



**HAL**  
open science

# Contrôle et suivi des propriétés visco-élastiques d'un composite en cours de fabrication

Nacef Ghodhbani

► **To cite this version:**

Nacef Ghodhbani. Contrôle et suivi des propriétés visco-élastiques d'un composite en cours de fabrication. Acoustique [physics.class-ph]. Université du Havre, 2016. Français. NNT : 2016LEHA0008 . tel-01427162

**HAL Id: tel-01427162**

**<https://theses.hal.science/tel-01427162>**

Submitted on 5 Jan 2017

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Normandie Université

## THESE

**Pour obtenir le diplôme de doctorat**

**Spécialité Acoustique**

**Préparée au sein de l'Université du Havre**

### **Contrôle et suivi des propriétés visco-élastiques d'un composite en cours de fabrication.**

**Présentée et soutenue par**

**Nacef GHODHBANI**

**Thèse soutenue publiquement le 19 Mai 2016  
devant le jury composé de**

Gilles DESPAUX	Professeur des Universités, IES, UMR 5214 CNRS, Université de Montpellier	Rapporteur
Sébastien GRONDEL	Professeur des Universités, IEMN-DOAE, UMR 8520 CNRS, Université de Valenciennes	Rapporteur
Philippe OLIVIER	Professeur des Universités, ICA, UMR 5312 CNRS, Université de Toulouse	Examineur
André BAILLARD	Docteur Ingénieur, Aircelle, Gonfreville-l'Orcher	Examineur
Hugues DUFLO	Professeur des Universités, LOMC, UMR 6294 CNRS, Université du Havre	Examineur
Pierre MARECHAL	Maître de Conférences, LOMC, UMR 6294 CNRS, Université du Havre	Examineur

**Thèse dirigée par : Hugues Duflo, LOMC, UMR CNRS 6294  
Pierre Maréchal, LOMC, UMR CNRS 6294**



LABORATOIRE ONDES  
et MILIEUX COMPLEXES



## REMERCIEMENTS

Ce travail de thèse a été effectué au sein du groupe Ondes Acoustiques sur le site Bellot du Laboratoire Ondes et Milieux Complexes (LOMC) du Havre. Tout d'abord je remercie la direction du groupe Ondes Acoustiques en la personne de Monsieur Pascal Pareige de m'avoir accueilli et accordé sa confiance.

J'exprime mes remerciements à Monsieur Hugues Duflo pour la direction qu'il a donné à mes recherches et sa disponibilité malgré ses nombreuses charges. Je remercie chaleureusement Monsieur Pierre Maréchal pour son encadrement exemplaire, son soutien, sa confiance et pour ses qualités humaines. Les mots me manquent pour exprimer ma gratitude. J'ai énormément appris à tes côtés. Merci pour tout.

Je remercie également Messieurs Gilles Despaux, Professeur à l'Université de Montpellier et Sébastien Grondel, Professeur à l'Université de Valenciennes, d'avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse.

Mes remerciements vont également à l'endroit de Messieurs Philippe Olivier, Professeur à l'Université de Toulouse, et André Baillard, Docteur Ingénieur chez Aircelle (groupe SAFRAN) qui ont accepté de juger ce travail.

Je remercie aussi l'ensemble des membres du groupe Ondes Acoustiques avec qui j'ai partagé des moments enrichissants.

Une pensée particulière à mes amis et mes collègues avec lesquels j'ai partagé mon quotidien, je vous souhaite une bonne continuation.

Finalement, merci à ma famille, mes parents, mon frère et mes sœurs, pour leur encouragement et leur soutien.





***A mes très chers parents, Abdelhafidh et Houria,***

*Aucune dédicace, aucun mot ne pourrait exprimer votre juste valeur, la gratitude et l'amour que je vous porte. Je mets entre vos mains, le fruit de longues années d'études. Votre soutien et votre encouragement m'ont toujours donné de la force pour persévérer et pour prospérer dans la vie. Chaque ligne de cette thèse chaque mot et chaque lettre vous exprime la reconnaissance, le respect et le merci d'être mes parents.*



## RESUME

Les transducteurs ultrasonores font l'objet de nombreux développements en contrôle non-destructif (CND) industriel. Utilisé ponctuellement et périodiquement, le CND ultrasonore permet d'établir des diagnostics sur la santé des matériaux. La caractérisation ultrasonore en temps réel constitue un outil de surveillance de l'évolution des propriétés physiques lors de la fabrication des matériaux composites. Dans ce contexte, des études sont menées au LOMC pour optimiser le procédé de fabrication des matériaux composites par RTM (Resin Transfer Molding) afin d'améliorer la qualité du produit. Ce travail de thèse consiste à développer des méthodes ultrasonores pour le suivi des propriétés viscoélastiques d'un composite pendant la phase de production. Les propriétés viscoélastiques sont étudiées à l'aide de modèles théoriques, de simulations numériques et de résultats expérimentaux. Des études de calibration ont été menées afin d'étudier les facteurs d'influence sur le suivi de propriétés ultrasonores lors de la mise en œuvre d'un procédé RTM. Le suivi des paramètres viscoélastiques de résines époxy est effectué dans un premier temps à basse température au cours d'une polymérisation isotherme et d'une post-cuisson. Ensuite, une approche basée sur la méthode de caractérisation en émission/transmission a été développée afin d'étudier le comportement à haute température. La modélisation de la réponse électroacoustique par série de Debye (DSM) a été effectuée en se basant sur des approches analytiques. L'utilisation des transducteurs multiéléments permet la localisation et le dimensionnement de défauts lors du déplacement de fibres de carbone dans une résine liquide, entre des moules.

## ABSTRACT

The developments based on ultrasonic transducers are nowadays numerous in the industrial non-destructive testing (NDT). Used punctually and periodically, the ultrasonic NDT is used for health diagnostics of materials. Ultrasonic characterization in real time allows a physical properties monitoring during the manufacturing of composite materials. In this context, studies are conducted in LOMC in view to optimize the manufacturing process of composite materials using RTM (Resin Transfer Molding) in order to improve the product quality. This work consists to develop ultrasonic methods for the monitoring of viscoelastic properties during the production phase of composites. The viscoelastic properties are studied using theoretical models, numerical simulations and experimental measurements. Calibration studies were carried out to study the influencing factors on the monitoring of ultrasonic properties during the RTM process. The monitoring of viscoelastic parameters of epoxy resins is performed in a first time at low temperature during an isothermal polymerization and a post-curing. Then, an approach based on the transmission mode characterization was developed to study high-temperature behavior. Based on analytical approaches, the electroacoustic response was simulated by Debye series method (DSM). The use of phased array transducers was investigated for the location and sizing of defects during the movement of the carbon fiber in a liquid resin between the molds.



## Sommaire

Sommaire .....	9
Chapitre I : Caractérisation ultrasonore d'un milieu viscoélastique : facteurs de perturbation .....	
I Introduction .....	19
II Étude théorique .....	20
II.1 Techniques de mesure ultrasonore .....	20
II.1.1 Temps de vol .....	21
II.1.2 Auto-corrélation .....	21
II.1.3 Méthode spectrale .....	22
II.2 Dispersion de l'atténuation et de la vitesse de phase .....	23
II.3 Reproductibilité en incidence normale .....	25
III Dispositif expérimental .....	26
III.1 Techniques de mesure ultrasonore .....	27
III.1.1 Temps de vol .....	27
III.1.2 Auto-corrélation .....	28
III.1.3 Méthode spectrale .....	29
IV Reproductibilité et estimation des facteurs perturbateurs .....	30
IV.1.1 Validation de l'approche théorique .....	30
IV.1.2 Modélisation de la dispersion en fréquence .....	31
V Dispersion de l'atténuation avec plusieurs transducteurs .....	32
VI Sensibilité à la température .....	34
VII Conclusion .....	36
VIII Références .....	38

Chapitre II : Suivi de polymérisation d'une résine époxy.....	45
I    Introduction .....	45
II   Étude théorique .....	46
III  Dispositif expérimental .....	47
III.1    Polymérisation isotherme .....	49
III.1.1    Caractérisation par le temps de vol .....	49
III.1.2    Transformation de phases.....	50
III.1.3    Sensibilité à la température isotherme .....	51
III.1.4    Modélisation de la cinétique de réaction.....	53
III.1.5    Degré de conversion de la réaction .....	55
IV    Modélisation de la réponse électroacoustique du transducteur .....	59
IV.1    Décomposition en série de Debye .....	60
IV.2    Simulation de la réponse électroacoustique .....	61
IV.3    Configuration en émission réception.....	62
IV.3.1    Modélisation de la réponse électroacoustique.....	62
IV.3.2    Simulation des signaux pendant une polymérisation isotherme .....	63
IV.3.3    Sensibilité du modèle à la température isotherme.....	64
V    Conclusion.....	66
VI   Références .....	67
Chapitre III : Caractérisation ultrasonore de l'époxy durcie pendant une post-cuisson.....	71
I    Introduction .....	71
II   Hystérésis des propriétés induites par un cycle thermique .....	72
II.1    Différence entre la température de consigne et la température à la surface de l'échantillon .....	72
II.2    Différence entre la température à la surface et celle à cœur .....	73
II.3    Hystérésis de la vitesse et de l'atténuation ultrasonore.....	76
II.3.1    Dilatation thermique.....	76
II.3.2    Cycle thermique .....	76
II.3.3    Propriétés ultrasonores .....	77
III   Comportement ultrasonore sans transformation de phase ( $T \leq T_g$ ).....	78
III.1    Cycle de température.....	78
III.2    Sensibilité à la température des propriétés ultrasonores .....	79
III.3    Dispersion en fréquence .....	81
III.3.1    Modèle linéaire.....	81
III.3.2    Modèle puissance .....	83
III.3.3    Modèle Cole-Cole .....	85

III.4	Modèle approché de la dispersion ( $f, T$ ).....	87
IV	Comportement ultrasonore en tenant compte les transformations de phase .....	89
IV.1	Variation des propriétés ultrasonores .....	89
IV.2	Identification des transformations thermiques .....	90
IV.2.1	Calorimétrie différentielle à balayage (DSC).....	90
IV.2.2	Caractérisation par les ultrasons .....	90
IV.3	Modèle approché de la dispersion ( $f, T$ ) en fréquence et en température.....	92
IV.3.1	Comportement de l'époxy avec la température.....	92
IV.3.2	Modèle de dispersion en fréquence et en température .....	95
V	Conclusion.....	97
VI	Références .....	98

## Chapitre IV : Caractérisation ultrasonore avec la méthode de transmission.....

I	Introduction .....	99
II	Méthode de transmission.....	100
III	Dispositif expérimental .....	104
III.1	Signaux de référence .....	105
III.2	Influence des propriétés ultrasonores dans les moules.....	107
III.3	Influence de la méthode d'estimation .....	110
IV	Coefficient de transfert $T$ .....	112
IV.1	Forme analytique.....	112
IV.2	Détermination itérative du coefficient de transfert $T$ .....	114
IV.3	Propriétés ultrasonores dans la résine .....	116
IV.3.1	Evolution en fonction du temps d'acquisition et la fréquence .....	116
IV.3.2	Influence de la température de consigne .....	117
V	Application pour le suivi des propriétés ultrasonores à haute température.....	117
V.1	Transducteur à haute température K4V1 .....	118
V.2	Evolution des propriétés ultrasonores dans la ligne à retard .....	119
V.3	Mise en équation .....	120
V.4	Transformation de phase .....	121
V.5	Transformation thermique.....	123
V.6	Simulation de réponse électroacoustique .....	124
VI	Conclusion.....	127
VII	Références .....	128



<b>Chapitre V : Localisation et dimensionnement de défauts par</b>		
<b>transducteur multiéléments .....</b>		<b>131</b>
I	Introduction .....	131
II	Les transducteurs multiéléments .....	132
II.1	Le balayage électronique.....	132
II.2	La focalisation .....	134
II.2.1	Lois de retard.....	134
II.2.2	Résolution de la tache focale.....	136
II.3	Le balayage mécanique .....	139
III	Modélisation.....	140
IV	Localisation et dimensionnement de défauts de répartition de torons de fibres .....	142
IV.1	Dispositif expérimental .....	142
IV.2	Réseau de trous périodiquement répartis.....	144
IV.2.1	Configuration .....	144
IV.2.2	Dimensionnement avec l'écho du fond.....	146
IV.3	Détection de défaut de torons de fibres de carbone.....	149
IV.3.1	Propagation dans l'eau .....	149
IV.3.2	Propagation dans une résine époxy .....	151
V	Cartographie d'un composite .....	151
VI	Conclusion.....	154
VII	Références .....	155
 <b>Conclusion.....</b>		 <b>157</b>
Annexe A	Modèles viscoélastiques .....	159
Annexe B	Incertitude associée au temps de vol .....	165
Annexe C	Linéarisation du modèle d'Arrhenius.....	171
Annexe D	Identification de la transformation de phase par la distribution de Weibull. .	173
Annexe E	Dilatation et sensibilité thermiques .....	177
Annexe F	Configuration en émission/transmission (ET).....	181
Annexe G	Signaux à enveloppe gaussienne atténuée.....	185

## Introduction

Avions, hélicoptères, véhicules de compétition, bateaux de course mais aussi prothèses médicales... tous ces produits sont fabriqués avec des matériaux composites. Les matériaux composites à haute performance en aéronautique ou en automobile offrent des concepts innovants, des techniques de mise en forme avancées et des propriétés physiques impossibles avec les matériaux classiques. De par leurs caractéristiques spécifiques, ces matériaux présentent un grand potentiel dans le domaine de la recherche.

Ces matériaux composites à matrice sont constitués de fibres, mélangées dans une matrice polymère qui peut être thermodurcissable ou thermoplastique. Les fibres apportent la résistance mécanique et tandis que la matrice dont la résistance mécanique est beaucoup plus faible, permet entre autres de les maintenir entre elles. Dans le domaine aéronautique, le composite le plus courant est le carbone/époxy utilisé pour sa bonne résistance mécanique et sa tenue en température. L'utilisation des matériaux composites a permis d'alléger fortement les structures aéronautiques tout en conservant des caractéristiques spécifiques très intéressantes vis à vis de matériaux plus classiques tels que l'acier ou l'aluminium. Cependant, ce sont des matériaux qui ne cessent d'évoluer et dont le vieillissement demeure encore méconnu. Aussi, de larges coefficients de sécurité sont appliqués, entraînant des surplus de masse et de coût. Il existe de nombreux procédés de mise en forme des composites, dont les propriétés dépendent des matières premières mises en jeu. Parmi les techniques utilisées, le procédé RTM (Resin Transfer Molding) offre un compromis technicité/propriétés/coûts permettant de réaliser des plaques composites haute performance de forme complexe.

Les axes de recherche actuels pour le contrôle de la mise en forme des matériaux composites visent deux objectifs principaux : le suivi des propriétés physiques et la détermination du taux de porosité. Le premier point permet de connaître la cinétique de réaction, le taux de réticulation et l'évolution des propriétés viscoélastiques des composites lors de la fabrication sans passer par des essais classiques a posteriori (essais mécaniques, DSC, DMA,...). Cela permet par conséquent l'optimisation du procédé en temps réel et la diminution des coûts de production. Le deuxième point porte sur l'identification et le dimensionnement des défauts. Cet objectif a pour but de contrôler la porosité et de maîtriser l'état de santé du produit fini selon des critères précis. De nombreuses recherches ont été effectuées en utilisant différents capteurs (fibres optiques, capteurs diélectriques, résonateurs

piézo-électriques ,...) pour l'évaluation des propriétés physiques au cours de l'élaboration. Concernant l'évaluation de la porosité, celle-ci dépend directement de la technique de contrôle non destructif (CND) utilisée et constitue toujours un axe d'amélioration continue.

Avec les transducteurs ultrasonores, le suivi de l'évolution des propriétés physiques des matériaux, la localisation, le dimensionnement et contrôle des défauts au cours de la mise en œuvre des matériaux sont en constant développement et de plus en plus souhaités. Cette thèse fait suite à des travaux antérieurs sur le procédé RTM, sur la caractérisation des composites (propriétés, défauts, vieillissement, ...). Dans ce contexte, on s'intéresse ici à développer des méthodes de diagnostic et de suivi ultrasonores pendant la phase de production.

Les moyens de mesure sont autant de paramètres à maîtriser : l'instrumentation (échantillonnage, rapport signal sur bruit, ...), le transducteur utilisé (monoélément, à haute température, multiéléments, ...), la technique de mesure (émission/réflexion (ER), émission/transmission (ET), ...) et la méthode d'estimation (temps de vol, corrélation, spectrale, ...). Les conditions expérimentales liées au procédé (anisotropie des matériaux, variation de la température, pression, géométrie des moules, ...) constituent des points d'influence à la bonne maîtrise du procédé. Malgré l'évolution des techniques de caractérisation ultrasonore, le lien entre la cinétique de réaction pour définir le taux réticulation des résines et les ondes ultrasonores demeurent des thèmes de recherche actuels.

L'objectif de cette thèse, effectuée au Laboratoire Ondes et Milieux Complexes (LOMC), s'intègre dans cette perspective dont les enjeux portent sur le développement de protocoles expérimentaux capables de suivre les propriétés ultrasonores et la porosité des plaques composites en cours de fabrication par le procédé RTM et de développer des techniques ultrasonores fiables pour le suivi des propriétés ultrasonores dans des conditions s'approchant des conditions réelles de mise en œuvre du procédé. Les principales étapes suivies peuvent être détaillées de la façon suivante : caractérisation ultrasonore des liquides viscoélastiques en tenant compte des facteurs de perturbations ; suivi et simulation de polymérisation à basse température ; caractérisation et modélisation en fréquence et en température des propriétés ultrasonores de l'époxy durci lors d'un cycle thermique ; application avec des transducteurs ultrasonores à haute température dans une configuration émission/transmission ; localisation et dimensionnement de défauts par transducteur multiéléments.

Ainsi, la présentation de ce travail a été décomposée en cinq chapitres :

Dans le premier chapitre, des études de calibration ont été menées afin d'étudier les facteurs d'influence sur le suivi de propriétés ultrasonores lors de la mise en œuvre d'un procédé RTM. Plus précisément, un dispositif expérimental a été développé dans le but d'identifier les paramètres les plus sensibles tels que la perpendicularité entre le faisceau acoustique et le moule, l'échantillonnage, le rapport signal sur bruit, la variation de température et la technique d'estimation. Le dispositif décrit permet de caractériser la vitesse de phase et l'atténuation ultrasonore dans un liquide visqueux dans une large gamme de fréquences, via plusieurs méthodes de traitement des signaux. La reproductibilité de la mesure en incidence normale y est évaluée sur la mesure de vitesse dans une huile silicone, et ce pour différentes fréquences centrales de transducteurs, afin de balayer une large bande fréquentielle. L'erreur d'incidence normale est identifiée comme la principale et analysée d'un point de vue géométrique et permet d'expliquer l'erreur relative de vitesse de phase par la variabilité angulaire autour de l'incidence normale. La reproductibilité des résultats valide notre approche et montre un accord avec les hypothèses théoriques. L'identification de l'atténuation à une loi puissance permet d'estimer la dispersion des propriétés ultrasonores, en lien avec la dispersion de vitesse. La relation entre un modèle empirique de type Cole-Cole et la loi puissance à haute fréquence est vérifiée expérimentalement. Le second paramètre d'influence identifié est la sensibilité à la température.

Au cours du deuxième chapitre, un dispositif expérimental a été développé dans l'objectif de caractériser, par une méthode ultrasonore, une réaction de polymérisation. Le suivi des paramètres viscoélastiques d'une résine thermodurcissable est effectué au cours d'une opération de polymérisation isotherme. Ces caractéristiques viscoélastiques relevées peuvent être directement liées à des modèles de cinétique réactionnelle. Ainsi, la mesure par ultrasons de la constante élastique et des pertes mécaniques associées, a été développée afin de déterminer les transformations de phases d'une résine époxy. Afin de permettre l'identification de la cinétique de réaction, l'évolution temporelle du coefficient élastique est caractérisée en utilisant une distribution de Weibull. Cette formulation permet d'établir la relation entre les paramètres ultrasonores et un modèle de cinétique de réaction telle que celle décrite par Kamal et Sourour. Pour finir ce chapitre, une modélisation numérique basée sur le modèle de Weibull, permet de modéliser la réponse électroacoustique du signal lors de la polymérisation isotherme en utilisant la méthode de décomposition en série de Debye (DSM).

A l'aide des échantillons en époxy durci, étudiés lors de la polymérisation au cours du deuxième chapitre, nous nous attachons, dans le troisième chapitre, à l'étude de la modélisation en température et en fréquence du comportement de l'époxy lors d'une post-cuisson. En premier lieu, l'hystérésis des propriétés ultrasonores pour un cycle thermique a été étudiée. Ce phénomène a été expliqué expérimentalement avec l'inertie thermique, i.e. par la différence entre la température de consigne et celle mesurée localement dans l'échantillon. Une approche analytique unidimensionnelle de l'équation de chaleur permet d'expliquer la différence entre la température en surface de l'échantillon et à cœur. L'effet de la dilatation thermique sur les propriétés ultrasonores a été également discuté pour tenir compte de l'évolution dimensionnelle de l'époxy lors de la variation de la température. En deuxième lieu, la modélisation en fréquence et en température du comportement de l'époxy a été effectuée dans une gamme de température inférieure à la température de transition vitreuse ( $T_g$ ). Dans cette gamme de température, les paramètres viscoélastiques du modèle Cole-Cole développé lors du premier chapitre ont été estimés et un modèle fréquence température ( $f, T$ ) est proposé. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous étudierons le comportement de l'époxy dans une gamme de température qui inclut la température de transition vitreuse. Les résultats ultrasonores permettent d'identifier la transformation thermique de l'époxy en bon accord avec la méthode calorimétrique DSC. Un modèle empirique de la dépendance des propriétés ultrasonores en fréquence/température ( $f, T$ ) qui tient compte de la transformation thermique y est proposé.

Après avoir étudié le comportement de l'époxy à basse température, le quatrième chapitre concerne l'utilisation de transducteurs haute température avec ligne à retard intégrée. Pour atteindre cet objectif, une approche basée sur la méthode de caractérisation en émission/transmission (ET) est proposée et mise en œuvre en premier lieu à basse température. Dans cette partie, l'influence des propriétés ultrasonores dans les moules et la méthode d'estimation sont étudiées. Un coefficient de transmission est développé sous une forme analytique et à partir d'une procédure d'optimisation itérative basée sur une approche inverse. L'application de cette approche est ensuite effectuée à haute température avec les transducteurs à lignes à retard intégrées. Ce dispositif constitue une structure de cinq couches au lieu de la structure tricouche étudiée initialement. Grâce à ces capteurs, le suivi des propriétés ultrasonores de la résine RTM6 est réalisé pendant la polymérisation et pendant une post-cuisson. Enfin, la simulation numérique de la réponse électroacoustique du signal est effectuée via la méthode de décomposition en série de Debye (DSM) et en se basant sur les

modèles de dépendance des propriétés ultrasonores dans les lignes à retard, les moules et l'époxy.

L'objectif du cinquième et dernier chapitre est d'utiliser les transducteurs multiéléments pour la localisation et le dimensionnement de défauts lors du déplacement de torons de fibres de carbone dans une résine encore liquide, entre des moules. Une première étude théorique permet de déterminer les différents paramètres de balayage. L'évolution de la tache focale pour une structure bicouche lorsque le matériau passe de l'état liquide visqueux à l'état solide est discutée. Par conséquent, la nécessité d'implémenter des lois focales variables en fonction du temps est évoquée. Afin de calibrer le dispositif, une étude préliminaire consiste à évaluer les possibilités de détection de manque de matière. Le dimensionnement d'un réseau de trous régulièrement répartis en mouvement entre les moules est réalisé suivant les deux axes de balayage électronique et mécanique. Ensuite, la localisation et le dimensionnement des défauts des fibres de carbone en déplacement dans l'eau et dans la résine sont réalisés et discutés. Enfin, un C-scan est effectué, permettant de distinguer le tressage des torons et d'évaluer les propriétés ultrasonores longitudinales effectives du matériau composite inspecté.



# Chapitre I : Caractérisation ultrasonore d'un milieu viscoélastique : facteurs de perturbation

## I Introduction

Les techniques ultrasonores de contrôle non destructif (CND) ou d'évaluation non destructive (END) ont vu leur champ d'application s'étendre dans plusieurs domaines, en lien avec la caractérisation des matériaux. La précision des mesures ultrasonores varie généralement en fonction des matériaux et l'environnement de caractérisation. Les enjeux associés à la caractérisation ultrasonore sont particulièrement importants dans le domaine de l'énergie (notamment le nucléaire), le transport (automobile, ferroviaire, aéronautique, ...), l'imagerie médicale, *etc.* La dispersion des paramètres ultrasonores tels que la vitesse de phase et l'atténuation permettent le suivi du vieillissement des structures [1], la caractérisation du comportement viscoélastique [2], le suivi de polymérisation [3][4][5][6][7][8][9][10] et la caractérisation de la porosité [11]. La caractérisation et le contrôle d'un matériau composite en cours de fabrication fait apparaître une complexité au niveau de l'hétérogénéité du milieu de propagation, la reproductibilité de l'incidence normale du faisceau acoustique, la variation de la température et l'échantillonnage des signaux. L'objectif de cette première étude est donc d'étudier l'influence des paramètres prépondérants (l'incidence normale, la sensibilité à la température, l'échantillonnage et le rapport signal sur bruit) pour deux références d'huiles silicones possédant des viscosités différentes. Leur impact est étudié dans la perspective d'une application sur un suivi de fabrication de plaques composites par le procédé RTM. Dans ce cadre, plusieurs méthodes de caractérisation sont mises en œuvre: temps de vol, auto-corrélation et spectrale. Une nouvelle approche pour calculer l'atténuation par la méthode d'auto-corrélation est proposée. La dispersion de l'atténuation est modélisée par une loi puissance [12][13][14].

La dispersion de vitesse est modélisée par Szabo [15] et O'Donnell [16]. Une première approche expérimentale et descriptive est développée pour évaluer la reproductibilité de l'incidence normale entre le faisceau acoustique et le matériau. Ainsi, les erreurs relatives de la vitesse et de l'atténuation sont directement liées à la déviation angulaire de l'onde ultrasonore, ainsi que l'échantillonnage et le rapport signal sur bruit (SNR). Une deuxième



approche expérimentale et phénoménologique traite l'effet d'un changement de température, typique d'une réaction de polymérisation.

Ce chapitre est décomposé en cinq parties : la première partie présente l'étude théorique et les différentes approches utilisées pour les calculs. En deuxième partie, nous présenterons le dispositif expérimental et les résultats des différentes techniques d'estimation des propriétés ultrasonores. La troisième partie montre les approches théoriques utilisées pour tenir compte des différents facteurs perturbateurs et la validation avec les résultats expérimentaux. Dans la quatrième partie, nous montrons la dispersion de l'atténuation avec plusieurs transducteurs et nous proposons une approximation entre le modèle puissance et le modèle Cole-Cole [17]. La cinquième partie présente la sensibilité thermique de la vitesse ultrasonore.

## II Étude théorique

### II.1 Techniques de mesure ultrasonore

Afin de caractériser la vitesse et l'atténuation ultrasonore, le fluide est placé dans une cuve. Les mesures sont effectuées en incidence normale, correspondant au maximum de l'énergie acoustique réfléchi. En tenant compte des premiers signaux d'aller-retour  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ , mesurés respectivement à deux positions  $d_{ref}$  et  $d_{ref} + \Delta d_h$  (Figure 1.1), les premiers temps d'aller-retour dans l'huile et les amplitudes des échos correspondants sont désignés par  $(t_1, A_1)$  et  $(t_2, A_2)$ .

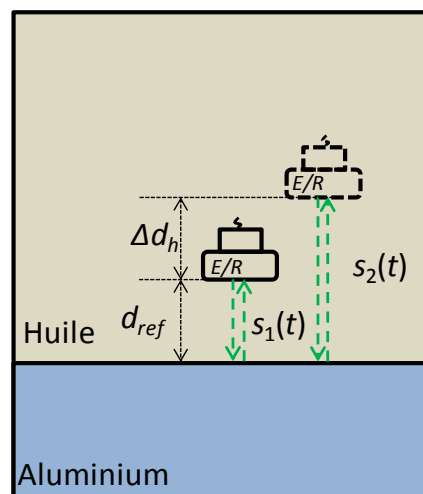


Figure 1.1: Configuration expérimentale.

### II.1.1 Temps de vol

En utilisant la méthode de temps de vol, la vitesse  $c_{h,t}$  (équation (1.1)) est exprimée en fonction de la différence entre les temps de vol  $\delta t_{tof} = t_2 - t_1$  et l'atténuation  $\alpha_{h,t}$  (équation (1.2)) liée au rapport de l'amplitude d'écho  $A_1 / A_2$ .

$$c_{h,t} = \frac{2\Delta d_h}{\delta t_{tof}} \quad (1.1)$$

et 
$$\alpha_{h,t} = \frac{1}{2\Delta d_h} \ln \left( \frac{A_1}{A_2} \right) \quad (1.2)$$

Certaines estimations sont basées sur ces méthodes de temps de vol. En particulier, le temps de vol  $\delta t_{tof}$  peut être estimé en utilisant le temps de montée  $\delta t_{10}$  ou  $\delta t_{20}$  à 10% ou 20% du maximum de l'enveloppe des allers-retours d'échos. Le rapport d'amplitude  $A_1 / A_2$  peut être estimé en utilisant le rapport entre la valeur maximale des échos rectifiés ou le rapport entre le maximum de l'enveloppe des échos.

### II.1.2 Auto-corrélation

La technique d'auto-corrélation est couramment utilisée pour calculer le temps de retard  $\delta t_{cor}$  entre deux signaux supposés avoir la même forme (pas de distorsion). La fonction d'auto-corrélation entre les deux signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  est désignée par :

$$cor_{s_1/s_2}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} s_1(\tau) s_2(\tau + t) d\tau \quad (1.3)$$

Le temps du maximum de cette fonction d'auto-corrélation (équation (1.3)) correspond au temps caractéristique de retard  $\delta t_{cor}$  entre les deux signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ . La vitesse ultrasonore  $c_{h,t,cor}$  calculée par cette méthode est définie par :

$$c_{h,t,cor} = \frac{2\Delta d_h}{\delta t_{cor}} \quad (1.4)$$

En outre, l'atténuation peut être évaluée par la fonction de corrélation normalisée  $r_{s_1/s_2}$  entre  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  (équations (1.5) et (1.6)). Si la dispersion de l'atténuation est négligeable en fonction de la fréquence (Annexe G), nous pouvons écrire  $s_2(t) = A_2/A_1 \cdot s_1(t + \delta t_{cor})$ , et le maximum d'amplitude de l'enveloppe de la fonction de corrélation normalisée  $r_{s_1/s_2,max}$  donne directement le rapport d'amplitude  $A_2/A_1$ . Cette hypothèse correspond au cas où l'atténuation est considérée comme constante dans la bande passante du transducteur:

$$r_{s_1/s_2}(t) = \frac{cor_{s_1/s_2}(t)}{\max\left(env\left(cor_{s_1/s_1}(t)\right)\right)} \quad (1.5)$$

et

$$r_{s_1/s_2,\max} = \max\left(env\left(r_{s_1/s_2}(t)\right)\right) = \frac{\max\left(env\left(cor_{s_1/s_2}(t)\right)\right)}{\max\left(env\left(cor_{s_1/s_1}(t)\right)\right)} = \frac{A_2}{A_1} \quad (1.6)$$

Ainsi, l'atténuation dans l'huile  $\alpha_{h,t,cor}$  est estimée par le maximum d'amplitude de l'enveloppe de la fonction de corrélation normalisée  $r_{s_1/s_2,\max}$  (équation (1.6)) et illustrée par la Figure 1.4 (b):

$$\alpha_{h,t,cor} = \frac{-\log(r_{s_1/s_2,\max})}{2\Delta d_h} = \frac{1}{2\Delta d_h} \log\left(\frac{A_1}{A_2}\right) \quad (1.7)$$

### II.1.3 Méthode spectrale

La méthode spectrale permet de déterminer la dispersion des propriétés ultrasonores avec l'analyse des réponses en fréquence [14][18]. Les spectres complexes des signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ , notés par  $\underline{S}_1(f)$  et  $\underline{S}_2(f)$  sont donnés par :

$$\begin{cases} \underline{S}_1(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2\alpha_h(f)d_{ref}} e^{-i\frac{4\pi f d_{ref}}{c_h(f)}} \underline{R}_{h/Al} \\ \underline{S}_2(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2\alpha_h(f)(d_{ref}+\Delta d_h)} e^{-i\frac{4\pi f (d_{ref}+\Delta d_h)}{c_h(f)}} \underline{R}_{h/Al} \end{cases} \quad (1.8)$$

où  $\underline{S}_0(f)$  est le spectre du signal émis,  $\underline{R}_{h/Al}(f)$  est le coefficient de réflexion de l'aluminium vers l'huile,  $c_h(f)$  est la vitesse de phase en fonction de la fréquence et  $\alpha_h(f)$  est l'atténuation en fonction de la fréquence. La fonction de transfert  $\underline{T}(f)$  entre ces deux positions est la suivante :

$$\underline{T}(f) = \frac{\underline{S}_2(f)}{\underline{S}_1(f)} = e^{-2\alpha_h(f)\Delta d_h} e^{-i\frac{4\pi f \Delta d_h}{c_h(f)}} \quad (1.9)$$

L'argument de  $\underline{T}(f)$  correspond à la différence de phase entre les signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  et s'écrit :

$$\text{Arg}(\underline{T}(f)) = -\frac{4\pi f \Delta d_h}{c_h(f)} \quad (1.10)$$

En pratique la fonction  $\text{Arg}(\underline{T}(f))$  de l'équation (1.10) est discontinue et comprise entre  $+\pi$  et  $-\pi$ . Le déroulage de phase sur le terme discontinu  $\text{Arg}(\underline{T}(f))$  conduit à une phase  $\varphi(f)$  qui varie quasi-linéairement en fonction de la fréquence et qui s'approche d'une droite affine. Une régression linéaire de la phase déroulée permet de déterminer  $\varphi_{lin}(f) \approx \varphi(f)$ :

$$\varphi_{lin}(f) = a_0 \cdot f + 2\pi m \quad (1.11)$$

où  $a_0$  est la pente et  $+2\pi m$  est l'ordonné à l'origine, où  $m$  est un nombre entier. Le terme  $a_0.f$  correspond au déphasage entre deux signaux à  $2\pi$  près. Le nombre entier  $m$  est estimé en utilisant le temps de retard entre les deux échos  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  par corrélation [18]. Ensuite, nous pouvons calculer la phase dans la bande passante par la soustraction de  $2\pi m$  de la phase déroulée [11][12][19][20]. La vitesse ultrasonore  $c_h(f)$  s'écrit alors:

$$c_h(f) = -\frac{\varphi(f) - 2\pi m}{4\pi f \Delta d_h} \approx \frac{-a_0}{4\pi \cdot \Delta d_h} \quad (1.12)$$

L'atténuation  $\alpha_h(f)$  est calculée à partir du module de la fonction de transfert de l'équation (1.9):

$$\alpha_h(f) = -\frac{1}{2\Delta d_h} \ln(|\underline{T}(f)|) \quad (1.13)$$

## II.2 Dispersion de l'atténuation et de la vitesse de phase

L'atténuation des ultrasons peut être décomposée en trois facteurs. Le premier est l'absorption due à la conversion de l'énergie mécanique en chaleur causée par l'interaction entre l'onde acoustique et le milieu visqueux. La seconde est la divergence du faisceau du transducteur en champ lointain, directement liée au diamètre et à la fréquence centrale du transducteur. Le troisième est la diffusion de l'onde par les hétérogénéités du milieu. Dans notre étude, pour caractériser l'huile de silicone, nous avons supposé que le milieu de propagation est homogène et fluide. Nous négligeons également le phénomène de diffraction considérant que le transducteur est placé dans le champ proche [14]. L'atténuation associée au modèle de Kelvin-Voigt est proportionnelle au carré de la fréquence, mais ce modèle possède une tendance à surestimer l'atténuation. Les modèles de Maxwell et de Zener prennent en compte le temps de relaxation, mais surestiment également l'atténuation [17][21]. Pour une grande variété de matériaux (fluides visqueux, tissus viscoélastiques), l'atténuation peut être modélisée sur une largeur de bande finie par une loi puissance [12][14] de la forme suivante:

$$\alpha_h(f) = \alpha_0 f^n \quad (1.14)$$

où  $\alpha_0$  est le coefficient d'atténuation et  $n$  est un nombre réel positif entre 1 et 2.

La distribution empirique de Cole-Cole est un modèle à trois paramètres d'analyse des spectres de relaxation qui fournit des ajustements précis aux données de viscosité dynamique expérimentales pour de nombreux milieux viscoélastiques. La variation de la viscosité en fonction de la fréquence s'écrit:

$$\underline{\eta}(\omega) = \frac{\eta_0}{1 + (j\omega\tau)^{1-\beta}} \quad (1.15)$$

où  $\eta_0$  est la viscosité dynamique newtonienne à basse fréquence,  $\tau$  est le temps de relaxation et  $\beta$  (entre 0 et 1) est un facteur indicateur de la largeur de la distribution des temps de relaxation. De cette expression (équation (1.15)), on déduit (Annexe A) :

$$\alpha_h(\omega) = \frac{\eta_0 \omega^2}{2\rho c_h^3} \frac{1 + (\omega\tau)^{1-\beta} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right)}{1 + 2(\omega\tau)^{1-\beta} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right) + (\omega\tau)^{2(1-\beta)}} \quad (1.16)$$

À haute fréquence, lorsque  $\omega\tau \gg 1$ , le modèle d'atténuation Cole-Cole [17][21] s'écrit (Annexe A):

$$\alpha_h(f) \approx \frac{\eta_0 (2\pi)^{\beta+1} \tau^{\beta-1}}{2\rho c_h^3} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right) f^{\beta+1} \quad (1.17)$$

L'identification des paramètres de l'équation (1.14) avec l'équation (1.17) permet d'écrire:

$$\begin{cases} \alpha_0 \approx \frac{\eta_0 (2\pi)^{\beta+1} \tau^{\beta-1}}{2\rho c_h^3} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right) \\ n \approx \beta + 1 \end{cases} \quad (1.18)$$

Les modèles de dispersion de Szabo [15] et O'Donnell [16] sont utilisés pour relier l'évolution de la vitesse de phase et l'atténuation ultrasonore dans une gamme de fréquence. Compte tenu des relations de Kramers-Kronig [22][23] et l'hypothèse de petites variations de l'atténuation et de la vitesse de phase dans un domaine de fréquences finies, Szabo et O'Donnell obtiennent les relations suivantes entre la vitesse de phase  $c(f)$ , l'atténuation  $\alpha_0$  et le coefficient de puissance  $n$  [16][24][25]:

$$\begin{cases} \frac{1}{c(f_c)} - \frac{1}{c(f)} = \frac{\alpha_0}{\pi^2} \ln\left(\frac{f}{f_c}\right) & \text{si } n = 1 \\ \frac{1}{c(f_c)} - \frac{1}{c(f)} = \xi \cdot (f^{n-1} - f_c^{n-1}) & \text{si } n \neq 1 \end{cases} \quad (1.19)$$

où  $c(f_c)$  est la vitesse de phase à une fréquence  $f_c$  de référence et  $\xi$  est une constante définie par:

$$\begin{cases} \xi = \xi_{O'D} = \frac{\alpha_0}{\pi^2(n-1)} & \text{selon O'Donnell} \\ \xi = \xi_S = \frac{\alpha_0}{2\pi} \cot\left(\frac{(n-1)\pi}{2}\right) & \text{selon Szabo} \end{cases} \quad (1.20)$$

### II.3 Reproductibilité en incidence normale

La caractérisation ultrasonore d'un matériau composite en cours de fabrication nécessite la bonne connaissance des facteurs perturbateurs. La reproductibilité des mesures peut être perturbée par l'erreur de perpendicularité entre l'axe du transducteur et le plan du réflecteur, l'échantillonnage du signal et la sensibilité à la température. La distance théorique parcourue par une onde envoyée par un transducteur placé perpendiculairement à la normale du réflecteur est  $d_{AR,th} = 2d$  (Figure 1.2).

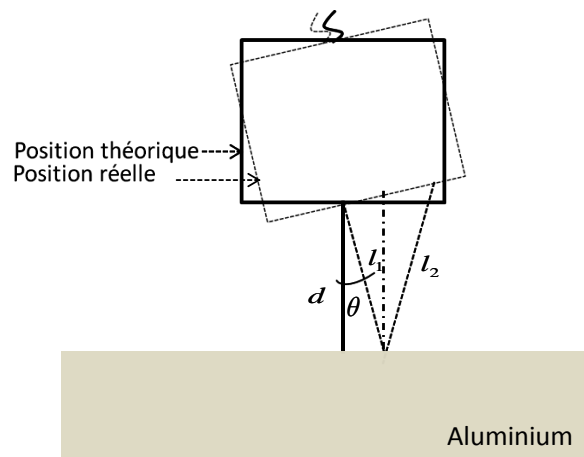


Figure 1.2: Distance effective liée à l'erreur de perpendicularité entre le transducteur et un réflecteur plan.

Si l'axe du transducteur est incliné d'un angle  $\theta$  par rapport à l'axe théorique, la distance de parcours effective de l'onde est  $d_{AR} = l_1 + l_2$ , avec  $l_1 = d / \cos(\theta)$  et  $l_2 = l_1 / \cos(2\theta)$ . L'écart entre les distances parcourues théorique  $d_{AR,th}$  et effective  $d_{AR}$  est  $\Delta d_{AR} = 2d - l_1 - l_2$  est donné par :

$$\Delta d_{AR} = d_{AR,th} - d_{AR} = 2d - \frac{d}{\cos(\theta)} - \frac{d}{\cos(\theta)\cos(2\theta)} \quad (1.21)$$

L'erreur relative de distance est définie par  $\Delta d_{AR,r} = \Delta d_{AR} / d_{AR,th}$ . Le développement quadratique de l'erreur relative de distance  $\Delta d_{AR,r}$  en zéro donne:

$$\Delta d_{AR,r} = \frac{\Delta d_{AR}}{d_{AR,th}} = 1 - \frac{1}{2\cos(\theta)} \left( 1 + \frac{1}{\cos(2\theta)} \right) \approx 1 - \frac{2(1-\theta^2)}{(2-\theta^2)(1-2\theta^2)} \quad (1.22)$$

Ainsi, l'erreur relative de mesure de distance est approximativement  $\Delta d_{AR,r} \approx \theta^2$ .

En se basant sur les considérations théoriques (Annexe B), l'erreur relative de temps peut être décomposée en deux parties, l'une  $\Delta \delta_{s,r}$  (équation (B.2)) liée à la précision de l'échantillonnage et l'autre  $\Delta \delta_{SNR,r}$  (équation (B.10)) liée au rapport signal sur bruit (SNR).

Par conséquent, l'erreur relative maximale de la vitesse ultrasonore estimée par temps de vol (équation (1.1)) est estimée par  $\Delta c_r \approx \Delta d_{AR,r} + \Delta \delta_{s,r} + \Delta \delta_{SNR,r}$ , et peut être maximisée par la relation suivante :

$$\Delta c_r \leq \theta^2 + \frac{2}{\delta t_{th} \cdot f_s} + \frac{1}{2 \cdot f_c \cdot \delta t_{th}} \quad (1.23)$$

où  $\delta t_{th}$  est le temps de retard théorique entre deux signaux,  $f_s$  est la fréquence d'échantillonnage et  $f_c$  est la fréquence centrale du transducteur. L'erreur relative maximale de l'atténuation ultrasonore (équation (1.2)) peut être évaluée à partir de l'erreur relative de distance et l'erreur relative d'amplitude liée au rapport signal sur bruit par  $\Delta \alpha_r \approx \Delta d_{rt,r} + \Delta \alpha_{SNR,r}$ , et maximisée par :

$$\Delta \alpha_r \leq \theta^2 + \frac{2}{SNR \cdot \log\left(\frac{A_1}{A_2}\right)} \quad (1.24)$$

### III Dispositif expérimental

Pour caractériser la dispersion, nous proposons un dispositif expérimental constitué d'un transducteur émetteur/récepteur placé dans une cuve d'huile et situé à une position de référence  $d_{ref}$  piloté via une translation Micro-contrôle<sup>®</sup> motorisée, permettant de le déplacer parallèlement suivant l'axe du transducteur d'une distance  $\Delta d_h$  (Figure 1.1). Les mesures ont été effectuées avec  $d_{ref} = 5$  mm et  $\Delta d_h = 6$  mm. Les signaux ultrasonores récupérés aux deux positions différentes permettent de calculer l'atténuation et la vitesse de phase et d'en déduire ensuite la viscosité [10]. Nous disposons dans notre configuration deux types d'huiles silicones Rhodorsil<sup>®</sup> de références 47V50 et 47V350. Le fabricant précise que la viscosité cinématique newtonienne est  $\nu = 50 \text{ mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  pour l'huile 47V50 à  $T_{amb} = 25^\circ\text{C}$ , avec une sensibilité par rapport à la température de  $d\nu/dT \approx 0,41 \text{ mm}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ . Pour l'huile de référence 47V350, la viscosité cinématique newtonienne est  $\nu = 350 \text{ mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  à  $T_{amb} = 25^\circ\text{C}$  avec une sensibilité par rapport à la température de  $d\nu/dT \approx 0,38 \text{ mm}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ .

Pour la caractérisation des propriétés ultrasonores, nous utilisons des transducteurs piézoélectriques monoéléments à immersion et émettant des ondes longitudinales. Afin de couvrir une large bande passante pour identifier la dispersion des paramètres acoustiques en fonction de la fréquence, nous utilisons quatre transducteurs (Olympus Panametrics<sup>®</sup>) de fréquences centrales  $f_0 = 1; 2,25; 5$  et  $7,5$  MHz. Les transducteurs utilisés ont tous un rayon actif  $a = 6,5$  mm. La vitesse longitudinale moyenne mesurée par la méthode de temps de vol

est de l'ordre de  $c_h \approx 1000 \text{ m.s}^{-1}$ . La longueur d'onde dans les huiles est  $\lambda_h \approx c_h/f_0$  et la limite de champ proche est  $L_{cp} = a^2/\lambda_h$ . Le signal d'excitation est de type burst (1 cycle à la fréquence centrale effective  $f_c$ ), obtenu à partir d'un générateur de signaux arbitraires programmable (Agilent® 33220A).

Les signaux réfléchis par le bloc d'aluminium sont acquis via un oscilloscope numérique (Yokogawa® DL9140-5G/s 1GHz) sur 125k points avec une fréquence d'échantillonnage  $f_s = 2,5 \text{ GHz}$  et moyennés sur  $N_{av} = 1024$  acquisitions afin d'améliorer le rapport signal sur bruit. La longueur du bloc d'aluminium ( $d_{Al} = 26 \text{ mm}$ ) a été choisie de façon à éviter le chevauchement des échos pour les différentes références d'huiles étudiées.

Afin d'étudier la reproductibilité des mesures en incidence normale et de tenir compte de l'erreur entre l'axe du transducteur et le plan du réflecteur, la cuve d'huile a été placée sur un système de réglage de l'orientation dans les trois directions. Le réglage de la perpendicularité est basé sur la récupération du maximum du signal.

### III.1 Techniques de mesure ultrasonore

#### III.1.1 Temps de vol

Les premiers échos d'aller-retour, désignés par  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  sont obtenus respectivement dans des positions 1 (Figure 1.3 (a)) et 2 (Figure 1.3 (b)). Les temps d'arrivée et les amplitudes ( $t_k, A_k$ ), où  $k = 1$  ou 2 sont définis par un temps caractéristique de l'écho et le maximum d'amplitude de l'écho.

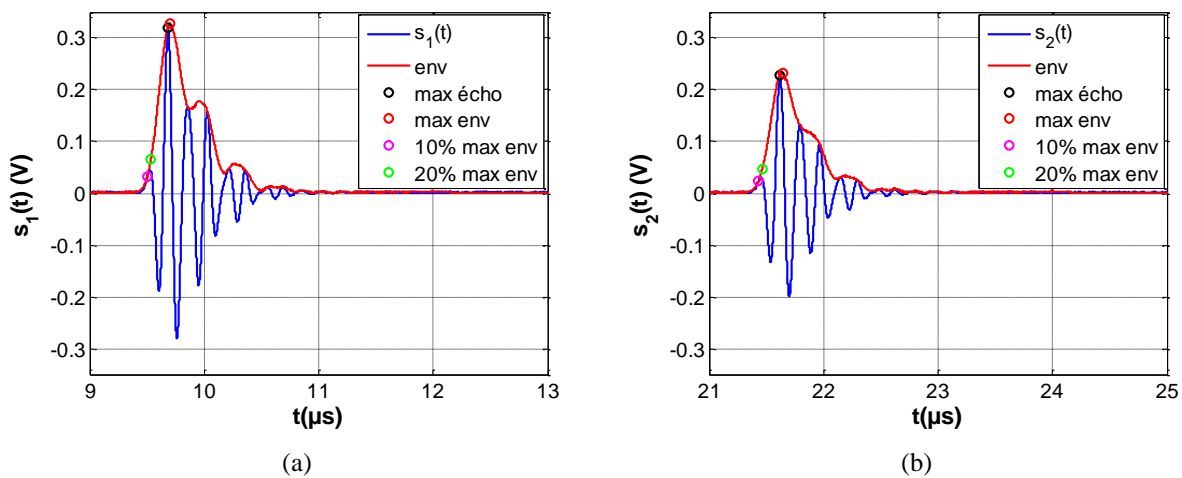


Figure 1.3: Premiers échos d'aller-retour dans l'huile silicone de référence 47V50,  $f_0 = 7,5 \text{ MHz}$  à  $T = 20^\circ\text{C}$  et les temps d'arrivée associés au maximum d'écho brut (noir), au maximum de l'enveloppe d'échos (rouge), à



10% du maximum de l'enveloppe (magenta), à 20% maximum de l'enveloppe (vert) dans la position 1 (a) et la position 2 (b).

Plus précisément, le temps d'arrivée  $t_k$  peut être défini par:  $t_{k,abs}$  le temps correspondant au maximum de l'écho brut,  $t_{k,env}$  le temps correspondant au maximum de l'enveloppe (l'équation (1.25)),  $t_{k,10}$  la date à laquelle 10 % de l'amplitude maximale de l'enveloppe est atteinte,  $t_{k,20}$  la date à laquelle 20% de l'amplitude maximale de l'enveloppe est atteinte (Figure 1.3). L'enveloppe  $e_k(t)$  de l'écho de  $s_k(t)$  est déterminée en utilisant sa transformation de Hilbert comme suit :

$$e_k(t) = env(s_k(t)) = |s_k(t) + j.Hilbert\{s_k(t)\}| \quad (1.25)$$

La vitesse ultrasonore (équation (1.1)) et l'atténuation (équation (1.2)) sont calculées sur la base de ces estimateurs. Ces résultats estimés sont associés aux transducteurs utilisés, à la fréquence centrale des transducteurs  $f_0 = 1 ; 2,25 ; 5$  et  $7,5$  MHz, fonctionnant à une fréquence du centroïde  $f_c$ , dépendant de la bande passante du spectre du transducteur considéré, soit respectivement à  $f_c = 1 ; 2,3 ; 4,5$  et  $6$  MHz. Cette fréquence du centroïde  $f_c$  correspond à l'abscisse du centre géométrique de l'aire des spectres d'allers-retours dans l'huile.

### III.1.2 Auto-corrélation

La Figure 1.4 (a) montre la fonction de corrélation normalisée  $r_{s1/s2}$  (équations (1.5) et (1.6)) entre  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ , dans le cas où l'amplitude maximale de l'enveloppe  $r_{s1/s2,max} = 0,706$  au moment  $\delta t_{cor} = 11,9 \mu s$ .

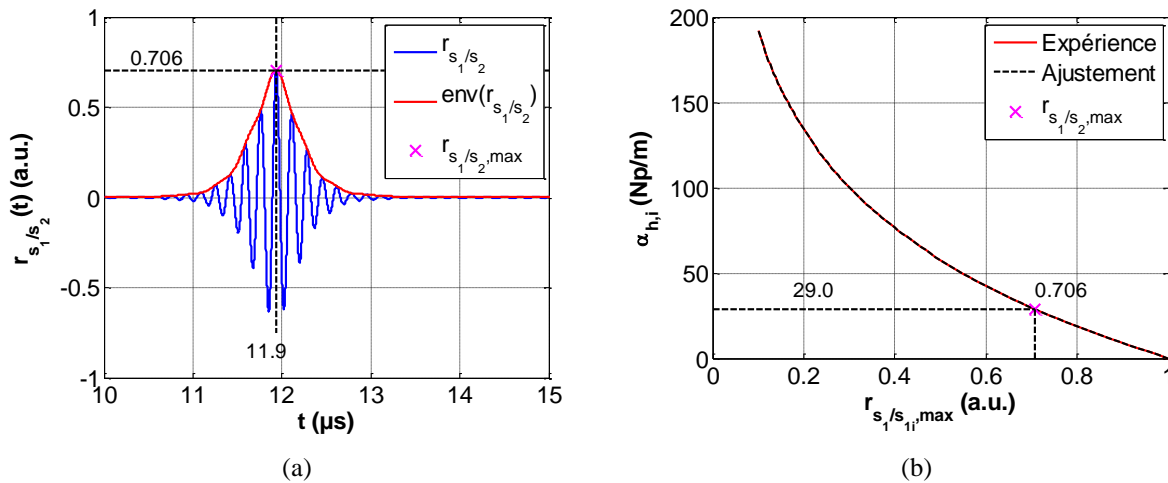


Figure 1.4: (a) Fonction d'auto-corrélation normalisée  $r_{s1/s2}$  et (b) variation de l'atténuation en fonction de la valeur maximale de l'enveloppe de la fonction d'auto-corrélation normalisée  $r_{s1/s1,max}$  pour les huiles silicone de référence 47V50 avec  $f_0 = 7.5$  MHz et  $\Delta f_{6,r} = 80\%$ .

La vitesse ultrasonore (équation (1.4)) est ainsi évaluée  $c_{h,t,cor} = 1005,6 \text{ m.s}^{-1}$ . Le Tableau 1.1 montre la vitesse ultrasonore et l'atténuation mesurée par les différentes méthodes temporelles pour les huiles de référence 47V50 et 47V350 avec un transducteur de fréquence centrale  $f_0 = 7,5 \text{ MHz}$  à la température ambiante  $T_{amb} = 20^\circ\text{C}$ .

Tableau 1.1: Vitesses ultrasonores  $c_{h,t}$  ( $\text{m.s}^{-1}$ ) et atténuations  $\alpha_{h,t}$  ( $\text{Np.m}^{-1}$ ) mesurées avec les différents estimateurs pour les huiles silicone de référence 47V50 et 47V350,  $f_0 = 7,5\text{MHz}$  à la température ambiante  $T_{amb} = 20^\circ\text{C}$ .

Méthode	Echo brut	Enveloppe	Seuil 10%	à 20%	Seuil 10%	à 20%	Auto-correlation	Erreur absolue	Erreur relative
47V50	$c_{h,t}$ ( $\text{m.s}^{-1}$ )	1005,4	1004,6	1006,1	1006,0	1005,6		1,5	0,15%
	$\alpha_{h,t}$ ( $\text{Np.m}^{-1}$ )	27,8	28,4	–	–	29,0		1,2	4,32%
47V350	$c_{h,t}$ ( $\text{m.s}^{-1}$ )	1015,8	1015,2	1016,9	1016,5	1016,0		1,7	0,17%
	$\alpha_{h,t}$ ( $\text{Np.m}^{-1}$ )	33,9	34,4	–	–	35,0		1,1	3,24%

Il est observé que la vitesse et l'atténuation ultrasonores à température ambiante sont plus élevées pour l'huile de référence 47V350 que pour la référence 47V50 (soit une augmentation avec la viscosité). L'erreur relative pour les différentes méthodes temporelles et pour les deux références d'huiles ne dépasse pas 0,2% pour la vitesse ultrasonore et est de l'ordre de 4,5% pour l'atténuation.

### III.1.3 Méthode spectrale

La Figure 1.5 représente la vitesse de phase (équation (1.12)) et l'atténuation (équation (1.13)) qui sont calculées par la méthode spectrale dans une bande de fréquence comprise entre 4 MHz et 10 MHz, avec un transducteur à  $f_0 = 7,5 \text{ MHz}$  fonctionnant à une fréquence du centroïde  $f_c = 6,0 \text{ MHz}$ . La comparaison entre les méthodes temporelles et spectrales pour les deux huiles de références 47V50 (Figure 1.5 (a) et (b)) et 47V350 (Figure 1.5 (c) et (d)) montre que l'erreur relative absolue maximale est de 0,12% pour la vitesse de phase et est d'environ 9% pour l'atténuation.

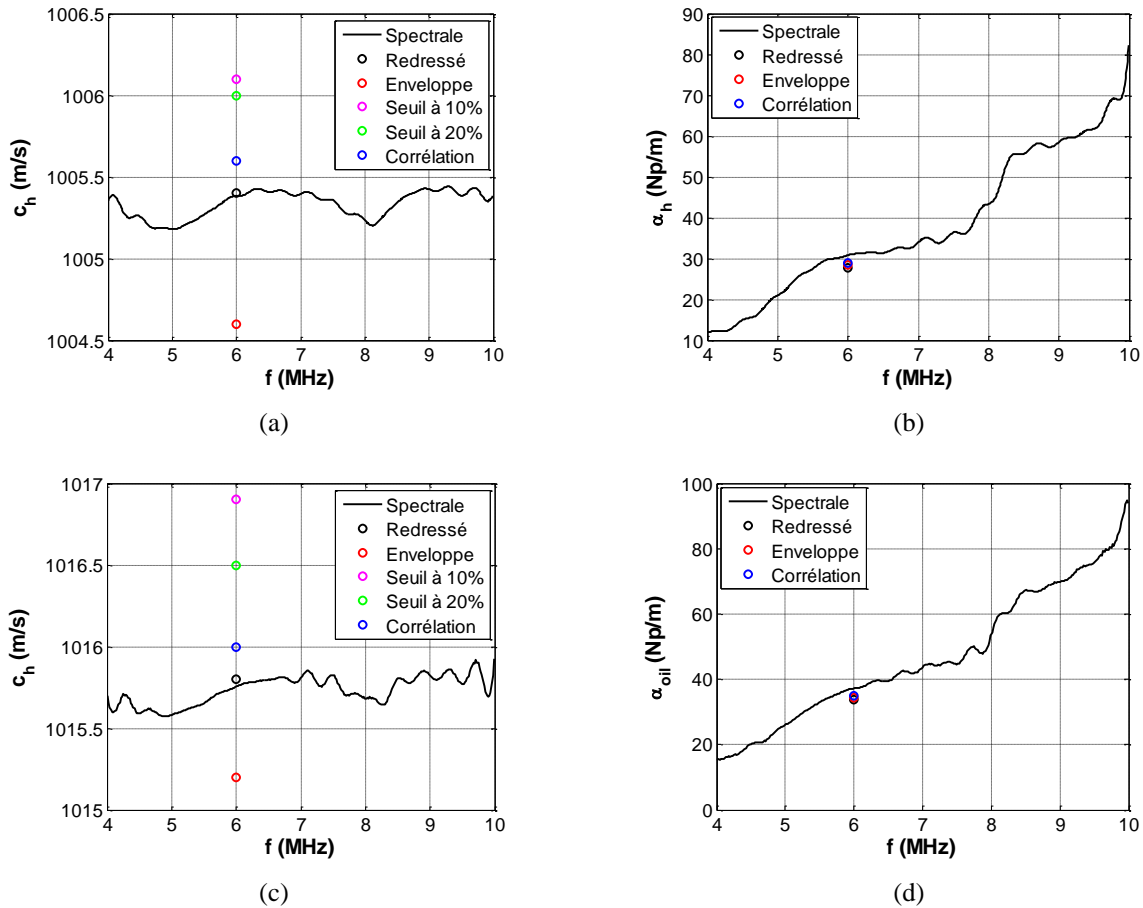


Figure 1.5: Caractérisation expérimentale par la méthode spectrale et comparaison avec les méthodes temporelles à  $f_0 = 7,5$  MHz et  $T_{amb} = 20^\circ\text{C}$ : (a), (c) vitesse de phase  $c_{h,f}$  ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) et (b), (d) l'atténuation  $\alpha_{h,f}$  ( $\text{Np}\cdot\text{m}^{-1}$ ) pour les huiles silicone de référence (a), (b) 47V50 et (c), (d) 47V350.

## IV Reproductibilité et estimation des facteurs perturbateurs

### IV.1.1 Validation de l'approche théorique

Afin d'estimer l'erreur de perpendicularité, une gamme de quinze mesures ont été exécutées avec la même configuration expérimentale et à la même température. Pour chaque mesure, l'orientation du transducteur est changée par rapport au réflecteur et un réglage de perpendicularité est à nouveau effectué. La Figure 1.6 (a) montre l'erreur sur la vitesse de phase causée par les facteurs perturbateurs pour l'huile de référence 47V50. La Figure 1.6 (b) montre l'erreur sur l'atténuation ultrasonore sur la même référence d'huile. Les mesures sont faites avec un transducteur de fréquence centrale  $f_0 = 7,5$  MHz à  $T = 20^\circ\text{C}$ .

L'erreur absolue de vitesse de phase et de l'atténuation sont évaluées respectivement à  $\Delta c_h \approx 2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $\Delta \alpha_h \approx 1,62 \text{ Np}\cdot\text{m}^{-1}$ . Pour confirmer l'approche théorique développée dans la

partie II.3, ces barres d'erreur peuvent être comparées à celles estimées sur la base des sources d'erreurs (équation (1.23)), c'est-à-dire  $\Delta c_r \approx \Delta d_{rt,r} + \Delta \delta_{s,r} + \Delta \delta_{SNR,r}$ . Dans notre configuration expérimentale, nous avons évalué  $\Delta c_r \approx 0,1\%$ . Les erreurs relatives de temps liées à l'échantillonnage et le rapport signal sur bruit sont respectivement  $\Delta \delta_{s,r} \approx 6,67.10^{-3}\%$  et  $\Delta \delta_{SNR,r} \approx 8,81.10^{-2}\%$  (Annexe B). Il en résulte une erreur relative de distance  $\Delta d_{rt,r} \approx 5,2.10^{-3}\%$  et par la suite une déviation angulaire  $\theta \approx 7,2 \text{ mrad} \approx 0,41^\circ$ . L'erreur relative de l'atténuation (équation (1.24)) est ensuite calculée avec  $A_1/A_2 \approx 1,46$  et  $SNR \approx 100$ , c'est-à-dire  $\Delta \alpha_r \approx 5,29\%$ . La Figure 1.6 (b) montre la comparaison entre l'erreur relative expérimentale de l'atténuation et le critère analytique calculé à partir de l'équation (1.24). L'erreur relative de l'atténuation expérimentale est inférieure à  $\Delta \alpha_r$  entre 3,5 and 10 MHz. Entre 2 et 3,5 MHz, l'erreur expérimentale de l'atténuation est supérieure à l'erreur d'atténuation évaluée  $\Delta \alpha_r$  et la tendance de la loi de puissance sous-estime les valeurs expérimentales.

