme. Elles sont ensuite réfléchies sur le réflecteur en aluminium pour être recueillies par le transducteur après s'être retro-propagées dans le fantôme et la lame d'eau.

### 5.1.2 Fantômes ultrasonores

Le fantôme est fabriqué à partir d'une ossature métallique circulaire recouverte par une membrane en latex. L'échantillon ainsi formé a une épaisseur,  $d$ , égale à 12,5 mm et un diamètre intérieur de 55 mm. La membrane du fantôme est tendue sur l'ossature. L'épaisseur de la membrane est évaluée par le constructeur à 55  $\mu\text{m}$ . Le fantôme est en contact avec le réflecteur assurant un parallélisme entre les parois du fantôme, le réflecteur et le transducteur. L'influence de la membrane est négligée : l'interface est donc considéré comme un contact parfait entre la lame d'eau et l'échantillon.

Deux configurations de fantôme sont mises en oeuvre. Concernant l'étude préliminaire, le fantôme est constitué d'un fluide : le méthanol. Les caractéristiques de ce dernier ont été déterminées dans le paragraphe 3.3. Rappelons que la vitesse des ondes dans le méthanol a été mesurée à 1101,8 m/s, avec une atténuation de  $1,198 \cdot 10^{-14} f^2$  Np/m et un paramètre non linéaire de  $B/A = 9,73$ .

Dans un second temps, une image du paramètre non linéaire  $B/A$  est produite à partir d'un fantôme composé de deux fluides non miscibles : l'eau et l'huile de silicone. L'huile de silicone est caractérisée par la méthode auto-calibrée en émission-réception. L'huile de silicone 47 V 20 (Rhodorsil) a les caractéristiques suivantes : vitesse de 1011 m/s, atténuation de  $5,98 \cdot 10^{-14} f^2$  Np/m pour une température de 20°C. Sa masse volumique est égale à 950 kg/m<sup>3</sup>, le paramètre  $B/A$  dans l'huile de silicone est mesuré à  $B/A = 10,08$  ( $\beta = 6,04$ ).

### 5.1.3 Expression du champ de pression à la fréquence harmonique 2 reçu

Le paramètre non linéaire est déduit de l'expression de la pression à la fréquence harmonique reçue par le transducteur après propagation et génération à travers l'ensemble des milieux rencontrés (lame d'eau et fantôme). La pression à la fréquence harmonique 2 reçue est déterminée à partir de la procédure de calibration exposé dans le paragraphe 2.1.3 et de la composante au second harmonique du spectre du courant de sortie,  $I_I^{out}$ . Par comparaison avec le code de la décomposition en somme de gaussiennes, les paramètres de la lame d'eau étant parfaitement connus, le paramètre non linéaire du fantôme est déterminé.

Le champ de pression reçu par le transducteur traverse à l'aller et au retour la lame d'eau et le fantôme L'hypothèse de régime quasi-linaire est toujours supposée respectée. La pression à la fréquence harmonique 2 reçue se décompose en la somme des pressions à la fréquence harmonique 2 générées par les différentes couches (lame d'eau et fantôme).

$$P_{I,2}^{rec} = P_{I,2}^{A,eau} + P_{I,2}^{A,fant} + P_{I,2}^{R,fant} + P_{I,2}^{R,eau}. \quad (5.1)$$

Les pressions  $P_{I,2}^{A,eau}$ ,  $P_{I,2}^{A,fant}$ ,  $P_{I,2}^{R,fant}$ ,  $P_{I,2}^{R,eau}$  introduites par l'équation 5.1 sont les pressions à la fréquence harmonique générées dans le milieu avant (eau) ou dans l'échantillon.  $P_{I,2}^{A,eau}$  et  $P_{I,2}^{A,fant}$  sont les pressions à la fréquence harmonique 2 générées respectivement dans la lame d'eau et dans le fantôme lors de la propagation aller des ondes ultrasonores.  $P_{I,2}^{R,fant}$  et  $P_{I,2}^{R,eau}$  sont les pressions à la fréquence harmonique 2 générées respectivement dans le fantôme et dans la lame d'eau lors de la propagation retour après réflexion des ondes ultrasonores. Ces pressions après avoir été générées dans leur milieu respectif se propagent linéairement jusqu'au transducteur. Leurs expressions sont les suivantes :

$$P_{I,2}^{A,eau} = \frac{-jk_{12}^2 \beta \left( P_{I,1}^{emi} \right)^2 R_1 T_{12} T_{21}}{8\pi \rho_0 c_0^2} \times e^{-\alpha_{12} f^2 2L_1} e^{-\alpha_{22} f^2 2d} \times e^{-jk_{12} 2L_1} e^{-jk_{22} 2d} F_1, \quad (5.2)$$

5.1. ÉTUDE PRÉLIMINAIRE : FAISABILITÉ DE L'IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

---

$$P_{I,2}^{A,fant} = \frac{-jk_{22}^2 \beta_f \left( P_{I,1}^{emi} \right)^2 R_1 T_{12}^2 T_{21}}{8\pi \rho_0 c_0 c_m} \times e^{-(2\alpha_{11} f^2 + \alpha_{12} f^2) L_1} e^{-\alpha_{22} f^2 2d} \times e^{-jL_1(2k_{11} + k_{12})} e^{-jk_{22} 2d} F_2, \quad (5.3)$$

$$P_{I,2}^{R,fant} = \frac{-jk_{22}^2 \beta_f \left( P_{I,1}^{emi} R_1 \right)^2 T_{12}^2 T_{21}}{8\pi \rho_0 c_0 c_m} \times e^{-(2\alpha_{11} f^2 + \alpha_{12} f^2) L_1} e^{-(2\alpha_{12} + \alpha_{22}) f^2 d} \times e^{-jL_1(2k_{11} + k_{12})} e^{-j(2k_{12} + k_{22}) d} F_3, \quad (5.4)$$

$$P_{I,2}^{R,eau} = \frac{-jk_{12}^2 \beta \left( P_{I,1}^{emi} R_1 \right)^2 T_{12}^2 T_{21}^2}{8\pi \rho_0 c_0^2} \times e^{-(2\alpha_{11} f^2 + \alpha_{12} f^2) L_1} e^{-2\alpha_{12} f^2 2d} \times e^{-jL_1(2k_{11} + k_{12})} e^{-j2k_{12} 2d} F_4. \quad (5.5)$$

La codifications de l'indice permet de connaître le milieu et l'ordre considéré. Soit un indice  $X_{12}$  signifie que la valeur est déterminée pour le milieu 1 à la fréquence harmonique 2 et inversement pour  $X_{21}$  signifie que le milieu 2 est considéré à la fréquence fondamentale. Ici, le milieu 1 est la lame d'eau et le milieu 2 le fantôme.

Les termes  $T_{12}$  et  $T_{21}$  sont les coefficients de transmission de l'onde ultrasonore respectivement du milieu 1 (eau) au milieu 2 (fantôme) et inversement. Les termes  $R$ ,  $T_{12}$  et  $T_{21}$  sont supposés identiques en fonction de la fréquence d'excitation (au fondamental et à l'harmonique 2).

Les termes  $F_1$ ,  $F_2$ ,  $F_3$ ,  $F_4$  sont les coefficients de diffraction associés aux différentes pressions à la fréquence harmonique générées aux cours de la propagation. Ils sont exprimés sous la forme suivante où  $i \in [1, 4]$  :

$$F_i = j \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^M \sum_{l=1}^L \frac{A_n^i A_m^i A_l^i e^{\alpha^i \frac{b_{nml}^i}{a_{nml}^i}}}{a_{nml}^i} \left[ E_1 \left( \alpha^i \frac{b_{nml}^i}{a_{nml}^i} \right) - E_1 \left( \alpha^i \left( d_i + \frac{b_{nml}^i}{a_{nml}^i} \right) \right) \right], \quad (5.6)$$

où les termes  $a_{nml}^i$  et  $b_{nml}^i$  sont respectivement définis par les coefficients de Wen et Breazeale :

$$\begin{aligned} a_{nml}^i &= B_l c_{nm}^i + j4 B_n^i B_m^i, & b_{nml}^i &= B_l d_{nm}^i - 2(B_n^i + B_m^i), \\ c_{nm}^i &= -2 \gamma^i B_n B_m + j(B_n^i + B_m^i), & d_{nm}^i &= -2 + j\gamma^i (B_n^i + B_m^i). \end{aligned} \quad (5.7)$$

## 5.1. ÉTUDE PRÉLIMINAIRE : FAISABILITÉ DE L'IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

---

Les coefficients de Wen et Breazeale  $A_n$  sont définis pour l'ensemble des lames :

$$\begin{aligned} A_n^0 &= A_n^1 = A_n, & A_n^2 &= \frac{A_n}{1 - j d_1 B_n}, \\ A_n^3 &= \frac{A_n}{1 - j (d_1 + d_2) B_n}, & A_n^4 &= \frac{A_n}{1 - j (d_1 + d_2 + d_3) B_n}. \end{aligned} \quad (5.8)$$

Les coefficients sont normalisés à partir de la distance de Rayleigh dans la lame d'eau ( $ld_\omega$ ) et dans le fantôme ( $ld$ ).

$$\begin{aligned} \gamma^0 &= \gamma^1 = d_1 + d_2 + d_3 + d_4, & \gamma^2 &= d_2 + d_3 + d_4, \\ \gamma^3 &= d_3 + d_4, & \gamma^4 &= d_4. \end{aligned} \quad (5.9)$$

Les distances normalisées s'expriment sous la forme :

$$d_0 = \frac{L + 2d + L}{ld_\omega}, \quad d_1 = d_4 = \frac{L}{ld_\omega}, \quad d_2 = d_3 = \frac{d}{ld}. \quad (5.10)$$

Les pressions émises à la fréquence fondamentale et reçues à la fréquence harmonique 2 sont déterminées à partir de la procédure de calibration du transducteur. Grâce aux expressions décrites ci-dessus le paramètre non linéaire est déterminé pour le fluide formant le fantôme.

### 5.1.4 Mesures préliminaires avec un transducteur plan

Une étude préliminaire assurant la faisabilité de l'imagerie du paramètre non linéaire  $B/A$  par la méthode auto-calibrée en émission-réception est effectuée sur deux fantômes contenant respectivement du méthanol et de l'eau.

Dans cette première étude, le transducteur utilisé est plan. Le transducteur est identique à celui de l'étude précédente. L'objectif est de démontrer que le champ de pression à la fréquence harmonique 2 est différent entre un fantôme de méthanol et un d'eau. Ainsi, le paramètre non linéaire  $B/A$  est différent et identifiable.