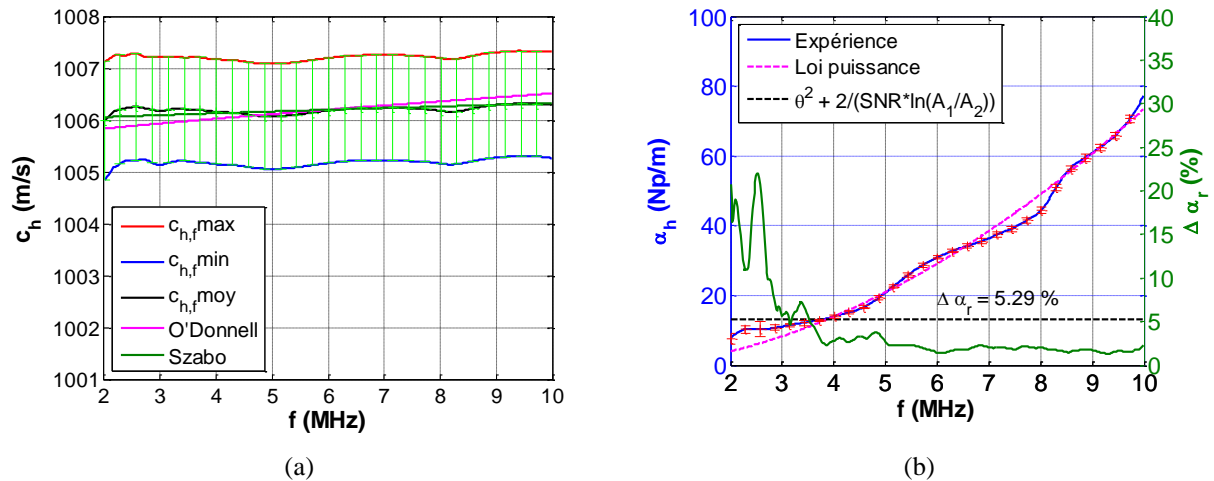


Figure 1.6: Résultats de reproductibilité obtenus sur 15 mesures pour l'huile de référence 47V50, à  $f_0 = 7,5$  MHz avec  $T_{amb} = 20^\circ\text{C}$ : (a) vitesse de phase  $c_h$  ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) comparée avec les modèles d'O'Donnell (magenta) et Szabo (vert); (b) dispersion moyenne de l'atténuation  $\alpha_h$  ( $\text{Np}\cdot\text{m}^{-1}$ ), loi puissance associée (magenta); et erreur relative de l'atténuation mesurée (vert).

#### IV.1.2 Modélisation de la dispersion en fréquence

Dans notre huile de référence 47V50, l'ajustement de la dispersion de l'atténuation expérimentale avec une loi de puissance (équation (1.26)) donne un ensemble de paramètres  $\alpha_0 \approx 15,7.10^{-12} \text{ Np}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{Hz}^{-n}$  et  $n \approx 1,81$  (Figure 1.6 (b)). Ensuite, les modèles de dispersion de Szabo et O'Donnell (équations (1.27) et (1.28)) sont identifiés (Figure 1.6 (a)) en utilisant les

paramètres  $(\alpha_0, n)$  identifiés pour la dispersion de la loi de puissance de l'atténuation (Figure 1.6 (b)). Ceci implique le choix d'une fréquence centrale  $f_c = 6$  MHz et une vitesse à cette fréquence centrale  $c(f_c) = 1006,2 \text{ m.s}^{-1}$ :

$$\alpha_{47V50}(f) \approx 15,7 \cdot 10^{-12} f^{1,81} \quad (1.26)$$

$$\text{et } \begin{cases} c_{O'D}(f) = \left( \frac{1}{1006,2} - \frac{15,7 \cdot 10^{-12}}{0,81 \times \pi^2} \cdot (f^{0,81} - (6 \cdot 10^6)^{0,81}) \right)^{-1} \\ c_S(f) = \left( \frac{1}{1006,2} - \frac{15,7 \cdot 10^{-12}}{2\pi} \cot\left(0,81 \frac{\pi}{2}\right) \cdot (f^{0,81} - (6 \cdot 10^6)^{0,81}) \right)^{-1} \end{cases} \quad (1.27)$$

Ces lois de dispersion de vitesse peuvent être ajustées par une régression linéaire dans la bande passante du transducteur, c'est-à-dire environ  $f_c = 6$  MHz de  $f = 2$  à  $10$  MHz:

$$\begin{cases} c_{O'D}(f) \approx 1006,2 + \frac{f - f_c}{4 \cdot 10^6} \times 0,33 \\ c_S(f) \approx 1006,2 + \frac{f - f_c}{4 \cdot 10^6} \times 0,12 \end{cases} \quad (1.28)$$

On observe que les modèles de dispersion de vitesse de phase sont à l'intérieur des barres d'erreur de la reproductibilité.

## V Dispersion de l'atténuation avec plusieurs transducteurs

Comme illustré sur la Figure 1.7, la vitesse et l'atténuation ultrasonores ont été mesurées à la température ambiante  $T_{amb} = 20^\circ\text{C}$  en utilisant plusieurs méthodes pour les huiles de référence 47V50 et 47V350. Ces caractéristiques sont évaluées par les différents transducteurs ayant des fréquences centrales à  $f_0 = 1 ; 2,25 ; 5$  et  $7,5$  MHz, et à des fréquences du centroïde respectivement  $f_c = 1 ; 2,3 ; 4,5$  et  $6$  MHz. Les tendances de la courbe sont en accord avec celles observées précédemment (Figure 1.5 et Figure 1.6). Les erreurs entre les différentes méthodes sont généralement liées aux distorsions d'échos et au type de matériau. Cette différence étant plus importante pour les matériaux dissipatifs. Dans notre cas, les échos ne sont pas déformés, ce qui explique la faible erreur entre les différentes méthodes. Comme illustré sur la Figure 1.7, les résultats donnés par les différents estimateurs sont en accord pour les deux références d'huiles 47V50 et 47V350. Ces résultats sont résumés dans le Tableau 1.1. La variation de température et l'écart angulaire entre le faisceau acoustique et le réflecteur peuvent expliquer les sources d'erreur au cours des mesures.

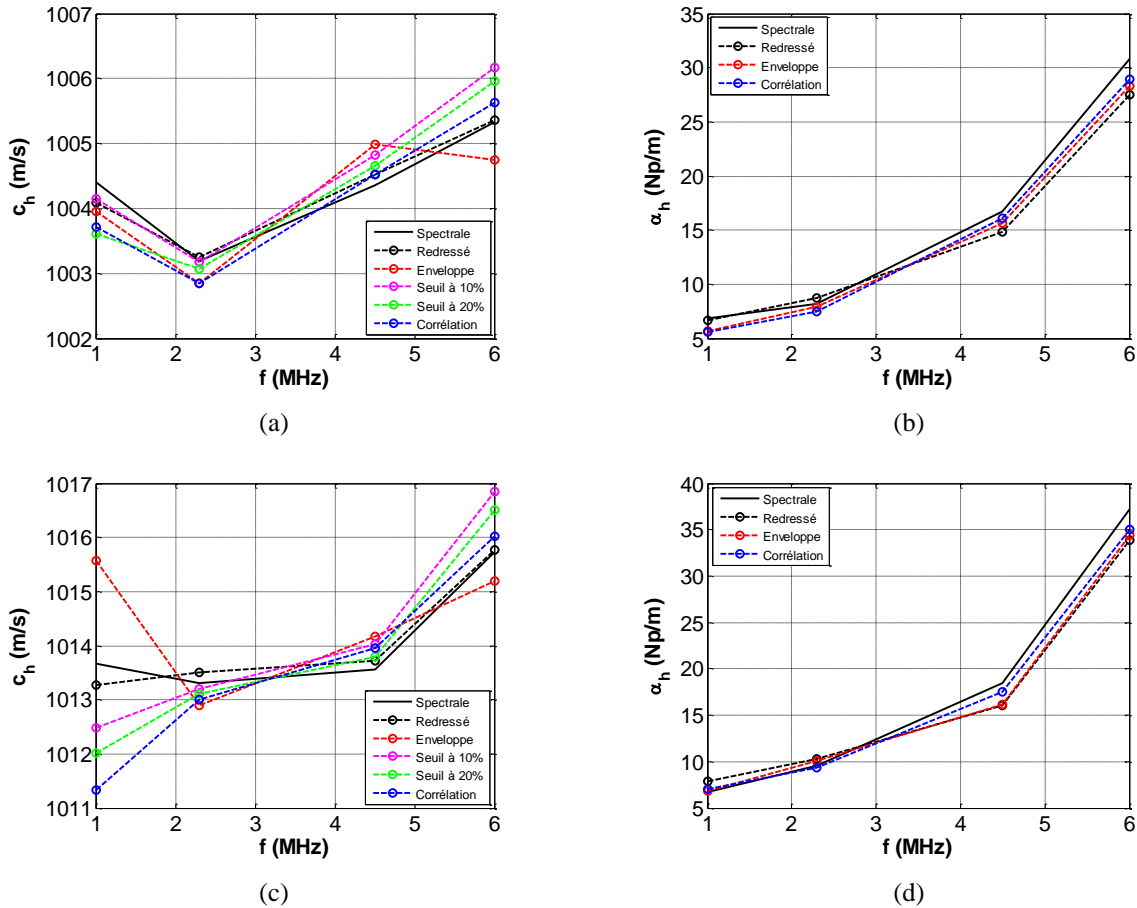


Figure 1.7: (a), (c) Vitesse de phase  $c_{h,t}$  ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ); (b), (d) et atténuation  $\alpha_{h,t}$  ( $\text{Np}\cdot\text{m}^{-1}$ ) mesurées par les différentes méthodes pour les huiles silicone de référence (a), (b) 47V50; (c), (d) 47V350, en utilisant des transducteurs à des fréquences du centroïde respectivement  $f_c = 1 ; 2,3 ; 4,5$  et 6 MHz, à la température ambiante  $T_{amb} = 20^\circ\text{C}$ .

La dispersion de l'atténuation est calculée avec les différents transducteurs décrits précédemment en utilisant la méthode spectrale (équation (1.13)) pour les références d'huiles 47V50 (Figure 1.8 (a)) et 47V350 (Figure 1.8 (b)). Ces résultats sont en bon accord et correspondent à une tendance en loi puissance. Ainsi, le modèle en loi de puissance (équation (1.14)) est ajusté avec les données expérimentales. Ce modèle est capable d'estimer la tendance de l'atténuation à haute fréquence. A basse fréquence, la loi puissance sous-estime l'atténuation, au-dessous de 3 et 2 MHz pour les deux types de références d'huile, respectivement 47V50 et 47V350. A une fréquence plus élevée, la loi puissance est plus appropriée. Lorsque la viscosité diminue,  $n$  tend vers 2 et le modèle de loi puissance est équivalent au modèle de Kelvin-Voigt.

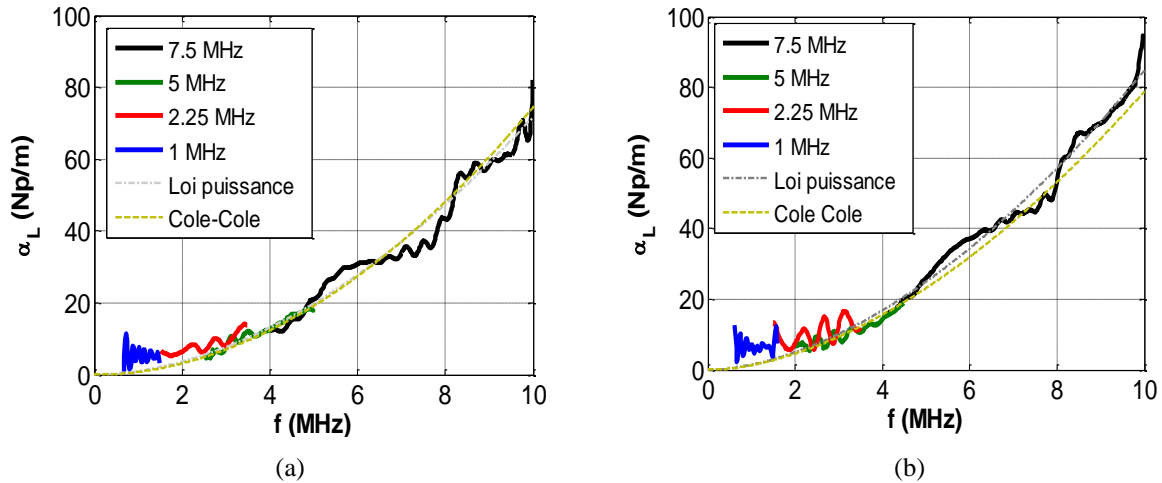


Figure 1.8: Caractérisation expérimentale du spectre de l'atténuation  $\alpha_{h,f}$  ( $\text{Np.m}^{-1}$ ) pour les deux références d'huiles silicone (a) 47V50 et (b) 47V350, en utilisant des transducteurs avec des fréquences centrales  $f_0 = 7,5, 5, 2,25$  et  $1$  MHz et les modèles puissance et Cole-Cole associées, à la température ambiante  $T_{amb} = 20^\circ\text{C}$ .

D'autre part, le modèle Cole-Cole (équation (1.15)) peut également modéliser la dispersion de l'atténuation. Les paramètres du modèle Cole-Cole sont identifiés en utilisant la méthode des moindres carrés sur les résultats expérimentaux (Figure 1.8). Les paramètres d'ajustement de la loi puissance et le modèle Cole-Cole pour les références 47V50 et 47V350 sont résumés dans le Tableau 1.2. La viscosité dynamique newtonienne  $\eta_0$  et les temps de relaxation  $\tau$  augmentent avec la viscosité. Le temps de relaxation confirme que  $\omega\tau \approx 10^3 \gg 1$ , ce qui valide l'équation (1.17).

Tableau 1.2: Paramètres d'ajustements pour les modèles Cole-Cole et le modèle puissance pour les deux références d'huiles silicone 47V50 et 47V350.

	Cole-Cole			Loi puissance	
	$\eta_0$ (mPa.s)	$\tau$ ( $\mu\text{s}$ )	$\beta$	$\alpha_0$ ( $10^{-12}$ $\text{Np.m}^{-1}.\text{Hz}^{-n}$ )	$n$
47V50	51	0,23	1,33	15,7	1,81
47V350	349	1,61	0,60	38,0	1,71

## VI Sensibilité à la température

Après avoir étudié les facteurs de perturbation géométrique (perpendicularité) et instrumentale (échantillonnage, SNR), nous nous intéressons maintenant à l'étude de la sensibilité en température. La dépendance en température de la vitesse de phase d'une résine

époxy a été mesurée par Wada et Yamamoto [26]. Une correction en fonction de la température est proposée par extrapolation de celle obtenue pour le module d'Young [27][28] à la viscosité [29]. La sensibilité à la température peut être écrite sous une forme exponentielle, la loi dite d'Arrhenius [9][10]:

$$c_{th,T}(T_K) = c_{h,T_{amb}} e^{B \left( \frac{1}{T_K} - \frac{1}{T_{amb,K}} \right)} \quad (1.29)$$

où  $T_K$  (°K) =  $T$  (°C) +  $T_0$  est la température de la référence d'huile 47V50 au cours du refroidissement, avec  $T_0 = 273$ °C, et  $T_{amb,K} = T_{amb}$  (°C) + 273 = 296 K, est la température ambiante, et  $B$  (°K) est une constante.

Afin d'étudier l'influence de la température, la vitesse de phase a été mesurée au cours d'un refroidissement de la référence d'huile 47V50 entre 22°C et 40°C. La température est mesurée à l'aide d'une sonde Pt100 associée à une instrumentation spécifique. Les variations des résultats expérimentaux peuvent être expliquées par la précision de l'instrumentation Pt100. Comme illustré par la Figure 1.9, un ajustement de la loi d'Arrhénius (équation (1.29)) avec les résultats expérimentaux donne deux constantes:  $c_{h,T_{amb}} = 998 \text{ m.s}^{-1}$  avec  $T_{amb} = 23$ °C et  $B = 197 \text{ K}$ . Pour les petites variations de température, la sensibilité de la vitesse de phase est quasi-linéaire par rapport à la température. Par conséquent, un ajustement des mesures expérimentales peut être obtenu par linéarisation (Annexe C) de la formule d'Arrhenius (équation (1.29)) et donne:

$$c_{h,T,lin}(T) \approx 1044 - 2.T \quad (1.30)$$

où  $T$  (°C) est la température de l'huile pendant le refroidissement, dans la plage de 22 à 40°C. Selon cette forme linéaire, la dérivée de la vitesse de phase par rapport à la température  $dc_{h,T,lin}/dT$  est constante et négative dans l'intervalle de 22 à 40°C. En conséquence, cette dérivée  $dc_{h,T}/dT$  autour de la température ambiante  $T_{amb} = 23$ °C peut être développée sur la base de la formule d'Arrhenius (équation (1.29)):

$$\frac{dc_{th,T}}{dT} = c_{h,T_{amb}} \cdot e^{-\frac{B}{T_{amb,K}}} \cdot \left( -\frac{B}{T_K^2} \right) \cdot e^{+\frac{B}{T_K}} \approx -\frac{c_{h,T_{amb}} \cdot B}{T_K^2} \cdot e^{B \left( \frac{T_{amb}-T}{T_0^2} \right)} \approx -\frac{c_{h,T_{amb}} \cdot B}{T_K^2} \quad (1.31)$$

La dérivée de la vitesse de phase par rapport à la température  $dc_{h,T}/dT$  apparaît à peu près constante et négative (Figure 1.9). Elle peut être exprimée en fonction de la variation de température par rapport à la température ambiante de  $\Delta T = T - T_{amb}$ . A titre d'illustration, une augmentation de la température  $\Delta T = +1 \text{ K}$  implique une diminution de



$dc_{h,T}/dT \approx -2 \text{ m.s}^{-1}.\text{K}^{-1}$  par rapport à la vitesse de phase, c'est-à-dire  $\Delta c_{h,T}/\Delta T \approx -2 \text{ m.s}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour la référence d'huile 47V50.

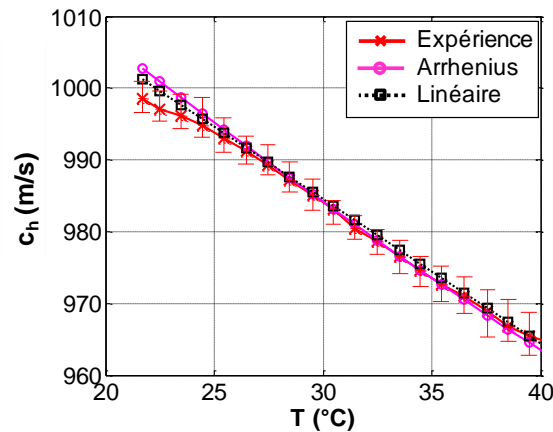


Figure 1.9: Variation de la vitesse ultrasonore avec la température pour l'huile silicone de référence 47V50, avec  $f_0 = 5 \text{ MHz}$  et entre  $T = 21$  à  $40^\circ\text{C}$  : expérience, loi d'Arrhenius (équation (1.29)) et ajustement linéaire (équation (1.30)).

## VII Conclusion

Dans le but d'obtenir des mesures ultrasonores précises et reproductibles, un dispositif expérimental a été mis au point, afin de caractériser la vitesse de phase et l'atténuation ultrasonore d'un liquide visqueux sur une large gamme de fréquence. Plusieurs méthodes d'estimation ont été comparées. Une nouvelle technique de mesure de l'atténuation a été proposée par l'auto-corrélation des signaux. Une approche analytique qui tient compte de la perpendicularité du faisceau acoustique avec le réflecteur, de l'erreur temporelle et de l'erreur d'amplitude a été proposée et validée expérimentalement. A partir de l'erreur relative de la vitesse de phase, l'écart angulaire  $\theta$  en incidence normale entre le réflecteur plan et le faisceau acoustique est calculé. La connaissance de l'écart angulaire  $\theta$  permet d'estimer ensuite l'erreur relative d'atténuation et de la comparer avec les valeurs expérimentales. L'identification de l'atténuation avec une loi puissance permet d'estimer la dispersion de l'atténuation en relation avec la dispersion de vitesse de phase.

Les paramètres ultrasonores sont ensuite mesurés à température ambiante en utilisant plusieurs méthodes et plusieurs transducteurs de fréquences centrales différentes. Les résultats d'atténuation spectrale obtenus pour plusieurs transducteurs de fréquence centrale sont en bon accord et ont une tendance en loi puissance. Les paramètres du modèle puissance et Cole-Cole

sont identifiés avec les courbes expérimentales. Les relations entre le modèle empirique Cole-Cole et la loi de puissance à haute fréquence sont vérifiées expérimentalement.

La température constitue un facteur perturbateur influant sur les mesures de vitesse de phase. Sur les huiles silicones étudiées, la sensibilité à la température a été évaluée à  $dc_h/dT \approx -2 \text{ m.s}^{-1}.\text{K}^{-1}$  entre  $T = 21$  à  $40^\circ\text{C}$ .

## VIII Références

- [1] Y. Gélébart, «Evaluation non destructive par ultrasons du vieillissement thermique d'une structure composite,» Thèse, Université du Havre, 2007.
- [2] A. El Mouhtadi, «Caractérisation ultrasonore de plaques viscoélastiques homogènes et composites,» Thèse, Université du Havre, 2011.
- [3] S. Rokhlin, D. Lewis, K. Graff et A. Laszlo, «Real-time study of frequency dependence of attenuation and velocity of ultrasonic waves during the curing reaction of epoxy resin,» *Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 79, pp. 1786-1793, 1986.
- [4] A. Maffezzoli, E. Quarta, V. A. M. Luprano, G. Montagna et L. Nicolais, «Cure monitoring of epoxy matrices for composites by ultrasonic wave propagation,» *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 73, n°110, pp. 1969-1977, 1999.
- [5] M. Rath, J. Döring, W. Stark et G. Hinrichsen, «Process monitoring of moulding compounds by ultrasonic measurements in a compression mould,» *NDT & E International*, vol. 33, n°12, pp. 123-130, 2000.
- [6] J. Mc Hugh, «Ultrasound technique for the Dynamic Mechanical Analysis (DMA) of polymers,» Ph.D thesis, Berlin Techn. University, 2007.
- [7] R. Challis, R. Freemantle, R. Cocker, D. Chadwick, D. Dare, C. Martin, A. Mahendrasingam et W. Fuller, «Ultrasonic measurements related to evolution of structure in curing epoxy resins,» *Plastics, Rubber and Composites*, vol. 29, n°13, pp. 109-118, 2000.
- [8] F. Lionetto et A. Maffezzoli, «Monitoring the cure state of thermosetting resins by ultrasound,» *Materials*, vol. 6, n°19, pp. 3783-3804, 2013.
- [9] N. Samet, E. Ndiaye, P. Marechal et H. Duflo, «Polymerization monitoring using ultrasound,» *13th International Symposium on Nondestructive Characterization of Materials (NDCM-XIII)*, 2013.
- [10] N. Samet, «Evaluation ultrasonore des propriétés d'une résine et détection de porosité à l'aide d'un transducteur multiéléments. Application aux matériaux composites au cours de fabrication,» Thèse, Université du Havre, 2012.

- [11] H. Jeong et D. Hsu, «Experimental analysis of porosity-induced ultrasonic attenuation and velocity change in carbon composites,» *Ultrasonics*, vol. 33, n°13, pp. 195-203, 1995.
- [12] P. He, «Experimental verification of models for determining dispersion from attenuation,» *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelect. Freq. Control*, vol. 46, n°13, pp. 706-714, 1999.
- [13] B. E. Treeby et B. T. Cox, «Modeling power law absorption and dispersion for acoustic propagation using the fractional Laplacian,» *Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 127, n°15, pp. 2741-2748, 2010.
- [14] N. Samet, P. Maréchal et H. Duflo, «Ultrasonic characterization of a fluid layer using a broadband transducer,» *Ultrasonics*, vol. 52, n°13, pp. 427-434, 2012.
- [15] T. Szabo, «Causal theories and data for acoustic attenuation obeying a frequency power law,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 97, n°11, pp. 14-24, 1995.
- [16] M. O'Donnell, E. Jaynes et J. Miller, «Kramers-Kronig relationship between ultrasonic attenuation and phase velocity,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 69, pp. 696-701, 1981.
- [17] R. E. Challis, F. Blarel, M. E. Unwin et X. Guo, «On the Modelling of Ultrasonic Bulk Wave Propagation in Epoxies,» *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 269, n°11, p. 012001, 2011.
- [18] F. Peters, «A broad band spectroscopy method for ultrasound wave velocity and attenuation measurement in dispersive media,» *Ultrasonics*, vol. 41, pp. 357-363, 2003.
- [19] W. Sache et Y. Pao, «On the determination of phase and group velocities of dispersive waves in solids, J.Appl.Phys,» *J. Appl. Phys.*, vol. 49, pp. 4320-4327, 1978.
- [20] J. Mobley, «Broadband measurements of phase velocity in Alunex suspensions,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 103, n°14, pp. 2145-2153, 1998.
- [21] R. Challis, F. Blarel, M. Unwin, J. Paul et X. Guo, «Models of ultrasonic wave propagation in epoxy materials,» *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control*, vol. 56, n°16, pp. 1225-1237, 2009.
- [22] K. R. Waters, M. S. Hughes, J. Mobley et J. G. Miller, «Differential forms of the Kramers-Krönig dispersion relations.,» *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control*, vol. 50, n°11, pp. 68-76, 2003.

- [23] K. R. Waters, J. Mobley et J. G. Miller, «Causality-imposed (Kramers-Kronig) relationships between attenuation and dispersion.,» *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control*, vol. 52, n°15, pp. 822-833, 2005.
- [24] A. El Mouhtadi, J. Duclos et H. Duflo, «Simultaneous determination of physical and acoustical properties of a homogeneous plate in air,» *IEEE International Ultrasonics Symposium (IUS)*, 2009.
- [25] A. El Mouhtadi, J. Duclos et H. Duflo, «Ultrasonic modeling of a viscoelastic homogeneous plate,» *Acoustics 2012 Nantes*, 2012.
- [26] Y. Wada et K. Yamamoto, «Temperature dependence of velocity and attenuation of ultrasonic waves in high polymer,» *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 11, n°18, pp. 887-892, 1956.
- [27] R. Bruls, H. Hintzen, G. deWith et R. Metselaar, «The temperature dependence of the Young's modulus of MgSiN<sub>2</sub>, AlN and Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>,» *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 21, n°13, pp. 263-268, 2001.
- [28] J. B. Wachtman, W. E. Tefft, D. G. Lam et C. S. Apstein, «Exponential temperature dependence of Young's modulus for several oxides,» *Physical Review*, vol. 122, pp. 1754-1759, 1961.
- [29] Q. Fontana, «Viscosity: thermal history treatment in resin transfer moulding process modelling,» *Composites Part A*, vol. 29, n°11-2, pp. 153-158, 1998.
- [30] S. R. White, P. T. Mather et M. J. Smith, «Characterization of the cure-state of DGEBA-DDS epoxy using ultrasonic, dynamic mechanical, and thermal probes,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 42, n°11, pp. 51-67, 2002.
- [31] J. Wan, C. Li, Z.-Y. Bu, C.-J. Xu, B.-G. Li et H. Fan, «A comparative study of epoxy resin cured with a linear diamine and a branched polyamine,» *Chemical Engineering Journal*, vol. 188, n°10, pp. 160-172, 2012.
- [32] S. Sourour et M. Kamal, «Differential scanning calorimetry of epoxy cure: isothermal cure kinetics,» *Thermochimica Acta*, vol. 14, n°11-2, pp. 41-59, 1976.
- [33] D. Sidebottom, «Ultrasonic measurements of an epoxy resin near its sol-gel transition,» *Phys. Rev. E*, vol. 48, pp. 391-399, 1993.
- [34] E. Schmachtenberg, J. S. zur Heide et J. Töpker, «Application of ultrasonics for the process control of Resin Transfer Moulding (RTM),» *Polymer Testing*, vol. 24, n°13, pp. 330-338, 2005.

- [35] R. B. Prime, «Differential scanning calorimetry of the epoxy cure reaction,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 13, n°15, pp. 365-371, 1973.
- [36] V. J. Pinfield, R. E. Challis et R. A. Smith, «A comparison of stochastic and effective medium approaches to the backscattered signal from a porous layer in a solid matrix,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 130, n°11, pp. 122-134, 2011.
- [37] C. Paris, «Étude et modélisation de la polymérisation dynamique de composites à matrice thermodurcissable,» Thèse, Institut national polytechnique de Toulouse, 2011
- [38] E. P. Papadakis, «Monitoring the moduli of polymers with ultrasound,» *Journal of Applied Physics*, vol. 45, n°13, pp. 1218-1222, 1974.
- [39] D. Nicoletti, N. Bilgutay et B. Onaral, «Power-law relationships between the dependence of ultrasonic attenuation on wavelength and the grain size distribution,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 91, n°16, pp. 3278-3284, 1992.
- [40] D. Nicoletti et D. Kasper, «Ultrasonic attenuation based on the Roney generalized theory and multiple power-law grain-size distributions,» *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelect. Freq. Control*, vol. 41, n°11, pp. 144-149, 1994.
- [41] M. Naffakh, M. Dumon et J. F. Gerard, «Study of a reactive epoxy-amine resin enabling in situ dissolution of thermoplastic films during resin transfer moulding for toughening composites,» *Composites Science and Technology*, vol. 66, n°110, pp. 1376-1384, 2006.
- [42] J. Mc Hugh, P. Fideu, A. Herrmann et W. Stark, «Determination and review of specific heat capacity measurements during isothermal cure of an epoxy using TM-DSC and standard DSC techniques,» *Polymer Testing*, vol. 29, n°16, pp. 759-765, 2010.
- [43] M. Matsukawa et I. Nagai, «Ultrasonic characterization of a polymerizing epoxy resin with imbalanced stoichiometry,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 99, n°14, pp. 2110-2115, 1996.
- [44] F. Lionetto et A. Maffezzoli, «Relaxations during the postcure of unsaturated polyester networks by ultrasonic wave propagation, dynamic mechanical analysis, and dielectric analysis,» *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, vol. 43, n°15, pp. 596-602, 2005.
- [45] F. Lionetto, R. Rizzo, V. Luprano et M. A., «Phase transformations during the cure of unsaturated polyester resins,» *Materials Science and Engineering A*, vol. 370, pp. 284-287, 2004.
- [46] A. Lindrose, «Ultrasonic wave and moduli changes in a curing epoxy resin,» *Experimental Mechanics*, vol. 18, n°16, pp. 227-232, 1978.

- [47] M. R. Kamal, «Thermoset characterization for moldability analysis,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 14, n°13, pp. 231-239, 1974.
- [48] R. Hardis, J. L. Jessop, F. E. Peters et M. R. Kessler, «Cure kinetics characterization and monitoring of an epoxy resin using DSC, Raman spectroscopy, and DEA,» *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 49, n°10, pp. 100-108, 2013.
- [49] B. Faiz, G. Maze, D. Decultot, A. Moudden, E. Aassif et M. Ezzaidi, «Ultrasonic characterization of the quality of an epoxy resin polymerization,» *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelect. Freq. Control*, vol. 46, n°11, pp. 188-196, Jan 1999.
- [50] F. Dimier, «Injection de systèmes réactifs : détermination de lois cinétiques et rhéologiques et modélisation,» Thèse, École nationale supérieure des mines de Paris, 2003.
- [51] I. Daniel, S. Wooh et I. Komsky, «Quantitative porosity characterization of composite materials by means of ultrasonic attenuation measurements,» *Journal of Nondestructive Evaluation*, vol. 11, n°11, pp. 1-8, 1992.
- [52] R. Challis, T. Alper, R. Cocker, A. Holmes et J. White, «Ultrasonic absorption and velocity dispersion measurements in thin adhesive layers,» *Ultrasonics*, vol. 29, n°11, pp. 22-28, 1991.
- [53] R. E. Challis, R. J. Freemantle, R. P. Cocker, D. L. Chadwick, D. J. Dare, C. Martin, A. Mahendrasingam et W. Fuller, «Ultrasonic measurements related to evolution of structure in curing epoxy resins,» *Plastics, Rubber and Composites*, vol. 29, n°13, pp. 109-118, 2000.
- [54] J. Conoir, La diffusion acoustique, P. CEDOCAR, Éd., Gespa, N., 1987.
- [55] P. Maréchal, L. Haumesser, L. P. Tran-Huu-Hue, J. Holc, D. Kuscer, M. Lethiecq et G. Feuillard, «Modeling of a high frequency ultrasonic transducer using periodic structures,» *Ultrasonics*, vol. 48, n°1141-149, p. 2, 2008.
- [56] A. Khaled, P. Maréchal, O. Lenoir, M. E.-C. El-Kettani et D. Chenouni, «Study of the resonances of periodic plane media immersed in water: Theory and experiment,» *Ultrasonics*, vol. 53, n°13, pp. 642-647, 2013.
- [57] E. B. Ndiaye, P. Marechal et H. Duflo, «Adhesion characterization and defect sizing of sandwich honeycomb composites,» *Ultrasonics*, vol. 62, pp. 103-111, 2015.
- [58] L. Xia, L. Zuo, S. Zha, S. Jiang, R. Guan et D. Lu, «Kinetic research on low-temperature cure of epoxy adhesive,» *International Journal of Adhesion and Adhesives*, vol. 50, n°10,

pp. 255-264, 2014.

- [59] K. C. Cole, «A new approach to modeling the cure kinetics of epoxy/amine thermosetting resins. 1. Mathematical development,» *Macromolecules*, vol. 24, n°111, pp. 3093-3097, 1991.





## Chapitre II : Suivi de polymérisation d'une résine époxy

### I Introduction

Les composites à matrice organique sont des matériaux composés de fibres, continues ou non, intégrées dans une matrice polymère de nature thermoplastique ou thermodurcissable. Dans le domaine aéronautique, les composites en fibres de carbone et matrices en époxy sont les plus couramment utilisés et donnent une bonne résistance aux sollicitations mécaniques et thermiques. L'utilisation de capteurs pour surveiller en temps réel la variation des propriétés physiques et mécaniques lors de la fabrication, en cours de fonctionnement et jusqu'à la ruine est une question d'actualité. Parmi les différentes techniques de test et d'évaluation non destructive, les méthodes ultrasonores sont utilisées pour mesurer la vitesse et l'atténuation de divers matériaux. A titre d'exemple, les relations entre la distribution des grains et l'atténuation [30][31], la corrélation entre les propriétés viscoélastiques et la fraction volumique de porosité [32][11][33] et le suivi des propriétés ultrasonores lors de la fabrication des composites par le procédé RTM (Resin Transfert Molding) [34]. Plus précisément, le suivi de polymérisation a été étudié au cours des dernières décennies [35][36][3][37][38][39][40], mais peu d'entre elles ont lié les propriétés ultrasonores et les caractéristiques chimiques [41] [8] [42]. Les méthodes usuelles intègrent la calorimétrie différentielle à balayage (DSC) [43][44][45][46][47] [48], l'analyse diélectrique [49]. Ainsi, les méthodes ultrasonores sont adaptées pour des applications industrielles, même si des études sur les relations entre les propriétés ultrasonores et les caractéristiques chimiques sont toujours en cours. Lionetto [50] et McHugh [6][51] ont comparé diverses techniques (calorimétrie, rhéologie, analyse mécanique dynamique à basse fréquence) avec des méthodes ultrasonores. Ils ont montré que les variations des paramètres ultrasonores peuvent être liées à la transformation de phase (début de la réticulation, la vitesse de réaction, etc.). Cette approche peut être renforcée par une étude plus spécifique des données ultrasonores. Dans ce chapitre, nous proposons une méthode pour la caractérisation ultrasonore des résines thermodurcissables pendant la polymérisation. La variation du coefficient élastique  $c_{33}$  et les pertes mécaniques  $\delta_m$  permettent d'identifier les différents stades de réticulation. L'influence de la température de consigne sur les paramètres ultrasonores a été étudiée. La constante élastique  $c_{33}$  a été modélisée avec une distribution de Weibull. La relation entre le modèle chimique de Kamal [44][45] et une approximation du modèle de Weibull [9] est développée.

Ce chapitre est divisé en trois parties: la première décrit les équations théoriques et le dispositif expérimental proposé pour le suivi de polymérisation d'une résine époxy. La deuxième partie se concentre sur le suivi des propriétés viscoélastiques pendant la polymérisation et la modélisation de la cinétique de réaction associée. Enfin, la simulation par la méthode DSM (Debye Series Method) de la réponse électroacoustique pendant la polymérisation a été effectuée et comparée avec les résultats de l'expérience.

## II Étude théorique

Le suivi de polymérisation présente un intérêt primordial pour les applications industrielles telles que le procédé RTM. Ce sujet [50] a conduit à diverses études dans ce contexte afin d'étudier les liens entre les paramètres ultrasonores et la cinétique de réaction. Les propriétés ultrasonores de compression suivant la direction de propagation dans les matériaux inspectés peuvent être identifiées grâce aux ondes longitudinales. Au cours d'une étude préliminaire, les deux premiers échos d'aller-retour dans la résine époxy ont été considérés [9]. Néanmoins, cette méthode est limitée en termes de caractéristiques des ondes longitudinales et en raison du rapport signal-sur-bruit, i.e. de fortes valeurs d'atténuation au cours de la polymérisation. Comme illustré, la Figure 2.1 montre le suivi des caractéristiques ultrasonores d'une résine époxy au cours de sa polymérisation. La résine liquide est introduite entre deux blocs d'aluminium qui constituent le moule et contre moule. Le spectre  $\underline{S}_1(f)$  correspond au premier écho d'aller-retour  $s_1(t)$  dans l'aluminium, alors que le spectre  $\underline{S}_2(f)$  correspond au premier écho d'aller-retour  $s_2(t)$  dans l'aluminium et l'époxy. Ces spectres sont donnés par:

$$\begin{cases} \underline{S}_1(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2jk_{Alu}d_{Alu}} \underline{R}_{Epo/Alu} \\ \underline{S}_2(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2jk_{Alu}d_{Alu}} e^{-2jk_{Epo}d_{Epo}} \underline{T}_{Alu/Epo} \underline{R}_{Alu/Epo} \underline{T}_{Epo/Alu} \end{cases} \quad (2.1)$$

avec  $\underline{S}_0(f)$  est le signal d'émission,  $\underline{k}_{Alu} = \omega/c_{Alu}(f) + j\alpha_{Alu}(f)$  et  $\underline{k}_{Epo} = \omega/c_{Epo}(f) + j\alpha_{Epo}(f)$  sont respectivement les nombres d'ondes longitudinaux complexes dans l'aluminium et la résine époxy,  $d_{Alu}$  et  $d_{Epo}$  sont respectivement les épaisseurs de l'aluminium et de la couche de résine,  $\underline{R}_{Epo/Alu}$  est le coefficient de réflexion complexe entre la couche d'époxy et l'aluminium,  $\underline{T}_{Epo/Alu}$  est le coefficient de transmission complexe de l'époxy vers l'aluminium, et  $\underline{T}_{Alu/Epo}$  est le coefficient de transmission complexe de l'aluminium vers la résine époxy. Ces coefficients de transmission et de réflexion sont théoriquement complexes et dépendent de la fréquence. Ainsi, l'impédance acoustique théorique est généralement désignée par  $\underline{Z}_L(f) = \rho \cdot \underline{c}_L(f)$ , où la vitesse d'onde longitudinale complexe comprend les pertes, i.e.  $\underline{c}_L(f) = c_L(f) \cdot (1 + j \cdot \delta_c(f))$ , avec

$c_L(f)$  la variation de la vitesse longitudinale avec la fréquence et  $\delta_c(f) \approx \alpha_L(f) \cdot c_L(f) / \omega$  la variation du coefficient de perte avec la fréquence. Dans le cadre de cette étude, la dispersion de la vitesse longitudinale ne dépasse pas 0,1% et le coefficient de perte est inférieur à 2%. En conséquence par la suite, pour les aspects pratiques basés sur des hypothèses vérifiées [14], l'impédance acoustique longitudinale est simplement désignée par  $Z_L = \rho \cdot c_L$ . D'un point de vue de la réponse temporelle, la vitesse ultrasonore longitudinale dans l'époxy  $c_{Epo}$  et l'atténuation longitudinale  $\alpha_{Epo}$  peuvent être exprimées en fonction des échos d'aller-retour, i.e. le rapport des maxima d'amplitudes  $\max(s_2)/\max(s_1)$ , et du temps de retard  $\Delta t$  respectivement entre  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ :

$$\begin{cases} c_{Epo} = \frac{2d_{Epo}}{\Delta t} \\ \alpha_{Epo} = -\frac{1}{2d_{Epo}} \ln \left( \frac{\max(s_2)}{\max(s_1)} \frac{1}{T_{EAAE}} \right) \end{cases} \quad (2.2)$$

avec  $T_{EAAE} = T_{Epo/Alu} T_{Alu/Epo} = \frac{4Z_{Alu}Z_{Epo}}{(Z_{Alu} + Z_{Epo})^2}$ , où  $Z_{Epo} = \rho_{Epo}c_{Epo}$  et  $Z_{Alu} = \rho_{Alu}c_{Alu}$ .

La fonction de transfert  $\underline{T}(f) = \underline{S}_2(f)/\underline{S}_1(f)$  contient des informations sur les deux propriétés ultrasonores longitudinales de la couche de résine époxy, i.e. la vitesse  $c_{Epo}(f)$  et l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$ . En conséquence, l'argument de la fonction de transfert  $\text{Arg}(\underline{T})$  et son module  $|\underline{T}(f)|$  donnent les dépendances en fréquence suivantes:

$$\begin{cases} c_{Epo}(f) = \frac{4\pi f d_{Epo}}{\text{Arg}(\underline{T}(f))} \\ \alpha_{Epo}(f) = -\frac{1}{2d_{Epo}} \ln \left( \frac{|\underline{T}(f)|}{T_{EAAE}} \right) \end{cases} \quad (2.3)$$

### III Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué d'un transducteur de contact utilisé successivement comme émetteur et récepteur (Olympus Panametrics<sup>®</sup>) de fréquence centrale  $f_0 = 5$  MHz avec une bande passante de largeur à  $-6$  dB  $\Delta f_{6,r} = 80\%$ . Les ondes ultrasonores se propagent dans une structure tricouche Aluminium/Epoxy/Aluminium avec des épaisseurs égales respectivement à  $d_{Alu} = 120$  mm,  $d_{Epo} = 7,6$  mm,  $d_{Alu} = 120$  mm (Figure 2.1).

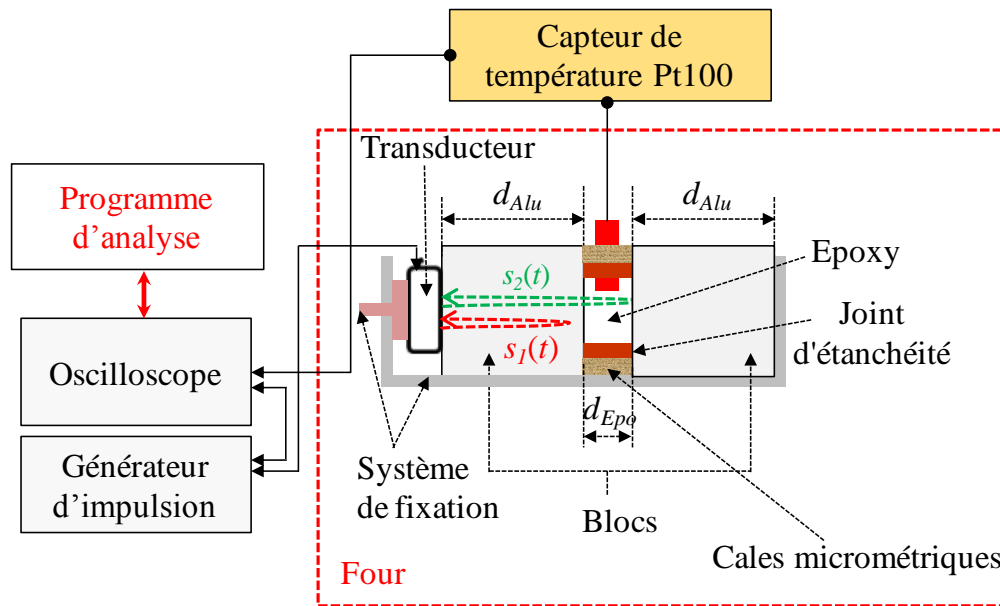


Figure 2.1: Dispositif expérimental.

Les deux premiers échos d'aller-retour  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  sont utilisés pour évaluer les propriétés ultrasonores de la deuxième couche, i.e. la résine époxy (Resoltech<sup>®</sup>) avec une vitesse longitudinale notée  $c_{Epo}$  et d'une atténuation longitudinale  $\alpha_{Epo}$ . Le transducteur est excité en utilisant un générateur d'impulsions (Sofranel<sup>®</sup>) et les échos sont acquis en utilisant un oscilloscope numérique (Yokogawa<sup>®</sup> DL9140-5G/s 1GHz) sur 125K points avec une fréquence d'échantillonnage  $f_s = 2,5$  GHz et moyennés sur  $N_{av} = 1024$  acquisitions. La température est programmable et régulée par un four de chauffage (Kelviron<sup>®</sup>). Le mélange est constitué d'une résine époxy (Resoltech<sup>®</sup>) préparée en mélangeant la résine (Inclupox A) et un durcisseur (Inclupox B) en proportions massiques de 100/45. La procédure d'homogénéisation consiste à mélanger la résine avec le durcisseur pendant 2 min et effectuer un dégazage de 10 min en utilisant une pompe à vide. Cette opération est répétée deux fois pour dégager les bulles d'air. Les blocs d'aluminium sont graissés pour garantir un démoulage facile des échantillons après le durcissement. Un joint d'étanchéité est placé entre les deux blocs d'aluminium pour empêcher l'écoulement de la résine époxy à l'extérieur. En utilisant un système de serrage spécifique, la structure tricouche est maintenue dans le four de chauffage avant que la résine époxy soit coulée entre les deux blocs d'aluminium pour assurer une température homogène de la structure. Un capteur de température Pt100 est placé en contact avec la résine époxy, afin d'enregistrer la température exacte de la résine époxy au cours de la polymérisation. Les signaux ultrasonores et la température sont enregistrés automatiquement, avec une acquisition toutes les 10 minutes, en utilisant un programme d'acquisition sur Matlab<sup>®</sup>.

### III.1 Polymérisation isotherme

#### III.1.1 Caractérisation par le temps de vol

La Figure 2.2 (à gauche) montre les deux premiers signaux d'aller-retour  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  respectivement dans le bloc d'aluminium seulement (Alu) et dans l'aluminium et l'époxy (Alu/Epo) pendant la polymérisation à une température de consigne  $T = 35^\circ\text{C}$ . La température locale dans la résine est mesurée à l'aide du capteur Pt100. La Figure 2.2 (à droite) montre également les signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  au début (en haut) et à la fin (en bas) de la réaction. L'amplitude du signal  $s_1(t)$  réfléchi par l'aluminium diminue légèrement pendant la polymérisation. Cette amplitude  $s_1(t)$  est proportionnelle au coefficient de réflexion  $R_{Epo/Alu} = (Z_{Alu} - Z_{Epo}) / (Z_{Alu} + Z_{Epo})$  qui diminue au cours de la polymérisation avec l'augmentation de l'impédance acoustique dans la résine  $Z_{Epo} = \rho_{Epo} c_{Epo}$ . Le temps de retard correspondant au deuxième écho d'aller-retour  $s_2(t)$  est compris entre  $49 \mu\text{s}$  et  $45 \mu\text{s}$ , ce qui donne une variation de vitesse pendant la polymérisation de l'ordre de  $1000 \text{ m/s}$ . Durant la polymérisation, à la date  $t_{acq} \approx 13 \text{ h}$ , l'amplitude du signal  $s_2(t)$  atteint son niveau minimum, i.e. l'atténuation est maximale, ce qui correspond à la transformation de phase du polymère.

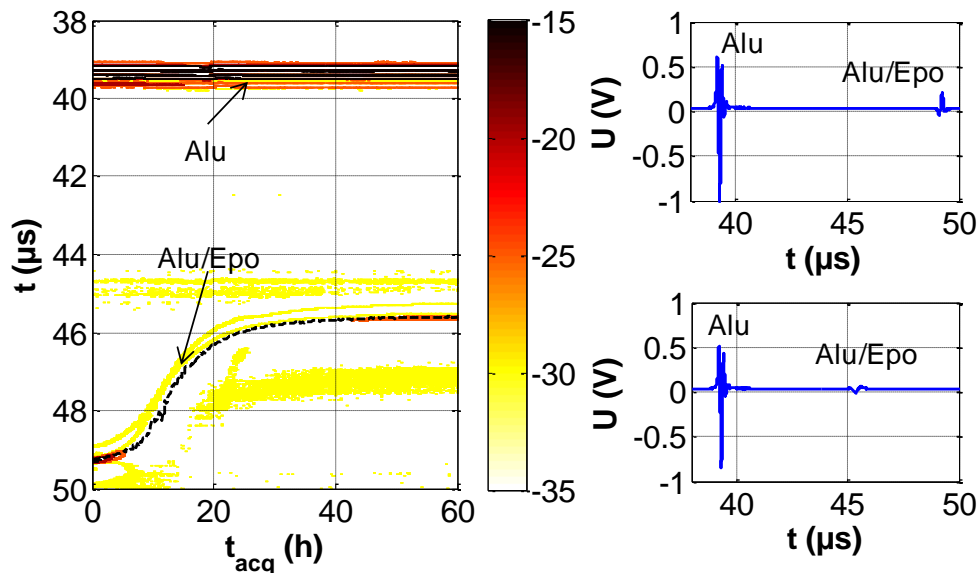


Figure 2.2: (à gauche) Échos d'aller-retour  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  en dB pendant la polymérisation à la température de consigne  $T = 35^\circ\text{C}$ , respectivement dans l'aluminium seulement (Alu) et dans (Alu/Epo). (à droite) Échos d'aller-retour  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  au début (haut) et à la fin de la polymérisation (bas) à la même température de consigne  $T = 35^\circ\text{C}$ .

Les mesures ultrasonores peuvent être liées aux propriétés élastiques, par l'intermédiaire du coefficient viscoélastique complexe  $\underline{c}_{33}$  qui est la composante (3, 3) de la matrice viscoélastique  $[\underline{c}_{ij}]$ . Ce coefficient viscoélastique peut être lié aux propriétés ultrasonores longitudinales, i.e.  $\underline{c}_{33} = \rho \underline{c}_L^2$ , avec  $\rho$  la masse volumique et  $\underline{c}_L = c_L \cdot (1 + j\delta_c)$  la vitesse longitudinale complexe:

$$\underline{c}_{33} = c_{33} \cdot (1 + j\delta_m) \approx \rho c_L^2 \cdot (1 + j2\delta_c) \quad (2.4)$$

où  $c_{33} \approx \rho c_L^2$ , et  $\delta_m \approx 2\alpha_L c_L / \omega$ . Cette expression approchée est correcte si l'atténuation  $\alpha_L$  par longueur d'onde  $\lambda_L$  est faible, i.e.  $\alpha_L \lambda_L / (2\pi) = \alpha_L c_L / \omega \approx 3 \cdot 10^{-2} \ll 1$ .

### III.1.2 Transformation de phases

Les variations des propriétés mécaniques en cours polymérisation sont illustrées par la Figure 2.3. La constante élastique  $c_{33}$  (GPa) et les pertes mécaniques  $\delta_m$  (%) sont illustrées pendant la polymérisation en fonction du temps d'acquisition  $t_{acq}$  (h). A partir de ces courbes, certains paramètres typiques permettent d'identifier les différentes étapes de la réticulation [8].

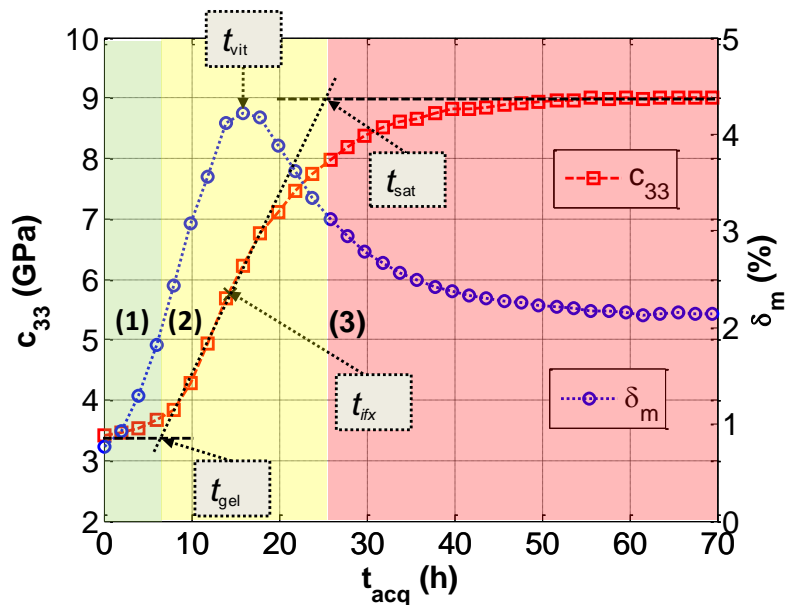


Figure 2.3: Évolution des propriétés élastiques en fonction du temps durant la polymérisation : constante élastique  $c_{33}$  (GPa) ( $\square$ ) et pertes mécaniques  $\delta_m$  (%) ( $\circ$ ) à la température de consigne  $T = 35^\circ\text{C}$ .

Ces différentes étapes peuvent être identifiées en utilisant la méthode des tangentes: la phase liquide visqueuse (1), la phase de transition vitreuse (2), la phase de saturation (3). Ces phases sont déterminées à partir des constantes élastiques. Deux tangentes horizontales sont tracées à partir du début et de la fin de la courbe. La troisième tangente est tracée au point

d'inflexion ( $t_{ifx}$ ), i.e.  $(dc_{33}/dt_{acq})(t_{ifx}) = [dc_{33}/dt_{acq}]_{max}$ . Cette dernière tangente coupe les deux tangentes horizontales respectivement au temps de gel ( $t_{gel}$ ) et au temps de saturation ( $t_{sat}$ ). En conséquence, le temps solide vitreux ( $t_{gs}$ ) est évalué comme la moyenne des temps de gel et de saturation  $t_{gs} = (t_{gel} + t_{sat})/2$  sur la courbe de vitesse ultrasonore.

La phase (1), de  $t_{acq} = 0$  à 7 h, est l'état liquide visqueux caractérisé par une légère augmentation de la constante élastique. La phase (2), de  $t_{acq} = 7$  à 25 h, est la phase de transition vitreuse décomposée en deux parties. La gélification est (2a) caractérisée par une augmentation rapide de la constante élastique  $c_{33}$  à partir du temps de gel jusqu'au temps de solide vitreux ( $t_{gs}$ ). Dans cette zone, la densité de réticulation augmente considérablement, avec une réduction de mobilités des chaînes de molécules. La vitrification (2b) est caractérisée par une diminution de la cinétique de réaction, i.e.  $[t_{gs}; t_{sat}]$ . La phase (3), l'état de saturation, commence au temps de saturation ( $t_{sat}$ ) et correspond à la fin de la polymérisation, i.e. cinétique de polymérisation négligeable. Le pic des pertes mécaniques commence au temps de vitrification ( $t_{vit}$ ) et est proche du point d'inflexion ( $t_{ifx}$ ) et du temps de solide vitreux ( $t_{gs}$ ). Dans cette zone de transition, i.e.  $t_{acq} \in [t_{gel}; t_{sat}]$ , la vitrification atteint son maximum autour de  $(t_{vit}, t_{ifx}, t_{gs})$ , en fonction de la définition choisie. L'augmentation de la constante élastique pendant la polymérisation est de l'ordre de 5,5 GPa, ce qui indique que la transition de l'état liquide visqueux à l'état solide vitreux implique un changement important des propriétés élastiques. Ce changement peut être lié directement à la concentration du polymère  $P(t_{acq}) \in [0; \alpha_{max}]$ , définie par une loi donnant  $P(0) = 0$  et  $P(\infty) = \alpha_{max}$  : degré de conversion (0 à 100%).

$$c_{33}(t_{acq}) = c_{33,0} + (c_{33,\infty} - c_{33,0}) \cdot P(t_{acq}) \quad (2.5)$$

où  $c_{33,0}$  et  $c_{33,\infty}$  correspondent respectivement à des constantes élastiques de la résine époxy dans les états initial et final.

### III.1.3 Sensibilité à la température isotherme

La sensibilité des propriétés mécaniques de la résine époxy à basse température de consigne a été étudiée. Dans ce cadre, le suivi des propriétés ultrasonores a été effectué en fonction du temps de polymérisation à trois températures de consigne  $T = 30, 35$  et  $40^\circ\text{C}$  (Figure 2.4). Le choix de cette plage de température est basé sur deux raisons : la première est de travailler à basse température vu la tenue en température du transducteur utilisé ; la deuxième est de ne pas dépasser la température de transition vitreuse. Au début de la réaction, lorsque la résine est à l'état liquide, nous observons sur la Figure 2.4 (a) une diminution de la



constante élastique  $c_{33}$  en fonction de la température. Ce phénomène est observé aussi pour les huiles silicones au premier chapitre (Figure 1.9). Pour la résine durcie nous observons une augmentation légère de la constante élastique  $c_{33}$  avec la température. Le pic des pertes mécaniques  $\delta_m$  (Figure 2.4 (b)) semble avoir lieu simultanément avec le point d'inflexion sur  $c_{33}$  (Figure 2.4 (a)).

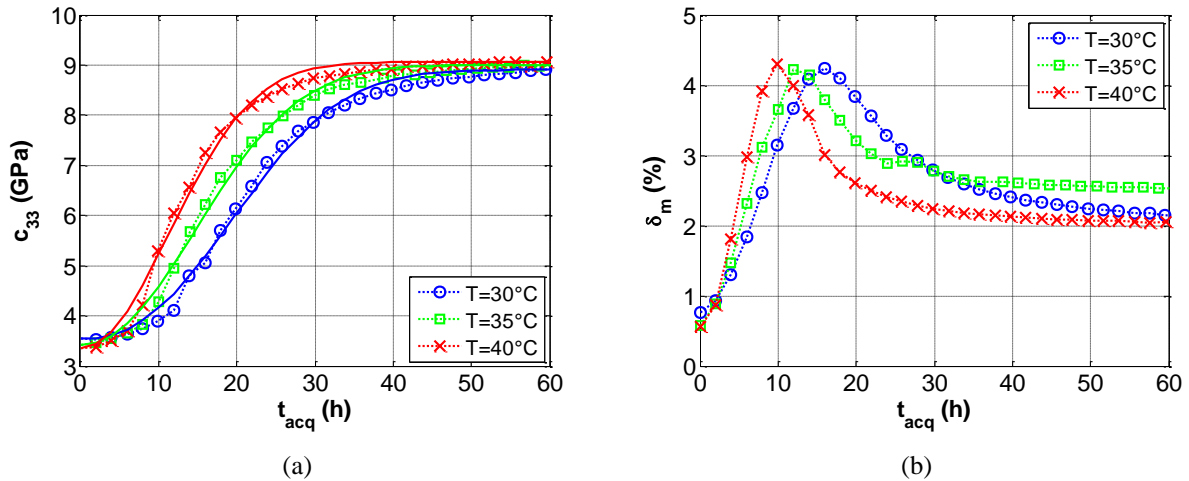


Figure 2.4: Évolution des propriétés élastiques en fonction du temps  $t_{acq}$  (h) durant la polymérisation : (a) coefficient élastique  $c_{33}$  (GPa) et modèle de Weibull (équation (2.8)) associé (trait continu), (b) pertes mécaniques  $\delta_m$  (%), à  $T = 30^\circ\text{C}$  (O),  $35^\circ\text{C}$  (□) et  $40^\circ\text{C}$  (x).

La cinétique de réaction augmente avec la température de consigne (Figure 2.4). Ceci est illustré à la fois sur les courbes de la constante élastique  $c_{33}$  (Figure 2.4 (a)) et les pertes mécaniques  $\delta_m$  (Figure 2.4 (b)). En conséquence, le temps solide vitreux est évalué par la moyenne du temps de gel et du temps de saturation  $t_{gs} = (t_{gel} + t_{sat})/2$  sur les courbes constantes élastiques à 20,3, 16,0 et 12,6 respectivement, pour les trois températures de consigne  $T = 30, 35, \text{ and } 40^\circ\text{C}$ . A titre de comparaison, le temps de vitrification  $t_{vit}$  est évalué sur les courbes de perte mécanique (Figure 2.4 (b)) à 15,9 ; 14,0 et 9,9 respectivement pour les trois températures de consigne. Ces résultats de caractérisation ont une bonne tendance avec des légères différences observées. Les valeurs des paramètres caractéristiques de la transformation de phase (temps d'inflexion  $t_{ifx}$ , temps de gel  $t_{gel}$ , temps de saturation  $t_{sat}$  et le temps solide vitreux  $t_{gs}$ ) sont illustrés au Tableau 2.1 pour les trois températures de consigne  $T = 30, 35 \text{ et } 40^\circ\text{C}$ .

Tableau 2.1: Paramètres caractéristiques de la transformation de phase obtenus expérimentalement à partir de  $c_{33}$  et  $\delta_m$  à  $T = 30, 35$  et  $40^\circ\text{C}$ .

$T$ ( $^\circ\text{C}$ )	$t_{vit}$ (h)	$t_{ifx}$ (h)	$t_{gel}$ (h)	$t_{sat}$ (h)	$t_{gs}$ (h)
30	15,9	17,9	9,54	31,1	20,3
35	14,0	14,0	7,10	24,9	16,0
40	9,94	9,94	5,38	19,9	12,6

$T$  ( $^\circ\text{C}$ ): température de consigne;  $t_{vit}$  (h): temps de vitrification;  
 $t_{ifx}$  (h): temps d'inflexion;  $t_{gel}$  (h): temps de gel;  $t_{sat}$  (h): temps de saturation;  
 $t_{gs}$  (h): temps solide vitreux.

### III.1.4 Modélisation de la cinétique de réaction

Une approche de base pour la réaction de polymérisation consiste à décrire la concentration de polymère  $P$  avec une équation différentielle de premier ordre. Elle implique une constante cinétique de polymérisation  $k_P$ , ici notée par la constante de temps classique  $\tau = 1/k_P$ :

$$P(t_{acq}) = 1 - e^{-\frac{t_{acq}}{\tau}} \quad (2.6)$$

Néanmoins, en raison de la complexité de la réaction et du phénomène de diffusion, la variable  $k_P$  n'est pas constante [6][52][53]. Lorsqu'elles sont prises en compte, ces considérations conduisent à une variation de la constante de temps. En outre, nous constatons expérimentalement que la cinétique de polymérisation commence lentement ( $[dc_{33}/dt_{acq}]_{t_{acq}=0} \approx 0$ ), ce qui montre la complexité de la réaction de polymérisation [8][44][45][54].