Les champs de pression à la fréquence fondamentale et harmonique 2 sont mesurés pour les deux fantômes : eau et méthanol respectivement en bleu et en rouge sur la figure 5.2. Les mesures sont représentées par les marques plus. Ces mesures sont comparées aux pressions calculées par la décomposition en somme de gaussiennes (courbe en trait plein).

## 5.1. ÉTUDE PRÉLIMINAIRE : FAISABILITÉ DE L'IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

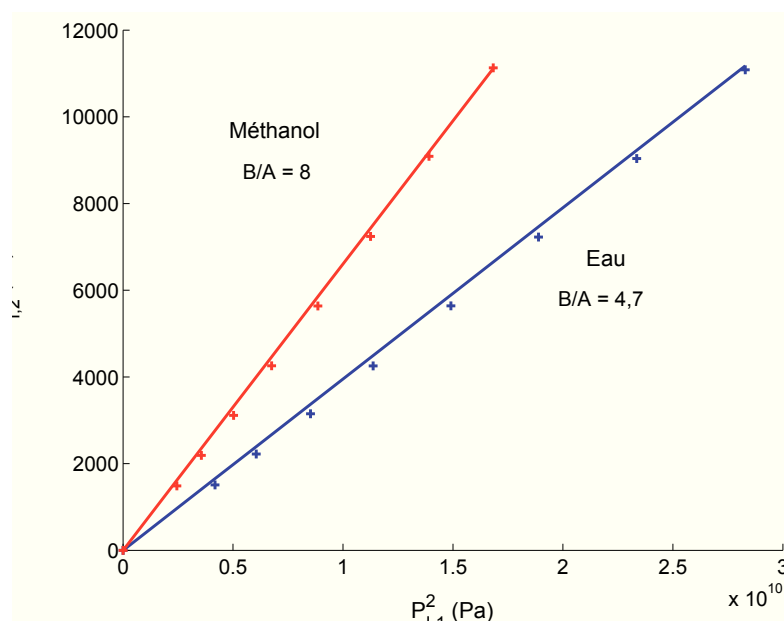


FIGURE 5.2 – Pression à la fréquence harmonique 2 reçue en fonction du carré de la pression émise à la fréquence fondamentale dans un fantôme d'eau (bleu) et un fantôme de méthanol (rouge) calculée par la décomposition en somme de gaussiennes (trait plein) et mesurée par un transducteur plan (plus) avec une température de 20°C.

La figure 5.2 montre que les pressions à la fréquence du second harmonique générées en présence du fantôme de méthanol sont supérieures à celles générées avec un fantôme d'eau. L'utilisation des expressions des champs de pression à la fréquence harmonique 2 reçus par le transducteur permet de déterminer les paramètres non linéaires des fantômes de méthanol et d'eau.

L'analyse des résultats donne pour le fantôme de méthanol et celui d'eau respectivement un paramètre non linéaire  $B/A$  égale à 8 et 4,7. La détermination du paramètre non linéaire dans ces conditions donne une valeur inférieure à celle attendue respectivement 5,2 et 9,7. Ainsi, le paramètre non linéaire  $B/A$  peut être déterminé par la méthode auto-calibrée en émission-réception d'un fantôme. La lame d'eau, entre le transducteur et le fantôme en contact avec le réflecteur assurant un déplacement du transducteur suivant la direction  $y$ , a un faible impact sur la détermination du paramètre non linéaire  $B/A$ .

La figure 5.3 représente la simulation des champs de pression normalisés à la fréquence harmonique 2 générés dans la lame d'eau et le fantôme avec un transducteur plan (pointillé)

## 5.1. ÉTUDE PRÉLIMINAIRE : FAISABILITÉ DE L'IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

et focalisé (trait plein). La normalisation est effectuée à partir du champ de pression à la fréquence harmonique 2 généré juste après le fantôme avec un transducteur focalisé en trait plein noir ( $P_{I,2}^{fantome}(focalise)$ ). Les générations dans la lame d'eau sont les courbes en rouge quand celles dans le fantôme sont en noir. La marque verticale représente la distance utilisée expérimentalement.

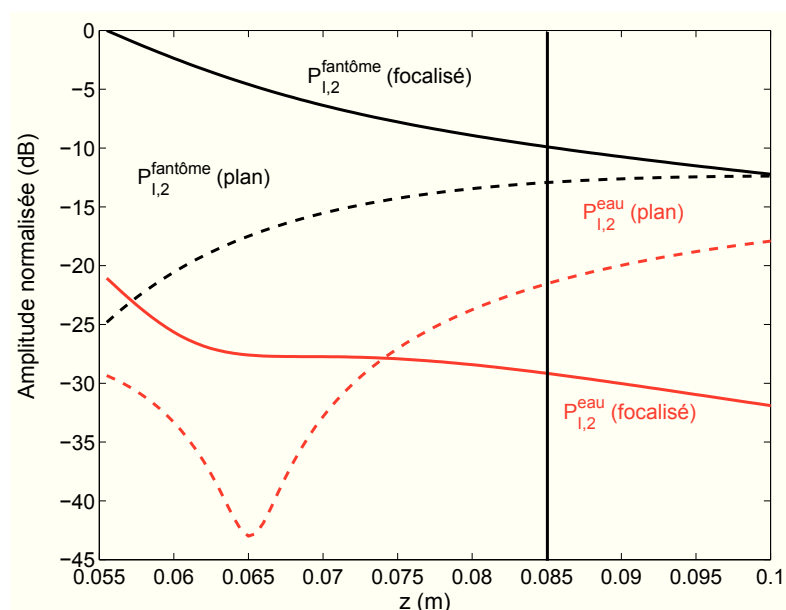


FIGURE 5.3 – Simulation des champs de pression normalisés à la fréquence harmonique 2 générés dans la lame d'eau (rouge) et dans le fantôme (noir) dans le cas d'un transducteur plan (pointillé) et d'un transducteur focalisé (trait plein) suivant la distance de propagation  $z$ .

A partir des différentes pressions à la fréquence harmonique 2 générées dans les différentes couches déterminées par la décomposition en somme de gaussiennes, on remarque que l'apport du transducteur focalisé est essentiel pour l'imagerie du paramètre non linéaire. Comparons l'écart entre les pressions à la fréquence harmonique 2 générée dans le fantôme (génération utile :  $P_{I,2}^{fantome}$ ) et celle générée dans la lame d'eau ( $P_{I,2}^{eau}$ ). Les pressions générées dans l'eau sont pour l'étude une génération parasite. L'utilisation du transducteur focalisé assure un écart de 20 dB en faveur de la génération dans le fantôme quand il est de 8 dB pour le transducteur plan. De plus, le transducteur focalisé assure une meilleure sensibilité que le transducteur plan, soit une détection de 3 dB supérieure.



## 5.1. ÉTUDE PRÉLIMINAIRE : FAISABILITÉ DE L'IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

---

En effet, la focalisation des ondes ultrasonores s'effectue dans le fantôme en assurant un maximum d'amplitude. La focalisation impose intrinsèquement une distance entre le transducteur et le réflecteur.

Enfin le choix du transducteur focalisé permet d'obtenir localement les paramètres non linéaire  $B/A$  du matériau d'étude. La focalisation du faisceau permet d'une part d'améliorer la résolution latérale de "l'image" obtenue. Et d'autre part, la focalisation axiale induit un renforcement de la génération dans le milieu à caractériser. Cela améliore la sensibilité de la mesure en augmentant la proportion d'harmonique 2 généré dans l'échantillon par rapport à celui généré dans l'eau, avant l'échantillon.

### 5.1.5 Modification des expressions pour le calcul des champs de pression d'un transducteur focalisé

La décomposition en somme de gaussiennes permet de prendre en compte la distribution d'un transducteur faiblement focalisé [Bou Matar *et al.*, 2001], en revenant à l'expression de la distribution radiale de la vitesse exprimé au paragraphe 1.6. Elle s'exprime à la surface d'un transducteur faiblement focalisé sous la forme suivante :

$$V_z(r, 0) = V_0 \cdot \sum_{n=1}^N A_n \cdot e^{-B_n \left(\frac{r}{a}\right)^2} e^{j \frac{l_d}{r_0} \left(\frac{r}{a}\right)^2}, \quad (5.11)$$

avec  $e^{j \frac{l_d}{r_0} r^2}$  représentant le retard induit par la courbure  $r_0$ .

La condition sur la surface concave du transducteur est équivalente dans le plan  $z = 0$ . Ainsi les champs de pression déterminés peuvent être étendus au cas d'un transducteur faiblement focalisé. Dans ce cas, seuls les coefficients  $B_n$  de la décomposition en somme de gaussiennes sont modifiés :

$$B_n \rightarrow B_n \pm j \frac{l_d}{r_0}. \quad (5.12)$$

Les signes  $-$  et  $+$  correspondent à un transducteur respectivement convergeant où divergeant.

La fonction de diffraction déterminé par la décomposition en somme de gaussiennes est comparée au modèle décrit par Schmerr *et al.* [Schmerr *et al.*, 1997]. Les auteurs expriment

## 5.1. ÉTUDE PRÉLIMINAIRE : FAISABILITÉ DE L'IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

la fonction de diffraction d'un transducteur focalisé par l'expression suivante :

$$D_S(y, z, \omega) = \frac{-1}{(d/R_0)} \left\{ \Theta e^{jk(R_0+d)} + \frac{a\sqrt{y^2 + (z - R_0)^2}}{2\pi} \times \int_0^{2\pi} \frac{e^{jkr_e} [|y| \sin \phi (h - R_0) - a|z - R_0|] d\phi}{[|y| \sin \phi (h - R_0) - a|z - R_0|]^2 + y^2 R_0^2 \cos^2 \phi} \right\} \quad (5.13)$$

avec les termes  $d, r_e, h$  s'exprimant en fonction des variables  $y, z, a$ , le rayon du transducteur focalisé et  $R_0$ , la focale de la lentille sous les formes suivantes :

$$\begin{aligned} d &= \sqrt{(z - R_0)^2 + y^2} \quad \text{si } D > R_0, \\ \text{ou } d &= -\sqrt{(z - R_0)^2 + y^2} \quad \text{si } D < R_0, \\ r_e &= \sqrt{a^2 + y^2 - 2ay \sin \phi + (z - h)^2}, \\ h &= R_0 - \sqrt{R_0^2 - a^2}. \end{aligned} \quad (5.14)$$

A partir de cette expression, la fonction de diffraction avec le modèle de Schmerr est comparé avec la décomposition en somme de gaussiennes afin de valider cette dernière.