Différents modèles ont été développés [6][52][53], mais leurs paramètres d'entrée ne sont parfois pas simples à identifier. Une première approche (équation (2.7)) tient compte de la complexité de la cinétique de réaction, en utilisant la distribution de Weibull:

$$P_W(t_{acq}) = 1 - e^{-\left(\frac{t_{acq}}{\lambda}\right)^k} \quad (2.7)$$

$$\text{i.e.} \quad c_{33,W}(t_{acq}) = c_{33,0} + (c_{33,\infty} - c_{33,0}) \cdot \left(1 - e^{-\left(\frac{t_{acq}}{\lambda}\right)^k}\right) \quad (2.8)$$

où  $\lambda$  et  $k$  sont les paramètres de la distribution de Weibull, utilisés pour modéliser la réaction de polymérisation, conformément à la solution canonique de l'équation différentielle de

premier ordre. L'identification a été effectuée en tenant compte de la demi-durée de polymérisation  $t_{50}$ , définie par  $t_{50} = \lambda \cdot (\ln(2))^{1/k}$ , et un deuxième point d'identification, i.e.  $t_{95} = \lambda \cdot 3^{1/k}$ . Ces estimations sont alors utilisées comme paramètres d'entrée pour la procédure d'identification avec la méthode de moindre carré. La Figure 2.4 (a) illustre les modèles de Weibull identifiés pour les températures de consigne  $T = 30, 35$  et  $40^\circ\text{C}$ . La fonction de Weibull (équation (2.7)) peut donner des expressions analytiques du temps d'inflexion  $t_{W,ifx}$ , du temps de gel  $t_{W,gel}$  et du temps de saturation  $t_{W,sat}$  à partir des paramètres  $(\lambda, k)$  de la distribution de Weibull (Annexe D):

$$\begin{cases} t_{W,ifx} = \lambda \left( \frac{k-1}{k} \right)^{\frac{1}{k}} \\ t_{W,gel} = t_{W,ifx} - \frac{P_W(t_{W,ifx})}{P_W'(t_{W,ifx})} \\ t_{W,sat} = t_{W,ifx} + \frac{1 - P_W(t_{W,ifx})}{P_W'(t_{W,ifx})} \end{cases} \quad (2.9)$$

avec  $P_W'(t_{acq})$  la dérivée par rapport au temps de la fonction de Weibull  $P_W(t_{acq})$  (équation (2.7)). Les valeurs numériques de ces paramètres caractéristiques, i.e. temps d'inflexion de Weibull  $t_{W,ifx}$ , temps de gel de Weibull  $t_{W,gel}$ , temps de saturation de Weibull  $t_{W,sat}$  (équation (2.9)) et le temps solide vitreux de Weibull  $t_{W,gs} = (t_{W,gel} + t_{W,sat})/2$  sont résumés dans le Tableau 2.2, et montrent un bon accord avec les résultats expérimentaux résumés dans le Tableau 2.1.

Tableau 2.2: Paramètres de Weibull identifiés à partir de  $c_{33}$  à  $T = 30, 35$  et  $40^\circ\text{C}$ .

$T$ ( $^\circ\text{C}$ )	$\lambda$ (h)	$k$	$t_{W,ifx}$ (h)	$t_{W,gel}$ (h)	$t_{W,sat}$ (h)	$t_{W,gs}$ (h)
30	24,3	2,38	19,3	8,31	33,3	20,8
35	19,9	2,12	14,7	5,57	27,8	16,7
40	15,7	2,06	11,4	4,15	22,1	13,1

$T$  ( $^\circ\text{C}$ ): température de consigne;  $\lambda$  (h): premier paramètre de Weibull;  $k$ : deuxième paramètre de Weibull;  $t_{W,ifx}$  (h): temps d'inflexion de Weibull;  $t_{W,gel}$  (h): temps de gel de Weibull;  $t_{W,sat}$  (h): temps de saturation de Weibull;  $t_{W,gs}$  (h): temps solide vitreux de Weibull.

La dérivée expérimentale par rapport au temps d'acquisition du coefficient élastique  $dc_{33}/dt_{acq}$  et l'ajustement correspondant avec le modèle de Weibull  $dc_{33,W}/dt_{acq}$  (résultant de l'équation (2.8)) sont comparés et en bon accord. A titre d'illustration, la Figure 2.5 montre

deux propriétés qui peuvent être observées sur les propriétés ultrasonores pendant la polymérisation: le temps d'inflexion  $t_{ifx}$  et la valeur du maximum  $[dc_{33}/dt_{acq}]_{max} = [dc_{33}/dt_{acq}](t_{ifx})$ . Cette dernière correspond à la pente maximale du coefficient d'élasticité en fonction du temps d'acquisition  $c_{33}(t_{acq})$ , qui caractérise la cinétique de polymérisation.

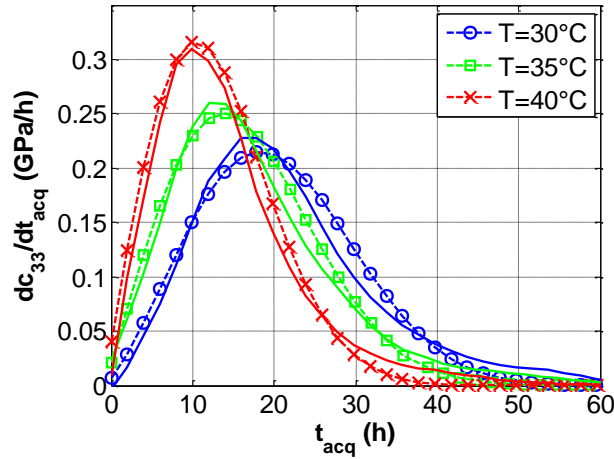


Figure 2.5: Dérivée du coefficient élastique  $dc_{33}/dt_{acq}$  (GPa/h) en fonction du temps  $t_{acq}$  (h) pendant la polymérisation à  $T = 30^{\circ}\text{C}$  (O),  $35^{\circ}\text{C}$  (□) and  $40^{\circ}\text{C}$  (X) : résultats expérimentaux (marqueur) et modèle de Weibull (trais continus).

### III.1.5 Degré de conversion de la réaction

Le degré de conversion de la réaction  $\alpha$  peut être lié à des mesures ultrasonores [8], et au modèle de concentration de polymère  $P$  (équation (2.7)) par le coefficient élastique  $c_{33}$ :

$$\alpha(t_{acq}) = \frac{c_{33}(t_{acq}) - c_{33,0}}{c_{33,\infty} - c_{33,0}} \quad (2.10)$$

où  $c_{33,0}$  et  $c_{33,\infty}$  sont respectivement les coefficients élastiques au début et à la fin de polymérisation. Dans la Figure 2.4 (a), le coefficient élastique  $c_{33}$  est calculé à partir du modèle de Weibull (équation (2.8)). L'évolution du coefficient de conversion de la réaction pendant la polymérisation (équation (2.10))  $\alpha(t_{acq})$  (Figure 2.6) est tracée pour les températures de consigne  $T = 30, 35$  et  $40^{\circ}\text{C}$ . L'évolution de la vitesse de réaction pendant la polymérisation  $d\alpha/dt_{acq}$  nous permet d'identifier expérimentalement les temps d'inflexion  $t_{ifx} = \{17,9 ; 14,0 ; 9,94\}$  h raccourcis par la température, tandis que le taux de réaction maximale  $[d\alpha/dt_{acq}]_{max} = \{4,25 ; 4,65 ; 5,43\}$  %/h augmente avec la température de consigne.

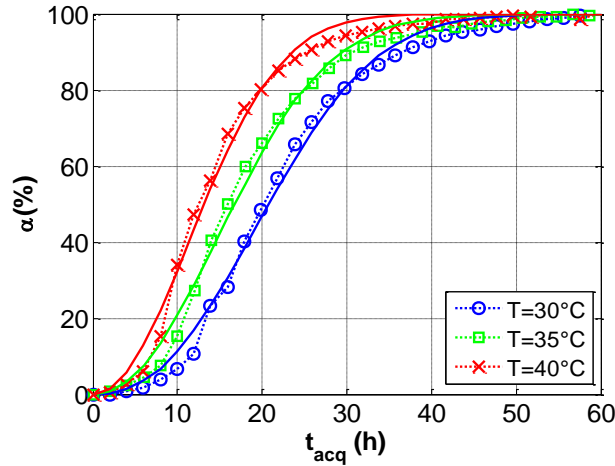


Figure 2.6: Degré de conversion  $\alpha$  (%) en fonction du temps  $t_{acq}$  (h) pendant la polymérisation à  $T = 30^\circ\text{C}$  (O),  $35^\circ\text{C}$  (□) et  $40^\circ\text{C}$  (x) : résultats expérimentaux (marqueur) et modèle de Weibull (trais continus).

La réaction de polymérisation est souvent étudiée avec la technique DSC (Differential Scanning Calorimetry) en mode isotherme ou/et en mode non isotherme. Pour une réticulation isotherme, la conversion fractionnaire  $\alpha$  de l'époxy, est souvent modélisée par le modèle auto-catalytique de Kamal [44][45][54] :

$$\frac{d\alpha}{dt_{acq}} = (k_1(T) + k_2(T)\alpha^m)(1 - \alpha)^n \quad (2.11)$$

Dans ce modèle,  $k_1(T)$  est le taux de conversion non-autocatalytique correspondant au taux initial de la conversion,  $k_2(T)$  est le taux de conversion de la réaction auto-catalytique associée aux espèces catalytiques formées pendant la réticulation, et  $m$  et  $n$  sont respectivement les ordres des réactions non-autocatalytiques et autocatalytiques. Chaque coefficient du taux de conversion  $k_i(T)$  s'écrit suivant l'équation d'Arrhenius:

$$k_i(T) = A_i \cdot e^{-\frac{E_{ai}}{RT}} \quad (2.12)$$

où  $A_i$  est le facteur pré-exponentiel,  $E_{ai}$  est l'énergie d'activation et  $R = 8,314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$  est la constante universelle des gaz. Dans l'équation (2.11), la pente à l'origine correspond à  $[d\alpha/dt_{acq}]_{\alpha=0} = k_1$  (Tableau 2.3). Le paramètre  $k_1$  est inséré dans l'équation (2.11), puis  $\{k_2, m, n\}$ , sont estimés en utilisant la méthode des moindres carrés. Comme résumé dans le Tableau 2.3, la constante  $k_2$  est beaucoup plus grande que  $k_1$ , ce qui indique que la réaction auto-catalytique est beaucoup plus rapide que la réaction non auto-catalytique. En conséquence, le modèle Kamal peut être approximé par:

$$\frac{d\alpha}{dt_{acq}} \approx k_2(T) \cdot \alpha^m \cdot (1 - \alpha)^n \quad (2.13)$$

Tableau 2.3: Paramètres de la cinétique de réaction à  $T = 30, 35$  et  $40^\circ\text{C}$ .

$T$ ( $^\circ\text{C}$ )	Modèle chimique				Modèle de Weibull approché		
	$k_1$ ( $\text{h}^{-1}$ )	$k_2$ ( $\text{h}^{-1}$ )	$m$	$n$	$k/\lambda$	$(k-1)/k$	$(k+1)/(2k)$
30	0,00138	0,0974	0,551	0,826	0,098	0,579	0,710
35	0,00329	0,109	0,513	0,849	0,106	0,528	0,736
40	0,00764	0,121	0,501	0,862	0,131	0,514	0,743

$k_1$  ( $\text{h}^{-1}$ ): taux de conversion non auto-catalytique;  $k_2$  ( $\text{h}^{-1}$ ): taux de conversion autocatalytique;  $m$ : ordre de la réaction non auto-catalytique;  $n$ : ordre de la réaction autocatalytique;  $(k/\lambda)$ : taux de conversion non auto-catalytique correspondant au modèle de Weibull;  $(k-1)/k$ : ordre de la réaction non auto-catalytique correspondant au modèle de Weibull ;  $(k+1)/(2k)$ : ordre de la réaction autocatalytique correspondant au modèle de Weibull.

Ce résultat peut être comparé au modèle de Weibull par le développement de l'expression analytique de  $d\alpha/dt_{acq}$  en fonction de  $\alpha$  (équation (2.10)) comme suit:

$$\frac{d\alpha}{dt_{acq}} = \left(\frac{k}{\lambda}\right) \cdot \left(\ln\left(\frac{1}{1-\alpha}\right)\right)^{\frac{k-1}{k}} \cdot (1-\alpha) \approx \begin{cases} \left(\frac{k}{\lambda}\right) \cdot \alpha^{\frac{k-1}{k}} \cdot (1-\alpha) & \text{au premier ordre} \\ \left(\frac{k}{\lambda}\right) \cdot \alpha^{\frac{k-1}{k}} \cdot (1-\alpha)^{\frac{k+1}{2k}} & \text{au second ordre} \end{cases} \quad (2.14)$$

Ces deux expressions (équations (2.13) et (2.14)) sont en bon accord, car les paramètres sont du même ordre de grandeur. A titre d'exemple, pour  $k = 2$  and  $\lambda = 20$ , nous pouvons estimer les paramètres du modèle de Kamal  $n \approx (k+1)/(2k) \approx 3/4$ ,  $m \approx (k-1)/k \approx 1/2$  et  $k_2 \approx k/\lambda \approx 1/10$ . Les variations du modèle d'Arrhenius de  $\ln(k_i) = \ln(A_i) - E_{ai}/(RT)$  en fonction de  $1/T$  (Figure 2.7 (d)) pour  $i = \{1, 2\}$  sont utilisées pour estimer les facteurs pré-exponentiels  $A_i$  et les énergies d'activation  $E_{ai}$  (Tableau 2.4).

Tableau 2.4: Energie d'activation  $E_{ai}$  et facteur pré-exponentiel  $A_i$  pour la réaction autocatalytique ( $i = 1$ ) et pour la réaction non auto-catalytique ( $i = 2$ ).

$E_{a1}$ ( $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ )	$E_{a2}$ ( $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ )	$A_1$ ( $\text{h}^{-1}$ )	$A_2$ ( $\text{h}^{-1}$ )
135	17,7	$2,59 \cdot 10^{20}$	108

L'énergie d'activation non auto-catalytique  $E_{a1}$  est supérieure à l'énergie d'activation auto-catalytique  $E_{a2}$ . Le facteur pré-exponentiel associé à l'énergie d'activation auto-catalytique est beaucoup plus grand que l'énergie d'activation non auto-catalytique  $A_1 \gg \gg A_2$ .

Les valeurs  $\{k_1, k_2, m, n\}$  sont insérées dans l'équation (2.11), et les fonctions  $d\alpha/dt_{acq}$  correspondant au modèle Kamal (équation (2.11)) sont comparées à la dérivée par rapport au temps du modèle de Weibull (équation (2.10)) dans la Figure 2.7 (a). Il est clair que le modèle de Weibull identifié à partir des données expérimentales ultrasonores est en bonne conformité avec le modèle de Kamal pour chaque température de consigne  $T = 30, 35$  et  $40^\circ\text{C}$ .

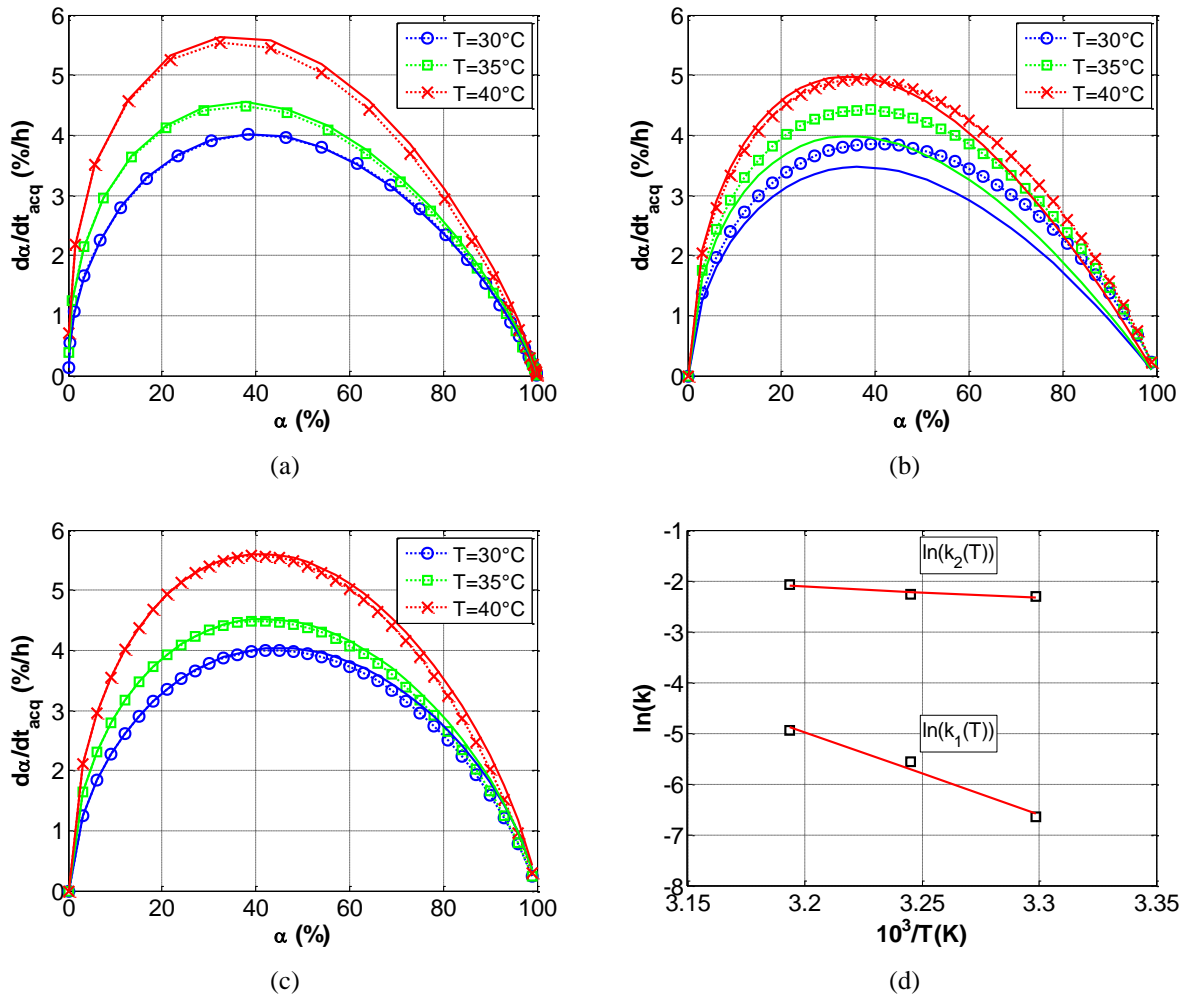


Figure 2.7: Comparaison de  $d\alpha/dt_{acq}$  (%/h) par rapport  $\alpha$  (%) selon (a) : Weibull (lignes en pointillés avec des marqueurs) et Kamal (traits pleins); (b) forme approchée modèle Kamal (lignes solides, équation (2.13)) et le développement d'ordre un du modèle de Weibull (pointillés avec des marqueurs, l'équation (2.14)); (c) de modèle de Weibull exacte (pointillés avec des marqueurs, l'équation (2.14)) et développement d'ordre deux du modèle de Weibull (solide, l'équation (2.14)) ; (d) détermination des paramètres de l'équation d'Arrhenius (équation (2.12)).

Néanmoins, bien qu'ils soient en très bon accord, ces deux modèles sont formellement différent, le modèle de Kamal (équation (2.11)) est identifié à partir d'une approche chimique de la cinétique de réaction, et celui de Weibull (équation (2.10)) est identifié à partir d'une

approche empirique. Comme illustré par la Figure 2.7 (b), la comparaison entre le modèle Kamal approché (équation (2.13)) et la forme approchée du modèle de Weibull au premier ordre (équation (2.14)), montre que les tendances de température sont respectées. Cependant, ces approximations sous-estiment la dérivée de la conversion par rapport au temps d'acquisition  $da/dt_{acq}$ , par rapport aux modèles exacts de Kamal et Weibull. En outre, ces deux modèles approchés ne sont pas en bon accord l'un avec l'autre. Pour corriger cela, un développement en second ordre du modèle de Weibull a été réalisé (Figure 2.7 (c)) avec la forme exacte de l'équation (2.14). Par conséquent, d'après les résultats d'identification (Figure 2.7 (c)), le modèle Kamal approché (équation (2.13)), est formellement en bon accord avec le développement au second ordre du modèle de Weibull (équation (2.14)), et peut décrire de façon adéquate la cinétique de réaction, étant donné que l'ensemble des paramètres choisis  $\{k_2, m, n\}$  sont ceux déduits à partir du développement au second ordre du modèle de Weibull, i.e.  $\{k/\lambda, (k-1)/k, (k+1)/(2k)\}$ , comme résumé dans le Tableau 2.3. Ces résultats de caractérisation ont été effectués à basse température. Il faut noter que la température de consigne isotherme  $T = \{30, 35, 40\}$  °C reste inférieure à la température de transition vitreuse. La vitesse ultrasonore a été mesurée au cours d'un procédé de polymérisation à basse température. La dépendance temporelle de la constante élastique  $c_{33}$  a été calculée pour identifier le modèle de Weibull. En outre, un développement au second ordre du modèle de Weibull a été identifié en très bon accord avec le modèle chimique de Kamal si le paramètre d'énergie d'activation auto-catalytique  $k_1(T)$  est négligé. En conclusion, pour la polymérisation isotherme dans le contexte décrit ci-dessus, la valeur maximale du taux de conversion de l'époxy  $da/dt_{acq}$  augmente avec la température, i.e. la température accélère la cinétique de réaction.

#### IV Modélisation de la réponse électroacoustique du transducteur

Les procédés de fabrication des plaques composites nécessitent d'une manière générale la superposition de deux moules entre lesquels sont introduits les constituants du matériau composite à fabriquer (superposition des tissus de fibres imprégnés ou pré-imprégnés de résine). Ainsi, l'étude de la propagation des ondes ultrasonores dans les structures multicouches peut être abordée en considérant les interactions locales entre les interfaces et en étudiant la réponse globale de la structure. Par la suite, nous étudierons la réponse électroacoustique du transducteur pendant un processus de polymérisation via la modélisation des coefficients de réflexion et de transmission globaux. L'étude qui suit se rapporte au cas



d'une onde acoustique plane et monochromatique qui se propage dans des milieux viscoélastiques, homogènes et isotropes.

#### IV.1 Décomposition en série de Debye

Dans le cadre de l'acoustique linéaire, nous utilisons la décomposition en séries de Debye associées à la réflexion et la transmission par une structure stratifiée ou multicouche [55] [56] [57] [58]. L'interaction d'une onde acoustique avec une interface plane a pour effet de générer une onde réfléchiée et une onde transmise. Par suite, l'onde transmise est ensuite partiellement réfléchiée sur la seconde interface, le processus se répétant à l'infini (Figure 2.8). Les coefficients de réflexion et de transmission globaux s'écrivent en fonction des coefficients de réflexion et de transmission aux différentes interfaces des couches.

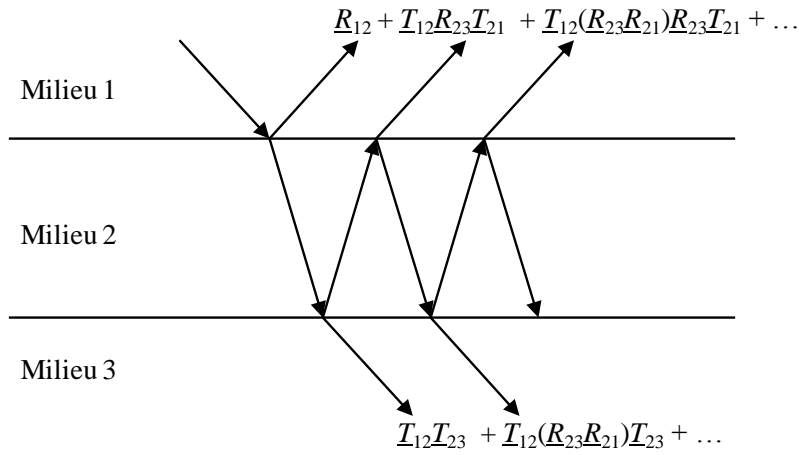


Figure 2.8 : Réflexions multiples dans une structure tricouche.

Nous considérons une structure stratifiée de  $N$  couches, d'indice 1 à  $N$ . Le coefficient de réflexion  $\underline{R}$  de ces  $N$  couches s'écrit sous la forme suivante :

$$\underline{R} = \underline{R}_{12} + \frac{\underline{T}_{12}\underline{\rho}_{23}\underline{T}_{21}}{1 - \underline{R}_{21}\underline{\rho}_{23}} \quad (2.15)$$

avec  $\underline{\rho}_{n,n+1} = \underline{R}_{n,n+1} + \frac{\underline{T}_{n,n+1}\underline{\rho}_{n+1,n+2}\underline{T}_{n+1,n}}{1 - \underline{R}_{n+1,n}\underline{\rho}_{n+1,n+2}}$  pour  $2 \leq n \leq N$  et  $\underline{\rho}_{N+1,N+2} = \underline{R}_{N+1,N+2}$  (2.16)

Le coefficient de transmission  $\underline{T}$  pour les  $N$  couches s'écrit :

$$\underline{T} = \underline{T}_{12} \cdot \prod_{n=2}^N \frac{\underline{T}_{n,n+1}}{1 - \underline{R}_{n,n+1}\underline{\rho}_{n,n-1}} \quad (2.17)$$

avec  $\underline{\rho}_{21} = \underline{R}_{21}$  et  $\underline{\rho}_{n+1,n} = \underline{R}_{n+1,n} + \frac{\underline{T}_{n+1,n}\underline{\rho}_{n,n-1}\underline{T}_{n,n+1}}{1 - \underline{R}_{n,n+1}\underline{\rho}_{n,n-1}}$  pour  $2 \leq n \leq N$  (2.18)

En incidence normale, les coefficients de réflexion ( $\underline{R}_{ij}$  et  $\underline{R}_{ji}$ ) et de transmission ( $\underline{T}_{ij}$  et  $\underline{T}_{ji}$ ) de Fresnel aux interfaces des couches  $i$  et  $j$  s'expriment en fonction des impédances complexes de chaque couche et prennent en compte les déphasages associés aux positions des interfaces.

## IV.2 Simulation de la réponse électroacoustique

La simulation de la réponse électroacoustique par la méthode DSM (Debye Series Method) consiste à déterminer le coefficient de réflexion  $\underline{R}$  (équation (2.15)) dans le cas d'une configuration en émission/réception ou le coefficient de transmission  $\underline{T}$  (équation (2.17)) dans le cas d'une configuration en émission/transmission. Dans la configuration d'un suivi de polymérisation, nous avons une structure tricouche Aluminium/Époxy/Aluminium. Les propriétés des différents matériaux rentrant dans la structure pour la simulation sont reportées dans le Tableau 2.5 :

Tableau 2.5 : Paramètres expérimentaux.

$T$ (°C)	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	$c_L$ (m/s)	$\delta_c$ (%)	$d$ (mm)
Aluminium	2800	6375	1	120
Epoxy	1000	1530	5	7,6

$\rho$  : masse volumique;  $c_L$ : vitesse longitudinale;  $\delta_c$ : pertes mécaniques;  $d$ : épaisseur de la couche.

La vitesse ultrasonore dans l'époxy est modélisée par le modèle de Weibull (équation (2.8)) qui tient compte de la cinétique de réaction. Pour tenir compte de l'atténuation dans l'époxy, nous ajoutons les pertes mécaniques  $\delta_c$ . Le modèle de Weibull s'écrit sous la forme suivante :

$$c_{Epo,W}(t_{acq}, \delta_c) = c_{Epo,W}(t_{acq}) \cdot (1 - j\delta_c) \quad (2.19)$$

### IV.3 Configuration en émission réception

#### IV.3.1 Modélisation de la réponse électroacoustique

En configuration émission/réception d'ondes de volume, la réponse électroacoustique est simulée en convoluant le coefficient de réflexion globale de la structure multicouche  $r(t)$  par la bande passante du transducteur  $bw(t)$  :

$$s(t) = r(t) * bw(t) = FT^{-1}\{\underline{R}(f).\underline{BW}(f)\} \quad (2.20)$$

où  $\underline{BW}(f) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f-f_0}{\sigma_f}\right)^2}$  et  $\sigma_f = \frac{\Delta f_6}{2\sqrt{2\ln 2}}$  (2.21)

La Figure 2.9 illustre le module du coefficient de réflexion  $|\underline{R}(f)|$  obtenu par décomposition DSM (équation (2.15)) et la pondération de ce coefficient par la bande passante gaussienne du transducteur  $\underline{BW}(f)$ . L'enveloppe gaussienne pondérée du produit  $|\underline{BW}(f).\underline{R}(f)|$  est centrée en  $f = 4,2$  MHz, résultant du produit de l'enveloppe de  $|\underline{R}(f)|$  en  $e^{-\alpha_R \cdot f}$  et de celle du transducteur centré en  $f_0 = 5$  MHz.

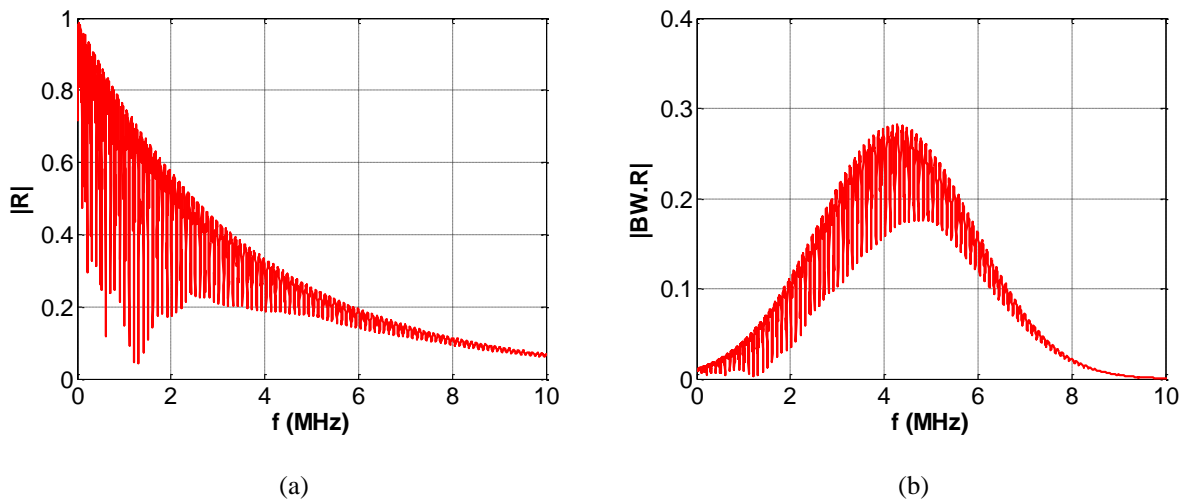


Figure 2.9 : Calcul par décomposition en série de Debye de : (a) module du coefficient de réflexion  $|\underline{R}(f)|$  et (b) module du coefficient de réflexion multiplié par la bande passante du transducteur  $|\underline{BW}(f).\underline{R}(f)|$ .

Le signal électroacoustique est obtenu alors par la transformation inverse de Fourier de la fonction  $\underline{BW}(f).\underline{R}(f)$  (équation (2.20)). Sur la Figure 2.10, les signaux normalisés  $s_n(t) = s(t)/\max(s(t))$  expérimentaux ont été comparés aux calculs obtenus par la méthode DSM. Les signaux d'aller-retour dans l'aluminium (Figure 2.10 (a)) et dans l'aluminium et l'époxy

(Figure 2.10 (b)) montrent le très bon accord entre les résultats obtenus par expérience et celui obtenu par DSM.

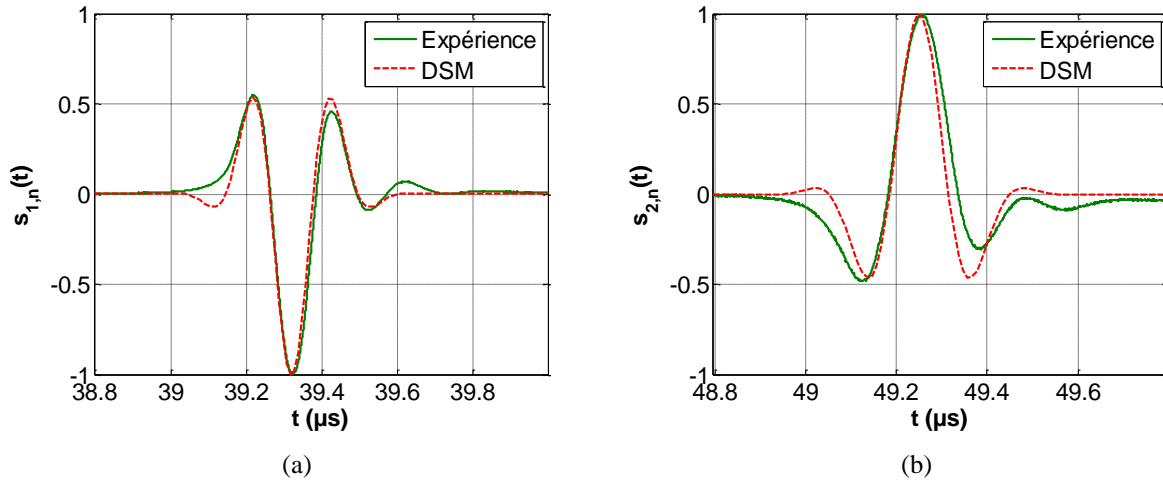


Figure 2.10 : Comparaison entre les signaux électroacoustiques normalisés expérimentaux et calculés par la méthode DSM des deux échos d'aller-retour : (a) dans l'aluminium et (b) dans l'aluminium et l'époxy.

### IV.3.2 Simulation des signaux pendant une polymérisation isotherme

L'implémentation de vitesse ultrasonore dans l'époxy modélisée par le modèle de Weibull (équation (2.19)) dans l'expression du coefficient de réflexion  $|R(f, t_{acq})|$  (équation (2.15)) pendant la polymérisation est représenté par la Figure 2.11 (a). Nous remarquons que le coefficient de réflexion  $|R(f, t_{acq})|$  diminue avec la fréquence à cause des pertes mécaniques  $\delta_c$ . La multiplication du coefficient de réflexion  $|R(f, t_{acq})|$  par la bande passante gaussienne  $BW(f)$  a pour effet de recentre le maximum d'amplitude à  $f = 4,2$  MHz (Figure 2.11 (b)). Le signal électroacoustique est obtenu alors dans la Figure 2.11 (c) par DSM et permet d'obtenir les différents signaux d'aller-retour dans l'aluminium  $s_1(t)$  et dans l'aluminium et l'époxy  $s_2(t)$ . Les résultats de simulation sont en bon accord avec les résultats expérimentaux Figure 2.11 (d). Le modèle permet de tenir compte les temps d'aller-retour dans les différentes couches d'aluminium et d'époxy pour simuler la cinétique de réaction. La variation des amplitudes des échos est observée également avec le modèle DSM, rendant compte de la vitrification. Nous remarquons également que le modèle ne prend pas en compte les échos transverses. Un écho LT d'aller en mode longitudinal et de retour en mode transverse est observé expérimentalement dans l'aluminium à  $t_{LT} = 57 \mu s$  (Figure 2.11(d)).

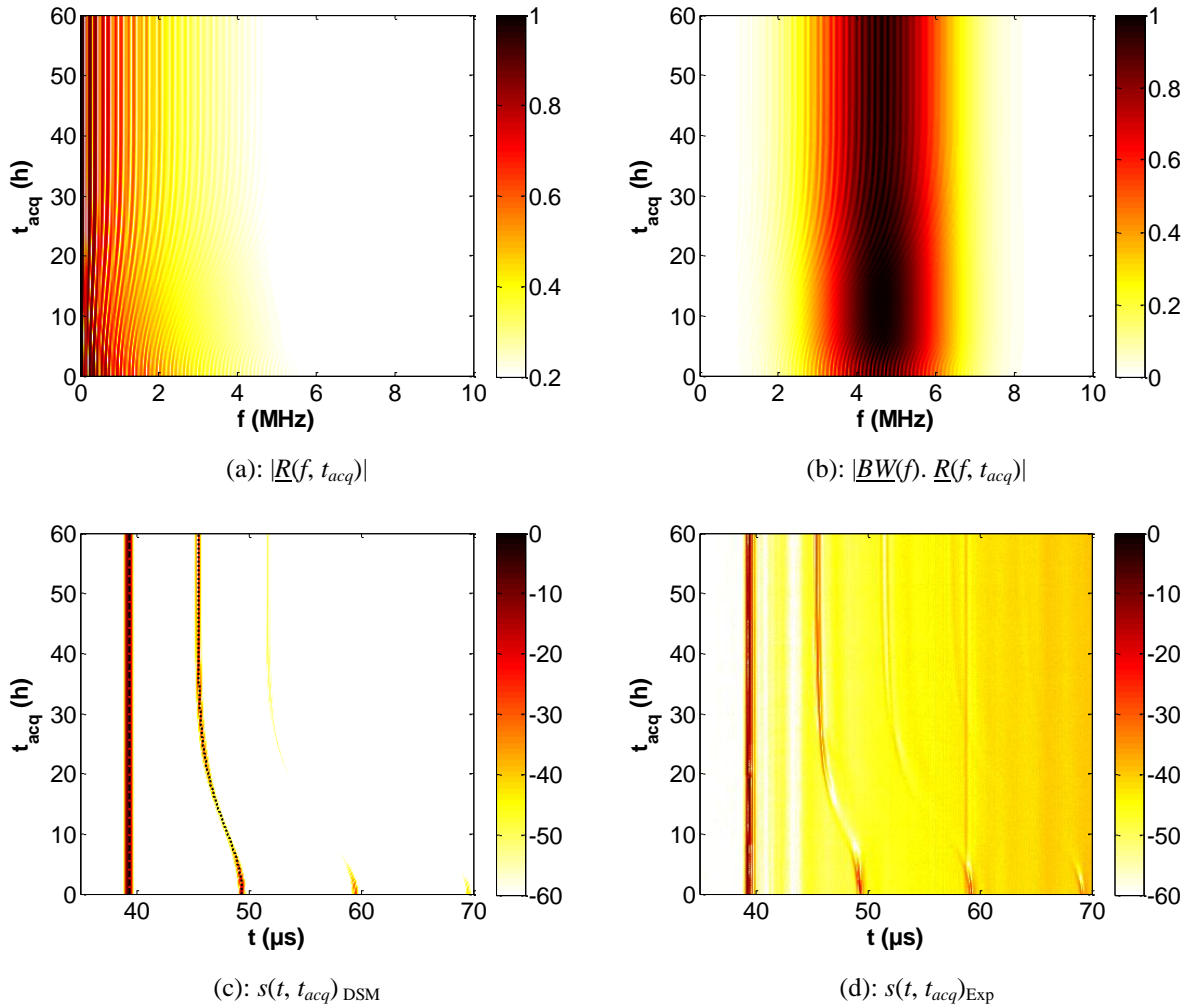


Figure 2.11 : Simulation du signal électroacoustique pendant la polymérisation : (a) coefficient de réflexion  $|R(t_{acq}, f)|$ , (b) pondération du coefficient de réflexion par la bande passante  $|BW(f) \cdot R(t_{acq}, f)|$ , (c) signaux électroacoustiques obtenus par DSM et (d) comparaison avec les résultats expérimentaux en échelle dB.

### IV.3.3 Sensibilité du modèle à la température isotherme

Pour tenir compte de l'influence de la température de consigne isotherme sur la cinétique de réaction, la simulation DSM a été effectuée à différentes températures de consigne. En prenant en compte les pertes mécaniques  $\delta_c$ , le modèle de Weibull (équation (2.19)) a été implémenté dans l'équation (2.15) afin de déterminer le coefficient de réflexion  $R$  pour calculer enfin la réponse électroacoustique (équation (2.20)) à une température  $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $35^\circ\text{C}$  et  $40^\circ\text{C}$  (Figure 2.12).

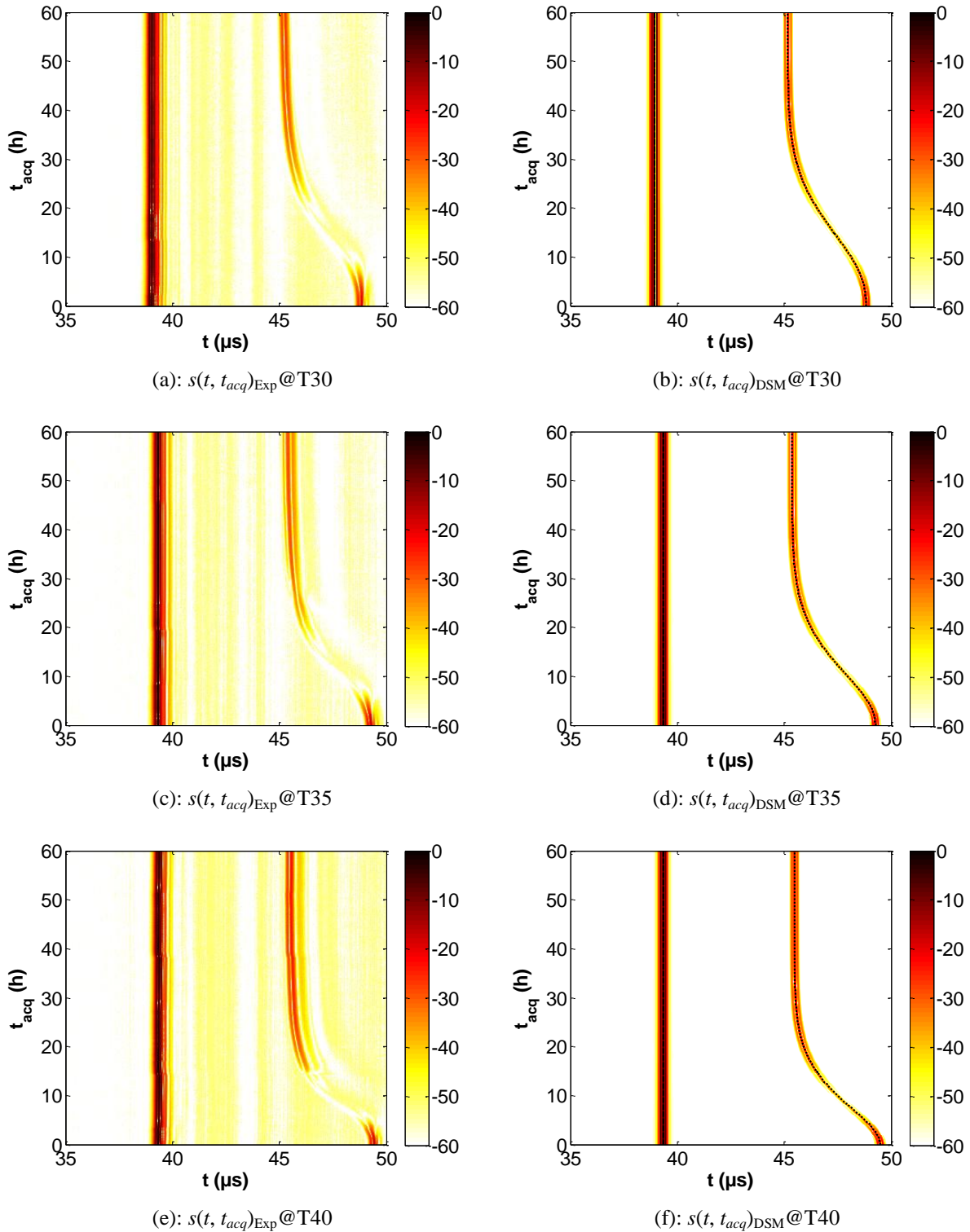


Figure 2.12 : Comparaison de la réponse électroacoustique (b), (d), (f) calculée par la méthode DSM par rapport à celle (a), (c), (e) expérimentale à la température de consigne isotherme (a), (b)  $T = 30^\circ\text{C}$ , (c), (d)  $35^\circ\text{C}$  et (e), (f)  $40^\circ\text{C}$ .

## V Conclusion

Dans le but d'effectuer le suivi des propriétés ultrasonores durant la polymérisation isotherme, un dispositif expérimental a été développé. La formulation analytique de cette configuration avec les propriétés ultrasonores, i.e. la vitesse de l'onde longitudinale et son atténuation, a été développée pour cette étude des propriétés ultrasonores d'une résine époxy. Ces caractéristiques ultrasonores qui dépendent de la cinétique de réaction sont directement liées à la constante élastique  $c_{33}$  et aux pertes mécaniques  $\delta_m$  associées. Pour cela, dans le but d'améliorer le processus de réticulation, la transformation de phase (l'état liquide visqueux, la transition vitreuse et l'état solide de saturation) ont été suivies et étudiés. Deux approches ont été élaborées pour identifier la transformation de phase. La première est expérimentale et basée sur la méthode des tangentes ; la deuxième est analytique et basée sur la résolution du modèle de Weibull. La variation de la constante élastique  $c_{33}$  en fonction du temps a été modélisé par la distribution de Weibull, ce qui a permis l'étude de la cinétique de réaction, liée directement au degré de conversion de la réaction  $\alpha$ . La forme analytique du développement au deuxième ordre de la distribution de Weibull a été identifiée avec un bon accord formellement avec modèle chimique de Kamal, dans le cas où l'énergie d'activation auto-catalytique  $k_1(T)$  est négligeable. Cette première approche analytique a permis de lier les paramètres ultrasonores ( $c_{Epo}$ ,  $\alpha_{Epo}$ ) aux paramètres élastiques ( $c_{33}$ ,  $\delta_m$ ), conduisant à l'identification des propriétés phénoménologiques ( $t_{gel}$ ,  $t_{vit}$ ,  $t_{sat}$ ). Ensuite, de lier les paramètres de Weibull ( $k$ ,  $\lambda$ ) aux paramètres d'un modèle phénoménologique de la cinétique de réaction ( $k_2(T)$ ,  $m$ ,  $n$ ). La simulation par série de Debye (DSM) de la réponse électroacoustique pendant la polymérisation en se basant sur le modèle de Weibull est en bon accord avec les signaux expérimentaux. En perspectives, une amélioration de cette simulation est envisagée afin de prendre en compte les ondes transversales.

## VI Références

- [1] D. Nicoletti, N. Bilgutay et B. Onaral, «Power-law relationships between the dependence of ultrasonic attenuation on wavelength and the grain size distribution,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 91, n°16, pp. 3278-3284, 1992.
- [2] D. Nicoletti et D. Kasper, «Ultrasonic attenuation based on the Roney generalized theory and multiple power-law grain-size distributions,» *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelect. Freq. Control*, vol. 41, n°11, pp. 144-149, Jan 1994.
- [3] I. Daniel, S. Wooh et I. Komsky, «Quantitative porosity characterization of composite materials by means of ultrasonic attenuation measurements,» *Journal of Nondestructive Evaluation*, vol. 11, n°11, pp. 1-8, 1992.
- [4] H. Jeong et D. Hsu, «Experimental analysis of porosity-induced ultrasonic attenuation and velocity change in carbon composites,» *Ultrasonics*, vol. 33, n° 13, pp. 195-203, 1995.
- [5] V. J. Pinfield, R. E. Challis et R. A. Smith, «A comparison of stochastic and effective medium approaches to the backscattered signal from a porous layer in a solid matrix,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 130, n°11, pp. 122-134, 2011.
- [6] E. Schmachtenberg, J. S. zur Heide et J. Töpker, «Application of ultrasonics for the process control of Resin Transfer Moulding (RTM),» *Polymer Testing*, vol. 24, n°13, pp. 330-338, 2005.
- [7] E. P. Papadakis, «Monitoring the moduli of polymers with ultrasound,» *Journal of Applied Physics*, vol. 45, n°13, pp. 1218-1222, 1974.
- [8] A. Lindrose, «Ultrasonic wave and moduli changes in a curing epoxy resin,» *Experimental Mechanics*, vol. 18, n°16, pp. 227-232, 1978.
- [9] S. Rokhlin, D. Lewis, K. Graff et A. Laszlo, «Real-time study of frequency dependence of attenuation and velocity of ultrasonic waves during the curing reaction of epoxy resin,» *Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 79, pp. 1786-1793, 1986.
- [10] R. Challis, T. Alper, R. Cocker, A. Holmes et J. White, «Ultrasonic absorption and velocity dispersion measurements in thin adhesive layers,» *Ultrasonics*, vol. 29, n°11, pp. 22-28, 1991.



- [11] D. Sidebottom, «Ultrasonic measurements of an epoxy resin near its sol-gel transition,» *Phys. Rev. E*, vol. 48, pp. 391-399, 1993.
- [12] B. Faiz, G. Maze, D. Decultot, A. Moudden, E. Aassif et M. Ezzaidi, «Ultrasonic characterization of the quality of an epoxy resin polymerization,» *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelect. Freq. Control*, vol. 46, n°11, pp. 188-196, Jan 1999.
- [13] M. Matsukawa et I. Nagai, «Ultrasonic characterization of a polymerizing epoxy resin with imbalanced stoichiometry,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 99, n°14, pp. 2110-2115, 1996.
- [14] R. E. Challis, R. J. Freemantle, R. P. Cocker, D. L. Chadwick, D. J. Dare, C. Martin, A. Mahendrasingam et W. Fuller, «Ultrasonic measurements related to evolution of structure in curing epoxy resins,» *Plastics, Rubber and Composites*, vol. 29, n°13, pp. 109-118, 2000.
- [15] F. Lionetto et A. Maffezzoli, «Monitoring the cure state of thermosetting resins by ultrasound,» *Materials*, vol. 6, n°19, pp. 3783-3804, 2013.
- [16] K. C. Cole, «A new approach to modeling the cure kinetics of epoxy/amine thermosetting resins. 1. Mathematical development,» *Macromolecules*, vol. 24, n°111, pp. 3093-3097, 1991.
- [17] R. B. Prime, «Differential scanning calorimetry of the epoxy cure reaction,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 13, n°15, pp. 365-371, 1973.
- [18] M. R. Kamal, «Thermoset characterization for moldability analysis,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 14, n°13, pp. 231-239, 1974.
- [19] S. Sourour et M. Kamal, «Differential scanning calorimetry of epoxy cure: isothermal cure kinetics,» *Thermochimica Acta*, vol. 14, n°11-2, pp. 41-59, 1976.
- [20] R. Hardis, J. L. Jessop, F. E. Peters et M. R. Kessler, «Cure kinetics characterization and monitoring of an epoxy resin using DSC, Raman spectroscopy, and DEA,» *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 49, n°10, pp. 100-108, 2013.
- [21] S. R. White, P. T. Mather et M. J. Smith, «Characterization of the cure-state of DGEBA-DDS epoxy using ultrasonic, dynamic mechanical, and thermal probes,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 42, n°11, pp. 51-67, 2002.
- [22] L. Xia, L. Zuo, S. Zha, S. Jiang, R. Guan et D. Lu, «Kinetic research on low-temperature cure of epoxy adhesive,» *International Journal of Adhesion and Adhesives*, vol. 50, n°10, pp. 255-264, 2014.

- [23] F. Lionetto et A. Maffezzoli, «Relaxations during the postcure of unsaturated polyester networks by ultrasonic wave propagation, dynamic mechanical analysis, and dielectric analysis,» *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, vol. 43, n°15, pp. 596-602, 2005.
- [24] F. Lionetto, R. Rizzo, V. Luprano et M. A., «Phase transformations during the cure of unsaturated polyester resins,» *Materials Science and Engineering A*, vol. 370, pp. 284-287, 2004.
- [25] J. Mc Hugh, «Ultrasound technique for the Dynamic Mechanical Analysis (DMA) of polymers,» Ph.D Thesis, Technische Universität Berlin, 2008.
- [26] J. Mc Hugh, P. Fideu, A. Herrmann et W. Stark, «Determination and review of specific heat capacity measurements during isothermal cure of an epoxy using TM-DSC and standard DSC techniques,» *Polymer Testing*, vol. 29, n°16, pp. 759-765, 2010.
- [27] N. Samet, E. Ndiaye, P. Marechal et H. Duflo, «Polymerization monitoring using ultrasound,» chez *13th International Symposium on Nondestructive Characterization of Materials (NDCM-XIII)*, 2013.
- [28] N. Samet, P. Maréchal et H. Duflo, «Ultrasonic characterization of a fluid layer using a broadband transducer,» *Ultrasonics*, vol. 52, n°13, pp. 427-434, 2012.
- [29] F. Dimier, «Injection de systèmes réactifs : détermination de lois cinétiques et rhéologiques et modélisation,» Thèse, École nationale supérieure des mines de Paris, 2003.
- [30] C. Paris, «Étude et modélisation de la polymérisation dynamique de composites à matrice thermodurcissable,» Thèse, Institut national polytechnique de Toulouse, 2011.
- [31] J. Wan, C. Li, Z.-Y. Bu, C.-J. Xu, B.-G. Li et H. Fan, «A comparative study of epoxy resin cured with a linear diamine and a branched polyamine,» *Chemical Engineering Journal*, vol. 188, n°10, pp. 160-172, 2012.
- [32] J. Conoir, La diffusion acoustique, P. CEDOCAR, Éd., Gespa, N., 1987.
- [33] P. Maréchal, L. Haumesser, L. P. Tran-Huu-Hue, J. Holc, D. Kuscer, M. Lethiecq et G. Feuillard, «Modeling of a high frequency ultrasonic transducer using periodic structures,» *Ultrasonics*, vol. 48, n°1141-149, p. 2, 2008.
- [34] A. Khaled, P. Maréchal, O. Lenoir, M. E.-C. El-Kettani et D. Chenouni, «Study of the resonances of periodic plane media immersed in water: Theory and experiment,» *Ultrasonics*, vol. 53, n°13, pp. 642-647, 2013.

- [35] E. B. Ndiaye, P. Marechal et H. Duflo, «Adhesion characterization and defect sizing of sandwich honeycomb composites,» *Ultrasonics*, vol. 62, pp. 103-111, 2015.

## Chapitre III : Caractérisation ultrasonore de l'époxy durcie pendant une post-cuisson

### I Introduction

La modélisation de la dispersion de l'atténuation avec la fréquence de l'onde ultrasonore longitudinale dans une résine thermodurcissable permet d'identifier les paramètres viscoélastiques. Dans ce contexte, Challis a montré que le modèle de Cole-Cole simule avec succès la propagation des ondes en résine durcie [1] [2]. Dans le chapitre I, les relations entre la loi de puissance [3][4] et les paramètres Cole-Cole ont été développées et validées expérimentalement dans un ensemble limité d'expériences à température constante pour les huiles silicone de viscosité calibrée [5]. La sensibilité en température des paramètres du modèle puissance rend possible d'identifier la dépendance en température de la dispersion de vitesse associée aux modèles Szabo [6] et O'Donnell [7]. En outre, les propriétés viscoélastiques associées au modèle Cole-Cole sont estimées en fonction de la température. Ces modèles donnent un bon accord avec les résultats expérimentaux et un modèle fréquence-température ( $f, T$ ) [8] a été proposé et développé pour les paramètres ultrasonores.

Dans ce chapitre, nous étudierons le comportement ultrasonore de l'époxy durci pendant une post-cuisson. Pour étudier l'influence de la température sur les paramètres ultrasonores dans l'époxy durci, les propriétés ultrasonores ont été mesurées au cours d'une post-cuisson. La configuration expérimentale correspond toujours au mode émission/réception. L'échantillon utilisé a été polymérisé à une température de consigne isotherme de  $T = 35^{\circ}\text{C}$  et maintenu entre les moules en aluminium. Afin de simplifier l'étude, nous allons commencer par étudier le comportement de l'époxy dans une gamme de température inférieure à la température de transition vitreuse  $T_g$ . Dans cette zone de température, l'époxy durci est encore à l'état vitreux, ce qui permet d'étudier seulement l'influence du facteur thermique. Ensuite, nous étudierons le comportement de l'époxy dans une gamme de température plus élevée qui inclut la température de transition vitreuse  $T_g$ . Dans ce cas, l'influence de la transformation de phase est aussi prise en compte avec le facteur thermique.

Ce chapitre comporte trois parties permettant de développer cette problématique. Dans la première partie, nous allons effectuer une étude sur l'hystérésis des propriétés ultrasonores pendant un cycle thermique. En deuxième partie, nous présenterons les résultats de l'étude du

comportement ultrasonore de la résine époxy sans tenir compte de la transformation thermique. Dans la troisième partie, nous montrerons l'approche expérimentale pour étudier la dispersion des propriétés ultrasonores en prenant en compte la transformation thermique.

## II Hystérésis des propriétés induites par un cycle thermique

### II.1 Différence entre la température de consigne et la température à la surface de l'échantillon

Avant de commencer l'étude du comportement de l'époxy durci et la dispersion de la vitesse et de l'atténuation par rapport à la température appliquée, il est nécessaire de décrire préalablement le comportement de l'époxy pendant un processus de post-cuisson et plus précisément pendant un chauffage et un refroidissement. La température a été mesurée localement dans l'échantillon en utilisant la sonde Pt100. La différence entre la température de consigne appliquée par le four et la température mesurée à la surface de l'échantillon est différente selon la vitesse de chauffage ou de refroidissement, ce qui entraîne une hystérésis sur les propriétés ultrasonores mesurées. La Figure 3.1 montre la différence entre la température de consigne appliquée par le four et la température de l'échantillon en époxy mesurée par la sonde de température Pt100.

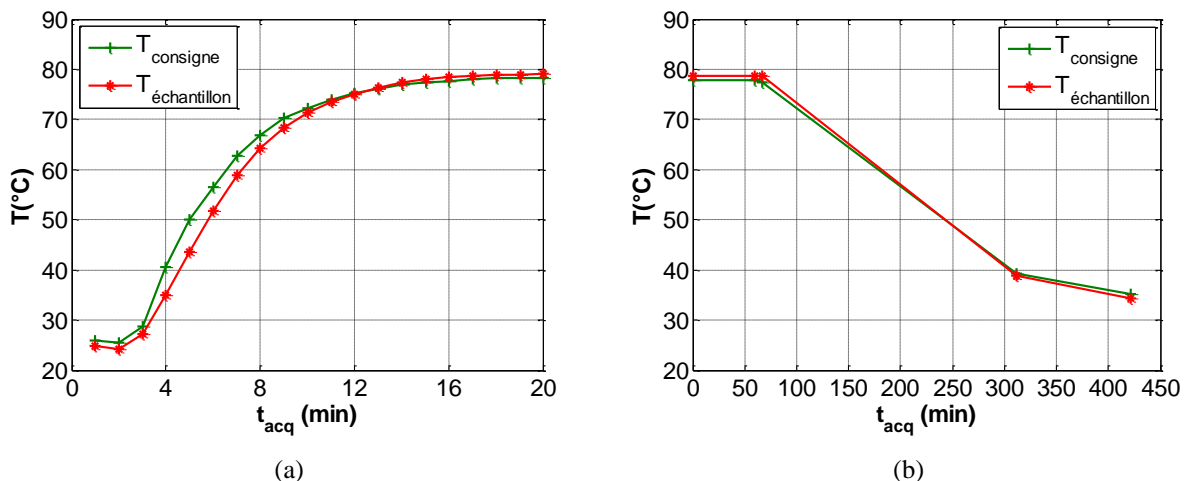


Figure 3.1 : Différence entre la température de consigne appliquée par le four et la température mesurée dans l'échantillon en époxy durci polymérisé à une température isotherme  $T = 35^{\circ}\text{C}$  : (a) chauffage avec une vitesse moyenne  $dT/dt_{\text{acq}} \approx 5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  et (b) refroidissement avec une vitesse moyenne  $dT/dt_{\text{acq}} \approx 0,034^{\circ}\text{C}/\text{min}$ .

Dans le cas de chauffage avec une vitesse assez élevée (Figure 3.1 (a)); lorsque l'époxy est initialement à la température ambiante; nous observons une différence jusqu'à  $7^{\circ}\text{C}$

entre la température de consigne et la température mesurée à la surface de l'échantillon. La Figure 3.1 (b) montre le cas de refroidissement avec une vitesse assez faible, lorsque l'époxy est initialement à la température de consigne. Nous observons une très faible différence jusqu'à 1°C entre la température de consigne et la température de l'échantillon.

Sur la Figure 3.2, nous observons clairement l'hystérésis entre la température de consigne et la température de l'échantillon. Dans le cas du chauffage, la température de consigne est supérieure à celle de l'échantillon car la vitesse de chauffage appliquée ( $dT/dt_{acq} \approx 5 \text{ °C/min}$ ) ne permet pas de stabiliser la température dans l'échantillon. Par contre, dans le cas du refroidissement, l'échantillon se refroidit avec une vitesse très faible ( $dT/dt_{ac} \approx -0,034 \text{ °C/min} = -2\text{°C/heure}$ ). Dans ce dernier cas, la température de l'échantillon est presque égale à la température de consigne du four.

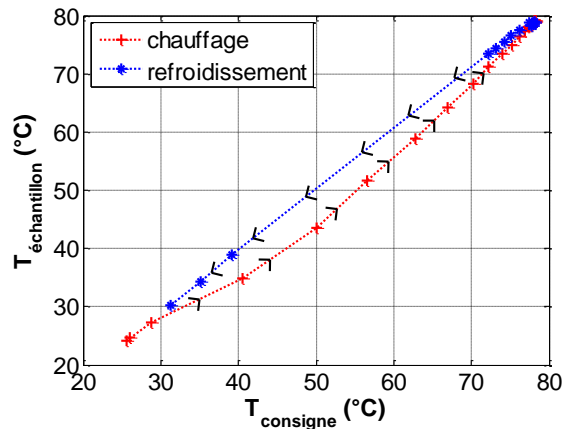


Figure 3.2 : Hystérésis entre la température de l'échantillon et la température de consigne appliquée pour un échantillon epoxy polymérisé à une température isotherme  $T = 35\text{°C}$ .