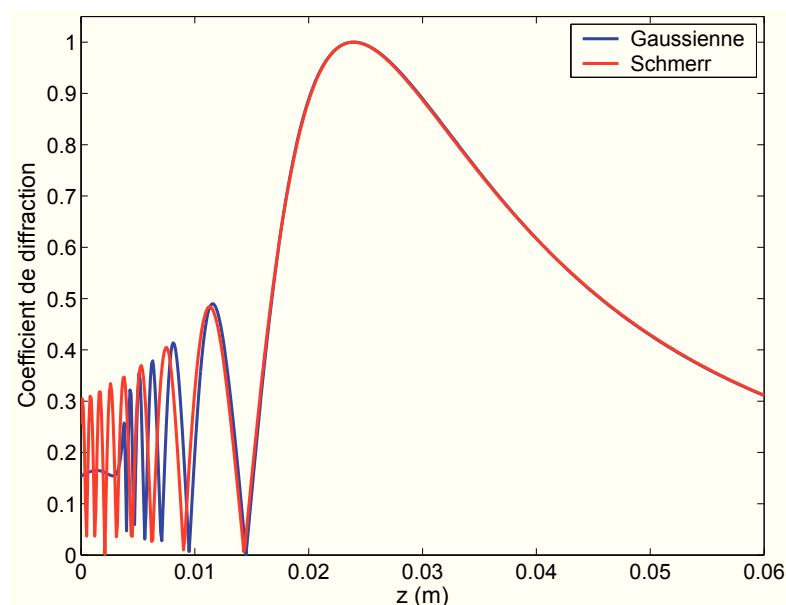


FIGURE 5.4 – Fonction de diffraction calculée sur l'axe de propagation à partir de la décomposition en somme de gaussiennes en bleu et par le modèle de Schmerr en rouge pour un transducteur faiblement focalisé avec une distance focale de  $1,2''$ .

## 5.1. ÉTUDE PRÉLIMINAIRE : FAISABILITÉ DE L'IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

---

Soit un transducteur faiblement focalisé à une distance focale de 1,2" et une surface active de 0,5", la fonction de diffraction calculée sous forme d'une gaussiennes (équation 1.54) avec les coefficients  $B_n$  définies par l'équation 5.12 est représentée par la courbe en bleu et par la courbe en rouge pour celle calculée par le modèle décrit par Schmerr et al. La figure 5.4 montre une bonne adéquation des deux fonctions de diffraction à partir d'un centimètre de propagation assurant la validation du calcul par la décomposition en somme de gaussiennes.

Ainsi, les expressions des champs de pression sous la forme de gaussiennes pour un transducteur focalisé sont identiques aux expressions 5.2, 5.3, 5.4 et 5.5 en s'assurant que les coefficients de Wen et Breazeale,  $B_n$  est défini par l'expression 5.12.

## 5.2 Dispositif expérimental modifié

Le dispositif expérimental est modifié pour permettre l'obtention d'une image du paramètre non linéaire d'un fantôme. A l'exception du transducteur maintenant focalisé, les instruments de mesure sont identiques à ceux utilisés précédemment (paragraphe 3.1).

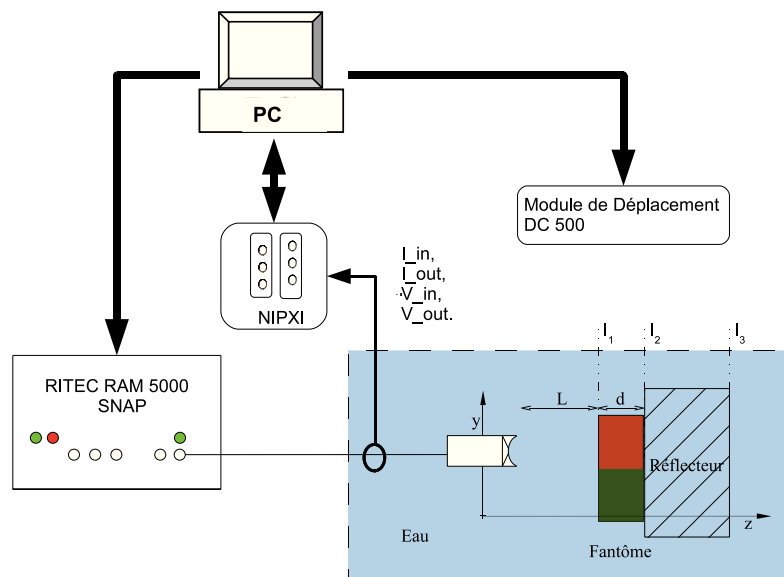


FIGURE 5.5 – Schéma du dispositif expérimental permettant l'imagerie du paramètre non linéaire  $B/A$  d'un fantôme.

Le transducteur est monté sur un support motorisé permettant un déplacement suivant  $y$ . La cellule de mesure est remplacée par un réflecteur acoustique en aluminium de 200 mm plongé dans la cuve permettant une réflexion des échos après propagation dans le fantôme découpant temporellement les échos sur les interfaces  $I_1$ ,  $I_2$  et  $I_3$ . Le fantôme est en contact avec le réflecteur. Afin de répondre aux objectifs de l'imagerie, un transducteur focalisé a été choisi.

### 5.2.1 Choix de la fréquence

Le transducteur focalisé est un Technisonic avec une distance focale de 1,2" (soit 30,5 mm), un élément actif de diamètre 12,25 mm (0,5") et une fréquence centrale de 5 MHz (ISL-0504-HR). Suivant une procédure de détermination identique à celle précédemment décrite (paragraphe 3.1.2.2), la fréquence fondamentale excitatrice assurant une bonne

dynamique à l'harmonique deux est dans ce cas égale à 3 MHz.

### 5.2.2 Champs de pression à la fréquence fondamentale et harmonique 2

Les champs de pressions sont mesurés par un hydrophone de 1mm de diamètre (Precision Acoustics ltd - SN 1557). Il est placé dans une cuve d'eau à une température de 17°C. La figure 5.6 montre les champs de pression normalisés à la fréquence fondamentale et harmonique à l'ordre deux.

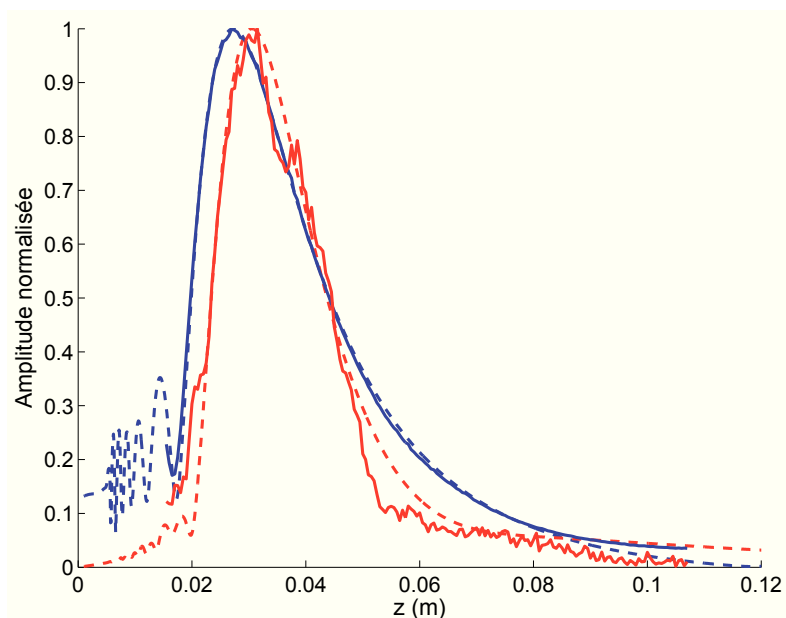


FIGURE 5.6 – Amplitudes normalisées du champ de pression à la fréquence fondamentale (bleu) et harmonique à l'ordre deux (rouge) du transducteur focalisé à 1,2'' dans l'eau suivant l'axe  $z$  mesurés par l'hydrophone (trait plein) et calculés par la décomposition en somme de gaussiennes (tirets).

Les courbes en tirets sur la figure 5.6 représentent les mesures des champs de pression à la fréquence fondamentale et harmonique 2. Les mesures sont comparées aux champs de pression déterminés par la décomposition en somme de gaussiennes dans les mêmes conditions (courbes en trait plein). Les courbes en bleu représentent les pressions à la fréquence fondamentale et celles en rouge les pressions à la fréquence harmonique 2. La comparaison entre la mesure du champ de pression et la décomposition assure le bon positionnement du transducteur par rapport au système de coordonnées. L'axe de propagation du transduc-

## 5.2. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL MODIFIÉ

---

teur utilisé est perpendiculaire à la surface du transducteur. L'amplitude normalisée des champs de pression calculée par la décomposition en somme de gaussiennes montre une bonne adéquation avec celle des champs de pression mesurés.

La distance focale est différente entre la génération à la fréquence fondamentale et harmonique à l'ordre deux. L'écart entre les deux maximums d'amplitude des champs de pression est 3,5 mm pour un récepteur ponctuel.

La bonne adéquation entre la mesure et la simulation permet de calculer l'intégralité du champ de pressions suivant le plan  $y$  : axe transversal du transducteur focalisé. La figure 5.7 (a) montre la cartographie du champ de pression à la fréquence fondamentale du transducteur quand la figure 5.7 (b) montre celle du champ de pression à la fréquence harmonique 2.

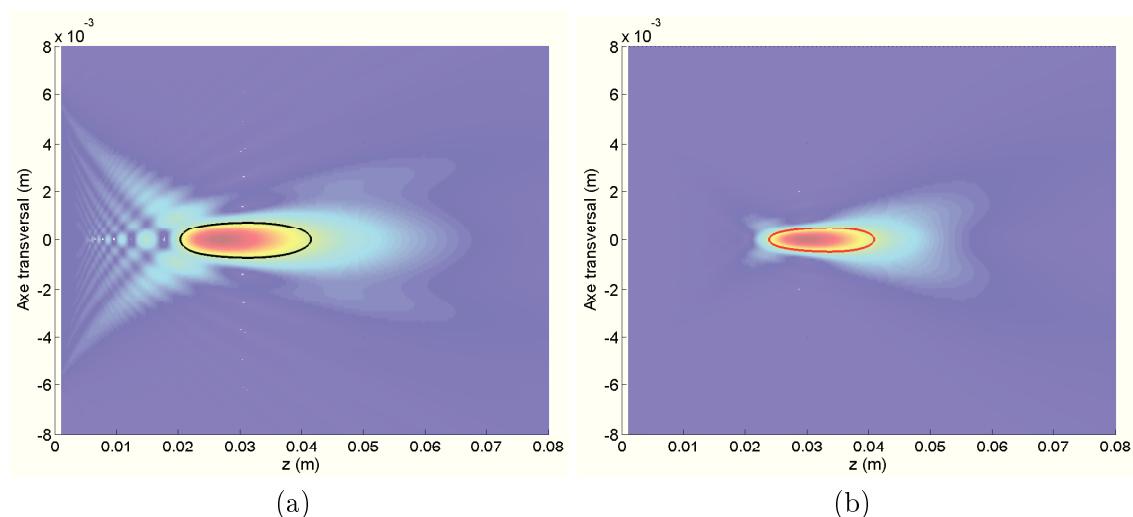


FIGURE 5.7 – Cartographie du champ de pression à la fréquence fondamentale émis (a) et à la fréquence harmonique 2 générée (b) dans l'eau suivant l'axe transversal,  $y$ , du transducteur focalisé à 1,2" calculée par la décomposition en somme de gaussiennes.

L'isobare en noir sur la figure 5.7 (a) correspond à la tache focale définie à  $-6$  dB. La tache focale a une largeur de 1,5 mm et une profondeur de 21 mm. L'isobare en rouge délimite le maximum de l'amplitude de pression générée à la fréquence harmonique 2. Pour cette pression, la tache focale a une largeur de 1 mm pour une profondeur de 18 mm.

Les figures mettent en évidence que la tache focale du champ de pression à la fréquence harmonique 2 est plus petite que celle de la pression à la fréquence fondamentale.

### 5.2.3 Validation expérimentale du dispositif modifié

L'utilisation du transducteur focalisé dans le dispositif expérimental imposent une validation sur des fluides connus. La validation expérimentale est effectuée sur deux fantômes contenant respectivement du méthanol et de l'eau à une température de 17°C.

La procédure de calibration assure la détermination des fonctions de transfert du transducteur en émission et en réception. Connaissant  $H_I^{emi}$ ,  $H_{II}^{rec}$  et les courants de sortie, les champs de pressions émis et reçus sont déduits respectivement aux fréquences fondamentale et harmonique à l'ordre deux notés  $P_{I,1}^{emi}$  et  $P_{I,2}^{rec}$ .

Pour la méthode auto-calibrée en émission-réception dans l'application des matériaux en évolution, le champs de pression reçu à la fréquence harmonique à l'ordre 2 est directement proportionnel à celui de la pression émise à la fréquence fondamentale. Ici, la génération s'effectue à travers deux milieux : l'eau, matériau bien connu, et un fantôme, matériau à caractériser. Ainsi, directement des expressions déterminées dans le paragraphe précédent, la pression à la fréquence harmonique 2 reçue peut s'exprimer ainsi :

$$P_{I,2}^{rec} \propto \beta_0 C_1 (P_{I,1}^{emi})^2 + \beta_f C_2 (P_{I,1}^{emi})^2 + \beta_f C_3 (P_{I,1}^{emi})^2 + \beta_0 C_4 (P_{I,1}^{emi})^2, \quad (5.15)$$

où, les constantes  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $C_3$  et  $C_4$  représentent à la fois l'atténuation, les coefficients de transmission et la diffraction au cours des différents trajets de l'onde acoustique.

La détermination s'effectue à partir de la connaissance des caractéristiques du milieu avant (l'eau), ainsi que les pressions  $P_{I,1}^{emi}$  et  $P_{I,2}^{rec}$  mesurées à partir de la procédure de calibration. Les expressions (5.1), (5.2), (5.3), (5.4) et (5.5) assurent la détermination du paramètre non linéaire. La seule inconnue du système ( $\beta_f$ ) est ajusté pour avoir une adéquation avec les mesures.

La figure 5.8 présente les pressions à la fréquence harmonique à l'ordre deux reçues en fonction du carré des pressions à la fréquence fondamentale émise. Les pressions repérées par une marque 'plus' représentent les mesures effectuées dans le fantôme d'eau et dans celui de méthanol respectivement en bleu et en rouge. Les droites ont été calculées par ajustement du paramètre non linéaire déterminé à partir des pressions mesurées et de la décomposition en somme de gaussiennes dans le fantôme d'eau (bleu) et de méthanol (rouge).

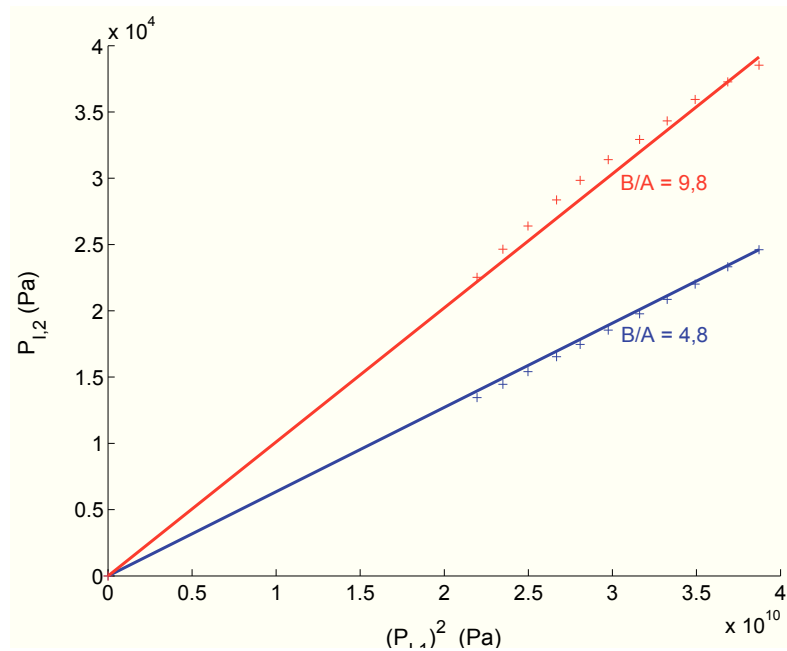


FIGURE 5.8 – Pression à la fréquence harmonique 2 reçue en fonction du carré de la pression à la fréquence fondamentale émise mesurée dans un fantôme d’eau (plus bleu) et dans le fantôme de méthanol (plus rouge) ; et calculée par ajustement de  $\beta_f$  à partir de la décomposition en somme de gaussiennes pour déterminer le paramètre non linéaire (trait plein).

Par cette méthode, le paramètre non linéaire  $B/A$  dans le fantôme de méthanol est déterminé et égal à 9,8. Cette valeur est en bon accord avec celle déterminée dans le chapitre précédent ( $B/A = 9,73$ ). Les résultats sont en adéquation entre eux et avec ceux de la littérature. Ainsi, la méthode de mesure et le protocole sont validés pour assurer la détermination par un transducteur focalisé du paramètre non linéaire dans de fines couches de matériau.



### 5.3 Imagerie du paramètre non linéaire $B/A$ d'un fantôme contenant deux fluides

Utilisons le dispositif modifié ainsi que la procédure de détermination pour effectuer un balayage spatial suivant la hauteur  $y$  afin de déterminer le paramètre non linéaire d'un fantôme ayant deux fluides non miscibles : l'eau et l'huile de silicone. La procédure de calibration s'effectue sur chacun des points de mesures pour assurer une meilleure détermination des paramètres non linéaires du fantôme bi-phasique.

Un balayage spatial vertical est effectué de haut en bas. Selon la position, le faisceau se propage dans des couches de fluide différentes (huile de silicone ou eau). Le pas spatial entre deux points de mesure est de 0,5 mm.

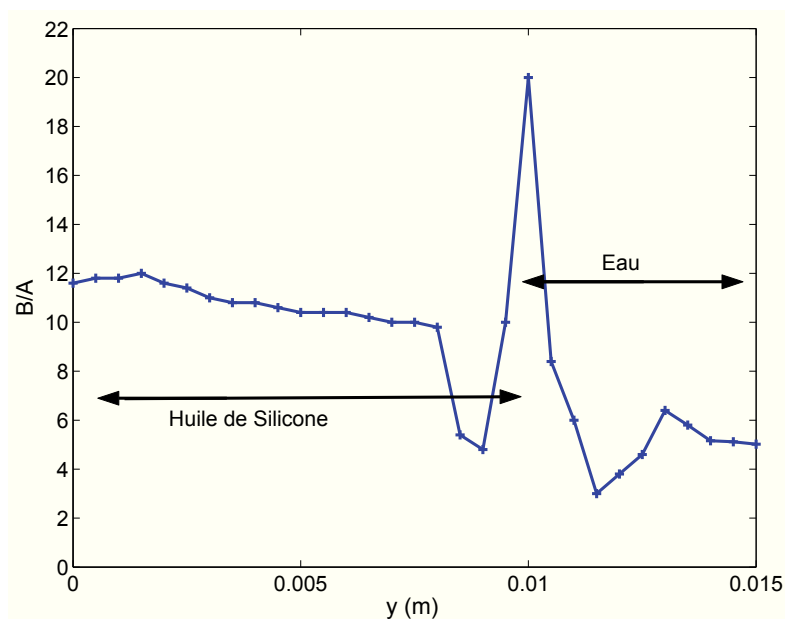


FIGURE 5.9 – Mesure du paramètre non linéaire  $B/A$  lors du balayage vertical du fantôme contenant deux fluides.

La figure 5.9 montre la mesure du paramètre non linéaire dans un fantôme contenant deux fluides suivant  $y$ . La courbe fait apparaître trois zones représentant les deux phases du fantôme et l'interface entre les deux fluides. De  $y = 0$  à 8,5 mm, la mesure du paramètre non linéaire s'effectue dans la zone du fantôme contenant l'huile de silicone variant de 10 à 12 avec une valeur moyenne égale à 11. Des distances  $y = 12$  mm à 15 mm, le milieu

### 5.3. IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ D'UN FANTÔME CONTENANT DEUX FLUIDES

---

concerné est de l'eau et a pour paramètre non linéaire une valeur moyenne égale à 5,5. La figure fait apparaître une zone de transition entre les deux fluides d'une largeur de 5 mm.

A l'interface entre l'huile de silicone et l'eau apparaît un ménisque concave (orienté vers le bas) qui s'explique par la forte tension superficielle du fluide remontant contre la gravité sur les parois.

La figure 5.10 montre une photographie du fantôme mettant en avant le ménisque entre les deux liquides. Le balayage spatial vertical a été effectué dans une zone proche de celle où est placée la règle. La largeur du ménisque est évaluée à 2 mm.