## II.2 Différence entre la température à la surface et celle à cœur

La différence entre la température de consigne et la température à la surface de l'échantillon diffère du fait de l'inertie thermique de l'échantillon. De plus, la température à la surface d'un matériau est différente de celle mesurée à cœur, ce qui présente aussi une source d'hystérésis. Pour cette raison, il est nécessaire d'étudier le gradient de température à l'intérieur des matériaux. L'équation de chaleur dans un milieu isotrope homogène permet de définir le gradient de température dans le temps  $t$  et dans l'espace  $x$ . Dans le cas unidimensionnel simple (1D), pour une lamelle épaisse, où la température varie spécialement, l'équation de chaleur s'écrit sous la forme suivante :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{k}{\rho c_p} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (3.1)$$

où  $k$  est la conduction thermique,  $\rho$  est la masse volumique et  $c_p$  est la chaleur spécifique massique. Les conditions aux limites sont données initialement par  $T(x, t = 0) = T_0$ . A l'instant  $t > 0$ , le flux de chaleur à la paroi et la température extérieure  $T_{ext}$  appliqués s'écrivent en fonction d'un coefficient d'échange en surface  $h$  sous la forme suivante:

$$-k \frac{\partial T(x = \pm L, t)}{\partial x} = \pm h (T(x = \pm L, t) - T_{ext}) \quad (3.2)$$

où  $L$  est la demi-longueur de la structure à étudier. Pour faire disparaître les dimensions de la structure ainsi que ces propriétés physiques, nous écrivons le problème sous la forme sans dimension en imposant  $t = \tau \underline{t}$  avec  $\underline{t} \geq 0$ ,  $x = L \underline{x}$  avec  $\underline{x} \in [-1; 1]$  et  $T = T_0 + (T_0 - T_{ext}) \underline{T}$  avec  $\underline{T} \in [0; 1]$ . La constante de temps s'écrit :  $\tau = L^2/a$  où  $a = k/(\rho c_p)$  est la diffusivité thermique. Dans ce cas nous trouvons l'équation de chaleur avec la forme sans dimension :

$$\frac{\partial \underline{T}}{\partial \underline{t}} = a \frac{\partial^2 \underline{T}}{\partial \underline{x}^2} \quad (3.3)$$

Pour  $\underline{t} > 0$ , la condition de flux à la paroi (équation (3.2)) s'écrit avec la forme sans dimension par :

$$\frac{\partial \underline{T}(\underline{x} = \pm 1, \underline{t})}{\partial \underline{x}} = \pm Bi (\underline{T}(\underline{x} = \pm 1, \underline{t})) \quad (3.4)$$

avec  $Bi = hL/k$  est le nombre de Biot. La procédure de résolution de l'équation (3.3) montre que l'équation de chaleur est vérifiée si nous écrivons la température sous la forme de variables séparées d'une multiplication des fonctions trigonométriques en espace et des exponentielles en temps. La condition au bord (équation (3.4)) permet d'écrire la température sous la forme suivante :

$$\underline{T}(\underline{t}, \underline{x}) = \sum_{i>0} A_i e^{-m_i^2 \underline{t}} \cos(m_i \underline{x}) \quad (3.5)$$

où  $m_i = (2i-1)\pi/2$  et  $A_i = 2\sin(m_i) / (m_i + \sin(m_i).\cos(m_i))$ . Dans notre cas, nous allons nous intéresser à la répartition de la température dans les blocs d'aluminium. L'épaisseur de l'époxy est de l'ordre de 7,6 mm, considérée comme une plaque mince où la répartition de température suivant l'épaisseur est quasi-constante. Dans le cas du bloc d'aluminium les propriétés physiques sont les suivantes : la conduction thermique est  $k = 200 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-2}$ , la capacité calorifique massique est  $c_p = 900 \text{ J.Kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et la convection dans l'air est  $h = 10$

$W.K^{-1}.m^{-2}$ . La demi-longueur du bloc d'aluminium est  $L = 60$  mm. La température initiale est  $T_0 = 20^\circ C$  et la température appliquée par le four est  $T_{ext} = 100^\circ C$ .

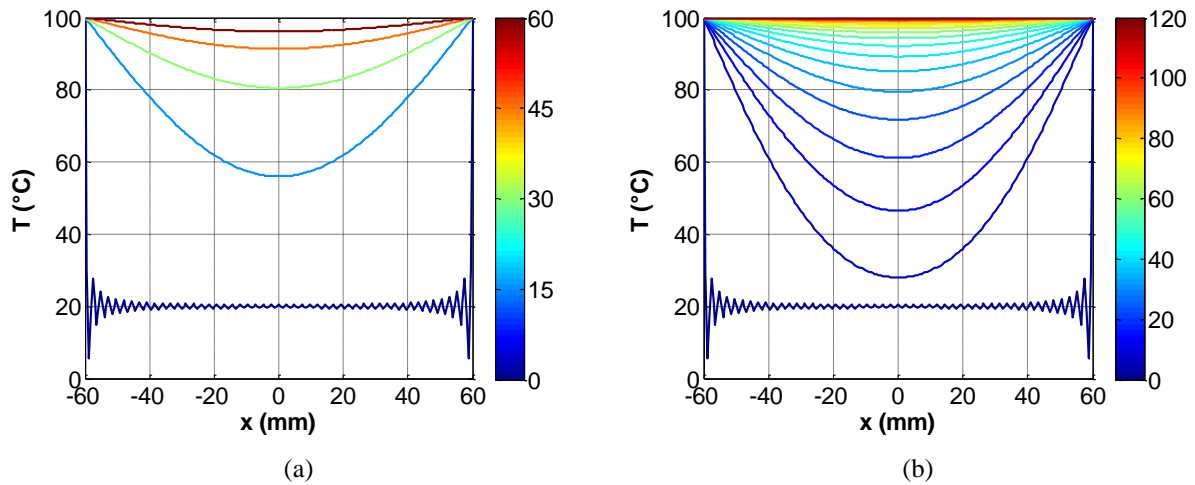


Figure 3.3 : Gradient de température dans un bloc d'aluminium soumis à une température externe  $T_{ext} = 100^\circ C$  aux extrémités  $x = \pm 60$  mm pour les instants  $t = \{0 ; 15 ; 30 ; 45 ; 60\}$  s et (b) uniformisation de la température au cœur du matériau à partir de  $t = 100$  s.

La Figure 3.3 (a) montre le gradient de température en fonction du temps et la longueur des moules en aluminium. La température au niveau des parois ( $x = \pm 60$  mm) est égale à la température extérieure (ceci n'est pas toujours vrai expérimentalement d'après la Figure 3.1). On peut observer un artefact numérique lié à la recombinaison du champ de température par série de Fourier à l'instant  $t = 0$  s : il s'agit du phénomène plus communément connu sous le nom de phénomène de Gibbs, dû au fait que la fonction reconstituée est discontinue à ses extrémités, i.e.  $x = \pm 60$  mm.

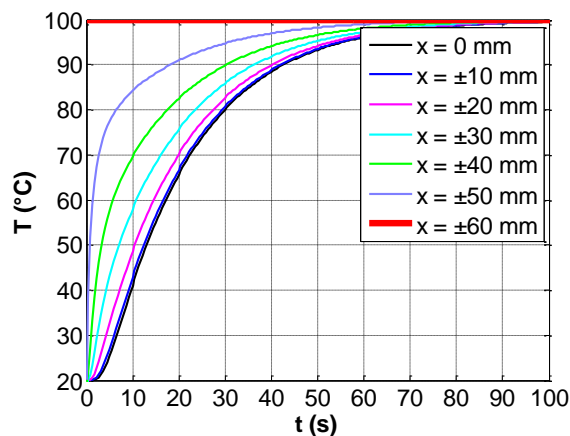


Figure 3.4: Temps de répartition de la température dans les moules en aluminium au cœur ( $x = 0$  mm) jusqu'aux parois ( $x = \pm 60$  mm).



La Figure 3.3 (b) montre que le temps de stabilisation de la température au cœur du matériau à partir de 100 secondes. Sur la Figure 3.4 nous montrons la variation de la température en fonction du temps à différents endroits suivant la longueur des moules en aluminium. Nous remarquons que le chauffage est plus long au cœur du matériau ( $x = 0$  mm). La période pour atteindre la température appliquée ( $T_{\text{ext}} = 100^\circ\text{C}$ ) diminue progressivement en se rapprochant des parois.

## II.3 Hystérésis de la vitesse et de l'atténuation ultrasonore

### II.3.1 Dilatation thermique

La sensibilité en température de la vitesse et l'atténuation longitudinale dans l'époxy est évaluée directement à partir du temps de vol et de l'amplitude. En effet, nous avons pu démontrer que l'effet de la dilatation thermique n'est pas significatif dans notre configuration (Annexe E.1) :

$$c_L(T) = \frac{2d(T)}{\tau(T)} \approx \frac{2d}{\tau(T)} \quad (3.6)$$

De même, nous considérons que  $\alpha(T)$  dépend du rapport de l'amplitude  $A_2(T)/A_1(T)$  :

$$\alpha_L(T) = -\frac{1}{2d(T)} \ln\left(\frac{A_2(T)}{A_1(T)}\right) \approx -\frac{1}{2d} \ln\left(\frac{A_2(T)}{A_1(T)}\right) \quad (3.7)$$

### II.3.2 Cycle thermique

Après avoir étudié l'hystérésis de mesure entre la température appliquée par le four et la température à la surface de l'échantillon et le gradient de température entre les parois des moules et le milieu, nous allons étudier dans ce paragraphe la variation des propriétés ultrasonores dans l'époxy et l'aluminium pendant un cycle thermique. Dans cette étude, l'échantillon en résine époxy durci est polymérisé à une température de consigne isotherme  $T = 35^\circ\text{C}$ . L'époxy est maintenu entre les moules en aluminium à l'intérieur du four suivant le cycle de thermique présenté par la Figure 3.5. Le cycle comporte un palier de 1,5 heure à  $54^\circ\text{C}$ , puis un refroidissement pendant 24 heures jusqu'à une température de  $29^\circ\text{C}$  et un chauffage pendant 4,5 heures jusqu'à une température de  $58^\circ\text{C}$ . Sur la Figure 3.5, la variation de la température dans le four  $T_f$  en fonction du temps d'acquisition s'écrit sous la forme de l'équation suivante (courbe noire):

$$\left\{ \begin{array}{ll} T_f(t_{acq}) = T_{\max,1} & \text{si } 0 < t_{acq} < t_{m,1} \\ T_f(t_{acq}) = T_{\max,1} + (T_{\max,1} - T_{\min}) \cdot \left( 1 - e^{-\frac{t_{acq} - t_{m,1}}{\tau_1}} \right) & \text{si } t_{m,1} < t_{acq} < t_{m,2} \\ T_f(t_{acq}) = T_{\min} + (T_{\min} - T_{\max,2}) \cdot \left( 1 - e^{-\frac{t_{acq} - t_{m,2}}{\tau_2}} \right) & \text{si } t_{m,2} < t_{acq} \end{array} \right. \quad (3.8)$$

avec  $T_{\min} = 29^\circ\text{C}$ ,  $T_{\max,1} = 54^\circ\text{C}$ ,  $T_{\max,2} = 58^\circ\text{C}$ ,  $\tau_1 = 2,5$  h,  $\tau_2 = 0,6$  h,  $t_{m,1} = 1,5$  h et  $t_{m,2} = 25,5$  h. D'après l'ajustement, le chauffage est plus rapide que le refroidissement ( $\tau_1 > \tau_2$ ) ce qui permet par la suite de mesurer une hystérésis entre les propriétés ultrasonores mesurées lors du refroidissement, et celles mesurées lors du chauffage.

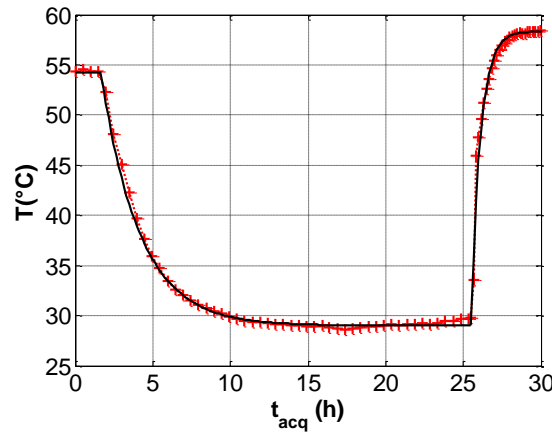


Figure 3.5 : Température mesurée à la surface de l'époxy pendant un cycle thermique appliqué par le four : résultats expérimentaux (courbe en rouge) et modèle d'ajustement (courbe en noir).

### II.3.3 Propriétés ultrasonores

La Figure 3.6 montre la variation des propriétés ultrasonores dans la résine époxy et dans les moules en aluminium pendant le cycle thermique de la Figure 3.5. Nous remarquons l'existence d'une hystérésis entre les propriétés en chauffage et en refroidissement. D'une part, ce phénomène est lié principalement à un facteur thermique dû à la différence de température dans les matériaux et la température de consigne. D'autre part, la réponse d'un matériau pour un chauffage et pour un refroidissement n'est pas la même. Enfin, une transformation de phase dans l'époxy, plus précisément la température de transition vitreuse  $T_g$  induit des propriétés différentes pendant le chauffage et le refroidissement. Pour cette raison, et pour en identifier le comportement, nous allons étudier dans les parties qui suivent,

le comportement ultrasonore de l'époxy pour une gamme de température inférieure à la température de transition vitreuse. Ensuite, nous étudierons le comportement ultrasonore de l'époxy en tenant compte des transformations de phases.

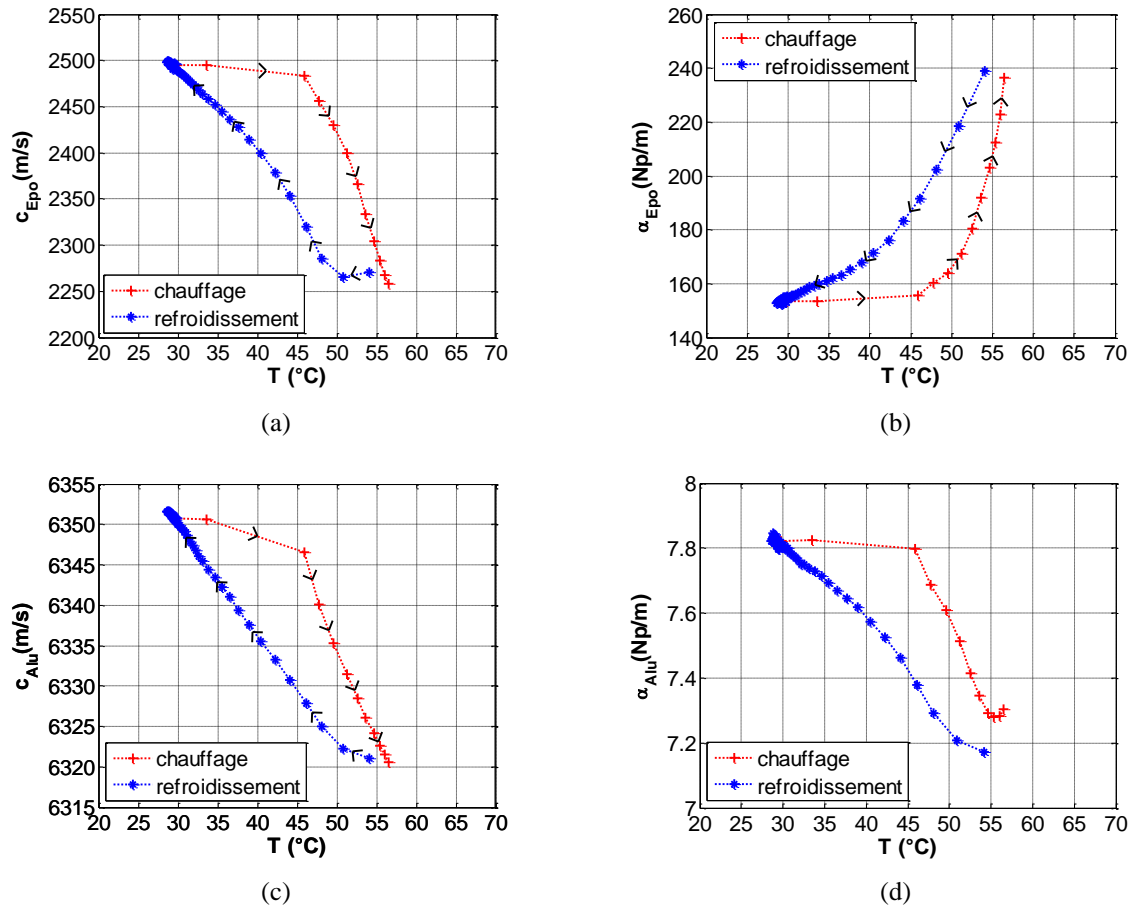


Figure 3.6: Hystérésis des propriétés ultrasonores (a), (c) de la vitesse longitudinale et (b), (d) l'atténuation (a), (d) dans l'époxy et (c), (d) dans les moules en aluminium.

### III Comportement ultrasonore sans transformation de phase ( $T \leq T_g$ )

#### III.1 Cycle de température

La température a été mesurée localement sur l'échantillon en utilisant la sonde Pt100 avec des variations de 46°C jusqu'à 28°C. La Figure 3.7 (a) montre la variation de la température et les signaux acoustiques pendant le refroidissement. Sur la Figure 3.7 (b), les propriétés ultrasonores dans l'époxy sont calculées avec les deux premiers signaux d'aller-

retour  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  respectivement dans le bloc d'aluminium seulement (Alu) et dans l'aluminium et l'époxy (Alu/Epo) (équation (2.2)). Les propriétés ultrasonores de l'aluminium sont calculées à partir des signaux  $s_1(t)$  et  $s_{11}(t)$  qui correspondent à deux allers-retours dans le bloc d'aluminium.

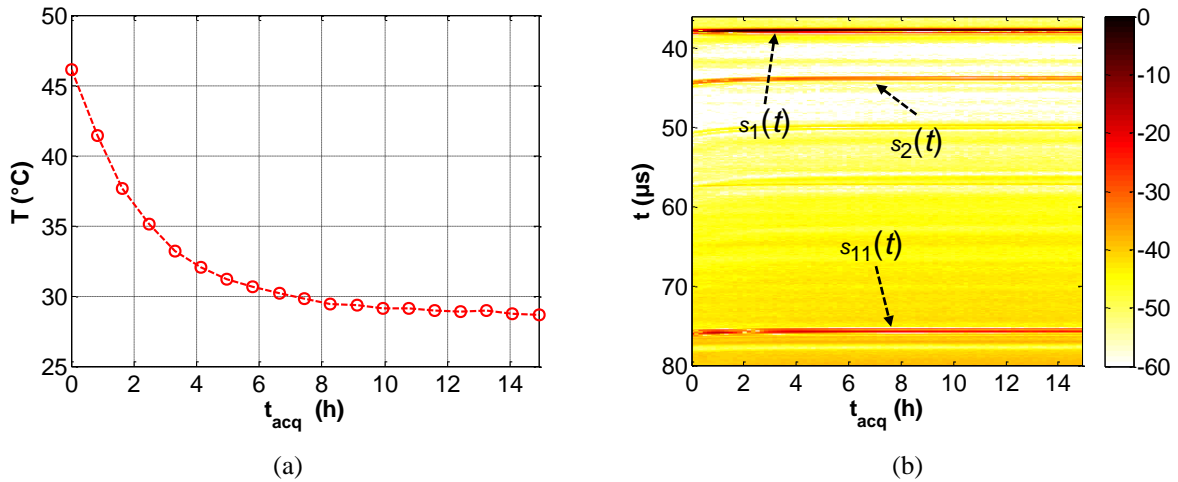


Figure 3.7: Variation en fonction du temps d'acquisition de (a) la température et (b) les signaux temporels pendant un tel refroidissement pour une variation de température de  $T = 46^\circ\text{C}$  à  $28^\circ\text{C}$ .

### III.2 Sensibilité à la température des propriétés ultrasonores

La variation de la vitesse ultrasonore et de l'atténuation dans l'époxy et dans les blocs d'aluminium (Figure 3.8) en fonction de la température sont calculées par la méthode de temps de vol. Les Figure 3.8 (a) et (c) montrent que la vitesse ultrasonore augmente avec la diminution de la température. Cette dépendance négative de température a également été observée au premier chapitre (Figure 1.9) pour les huiles silicones [5]. A basse température, lorsque la résine époxy est encore à l'état vitreux ( $T \leq T_g$ ), il n'y a pas de mouvement des segments de chaîne de polymère, et seules les vibrations et les rotations de liaisons peuvent se produire.

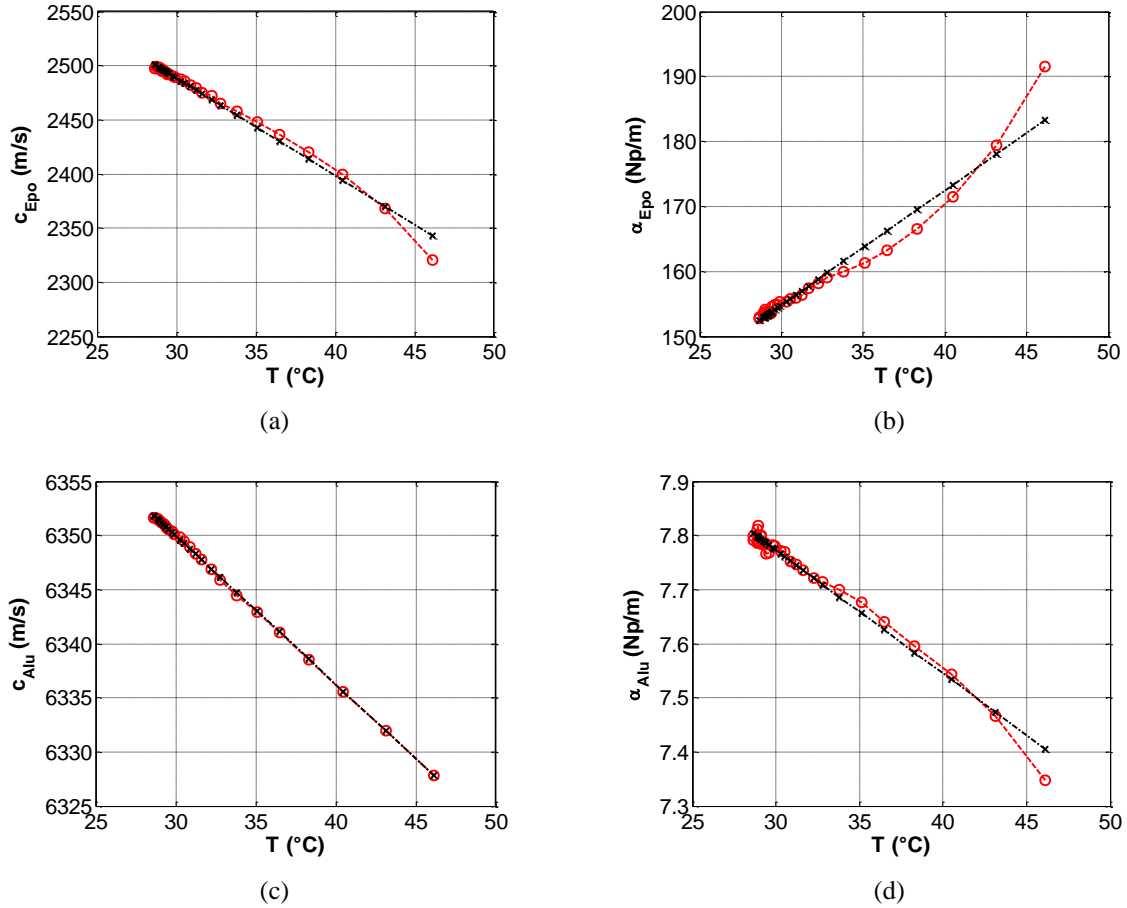


Figure 3.8: Sensibilité à la température de (a), (c) la vitesse longitudinale et (b), (d) l'atténuation dans (a), (b) l'époxy et (c), (d) dans l'aluminium: résultats expérimentaux (courbes rouges) et modèles d'ajustements de l'équation (3.9) (courbes noires).

Dans ce domaine, le matériau a un comportement vitreux car il est encore rigide. Si la température se rapproche de la température de transition vitreuse ( $T_g$ ), le matériau devient plus caoutchouteux et moins élastique, ce qui a pour effet de réduire la vitesse ultrasonore. La dissipation est plus grande si la température augmente, ce qui explique l'augmentation de l'atténuation de l'époxy avec la température (Figure 3.8 (b)). La variation de l'atténuation dans l'aluminium est très faible (Figure 3.8 (d)). Dans ce domaine de température, une loi de variation linéaire permet de décrire la vitesse et l'atténuation dans l'époxy et l'aluminium de la forme suivante (courbes en noir de la Figure 3.8) :

$$\begin{cases} c_{Epo,lin}(T) \approx 2760 - 9.T \\ \alpha_{Epo,lin}(T) \approx 102 - 2,76.T \\ c_{Alu,lin}(T) \approx 6391 - 1,37.T \\ \alpha_{Alu,lin}(T) \approx 8,45 - 0,02.T \end{cases} \quad (3.9)$$

### III.3 Dispersion en fréquence

Le traitement du signal des échos d'aller-retour  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  montre la tendance des paramètres ultrasonores. Néanmoins, la méthode spectrale permet d'étudier la dispersion des propriétés ultrasonores avec la fréquence. Les spectres complexes utiles des signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  sont utilisés pour calculer la dispersion d'atténuation dans l'époxy  $\alpha_{Epo}(f)$  en fonction de la fréquence (équation (2.3)).

#### III.3.1 Modèle linéaire

Une première approche consiste à modéliser l'atténuation avec une dépendance linéaire en fonction de la fréquence. Ainsi, l'atténuation peut être ajustée par une loi linéaire:

$$\alpha_{Epo,l}(f) = \alpha_{a,l} \left( \frac{f}{f_c} \right) \quad (3.10)$$

où  $\alpha_{a,l}$  (Np/m) est la constante d'atténuation à la fréquence  $f_c$  (Hz) qui est la fréquence du centroïde du deuxième écho  $s_2(t)$  à une température donnée. La Figure 3.9 montre les mesures de la fréquence  $f_c$  et de l'atténuation associée  $\alpha_{a,l}$  en fonction de la température. Tout d'abord, la dépendance de la fréquence du centroïde  $f_c$  (Figure 3.9 (a)) en fonction de la température est calculée sur le spectre du deuxième écho  $\underline{S}_2(f)$ . Ensuite, la constante d'atténuation  $\alpha_{a,l}$  présente d'atténuation ultrasonore à la fréquence  $f_c$  (Figure 3.9 (b)). Les paramètres  $f_c(T)$  et  $\alpha_{a,l}(T)$  ont été ajustés avec des tendances linéaire (courbes en noir de la Figure 3.9). Dans ce cas, la nouvelle forme de l'équation (3.10) s'écrit en fonction de la température sous l'écriture suivante :

$$\alpha_l(f,T) \approx \alpha_{a,l}(T) \left( \frac{f}{f_c(T)} \right) \quad (3.11)$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} f_c(T) \approx 3,25 \times 10^6 - 7,1 \cdot 10^3 T \\ \alpha_{a,l}(T) \approx 70 + 2,47 T \end{cases}$$

Dans l'équation (3.11), les paramètres  $f_c(T)$  et  $\alpha_{a,l}(T)$  ont été ajustés avec des tendances linéaires car nous supposons qu'il n'y a pas de changement de phase dans l'époxy dans cette gamme de température. La dispersion expérimentale de l'atténuation en fonction de la fréquence et de la température est donnée par la Figure 3.10 (a). Sur cette Figure 3.10 (a), l'atténuation est calculée avec la méthode spectrale dans une gamme de fréquence entre 2 MHz et 5 MHz pour les valeurs de température  $T = 30, 35, 40$  et  $44^\circ\text{C}$ . Nous remarquons

que l'atténuation augmente avec la température et possède une tendance linéaire avec la fréquence.

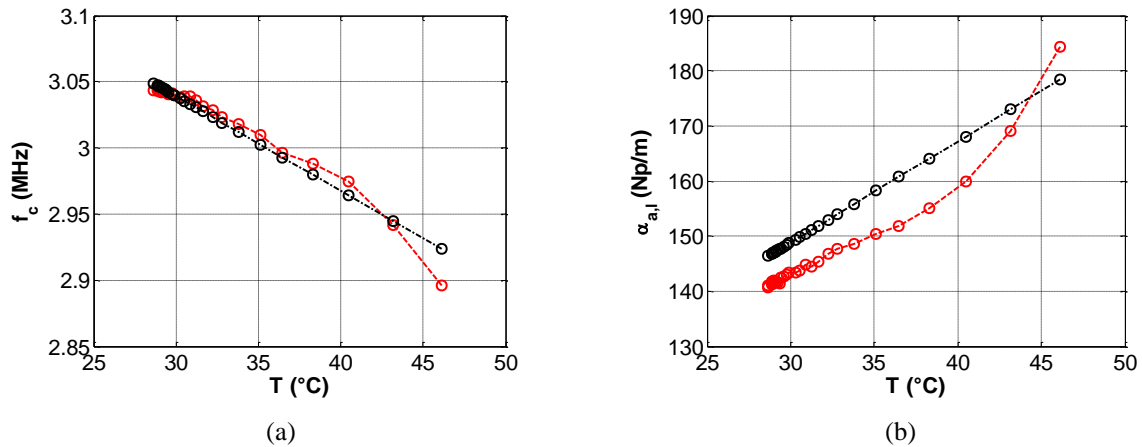


Figure 3.9: Sensibilité en température de (a) la fréquence du centroïde  $f_c$  (MHz) du signal  $s_2(t)$  et (b) de l'atténuation  $\alpha_{a,l}$  (Np/m) à cette fréquence  $f_c$  pendant le refroidissement pour une variation de température de  $T = 46^\circ\text{C}$  à  $28^\circ\text{C}$ . Ajustement linéaire (équation (3.11)) correspondant (courbes pointillés en noir avec des marqueurs).

Le modèle linéaire  $\alpha_l(f, T)$  de l'équation (3.11) est présenté sur la Figure 3.10 (a) avec les courbes pointillées en noir. Le modèle est capable de tenir compte des tendances de l'atténuation avec la fréquence et la température dans l'époxy mais la précision de la modélisation est assez restreinte. La Figure 3.10 (b) montre la variation de  $\ln(\alpha_l)$  en fonction de  $\ln(f/f_c)$  dans l'équation (3.11).

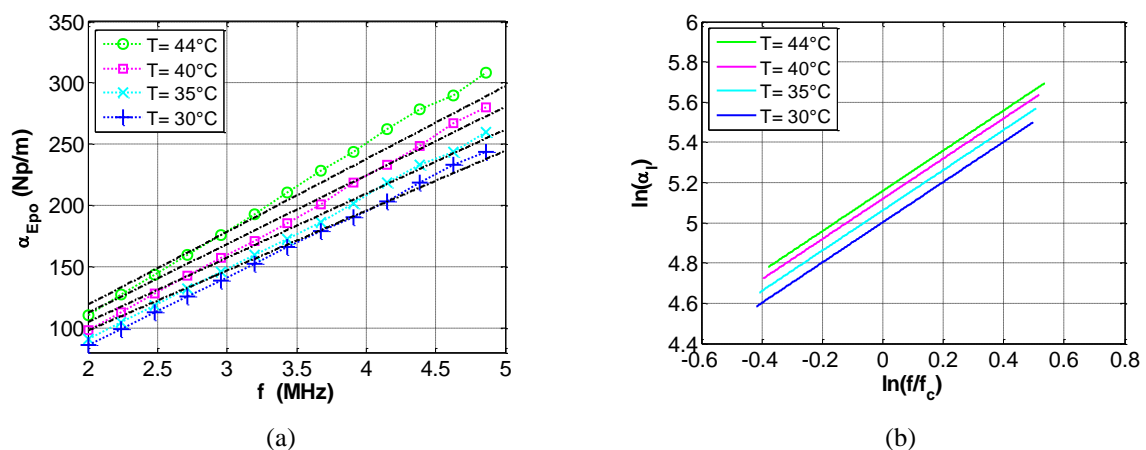


Figure 3.10: Dispersion des propriétés ultrasonores de (a) l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$  (courbes pointillées avec des marqueurs) et comparaison avec le modèle linéaire  $\alpha_l(f, T)$  (courbes pointillées en noir) et (b) de la variation de  $\ln(\alpha_l)$  en fonction de  $\ln(f/f_c)$ .

### III.3.2 Modèle puissance

Dans une approche plus précise validée pour une grande variété de matériaux [3][4], l'atténuation peut être modélisée pour une température donnée sur une bande passante finie par une loi de puissance de la forme suivante:

$$\alpha_p(f) = \alpha_{a,p} \left( \frac{f}{f_c} \right)^p \quad (3.12)$$

où  $\alpha_{a,p}$  (Np/m) est une constante d'atténuation du modèle puissance et  $p$  est un nombre réel positif entre 1 et 2.

Les sensibilités avec la température des paramètres de la loi puissance ( $\alpha_{a,p}$ ,  $p$ ) sont illustrées par la Figure 3.11 (a) et (b). Le coefficient d'atténuation  $\alpha_{a,p}$  (Np/m) augmente avec la température, c'est-à-dire que lors du refroidissement, la dissipation ultrasonore de l'époxy diminue lorsque l'époxy passe de l'état caoutchouteux à l'état vitreux. En résultat, ce coefficient d'atténuation  $\alpha_{a,p}$  (Np/m) augmente de manière significative avec la température, i.e. plus de 35% de variation pour  $T \in [28; 46]$  °C. Cette variation est également observée pour le coefficient d'atténuation  $\alpha_{a,l}$  correspondant au modèle linéaire (Figure 3.9 (a)). D'autre part, le coefficient de puissance  $p$  (Figure 3.11 (b)) et la fréquence du centroïde  $f_c$  (Figure 3.9 (b)) sont faiblement sensibles à la température. L'erreur sur le paramètre  $p$  peut être quantifiée en relevant que  $f_{\max}/f_0 = 5/3$ , soit  $(f_{\max}/f_0)^{p_{\max}} / (f_{\max}/f_0)^{p_{\min}} = 1,01$  i.e. une variation de moins de 1% pour  $T \in [28; 46]$  °C.

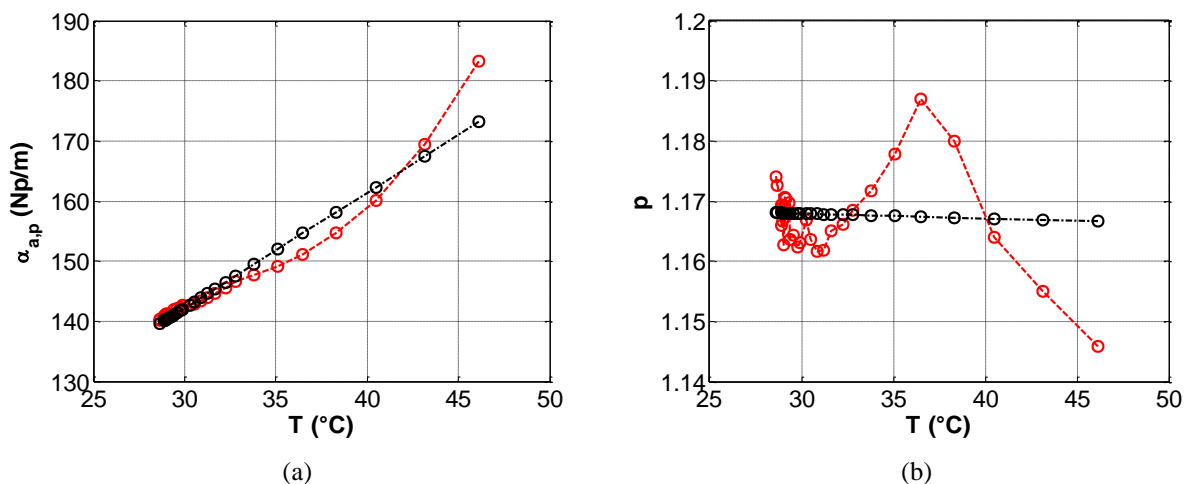


Figure 3.11: Sensibilité en température des paramètres de la loi puissance : (a) constante d'atténuation  $\alpha_{a,p}$  (Np/m) et (b) constante de puissance  $p$  pendant le refroidissement pour une gamme de température entre  $T = 46^\circ\text{C}$  et  $28^\circ\text{C}$ . Ajustement linéaire (équation (3.11)) correspondant (courbes pointillés en noir avec des marqueurs).



Avec la même démarche, nous trouvons que l'erreur sur la fréquence du centroïde est moins de 5%. Par conséquent, au début du refroidissement, la température est  $T \approx 46^\circ\text{C}$  et la fréquence du centroïde est  $f_c \approx 2,89$  MHz; à la fin du refroidissement, la température est  $T \approx 28^\circ\text{C}$  et la fréquence du centroïde est  $f_c \approx 3,05$  MHz. Les paramètres de puissance correspondants sont  $p \approx 1,14$  et  $1,19$  pour  $T \approx 46^\circ\text{C}$  et  $28^\circ\text{C}$ . Les paramètres  $\alpha_{a,p}(T)$  et  $p(T)$  ont été ajustés avec des tendances linéaires (courbes en noir de la Figure 3.11). Dans ce cas, le modèle de puissance s'écrit sous la forme suivante :

$$\alpha_p(f, T) \approx \alpha_{a,p}(T) \left( \frac{f}{f_c(T)} \right)^{p(T)} \quad (3.13)$$

avec 
$$\begin{cases} \alpha_{a,p}(T) \approx 84,56 - 2.T \\ p(T) \approx 1,17 - 8.10^{-5}.T \end{cases}$$

La comparaison entre la dispersion expérimentale de l'atténuation en fonction de la fréquence et le modèle puissance  $\alpha_p(f, T)$  (équation (3.13)) est donnée par la Figure 3.12 (a) pour une variation de température  $T = 30, 35, 40$  et  $44^\circ\text{C}$ . Dans ce domaine de température et une gamme de fréquence entre 2 MHz et 5 MHz, le modèle puissance (équation (3.13)) donne un meilleur ajustement par rapport au modèle linéaire (équation (3.11)).

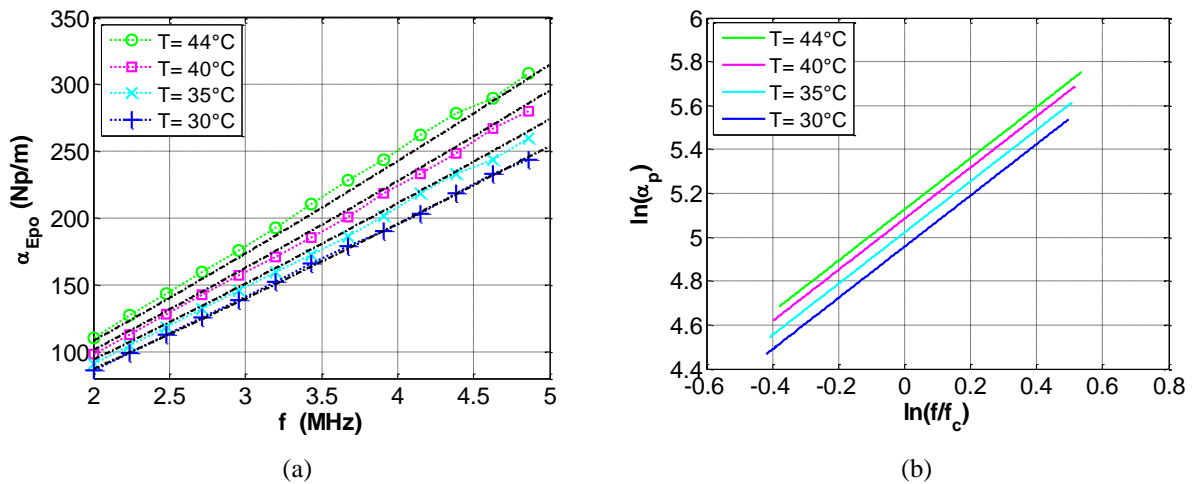


Figure 3.12: Dispersion des propriétés ultrasonores de l'atténuation : (a) comparaison entre les résultats expérimentaux  $\alpha_{Epo}(f)$  (courbes pointillés avec des marqueurs) et le modèle de puissance  $\alpha_l(f, T)$  de l'équation (3.13) (courbes pointillés en noir) et (b) variation de  $\ln(\alpha_p)$  en fonction de  $\ln(f/f_c)$ .

Pour valider le modèle de la loi puissance, la dispersion de la vitesse ultrasonore  $c_{Epo}(f)$  a été calculée en utilisant de modèle de Szabo [6] pour une variation de température  $T = 30, 35, 40$  et  $44^\circ\text{C}$  (Figure 3.13). Nous remarquons que la vitesse diminue avec la

température et possède une tendance linéaire avec la fréquence. Le modèle de dispersion de Szabo calculé à partir de la loi puissance permet de modéliser le comportement ultrasonore de l'époxy dans cette gamme de fréquence et pour cette variation de température. La sensibilité avec la température des paramètres de la loi puissance ( $\alpha_{a,p}, f_c, p$ ) nous permet alors d'identifier la dispersion de vitesses ultrasonores selon Szabo (équation (1.20)).

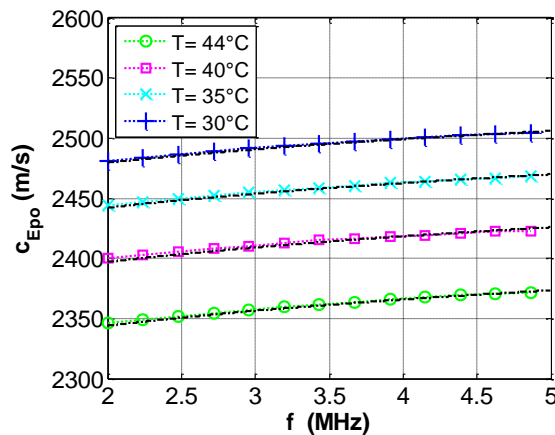


Figure 3.13: Comparaison entre la dispersion de la vitesse ultrasonore expérimentale  $c_{Epo}(f)$  (courbes pointillées avec des marqueurs) et le modèle de Szabo (courbes pointillées en noir) calculé à partir de la loi de puissance (équation (3.13)).

Les modèles linéaires et puissances permettent de caractériser la dispersion de l'atténuation avec la fréquence. Dans le paragraphe qui suit, nous essaierons de développer un lien entre le modèle puissance et un modèle Cole-Cole, utilisé en rhéologie pour étudier le comportement de l'époxy.

### III.3.3 Modèle Cole-Cole

La modélisation de la dispersion de l'atténuation avec la fréquence de l'onde ultrasonore longitudinale en résine thermodurcissable permet d'identifier les paramètres viscoélastiques. Dans ce contexte, Challis [1][2] a montré que le modèle de Cole-Cole simule avec succès la propagation des ondes dans une résine durcie. Dans le premier chapitre, les relations entre la loi de puissance et les paramètres Cole-Cole ont été développées et validées expérimentalement dans un ensemble d'expériences à température constante pour les huiles silicone. En tenant en compte de la loi puissance de l'équation (3.12) afin de prendre en compte les paramètres viscoélastiques (Annexe A.2), le modèle Cole-Cole s'écrit sous la forme suivante:

$$\alpha_c(f, T) = \frac{\eta_0 \tau^{-2}}{2\rho_{Epo} c_{Epo}^3} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right) \left(\frac{f}{f_c}\right)^{\beta+1} \quad (3.14)$$

où  $\eta_0$  (Pa.s) représente la viscosité dynamique newtonienne à basse fréquence,  $\tau$  est le temps de relaxation et  $\beta$  (entre 0 et 1) est un facteur indicateur de la largeur de distribution des temps de relaxation. L'équation (3.14) est valable uniquement si  $\omega\tau \gg 1$  en supposant que  $\tau = 1/(2\pi f_c)$ . L'identification entre les équations (3.12) et (3.14) permet de donner la relation entre les paramètres viscoélastiques et ultrasonores :

$$\begin{cases} \eta_0 = \frac{2\rho_{Epo} c_{Epo}^3 \alpha_{a,p}}{\tau^{-2} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right)} \\ \beta = p - 1 \end{cases} \quad (3.15)$$

Les sensibilités avec la température des paramètres viscoélastiques ( $\eta_0$ ,  $\tau$ ,  $\beta$ ) sont illustrées par la Figure 3.14 (a), (b) et (c). La viscosité dynamique  $\eta_0$  (Pa.s) (Figure 3.14 (a)) augmente avec la température, i.e. lors du refroidissement, la viscosité diminue lorsque l'époxy passe de l'état caoutchouteux à l'état vitreux. Le temps de relaxation  $\tau = 1/(2\pi f_c)$  (Figure 3.14 (b)) diminue aussi avec la température lorsque le matériau passe de l'état caoutchouteux à l'état vitreux. Le paramètre  $\beta$  (Figure 3.14 (c)) est faiblement sensible à la température. En utilisant les équations (3.14) et (3.15), la dispersion de l'atténuation  $\alpha_c(f, T)$  suivant le modèle Cole-Cole est donnée par la Figure 3.14 (d). Ce modèle qui est obtenu à partir d'une approximation en lien avec la loi puissance, est en très bon accord avec les résultats expérimentaux.

Par conséquent, la loi linéaire  $\alpha_{Epo,i}(f)$  (équation (3.11)) montre des tendances adéquates, mais la précision de la modélisation est assez restreinte. Cela a conduit à une modélisation plus précise en utilisant la loi puissance  $\alpha_{Epo,p}(f)$  (équation (3.13)). Cette approche permet d'une part de montrer que la dispersion de l'atténuation avec une loi puissance est sensible à la température. D'autre part, nous pouvons modéliser la dispersion de la vitesse ultrasonore avec un modèle quasi-local tel que l'approche développée par Szabo. Le modèle Cole-Cole permet de développer un lien entre les paramètres ultrasonores de la loi puissance ( $\alpha_{a,p}$ ,  $f_c$ ,  $p$ ) et les paramètres viscoélastique ( $\eta_0$ ,  $\tau$ ,  $\beta$ ).

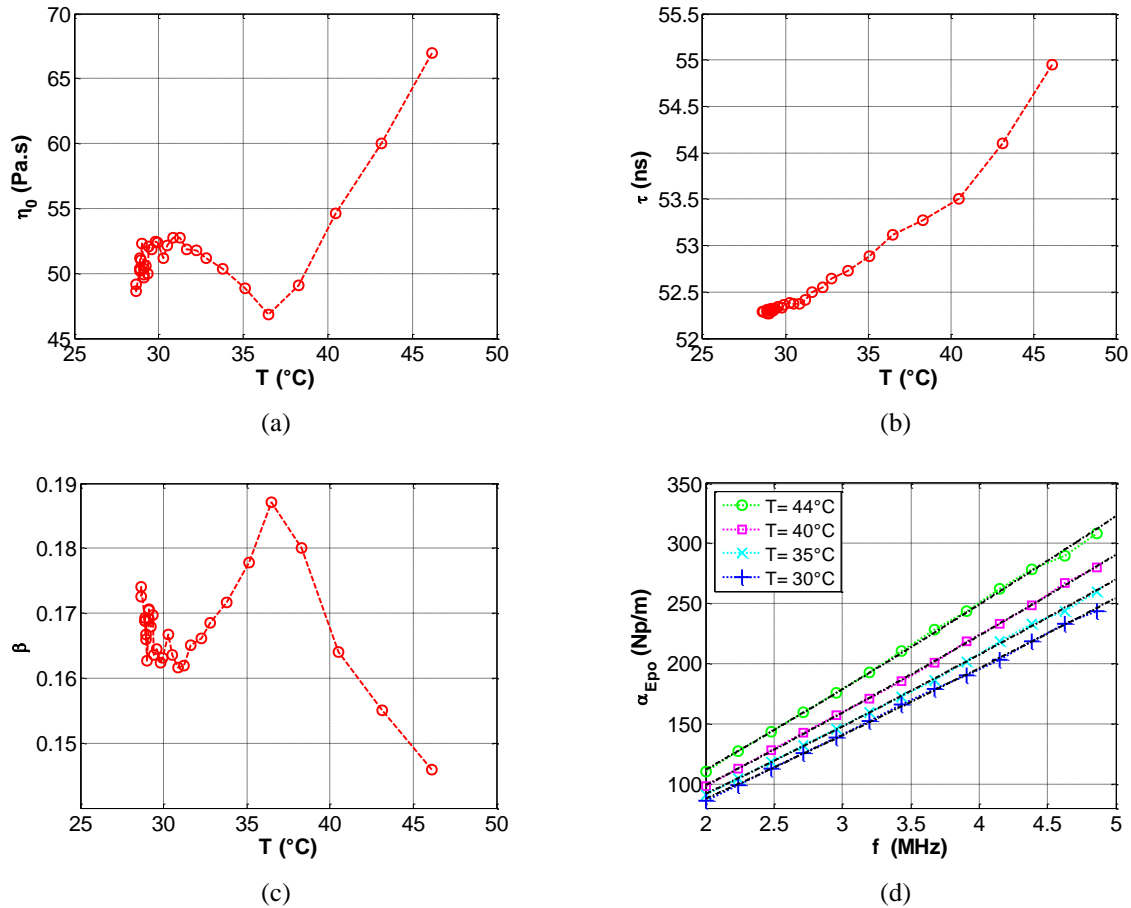


Figure 3.14: Sensibilité en température des paramètres du modèle Cole-Cole: (a) viscosité dynamique newtonienne  $\eta_0$  (Pa.s), (b) temps de relaxation  $\tau$  (ns), (c) facteur indicateur de la largeur de distribution des temps de relaxation  $\beta$  et (d) comparaison entre les résultats expérimentaux  $\alpha_{Epo}(f)$  (courbes en pointillés avec des marqueurs) et le modèle Cole-Cole  $\alpha_c(f, T)$  (équation (3.14)) (courbes en pointillés en noir).

### III.4 Modèle approché de la dispersion ( $f, T$ )

En se basant sur les résultats expérimentaux, nous pouvons identifier la dépendance en fréquence et en température ( $f, T$ ) des propriétés ultrasonores ( $\alpha_{Epo}, c_{Epo}$ ) pour une gamme restreinte, i.e.  $f \in [2; 5]$  MHz et  $T \in [28; 46]$ °C. D'une part, la dispersion de l'atténuation ultrasonore en fonction de la fréquence varie suivant une loi puissance (Figure 3.12 (a)). Cette atténuation varie linéairement avec la température (Figure 3.8 (b)). D'autre part, la dispersion de la vitesse ultrasonore varie linéairement avec la fréquence si nous considérons l'approximation linéaire du modèle de Szabo. Cette vitesse ultrasonore varie linéairement avec la température (Figure 3.8 (a)). Par conséquent, l'atténuation dépend de la fréquence avec une loi de puissance (équation (3.12)), et de la température avec une forme quadratique. De la

même manière, la vitesse dépend linéairement de la fréquence et sous une forme quadratique de la température :

$$\begin{cases} \alpha_{Epo,f,T}(f, T) = \alpha_0 \left( \frac{f}{f_c} \right)^p \left( 1 + a_{T,\alpha} (T - T_{ref})^2 \right) \\ c_{Epo,f,T}(f, T) = c_0 \left( 1 + a_{f,c} (f - f_c) \right) \left( 1 + b_{T,c} (T - T_{ref}) + a_{T,c} (T - T_{ref})^2 \right) \end{cases} \quad (3.16)$$

où  $\alpha_0 = 148$  Np/m est l'atténuation et  $c_0 = 2492$  m/s est la vitesse ultrasonore à la température de référence  $T_{ref} = 30^\circ\text{C}$ . Une bonne approximation ( $\alpha_{Epo,f,T}$ ,  $c_{Epo,f,T}$ ) est obtenue si l'on considère les valeurs moyennes de la fréquence  $f_c \approx 2,975$  MHz et le paramètre de puissance  $p \approx 1,168$  qui sont faiblement sensibles à la température entre  $28^\circ\text{C}$  et  $46^\circ\text{C}$ .

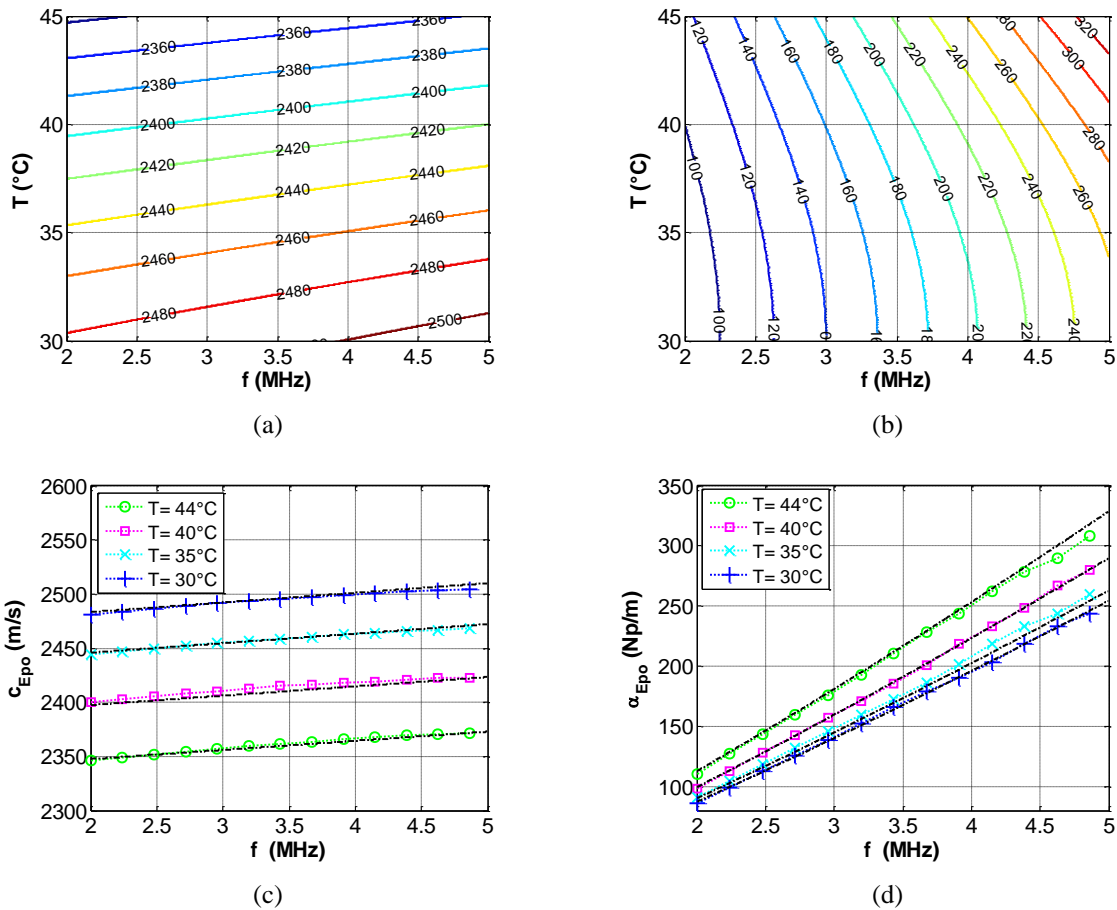


Figure 3.15: Dispersions en fréquence et en température de (a) la vitesse  $c_{Epo,f,T}(f, T)$  et (b) l'atténuation  $\alpha_{Epo,f,T}(f, T)$  (équation (3.16)). Comparaison entre les résultats expérimentaux (courbes en pointillés avec des marqueurs) et le modèle  $(f, T)$  pour (c) la vitesse  $c_{Epo}(f)$  et (d) l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$ , pour  $T = \{30, 35, 40, 44\}^\circ\text{C}$ .

En utilisant la méthode de moindre carrés, les coefficients d'ajustement identifiés sont  $a_{T,\alpha} \approx 1,45 \cdot 10^{-3}$ ,  $a_{f,c} \approx 3,58 \cdot 10^{-9}$ ,  $a_{T,c} \approx -7,4 \cdot 10^{-5}$ ,  $b_{T,c} \approx -2,8 \cdot 10^{-3}$ . Par conséquent, les dispersions en fréquence et en température de la vitesse  $c_{Epo}(f, T)$  (Figure 3.15 (a)) et de l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f, T)$  (Figure 3.15 (b)) illustrent les ajustements définis dans l'équation (3.16). La comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle  $(f, T)$  (équation (3.16)) est représentée sur les Figure 3.15 (c) et (d). Ainsi, le modèle  $(f, T)$  est en bon accord avec les résultats expérimentaux et permet de décrire la variation des paramètres ultrasonores dans cette gamme de fréquence et de température.

## IV Comportement ultrasonore en tenant compte les transformations de phase

Dans ce paragraphe, nous étudierons le comportement de l'époxy dans une gamme de température qui inclut la température de transition vitreuse  $T_g$ . L'objectif est d'étudier le comportement ultrasonore lorsque la transformation de phase est ajoutée au facteur thermique.

### IV.1 Variation des propriétés ultrasonores

La variation de la vitesse ultrasonore  $c_{Epo}(f)$  et de l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$  dans l'époxy en fonction de la température sont calculées avec la méthode spectrale pour  $f \in [1; 3]$  MHz et  $T \in [25; 66]^\circ\text{C}$ .

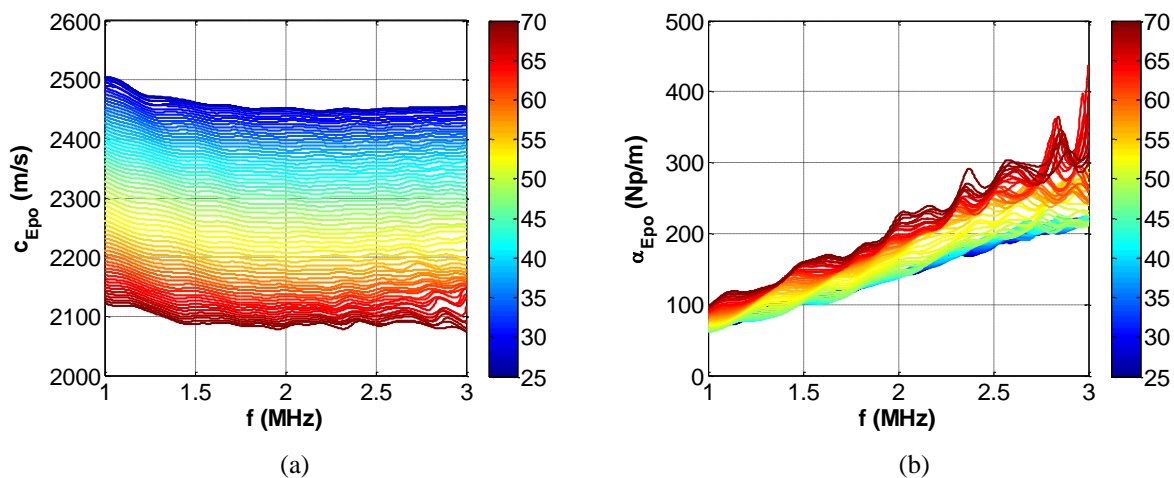


Figure 3.16: Dispersions en fréquence et en température (a) de la vitesse et (b) de l'atténuation dans l'époxy pour  $f \in [1; 3]$  MHz et  $T \in [25; 66]^\circ\text{C}$ .

L'échantillon d'étude en époxy durci, a été polymérisé à une température de consigne isotherme de  $T = 35^{\circ}\text{C}$ . La vitesse ultrasonore (Figure 3.16 (a)) diminue en fonction de la température et possède une tendance linéaire avec la fréquence. L'atténuation ultrasonore (Figure 3.16 (b)) possède une variation spécifique en fonction de la température et montre une tendance en puissance avec la fréquence.

## IV.2 Identification des transformations thermiques

### IV.2.1 Calorimétrie différentielle à balayage (DSC)

La technique de caractérisation par calorimétrie différentielle à balayage (Differential Scanning Calorimetry ou DSC) est une technique qui permet de déterminer les transitions de phase dans les polymères. La Figure 3.17 montre la variation du flux de chaleur en fonction de la température lors d'un chauffage entre  $25^{\circ}\text{C}$  et  $70^{\circ}\text{C}$ . En utilisant la méthode de la tangente, une transition vitreuse est identifiée à une température  $T_g = 48^{\circ}\text{C}$ . Une relaxation d'enthalpie est observée à une température  $T_e = 57^{\circ}\text{C}$ . Ce phénomène de relaxation correspond à la libération des contraintes emmagasinées par l'échantillon lors de sa mise en forme. Il peut s'agir de contraintes mécaniques ou thermiques. Cette libération de contrainte se traduit par une absorption d'énergie d'où le pic endothermique observé.

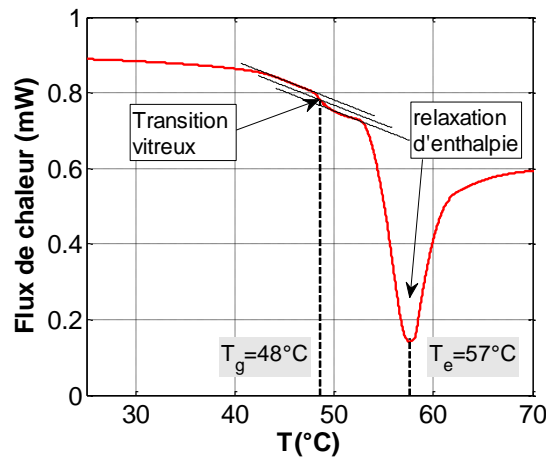


Figure 3.17: Identification des transformations thermiques de l'époxy durci avec la méthode DSC.

### IV.2.2 Caractérisation par les ultrasons

Pour étudier la variation des propriétés ultrasonores avec la température, nous avons relevé la vitesse ultrasonore  $c_{Epo}(f)$  et l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$  dans l'époxy en fonction de la

température à la moyenne de la bande de fréquence  $f = 2$  MHz (Figure 3.18). La Figure 3.18 peut être décomposée en trois parties. La première partie est contenue entre 25°C et 40°C où la sensibilité des paramètres ultrasonores avec la température est faible. Dans cette zone, les paramètres ultrasonores sont faiblement sensibles à la température vu que l'échantillon d'époxy est toujours à l'état vitreux ce qui explique la tendance linéaire des propriétés ultrasonores.

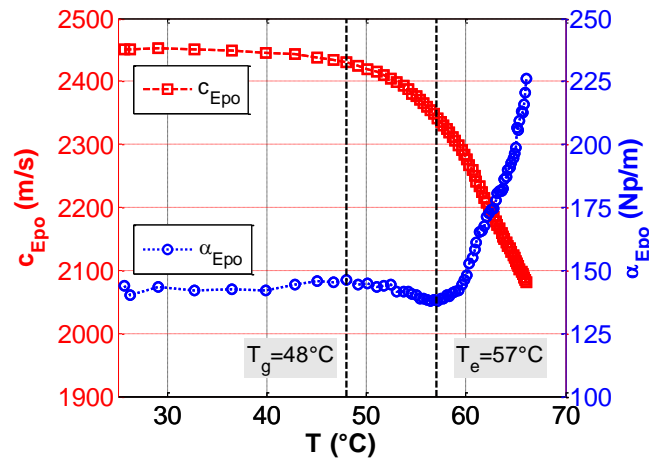


Figure 3.18: Identification des transformations thermiques d'un époxy durci avec les mesures ultrasonores de la vitesse  $c_{Epo}(f_m = 2$  MHz) et de l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f_m = 2$  MHz).

Dans la deuxième partie comprise entre 40°C et 60°C, les propriétés ultrasonores possèdent des tendances non linéaires avec la température. Dans cette zone, la vitesse ultrasonore diminue progressivement. L'atténuation possède deux pics, le premier correspond à la température de transition vitreuse  $T_g = 48^\circ\text{C}$  et le deuxième qui est plus significatif correspond à la relaxation d'enthalpie à la température  $T_e = 57^\circ\text{C}$ . Ces résultats qui sont en bon accord avec les mesures calorimétriques (Figure 3.17), montrent la capacité des ondes ultrasonores à identifier les transformations thermiques dans l'époxy. La troisième partie est comprise entre 60°C et 66°C. Dans cette zone, les propriétés ultrasonores possèdent des tendances linéaires avec la température. L'époxy est alors à l'état caoutchouteux, donc plus visqueux ce qui explique l'augmentation d'atténuation ultrasonore et la diminution de la vitesse avec une forte sensibilité par rapport à la température.



### IV.3 Modèle approché de la dispersion ( $f, T$ ) en fréquence et en température

#### IV.3.1 Comportement de l'époxy avec la température

Nous avons vu au paragraphe précédent que les propriétés ultrasonores de l'époxy durci possèdent une tendance linéaire dans la zone viscoélastique et caoutchouteuse. La phase viscoélastique est caractérisée par une température  $T \in [25; 46]^\circ\text{C}$  et la phase caoutchouteuse est caractérisée par une gamme de température  $T \in [60; 66]^\circ\text{C}$ . Dans cette gamme de température, la vitesse ultrasonore et de l'atténuation en fonction de la température varient linéairement sous la forme suivante:

$$\begin{cases} c_{L,i} = a_{c,i} \cdot T + b_{c,i} \\ \alpha_{L,i} = a_{\alpha,i} \cdot T + b_{\alpha,i} \end{cases} \quad \text{si } T \in [25; 40]^\circ\text{C} \text{ ou } T \in [60; 66]^\circ\text{C} \quad (3.17)$$

où le paramètre  $i = 1$  définit la phase viscoélastique si  $T \in [25; 40]^\circ\text{C}$  et  $i = 2$  définit la phase caoutchouteuse si  $T \in [60; 66]^\circ\text{C}$ . La variation des paramètres de l'équation (3.17) sont résumés dans le Tableau 3.1:

Tableau 3.1: Variation des paramètres de l'équation (3.17).

$T$ ( $^\circ\text{C}$ )	$a_{c,i}$ (m/s. $^\circ\text{C}^{-1}$ )	$b_{c,i}$ (m/s)	$a_{\alpha,i}$ (Np/m. $^\circ\text{C}^{-1}$ )	$b_{\alpha,i}$ (Np/m)
[28; 46]	0,629	2467	0,0945	141,53
[60; 66] $^\circ$	32,18	4207	16,02	832,03

L'ajustement linéaire de l'équation (3.17) avec la courbe expérimentale est présenté sur la Figure 3.19. Dans ces figures, nous vérifions bien que le modèle linéaire de l'équation (3.17) tient compte de la variation des paramètres ultrasonores dans une gamme de température  $T \in [25; 40]^\circ\text{C}$  et  $T \in [60; 66]^\circ\text{C}$ .

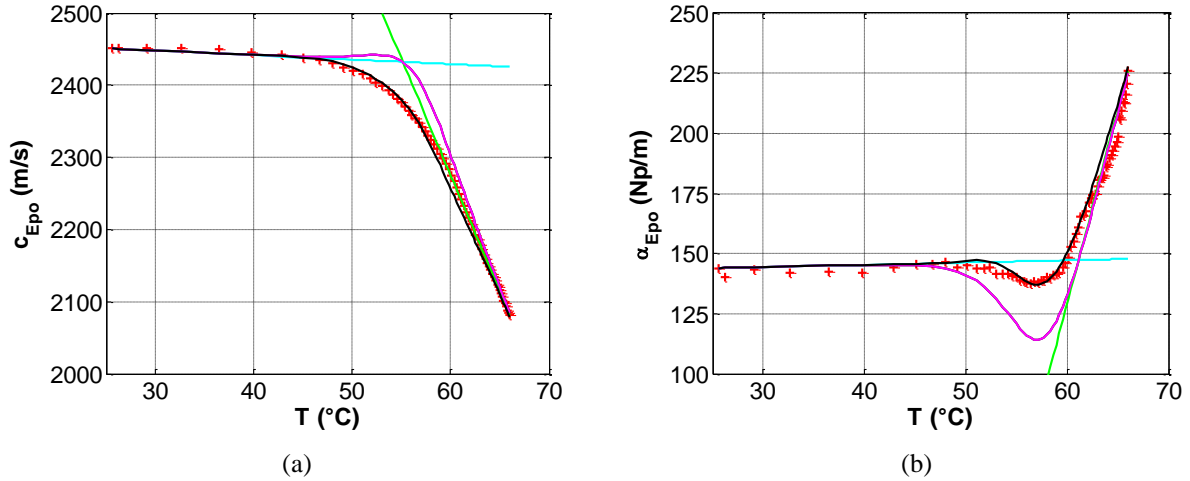


Figure 3.19 : Variation des propriétés ultrasonores (a) de la vitesse  $c_{Epo}$  (m/s) et (b) de l'atténuation  $\alpha_{Epo}$  (Np/m): les résultats d'expériences (rouge) et ajustements linéaires de l'équation (3.17) en cyan si  $T \in [28; 46]$  et en vert si  $T \in [60; 66]$ °C ; influence de la loi de mélange de l'équation (3.19) (magenta) et l'écriture finale de l'équation (3.21) (noir) avec des coefficients de pondérations.

La zone de transition vitreuse ( $T \in [40; 60]$ °C) est caractérisée par un comportement non linéaire des propriétés ultrasonores par rapport à la température de cuisson. Pour relier les deux zones, nous ajoutons une loi de mélange  $k(T)$  qui s'écrit sous la forme suivante:

$$k(T) = \frac{1}{2} \left( 1 + \tanh \left( \frac{T - T_e}{K} \right) \right) \quad (3.18)$$

En utilisant la loi de mélange  $k(T)$  paramétrée par  $\{K, T_e\}$  et l'équation (3.17), nous pouvons écrire la vitesse ultrasonore et l'atténuation en fonction de la température sur toute la gamme de température  $T \in [25; 66]$ °C :

$$\begin{cases} c_{L,m}(T) = c_{L,1}(T) \cdot (1 - k(T)) + c_{L,2}(T) \cdot k(T) \\ \alpha_{L,m}(T) = \alpha_{L,1}(T) \cdot (1 - k(T)) + \alpha_{L,2}(T) \cdot k(T) \end{cases} \quad (3.19)$$

La variation des propriétés ultrasonores de l'équation (3.19) est présentée sur la Figure 3.19 en magenta. La variation de la loi de mélange  $k(T)$  pour  $K = 4$ °C et  $T_e = 57$ °C dans une gamme de température  $T \in [25; 66]$ °C est présentée par la Figure 3.20.

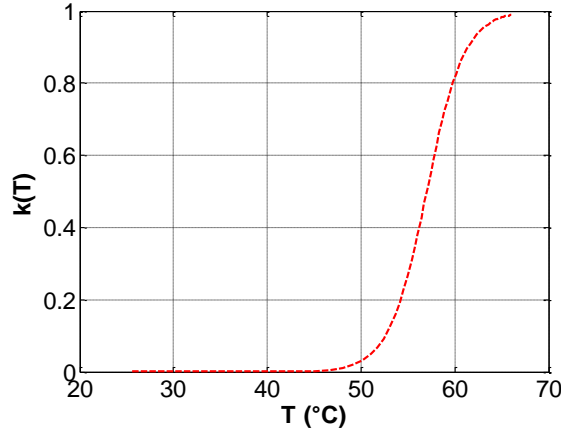


Figure 3.20: Variation de la loi de mélange  $k(T)$  (équation (3.18)) pour  $K = 4$  et  $T_e = 57^\circ\text{C}$  dans une gamme de température  $T \in [25; 66]^\circ\text{C}$ .

Cependant, cette équation (3.19) n'est pas suffisante pour modéliser le comportement des propriétés ultrasonores en fonction de la température. Pour tenir compte de la transition vitreuse, nous ajoutons des coefficients de pondérations  $P_c(T)$  et  $P_\alpha(T)$  sous une forme gaussienne, écrite sous la façon suivante:

$$\begin{cases} P_c(T) = \exp\left(-\left(\frac{T-T_e}{\beta_c}\right)^2\right) \\ P_\alpha(T) = \exp\left(-\left(\frac{T-T_e}{\beta_\alpha}\right)^2\right) \end{cases} \quad (3.20)$$

Si nous ajoutons les coefficients de pondérations de l'équation (3.20) à l'équation (3.19), la variation des propriétés ultrasonores en fonction de la température s'écrit :

$$\begin{cases} c_{Lt}(T) = c_{Lt,1}(T) \cdot (1-k(T)) + c_{Lt,2}(T) \cdot k(T) + c_{Lt,ajust} \cdot P_c(T) \\ \alpha_{Lt}(T) = \alpha_{Lt,1}(T) \cdot (1-k(T)) + \alpha_{Lt,2}(T) \cdot k(T) + \alpha_{Lt,ajust} \cdot P_\alpha(T) \end{cases} \quad (3.21)$$

Les variations des propriétés ultrasonores de l'équation (3.21) sont présentées sur la Figure 3.19 en noir. Sur la Figure 3.21 (a), nous avons la variation de  $c_{Lt,ajust} \cdot P_c(T)$  pour  $c_{Lt,ajust} = -60$  m/s et  $\beta_c = 6^\circ\text{C}$ . La Figure 3.21 (b) présente la variation de  $\alpha_{Lt,ajust} \cdot P_\alpha(T)$  avec  $\alpha_{Lt,ajust} = 23$  Np/m et  $\beta_c = 6^\circ\text{C}$  dans une gamme de température  $T \in [25; 66]^\circ\text{C}$ . Ce modèle permet de tenir compte de la tendance linéaire des propriétés ultrasonores dans la zone viscoélastique  $\{c_{Lt,1}, \alpha_{Lt,1}\}$  et dans la zone caoutchouteuse  $\{c_{Lt,2}, \alpha_{Lt,2}\}$ . Ce modèle permet aussi de lier les deux zones viscoélastique et caoutchouteuse par une loi de mélange  $k(T)$  et d'ajuster les tendances des propriétés ultrasonores dans la zone de vitrification avec des

coefficients de pondérations  $\{P_c(T), P_\alpha(T)\}$  afin de prendre en compte la température de transition vitreuse  $T_g = 48^\circ\text{C}$  et la relaxation d'enthalpie à la température  $T_e = 57^\circ\text{C}$ .

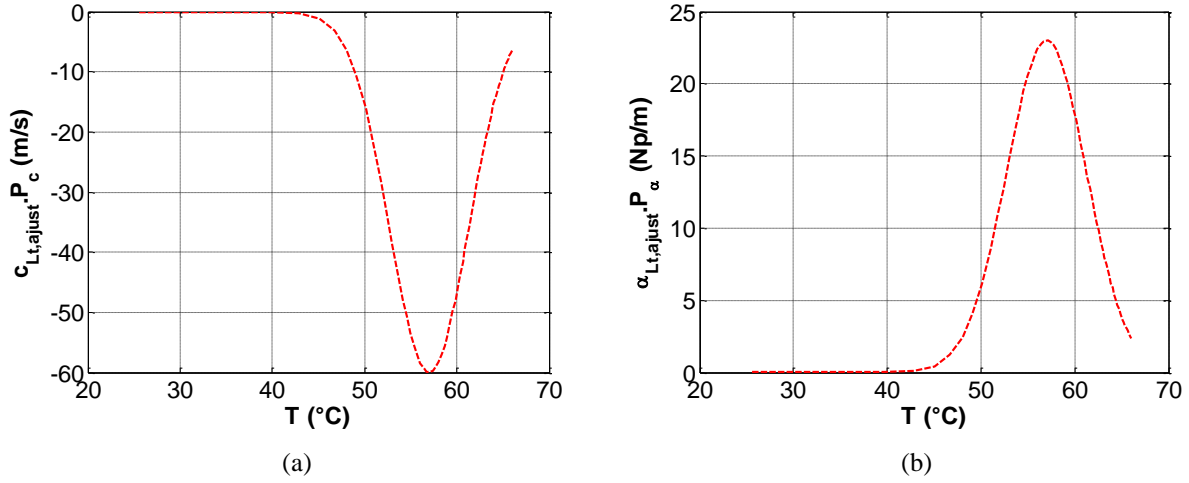


Figure 3.21: Variation des coefficients de pondérations : (a) en vitesse  $c_{L_t,ajust} \cdot P_c(T)$  (m/s) et (b) en atténuation  $\alpha_{L_t,ajust} \cdot P_\alpha(T)$  (Np/m) dans une gamme de température  $T \in [25; 66]^\circ\text{C}$ .

#### IV.3.2 Modèle de dispersion en fréquence et en température

En se basant sur les résultats expérimentaux précédents de l'étude spectrale, de la tendance linéaire de la vitesse en fonction de la fréquence, de la tendance en puissance de l'atténuation avec la fréquence et de la variation des paramètres ultrasonores avec la température, nous pouvons identifier la dépendance en fréquence et en température ( $f, T$ ) des propriétés ultrasonores. Cette tendance est valable pour l'époxy pour une gamme de fréquence  $f \in [1; 3]$  MHz et un domaine de température  $T \in [25; 66]^\circ\text{C}$ . Le modèle approché de la dispersion ( $f, T$ ) en fréquence et en température s'écrit sous la forme suivante:

$$\begin{cases} \alpha_{Epo,f,T}(f, T) = \alpha_c \cdot \left(\frac{f}{f_c}\right)^p \cdot \alpha_{L_t}(T) \\ c_{Epo,f,T}(f, T) = c_c \cdot (1 + a_{f,c}(f - f_c)) \cdot c_{L_t}(T) \end{cases} \quad (3.22)$$

où  $\alpha_c = 143,7$  Np/m est l'atténuation et  $c_c = 2458$  (m/s) est la vitesse ultrasonore à une température de référence  $T_{ref} = 25^\circ\text{C}$ ,  $a_{f,c} \approx 7,18 \cdot 10^{-9} \text{ Hz}^{-1}$ ,  $p \approx 1,1$ ,  $f_c = 2$  MHz,  $c_{L_t}(T)$  et  $\alpha_{L_t}(T)$  (courbes noires de la Figure 3.19). Les Figure 3.22 (a) et (b) montrent la distribution de la vitesse ultrasonore et de l'atténuation en fréquence et en température calculées par le modèle ( $f, T$ ) de l'équation (3.22).

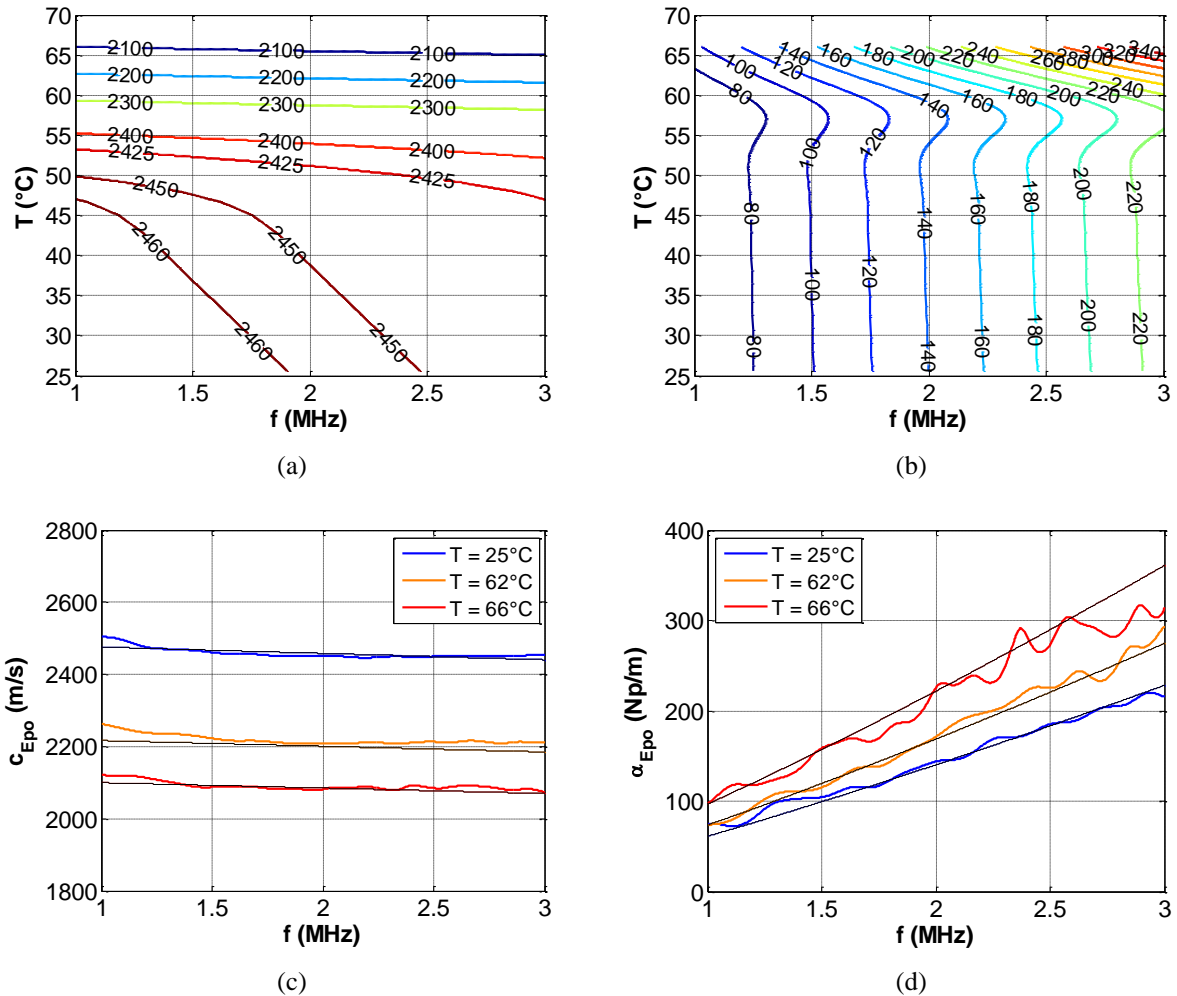


Figure 3.22: Dispersions en fréquence et en température de (a) vitesse  $c_{Epo,f,T}(f, T)$  et (b) atténuation  $\alpha_{Epo,f,T}(f, T)$  (équation (3.22)). Comparaison entre les résultats expérimentaux (courbes en couleur) et le modèle  $(f, T)$  (courbes en noir) pour (c) la vitesse et (d) l'atténuation à la température  $T = \{25, 62, 66\}^\circ\text{C}$ .

Sur la Figure 3.22 (a) la dispersion de la vitesse en fréquence est faiblement sensible à la température avant la température de transition vitreuse  $T_g = 48^\circ\text{C}$ . En dépassant la température de transition vitreuse la dispersion de la vitesse devient très sensible avec la température, du fait des propriétés caoutchoutiques. Le même phénomène est observé sur la Figure 3.22 (b) pour la dispersion de l'atténuation ultrasonore en fréquence. Sur cette Figure 3.22 (b), les deux pics à la température de transition vitreuse  $T_g = 48^\circ\text{C}$  et à la température de relaxation d'enthalpie  $T_e = 57^\circ\text{C}$  sont bien observés avec le modèle de dispersion  $(f, T)$  en fréquence et en température, ce qui montre la capacité de ce modèle approché à tenir compte des transformations thermiques. Les Figure 3.22 (c) et (d) montrent la comparaison entre le modèle  $(f, T)$  et les résultats expérimentaux à  $T = \{25, 62, 66\}^\circ\text{C}$ .

## V Conclusion

Afin d'étudier l'influence de la température après polymérisation, les propriétés ultrasonores ont été suivies durant une post-cuisson. L'hystérésis entre les propriétés ultrasonores est liée principalement à la différence entre la température de l'échantillon, la température de consigne et la transformation de phase.

L'étude du comportement ultrasonore de l'époxy a été effectuée sans tenir compte des transformations de phases pendant un processus de refroidissement pour une température  $T \in [28; 46]^\circ\text{C}$ . Dans cette zone d'étude, les propriétés ultrasonores dans l'époxy et dans les moules en aluminium possèdent un comportement linéaire avec la température. L'étude spectrale montre que le modèle de dispersion en puissance est plus adapté par rapport au modèle linéaire. Les paramètres de la loi puissance  $\{p, f_c\}$  sont faiblement sensibles à la température. La sensibilité des paramètres de la loi puissance avec la température a permis de déterminer la dispersion de vitesse ultrasonore selon Szabo. Les paramètres de dispersion Cole-Cole ont été estimés en fonction des paramètres de la loi puissance, identifiant ainsi le comportement viscoélastique. Dans la zone d'étude en fréquence et en température,  $f \in [2; 5]$  MHz et  $T \in [28; 46]^\circ\text{C}$ , un modèle analytique approché  $(f, T)$  a été proposé et validé expérimentalement, à la fois pour la vitesse et l'atténuation.

L'étude du comportement ultrasonore de l'époxy a été effectuée également en tenant compte des transformations de phases pendant un processus de chauffage pour une gamme de température  $T \in [25; 66]^\circ\text{C}$ . La variation des propriétés ultrasonores dans l'époxy a été modélisée par un modèle qui permet de prendre en compte les tendances linéaires des zones viscoélastique et caoutchouteuse, et de prendre en compte de la zone de vitrification par une loi de mélange  $k(T)$  et des coefficients de pondérations  $\{c_{L,ajust}(T), \alpha_{L,ajust}(T)\}$ . La comparaison entre les mesures ultrasonores est en accord avec les résultats donnés par la méthode DSC. Dans cette zone d'étude, un modèle analytique approché  $(f, T)$  a été proposé et validé expérimentalement.

## VI Références

- [1] R. Challis, F. Blarel, M. Unwin, J. Paul et X. Guo, «Models of ultrasonic wave propagation in epoxy materials,» *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control*, vol. 56, n°16, pp. 1225-1237, 2009.
- [2] R. E. Challis, F. Blarel, M. E. Unwin et X. Guo, «On the Modelling of Ultrasonic Bulk Wave Propagation in Epoxies,» *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 269, n°11, p. 012001, 2011.
- [3] P. He, «Experimental verification of models for determining dispersion from attenuation,» *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelect. Freq. Control*, vol. 46, n°13, pp. 706-714, 1999.
- [4] P. He, «Direct measurement of ultrasonic dispersion using a broadband transmission technique,» *Ultrasonics*, vol. 37, n°11, pp. 67-70, 1999.
- [5] N. Ghodhbani, P. Marechal et H. Duflo, «Ultrasonic broadband characterization of a viscous liquid: Methods and perturbation factors,» *Ultrasonics*, vol. 56, n°10, pp. 308-317, 2015.
- [6] T. Szabo, «Causal theories and data for acoustic attenuation obeying a frequency power law,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 97, n°11, pp. 14-24, 1995.
- [7] M. O'Donnell, E. Jaynes et J. Miller, «Kramers-Kronig relationship between ultrasonic attenuation and phase velocity,» *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 69, pp. 696-701, 1981.
- [8] B. Treeby, B. Cox, E. Zhang, S. Patch et P. Beard, «Measurement of broadband temperature-dependent ultrasonic attenuation and dispersion using photoacoustics,» *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelect. Freq. Control*, vol. 56, n°18, pp. 1666-1676, 2009.
- [9] N. Samet, P. Maréchal et H. Duflo, «Ultrasonic characterization of a fluid layer using a broadband transducer,» *Ultrasonics*, vol. 52, n°13, pp. 427-434, 2012.

## Chapitre IV : Caractérisation ultrasonore avec la méthode de transmission

### I Introduction

Jusqu'à présent, nous avons étudié le suivi des propriétés viscoélastiques d'une résine époxy en cours de polymérisation (Chapitre II) et pendant une phase de post-cuisson (Chapitre III) à basse température et avec un transducteur de contact utilisé en réflexion, i.e. successivement comme émetteur et récepteur. Pour cette configuration en réflexion, l'utilisation des échos ultrasonores des plaques composites avec le procédé RTM exige certains paramètres :

- Le dimensionnement de l'épaisseur des moules et l'épaisseur des plaques composites pour éliminer le chevauchement des échos pendant la fabrication.
- L'amplification du signal  $s_2(t)$  qui correspond au premier écho d'aller-retour dans le moule et l'époxy sans saturer le premier écho  $s_1(t)$  écho réfléchi par le moule.
- L'utilisation de transducteurs à haute température.

En tenant compte de ces contraintes réelles, nous développerons dans ce chapitre une approche avec la méthode de transmission [1] [2] [3] [4] [5] [6]. Cette approche est destinée essentiellement à la caractérisation à haute température [7] [8] [9] [10] [11] [12] [13] [14] [15] [16] [17] [18], permettant la caractérisation des matériaux en cours de fabrication. Ces transducteurs possèdent des lignes à retard intégrées protégeant la pastille active, mais ayant l'inconvénient de renvoyer des signaux mélangés avec les échos dans la résine et dans les moules en aluminium, ce qui rend délicate l'extraction des échos utiles pour effectuer une caractérisation exacte. Mc Hugh [19] a travaillé sur la même problématique, en utilisant quatre transducteurs à haute température sur des épaisseurs différentes. Cette méthode n'est pas adaptée à la généralité du problème : il est difficile d'imposer de fabriquer des plaques avec des marches (épaisseurs variables), le suivi des propriétés pouvant dépendre de l'épaisseur du matériau. Les contraintes liées à notre configuration nous amènent à proposer dans ce chapitre une méthode de caractérisation en émission/transmission (ET), sur un point



de contact, basée sur l'écho de transmission directe au début de polymérisation (état de référence) et pendant l'évolution des propriétés ultrasonores (état instantané) au moyen d'une méthode d'optimisation itérative [3] [4].

Ce chapitre est divisé en quatre parties: la première décrit les équations théoriques et l'approche générale de la méthode proposée. La deuxième partie présente le dispositif expérimental ainsi que les facteurs d'influence des propriétés des moules et des méthodes d'estimations. Dans la troisième partie, la forme analytique ainsi que l'approche d'optimisation d'un coefficient de transfert  $\underline{T}$  est étudiée. Enfin, la dernière partie présente une application de cette approche avec les capteurs à haute température K4V1 et la résine RTM6.

## II Méthode de transmission

Comme illustré, la Figure 4.1 présente les différents échos utilisés pour le suivi des caractéristiques ultrasonores d'une résine époxy au cours de sa polymérisation avec la méthode de transmission. La structure est composée de deux blocs identiques en aluminium entre lesquels la résine liquide est introduite. Le spectre  $\underline{S}_{1,ET}(f)$  correspond à l'écho transmis direct  $s_{1,ET}(t)$  à travers la structure tricouche composée du premier bloc d'aluminium, la couche d'époxy et le second bloc d'aluminium (Alu/Epo/Alu). Le spectre  $\underline{S}_{2,ET}(f)$  correspond à l'écho transmis  $s_{2,ET}(t)$  à travers la structure tricouche avec un écho d'aller-retour dans l'époxy. Le spectre  $\underline{S}_{3,ET}(f)$  correspond à l'écho transmis  $s_{3,ET}(t)$  à travers la structure avec un écho d'aller-retour dans l'un des blocs d'aluminium. Les spectres de ces trois signaux  $s_{1,ET}(t)$ ,  $s_{2,ET}(t)$  et  $s_{3,ET}(t)$  s'écrivent classiquement sous la forme suivante:

$$\begin{cases} \underline{S}_{1,ET}(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2jk_{Alu}d_{Alu}} e^{-jk_{Epo}d_{Epo}} \underline{T}_{Alu/Epo} \underline{T}_{Epo/Alu} \\ \underline{S}_{2,ET}(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2jk_{Alu}d_{Alu}} e^{-3jk_{Epo}d_{Epo}} \underline{T}_{Alu/Epo} \underline{R}_{Epo/Alu} \underline{R}_{Alu/Epo} \underline{T}_{Epo/Alu} \\ \underline{S}_{3,ET}(f) = \underline{S}_0(f) e^{-4jk_{Alu}d_{Alu}} e^{-jk_{Epo}d_{Epo}} \underline{T}_{Alu/Epo} \underline{T}_{Epo/Alu} \underline{R}_{Alu/Epo} \end{cases} \quad (4.1)$$

où  $\underline{S}_0(f)$  est le signal d'émission,  $\underline{k}_{Alu} = \omega/c_{Alu}(f) + j\alpha_{Alu}(f)$  et  $\underline{k}_{Epo} = \omega/c_{Epo}(f) + j\alpha_{Epo}(f)$  sont les nombres d'onde longitudinale complexes respectivement dans l'aluminium et la résine époxy,  $d_{Alu}$  et  $d_{Epo}$  sont respectivement les épaisseurs de l'aluminium et de la couche de résine,  $\underline{T}_{Alu/Epo}$  est le coefficient de transmission complexe de l'aluminium vers la résine époxy,  $\underline{T}_{Epo/Alu}$  est le coefficient de transmission complexe de l'époxy vers l'aluminium,  $\underline{R}_{Epo/Alu}$  est le coefficient de réflexion complexe lorsque de faisceau ultrasonore est incident de l'époxy vers l'aluminium et  $\underline{R}_{Alu/Epo}$  est le coefficient de réflexion complexe lorsque de faisceau ultrasonore est incident de l'aluminium vers l'époxy.

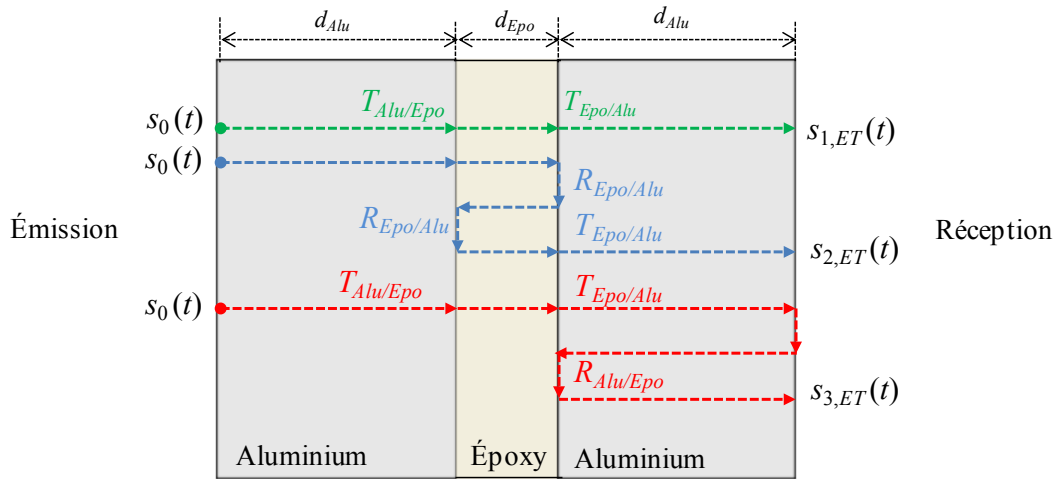


Figure 4.1: Parcours des signaux de transmission d'une structure tricouche composée d'un premier bloc d'aluminium d'une couche d'époxy et d'un second bloc d'aluminium (Alu/Epo/Alu).

La fonction de transfert  $\underline{T}_{21,ET}(f) = \underline{s}_{2,ET}(f) / \underline{s}_{1,ET}(f)$  contient des informations sur les deux propriétés ultrasonores longitudinales de la couche de résine époxy, i.e. la vitesse  $c_{Epo}(f)$  et l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$ . En conséquence, l'argument de la fonction de transfert  $\text{Arg}(\underline{T}_{21,ET}(f))$  et le module et le module  $|\underline{T}_{21,ET}(f)|$  donnent les dépendances fréquentielles suivantes:

$$\begin{cases} c_{Epo}(f) = -\frac{4\pi f d_{Epo}}{\text{Arg}(\underline{T}_{21,ET}(f))} \\ \alpha_{Epo}(f) = -\frac{1}{2d_{Epo}} \ln \left( \left| \frac{\underline{T}_{21,ET}(f)}{\underline{R}_{Epo/Alu}^2} \right| \right) \end{cases} \quad (4.2)$$

En utilisant la méthode temporelle, la vitesse ultrasonore peut s'écrire en fonction du temps de retard  $\Delta t_{21}$  entre l'écho de transmission directe  $s_{1,ET}(t)$  et l'écho de transmission avec un aller-retour dans la résine  $s_{2,ET}(t)$ . L'atténuation est exprimée en fonction du rapport des maximums d'amplitudes  $\max(s_{2,ET}(t)) / \max(s_{1,ET}(t))$ :

$$\begin{cases} c_{Epo} = \frac{2d_{Epo}}{\Delta t_{21}} \\ \alpha_{Epo} = -\frac{1}{2d_{Epo}} \ln \left( \frac{\max(s_{2,ET})}{\max(s_{1,ET})} \frac{1}{|\underline{R}_{Epo/Alu}^2|} \right) \end{cases} \quad (4.3)$$

La fonction de transfert  $\underline{T}_{31,ET}(f) = \underline{s}_{3,ET}(f) / \underline{s}_{1,ET}(f)$  contient des informations sur les deux propriétés ultrasonores longitudinales des blocs d'aluminium. L'expression de la vitesse  $c_{Alu}(f)$  et l'atténuation  $\alpha_{Alu}(f)$  dans l'aluminium s'écrivent sous la forme suivante :

$$\begin{cases} c_{Alu}(f) = -\frac{4\pi f d_{Alu}}{Arg(\underline{T}_{31,ET}(f))} \\ \alpha_{Alu}(f) = -\frac{1}{2d_{Alu}} \ln \left( \left| \frac{\underline{T}_{31,ET}(f)}{\underline{R}_{Alu/Epo}} \right| \right) \end{cases} \quad (4.4)$$

En utilisant la méthode temporelle, la vitesse ultrasonore dans l'aluminium peut s'écrire en fonction du temps de retard  $\Delta t_{31}$  entre l'écho de transmission directe  $s_{1,ET}(t)$  et l'écho  $s_{3,ET}(t)$ . L'atténuation est exprimée en fonction du rapport des maximums d'amplitudes  $\max(s_{3,ET}(t))/\max(s_{1,ET}(t))$ :

$$\begin{cases} c_{Alu} = \frac{2d_{Alu}}{\Delta t_{31}} \\ \alpha_{Alu} = -\frac{1}{2d_{Alu}} \ln \left( \frac{\max(s_{3,ET})}{\max(s_{1,ET})} \frac{1}{|\underline{R}_{Alu/Epo}|} \right) \end{cases} \quad (4.5)$$

L'atténuation ultrasonore dans l'époxy possède une valeur maximale au temps de vitrification. Cette grandeur devient très importante quand les fibres de carbones sont ajoutées, rendant parfois impossible l'extraction l'écho transmis après un aller-retour dans l'époxy  $s_{2,ET}(t)$ . Pour cette raison, les propriétés ultrasonores dans l'époxy sont calculées à partir de l'écho transmis direct  $s_{1,ET}(t)$  de la structure tricouche. La technique consiste donc à calculer les propriétés ultrasonores instantanées dans l'époxy à partir d'un état de référence de l'époxy liquide au début de polymérisation. Le spectre  $\underline{S}_{1,ref,ET}(f)$ , correspondant au premier écho transmis  $s_{1,ref,ET}(t)$ , est défini à l'état de référence:

$$\underline{S}_{1,ref,ET}(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2jk_{Alu,ref}d_{Alu}} e^{-jk_{Epo,ref}d_{Epo}} \underline{T}_{Alu,/Epo,ref} \underline{T}_{Epo/Alu,ref} \quad (4.6)$$

où  $\underline{k}_{Alu,ref} = \omega/c_{Alu,ref}(f) + j\alpha_{Alu,ref}(f)$  et  $\underline{k}_{Epo,ref} = \omega/c_{Epo,ref}(f) + j\alpha_{Epo,ref}(f)$  sont respectivement les nombres d'onde longitudinaux complexes de l'aluminium et de la résine époxy à l'état de référence,  $\underline{T}_{Alu/Epo,ref}$  est le coefficient de transmission complexe de l'aluminium vers la résine époxy,  $\underline{T}_{Epo/Alu,ref}$  est le coefficient de transmission complexe de l'époxy vers l'aluminium à l'état de référence.

La fonction de transfert  $\underline{T}_{11,ET}(f) = \underline{S}_{1,ET}(f)/\underline{S}_{1,ref,ET}(f)$  contient des informations sur les propriétés ultrasonores instantanées dans l'époxy. L'expression de la vitesse  $c_{Epo}(f)$  et l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$  dans l'époxy s'écrivent en fonction de l'argument de la fonction de transfert  $Arg(\underline{T}_{11,ET}(f))$  et du module  $|\underline{T}_{11,ET}(f)|$  sous la forme suivante (Annexe F.1):

$$\left\{ \begin{array}{l} c_{Epo}(f) = \frac{d_{Epo}}{\frac{d_{Epo}}{c_{Epo,ref}(f)} - 2d_{Alu} \left( \frac{1}{c_{Alu}(f)} - \frac{1}{c_{Alu,ref}(f)} \right) - \frac{Arg(\underline{T}_{11,ET}(f))}{2\pi f} + \frac{Arg(\underline{T})}{2\pi f}} \\ \alpha_{Epo}(f) = \alpha_{Epo,ref}(f) - \frac{1}{d_{Epo}} \ln \left( \left| \frac{\underline{T}_{11,ET}(f)}{\underline{T}} \right| \right) + 2 \frac{d_{Alu}}{d_{Epo}} (\alpha_{Alu,ref}(f) - \alpha_{Alu}(f)) \end{array} \right. \quad (4.7)$$

où  $\underline{T}$  est un coefficient de transfert qui s'écrit sous la forme suivante :

$$\underline{T} = \frac{\underline{T}_{Alu/Epo} \underline{T}_{Epo/Alu}}{\underline{T}_{Alu/Epo,ref} \underline{T}_{Epo/Alu,ref}} \quad (4.8)$$

Du point de vue de la réponse temporelle, la vitesse ultrasonore peut s'écrire en fonction du temps de retard entre l'écho de référence et l'écho instantané  $\Delta t_{11}$ . L'atténuation est exprimée en fonction du rapport des maximums d'amplitudes  $\max(s_{1,ET}(t))/\max(s_{1,ref,ET}(t))$ :

$$\left\{ \begin{array}{l} c_{Epo} = \frac{d_{Epo}}{\frac{d_{Epo}}{c_{Epo,ref}} - 2d_{Alu} \left( \frac{1}{c_{Alu}} - \frac{1}{c_{Alu,ref}} \right) - \Delta t_{11}} \\ \alpha_{Epo} = \alpha_{Epo,ref} + 2 \frac{d_{Alu}}{d_{Epo}} (\alpha_{Alu,ref} - \alpha_{Alu}) - \frac{1}{d_{Epo}} \ln \left( \frac{\max(s_{1,ET})}{\max(s_{1,ref,ET})} \frac{1}{|\underline{T}|} \right) \end{array} \right. \quad (4.9)$$

Pour une polymérisation isotherme à une température donnée, en considérant que la vitesse et l'atténuation dans l'aluminium sont constantes en fonction du temps d'acquisition, i.e.  $c_{Alu}(f) \approx c_{Alu,ref}(f)$  et  $\alpha_{Alu}(f) \approx \alpha_{Alu,ref}(f)$ , l'équation (4.7) peut s'écrire sous la forme simplifiée suivante:

$$\left\{ \begin{array}{l} c_{Epo}(f) = \frac{2\pi f d_{Epo}}{\frac{2\pi f d_{Epo}}{c_{Epo,ref}(f)} - Arg(\underline{T}_{11,ET}) + Arg(\underline{T})} \\ \alpha_{Epo}(f) = \alpha_{Epo,ref}(f) - \frac{1}{d_{Epo}} \ln \left( \frac{|\underline{T}_{11,ET}|}{|\underline{T}|} \right) \end{array} \right. \quad (4.10)$$

La démarche de calcul des propriétés ultrasonores pendant la polymérisation est résumée par l'algorithme de la Figure 4.2. Au début de la réaction de polymérisation, les propriétés ultrasonores de référence dans l'époxy et dans l'aluminium sont calculées à partir des équations (4.2) et (4.4). Ces propriétés à l'état initial dans l'époxy et dans l'aluminium présentent l'état de référence pour calculer par la suite les propriétés instantanées dans la résine époxy en fonction du temps à partir de l'équation (4.7). Dans cette équation (4.7), la détermination du coefficient de transfert  $\underline{T}$  (équation (4.8)) qui dépend lui aussi de la vitesse et

de l'atténuation dans la résine et l'aluminium a été effectuée par une procédure itérative basée sur une approche inverse (voir paragraphe IV.2).

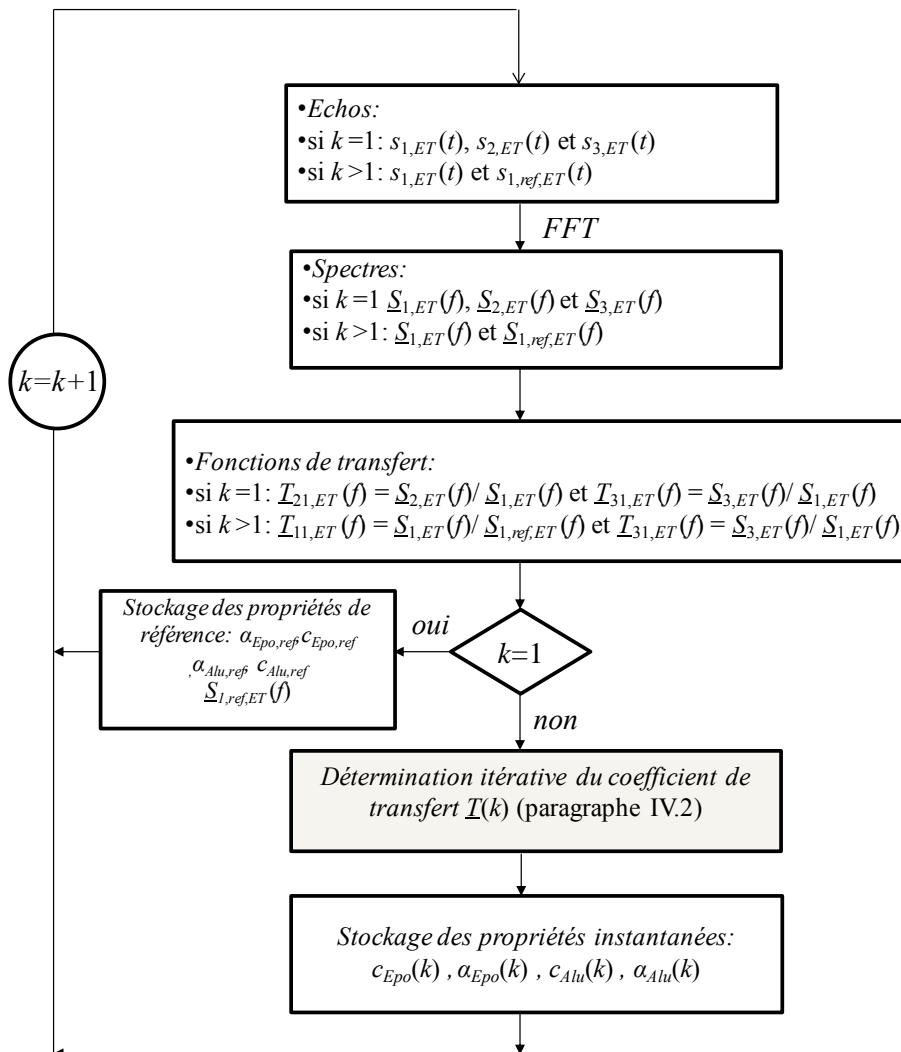


Figure 4.2 : Algorithme de calcul des propriétés ultrasonores.

### III Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué de deux transducteurs de contact, l'un étant émetteur et l'autre étant récepteur (Olympus Panametrics®), tous les deux de fréquence centrale  $f_0 = 5$  MHz. Les ondes ultrasonores se propagent dans la structure tricouche (Figure 4.3) Aluminium/Epoxy/Aluminium (Alu/Epo/Alu) avec des épaisseurs respectivement égales à  $d_{Alu} = 120$  mm,  $d_{Epo} = 7,6$  mm,  $d_{Alu} = 120$  mm.

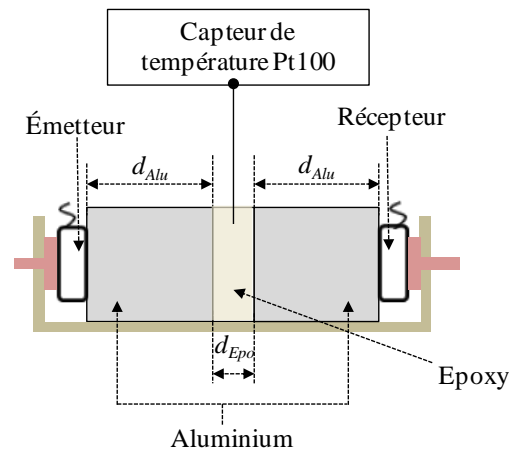


Figure 4.3: Dispositif expérimental de suivi des propriétés ultrasonores en transmission.

La procédure de préparation de la résine époxy (Resoltech) est la même que celle utilisée au Chapitre II. Le transducteur est excité en utilisant un générateur d'impulsions et les échos sont acquis en utilisant un oscilloscope numérique. La température est programmable et régulée par un four de thermostaté. Un capteur de température Pt100 est immergé dans la résine époxy, afin d'enregistrer la température tout au long de la polymérisation. Les signaux acoustiques et la température sont enregistrés avec une période d'acquisition de 10 minutes, en utilisant un programme d'acquisition sur Matlab.

### III.1 Signaux de référence

Le milieu de référence est défini par les caractéristiques ultrasonores au début de polymérisation. Sur la Figure 4.4 (a), nous montrons la succession des échos de transmission  $s_{1,ET}(t)$ ,  $s_{2,ET}(t)$  et  $s_{3,ET}(t)$  à travers la structure tricouche (Alu/Epo/Alu) au début de polymérisation à une température de consigne  $T = 40^\circ\text{C}$ . Les signaux  $s_{22,ET}(t)$ ,  $s_{23,ET}(t)$  et  $s_{24,ET}(t)$  correspondent respectivement à deux allers-retours, trois et quatre allers-retours dans la couche d'époxy. Ces signaux disparaissent lorsque le matériau passe de l'état viscoélastique liquide à l'état solide vu l'augmentation de l'atténuation ultrasonore pendant la polymérisation. Sur la même Figure 4.4 (b), les modules des spectres de transmission  $\underline{S}_{1,ET}(f)$ ,  $\underline{S}_{2,ET}(f)$  et  $\underline{S}_{3,ET}(f)$  (équation (2.1)) sont représentés pour une gamme de fréquence entre 2 et 6 MHz.

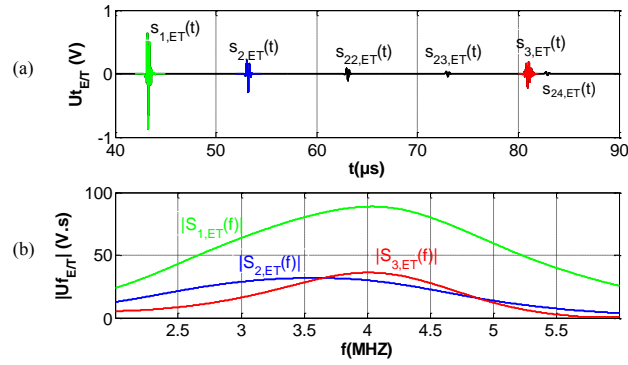


Figure 4.4: (a) Succession des échos de référence et (b) spectres associés dans la structure tricouche composée d'un bloc d'aluminium, d'une couche d'époxy liquide et d'un bloc d'aluminium (Alu/Epo/Alu) en cours de polymérisation à une température de consigne  $T = 40^\circ C$ .

Les propriétés ultrasonores de référence de la Figure 4.5 dans l'aluminium et dans l'époxy montrent la dispersion de la vitesse  $\{c_{Epo,ref}(f), c_{Alu,ref}(f)\}$  et de l'atténuation  $\{\alpha_{Alu,ref}(f), \alpha_{Epo,ref}(f)\}$  à partir des équations (4.2) et (4.4). La Figure 4.5 (a) montre une faible dispersion de la vitesse initiale  $c_{Epo,ref}(f)$  en fonction de la fréquence.

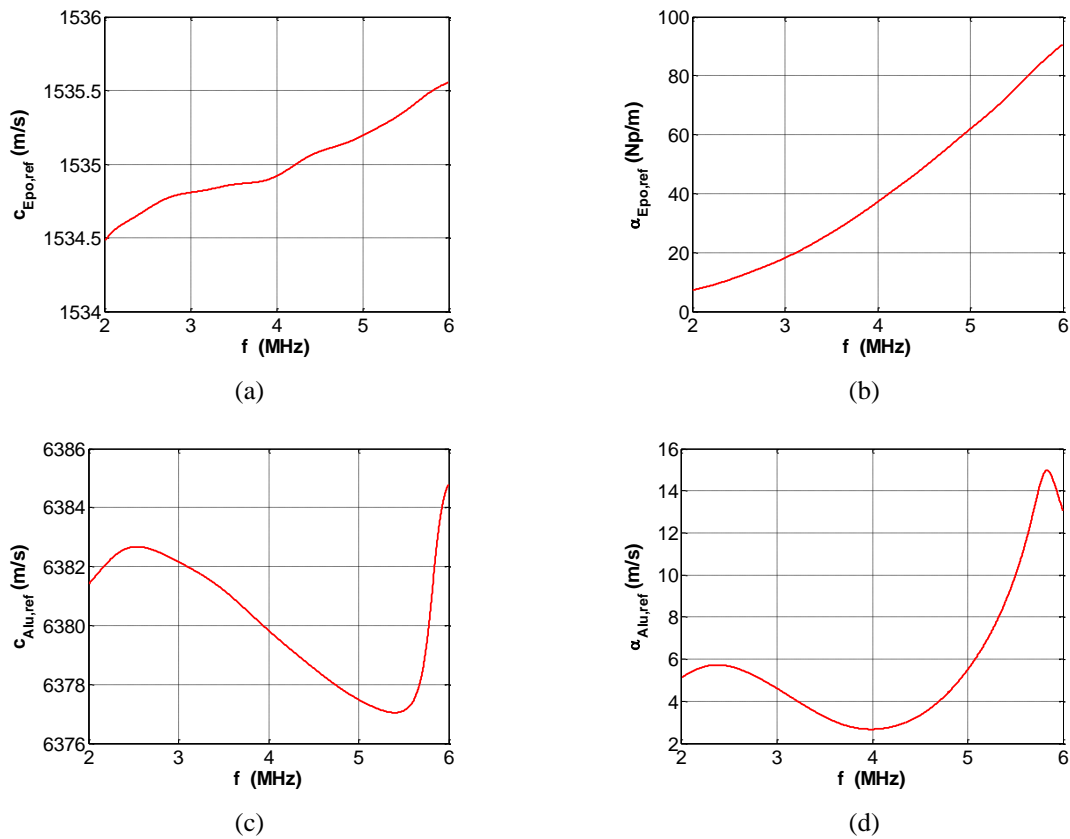


Figure 4.5: Propriétés ultrasonores de référence (a), (b) dans l'époxy et (c), (d) dans les moules en aluminium (a), (c) de la vitesse  $\{c_{Epo,ref}(f), c_{Alu,ref}(f)\}$  (a, c) et (b), (d) de l'atténuation  $\{\alpha_{Epo,ref}(f), \alpha_{Alu,ref}(f)\}$ (b, d) en cours de polymérisation à une température de consigne  $T = 40^\circ C$ .

En utilisant les équations (4.3) et (4.5), nous pouvons calculer la vitesse et l'atténuation ultrasonores avec la méthode temporelle dans l'aluminium et l'époxy. Les résultats de la vitesse ultrasonore et de l'atténuation dans les deux matériaux avec les méthodes de temps de vol et d'auto-corrélation sont résumés dans le Tableau 4.1.

Tableau 4.1: Propriétés ultrasonores de référence calculés avec les différentes méthodes temporelles pour l'aluminium et l'époxy en cours de polymérisation à une température  $T = 40^\circ\text{C}$ .

	Abs		Env		Cor	
	$c_L$ (m/s)	$\alpha_L$ (Np/m)	$c_L$ (m/s)	$\alpha_L$ (Np/m)	$c_L$ (m/s)	$\alpha_L$ (Np/m)
Époxy	1534,5	38,16	1534,2	38,76	1535,7	36,68
Aluminium	6379,2	4,57	6375,9	4,67	6373,5	3,93

### III.2 Influence des propriétés ultrasonores dans les moules

À partir de l'équation (4.9), nous définissons les deux termes suivant: le décalage temporel  $\delta t_{Alu}$  (ns) et la variation d'atténuation  $\delta \alpha_{Alu}$  (Np/m) dans les moules d'aluminium. Ces paramètres  $\delta t_{Alu}$  et  $\delta \alpha_{Alu}$  s'écrivent sous la forme expérimentale suivante:

$$\begin{cases} \delta t_{Alu} = 2d_{Alu} \left( \frac{1}{c_{Alu}(T)} - \frac{1}{c_{Alu,ref}(T_{ref})} \right) \\ \delta \alpha_{Alu} = 2 \frac{d_{Alu}}{d_{Epo}} (\alpha_{Alu,ref}(T_{ref}) - \alpha_{Alu}(T)) \end{cases} \quad (4.11)$$

Dans le cas d'une polymérisation isotherme, la température est constante et la vitesse et l'atténuation sont constantes. Cependant, dans notre configuration, la température initiale de référence est différente de celle de la température de stabilisation. A titre d'exemple, dans le cas d'une polymérisation à une température de consigne du four  $T = 40^\circ\text{C}$ , le matériau passe d'une température de référence  $T_{ref} = 34^\circ\text{C}$  à une température de stabilisation  $T_s = 38^\circ\text{C}$ . Cette variation de température dans les moules entraine une modification des propriétés ultrasonores de l'époxy comme il est indiqué par l'équation (4.9). Dans le cas d'une polymérisation isotherme,  $T \approx T_{ref}$  et les expressions de  $\delta t_{Alu}$  et  $\delta \alpha_{Alu}$  sont théoriquement négligeables.



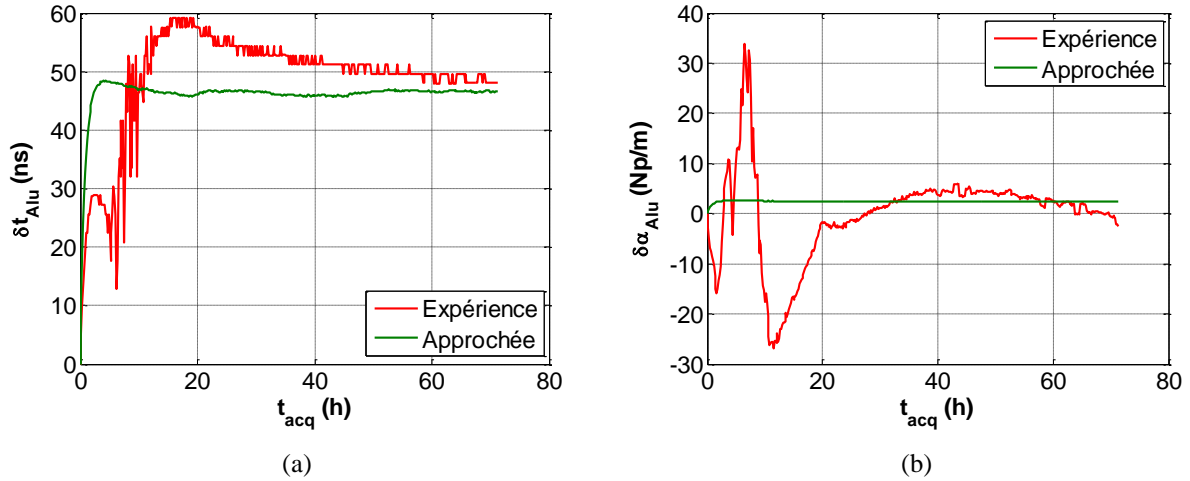


Figure 4.6 : (a) Variation du décalage temporel  $\delta t_{Alu}$  (ns) et (b) variation d'atténuation  $\delta \alpha_{Alu}$  (Np/m) dans les moules d'aluminium pour une polymérisation à une température de consigne  $T = 40^\circ\text{C}$ .

D'après l'Annexe E.2, nous pouvons écrire le décalage temporel dans l'aluminium (équation (4.11)) sous la forme linéarisée approchée suivante :

$$\delta t_{Alu,app} \approx 2d_{Alu} \frac{a_{c,Alu}(T_{ref} - T)}{b_{c,Alu}^2 + a_{c,Alu}b_{c,Alu}(T + T_{ref}) + a_{c,Alu}^2 T T_{ref}} \approx 2d_{Alu} \frac{a_{c,Alu}}{b_{c,Alu}^2} (T_{ref} - T) \quad (4.12)$$

La variation d'atténuation s'écrit sous la forme linéarisée approchée suivante :

$$\delta \alpha_{Alu,app} \approx 2 \frac{d_{Alu}}{d_{Epo}} a_{\alpha,Alu} (T_{ref} - T) \quad (4.13)$$

où  $T \in [T_{ref}, T_s]^\circ\text{C}$  est la variation de température pendant la polymérisation isotherme entre la température de référence  $T_{ref}$  et la température de stabilisation  $T_s$ ,  $b_{c,Alu} = 6466$  m/s,  $a_{c,Alu} = -2,52$  m/s. $^\circ\text{C}^{-1}$  et  $a_{\alpha,Alu} = -0,024$  Np/m. $^\circ\text{C}^{-1}$  sont les paramètres de la loi de variation linéaire des propriétés ultrasonores dans l'aluminium (équation (3.9)). La Figure 4.6 montre la comparaison entre les valeurs expérimentales du décalage temporel  $\delta t_{Alu}$  et de la variation d'atténuation  $\delta \alpha_{Alu}$  (équation(4.11)) avec les modélisations approchées (équations (4.12) et (4.13)). Le décalage temporel  $\delta t_{Alu}$  (Figure 4.6 (a)) possède une tendance croissante au début de polymérisation puis une stabilisation à une valeur de  $\delta t_{Alu} \approx 49$  ns. La variation d'atténuation  $\delta \alpha_{Alu}$  (Figure 4.6 (b)) montre une légère tendance croissante au début de polymérisation puis une stabilisation à une valeur de  $\delta \alpha_{Alu} \approx 2,5$  Np/m. Pour résumer et d'un point de vue temporel, les propriétés ultrasonores dans l'époxy en cours de polymérisation s'écrivent sous la forme de l'équation (4.9) :

$$\left\{ \begin{array}{l} c_{Epo} = \frac{d_{Epo}}{\frac{d_{Epo}}{c_{Epo,ref}} - \delta t_{Alu,exp} - \Delta t_{11}} \\ \alpha_{Epo} = \alpha_{Epo,ref} - \delta \alpha_{Alu,exp} - \frac{1}{d_{Epo}} \ln \left( \frac{\max(s_{1,ET})}{\max(s_{1,ref,ET})} \frac{1}{|T|} \right) \end{array} \right. \quad (4.14)$$

Les propriétés ultrasonores dans l'époxy s'écrivent sous la forme approchée:

$$\left\{ \begin{array}{l} c_{Epo,app} = \frac{d_{Epo}}{\frac{d_{Epo}}{c_{Epo,ref}} - \delta t_{Alu,app} - \Delta t_{11}} \\ \alpha_{Epo,app} = \alpha_{Epo,ref} - \delta \alpha_{Alu,app} - \frac{1}{d_{Epo}} \ln \left( \frac{\max(s_{1,ET})}{\max(s_{1,ref,ET})} \frac{1}{|T|} \right) \end{array} \right. \quad (4.15)$$

La forme simplifiée consiste à négliger les petites variations dans l'aluminium (équation (4.11)) et s'écrit comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} c_{Epo,simp} = \frac{d_{Epo}}{\frac{d_{Epo}}{c_{Epo,ref}} - \Delta t_{11}} \\ \alpha_{Epo,simp} = \alpha_{Epo,ref} - \frac{1}{d_{Epo}} \ln \left( \frac{\max(s_{1,ET})}{\max(s_{1,ref,ET})} \frac{1}{|T|} \right) \end{array} \right. \quad (4.16)$$

La Figure 4.7 montre la variation des propriétés ultrasonores dans l'époxy obtenues par l'expérience (4.14), la forme approchée (4.15) et la forme simplifiée (4.16).

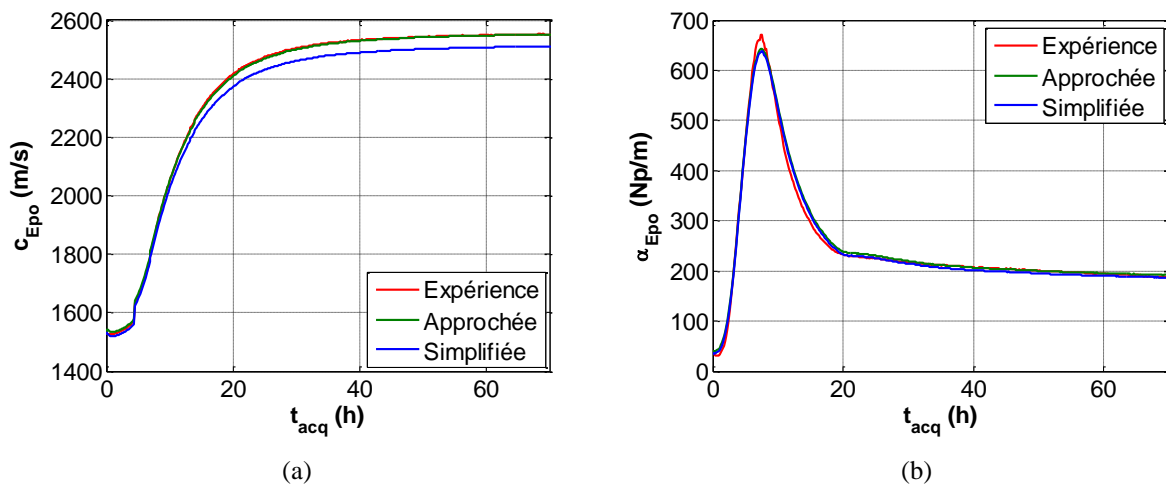


Figure 4.7 : Variation des propriétés ultrasonores de l'époxy pendant la polymérisation à une température de consigne  $T = 40^\circ\text{C}$  de (a) la vitesse  $c_{Epo}$  (m/s) et (b) l'atténuation  $\alpha_{Epo}$  (Np/m) obtenues par la formulation expérimentale (équation (4.14)), approchée (équation (4.15)) et simplifiée (équation (4.16)).

### III.3 Influence de la méthode d'estimation

Pendant la polymérisation, l'époxy passe de l'état liquide visqueux à l'état solide. Ces transformations de phases, *i.e.* modification des propriétés physiques, donnent lieu à des changements significatifs en terme de temps de vol et d'amplitude des échos (Figure 4.4 (a)). Pour les techniques d'estimation temporelles, l'écho brut, l'enveloppe de l'écho et la technique d'auto-corrélation sont utilisés pour calculer les temps de vol et les maximums des amplitudes des échos. Sur la Figure 4.8, nous montrons l'origine de la différence entre les différents estimateurs.

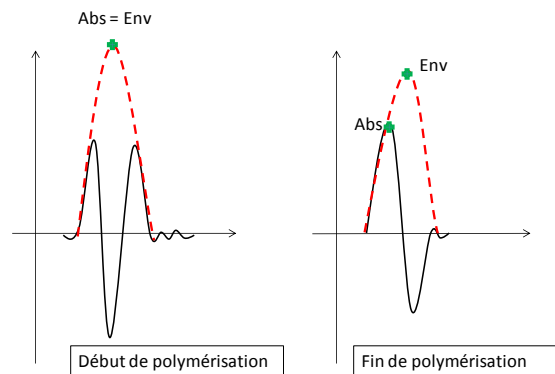


Figure 4.8 : Différence entre les estimateurs au début et à la fin de polymérisation : valeur absolue de l'écho (Abs) et enveloppe de l'écho (Env).