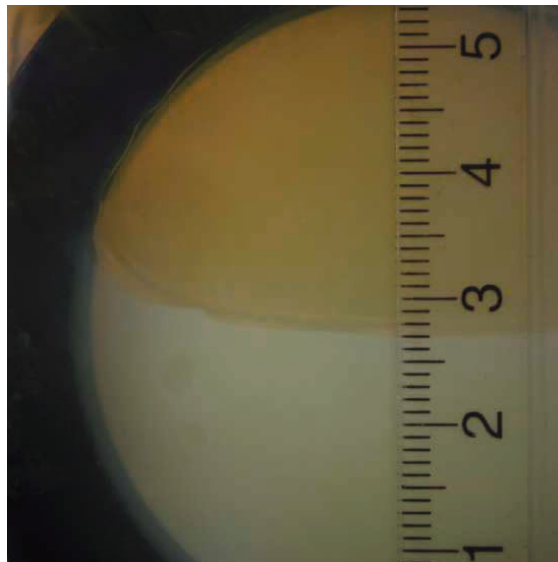


FIGURE 5.10 – Photographie du fantôme centrée sur l'interface en les deux fluides.

La largeur du ménisque de 2 mm vu par une tache focale du transducteur d'environ 1,5 mm explique une largeur de la transition de 5 mm. En effet, le ménisque perturbe les faisceaux ultrasonores (diffraction, présence de plusieurs interfaces) ayant les deux milieux (huile de silicone et eau) ne permettant pas la mesure du paramètre non linéaire (ni la calibration).

Dans la suite, le choix des distances (épaisseurs de la lame d'eau et du fantôme, dimensions de la tache focale) imposées soit par le choix technologique du transducteur soit pour une génération non linéaire optimale est discuté. Il permet de tirer les perspectives sur cette application d'imagerie. Dans les simulations suivantes, les paramètres utilisés sont

ceux de l'expérience.

### 5.3.1 Sensibilité à l'épaisseur de la lame d'eau

L'influence de l'épaisseur de la lame d'eau placé avant l'échantillon est étudié numériquement. Pour un transducteur donné, faire varier cette épaisseur revient à ne plus faire correspondre la focale et l'échantillon. La pression à la fréquence harmonique 2 générée dans l'eau et celle générée dans l'huile de silicone sont calculées et représentées sur la figure 5.11 (avant le fantôme (en rouge), dans le fantôme (en noir) et après le fantôme (en magenta)). La pression à la fréquence harmonique 2 totale reçue par le transducteur en fonction de l'épaisseur de la lame d'eau est représentée par la courbe en bleu ( $P_{I,2}^{totale}$ ).

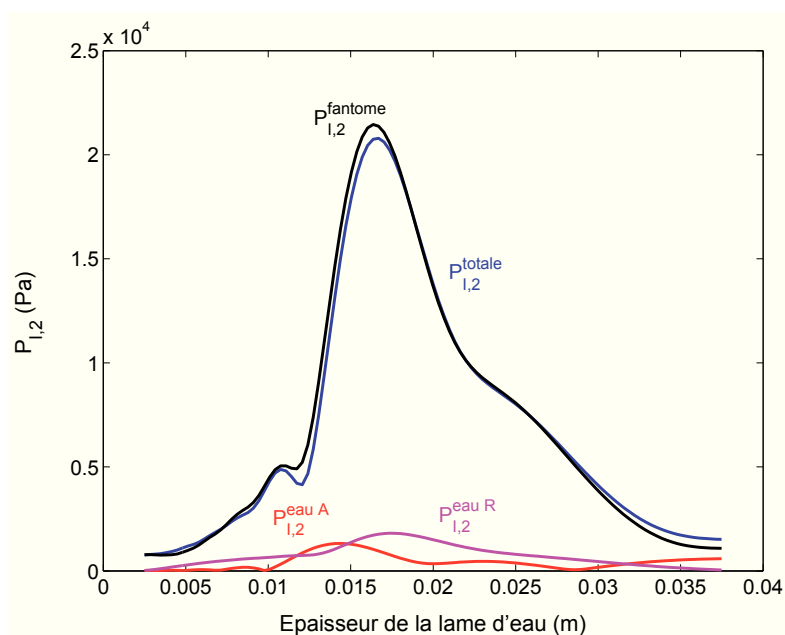


FIGURE 5.11 – Champs de pression à la fréquence harmonique 2 générés à travers la lame d'eau près-fantôme (rouge), dans le fantôme de méthanol (noir), à travers la lame d'eau post-fantôme (magenta) et totale (bleu) en fonction de l'épaisseur de la lame d'eau.

La pression à la fréquence harmonique 2 reçue par un transducteur focalisé admet un maximum pour une épaisseur de la lame d'eau égale à 18 mm. Ce maximum est sujet à des variations suivant la nature du constituant du fantôme. Il correspond aux positionnement optimal du fantôme par rapport à la tache focale du transducteur.

### 5.3. IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ D'UN FANTÔME CONTENANT DEUX FLUIDES

---

On remarque que la contribution des pressions à la fréquence harmonique 2 dans les lames d'eau aller ( $P_{I,2}^{eauA}$ ) et retour ( $P_{I,2}^{eauR}$ ) respectivement en rouge et en magenta est au maximum dix fois plus faible que dans la génération de la pression à la fréquence harmonique 2 totale ( $P_{I,2}^{totale}$ ). Cette observation est valable pour une lame d'eau d'épaisseur allant de 12 mm à 30 mm. Cela signifie que la mesure du paramètre non linéaire  $B/A$  reste fiable et peu perturbé par rapport à la non linéarité provenant de la lame d'eau, même si le positionnement du transducteur n'est plus optimal. Ainsi, la génération non linéaire provient uniquement du fantôme.

Imaginons que l'épaisseur du fantôme ne soit plus constant, notre méthode assure cependant toujours une bonne détermination du paramètre non linéaire. Par contre, cela signifie également que les applications en mode B-scan sont limitées.

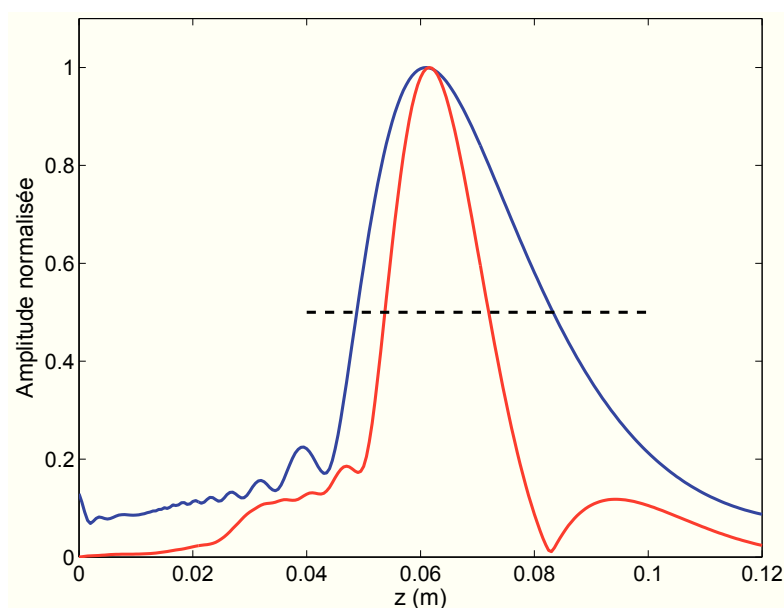


FIGURE 5.12 – Amplitudes normalisées du champ de pression à la fréquence fondamentale (bleu) et harmonique d'ordre deux (rouge) dans l'eau sur l'axe  $z$  calculées par la décomposition en somme de gaussiennes pour un transducteur en émission-réception.

Sur la figure 5.12, l'axe  $z$  représente la distance totale de propagation des ondes ultrasonores, soit deux fois la distance transducteur-rélecteur. La figure montre les champs de pression à la fréquence fondamentale en bleu et harmonique d'ordre deux en rouge calculés pour une génération dans l'eau. La largeur à mi-hauteur de la pression à la fréquence

### 5.3. IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ D'UN FANTÔME CONTENANT DEUX FLUIDES

---

harmonique 2 est de 19 mm. Ainsi, la génération s'effectue dans le fantôme durant l'aller et le retour de l'écho respectivement avant et après le réflecteur. Les échos se propageant dans deux fois l'épaisseur du fantôme, 25 mm, la génération s'effectue donc intégralement dans le fantôme.

La profondeur de la tache focale du transducteur est directement lié à la résolution suivant l'axe de propagation (B-scan). Dans la configuration actuelle, une différenciation entre différentes profondeurs de couches d'un fantôme n'est pas envisageable. Pour assurer une localisation suivant l'axe de propagation, une réduction de la profondeur de la tache focale est à envisager. La méthode proposée s'applique donc essentiellement à une imagerie en mode C-scan.

#### 5.3.2 Sensibilité à l'épaisseur du fantôme

Par simulation, le champ de pression à la fréquence harmonique 2 est calculé en fonction de l'épaisseur du fantôme sur une distance totale de propagation fixée à 32 mm.

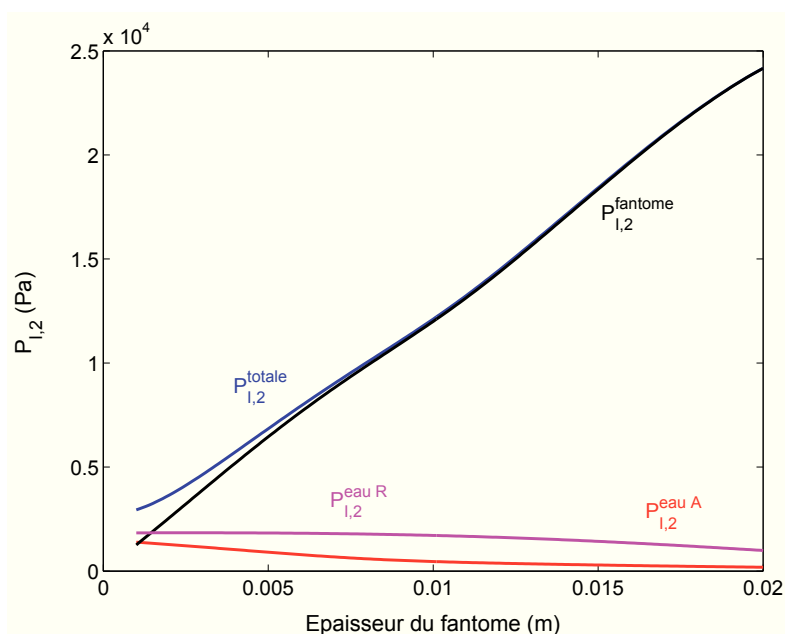


FIGURE 5.13 – Champs de pression à la fréquence harmonique 2 générés à travers la lame d'eau près-fantôme (rouge), dans le fantôme de méthanol (noir), à travers la lame d'eau post-fantôme (magenta) et totale (bleu) en fonction de l'épaisseur du fantôme.

### 5.3. IMAGERIE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE $B/A$ D'UN FANTÔME CONTENANT DEUX FLUIDES

---

La figure 5.13 montre l'ensemble de ces pressions générés respectivement à travers la lame d'eau avant le fantôme (en rouge), le fantôme de méthanol (en noir) et la lame d'eau après le fantôme (en magenta). La pression à la fréquence harmonique 2 totale reçue ( $P_{I,2}^{totale}$ ) par le transducteur en fonction de l'épaisseur du fantôme est représentée par la courbe en bleu.

Les pressions à la fréquence harmonique 2 dans les lames d'eau ( $P_{I,2}^{eauA}$  et  $P_{I,2}^{eauR}$ ) sont faibles et décroissent plus l'épaisseur du fantôme augmente. La pression générée dans le fantôme ( $P_{I,2}^{fantome}$ ) domine la pression totale ( $P_{I,2}^{totale}$ ) dès que l'épaisseur du fantôme atteint 8 mm. De plus, quelques millimètres d'épaisseur de fantôme suffisent pour que la génération non linéaire dans le fantôme soit cinq fois supérieures à celle dans l'eau. Cela assure une mesure du paramètre non linéaire avec une bonne précision même pour des échantillons d'épaisseurs faibles (millimétriques).

Dans la configuration actuelle, il semble donc que la méthode puisse donner des images paramétrique en  $B/A$  en mode C-scan avec une bonne précision.

## Conclusion

Dans ce chapitre, la méthode auto-calibrée a fait l'objet d'une deuxième application permettant l'imagerie du paramètre non linéaire  $B/A$ . Initialement, le transducteur focalisé a été choisi pour assurer une investigation locale en  $B/A$ . Cependant, le transducteur focalisé assure une meilleure détection de la pression que le transducteur plan ainsi qu'une meilleure d'une meilleur discrimination entre les pressions à la pression harmonique provenant de l'échantillon et ceux de la lame d'eau. L'image paramétrique en  $B/A$  d'un fantôme contenant deux fluides a mis en évidence que la méthode permette la détection locale suivant un balayage spatial vertical au fantôme et l'identification des deux liquides et du ménisque qu'ils forment. La discussion autour des simulations permettant de faire varier les différentes épaisseurs (échantillon, lame d'eau) a fait apparaître que cette méthode a une bonne précision en mode C-scan.

# Conclusion générale

Ce travail de thèse a porté sur la mise en œuvre d'une méthode auto-calibrée en émission-réception pour la détermination du paramètre non linéaire. Cette méthode a été appliquée à des matériaux en évolution au cours du temps (suivi de gélification) et à l'imagerie du paramètre non linéaire.

Afin de déterminer de façon absolue le paramètre non linéaire, il est nécessaire de connaître les pressions émises et reçues aux fréquences fondamentale et harmonique 2. Dans ce but, un dispositif en émission-réception a été conçu afin de calibrer l'émetteur et le récepteur simplement et rapidement. La procédure de calibration est basée sur le principe de réciprocité et passe par la mesure des courants et des tensions d'entrées et de sorties. Grâce à ces mesures, les fonctions de transfert du transducteur en charge électrique et acoustique sont déterminées et permettent de déduire les pressions émises et reçues. Conjointement, la vitesse de phase et l'atténuation de l'onde ultrasonore sont mesurées dans le milieu. La propagation non linéaire dans le milieu est décrite dans le cadre de l'approximation parabolique par l'équation KZK qui prend en compte les effets d'atténuation et de diffraction. La solution de cette équation est décomposée en une somme de gaussiennes dont on a extrait les paramètres linéaires et non linéaires. Cette solution s'applique à des géométries asymétriques et prend en compte les réflexions et transmissions aux interfaces au fondamental et à l'harmonique.

Testé pour la mesure du paramètre non linéaire, un dispositif expérimental spécifique est conçu et caractérisé. Il se compose d'un unique transducteur fonctionnant en émission et réception, d'une cellule de mesure, d'une source électrique de forte amplitude, et d'un système d'acquisition et de numérisation couplé à un ordinateur dédié au traitement des signaux. Pour s'assurer de la fiabilité de la mesure du paramètre non linéaire, nous avons

vérifié la linéarité de l'ensemble de la chaîne de mesure. Dans ce travail, différentes sources électriques ont été comparées afin de pouvoir sélectionner le générateur délivrant un signal de tension de forte amplitude avec un faible taux de distortion. Des transducteurs adaptés à la configuration en émission-réception ont été caractérisés en terme de largeur de bande et de non linéarité parasite. La bande de fréquence de 2 à 5 MHz déterminée dans un milieu connu offre le meilleur compromis entre la fonction de transfert en émission au fondamental et celle en réception à l'harmonique 2. A ces fréquences, l'influence de la non linéarité parasite produite par le transducteur est négligeable par rapport à la non linéarité produite dans le milieu (fluide, gel...) après quelques longueurs d'onde de propagation. Le système expérimental est validé pour des mesures dans de l'eau et du méthanol. Les valeurs de la littérature sont retrouvées, validant ainsi les choix technologiques de l'instrumentation.

Cette méthode de calibration *in situ* du transducteur en charge a été utilisée pour suivre l'évolution des propriétés linéaires et non linéaires d'un matériau test de type sol-gel à base de silice. Les mesures des propriétés acoustiques (vitesse de phase, atténuation et paramètre non linéaire) ont mis en évidence un comportement lié au processus de formation du matériau. Du comportement de ces propriétés en fonction du temps, un temps caractéristique de la structuration est déduit pour chacun d'eux. Ces temps sont en accord avec ceux mesurés par des méthodes rhéologiques conventionnelles. Les temps caractéristiques déduits des mesures de l'atténuation et du paramètre non linéaire pour différentes températures de consigne sont en adéquation avec la loi d'Arrhenius. Par contre, la vitesse de phase montre un écart notable de cette loi, due à la très forte influence de la température sur ce paramètre. De plus, nous avons montré que le paramètre non linéaire a une meilleure sensibilité de détection sur la détermination du temps caractéristique.

Cette méthode a été adaptée à la mesure locale du paramètre non linéaire. Pour cette application d'imagerie, l'utilisation d'un transducteur focalisé est nécessaire et permet une meilleure résolution. Nous montrerons que la focalisation rehausse la contribution harmonique dans la tache focale par rapport aux autres régions de l'espace. La contribution non linéaire liée à la présence de la lame située en amont du transducteur est minorée.

Une image du paramètre non linéaire a été obtenue d'un fantôme contenant deux fluides non miscible : eau et huile de silicone. Nos résultats font apparaître la possibilité d'une dé-



## CONCLUSION GÉNÉRALE

---

tection locale et d'une image en mode C-scan du paramètre non linéaire avec une résolution latérale de l'ordre de 3 fois la dimension de la tache focale avec des échantillons d'épaisseur millimétrique.

Les perspectives de ce travail se déclinent suivant trois axes : le suivi des propriétés, l'amélioration de la méthode de mesure et de l'instrumentation, et l'imagerie.

La technique de suivi des propriétés par acoustique non linéaire pourra être utilisée sur des matériaux sol-gel à base de silice en fonction du taux d'hydrolyse pour corrélérer le paramètre non linéaire à l'énergie d'activation du gel. Par ailleurs, la caractérisation d'autres matériaux sol-gel est envisagée. Enfin, l'exploration de matériaux polymères plus atténuants, tels que les Polyurethanes, en cours de formation reste à examiner.

La méthode de mesure pourrait être simplifiée pour des applications nécessitant des mesures rapides en temps réel telle que dans le domaine de l'agro-alimentaire et dans l'industrie des polymères. Actuellement, la mesure du paramètre non linéaire repose sur la mesure des pressions pour différents niveaux excitations. Nous envisageons de réduire le nombre d'acquisitions cette procédure pour accélérer les mesures.

Les ondes transversales permettent d'accéder aux informations liées au cisaillement du matériau. L'adaptation de notre méthode à ce type d'onde par l'utilisation de transducteurs transverses semble une voie d'exploration à venir.

Concernant l'imagerie du paramètre non linéaire, la perspective est de former une image d'un fantôme ultrasonore complexe. Pour cela deux améliorations sont à envisager : diminuer la résolution latérale grâce à l'utilisation d'un transducteur plus fortement focalisé et développer l'exploration axiale (mode B-scan) par focalisation dynamique. Dans ce cas, l'utilisation de systèmes multiéléments plans ou réseaux annulaires sont une possibilité. D'un point de vue théorique, la solution de l'équation KZK qui décrit la propagation d'une onde dans le cadre de l'approximation paraxiale et la décomposition en somme de gaussiennes devra être modifiée et adaptée pour prendre en compte la forte focalisation et la non-axisymétrie des transducteurs. Ces développements permettront de mesurer les propriétés des matériaux hétérogènes complexes suivant les trois dimensions de l'espace. La conception de fantômes ultrasonores à base aqueuse permettra de quantifier expérimentalement les bénéfices de la méthode.