En début de polymérisation, l'époxy est à l'état liquide et l'écho n'est pas encore distordu, ce qui permet d'avoir une faible différence entre les résultats de l'écho brut, l'enveloppe associée et l'auto-corrélation. En fin de polymérisation, le matériau devient solide visqueux et une déformation de l'écho apparaît, augmentant la différence entre les différents estimateurs. Sur la Figure 4.9 nous observons un changement du maximum de l'écho depuis la deuxième alternance (Figure 4.9 (a)) vers la première alternance (Figure 4.9 (b)).

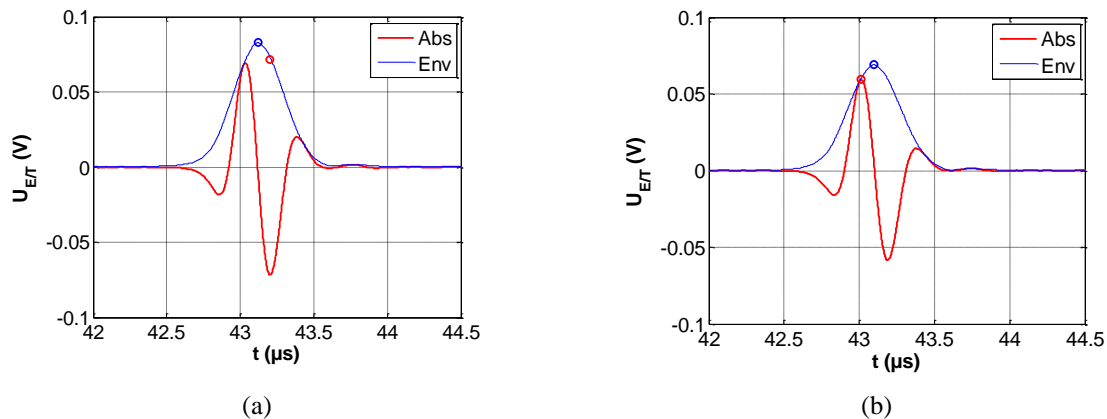


Figure 4.9 : Changement du maximum de l'écho depuis (a) la deuxième demi-alternance vers (b) la première demi-alternance lors d'une polymérisation isotherme à une température de consigne  $T = 40^{\circ}\text{C}$ .

La Figure 4.10 montre l'évolution des échos lorsque la résine époxy est à l'état liquide visqueux initial (Figure 4.10 (a)), à l'état de vitrification (Figure 4.10 (b)) et à l'état solide (Figure 4.10 (c)).

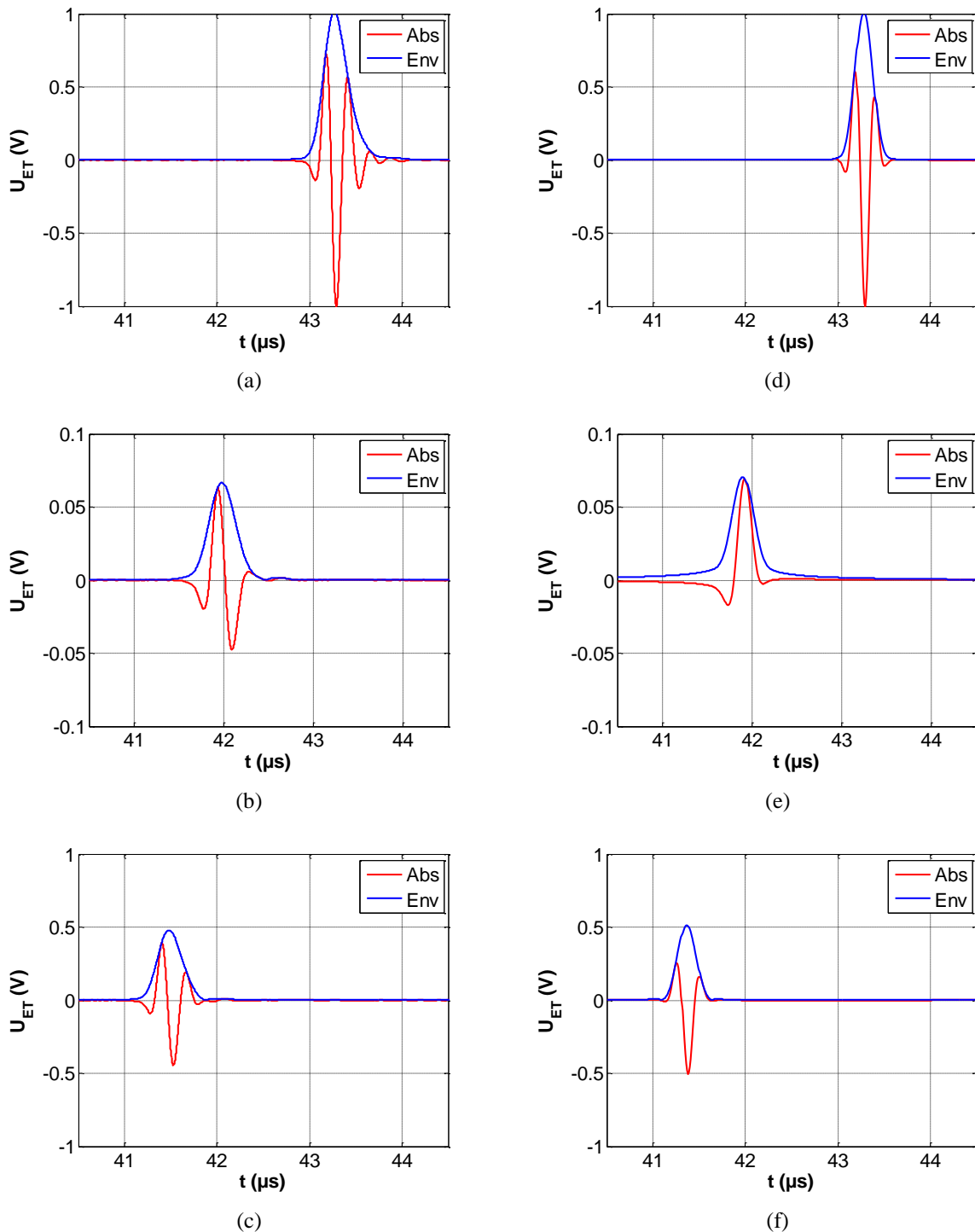


Figure 4.10 : Evolution des échos lorsque la résine époxy est à l'état (a) liquide visqueux ( $t_{acq} \approx 0$  h), (b) vitreux ( $t_{acq} \approx 11$  h) et (c) solide ( $t_{acq} \approx 34$  h). Résultats de simulation par DSM aux mêmes dates pour (c) l'état liquide visqueux, (d) vitreux et (e) solide.

La Figure 4.11 montre l'influence des techniques d'estimations sur les propriétés ultrasonores de l'époxy calculées avec la forme simplifiée (équation (4.16)) pendant la polymérisation à une température de consigne  $T = 40^\circ\text{C}$ . Nous remarquons que la différence entre les différents estimateurs augmente avec le passage de l'état liquide à l'état solide. L'estimateur par corrélation (Annexe G.3) permet d'améliorer la robustesse des évaluations des propriétés ultrasonores.

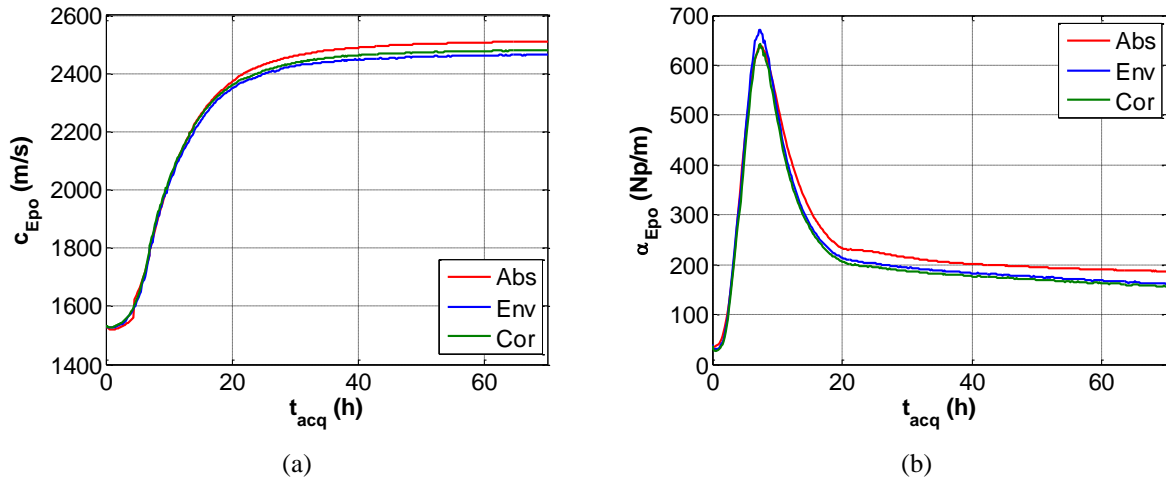


Figure 4.11 : Influence des estimateurs sur les propriétés ultrasonores de l'époxy pendant la polymérisation à une température de consigne  $T = 40^\circ\text{C}$  de (a) la vitesse  $c_{Epo}$  (m/s) et (b) l'atténuation  $\alpha_{Epo}$  (Np/m).

## IV Coefficient de transfert $\underline{T}$

### IV.1 Forme analytique

La connaissance du coefficient de transfert  $\underline{T}$  (équation (4.8)) est nécessaire pour calculer les propriétés ultrasonores dans l'époxy (équation (4.7)). Plus précisément, il est nécessaire d'en connaître son argument  $Arg(\underline{T})$  et son module  $|\underline{T}|$  pour déterminer la vitesse ultrasonore  $c_{Epo}(f)$  et l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$  dans la résine époxy. D'après l'Annexe F.2, nous pouvons écrire le coefficient de transmission sous la forme analytique suivante :

$$\underline{T}_{Alu/Epo} = \frac{2Z_{Alu}}{(Z_{Alu} + Z_{Epo})} \left( \frac{1 + \delta_{c,Epo} \left( \frac{Z_{Alu} \delta_{c,Alu} + Z_{Epo} \delta_{c,Epo}}{Z_{Alu} + Z_{Epo}} \right) + j \frac{Z_{Alu} (\delta_{c,Epo} - \delta_{c,Alu})}{Z_{Alu} + Z_{Epo}}}{1 + \left( \frac{Z_{Alu} \delta_{c,Alu} + Z_{Epo} \delta_{c,Epo}}{Z_{Alu} + Z_{Epo}} \right)^2} \right) \quad (4.17)$$

Le Tableau 4.2 montre la variation des coefficients de pertes  $\delta_{c,Epo}$  et  $\delta_{c,Alu}$  au début et après 30 heures de polymérisation.

Tableau 4.2 : Coefficients de pertes et impédances acoustique dans l'époxy et dans l'aluminium au début de polymérisation  $t_{acq} = 0$  h et à  $t_{acq} = 30$ h.

	$c_{Epo}$ (m/s)	$\alpha_{Epo}$ (Np/m)	$c_{Alu}$ (m/s)	$\alpha_{Alu}$ (Np/m)	$\delta_{c,Epo}$ (x10 <sup>-3</sup> )	$\delta_{c,Alu}$ (x10 <sup>-3</sup> )	$Z_{Epo}$ (MRa)	$Z_{Alu}$ (MRa)
$t_{acq} = 0$ h	1535	38	6380	2.9	2,3	0,7	2,3	17,9
$t_{acq} = 30$ h	2503	217	6370	2.8	21,6	0,6	3,7	17,8

L'application numérique des équations (4.8) et (4.17) donnent un module de transfert  $|\underline{T}| = 1,42$  et un argument  $Arg(\underline{T}) = 12,4$  mrad. En revenant sur l'expression analytique de l'équation (4.17), cette équation peut être simplifiée en négligeant les deux termes suivants :

$$\delta_{c,Epo} \left( \frac{Z_{Alu} \delta_{c,Alu} + Z_{Epo} \delta_{c,Epo}}{Z_{Alu} + Z_{Epo}} \right) \approx 2.10^{-6} \ll 1$$

$$\left( \frac{Z_{Alu} \delta_{c,Alu} + Z_{Epo} \delta_{c,Epo}}{Z_{Alu} + Z_{Epo}} \right)^2 \approx 8.10^{-7} \ll 1$$
(4.18)

L'équation (4.17) peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$\underline{T}_{Alu/Epo} \approx \frac{2Z_{Alu}}{(Z_{Alu} + Z_{Epo})} \left( 1 + j \frac{Z_{Alu} (\delta_{c,Epo} - \delta_{c,Alu})}{Z_{Alu} + Z_{Epo}} \right) = T_{Alu/Epo} (1 + j\delta_{T,Alu/Epo})$$
(4.19)

En tenant compte de la nouvelle forme de l'équation (4.19), le coefficient de transfert  $\underline{T}$  (équation (4.8)) devient au premier ordre:

$$\underline{T} \approx \frac{T_{Alu/Epo} T_{Epo/Alu}}{T_{Alu/Epo,ref} T_{Epo/Alu,ref}} \left( \frac{1 + j(\delta_{T,Alu/Epo} + \delta_{T,Epo/Alu})}{1 + j(\delta_{T,Alu/Epo,ref} + \delta_{T,Epo/Alu,ref})} \right)$$
(4.20)

En adoptant la même approche que celle développée pour l'équation (4.17) sur l'équation (4.20), nous trouvons :

$$\underline{T} \approx \frac{T_{Alu/Epo} T_{Epo/Alu}}{T_{Alu/Epo,ref} T_{Epo/Alu,ref}} \left( 1 + j(\delta_{T,Alu/Epo} + \delta_{T,Epo/Alu} - \delta_{T,Alu/Epo,ref} - \delta_{T,Epo/Alu,ref}) \right) = |\underline{T}| \cdot (1 + j\delta_T)$$
(4.21)

Sur la base des valeurs numériques synthétisées dans le Tableau 4.2, on évalue le module  $|\underline{T}| \approx 1,412$  et l'argument  $Arg(\underline{T}) \approx 12,54$  mrad, résultats en très bon accord avec l'estimation faite à partir de l'équation (4.8).

## IV.2 Détermination itérative du coefficient de transfert $\underline{T}$

Le coefficient de transfert  $\underline{T}$  (équation (4.8)) est directement lié aux différents paramètres ultrasonores initiaux  $\{c_{Epo,ref}, \alpha_{Epo,ref}, c_{Alu,ref}, \alpha_{Alu,ref}\}$  et instantanés  $\{c_{Epo}, \alpha_{Epo}, c_{Alu}, \alpha_{Alu}\}$  à travers les équations (4.7) et (4.8). Une procédure itérative basée sur une approche inverse pour l'optimisation du coefficient de transfert  $\underline{T}(f)$  est nécessaire pour le calcul des propriétés ultrasonores dans l'époxy  $\{c_{Epo}(f), \alpha_{Epo}(f)\}$ . L'algorithme de détermination du coefficient de transfert  $\underline{T}$  est présenté par la Figure 4.12 suivante :

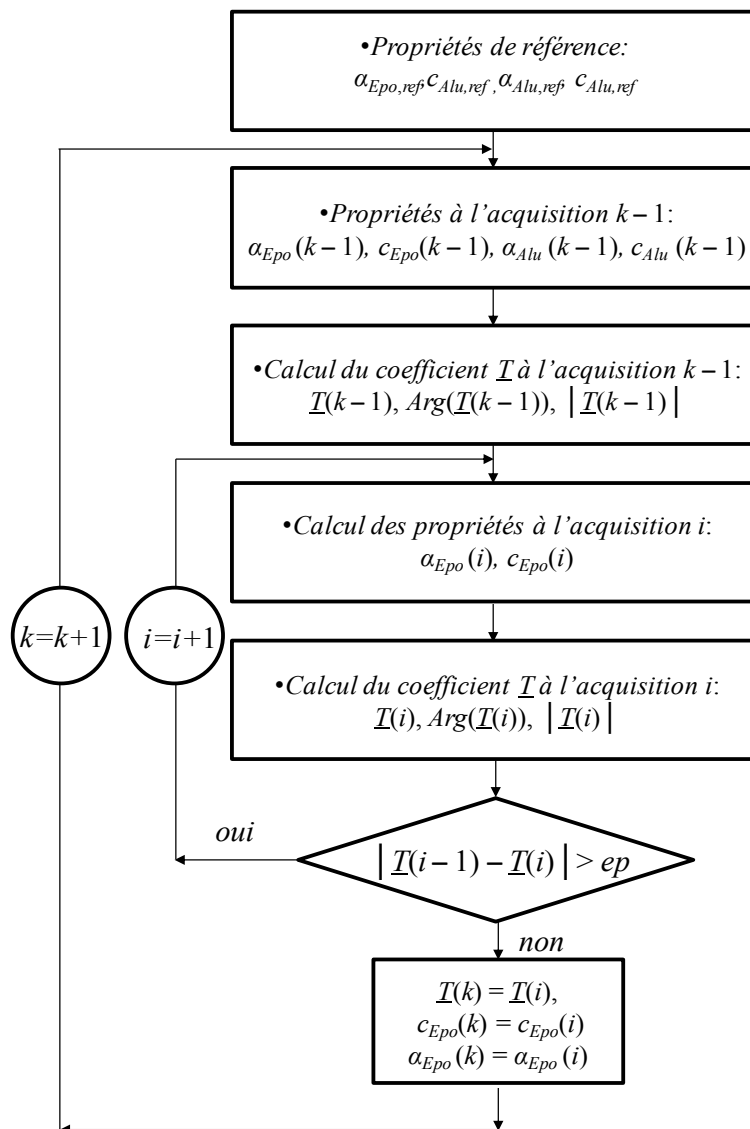


Figure 4.12 : Algorithme itératif de détermination du coefficient de transfert  $\underline{T}$ .

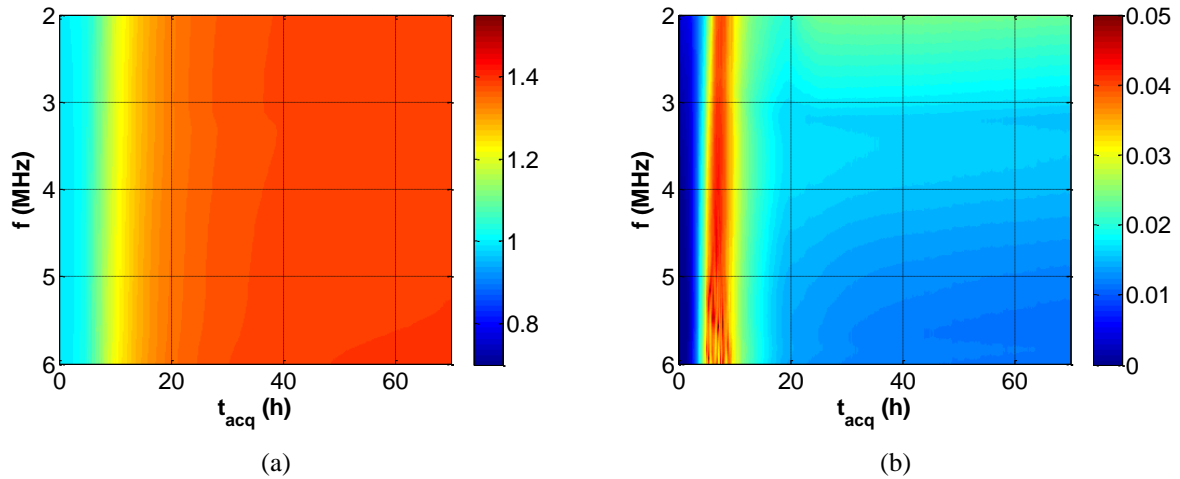


Figure 4.13 : Variation des (a) module  $|\underline{I}(f)|$  et (b) argument  $Arg(\underline{I}(f))$  du coefficient de transfert  $\underline{I}(f)$  en fonction de la fréquence  $f$  et le temps de polymérisation  $t_{acq}$  à une température de consigne  $T = 40^\circ\text{C}$ .

La Figure 4.13 montre la variation du module  $|\underline{I}(f)|$  et la phase  $Arg(\underline{I}(f))$  du coefficient de transmission  $\underline{I}(f)$  avec l'algorithme de convergence détaillé par le schéma de la Figure 4.12. La Figure 4.14 montre la variation du coefficient de transfert  $\underline{I}$  (le module  $|\underline{I}|$  et l'argument  $Arg(\underline{I})$ ) calculés en fonction du temps de polymérisation.

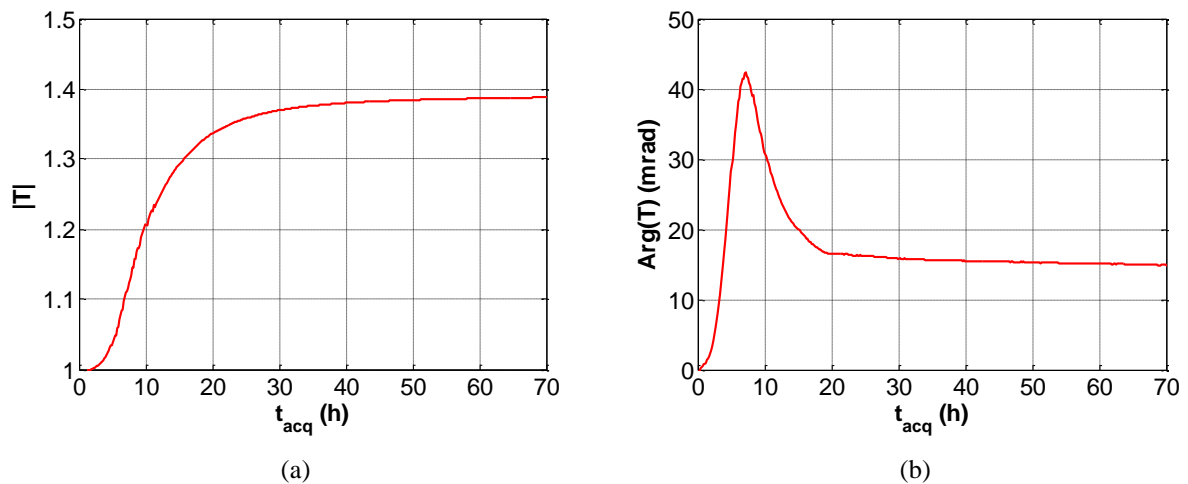


Figure 4.14 : Variation des (a) module  $|\underline{I}|$  et (b) argument  $Arg(\underline{I})$  du coefficient de transfert  $\underline{I}(f = 4 \text{ MHz})$  en fonction du temps de polymérisation  $t_{acq}$  à une température  $T = 40^\circ\text{C}$ .



### IV.3 Propriétés ultrasonores dans la résine

#### IV.3.1 Evolution en fonction du temps d'acquisition et la fréquence

Les propriétés ultrasonores dans l'époxy  $\{c_{Epo}(f), \alpha_{Epo}(f)\}$  sont ensuite obtenues en fonction de la fréquence et du temps d'acquisition en utilisant l'équation (4.7) (Figure 4.15). Dans cette équation, les propriétés des moules en aluminium et celles résultantes du coefficient de transfert  $T$  ont été prises en compte.

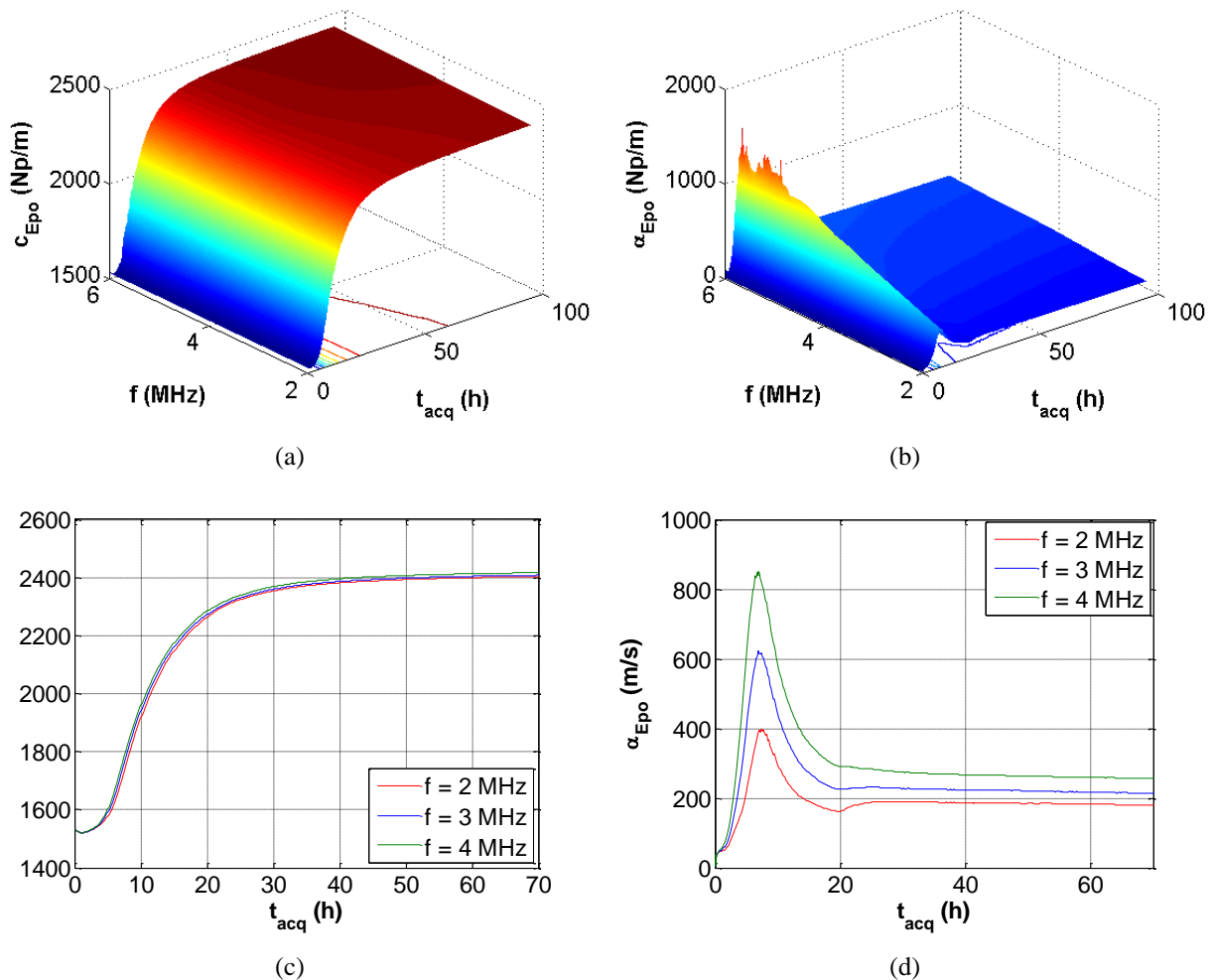


Figure 4.15 : Evolution des propriétés ultrasonores dans la résine époxy de (a) et (c) la vitesse  $c_{Epo}(f)$  (m/s) et (b) et (d) l'atténuation  $\alpha_{Epo}(f)$  (Np/m) (équation (4.7)) en cours de polymérisation à une température de consigne  $T = 40^\circ\text{C}$ .

### IV.3.2 Influence de la température de consigne

Afin d'étudier l'influence de la température de consigne sur la vitesse de la réaction, le suivi de polymérisation a été effectué à différentes températures de consigne  $T = \{35, 40, 50\}^{\circ}\text{C}$ . Sur la Figure 4.16 (a), la vitesse ultrasonore dans la résine époxy augmente plus rapidement si la température de consigne augmente. Le pic de l'atténuation dans la Figure 4.16 (b) qui définit le début de vitrification apparaît lui aussi plus rapidement si la température de consigne augmente.

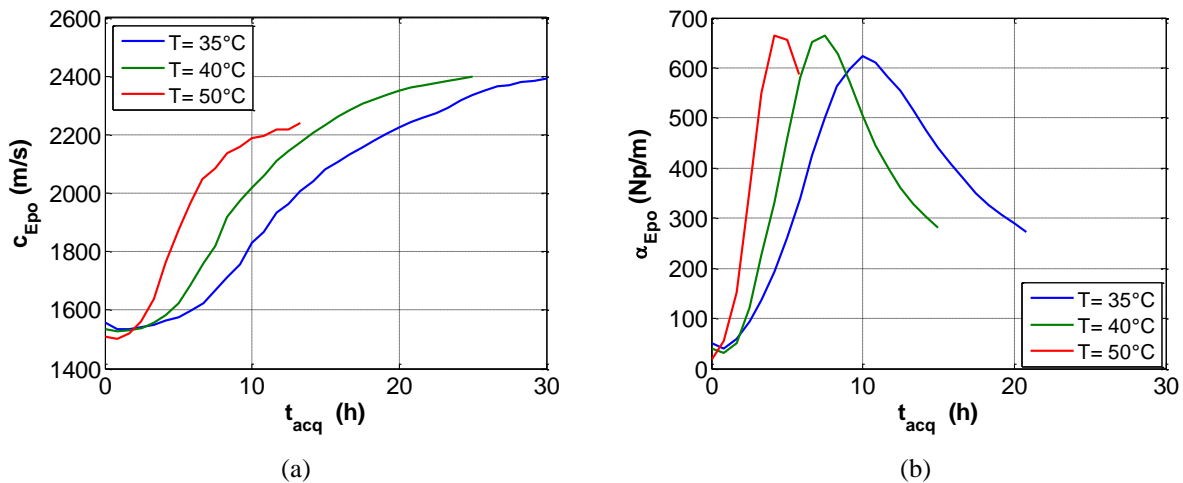


Figure 4.16 : Influence de la température de consigne sur l'évolution des propriétés ultrasonores dans l'époxy de (a) la vitesse  $c_{Epo}$  (m/s) et (b) l'atténuation  $\alpha_{Epo}$  (Np/m) (équation (4.16)).

## V Application pour le suivi des propriétés ultrasonores à haute température

Après avoir étudié la configuration expérimentale à basse température  $\{35, 40, 50\}^{\circ}\text{C}$ , il est nécessaire de réaliser le suivi de polymérisation à haute température. Dans cette partie, l'étude va se focaliser sur une nouvelle résine époxy (RTM6) [20] utilisée pour la fabrication des plaques composites avec des fibres de carbones avec le procédé RTM. Un transducteur à haute tenue en température de type K4V1 a été utilisé pour cette configuration à haute température.

## V.1 Transducteur à haute température K4V1

Le transducteur K4V1 (Figure 4.17 (a)) est un transducteur piézoélectrique commercial (GE Measurement and Control) utilisé spécifiquement pour effectuer des mesures en continu en transmission à haute température (d'après le fabricant, jusqu'à 180°C). La fréquence centrale du transducteur est  $f_0 = 4$  MHz. Ce type de transducteur possède une ligne à retard intégrée en acier pour la protection du matériau piézoélectrique. La Figure 4.17 (b) illustre les échos d'aller-retour dans la ligne à retard.

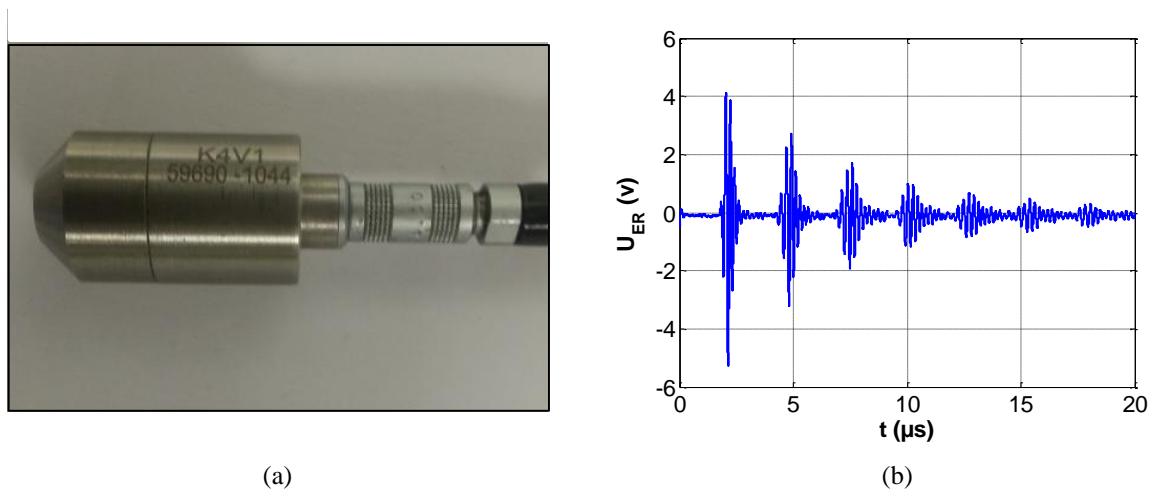


Figure 4.17 : (a) Transducteur à haute température K4V1 et (b) signaux d'émission/réflexion de la ligne à retard intégrée.

Ces lignes à retard rendent compliquée la configuration en émission-réflexion vu le chevauchement des échos. Dans une configuration en émission/transmission (Figure 4.18 (a)), le signal récupéré correspond au premier écho transmis dans le bloc d'aluminium suivi par des échos qui correspondent aux réflexions multiples qui proviennent des lignes à retard intégrés. Ces réflexions multiples vont être mélangées avec les échos provenant des moules en aluminium et la couche de résine dans le cas de la configuration tricouche du suivi de polymérisation (Figure 4.18 (b)). Dans ce cas, deux solutions sont envisageables pour calculer les propriétés ultrasonores dans la résine. La première solution est classique et consiste à travailler avec quatre transducteurs. Deux transducteurs sont placés en face pour une distance  $d_1$  de la couche d'époxy et deux autres transducteurs sont placés en face pour une distance  $d_2$ . D'une part, cette solution est coûteuse car elle nécessite l'utilisation de quatre transducteurs, d'autre part, cette méthode nécessite la mesure à deux positions différentes de caractéristiques potentiellement différentes et avec deux épaisseurs différentes ce qui n'est pas le cas avec le procédé de mise en forme des composites étudié ici. La deuxième méthode consiste à

travailler avec le premier écho transmis à condition de connaître les propriétés ultrasonores dans les moules en aluminium et les lignes à retard intégrées en acier ainsi que leurs évolutions en fonction de la température.

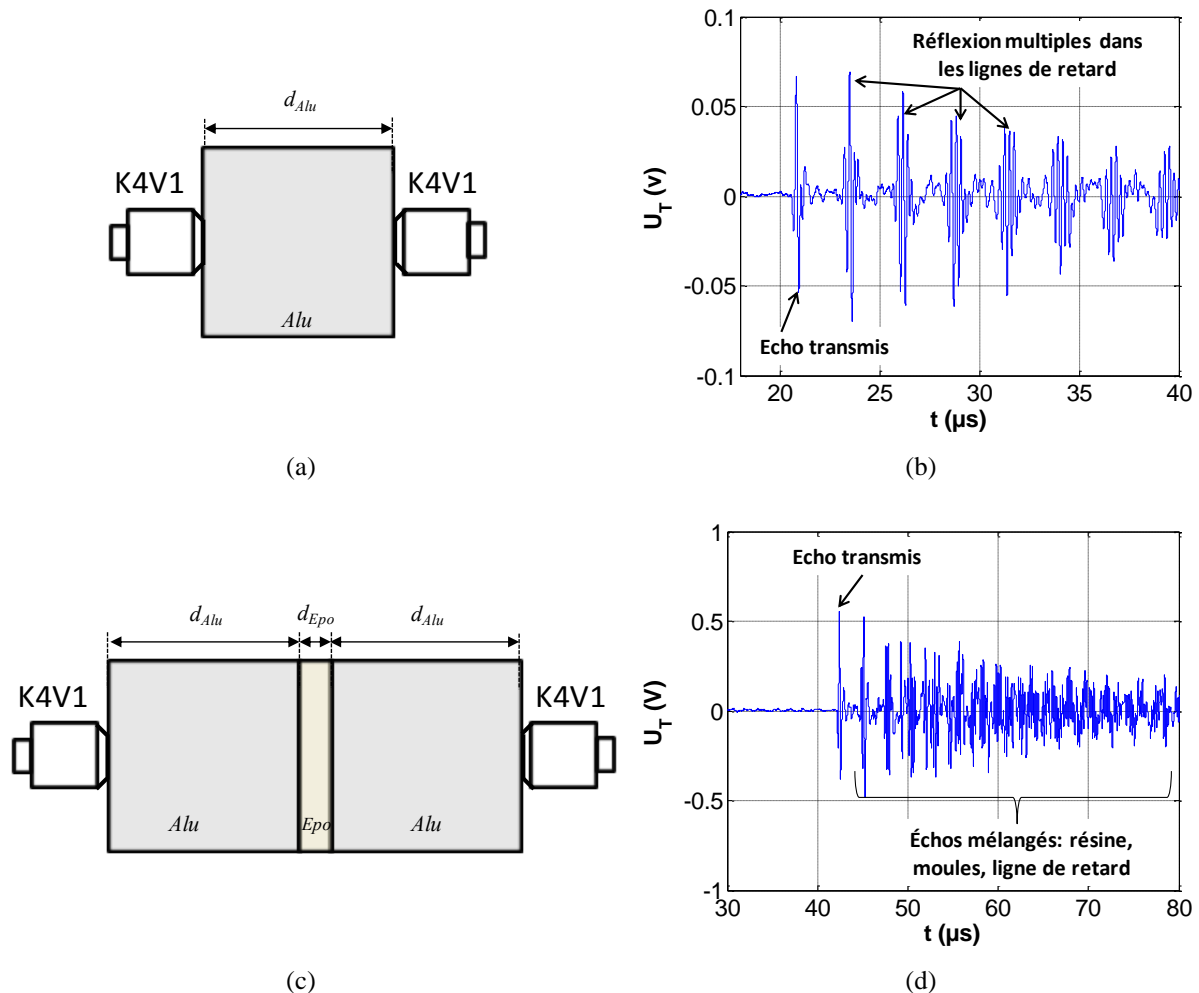


Figure 4.18 : Configuration en émission/transmission avec deux transducteurs K4V1: (a) d'un bloc d'aluminium et (b) les signaux transmis associés, (c) d'une configuration tricouche (Alu/Epo/Alu) et (d) les signaux associés.

## V.2 Evolution des propriétés ultrasonores dans la ligne à retard

Pour étudier la variation des propriétés ultrasonores dans la ligne à retard intégrée du capteur K4V1, un essai de chauffage et de refroidissement a été effectué dans une gamme de température entre  $20^{\circ}C$  et  $180^{\circ}C$ . La Figure 4.19 montre l'hystérésis de la vitesse et de l'atténuation pendant le chauffage et le refroidissement. Un ajustement linéaire (courbes vertes) sur la courbe moyenne (courbes noires) donne les ajustements suivants :

$$\begin{cases} c_{Ac} \approx 5789 - T = 5769 \cdot (1 - (T - T_{ref})) \\ \alpha_{Ac} \approx 26,54 - 0,1 \cdot T = 24,54 \cdot (1 - (T - T_{ref})) \end{cases} \quad (4.22)$$

avec  $T_{ref} = 20^\circ\text{C}$ .

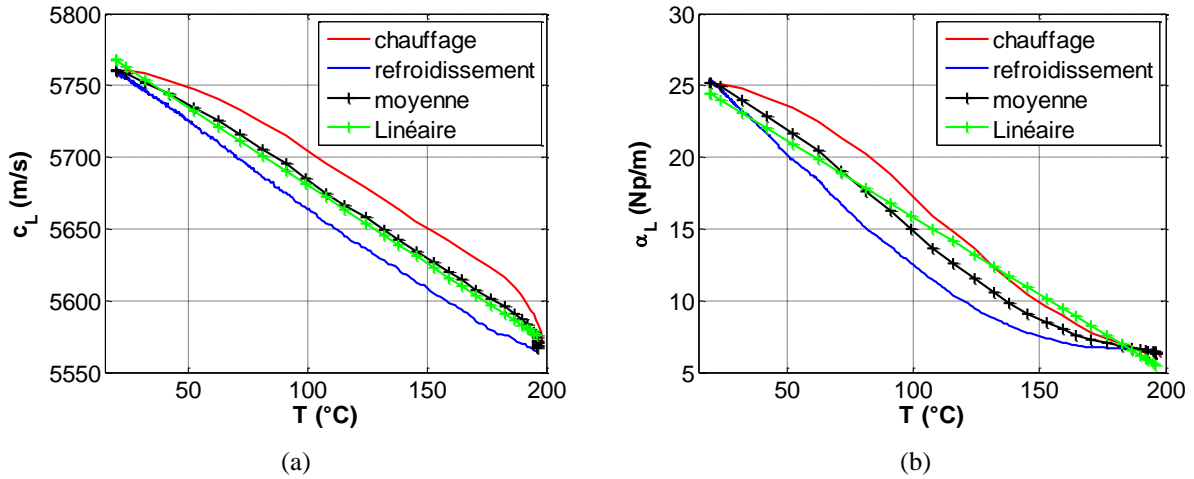


Figure 4.19 : Hystérésis des propriétés ultrasonores de (a) la vitesse longitudinale  $c_{Ac}$  (m/s) et (b) de l'atténuation  $\alpha_{Ac}$  (Np/m) dans les lignes à retard intégrées du capteur K4V1.

### V.3 Mise en équation

Dans la première partie du chapitre, nous avons travaillé avec une structure tricouche (Alu/Epo/Alu). En utilisant les capteurs à haute température K4V1, la structure étudiée devient une structure à cinq couches (Figure 4.20).

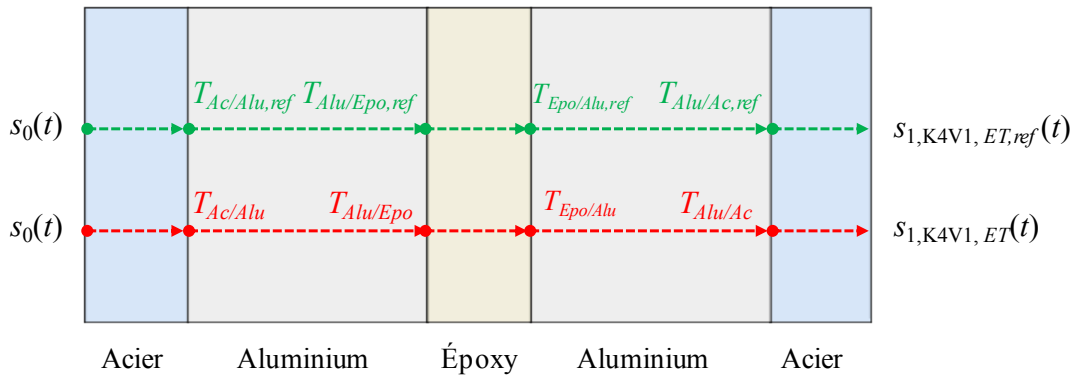


Figure 4.20 : Parcours des signaux de transmission d'une structure à cinq couches (Ac/Alu/Epo/Alu/Ac) : signal de référence  $s_{1,K4V1,ET,ref}(t)$  et signal instantané  $s_{1,K4V1,ET}(t)$ .

Les spectres  $\underline{S}_{1,K4V1,ET,ref}(f)$  et  $\underline{S}_{1,K4V1,ET}(f)$  correspondent aux échos transmis de référence  $s_{1,K4V1,ET,ref}(t)$  et instantané  $s_{1,K4V1,ET}(t)$  à travers la structure correspondante à la ligne à retard en acier du transducteur d'émission, le bloc d'aluminium, la couche d'époxy, le bloc d'aluminium puis la ligne à retard du transducteur de réception (Ac/Alu/Epo/Alu/Ac). Les spectres de ces deux signaux  $s_{1,K4V1,ET,ref}(t)$  et instantané  $s_{1,K4V1,ET}(t)$  s'écrivent:

$$\begin{cases} \underline{S}_{1,K4V1,ET,ref}(f) = \underline{S}_0 e^{-2jk_{Alu,ref}d_{Alu}} e^{-2jk_{Ac,ref}d_{Ac}} e^{-jk_{Epo,ref}d_{Epo}} \underline{T}_{Ac/Alu,ref} \underline{T}_{Alu/Epo,ref} \underline{T}_{Epo/Alu,ref} \underline{T}_{Alu/Ac,ref} \\ \underline{S}_{1,K4V1,ET}(f) = \underline{S}_0 e^{-2jk_{Alu}d_{Alu}} e^{-2jk_{Ac}d_{Ac}} e^{-jk_{Epo}d_{Epo}} \underline{T}_{Ac/Alu} \underline{T}_{Alu/Epo} \underline{T}_{Epo/Alu} \underline{T}_{Alu/Ac} \end{cases} \quad (4.23)$$

En utilisant la démarche décrite dans l'Annexe F.1, et d'un point de vu de la réponse temporelle, la vitesse ultrasonore  $c_{Epo}$  peut s'écrire en fonction du temps de retard entre l'écho de référence et l'écho instantané  $\Delta t_{11,K4V1}$ , du décalage temporel dans les moules  $\delta t_{Alu}$  et dans les lignes à retard  $\delta t_{Ac}$ . L'atténuation  $\alpha_{Epo}$  est exprimée en fonction du rapport des maximums d'amplitudes entre l'écho de référence et l'écho instantané  $\max(s_{1,K4V1,ET}(t))/\max(s_{1,K4V1,ref,ET}(t))$ , et de la variation d'atténuation dans les moules  $\delta\alpha_{Alu}$  dans les lignes à retard. Les propriétés ultrasonores s'écrivent:

$$\begin{cases} c_{Epo} = \frac{d_{Epo}}{\frac{d_{Epo}}{c_{Epo,ref}} - \delta t_{Alu} - \delta t_{Ac} - \Delta t_{11,K4V1}} \\ \alpha_{Epo} = \alpha_{Epo,ref} + \delta\alpha_{Alu} + \delta\alpha_{Ac} - \frac{1}{d_{Epo}} \ln \left( \frac{\max(s_{1,K4V1,ET})}{\max(s_{1,K4V1,ET,ref})} \frac{1}{|\underline{T}_{K4V1}|} \right) \end{cases} \quad (4.24)$$

où  $\underline{T}_{K4V1}$  est un coefficient de transfert qui s'écrit sous la forme suivante :

$$\underline{T}_{K4V1} = \frac{\underline{T}_{Ac/Alu} \underline{T}_{Alu/Epo} \underline{T}_{Epo/Alu} \underline{T}_{Alu/Ac}}{\underline{T}_{Ac/Alu,ref} \underline{T}_{Alu/Epo,ref} \underline{T}_{Epo/Alu,ref} \underline{T}_{Alu/Ac,ref}} \quad (4.25)$$

## V.4 Transformation de phase

Le suivi de polymérisation à haute température de la résine RTM6 a été effectué selon un protocole expérimental précis. Au début, une opération de dégazage pendant 30 minutes a été effectuée pour enlever les bulles d'air. Ensuite, les moules ont été chauffés à 80°C jusqu'à la stabilisation de la température. Enfin, au début de l'écoulement de la résine entre les moules, la température de consigne est augmentée pour atteindre 160°C et le suivi de polymérisation commence. Sur la Figure 4.21, les signaux de transmission de la résine époxy RTM6 pendant la polymérisation donnent l'information sur les différentes transformations de phase. La phase viscoélastique comprise entre  $t_{acq} = 0$  et 1,5 h est caractérisée par une légère

variation des signaux par rapport au temps d'acquisition, du fait de la mise en température de la résine. La deuxième phase est la phase de transition vitreuse, caractérisée par une variation rapide des signaux ultrasonores par rapport au temps d'acquisition. La troisième phase est la phase de saturation solide qui commence à partir de 2 heures et est caractérisée par une stabilisation des signaux ultrasonores.

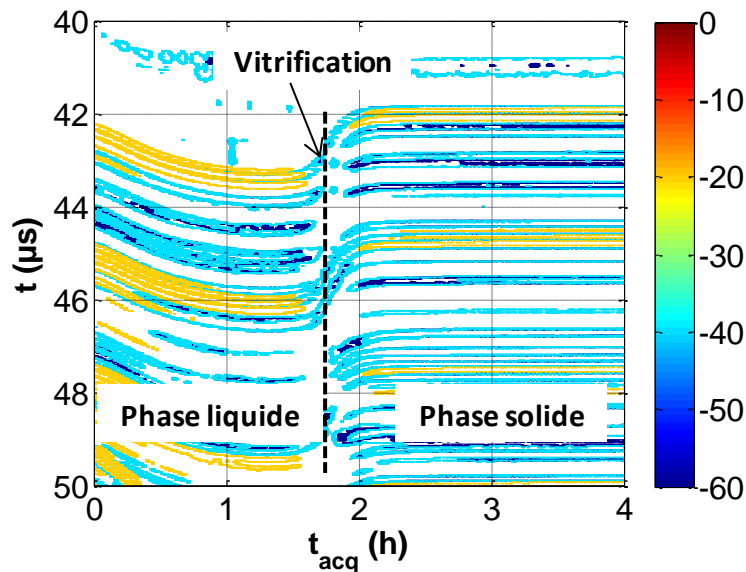


Figure 4.21 : Variation des signaux de transmission durant le suivi de polymérisation d'une résine époxy RTM6 en utilisant un transducteur à haute température K4V1.

En utilisant l'équation (4.24), la vitesse et l'atténuation dans la résine RTM6 ont été calculées en cours de polymérisation (Figure 4.22). Sur la Figure 4.22 (a), la vitesse ultrasonore (courbe en rouge) est légèrement sensible dans la phase liquide. La polymérisation commence entre  $t_{acq} = 0$  et 0,25 h, et la vitesse augmente en conséquence. Entre  $t_{acq} = 0,25$  et 1,25 h, l'effet de la température supérieure à 140°C se fait sentir, entraînant une variation de  $c_{Epo}$  à la baisse, qui prédomine alors sur l'augmentation liée à la polymérisation. Cette tendance est observée jusqu'à  $t_{acq} = 1,25$  h, date à laquelle la température se stabilise, et la polymérisation se déroule alors rapidement pour se terminer 1 h plus tard, à  $t_{acq} \approx 2,25$  h. Lorsque la température (courbes en bleu) atteint 160°C, la vitesse ultrasonore augmente fortement de 1300 m/s pour indiquer la phase de transition vitreuse. A partir d'un temps d'acquisition  $t_{acq} \approx 2,25$  h, la vitesse ultrasonore reste constante dans la phase de saturation solide. Sur la Figure 4.22 (b), l'atténuation augmente avec la température au cours de la phase liquide. Le domaine de transition vitreuse est caractérisé par une grande variation de

l'atténuation par rapport au temps d'acquisition. Dans ce domaine, le pic d'atténuation atteint son maximum à  $t_{acq} \approx 1,75$  h. La phase de saturation solide est caractérisée par une stabilisation de l'atténuation en fonction de la température observée là aussi à partir de  $t_{acq} \approx 2,25$  h.

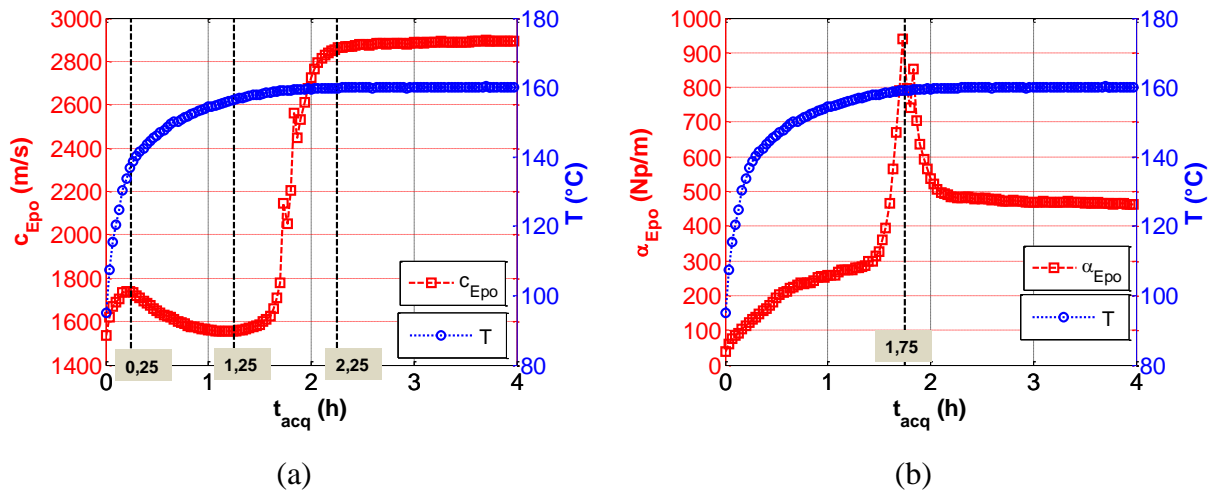


Figure 4.22 : Variation des propriétés ultrasonores pendant la polymérisation de (a) la vitesse et (b) de l'atténuation d'une résine époxy RTM6 en fonction du temps d'acquisition et de la température de consigne (courbe bleue).

## V.5 Transformation thermique

On s'intéresse maintenant la transformation thermique dans l'époxy RTM6 durci. Le suivi des propriétés ultrasonores de l'époxy durci pendant un cycle de chauffage dans une gamme de température comprise entre 20 et 180°C. La Figure 4.23 (a) et (b) montre la variation de la vitesse ultrasonore et de l'atténuation en fonction du temps d'acquisition et la montée en température associée (courbes en bleu). Nous pouvons distinguer trois parties, la première apparaît jusqu'à  $t_{acq} \approx 0,1$  h où la sensibilité des paramètres ultrasonores avec la température est faible vu que l'échantillon est initialement à la température ambiante avec une différence entre la température du four et celle de l'échantillon pendant le chauffage. Dans la deuxième partie comprise entre  $t_{acq} \approx 0,1$  et 0,6 h, les propriétés ultrasonores sont fortement sensibles à la température. Dans cette zone, la vitesse ultrasonore diminue progressivement. Le pic de l'atténuation correspond à la température de transition vitreuse  $T_g = 136^\circ\text{C}$ . La troisième partie est comprise entre  $t_{acq} \approx 0,6$  et 1,6 h. Dans cette zone, la sensibilité de la vitesse et de l'atténuation par rapport à la température diminuent.



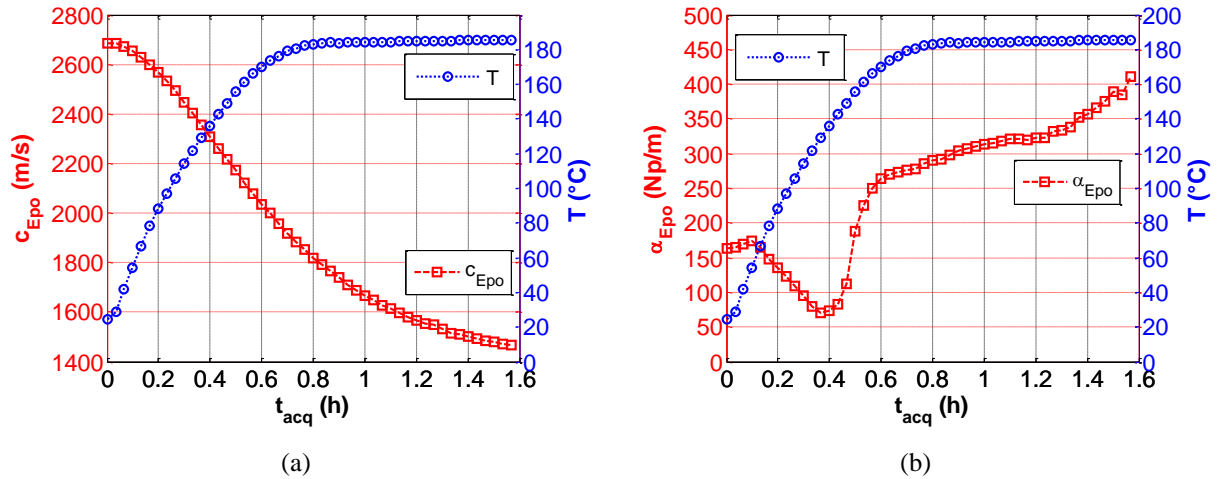


Figure 4.23 : Identification de la transformation thermique dans un époxy durci RTM6 pendant un cycle de chauffage entre 20 et 180°C : (a) vitesse  $c_{Epo}$  (m/s) et (b) atténuation  $\alpha_{Epo}$  (Np/m) en fonction de la date d'acquisition  $t_{acq}$  (h) et de la température  $T$  (°C).

## V.6 Simulation de réponse électroacoustique

La simulation de la réponse électroacoustique dans le cas d'une transformation thermique a été effectuée en utilisant la méthode DSM (Chapitre 2, paragraphe IV) . Pour cette simulation, nous introduisons les masses volumiques  $\{\rho_{Ac}, \rho_{Alu}, \rho_{Epo}\}$ , les épaisseurs  $\{d_{Ac}, d_{Alu}, d_{Epo}\}$  des différentes couches. Puisqu'il s'agit d'une variation des propriétés ultrasonores en fonction de la température, nous introduisons aussi les modèles linéaires dans l'aluminium (équation 3.1) et dans la ligne à retard du capteur K4V1 (équation (4.22)). Afin de modéliser la variation des propriétés ultrasonores dans la résine RTM6, nous avons introduit une modélisation en température (équation (3.13)) (Chapitre 3, paragraphe V.3.1). La Figure 4.24 montre les résultats de mesures (courbes rouges) et le modèle ajusté (courbes noires) identifié pour la vitesse et l'atténuation de la résine RTM6 en fonction de la température de cuisson.

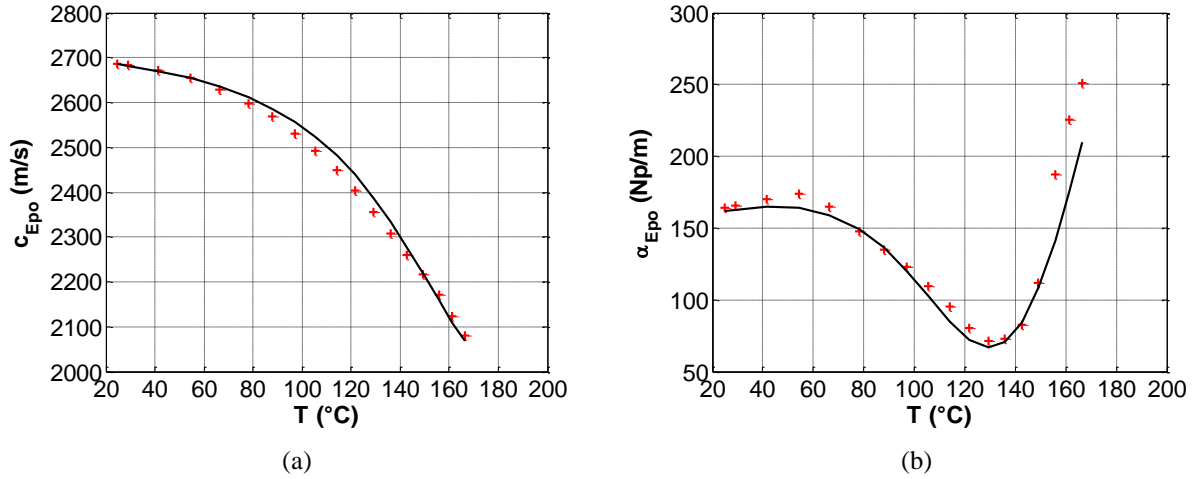


Figure 4.24 : Résultats expérimentaux (croix rouges) et modèle ajusté (courbes noires) de la variation des propriétés ultrasonores (a) de la vitesse  $c_{Epo}$  (m/s) et (b) de l'atténuation  $\alpha_{Epo}$  (Np/m) d'une résine époxy RTM6 en fonction de la température.

Le cycle de température a été introduit aussi dans le modèle DSM. Sur la Figure 4.24, la variation de la température dans le four  $T_f$  en fonction du temps d'acquisition  $t_{acq}$  s'écrit sous la forme de l'équation suivante (courbe noire):

$$\begin{cases} T_f(t_{acq}) = T_{\min} + (T_{\max} - T_{\min}) \cdot \left(1 - e^{-\frac{t_{acq}}{\tau_1}}\right) & \text{si } t_{acq} < t_m \\ T_f(t_{acq}) = T_{\max} + (T_{\max} - T_{\min}) \cdot \left(1 - e^{-\frac{t_{acq} - t_m}{\tau_2}}\right) & \text{si } t_{acq} > t_m \end{cases} \quad (4.26)$$

avec  $T_{\min} = 32^\circ\text{C}$ ,  $T_{\max} = 186^\circ\text{C}$ ,  $\tau_1 = 0,25$  h,  $\tau_2 = 2,5$  h et  $t_m = 2,8$  h.

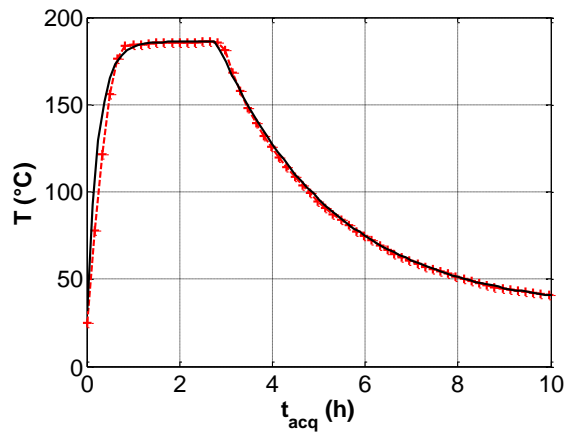


Figure 4.25 : Cycle de température : mesures (pointillés rouges) et le modèle (courbe noire) selon l'équation (4.26).

Le coefficient de transmission totale  $|\underline{I}(f, t_{acq})|$  de la structure à cinq couches (équations 2.17) pendant le cycle de température est présenté par la Figure 4.26 (a). La multiplication du coefficient de transmission  $|\underline{I}(f, t_{acq})|$  par la bande passante gaussienne  $\underline{BW}(f)$  permet de centrer l'amplitude à la fréquence centrale du transducteur  $f_0 = 4$  MHz (Figure 4.26 (b)). Le signal électroacoustique modélisé par DSM est alors obtenu et représenté par la Figure 4.26 (c) et permet d'obtenir les différents échos transmis. Ces résultats de simulation sont en bon accord avec les résultats expérimentaux Figure 4.26 (d).