## CONCLUSION GÉNÉRALE

---

# Bibliographie

- [Aanonsen *et al.*, 1984] AANONSEN, S. I., BARKVE, T., TJOTTA, J. N. et TJOTTA, S. (1984). Distortion and harmonic generation in the nearfield of a finite amplitude sound beam. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 75(3):749–768.
- [Bacri *et al.*, 1980] BACRI, J.-C., COURDILLE, J.-M., DUMAS, J. et RAJAONORISON, R. (1980). Ultrasonic waves : a tool for gelation process mesasurements. *Journal de Physique Lettres*, 41:L-369 –L-372. atténuation haute fréquence 100MHz gel acrilique.
- [Beyer, 1974] BEYER, R. T. (1974). *Nonlinear Acoustics*. Acoustical Society of America.
- [Bou Matar *et al.*, 2002] BOU MATAR, O., DOS SANTOS, S., VILA, M. et VANDER MEULEN, F. (2002). Acoustic nonlinear parameter measurement in solid with a contact phase modulation method. *In Ultrasonics Symposium, 2002. Proceedings. 2002 IEEE*, volume 1, pages 881–884vol.1.
- [Bou Matar *et al.*, 2001] BOU MATAR, O., VILA, M., MEULEN, F. V., ROSSIGNOL, C. et LETHIECQ, M. (2001). Experimental and numerical study of the insert-substitution method : Application to the measurement of the nonlinear parameter beta of solids. *2001 Ieee Ultrasonics Symposium Proceedings*, Vols 1 And 2:709–712.
- [Breazeale et Lester, 1961] BREAZEALE, M. A. et LESTER, W. W. (1961). Demonstration of the "least stable waveform" of finite amplitude waves. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 33(12):1803–1803.
- [Breysse et Abraham, 2005] BREYSSE, D. et ABRAHAM, O. (2005). *Méthodologie d'évaluation non destructive de l'état d'altération des ouvrages en béton*. Edition Presses Ponts et Chaussées.
- [Burvingt, 1976] BURVINGT, R. (1976). Solution approchée pour le rayonnement d'une antenne paramétrique à l'émission. *Revue du CETHEDEC*, 48:195 – 218.

- [Calor-Filho et Machado, 2006] CALOR-FILHO, M. M. et MACHADO, J. C. (2006). Measurement of the ultrasonic attenuation coefficient of human blood plasma during clotting in the frequency range of 8 to 22 mhz. *Ultrasound in Medicine & Biology*, 32(7):1055 – 1064.
- [Carstensen, 1947] CARSTENSEN, E. L. (1947). Self-reciprocity calibration of electroacoustic transducers. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 19(6):961–965.
- [Chambon et Winter, 1987] CHAMBON, F. et WINTER, H. H. (1987). Linear viscoelasticity at the gel point of a crosslinking pdms with imbalanced stoichiometry. *Journal of Rheology*, 31(8):683–697.
- [Coppens *et al.*, 1965] COPPENS, A. B., BEYER, R. T., SEIDEN, M. B., DONOHUE, J., GUEPIN, F., HODSON, R. H. et TOWNSEND, C. (1965). Parameter of nonlinearity in fluids. ii. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 38(5):797–804.
- [Coulouvrat, 1991] COULOUVRAT, F. (1991). *Méthodes asymptotiques en acoustique non linéaire*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie.
- [Cros *et al.*, 2001] CROS, B., PAUTHE, M., RGUI, M. et FERRANDIS, J. Y. (2001). On-line characterization of silica gels by acoustic near field. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 76(1-3):115–123.
- [Dace *et al.*, 1991] DACE, G. E., THOMPSON, R. B. et BUCK, O. (1991). Measurement of the acoustic harmonic generation for materials characterization using contact transducers. *In in Review of Progress in Quantitative Nondestructive Evaluation*, volume 11B, pages 2069–2076. Proceedings of the 18th Annual Review, Brunswick, ME, July 28-Aug.
- [Ding, 2000] DING, D. (2000). A simplified algorithm for the second-order sound fields. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 108(6):2759–2764.
- [Drost et Milanowski, 1980] DROST, C. J. et MILANOWSKI, G. J. (1980). Self-reciprocity calibration of arbitrarily terminated ultrasonic transducers. *IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics*, SU-21(2):65 – 71.
- [Dunn *et al.*, 1981] DUNN, F., LAW, W. K. et FRIZZELL, L. (1981). Nonlinear ultrasonic wave propagation in biological materials. *In IEEE Ultrason Symposium*, pages 527–532.

- [Emery *et al.*, 1979] EMERY, J., GASSE, S. et DUGUÉ, J. (1979). Coefficient de non linearité acoustique dans les mélanges eau-méthanol et eau-éthanol. *In J. Phys. Colloques, 8e Symposium International sur l'acoustique non linéaire / 8th International Symposium on non linear acoustics.*
- [Foldy et Primakoff, 1945] FOLDY, L. L. et PRIMAKOFF, H. (1945). A general theory of passive linear electroacoustic transducers and the electroacoustic reciprocity theorem. i. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 17(2):109–120.
- [Forest *et al.*, 1998] FOREST, L., GIBIAT, V. et WOIGNIER, T. (1998). Chemical and structural evolution of silica alcogels during their formation : Acoustical study. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 13:329–333. 10.1023/A :1008624227086.
- [Fortineau *et al.*, 2006] FORTINEAU, J., MEULEN, F. V., HAUMESSER, L., FEUILLARD, G., BARRE, S. et MATAR, O. B. (2006). Evaluation of the moisture content in phenolic resin via acoustic measurements. *Journal of Applied Physics*, 100(7):074911.
- [Fortineau *et al.*, 2008] FORTINEAU, J., MEULEN, F. V., HAUMESSER, L. et MATAR, O. B. (2008). Evaluation of the water content in phenolic resin plates via nonlinear ultrasonic measurements. *AIP Conference Proceedings*, 1022(1):517–520.
- [Gennisson *et al.*, 2006] GENNISSON, J.-L., LEROUGE, S. et CLOUTIER, G. (2006). Assessment by transient elastography of the viscoelastic properties of blood during clotting. *Ultrasound in Medicine & Biology*, 32(10):1529 – 1537.
- [Gibiati *et al.*, 1995] GIBIAT, V., LEFEUVRE, O., WOIGNIER, T., PELOUS, J. et PHALIPPOU, J. (1995). Acoustic properties and potential applications of silica aerogels. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 186:244 – 255. Proceedings of the Fourth International Symposium on AEROGELS.
- [Greenspan et Tschiegg, 1959] GREENSPAN, M. et TSCHIEGG, C. E. (1959). Tables of the speed of sound in water. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 31(1):75–76.
- [Griesmar *et al.*, 2003] GRIESMAR, P., PONTON, A., SERFATY, S., SENOUCI, B., GINDRE, M., GOUEDARD, G. et WARLUS, S. (2003). Kinetic study of silicon alkoxides gelation by acoustic and rheology investigations. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 319(1-2):57 – 64.

- [Gvishi, 2009] GVISHI, R. (2009). Fast sol-gel technology : from fabrication to applications. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 50(2):241–253.
- [Hovem, 1979] HOVEM, J. M. (1979). The nonlinearity parameter of saturated marine sediments. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 66(5):1463–1467.
- [Kim et Yoon, 2009] KIM, B.-N. et YOON, S. W. (2009). Nonlinear parameter estimation in water-saturated sandy sediment with difference frequency acoustic wave. *Ultrasonics*, 49(4-5):438–445.
- [Klein, 1994] KLEIN, L. C. (1994). *Sol Gel Optics : Processing and Applications*. Kluwer International Series in Engineering and Computer Science 259, Kluwer.
- [Kuznetsov, 1971] KUZNETSOV, V. P. (1971). Equation of nonlinear acoustics. *Soviet Physical Acoustics*, 16:467–470.
- [Labat et al., 2000] LABAT, V., REMENIERAS, J. P., BOU MATAR, O., OUAHABI, A. et PATAT, F. (2000). Harmonic propagation of finite amplitude sound beams : experimental determination of the nonlinearity parameter  $b/a$ . *Ultrasonics*, 38(1-8):292–296.
- [Labouret et al., 1998] LABOURET, S., LOOTEN-BAQUET, I., BRUNEEL, C. et FROHLY, J. (1998). Ultrasound method for monitoring rheology properties evolution of cement. *Ultrasonics*, 36(1-5):205–208.
- [Law et al., 1981] LAW, W. K., FRIZZELL, L. A. et DUNN, F. (1981). Ultrasonic determination of the nonlinearity parameter  $b/a$  for biological media. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 69(4):1210–1212.
- [Liu et al., 2008] LIU, X., GONG, X., YIN, C., LI, J. et ZHANG, D. (2008). Noninvasive estimation of temperature elevations in biological tissues using acoustic nonlinearity parameter imaging. *Ultrasound in Medicine & Biology*, 34(3):414 – 424.
- [Lubbers et Graaff, 1998] LUBBERS, J. et GRAAFF, R. (1998). A simple and accurate formula for the sound velocity in water. *Ultrasound in Medicine & Biology*, 24(7):1065–1068.
- [Luque de Castro et Capote, 2007] LUQUE DE CASTRO, M. et CAPOTE, F. P., éditeurs (2007). *Applications of ultrasound-based detection techniques*, volume Volume 26, chapitre Chapter 10, pages 351–388. Elsevier.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [MacLean, 1940] MACLEAN, W. R. (1940). Absolute measurement of sound without a primary standard. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 12(1):140–146.
- [Matsukawa *et al.*, 1996] MATSUKAWA, M., YAMADA, K. et NAGAI, I. (1996). An ultrasonic evaluation of the sol-gel synthesis of silica glass. *Ultrasonics*, 34(2-5):335 – 338. Proceedings of Ultrasonics International 1995.
- [Mazur *et al.*, 2000] MAZUR, M., MLYNARIK, V., VALKO, M. et PELIKAN, P. (2000). The time evolution of the sol-gel process : Si nmr study of the hydrolysis and condensation reactions of tetraethoxysilane. *Applied Magnetic Resonance*, 18:187–197. 10.1007/BF03162110.
- [Nguyen *et al.*, 1996] NGUYEN, N. T., LETHIECQ, M., KARLSSON, B. et PATAT, F. (1996). Highly attenuative rubber modified epoxy for ultrasonic transducer backing applications. *Ultrasonics*, 34(6):669–675.
- [Ochendusko et Buckin, 2010] OCHENDUSZKO, A. et BUCKIN, V. (2010). Real-time monitoring of heat-induced aggregation of b-lactoglobulin in aqueous solutions using high-resolution ultrasonic spectroscopy. *International Journal of Thermophysics*, 31(1):113–130.
- [Ould Ehssein *et al.*, 2006] OULD EHSSEIN, C., SERFATY, S., GRIESMAR, P., LE HUEROU, J., MARTINEZ, L., CAPLAIN, E., WILKIE-CHANCELLIER, N., GINDRE, M., GOUEDARD, G. et FIGUIERE, P. (2006). Kinetic study of silica gels by a new rheological ultrasonic investigation. *Ultrasonics*, 44(Supplement 1):e881–e885.
- [Ould-Ehssein *et al.*, 2006] OULD-EHSSEIN, C., SERFATY, S., GRIESMAR, P., LE HUÉROU, J.-Y., CAPLAIN, E., MARTINEZ, L., WILKIE-CHANCELLIER, N. et GINDRE, M. (2006). Ultrasonic monitoring of yoghurt formation by using at-cut quartz : Lighting of casein micelles interactions process during the acidification. *Ultrasonics*, 44(Supplement 1): e875–e879.
- [Pinkerton, 1949] PINKERTON, J. M. M. (1949). The absorption of ultrasonic waves in liquids and its relation to molecular constitution. *Proceedings of the Physical Society. Section B*, 62(2):129.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [Plantier *et al.*, 2002] PLANTIER, F., DARIDON, J. L. et LAGOURETTE, B. (2002). Measurement of the  $b/a$  nonlinearity parameter under high pressure : Application to water. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 111(2):707–715.
- [Ponton *et al.*, 2002] PONTON, A., WARLUS, S. et GRIESMAR, P. (2002). Rheological study of the sol-gel transition in silica alkoxides. *Journal of Colloid and Interface Science*, 249(1):209 – 216.
- [Ratajska-Gadomska et Gadomski, 2004] RATAJSKA-GADOMSKA, B. et GADOMSKI, W. (2004). Universal critical exponents in the percolation approach to fluorescence and ultrasound studies of the gelation process. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 16(50):9191–9199.
- [Reinhardt *et al.*, 2000] REINHARDT, H., GROSSE, C. et HERB, A. (2000). Ultrasonic monitoring of setting and hardening of cement mortar a new device. *Materials and Structures*, 33:581–583. 10.1007/BF02480539.
- [Richtering *et al.*, 1992] RICHTERING, H. W., GAGNON, K. D., LENZ, R. W., FULLER, R. C. et WINTER, H. H. (1992). Physical gelation of a bacterial thermoplastic elastomer. *Macromolecules*, 25(9):2429–2433.
- [Rogers et Buren, 1974] ROGERS, P. H. et BUREN, A. L. V. (1974). An exact expression for the lommel-diffraction correction integral. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 55(4):724–728.
- [Rokhlin et Kim, 2003] ROKHLIN, S. I. et KIM, J. Y. (2003). In situ ultrasonic monitoring of surface fatigue crack initiation and growth from surface cavity. *International Journal of Fatigue*, 25(1):41–49.
- [Rokhlin *et al.*, 1986] ROKHLIN, S. I., LEWIS, D. K., GRAFF, K. F. et ADLER, L. (1986). Real-time study of frequency dependence of attenuation and velocity of ultrasonic waves during the curing reaction of epoxy resin. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 79(6):1786–1793.
- [Royer et Dieulesaint, 1999] ROYER, D. et DIEULESAINT, E. (1999). *Ondes élastiques dans les solides T1*. Masson.
- [Rudnick, 1958] RUDNICK, I. (1958). On the attenuation of finite amplitude waves in a liquid. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 30(6):564–567.



- [Saito, 1993] SAITO, S. (1993). Measurement of the acoustic nonlinearity parameter in liquid media using focused ultrasound. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 93(1):162–172.
- [Saito *et al.*, 2006] SAITO, S., KIM, J.-H. et NAKAMURA, K. (2006). Automatic measurement of the nonlinearity parameter  $b/a$  in liquid media. *Ultrasonics*, 44(Supplement 1):e1429–e1433.
- [Sanchez *et al.*, 2003] SANCHEZ, C., LEBEAU, B., CHAPUT, F. et BOILOT, J.-P. (2003). Optical properties of functional hybrid organic-inorganic nanocomposites. *Adv. Mater.*, 15(23):1969–1994.
- [Schmerr *et al.*, 1997] SCHMERR, J. L., SEDOV, A. et LERCH, T. (1997). A boundary diffraction wave model for a spherically focused ultrasonic transducer. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 101(3):1269–1277.
- [Selfridge, 1985] SELFRIDGE, A. R. (1985). Approximate material properties in isotropic materials. *IEEE Transactions On Sonics And Ultrasonics*, 32(3):381–394.
- [Senouci *et al.*, 2001] SENOUCI, B., SERFATY, S., GRIESMAR, P. et GINDRE, M. (2001). Acoustic resonance in tetramethoxysilane matrices : A new tool to characterize the gel formation. *Review of Scientific Instruments*, 72(4):2134–2138.
- [Serfaty *et al.*, 1998] SERFATY, S., GRIESMAR, P., GINDRE, M., GOUEDARD, G. et FIGUIERE, P. (1998). An acoustic technique for investigating the sol-gel transition. *Journal of material chemistry*, 8(10):2229–2231.
- [Sidebottom, 1993] SIDEBOTTOM, D. L. (1993). Ultrasonic measurements of an epoxy resin near its sol-gel transition. *Phys. Rev. E*, 48(1):391–399.
- [Sigfusson *et al.*, 2004] SIGFUSSON, H., ZIEGLER, G. R. et COUPLAND, J. N. (2004). Ultrasonic monitoring of food freezing. *Journal of Food Engineering*, 62(3):263–269.
- [Toubal *et al.*, 2003] TOUBAL, M., NONGAILLARD, B., RADZISZEWSKI, E., BOULENGUER, P. et LANGENDORFF, V. (2003). Ultrasonic monitoring of sol-gel transition of natural hydrocolloids. *Journal of Food Engineering*, 58(1):1 – 4.

- [Turniansky *et al.*, 1996] TURNIANSKY, A., AVNIR, D., BRONSHTEIN, A., AHARONSON, N. et ALTSTEIN, M. (1996). Sol-gel entrapment of monoclonal anti-atrazine antibodies. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 7(1):135–143.
- [Van Den Abeele *et al.*, 2009] VAN DEN ABEELE, K., DESADELEER, W., DE SCHUTTER, G. et WEVERS, M. (2009). Active and passive monitoring of the early hydration process in concrete using linear and nonlinear acoustics. *Cement and Concrete Research*, 39(5): 426–432.
- [van Neer *et al.*, 2010] van NEER, P. L., VOS, H. J. et de JONG, N. (2010). Reflector-based phase calibration of ultrasound transducers. *Ultrasonics*, In Press, Uncorrected Proof:–.
- [Vander Meulen et Haumesser, 2008] VANDER MEULEN, F. et HAUMESSER, L. (2008). Evaluation of [bold b]/[bold a] nonlinear parameter using an acoustic self-calibrated pulse-echo method. *Applied Physics Letters*, 92(21):214–106.
- [Vollet *et al.*, 1999] VOLLET, D., DONATTI, D. et RUIZ, A. I. (1999). Hydrolysis rates of tmos catalyzed by oxalic acid and stimulated by ultrasound. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 15(1):5–11.
- [Wen et Breazeale, 1988] WEN, J. J. et BREAZEALE, M. A. (1988). A diffraction beam field expressed as the superposition of gaussian beams. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 83(5):1752–1756.
- [Wiklund *et al.*, 2010] WIKLUND, J., STADING, M. et TRÄGÅRDH, C. (2010). Monitoring liquid displacement of model and industrial fluids in pipes by in-line ultrasonic rheometry. *Journal of Food Engineering*, 99(3):330–337.
- [Wilkie-Chancellier *et al.*, 2006] WILKIE-CHANCELLIER, N., MARTINEZ, L., SERFATY, S., GRIESMAR, P., CAPLAIN, E., LE HUÉROU, J.-Y. et GINDRE, M. (2006). Lamb mode reflections at the end of a plate loaded by a viscoelastic material. *Ultrasonics*, 44(Supplement 1):e863–e868.
- [Wilson, 1959] WILSON, W. D. (1959). Speed of sound in distilled water as a function of temperature and pressure. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 31(8):1067–1072.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [Yoshizumi *et al.*, 1987] YOSHIZUMI, K., SATO, T. et ICHIDA, N. (1987). A physicochemical evaluation of the nonlinear parameter  $b/a$  for media predominantly composed of water. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 82(1):302–305.
- [Zabolotskaya et Khokholov, 1969] ZABOLOTSKAYA, E. A. et KHOKHOLOV, R. V. (1969). Quasi-plane waves in the nonlinear acoustics of confined beams. *Soviet Physical Acoustics*, 15:35–40.
- [Zhu *et al.*, 1983] ZHU, Z., ROOS, M. S., COBB, W. N. et JENSEN, K. (1983). Determination of the acoustic nonlinearity parameter  $b/a$  from phase measurements. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 74(5):1518–1521.



## Résumé :

Utilisés dans de nombreux domaines d'applications, les ultrasons se révèlent être sensibles aux propriétés visco-élastiques des milieux traversés. L'investigation spatiale et temporelle des propriétés visco-élastiques des matériaux par méthodes ultrasonores permet notamment le contrôle de l'intégrité de structures ainsi que le suivi de processus.

Un dispositif auto-calibré en émission-réception, basé sur l'application du principe de réciprocité, a été développé pour la mesure du paramètre non linéaire  $B/A$ . Cette mesure repose sur une étude harmonique des signaux ultrasonores se propageant dans le milieu.

L'instrumentation ultrasonore mise en œuvre a été choisie pour assurer une mesure rapide en émission-réception du paramètre  $B/A$  imposant un choix technologique spécifique.

L'évolution au cours du temps des paramètres acoustiques dans les matériaux de type sol-gel fait apparaître un temps caractéristique lié à la structuration du matériau (gélification).

Les temps de gélification extraits des mesures permettent de retrouver la loi d'Arrhenius cohérente avec celle obtenue par des méthodes rhéologiques conventionnelles.

Une image du paramètre non linéaire a été réalisée sur un fantôme contenant deux fluides non miscibles (eau et huile de silicone).

A travers ces deux applications, nous montrons l'efficacité du système de mesure du paramètre non linéaire dans le cadre du suivi d'un matériau en évolution ainsi qu'en imagerie.

## Mots clés :

Acoustique, ultrasons, calibration, caractérisation, paramètre non linéaire, suivi de processus, matériaux sol-gel, imagerie harmonique calibrée.

## Abstract :

Used in many application areas, ultrasound proved to be sensitive to determine viscoelastic properties. The spatial and temporal investigation of viscoelastic properties of materials by ultrasonic methods can be used to monitor structure integrity and processes. A self-calibrated method, based on reciprocity principle has been developed for measuring the nonlinear parameter  $B/A$ . Instrumentation has been developed to ensure the rapid determination of the parameter  $B/A$  imposing a specific technology.

The time evolution of the acoustic parameters of sol-gel materials shows a characteristic time related to the structuration of the material (Arrhenius law).

A picture of the nonlinear parameter was performed on a phantom containing two immiscible fluids (water and silicone oil).

Through these two examples, the effectiveness of the nonlinear parameter measurements has shown in the follow-up of a material changes as well as imaging.

## Keywords :

Acoustics, ultrasound, calibration, characterisation, nonlinear parameter, monitoring, sol-gel material, harmonic imaging.