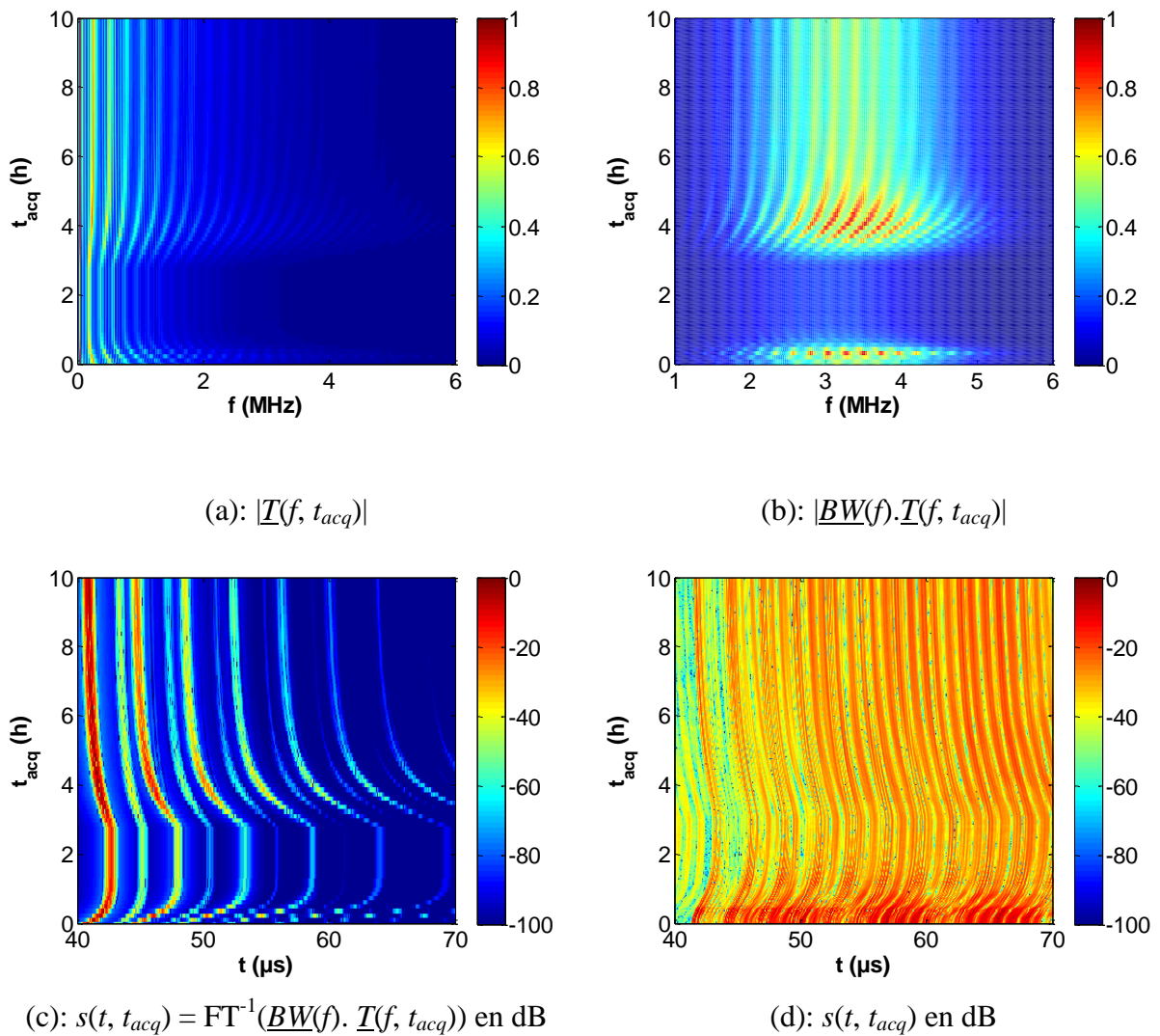


Figure 4.26 : Simulation du signal électroacoustique pendant un post-cuisson d'une résine RTM6 : (a) coefficient de transmission  $|\underline{I}(f, t_{acq})|$  (équation 2.17), (b) pondération du coefficient de transmission par la bande passante  $|\underline{BW}(f).\underline{I}(f, t_{acq})|$ , (c) signaux électroacoustiques obtenu par DSM et (d) comparaison avec les résultats expérimentaux en échelle dB.

## VI Conclusion

L'objectif principal de ce chapitre a consisté à proposer une solution pour travailler avec les capteurs à haute température avec lignes à retard intégrée. La spécificité de cette étude a permis de mettre en œuvre deux transducteurs et d'utiliser le signal transmis direct. Pour aboutir à cet objectif, l'étude théorique à basse température a permis d'obtenir les propriétés ultrasonores de l'époxy  $\{c_{Epo}, \alpha_{Epo}\}$  en fonction des propriétés de référence de l'époxy  $\{c_{Epo,ref}, \alpha_{Epo,ref}\}$ , des propriétés ultrasonores dans les moules en aluminium  $\{c_{Alu}, \alpha_{Alu}\}$ , et cela en fonction d'un coefficient de transfert  $\underline{T}$ . La détermination des propriétés de référence a été effectuée avec les différentes méthodes temporelle et spectrale. L'influence des moules a conduit à écrire les propriétés ultrasonores dans l'époxy sous trois formes : l'une expérimentale, l'autre approchée et la dernière simplifiée. L'influence de la technique d'estimation a été étudiée également pour tenir compte de la distorsion de l'écho. Le coefficient de transfert  $\underline{T}$  a été déterminé sous une forme analytique et via une procédure d'optimisation itérative basée sur une approche inverse. Les propriétés ultrasonores dans l'époxy sont finalement calculées avec la méthode spectrale et en prenant en compte la fréquence et la température de consigne.

La deuxième partie de ce chapitre a été consacrée à l'étude avec des transducteurs à haute température avec des lignes à retard intégrées. Dans cette configuration, les propriétés ultrasonores dans l'époxy  $\{c_{Epo}, \alpha_{Epo}\}$  s'écrivent en fonction des propriétés de référence de l'époxy  $\{c_{Epo,ref}, \alpha_{Epo,ref}\}$ , des propriétés ultrasonores dans les moules en aluminium  $\{c_{Alu}, \alpha_{Alu}\}$ , des propriétés ultrasonores dans les lignes à retard  $\{c_{Ac}, \alpha_{Ac}\}$  et cela en fonction d'un coefficient de transfert  $\underline{T}_{K4V1}$ . Le suivi de polymérisation et la post-cuisson de la résine RTM6 ont été effectués à haute température, permettant de déterminer les transformations de phases et thermiques. La mise en œuvre de la simulation de la réponse électroacoustique avec la méthode DSM a montré un bon accord avec les résultats de l'expérience.

## VII Références

- [1] M. G. Messineo, G. L. Frontini and L. F. G. Garretón, « Identification of ultrasonic properties of layered materials,» in *6th European Congress on Computational Methods in Applied Sciences and Engineering, ECCOMAS 2012*, 2012.
- [2] M. G. Messineo, G. L. Frontini, G. E. Eliçabe and L. Gaete-Garretón, « Equivalent ultrasonic impedance in multilayer media. A parameter estimation problem, » *Inverse Problems in Science and Engineering*, vol. 21, no. 8, pp. 1268-1287, 2013.
- [3] M. G. Messineo, G. Rus, G. E. Eliçabe and G. L. Frontini, « Layered material characterization using ultrasonic transmission. An inverse estimation methodology, » *Ultrasonics* , vol. 65, pp. 315-328, 2016.
- [4] A. E. Mouhtadi, « Caractérisation ultrasonore de plaques viscoélastiques homogènes et composites, » Thèse, Université du Havre, 2011.
- [5] S. Wei, Z. Yunsheng and M. Jones, « Using the ultrasonic wave transmission method to study the setting behavior of foamed concrete, » *Construction and Building Materials* , vol. 51, pp. 62-74, 2014.
- [6] G. Trtnik, G. Turk, F. Kavčič and V. B. Bosiljkov, « Possibilities of using the ultrasonic wave transmission method to estimate initial setting time of cement paste, » *Cement and Concrete Research* , vol. 38, no. 11, pp. 1336-1342, 2008.
- [7] J. Bamber and C. Hill, « Ultrasonic attenuation and propagation speed in mammalian tissues as a function of temperature, » *Ultrasound in Medicine & Biology*, vol. 5, no. 2, pp. 149-157, 1979.
- [8] Y. Trelin, I. Vasil'ev and V. Roshchupkin, « Measurement of the ultrasound velocity in molten alkali metals, » *The Soviet Journal of Atomic Energy*, vol. 9, no. 5, pp. 955-957, 1961.
- [9] R. Nasoni, T. Bowen, W. Connor and R. Sholes, « In vivo temperature dependence of ultrasound speed in tissue and its application to noninvasive temperature monitoring, » *Ultrasonic Imaging*, vol. 1, no. 1, pp. 34-43, 1979.
- [10] N. Yoshimoto, H. Shibata, M. Yoshizawa, K. Suzuki, K. Shigematsu and S. Kimura, « Sound velocity measurements of molten germanium, » *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 35, no. 5R, p. 2754, 1996.
- [11] U. Techavipoo, T. Varghese, Q. Chen, T. A. Stiles, J. A. Zagzebski and G. R. Frank, «

- Temperature dependence of ultrasonic propagation speed and attenuation in excised canine liver tissue measured using transmitted and reflected pulses, » *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 115, no. 6, pp. 2859-2865, 2004.
- [12] Y. Greenberg, E. Yahel, M. Ganor, R. Hevroni, I. Korover, M. P. Dariel and G. Makov, « High precision measurements of the temperature dependence of the sound velocity in selected liquid metals, » *Journal of Non-Crystalline Solids* , vol. 354, no. 34, pp. 4094-4100, 2008.
- [13] G. Ghoshal, A. C. Luchies, J. P. Blue and M. L. Oelze, « Temperature dependent ultrasonic characterization of biological media, » *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 130, no. 4, pp. 2203-2211, 2011.
- [14] Y. Kono, C. Park, T. Sakamaki, C. Kenny-Benson, G. Shen and Y. Wang, « Simultaneous structure and elastic wave velocity measurement of SiO<sub>2</sub> glass at high pressures and high temperatures in a Paris-Edinburgh cell, » *Review of Scientific Instruments*, vol. 83, no. 3, 2012.
- [15] B. Hutchinson, P. Lundin, E. Lindh-Ulmgren and D. Lévesque, « Anomalous ultrasonic attenuation in ferritic steels at elevated temperatures, » *Ultrasonics* , à paraître, 2016.
- [16] C. Zhou, Y. Wang, C. Qiao, S. Zhao and Z. Huang, « High-accuracy ultrasonic temperature measurement based on MLS-modulated continuous wave, » *Measurement* , vol. 88, pp. 1-8, 2016.
- [17] M. Wan, R. Yadav, D. Singh, M. S. Panday and V. Rajendran, « Temperature dependent ultrasonic and thermo-physical properties of polyaniline nanofibers reinforced epoxy composites, » *Composites Part B: Engineering* , vol. 87, pp. 40-46, 2016.
- [18] Y. Greenberg, E. Yahel, E. N. Caspi, C. Benmore, B. Beuneu, M. P. Dariel and G. Makov, « Evidence for a temperature-driven structural transformation in liquid bismuth, » *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 86, no. 3, p. 36004, 2009.
- [19] J. McHugh, « Ultrasound technique for the dynamic mechanical analysis (DMA) of polymers, » Ph.D thesis, Berlin Techn. University, 2007.
- [20] I. E. Sawi, « Dispersion de nanotubes de carbone et intégration de la fonction de conductivité électrique dans les matériaux composites structuraux, » Thèse, Université de Toulouse, 2010.



## Chapitre V : Localisation et dimensionnement de défauts par transducteur multiéléments

### I Introduction

Les techniques de contrôle ou d'évaluation non-destructives ont pour but de déterminer la structure et les caractéristiques d'un milieu a priori inconnu en observant l'interaction d'un phénomène physique avec celui-ci. Le contrôle des défauts durant la fabrication de matériaux composites permet d'effectuer un contrôle santé de pièces composites en cours de fabrication. La technologie de contrôle non destructif (CND) par les transducteurs multiéléments dans le secteur d'imagerie médicale et industrielle évolue continuellement et présente un domaine d'actualité pour le CND avec les ultrasons. La caractérisation ultrasonore de matériaux composites permet d'en identifier les propriétés élastiques et leur dépendance à de multiples facteurs environnementaux. En particulier, des inhomogénéités de matière peuvent induire des inhomogénéités de propriétés et conduire à un vieillissement localisé accéléré, du fait des sollicitations telles que : pression, fatigue, température, taux d'humidité... L'évaluation non-destructive (END) en cours d'élaboration permet d'envisager de nouvelles voies d'amélioration du procédé de fabrication [1]. Le suivi en temps réel des conditions de fabrication, de la répartition de matière et des propriétés viscoélastiques du matériau composite, sont autant d'éléments d'amélioration.

Ainsi, la caractérisation ultrasonore en fonction de la position  $(x, y)$  et du temps de vol  $\tau$  permettent d'évaluer l'uniformité et la répartition spatiale des propriétés viscoélastiques effectives [2]. Ensuite, l'évaluation de ces paramètres viscoélastiques en fonction de différentes dates d'acquisition  $t_{acq}$  permet d'effectuer un suivi de l'évolution de ces propriétés [3], que ce soit en cours de fabrication, de traitement, ou de vie du matériau [4]. Ainsi, avec les systèmes d'émission-réception multiéléments et de balayage mécanique, les propriétés ultrasonores sont cartographiées en deux dimensions. Un découpage de la fenêtre d'exploration selon le temps de vol permet de localiser plus précisément le défaut de fibre ou de matière selon le cas [10].

Dans ce chapitre, nous effectuons une étude visant à contrôler le déplacement des fibres de carbone, avec des défauts intégrés, à l'intérieur d'un moule en aluminium. Un transducteur multiélément linéaire à haute résolution est utilisé pour obtenir une résolution optimale. Une première approche consiste à suivre le déplacement des fibres en deux dimension  $(x, y)$  avec



des C-scans. Une deuxième approche a été proposée, avec des C-scans en profondeur ( $x, y, z$ ), afin de localiser les défauts internes et de visualiser le profil des plis. Enfin, une cartographie des plaques composites permet d'obtenir des C-scans des propriétés ultrasonores: vitesse et atténuation.

## II Les transducteurs multiéléments

La variation de la date d'émission des ondes à partir d'un grand nombre de sources permet à la fois d'orienter et de focaliser le front d'ondes regroupées : c'est avec cette idée inspirée du principe de Huygens de l'effet d'interférence entre des ondes déphasées que l'inspection avec transducteurs multiélément est réalisée. Les transducteurs multiéléments sont des capteurs constitués de transducteurs monoélément qui peuvent être pilotés séparément. Ces transducteurs élémentaires peuvent avoir des formes variables organisés en réseaux linéaires, annulaires, circulaires ou encore matriciels. La mise en œuvre de lois focales, i.e. dates de tir de ces transducteurs élémentaires permet de réaliser le balayage, la focalisation et la déflexion électronique.

### II.1 Le balayage électronique

Le balayage électronique consiste à déplacer spatialement un faisceau en activant séquentiellement un élément ou un groupe d'éléments. La Figure 5.1 montre dans notre cas d'étude, la configuration du balayage électronique d'un transducteur linéaire multiéléments placé en contact avec un moule pour la caractérisation d'un milieu constitué d'un mélange de résine et fibres. Dans notre configuration, le balayage électronique utilisé est défini par un nombre de lois focales  $N_f$  qui s'écrit sous la forme suivante :

$$N_f = \frac{N_T - N}{N_s} + 1 \quad (5.1)$$

où  $N_T$  le nombre d'éléments du transducteur,  $N$  le nombre d'éléments actifs pour chaque loi focale et  $N_s$  le pas en nombre d'éléments entre chaque loi focale. L'augmentation du nombre d'éléments actifs permet d'augmenter la précision de la tache focale (Figure 5.6 (a)), mais réduit la zone d'inspection (équation (5.1)).

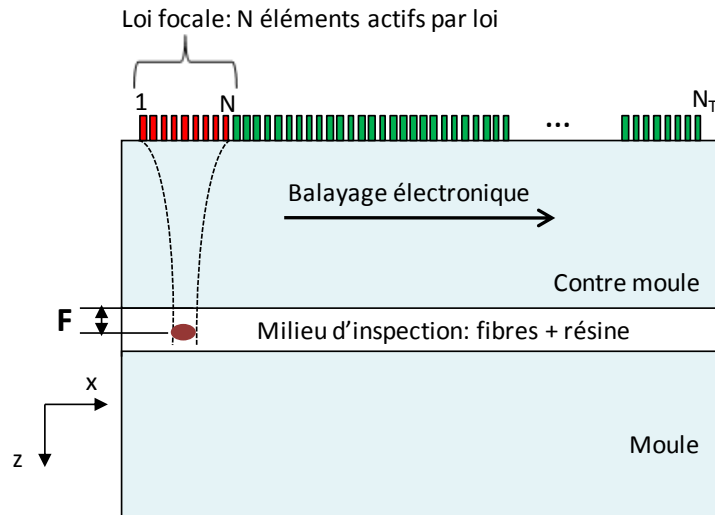


Figure 5.1: Configuration du balayage électronique et génération des lois focales lors du déplacement des fibres entre les moules.

Dans le cas d'un transducteur linéaire (Figure 5.2), l'ouverture totale est paramétrée en fonction de la configuration géométrique. Dans la direction  $x$  du balayage électronique, l'ouverture dépend de l'ouverture totale de la direction active  $A$ , la largeur d'un élément  $a$  et le pas inter-élément (pitch)  $p$ . Dans la direction  $y$  de la hauteur des éléments, l'ouverture est la largeur de l'élément  $b$  suivant l'axe passive. L'échantillonnage spatial  $x_{lf}(n_{lf})$  suivant l'axe  $x$  de balayage électronique est défini pour chaque loi focale  $n_{lf}$  par :

$$x_{lf}(n_{lf}) = (n_{lf} - 1) \cdot N_s \cdot p \quad (5.2)$$

où  $n_{lf}$  le numéro de la loi focale avec  $1 \leq n_{lf} \leq N_{lf}$ .

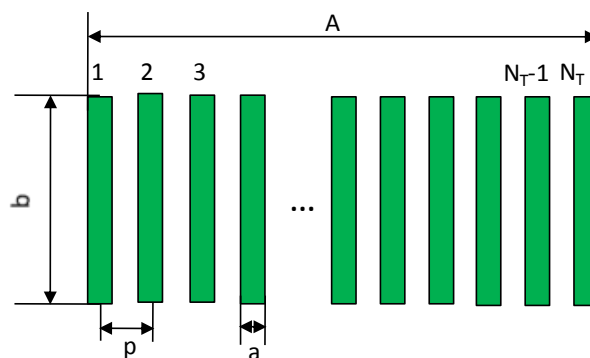


Figure 5.2: Configuration géométrique des éléments pour un transducteur linéaire.

## II.2 La focalisation

### II.2.1 Lois de retard

Chaque élément du transducteur est physiquement et électroniquement séparé par rapport aux autres éléments en émission et en réception. Pour cette raison, il est donc possible de créer un déphasage entre les éléments et d'exciter chaque élément séparément avec un retard par rapport aux autres. Afin de focaliser le champ de pression à une profondeur bien déterminée, et avec une focalisation nette, il est nécessaire de définir une loi de retard. Dans le cas d'une couche simple, nous écrivons pour chaque élément, le temps de tir pour atteindre le point focal avec l'expression suivante:

$$t(n_{el}) = \frac{F}{c_m} \left( \sqrt{1 + \left( \left( (n_{el} - 1) - \frac{N-1}{2} \right) \frac{p}{F} \right)^2} \right) \quad (5.3)$$

où  $n_{el}$  est le numéro d'élément,  $F$  est la distance de focalisation géométrique,  $c_m$  est la vitesse ultrasonore dans le milieu d'inspection et  $p$  est la distance inter-élément. Dans notre cas, la structure est constituée d'un bloc d'aluminium et un milieu fibreux à inspecter; il s'agit donc d'une structure bicouche. La Figure 5.3 montre la trajectoire d'un rayon ultrasonore dans une structure bicouche. Dans ce cas, le temps nécessaire de chaque élément pour atteindre le point focal géométrique est défini avec l'écriture suivante:

$$t(n_{el}) = \frac{\sqrt{L_{Alu}^2 + L_1^2}}{c_{Alu}} + \frac{\sqrt{L_m^2 + (L(n_{el}) - L_1)^2}}{c_m} \quad (5.4)$$

avec  $L_{Alu}$  l'épaisseur du moule en aluminium,  $L_m$  l'épaisseur de la couche fibreuse,  $c_{Alu}$  la vitesse dans les moules en aluminium,  $c_m$  la vitesse effective dans la couche fibreuse. La distance  $L(n_{el}) = L_0 - x(n_{el})$  est la différence entre  $L_0 = ((N-1)/2)p$  qui correspond au milieu des lois focales et  $x(n_{el}) = (n_{el}-1)p$  la position de l'élément excité au moment de tir  $t(n_{el})$ . Pour chaque élément  $n_{el}$ , la distance  $L_1$  est la solution d'un polynôme d'ordre 4 qui s'écrit sous la forme suivante :

$$L_1^4 + L_1^3(-2L) + L_1^2(L_m^2 + L^2) + L_1 \left( 2LL_{Alu}^2 \frac{c_{Alu}}{c_m - c_{Alu}} \right) - \frac{L^2 L_{Alu}^2 c_{Alu}}{c_m - c_{Alu}} = 0 \quad (5.5)$$

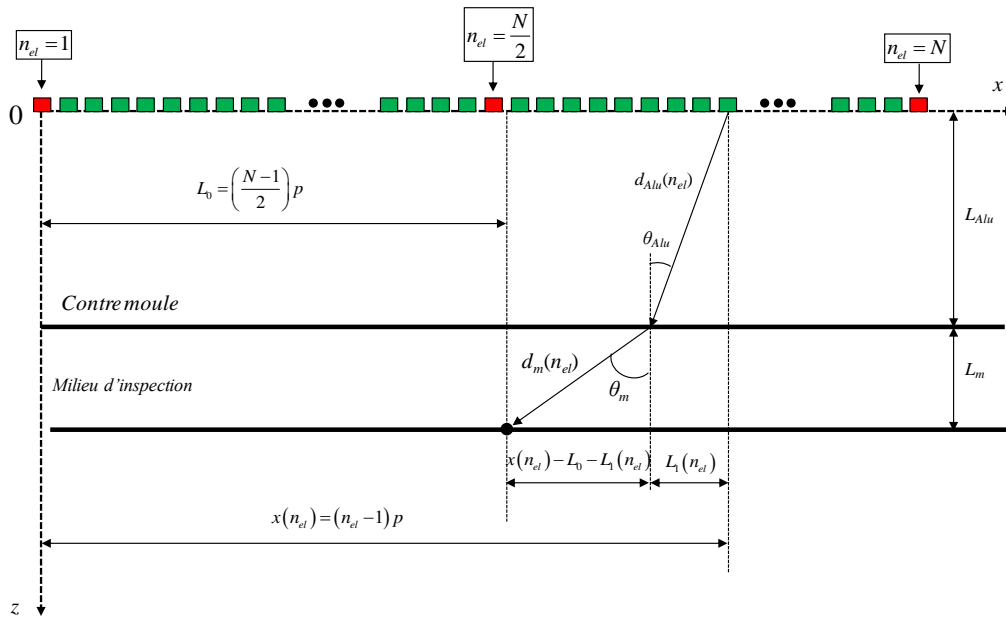


Figure 5.3: Trajectoire d'un rayon ultrasonore dans une structure bicouche pour atteindre la tache focale.

Dans le cas d'une couche simple (équation (5.3)) ou une structure bicouche (équation (5.4)), la loi de retard  $\tau(n_{el})$  s'écrit comme la différence du temps de tir entre le premier élément et l'élément concerné :

$$\tau(n_{el}) = t(1) - t(n_{el}) \quad (5.6)$$

Les équations (5.3) et (5.4) sont valables à une température donnée et dans le cas d'une structure avec des propriétés ultrasonores constantes.

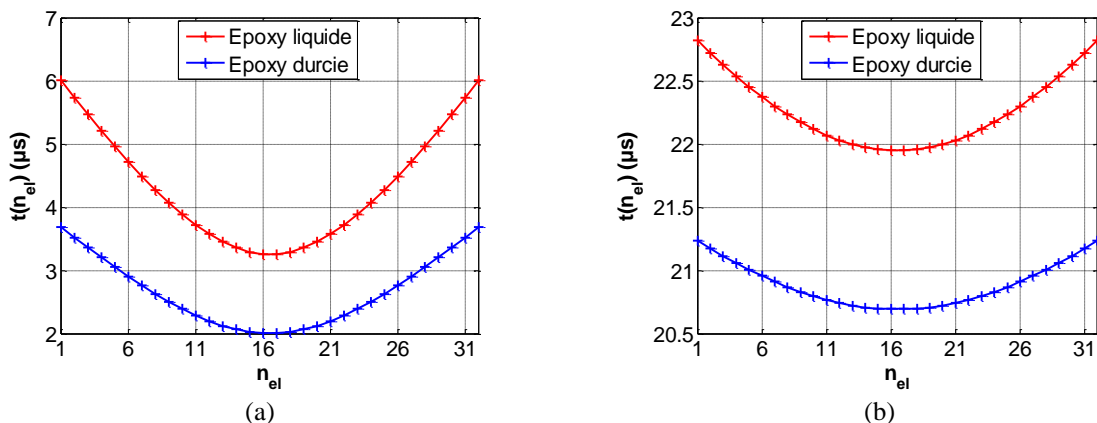


Figure 5.4: Calcul de temps de propagation dans chaque élément pour atteindre le point focal : (a) cas de l'époxy et (b) structure bicouche constituée de l'aluminium et l'époxy. Différence lorsque l'époxy est à l'état liquide ou solide vitreux.

Il est important de noter que dans le cas d'une variation de température ou d'une transformation de phase lorsque matériau passe de l'état liquide visqueux à l'état solide vitreux, la vitesse de propagation ne reste plus constante. Dans ce cas, la focalisation n'a pas toujours lieu à la même profondeur sans adapter les lois de retard. Il est indispensable dans ce cas d'implémenter des lois focales variables dans le temps en fonction de la vitesse de propagation dans le milieu d'inspection. La différence de temps de propagation depuis chaque élément pour atteindre le point focal pour un époxy liquide et solide, dans le cas d'une couche simple (Figure 5.4 (a)) et une structure bicouche de l'aluminium et l'époxy (Figure 5.4 (b)) sont calculées à partir des équations (5.3) et (5.4).

### II.2.2 Résolution de la tache focale

On a établi au paragraphe précédent que la variation de la date d'émission des ondes à partir d'un grand nombre de sources permet de focaliser la pression acoustique à une profondeur bien déterminée. Dans cette partie, nous étudierons les dimensions de la tache focale suivant l'axe de balayage électronique  $x$ , l'axe de balayage mécanique  $y$  et l'axe de propagation  $z$ . Il faut noter tout d'abord que la profondeur de la tache focale  $F$  des transducteurs multiéléments ne doit pas dépasser la limite du champ proche  $L_{cp}$  qui s'écrit pour les éléments rectangulaires:

$$L_{cp} = \frac{K_r X^2 f_0}{4c_m} \quad (5.7)$$

où  $K_r$  est une constante liée au rapport des ouvertures dans les deux direction  $x$  et  $y$ ,  $X$  est la longueur de l'élément ou de l'ouverture des lois focales,  $f_0$  est la fréquence et  $c_m$  est la vitesse de l'onde ultrasonore dans le matériau inspecté. La fonction de directivité angulaire  $DA(\theta_x, \theta_y)$  est fonction des angles directeurs  $\theta_x$  et  $\theta_y$  selon  $x$  et  $y$ . Cette fonction résulte du produit des directivités selon  $x$  et  $y$  [1] [11] [12] avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} D_x(\theta_x) = \left| \frac{\sin\left(\frac{ka \sin \theta_x}{2}\right)}{\frac{ka \sin \theta_x}{2}} e^{j\frac{ka \sin \theta_x}{2}} \cdot \left( \sum_{n_{el}=0}^{N-1} e^{j(A.n_{el}^2 + B.n_{el})} \right) \right| \\ D_y(\theta_y) = \left| \frac{\sin\left(\frac{kb \sin \theta_y}{2}\right)}{\frac{kb \sin \theta_y}{2}} \right| \end{array} \right. \quad (5.8)$$

Avec  $A = p^2/(2c_m F)$  et  $B = A(N-1) + kd.\sin\theta_x$ .

La directivité angulaire permet d'évaluer les résolutions angulaires:

$$DA(\theta_x, \theta_y) \approx \left| \text{sinc}\left(\frac{kX\theta_x}{2}\right) \cdot \text{sinc}\left(\frac{kY\theta_y}{2}\right) \right| \quad (5.9)$$

où  $k = 2\pi f_0/c_m$  est le nombre d'onde,  $X = (N-1).p + a$  et  $Y = b$  sont les ouvertures effectives,  $X$  résultant des  $N$  éléments actifs d'une loi focale et  $Y$  étant la longueur de l'élément actif. Les Figure 5.5 (a) et (b) montrent que l'écriture approchée de la directivité angulaire  $D_x$  (équation (5.9)) sont en bon accord avec la forme exacte de l'équation (5.8). Nous remarquons que la résolution angulaire  $\theta_x$  et  $\theta_y$ , dans les deux directions (Figure 5.5 (c) et (d)) est plus réduite pour la résine époxy liquide. Ce résultat est lié à l'augmentation de la vitesse ultrasonore lorsque le polymère passe de l'état liquide à l'état solide, ce qui a pour effet d'augmenter la longueur d'onde  $\lambda = 2\pi/k = c_m/f_0$  et de dégrader par la suite la résolution de la tache focale.

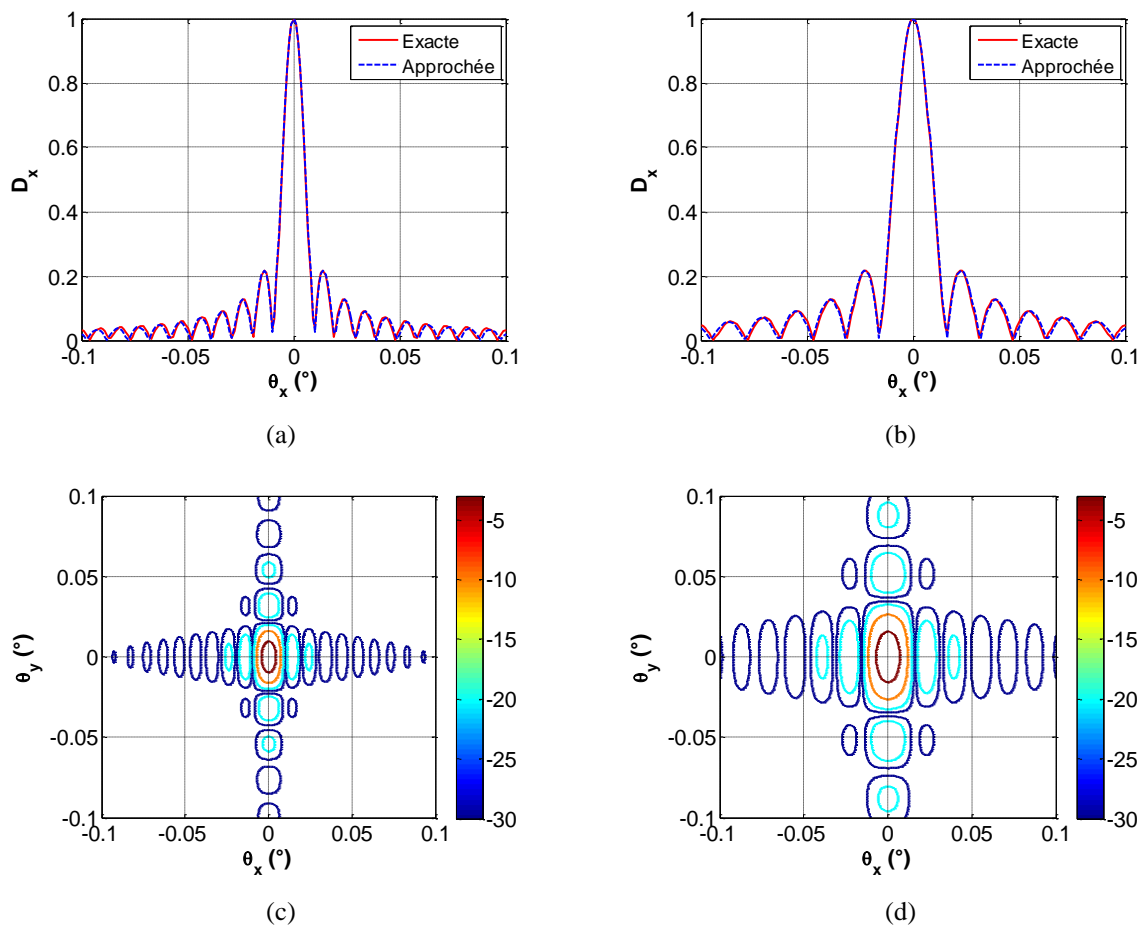


Figure 5.5 : Comparaison entre la forme exacte de la directivité suivant  $x$  (équation (5.8)) et sa forme approchée (équation (5.9)) pour (a) l'époxy liquide et (b) l'époxy durci. Directivité angulaire suivant les deux axes calculée selon la forme approchée (équation (5.9)) pour (c) l'époxy liquide et (d) l'époxy durci.

Après avoir étudié l'influence du milieu à inspecter, la résolution angulaire et par conséquent la qualité de la tache focale varie en fonction des paramètres de conception du transducteur (fréquence centrale, géométrie des éléments...). La Figure 5.6 (a) montre que la résolution angulaire  $\theta_x$  diminue si le nombre d'éléments  $N$  qui constitue une loi focale augmente, ce qui a pour effet d'améliorer la capacité de focalisation. L'augmentation de la fréquence du transducteur permet d'augmenter la limite du champ proche (équation (5.7)) mais aussi de réduire l'angle de divergence  $\theta_x$  du faisceau (Figure 5.6 (b)), ce qui améliore le potentiel de focalisation. Sur Figure 5.6 (c), l'augmentation du pas entre les éléments  $p$  permet d'améliorer la résolution angulaire puisqu'il est lié à l'ouverture  $X$  suivant l'axe  $x$ . L'augmentation de l'ouverture suivant l'axe passif  $Y$  de l'élément actif permet de diminuer la résolution angulaire  $\theta_y$ , et d'améliorer par la suite la focalisation (Figure 5.6 (d)). L'augmentation de la fréquence, la taille des éléments ou du pas inter-éléments est limitée par la création de lobes secondaires [11].

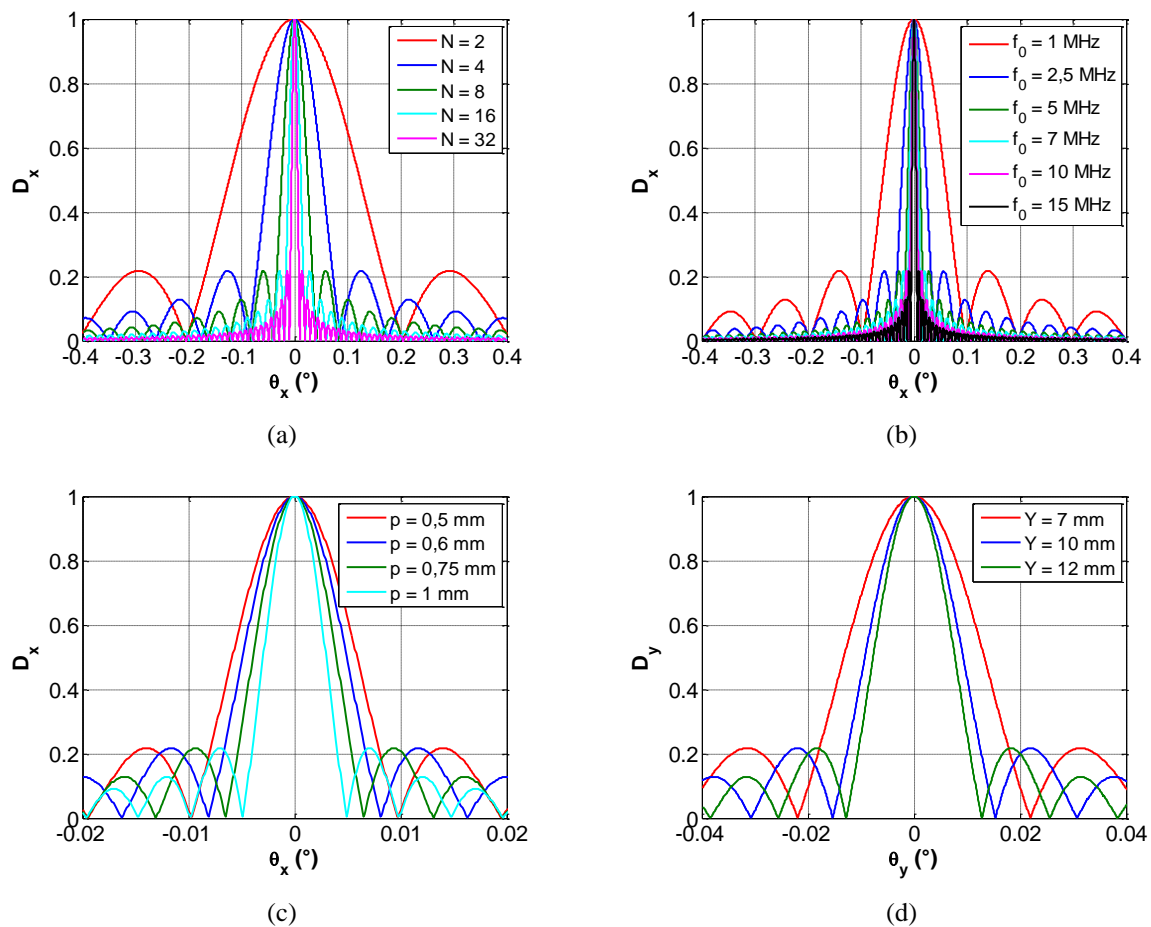


Figure 5.6 : Influence des propriétés d'un transducteur multiéléments : (a) nombre d'éléments de focalisation  $N$ , (b) fréquence centrale du transducteur  $f_0$ , (c) pas inter-élément sur la résolution angulaire  $\theta_x$  et (d) l'ouverture dans la direction passive  $Y$  sur la résolution angulaire  $\theta_y$ .

La fonction sinus cardinal possède une solution à  $-3\text{dB}$   $p_{sol} \approx 1,392$ . Les résolutions angulaires  $\theta_{x,-3\text{dB}}$  et  $\theta_{y,-3\text{dB}}$  de l'équation (5.9) à  $-3\text{ dB}$  s'écrivent sous la forme suivante:

$$\begin{cases} \theta_{x,-3\text{dB}} \approx \arcsin\left(\frac{2p_{sol}}{k_m X}\right) \approx \frac{2p_{sol}}{k_m X} \approx 0,443 \frac{\lambda}{X} \\ \theta_{y,-3\text{dB}} \approx \arcsin\left(\frac{2p_{sol}}{k_m Y}\right) \approx \frac{2p_{sol}}{k_m Y} \approx 0,443 \frac{\lambda}{Y} \end{cases} \quad (5.10)$$

Ainsi, les résolutions latérales à  $-3\text{dB}$   $\Delta x_3$  et  $\Delta y_3$  selon  $x$  et  $y$  sont estimées en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ , la profondeur de la tache focale  $F$  et les ouvertures  $X$  et  $Y$  par:

$$\begin{cases} \Delta x_3 \approx 2F\theta_{x,-3\text{dB}} \approx 0,886.\lambda F / X \\ \Delta y_3 \approx 2F\theta_{y,-3\text{dB}} \approx 0,886.\lambda F / Y \end{cases} \quad (5.11)$$

La résolution suivant l'axe des ultrasons  $z$  est calculée à partir de la durée à  $-6\text{ dB}$  du signal d'aller-retour dans le matériau inspecté :

$$\Delta z_6 = \frac{c_m t_6}{2} \quad (5.12)$$

### II.3 Le balayage mécanique

Le balayage mécanique permet la translation du transducteur ou de l'objet à caractériser l'un par rapport à l'autre suivant la direction perpendiculaire à la direction du balayage électronique (Figure 5.7). Les signaux résultants d'un tel balayage électronique et mécanique permettent d'effectuer une évaluation des propriétés en fonction de la position  $(x, y)$  et construire un C-scan composé de  $N_{lf}$  pixels suivant l'axe de balayage électronique et  $N_{acq}$  pixels suivant l'axe de balayage mécanique. Ce type de balayage mécanique est paramétré par deux facteurs. Le premier est la fréquence d'acquisition  $f_{acq}$  qui indique le nombre d'acquisitions par seconde. Le deuxième facteur est la vitesse de balayage mécanique  $v_{bm}$  qui représente la vitesse de déplacement du transducteur ou le l'objet à caractériser, l'un par rapport à l'autre. L'échantillonnage spatial  $y_{acq}(n_{acq})$  suivant l'axe de balayage mécanique est défini pour chaque acquisition  $n_{acq}$  par :

$$y_{acq}(n_{acq}) = (1 - n_{acq}).v_{bm}.T_{acq} \quad (5.13)$$



où  $n_{acq}$  est le numéro d'acquisition avec  $1 \leq n_{acq} \leq N_{acq}$  et  $T_{acq} = 1/f_{acq}$  est la périodicité d'acquisition en seconde.

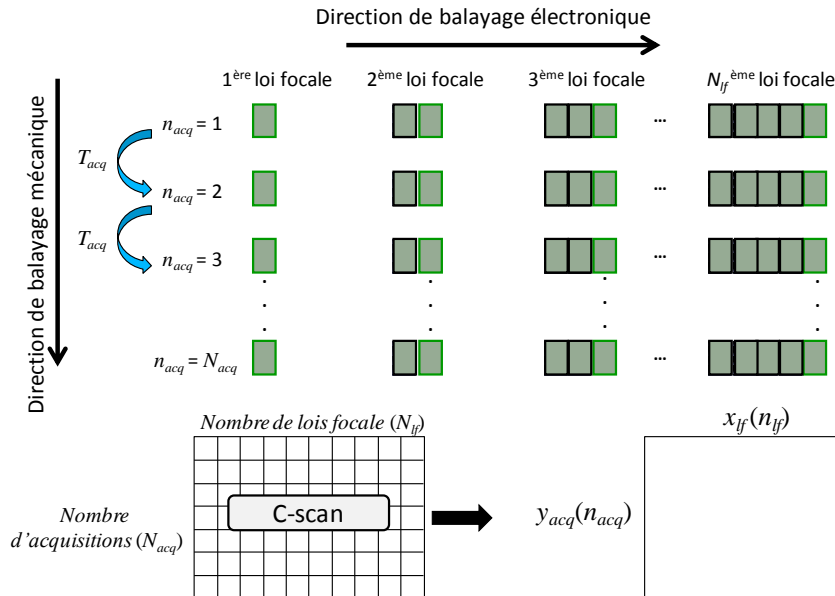


Figure 5.7: Configuration d'un C-scan construit par un balayage électronique à partir d'un transducteur multiéléments linéaire et un balayage mécanique obtenu par la translation.

### III Modélisation

La propagation ultrasonore dans un empilement de milieux homogènes, entraîne l'apparition d'échos aux interfaces présentant un coefficient de réflexion  $|R_{pq}| > 0$  et une dimension significative relativement à la longueur d'onde  $D/\lambda > 1$  [5]. Dans le cas de milieux complexes tels que les matériaux composites fibreux, ces critères entrent en considération à différentes échelles : les fibres constituant un toron, les torons tissés constituant un pli, les plis orientés et superposés constituant le renfort, la résine époxy injectée constituant la matrice. Les réflexions sont donc multiples et des hypothèses simplificatrices conduisent à des propriétés effectives à différentes échelles : épaisseur totale, épaisseur d'un pli, ou encore distinction du tissage dans un pli.

Dans une première approche, les propriétés effectives d'un matériau composite selon son épaisseur sont évaluées via l'identification du nombre d'onde longitudinale  $k_L(f) = \omega/c_L(f) + j.\alpha_L(f)$ , avec  $\omega = 2\pi f$  la pulsation,  $c_L(f)$  la vitesse longitudinale, et  $\alpha_L(f)$  l'atténuation longitudinale.

Afin d'identifier ces propriétés, la connaissance de la nature des matériaux environnants est nécessaire. Ceux-ci sont donc caractérisés de façon préalable afin de pouvoir les prendre en considération. Les propriétés de la couche étudiée peuvent alors être déterminées par un problème inverse [6] [7]. Dans la configuration tricouche étudiée, contre-moule/composite/moule, le matériau composite est simulé par un pli de fibres en immersion dans l'eau à une température connue. Soient  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  les signaux réfléchis respectivement au premier et au deuxième aller-retour dans le milieu intermédiaire. Les spectres associés à ces échos sont notés respectivement  $\underline{S}_1(f)$  et  $\underline{S}_2(f)$  [8] :

$$\underline{S}_n(f) = A_0 \cdot e^{jk_L(f)2nd_2} \cdot \underline{T}_{12} \cdot \underline{R}_{23} \cdot (\underline{R}_{21} \cdot \underline{R}_{23})^{n-1} \cdot \underline{T}_{21} \quad (5.14)$$

où  $A_0$  est l'amplitude du signal émis,  $d_2$  est l'épaisseur du milieu intermédiaire,  $\underline{T}_{pq}$  et  $\underline{R}_{pq}$  sont respectivement les coefficients de transmission et de réflexion lorsque le faisceau ultrasonore est incident du milieu d'indice  $p$  vers le milieu d'indice  $q$ . La fonction de transfert entre les spectres  $\underline{S}_2(f)$  et  $\underline{S}_1(f)$  est donnée par :

$$\underline{T}(f) = \frac{\underline{S}_2(f)}{\underline{S}_1(f)} = e^{-j2\pi f \frac{2d_2}{c_L}} \cdot e^{-2d_2 \cdot \alpha_L} \cdot \underline{R}_{21} \cdot \underline{R}_{23} \quad (5.15)$$

Les coefficients de transmission  $\underline{T}_{pq}$  et de réflexion  $\underline{R}_{pq}$  sont estimés via les propriétés des matériaux constituant la structure à étudier. Ainsi, les propriétés des éléments constitutants (Tableau 5.1) ont été caractérisées dans des conditions similaires ou relevées dans la littérature (fibres de carbone). Ainsi au cours de la polymérisation, la résine époxy liquide ( $l$ ) imprègne le tissu de fibres de carbone puis se solidifie en un composite époxy ( $s$ )/fibres de carbone.

Tableau 5.1: Propriétés acoustiques des matériaux étudiés

Matériau	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	$c_L$ (m/s)	$Z$ (MRa)
Alu	2700	6375	17,2
Epoxy ( $l$ )	1000	1535	1,64
Epoxy ( $s$ )	1000	2500	2,73
Fibres carbone	1900	9000	17,1
Eau	1000	1480	1,48

$\rho$  : masse volumique (kg/m<sup>3</sup>);  $c_L$  : vitesse longitudinale (m/s) ;

$Z$  : impédance acoustique (MRa).

Comme l'illustre la Figure 5.8, les propriétés effectives du matériau composite peuvent être déduites par des modèles d'homogénéisation [9]. Les propriétés finalement obtenues résultent d'une combinaison de celles des constituants, faisant état de matériaux composites orthotropes [4]. Cependant, seules les propriétés effectives selon l'épaisseur seront évaluées expérimentalement. Ainsi, des travaux antérieurs [2] [10] ont permis d'évaluer  $\rho = 1486 \text{ kg/m}^3$  et  $c_L = 2900 \text{ m/s}$  pour une fraction volumique de fibre  $V_f = 54\%$ . Ces valeurs constituent un point de référence.

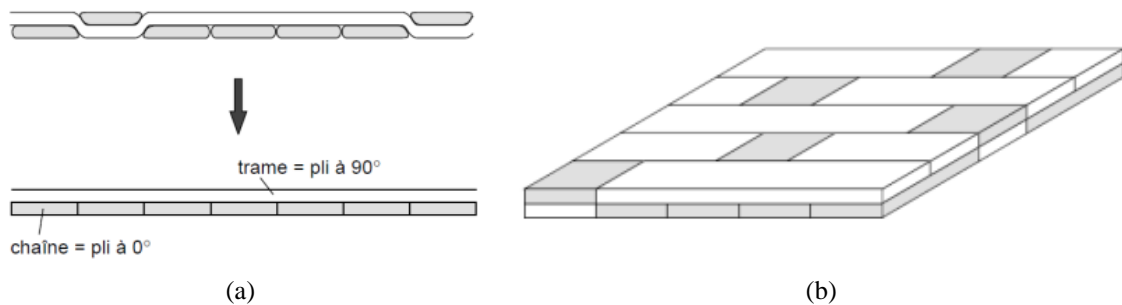


Figure 5.8 : Modélisation d'un satin 5 (a) par un stratifié ( $0^\circ/90^\circ$ ) ; (b) par une mosaïque de plis asymétriques ( $0^\circ/90^\circ$ ) et ( $90^\circ/0^\circ$ ). Selon Dal Maso et Meziere [9].

## IV Localisation et dimensionnement de défauts de répartition de torons de fibres

### IV.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué d'un échantillon en translation entre des moules en aluminium (Figure 5.9). Dans cette Figure 5.9, les balayages électronique et mécanique permettent d'évaluer les signaux en fonction de la position  $(x, y)$ . Le balayage électronique est assuré par un transducteur multiéléments linéaire à haute résolution de fréquence centrale  $f_0 = 10 \text{ MHz}$  constitué de  $N_T = 128$  éléments ( $a = 0,25 \text{ mm}$ ,  $b = 7 \text{ mm}$  et  $p = 0,5 \text{ mm}$ ). Afin d'obtenir une tache focale de taille réduite, nous focalisons le faisceau ultrasonore avec  $N = 32$  éléments. Pour améliorer l'échantillonnage suivant l'axe de balayage électronique  $x$ , nous choisissons le pas en nombre d'éléments entre chaque loi  $N_s = 1$  élément. D'après l'équation (5.1), le nombre de lois focales est donc  $N_{lf} = 97$ .

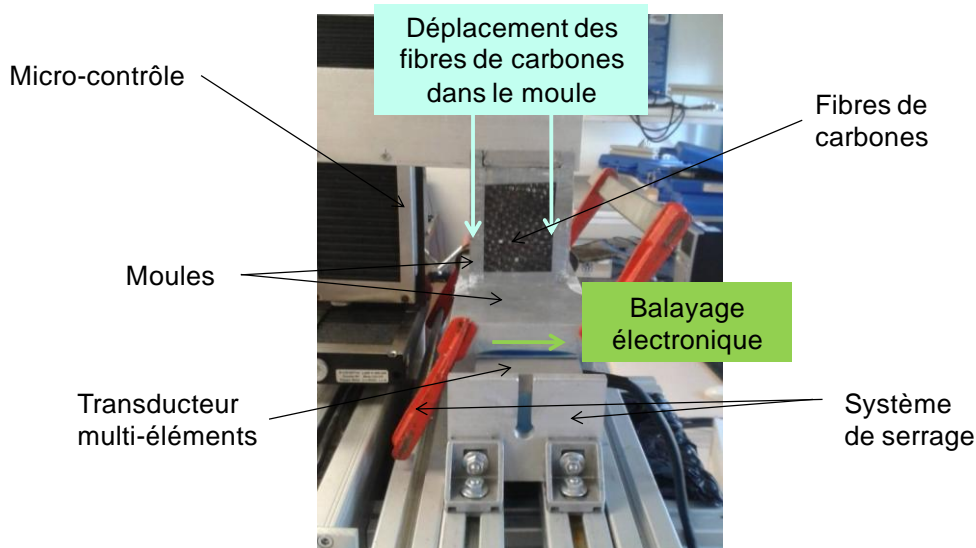


Figure 5.9: Configuration expérimentale.

Le balayage mécanique suivant l'axe  $y$  est obtenu par le déplacement de l'échantillon à inspecter entre les moules selon la direction orthogonale à la direction du balayage électronique  $x$ , et à la profondeur d'exploration  $z$ . Le déplacement de l'échantillon est effectué à vitesse de balayage constante  $v_{bm}$  par un système de translation micrométrique piloté par un système d'acquisition où la position  $y$  est donnée par l'équation (5.13). Cette période d'acquisition  $T_{acq} = 1/f_{acq}$  est limitée par la profondeur d'exploration et par les possibilités de numérisation du système d'émission-réception. Enfin, viennent les incontournables critères d'échantillonnage dont la maîtrise permet de réduire le pas d'échantillonnage au strict nécessaire, et de limiter la taille du fichier résultant d'une acquisition. Dans notre configuration, le contre-moule est considéré comme sabot. Dans ce cas, la distance focale est la distance entre la face inférieure du contre-moule et la zone d'inspection. La distance focale  $F = 5$  mm est définie inférieure à la limite de champ proche. Cette distance de champ proche  $L_{cp}$  est calculée à partir de l'équation (5.7) pour une source rectangulaire. Dans cette configuration, la constante liée au rapport des ouvertures dans les deux directions  $x$  et  $y$  est  $K_r = 1$  selon le fabricant [11], et les ouvertures suivant les axes de balayage électronique et mécanique sont respectivement  $X = (N - 1).p + a = 15,75$  mm et  $Y = b = 7$  mm. Ainsi, les limites de champ proche sont de l'ordre de 419 mm dans l'eau, 377 mm pour la résine époxy liquide et 227 mm pour la résine durcie. Les résolutions latérales  $\Delta x$  et  $\Delta y$  selon  $x$  et  $y$  estimées à  $-3$  dB par l'équation (5.11) sont respectivement  $42 \times 95 \mu\text{m}^2$  dans l'eau,  $46 \times 104 \mu\text{m}^2$  dans la résine époxy liquide et  $77 \times 173 \mu\text{m}^2$  dans la résine époxy solide. La

résolution axiale  $\Delta z$  selon l'axe de propagation  $z$  est estimée à  $-6$  dB par l'équation (5.12) à  $155 \mu\text{m}$  dans l'eau et  $88 \mu\text{m}$  dans la résine époxy liquide (Figure 5.10).

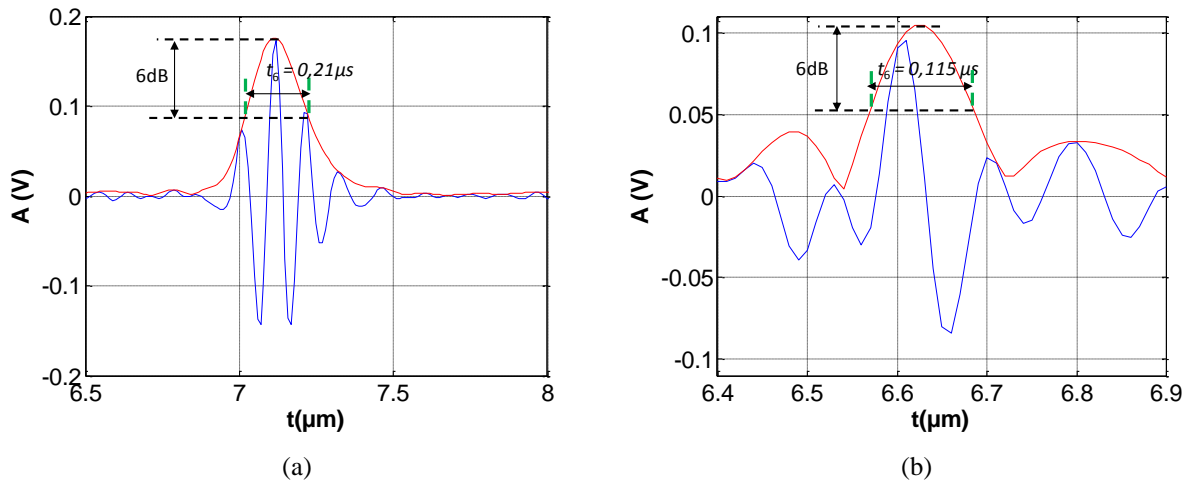


Figure 5.10: Estimation de la résolution axiale d'une tache focale à -6 dB d'un transducteur multiélément :(a) dans l'eau et (b) dans la résine époxy liquide.

Le calcul des lois de retard, le paramétrage du transducteur, du sabot et la nature du milieu d'inspection sont implémentés via la calculatrice du logiciel UltraVision<sup>®</sup>3 et le système d'acquisition multiélément ZIRCON<sup>TM</sup>. Les données brutes récupérées initialement sous format « .UvData », sont ensuite converties afin d'être traitées finalement sous Matlab<sup>®</sup>.

## IV.2 Réseau de trous périodiquement répartis

### IV.2.1 Configuration

Afin de calibrer le dispositif de balayage, plusieurs étapes de calibration sont nécessaires. La première consiste à évaluer les possibilités de détection de manque de matière et le dimensionnement d'un réseau de trous percés sur une plaque en polyéthylène de diamètres  $D = 3$  mm et  $D = 4$  mm. Ce réseau de trous translate entre les moules et contre-moule en aluminium. La configuration utilisée a conduit à des échantillonnages spatiaux donnés par les équations (5.2) et (5.13). La vitesse de balayage mécanique doit être choisie pour assurer une cohérence des échantillonnages  $(x, y)$ , dont le pas est imposé selon  $x$  par le pas inter-élément  $p = 0,5$  mm et celui selon  $y$  résulte de  $v_{bm} \cdot T_{acq}$ . Ainsi, des valeurs ont été choisies à  $v_{bm} = 0,34$  mm/s et  $T_{acq} = 200$  ms. Un effet de distorsion peut être observé si la vitesse de balayage électronique  $v_{be}$  est comparable à celle de balayage mécanique  $v_{bm}$ . Dans

notre configuration, la vitesse de balayage électronique  $v_{be} = N_{lf} \cdot p \cdot f_{acq} = 243$  mm/s est très grande devant la vitesse de balayage mécanique  $v_{bm} = 0,34$  mm/s. Cet artefact est donc évité.

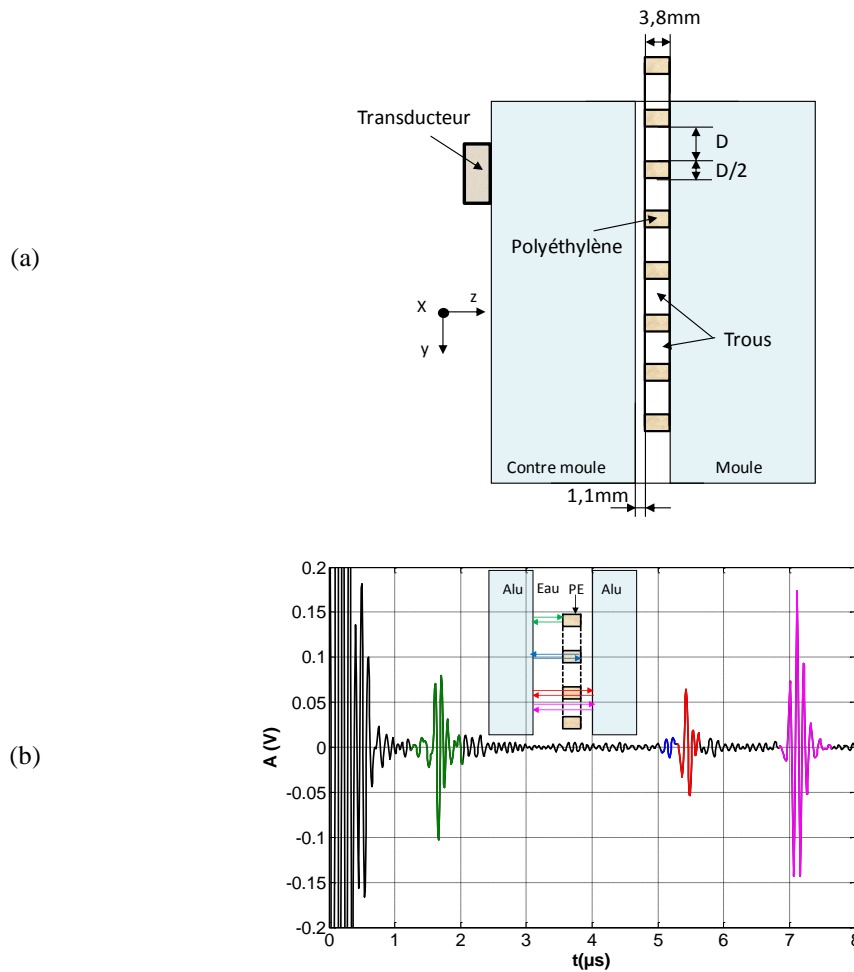


Figure 5.11: Déplacement d'un réseau de trous percés sur une plaque en polyéthylène à l'intérieur des moules en aluminium : (a) configuration géométrique et (b) Ascan des signaux d'aller retour reçus par un transducteur multiélément pour une loi focale donnée.

La configuration géométrique du déplacement du réseau de trou est présentée par la Figure 5.11 (a). Dans cette Figure 5.11(a), une plaque en polyéthylène comporte un réseau de trous régulièrement répartis, translate à l'intérieur des moules remplis d'eau avec une vitesse  $v_{bm}$ . La plaque en polyéthylène est maintenue tangente avec la surface inférieure du moule. Sur la Figure 5.11 (b), le A-scan d'un écho d'aller-retour pour une loi focale donnée montre l'existence des réflexions multiples sur les différentes interfaces. Un premier écho (écho en vert) est réfléchi à l'interface du polyéthylène et permet de localiser cette interface à 1,1 mm dans l'eau. La différence entre l'écho du fond dans le polyéthylène (écho en bleu) et l'écho d'aller-retour dans la tricouche eau/polyéthylène/eau (écho en rouge) montre l'existence d'un

jeu entre le fond de la plaque et la surface interne du moule, ce jeu est estimé à 0,2 mm. La différence entre les échos d'interface dans le polyéthylène (écho en vert) et celui au fond (écho en bleu) permet d'estimer une vitesse dans le polyéthylène dans l'ordre de 2160 m/s. L'écho d'aller-retour direct dans l'eau (écho en magenta) correspond bien à l'épaisseur de la couche entre les deux moules qui est dans l'ordre de 5,1 mm.

#### IV.2.2 Dimensionnement avec l'écho du fond

Afin de faire une étude comparative, un C-scan a été effectué sur le maximum d'enveloppe des échos d'aller-retour dans l'eau (écho en magenta, Figure 5.11 (b)). Cet écho donne d'une part l'information sur les propriétés effectives puisqu'il traverse toute la zone d'inspection et d'autre part possède une amplitude importante, ce qui améliore la sensibilité des C-scan. La Figure 5.12 montre le C-scan des éprouvettes avec des trous de diamètre 4 mm et 3 mm. Le contour relevé à  $-6$  dB par rapport au gain maximal (iso-valeurs en magenta) donne le profil des trous avec des valeurs très proches de celles attendues.

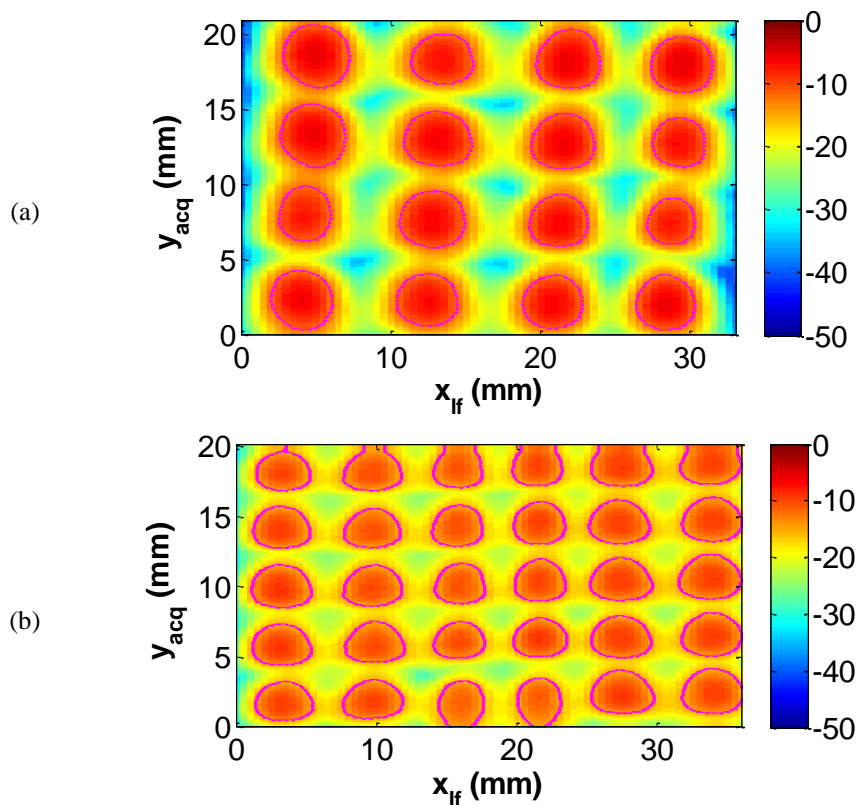


Figure 5.12 : C-scan d'un réseau de trous périodiquement percé sur une plaque de polyéthylène : diamètre (a) 4mm et (b) 3 mm.

Pour la plaque en PE avec un réseau de trous de diamètre 3 mm, les enveloppes des échos (Figure 5.13 à gauche en haut) et les leurs dérivées correspondantes (Figure 5.13 à gauche en bas) ont été relevées dans des endroits différents. Sur le C-scan relevé de la Figure 5.13 à droite, le premier point (PE) correspond à la matière en polyéthylène, son amplitude maximale est moins importante que le deuxième point (Trou) qui correspond à une zone sans matière. Des zones intermédiaires ont été choisies au bord des trous, le point 3 correspond à un endroit plus proche de la matière et le point 4 correspond à un endroit plus proche de l'eau.

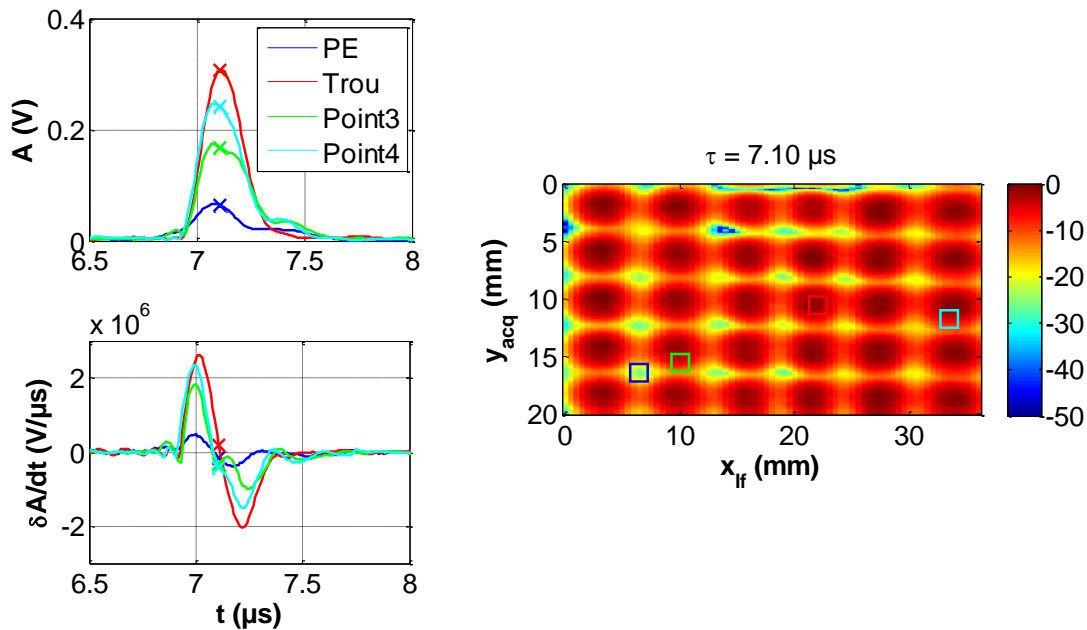


Figure 5.13 : Enveloppes des échos d’aller-retour dans l’eau (en haut à gauche) et leurs dérivées correspondantes (en bas gauche) relevées dans des endroits différents de l’éprouvette en polyéthylène ( $D = 3$  mm), C-scan normalisé (à droite) au maximum de l’enveloppe qui montre les zones (PE, Trou, Point 3, Point 4).

Pour valider l’efficacité du choix du maximum de l’enveloppe, des C-scan en profondeur suivant l’axe de propagation  $z$  ont été relevés. A partir des relevés, nous avons constaté l’existence de deux zones significatives aux niveaux des points d’inflexions des enveloppes ( $\tau = 7,01$  et  $\tau = 7,21 \mu\text{s}$ ) (Figure 5.14 (a) et (b)). La procédure de dimensionnement des trous décrite au paragraphe suivant a montré que le dimensionnement avec le maximum de l’enveloppe de l’écho (Figure 5.14 (c)) est plus précis, mais offre un contraste acoustique moindre.



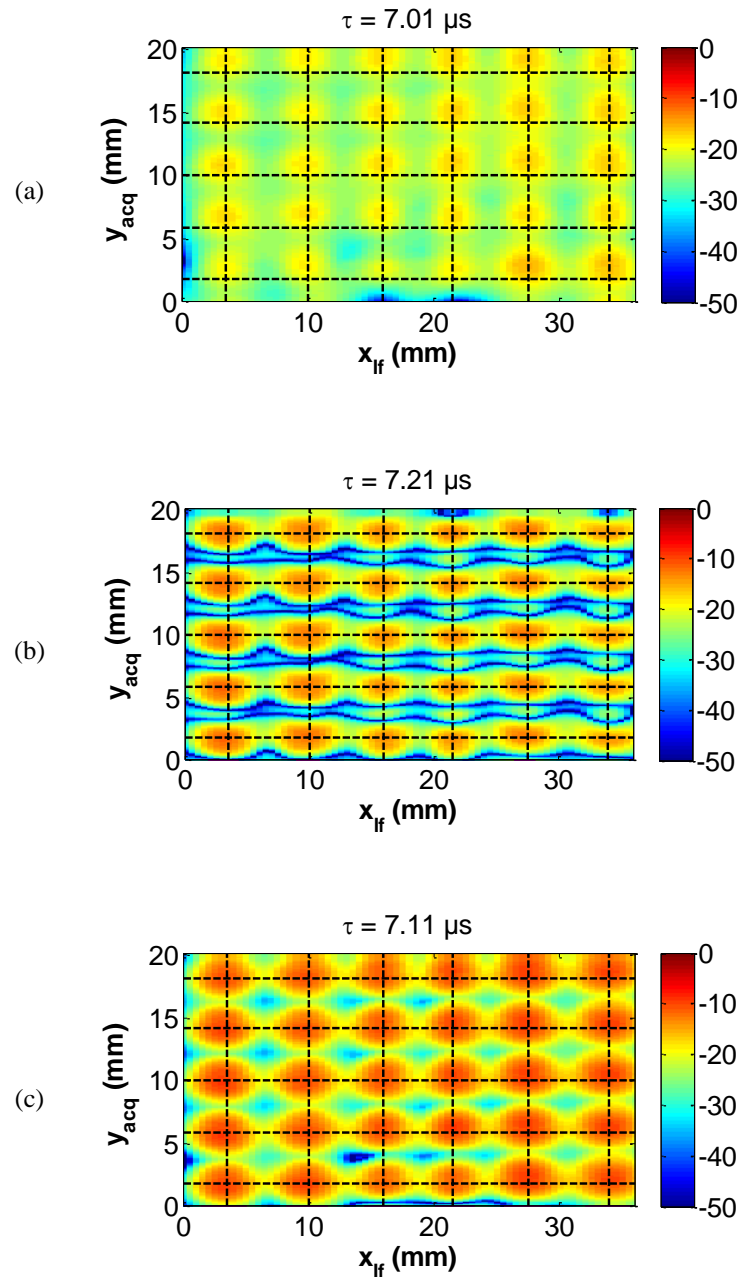


Figure 5.14 : Comparaison entre les C-scan d'un réseau de trous périodiquement percés sur une plaque de polyéthylène : (a) au premier point d'inflexion, (b) au deuxième point d'inflexion de l'enveloppe et (c) au maximum de l'enveloppe.

L'évaluation des diamètres de trous a été effectuée selon les deux directions de balayage électronique en  $x_{lf}$  et mécanique en  $y_{acq}$ . Les diamètres des trous ont été évalués suivant l'axe  $x_{lf}$  en faisant des coupes sur 5 lignes  $y_{acq} = \{1,8; 5,9; 10; 14,2; 18,2\}$  mm (traits horizontaux de la Figure 5.14 (c)). Suivant l'axe  $y_{acq}$ , les diamètres des trous ont été évalués suivant cet axe en faisant des coupes sur 6 colonnes pour  $x_{lf} = \{3,5; 10; 16; 21,6; 27,5;$

34} mm (trais horizontaux de la Figure 5.14 (c)). Les diamètres des trous ont été évalués dans les deux directions avec un seuil relatif fixé à  $-6$  dB (Figure 5.15). Les résultats de dimensionnement donnent un diamètre moyen suivant l'axe  $x_{lf}$  de valeur  $D_x = 3,1 \pm 0,5$  mm et un diamètre moyen  $D_y = 3,09 \pm 0,07$  mm suivant l'axe  $y_{acq}$ .

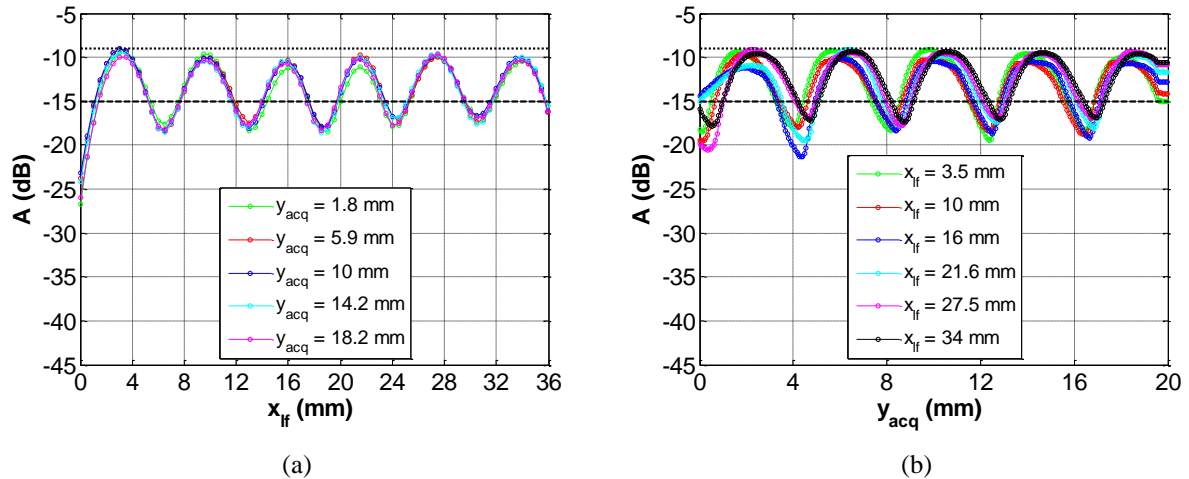


Figure 5.15: Dimensionnement des diamètres de trous selon (a) l'axe de balayage électronique en  $x_{lf}$  et (b) l'axe de balayage mécanique en  $y_{acq}$  avec un seuil relatif fixé à  $-6$  dB.

## IV.3 Détection de défaut de torons de fibres de carbone

### IV.3.1 Propagation dans l'eau

Cette méthode de caractérisation de manque de matière est alors appliquée à un tissu de fibres de carbone (AS7 satin 5 12K 500 g/m<sup>2</sup>). Des défauts de matière de taille variable ont été disposés afin d'évaluer leur détectabilité. Ce tissu de fibres de carbone est en translation avec une vitesse de balayage mécanique  $v_{bm} = 0,83$  mm/s entre les moules, avec une période d'acquisition  $T_{acq} = 200$  ms. Comme l'illustrent les résultats expérimentaux (Figure 5.16), les défauts de fibres visibles sur la photographie (Figure 5.16 (a)) le sont aussi sur le C-scan (Figure 5.16 (b)). Ainsi, des défauts non visibles sur la photographie sont observés du fait que des torons se sont déplacés lors de la perforation localisée en  $x_{lf} = 23$  mm et se sont vraisemblablement décalés sur toute leur longueur (Figure 5.16 (b)). Via un seuil à  $-6$  dB, la largeur du trou dans les fibres centré en  $x_{lf} = 23$  mm est estimé pour  $y_{acq} = 14,5$  mm selon  $x_{lf}$  à  $6 \text{ mm} \pm 0,5 \text{ mm}$ . De même, le trou dans les fibres centré en  $x_{lf} = 16$  mm est estimé pour  $y_{acq} = 14,5$  mm selon  $x_{lf}$  à  $4,5 \text{ mm} \pm 0,5 \text{ mm}$ .

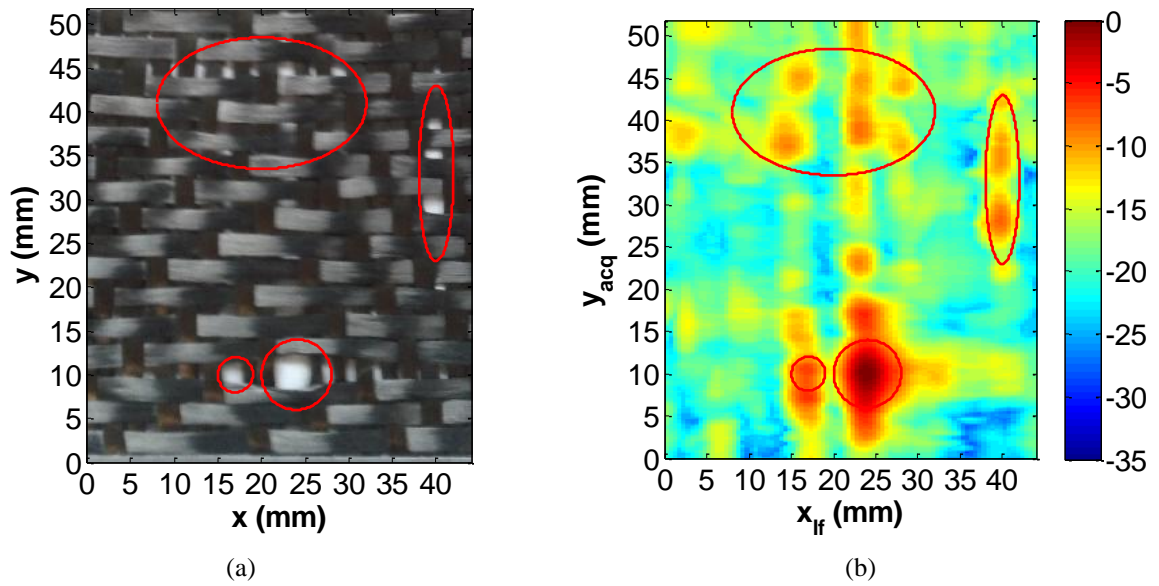


Figure 5.16 : Détection de défaut de torons fibres de carbone d'un seul pli en déplacement dans l'eau : (a) photographie de l'échantillon et des défauts ; (b) C-scan correspondant de l'écho de fond en dB.

La Figure 5.17 montre aussi la répartition des défauts de fibres de carbone de deux plis et qui se déplacent entre les moules. Les défauts de fibres de l'ordre du millimètre qui sont visibles sur la photographie de la Figure 5.17 (a) apparaissent aussi sur le C-scan (Figure 5.17 (b)).

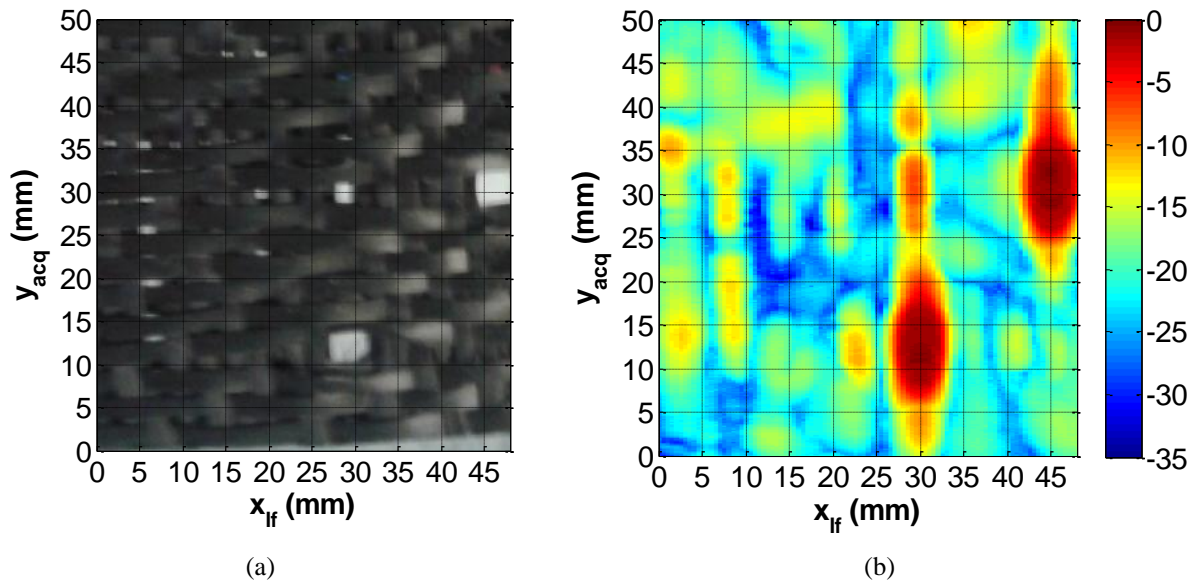


Figure 5.17 : Détection de défaut de torons fibres de carbone de deux plis en déplacement dans l'eau : (a) photographie de l'échantillon et des défauts ; (b) C-scan correspondant de l'écho de fond en dB.

### IV.3.2 Propagation dans une résine époxy

Après avoir étudié le déplacement des fibres dans l'eau, nous allons montrer dans ce paragraphe le cas de déplacement des fibres dans une résine époxy. Sur la Figure 5.18, les deux plis de fibres de carbone sont en déplacement dans les moules remplis par le mélange résine-durcisseur. Ce tissu de fibres de carbone est en translation avec une vitesse de balayage mécanique  $v_{bm} = 1$  mm/s entre les moules, avec une période d'acquisition  $T_{acq} = 100$  ms.

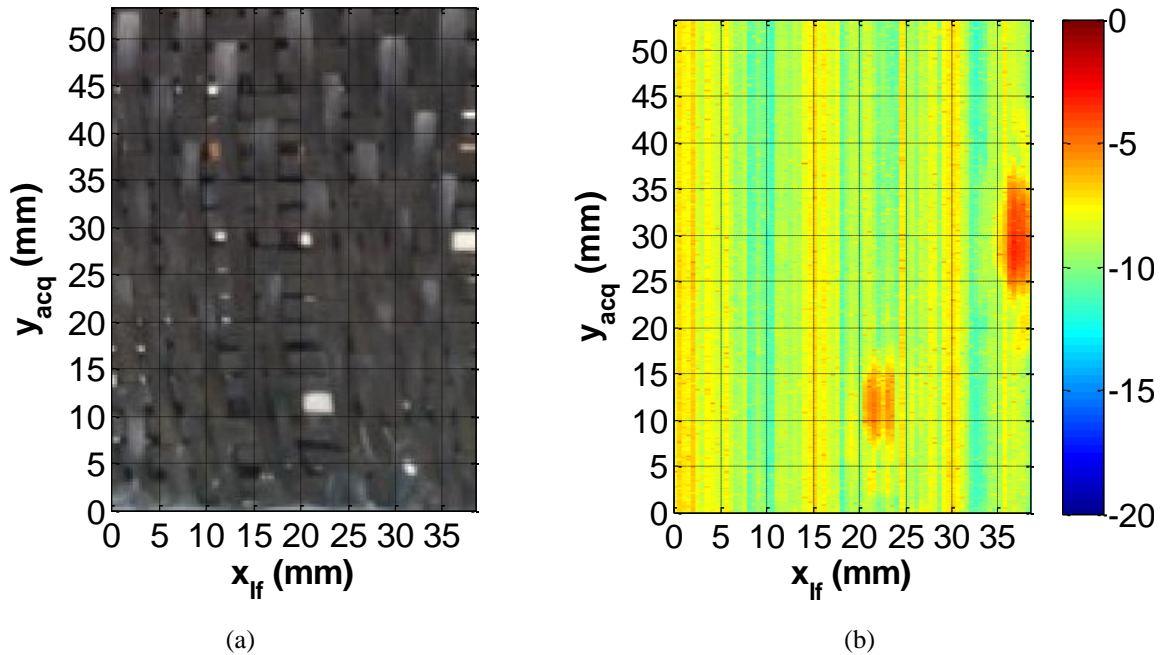


Figure 5.18 : Détection de défaut de torons fibres de carbone de deux plis en déplacement dans une résine époxy: (a) photographie de l'échantillon et des défauts ; (b) C-scan correspondant de l'écho de fond en dB.

Avec la photographie obtenue (Figure 5.18 (a)) de la zone d'inspection, les défauts de fibres de diamètre 4 mm sont visibles sur le C-scan de la Figure 5.18 (b) pour le premier défaut centré en  $x_{lf} = 23$  mm et  $y_{acq} = 12$  mm et le deuxième défaut centré en  $x_{lf} = 37$  mm et  $y_{acq} = 28$  mm.

## V Cartographie d'un composite

La détection de matière par échographie ultrasonore résulte directement des propriétés des milieux en contact et du contraste acoustique résultant. Ainsi, un matériau composite constitué de plis de fibres présente une hétérogénéité de sa constitution selon son épaisseur et donc une détection et une localisation possibles des défauts et des propriétés ultrasonores. Dans un premier temps (Figure 5.19 (a)), un échantillon époxy/carbone constitué de 12 plis de

fibres de carbone est inspecté. Dans cette configuration en immersion dans l'eau, le transducteur est en translation par rapport à l'échantillon. Un C-scan de l'écho de surface (Figure 5.19 (b)), dont l'amplitude est liée à l'impédance acoustique de surface, permet de distinguer le tressage des torons.

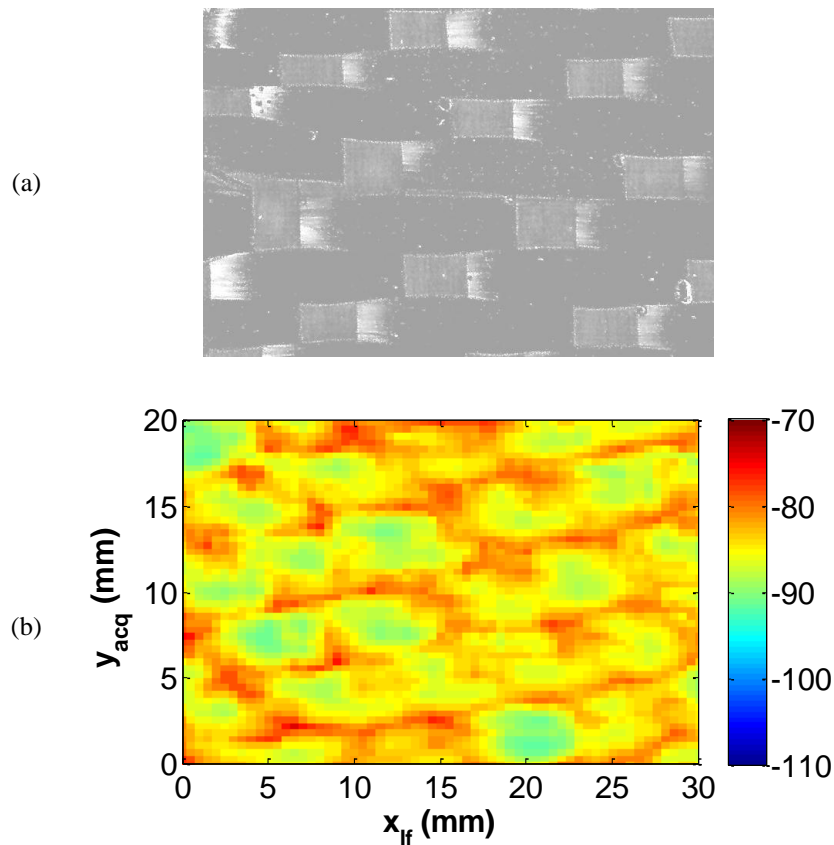


Figure 5.19 : Détection de propriétés de surface d'un composite époxy/carbone :  
(a) photographie de l'échantillon étudié ; (b) C-scan sur l'écho de surface en dB.

Une seconde approche, celle décrite dans la partie théorique est basée sur les deux premiers échos réfléchis par un échantillon en immersion (équation (5.14)). La fonction de transfert résultante (équation (5.15)) permet d'évaluer les propriétés ultrasonores longitudinales effectives du matériau composite inspecté. Ainsi, nous obtenons un C-scan de ces propriétés avec une résolution de détection (équation (5.11)) imposée par les conditions de balayage expérimentales (équations (5.2) et (5.13)).

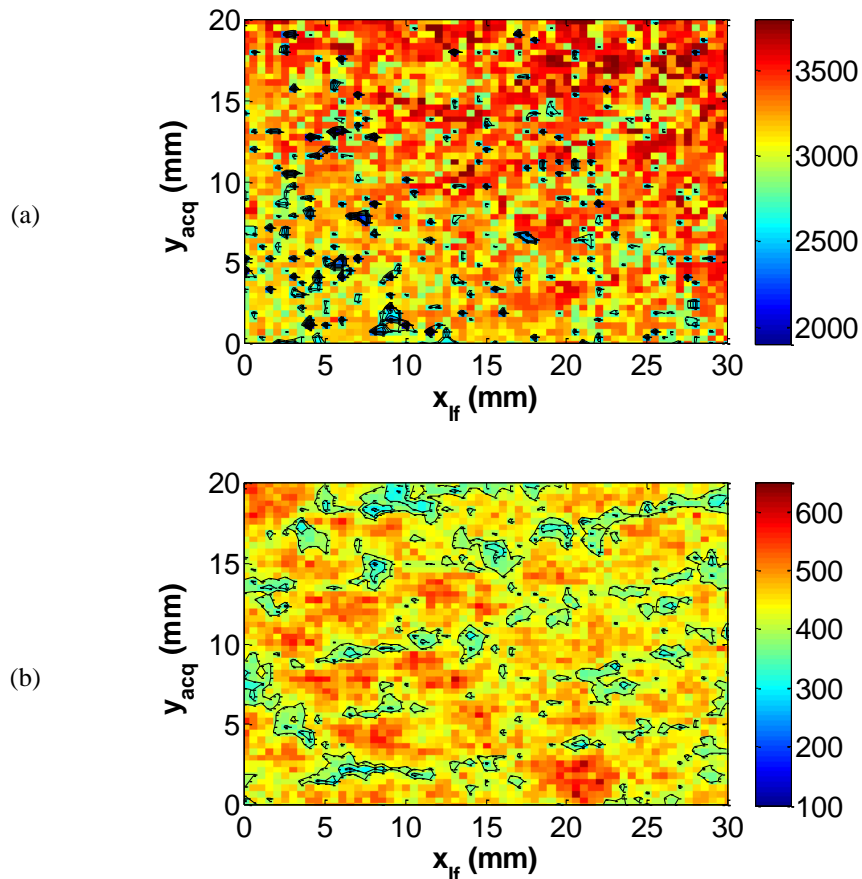


Figure 5.20 : Caractérisation des propriétés ultrasonores longitudinales effectives d'un composite époxy/carbone : C-scan de (a) vitesse  $c_L$  (m/s) ; (b) atténuation  $\alpha_L$  (Np/m).

Les points de mesure sont relevés sur un rectangle de  $30 \times 20 \text{ mm}^2$  et présentent une dispersion importante. La vitesse longitudinale (Figure 5.20 (a)) varie localement de 1800 à 3800 m/s, avec des variations ponctuelles importantes. L'atténuation longitudinale (Figure 5.20 (b)) varie localement de 280 à 580 Np/m, avec des variations qui rappellent les motifs observés sur le C-scan sur l'écho de surface (Figure 5.19 (b)). Ainsi, nous pouvons supposer que l'échogénicité réduite localement en surface est due à une atténuation importante, dépassant 600 Np/m, résultant de la dissipation de l'onde ultrasonore incidente dans les torons affleurant en surface. La répartition statistique des valeurs obtenues est représentée sous la forme d'histogrammes. Les valeurs significatives ( $s_f > 1\%$ ) de la vitesse (Figure 5.21 (a)) varient localement de 2700 à 3700 m/s, avec une moyenne à 3200 m/s. De même, les valeurs significatives de l'atténuation (Figure 5.21 (b)) varient localement de 280 à 580 Np/m, avec une moyenne à 440 Np/m. Une telle dispersion des propriétés est liée au fait que la résine a été coulée à pression ambiante le long des 12 plis de fibres constituant le futur échantillon de



composite. Cette dispersion montre aussi que la pression de serrage des moules n'est pas suffisante pour compacter le mélange résine et fibres de carbone.

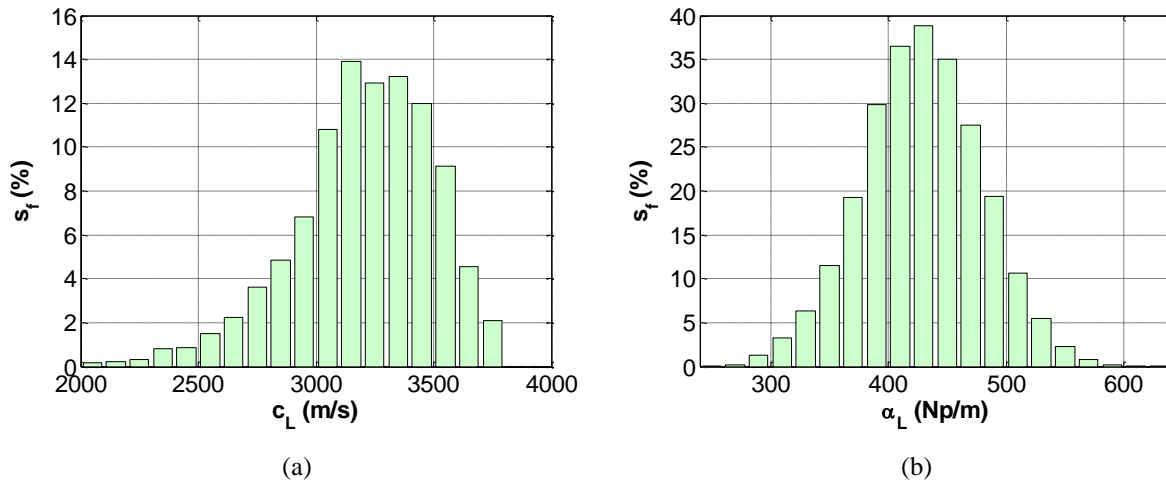


Figure 5.21 : Propriétés longitudinales effectives d'un composite époxy/carbone : fraction surfacique  $s_f$  (%) de (a) vitesse  $c_L$  (m/s) ; (b) atténuation  $\alpha_L$  (Np/m).

## VI Conclusion

A travers cette étude, la faisabilité de la détection de défaut de matière a été démontrée à l'échelle du dixième de millimètre. La résolution effective obtenue est celle imposée par le pas inter-élément (pitch) selon  $x$ , et par le produit du balayage mécanique  $v_{bm}$  et de la période d'acquisition  $T_{acq}$  selon  $y$ . Par ailleurs, la caractérisation et l'évaluation de la dispersion de propriétés d'échantillons de composites a été illustrée sur un échantillon relativement dispersif. Une telle méthode d'analyse permet d'obtenir un diagnostic et une caractérisation rapide en cours de fabrication. Le temps d'une acquisition pour une zone de  $48 \times 20 \text{ mm}^2$  est de 12 s, environ. Cette vitesse d'inspection surfacique peut encore être optimisée via l'échantillonnage et l'épaisseur du moule à traverser. Le temps de traitement des données se fait aussi rapidement, et peut aussi être sensiblement amélioré. Procéder à une telle inspection via un transducteur multiéléments 2D en lieu et place de celui 1D utilisé ici, permettrait de s'affranchir du balayage mécanique. Pour de tels transducteurs piézoélectriques dont les éléments se dépolarisent souvent dès  $120^\circ\text{C}$  (céramiques), alors que les cycles usuels de polymérisation nécessitent des températures atteignant  $180^\circ\text{C}$ , il reste à surmonter la limite de dépolarisation en température en utilisant d'autres types de matériaux piézoélectriques (monocristaux) et/ou une ligne à retard et/ou un refroidissement intégré. En perspective, le suivi des propriétés ultrasonores effectives lors de la fabrication des composites [13] avec les transducteurs multiéléments est envisagé avec une focalisation variable en fonction du temps.

## VII Références

- [1] N. Samet, «Evaluation ultrasonore des propriétés d'une résine et détection de porosité à l'aide d'un transducteur multiéléments. application aux matériaux composites au cours de fabrication, » Thèse, Université du Havre, 2012.
- [2] N. Duong, J. Duclos, P. Maréchal, and P. Pareige, «Cartographie ultrasonore d'une plaque de composite RTM: Estimation de l'atténuation locale, » in *Congrès Français d'Acoustique (CFA)*, 79–84, 2014.
- [3] N. Samet, P. Maréchal, and H. Duflo, « Ultrasonic imaging of bubble motion in a fiber preform, » in *Acoustics 2012*, 2012.
- [4] Y. Gélébart, «Évaluation non destructive par ultrasons du vieillissement thermique d'une structure composite, » Thèse, Université du Havre, 2007.
- [5] N. Samet, P. Maréchal, and H. Duflo, «Ultrasound monitoring of bubble size and velocity in a fluid model, » *NDT&E International*, 44, 621–627, 2011.
- [6] X. Deng, T. Monnier, P. Guy, and J. Courbon, «Acoustic microscopy of functionally graded thermal sprayed coatings using stiffness matrix method and stroh formalism, » *Journal of Applied Physics*, 113, 224508:1–10, 2013.
- [7] M. Messineo, G. Rus, G. Elisabe, and G. Frontini, «Layered material characterization using ultrasonic transmission. an inverse estimation methodology, » *Ultrasonics*, 65, 315–328, 2016.
- [8] N. Samet, P. Maréchal, and H. Duflo, « Ultrasonic characterization of a fluid layer using a broadband transducer, » *Ultrasonics*, 52, 427–434, 2012.
- [9] Dal Maso, F. and Meziere, J., «Calcul des propriétés élastiques des tissus utilisés dans les matériaux composites, » *Rev. Inst. Fr. Pét.*, 53, 857–870, 1998.
- [10] N. Duong, « Cartographie et caractérisation acoustique des matériaux. Application à l'évaluation du taux volumique de fibre dans un matériau composite, » Thèse, Université du Havre, 2015.
- [11] Olympus, « Phased array testing: Basic theory for industrial applications, » *NDT Field Guides*, 1–105, 2010.
- [12] L.Azar, Y.Shi, and S.Wooh, «Beam focusing behavior of linear phased arrays», *NDT&E International*, vol.33, pp.189–198, 2000.



- [13] N. Ghodhbani, P. Maréchal, and H. Duflo, «Curing and post-curing viscoelastic monitoring of an epoxy resin, » *Physic Procedia*, 70, 106–109, 2015.

## Conclusion

Au cours de cette thèse, plusieurs études complémentaires ont été effectuées dans le but de réaliser des mesures ultrasonores en temps réel et dans des milieux complexes. Pour cela, des diverses contraintes liées aux conditions expérimentales ont été dissociées et abordés distinctement, comme le reflètent les différents chapitres développés.

Ainsi, dans un premier chapitre, nous avons effectué une étude afin de quantifier l'influence des paramètres liés à la géométrie des moules, la température et au signal lui-même sur les propriétés ultrasonores. Suite à cette étude préliminaire, une approche analytique a été validée avec les résultats de répétabilité de l'expérience. Bien que l'étude ait été orientée vers le procédé RTM, les techniques développées peuvent aussi être utilisées pour améliorer les mesures ultrasonores de précision et minimiser les sources de perturbation dans les milieux sévères. Le lien entre la loi puissance et le modèle viscoélastique Cole-Cole développé au cours de cette thèse a été validé sur une gamme d'huiles de viscosités différentes et sur une référence de résine époxy.

Ensuite, dans le deuxième chapitre, le suivi des propriétés ultrasonores a été réalisé dans le cas d'une polymérisation isotherme à basse température. Pour ce faire, un dispositif expérimental a été mis au point en émission/réception. Une description analytique a été développée, permettant un suivi de propriétés en continu. Un suivi de polymérisation sur une résine époxy à basse température a mis en évidence l'importance de la température sur la cinétique de réaction. Ainsi, les liens entre la constante élastique  $c_{33}$ , modélisée par une distribution de Weibull, les transformations de phases et la cinétique de réaction ont été identifiés.

Dans le troisième chapitre, l'influence de la température sur les propriétés d'une résine époxy durcie a été étudiée. Ainsi, le suivi des propriétés ultrasonores pendant une post-cuisson a permis d'obtenir un bon accord entre les mesures ultrasonores et la caractérisation par DSC. Les modèles de dépendance en fréquence et en température ( $f, T$ ) ont été développés avec une bonne correspondance avec les résultats d'expérience.

Dans le quatrième chapitre, afin de se rapprocher des conditions réelles du procédé RTM, i.e. monter en température, une approche a été développée pour une configuration en émission/transmission (ET), permettant de calculer les propriétés ultrasonores en utilisant le premier écho transmis avec deux transducteurs possédant des lignes à retard intégrées. Cette approche a été testée à basse et à haute température pour le suivi de polymérisation et pendant

une post-cuisson. Toutefois, cette méthode présente l'inconvénient de la connaissance a priori des propriétés de référence et la dépendance en température des propriétés ultrasonores dans les moules et dans la ligne à retard. La simulation de la réponse électroacoustique avec la méthode DSM effectuée à basse et à haute température donne aussi de bons accords avec les résultats d'expérience. Les modèles analytiques développés lors des expériences (Weibull,  $(f, T), \dots$ ) implémentés dans le modèle DSM montrent la robustesse de cette méthode pour prédire l'évolution des signaux ultrasonores lors d'un tel processus.

Dans le cinquième chapitre, la mise en œuvre de transducteurs multiéléments a été envisagée et réalisée pour une caractérisation spatiale  $(x, y)$  du milieu étudié. Ici, l'utilisation des transducteurs multiéléments a permis de dimensionner et de localiser des défauts intégrés dans des plis de fibres de carbone en déplacement entre les moules. Plus précisément, l'optimisation des paramètres de balayage électronique et mécanique permettent d'obtenir des informations sur les propriétés locales du matériau inspecté. De plus, l'utilisation d'un transducteur multiéléments haute fréquence permet d'obtenir une résolution accrue et une réponse spectrale large bande, dont la dispersion est caractéristique du milieu.

Les différents aspects de caractérisation et suivi des propriétés ouvrent de nombreuses perspectives dont la plus complète consiste à combiner les expérimentations développées dans ces cinq chapitres, i.e. le suivi des propriétés d'un composite en cours de fabrication à haute température, en émission/transmission avec deux transducteurs multiéléments 2D.

## Annexe A Modèles viscoélastiques

L'équation de propagation d'une onde acoustique dans un milieu homogène isotrope s'écrit dans le domaine spectral suivant une direction de propagation  $x$  sous la forme suivante [A.1] :

$$-\omega^2 u(x, \omega) = \frac{\underline{M}(\omega)}{\rho} \frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial x^2} \quad (\text{A.1})$$

où  $u(x, \omega)$  le vecteur déplacement,  $\omega$  la pulsation,  $\rho$  la masse volumique du milieu de propagation et  $\underline{M}(\omega)$  le module complexe élastique qui s'écrit sous la forme suivante :

$$\underline{M}(\omega) = M_R(\omega) + jM_I(\omega) \quad (\text{A.2})$$

avec  $M_R(\omega)$  le module conservation qui présente l'énergie emmagasinée dans le milieu sous forme élastique et  $M_I(\omega)$  le module de perte qui caractérise l'énergie dissipée dans le milieu sous forme visqueuse. L'équation (A.1) possède une solution analytique classique qui s'écrit sous la forme suivante :

$$u(x, \omega) = u(0, \omega) \cdot e^{-\frac{j\omega x}{c(\omega)}} e^{-\alpha(\omega) \cdot x} \quad (\text{A.3})$$

où  $c(\omega)$  la vitesse de phase et  $\alpha(\omega)$  l'atténuation acoustiques qui s'écrivent par [A.1] :

$$\begin{cases} c^2(\omega) = \frac{2|M(\omega)|^2}{\rho \sqrt{M_R^2(\omega) + M_R(\omega)|M(\omega)|}} \approx \frac{M_R(\omega)}{\rho} \\ \alpha(\omega) = \frac{\omega M_I(\omega)}{2\rho c^3(\omega)} \end{cases} \quad (\text{A.4})$$

D'autre part, pour une onde plane de compression qui se propage dans un milieu dissipatif homogène, le module complexe s'écrit en fonction de la vitesse de phase longitudinale :

$$\underline{M}(\omega) = \rho \underline{c}^2(\omega) = \rho c^2(\omega) (1 + j\delta_c(\omega))^2 \quad (\text{A.5})$$

avec  $\delta_c(\omega) \approx \frac{\alpha(\omega)c(\omega)}{\omega}$  le coefficient des pertes mécaniques associé à la vitesse de phase.

L'équation (A.5) devient :

$$\underline{M}(\omega) = \rho c^2(\omega) (1 - \delta_c^2(\omega)) + j2\rho c^2(\omega)\delta_c(\omega) = M_R(\omega) + jM_I(\omega) \quad (\text{A.6})$$

Par identification avec l'équation (A.2), le module conservation  $M_R(\omega)$  et le module de dissipation  $M_I(\omega)$  s'écrivent :

$$\begin{cases} M_R(\omega) \approx \rho c^2(\omega) (1 - \delta_c^2(\omega)) \approx \rho c^2(\omega) \\ M_I(\omega) \approx 2\rho c^2(\omega)\delta_c(\omega) \end{cases} \quad (\text{A.7})$$

La viscosité complexe  $\underline{\eta}(\omega)$  s'écrit sous la forme suivante:

$$\underline{\eta}(\omega) = \frac{\underline{M}(\omega)}{j\omega} = \frac{M_I(\omega)}{\omega} - j \frac{M_R(\omega)}{\omega} = \eta_R(\omega) - j\eta_I(\omega) \quad (\text{A.8})$$

## A.1. Modèles viscoélastiques linéaires

La théorie de la viscoélasticité permet de rendre compte de l'évolution réversible des contraintes en fonction du temps. Les modèles de Kelvin-Voigt, Maxwell et Zener (Figure A.1) sont décrits ici car, dans le cas particulier de la viscoélasticité linéaire, ces approches fonctionnelles sont plus simples à formuler et plus simples d'emploi.

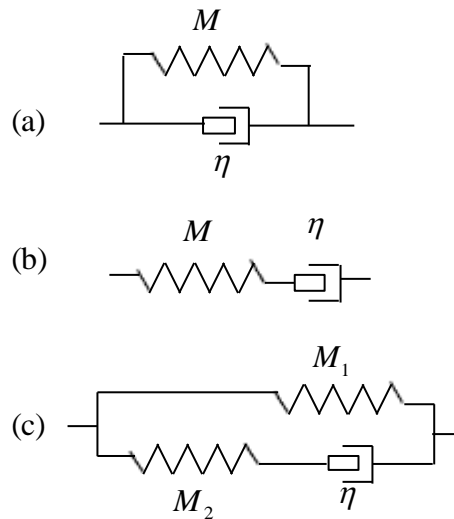


Figure A.1 : Modèles viscoélastique de (a) Kelvin Voigt, (b) Maxwell et de (c) Zener.

### A.1.1. Kelvin voigt

Le module complexe élastique pour le modèle de Kelvin Voigt [A.2] (Figure A.1 (a)) s'écrit en fonction d'un amortisseur purement visqueux  $\eta$  et un ressort rigidité  $M$  sous la forme suivante:

$$\underline{M}(\omega) = M_R(\omega) + jM_I(\omega) = M(1 + j\omega\tau) \quad (\text{A.9})$$

avec  $\tau = \eta/M$  le temps de relaxation.

D'après les équations (A.7) et (A.9) la vitesse et l'atténuation ultrasonore sont données par :

$$\begin{cases} c(\omega) = \sqrt{\frac{M}{\rho}} \\ \alpha(\omega) = \frac{\eta\omega^2}{2\rho c^3(\omega)} \end{cases} \quad (\text{A.10})$$

### A.1.2. Maxwell

Le module complexe élastique pour le modèle de Maxwell [A.3] (Figure A.1 (b)) s'écrit sous la forme suivante :

$$\underline{M}(\omega) = M_R(\omega) + jM_I(\omega) = M \frac{j\omega\tau}{1 + j\omega\tau} \quad (\text{A.11})$$

$$\text{soit } \begin{cases} M_R(\omega) = M \frac{\omega^2\tau^2}{1 + \omega^2\tau^2} \\ M_I(\omega) = M \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \end{cases} \quad (\text{A.12})$$

D'après les équations (A.7) et (A.12), la vitesse et l'atténuation ultrasonore s'écrivent :

$$\begin{cases} c(\omega) = \sqrt{\frac{M}{\rho} \frac{\omega^2\tau^2}{1 + \omega^2\tau^2}} \\ \alpha(\omega) = \frac{M}{2\rho c^3(\omega)} \frac{\omega^2\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \end{cases} \quad (\text{A.13})$$

### A.1.3. Zener

Le modèle de Zener [A.4] est composé d'un modèle de Maxwell et d'un ressort assemblés en parallèle. La partie réelle  $M_R(\omega)$  et imaginaire  $M_I(\omega)$  du module complexe s'écrivent par :

$$\begin{cases} M_R(\omega) = \frac{M_2 + (M_2 - M_1)\omega^2\tau^2}{1 + \omega^2\tau^2} \\ M_I(\omega) = \frac{M_1\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \end{cases} \quad (\text{A.14})$$

D'après les équations (A.7) et (A.14), la vitesse et l'atténuation ultrasonore s'écrivent par :

$$\begin{cases} c(\omega) = \sqrt{\frac{1}{\rho} \frac{M_2 + (M_2 - M_1)\omega^2\tau^2}{1 + \omega^2\tau^2}} \\ \alpha(\omega) = \frac{M_1}{2\rho c^3(\omega)} \frac{\omega^2\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \end{cases} \quad (\text{A.15})$$

## A.2. Modèles empiriques

Initialement utilisés pour modéliser la relaxation des constantes diélectriques, les modèles de Cole-Cole [A.5], Davidson et Cole [A.6] et Havriliak et Negami [A.7] s'écrivent sous la forme suivante :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \underline{\eta}(\omega) = \frac{\eta_0}{1+(j\omega\tau)^{1-\beta}} & \text{selon Cole et Cole} \\ \underline{\eta}(\omega) = \frac{\eta_0}{(1+j\omega\tau)^\alpha} & \text{selon Davidson et Cole} \\ \frac{\underline{\eta}-\eta_0}{\eta_\infty-\eta_0} = \frac{1}{(1+(j\omega\tau)^\gamma)^\delta} & \text{selon Havriliak et Negami} \end{array} \right. \quad (\text{A.16})$$

En se basant sur le modèle Cole-Cole (équation (A.16)) et l'équation (A.8), l'atténuation peut être écrite comme suit [A.1, A.8, A.9] :

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega^2}{2\rho c^3} \Re \left\{ \frac{\eta_0}{1+(j\omega\tau)^{1-\beta}} \right\} \quad (\text{A.17})$$

Après quelques transformations, on obtient :

$$\alpha(\omega) = \frac{\eta_0 \omega^2}{2\rho c^3} \frac{1 + (\omega\tau)^{1-\beta} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right)}{1 + 2(\omega\tau)^{1-\beta} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right) + (\omega\tau)^{2(1-\beta)}} \quad (\text{A.18})$$

On distingue deux asymptotes : l'une avant la relaxation ( $\omega\tau \ll 1$ ), l'autre au-delà ( $\omega\tau \gg 1$ ).

En basse fréquence  $\omega\tau \ll 1$ , la viscosité est constante (plateau newtonien) et on retrouve bien l'expression consacrée pour un fluide newtonien :

$$\alpha(\omega) \approx \frac{\eta_0 \omega^2}{2\rho c^3} \quad (\text{A.19})$$

Par identification avec le modèle de puissance ( $\alpha = \alpha_0 f^n$ ), on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \alpha_0 \approx \frac{(2\pi)^2 \eta_0}{2\rho c^3} \\ n \approx 2 \end{array} \right. \quad (\text{A.20})$$

En haute fréquence, pour  $\omega\tau \gg 1$ , le modèle Cole-Cole d'atténuation s'écrit :

$$\alpha(\omega) \approx \frac{\omega^2 \eta_0 (\omega\tau)^{\beta-1}}{2\rho c^3} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right) \quad (\text{A.21})$$

Par identification avec un modèle de type loi puissance ( $\alpha = \alpha_0 f^n$ ), on peut écrire :

$$\begin{cases} \alpha_0 \approx \frac{\eta_0 (2\pi)^{\beta+1} \tau^{\beta-1}}{2\rho c^3} \sin\left(\beta \frac{\pi}{2}\right) \\ n \approx \beta + 1 \end{cases} \quad (\text{A.22})$$

### A.3. Références

- [A.1] E. Challis, F. Blarel, M.E. Unwin, J. Paul, and X. Guo, « Models of ultrasonic wave propagation in epoxy materials, » *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control*, vol. 56, no. 6, pp. 1225-1237, 2009
- [A.2] W. Thompson, «Article on elasticity, » *Encyclopedia Britannica*, 1875.
- [A.3] J. Maxwell, «On the dynamical theory of gases, » *Phil. Trans. Roy. Soc.*, vol. 157
- [A.4] C. Zener, «Elasticity and anelasticity of metals, » *University of Chicago Press*, 1948.
- [A.5] K. Cole and R. Cole, «Dispersion and absorption in dielectrics I. alternating current Characteristics,» *J. Chem. Phys.*, 9, 341, 1941.
- [A.6] D. Davidson and R. Cole, «Dielectric relaxation in glycerol, propylene glycol, and n-propanol,» *J. Chem. Phys.*, vol. 19, pp. 1484–1490, 1951.
- [A.7] Havriak and S. Negami, «A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers, » *Polymer (Guilf.)*, vol. 8, pp. 161-211, 1967.
- [A.8] R E Challis, F Blarel, M E Unwin, and X Guo, «On the Modelling of Ultrasonic Bulk Wave Propagation in Epoxies, » *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 269, no. 1, p. 012001, 2011.
- [A.9] Nacef Ghodhbani, Pierre Marechal, and Hugues Duflo. «Ultrasonic broadband characterization of a viscous liquid: Methods and perturbation factors, » *Ultrasonics*, vol.56, pp.308–317, 2015.





## Annexe B Incertitude associée au temps de vol

La mesure du temps de vol constitue un préalable à la mesure de vitesse dans un milieu donné. L'estimation du temps de vol d'un écho dépend de nombreux paramètres, parmi lesquels on peut relever la nature de l'estimateur (date du maximum : de l'écho redressé, de l'enveloppe, de corrélation...) [B.1][B.2][B.3][B.4], les paramètres de numérisation (quantification, échantillonnage...) [B.5][B.6][B.7], le niveau de bruit (rapport signal sur bruit) [B.8][B.9][B.10].

### B.1. Echantillonnage

On considère  $t_1$  et  $t_2$  les temps d'arrivée correspondant aux maximums des échos, respectivement  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ . Comme illustré par la Figure B.1, les temps correspondant aux valeurs maximales d'un signal échantillonné  $t_n$  ( $n = 1$  ou  $2$ ) sont évalués avec une erreur absolue  $\pm dt/2$ , où  $dt = 1/f_s$  est la période d'échantillonnage et  $f_s$  est la fréquence d'échantillonnage.

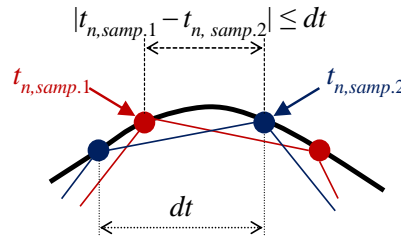


Figure B.1: Estimation de l'erreur d'échantillonnage du maximum d'amplitude  $|t_{n,samp,1} - t_{n,samp,2}|$  situé à  $t_n = t_{n,samp,1}$  ou  $t_{n,samp,2}$  selon la façon dont le signal est échantillonné, soit par échantillonnage 1 ou 2.

Ainsi, une incertitude  $\pm 2dt$  est associée à l'estimation du temps de vol :

$$\delta t_{mes} = t_1 - t_2 \pm 2dt \quad (\text{B.1})$$

L'erreur relative associée à l'échantillonnage  $\Delta \delta t_{r,s}$  est maximisée par :

$$\Delta \delta t_{s,r} = \left| \frac{\delta t_{th} - \delta t_{mes}}{\delta t_{th}} \right| \leq \Delta \delta t_{s,r,max} = 2 \cdot \frac{dt}{\delta t_{th}} = \frac{2}{\delta t_{th} \cdot f_s} \quad (\text{B.2})$$

Ainsi, pour  $\delta t_{th} = t_2 - t_1 = 12 \mu\text{s}$  et  $f_s = 2,5 \cdot 10^3 \text{ MHz}$ , on obtient  $\Delta \delta t_{s,r,max} \approx 6,67 \cdot 10^{-5}$ .

## B.2. Rapport signal sur bruit (SNR)

Le maximum d'amplitude a été atteint au temps  $t_n$  avec des valeurs extrêmes notées par  $t_{n,\min}$  et  $t_{n,\max}$  (Figure B.3). Ces valeurs peuvent être déterminées par la résolution de l'équation suivante :

$$(A + a) \cdot \sin(2\pi \cdot f_c \cdot t) = A - a \quad (\text{B.3})$$

$$\text{i.e.} \quad \begin{cases} 2\pi \cdot f_c \cdot t_{n,\min} = \text{Arcsin}\left(\frac{A - a}{A + a}\right) \\ 2\pi \cdot f_c \cdot t_{n,\max} = \pi - \text{Arcsin}\left(\frac{A - a}{A + a}\right) \end{cases} \quad (\text{B.4})$$

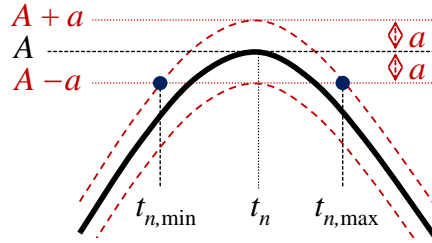


Figure B.2 : Erreur d'estimation de temps d'arrivée  $t_n$  associée au rapport signal sur bruit ( $SNR = A/a$ ) estimée au maximum d'amplitude.

En utilisant le rapport signal sur bruit  $SNR = A/a$ , l'équation (B.4) donne :

$$\begin{cases} t_{n,\min} = \frac{\text{Arcsin}\left(\frac{SNR - 1}{SNR + 1}\right)}{2\pi f_c} \\ t_{n,\max} = \frac{\pi - \text{Arcsin}\left(\frac{SNR - 1}{SNR + 1}\right)}{2\pi f_c} \end{cases} \quad (\text{B.5})$$

Le temps théorique  $t_n = 1/(4 \cdot f_c)$  est donné par l'équation (B.5), lorsque  $SNR \gg 1$  :

$$t_n = \frac{1}{4f_c} \quad (\text{B.6})$$

L'erreur absolue  $dt_{SNR}$  associée au  $SNR$  est donnée par :

$$dt_{SNR} = t_n - t_{n,\min} = \frac{1}{4f_c} - \frac{\text{Arcsin}\left(\frac{SNR - 1}{SNR + 1}\right)}{2\pi f_c} \quad (\text{B.7})$$

L'erreur relative  $\Delta \delta_{r,SNR}$  associée au  $SNR$  est :

$$\Delta\delta t_{SNR,r} = \left| \frac{\delta t_{th} - \delta t_{mes,SNR}}{\delta t_{th}} \right| \quad (B.8)$$

où  $\delta t_{mes,SNR} = t_2 - t_1 \pm dt_{SNR}$ . L'équation (B.8) devient :

$$\Delta\delta t_{r,SNR} = \frac{2 \cdot dt_{SNR}}{\delta t_{th}} \quad (B.9)$$

Ainsi, pour  $\delta t_{th} = t_2 - t_1 = 12 \mu s$ ,  $SNR = 100$  et  $f_c = 6 MHz$ , on a  $\Delta\delta t_{SNR,r} \approx 8,81 \cdot 10^{-2} \%$ .

Dans le cas le plus sévère,  $SNR = 1$ , l'équation (B.7) donne  $dt_{SNR} \leq t_n = 1 / (4 \cdot f_c)$  et l'erreur de temps liée au rapport signal sur bruit (équation (B.8)) devient :

$$\Delta\delta t_{SNR,r} \leq \frac{1}{2 f_c \cdot \delta t_{th}} \quad (B.10)$$

*i.e.* pour  $\delta t_{th} = t_2 - t_1 = 12 \mu s$ ,  $f_c = 6 MHz$ , on a  $\Delta\delta t_{SNR,r} \leq 69,4 \cdot 10^{-2} \%$ .

L'influence du rapport signal sur bruit  $SNR$  sur l'erreur relative maximale de temps  $\Delta\delta t_{SNR,r,max}$  est illustrée par la Figure B.3 suivante :

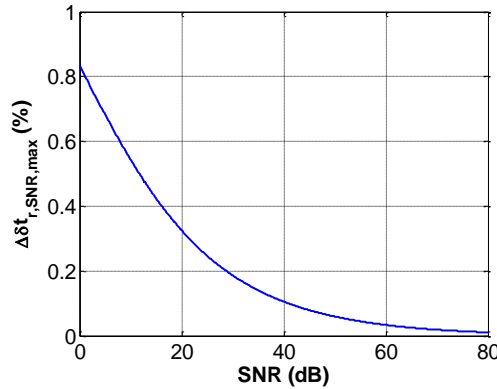


Figure B.3 : Erreur relative maximale de temps  $\Delta\delta t_{SNR,r,max}$  en fonction du rapport signal sur bruit  $SNR$  (dB).

### B.3. Erreur d'amplitude liée au rapport signal sur bruit (SNR)

L'atténuation ultrasonore théorique, *i.e.* sans bruit, est:

$$\alpha_{th} = \frac{1}{2d} \log \left( \frac{A_1}{A_2} \right) \quad (B.11)$$

où  $A_1$  et  $A_2$  sont les amplitudes des échos  $s_1(t)$  and  $s_2(t)$  respectivement. Tenant compte de l'amplitude maximale de bruit  $a$  (Figure B.3), l'atténuation maximale  $\alpha_{h,max}$  et l'atténuation minimale  $\alpha_{h,min}$  sont écrites comme suit:

$$\begin{cases} \alpha_{th,max} = \frac{1}{2d} \log\left(\frac{A_1 + a}{A_2 - a}\right) \\ \alpha_{th,min} = \frac{1}{2d} \log\left(\frac{A_1 - a}{A_2 + a}\right) \end{cases} \quad (B.12)$$

En tenant compte du rapport signal sur bruit  $SNR_1 = A_1/a$  et  $SNR_2 = A_2/a$ , on obtient :

$$\begin{cases} \alpha_{th,max} = \frac{1}{2d} \log\left(\frac{SNR_1 + 1}{SNR_2 - 1}\right) \\ \alpha_{th,min} = \frac{1}{2d} \log\left(\frac{SNR_1 - 1}{SNR_2 + 1}\right) \end{cases} \quad (B.13)$$

Pour simplifier, on note  $SNR_n = \min\{SNR_1, SNR_2\} = SNR_2$ . Puis, en tenant compte du signal échantillonné au rapport signal sur bruit  $SNR_s$ , on obtient  $SNR = SNR_n \cdot SNR_s / (SNR_n + SNR_s)$ , qui est a priori le cas le plus sévère. Par conséquent, l'équation (B.13) devient:

$$\Delta\alpha_{SNR,r} \leq \Delta\alpha_{SNR,r,max} = \frac{\log\left(\frac{SNR + 1}{SNR - 1}\right)}{\log\left(\frac{A_1}{A_2}\right)} \quad (B.14)$$

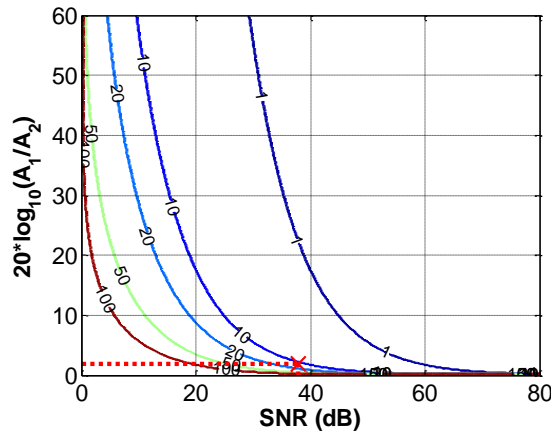


Figure B.4 : Erreur relative d'atténuation  $\Delta\alpha_{SNR,r}$  (%) en fonction de  $SNR$  (dB) et le rapport d'amplitude théorique :  $20 \cdot \log_{10}(A_1/A_2)$  (dB).

A titre d'exemple, la Figure B.4 montre la variation de l'erreur d'atténuation en fonction du rapport signal sur bruit  $SNR$ , en négligeant l'erreur relative de distance  $\Delta d_r$ . L'écriture générale de l'erreur relative d'atténuation est :

$$\Delta\alpha_r \leq \Delta d_r + \Delta\alpha_{SNR,r} \quad (B.15)$$

Cette expression peut être approximée par :

$$\Delta\alpha_r \leq \theta^2 + \frac{2}{SNR \cdot \log\left(\frac{A_1}{A_2}\right)} \quad (\text{B.16})$$

#### B.4. Références

- [B.1] M. M. Saad, C. J. Bleakley et S. Dobson, «Robust High-Accuracy Ultrasonic Range Measurement System,» *IEEE Trans. Instrumentation and Measurement*, vol. 60, n° 110, pp. 3334-3341, 2011.
- [B.2] F. van der Heijden, P. Regtien et T. Bener, «Robustness of ToF estimators - an Empirical Evaluation,» *Euroensors XVII - The 17th European Conference on Solid-State Transducers*, 2003.
- [B.3] F. van der Heijden, S. van Koningsveld et P. P. L. Regtien, «Time-of-flight estimation using extended matched filtering,» *Sensors, 2004. Proceedings of IEEE*, 2004.
- [B.4] R. Queiros, F. C. Alegria, P. S. Girao et A. C. Serra, «Cross-Correlation and Sine-Fitting Techniques for High-Resolution Ultrasonic Ranging,» *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, vol. 59, n° 112, pp. 3227-3236, 2010.
- [B.5] V. D. L. Svilainis, «Analysis of the interpolation techniques for time-of-flight estimation,» *Ultragarsas (Ultrasound)*, 2008.
- [B.6] V. D. L. Svilainis, «The time-of-flight estimation accuracy versus digitization parameters,» *Ultragarsas (Ultrasound)*, 2008.
- [B.7] S. K. L. Svilainis, «Analysis of the digital signal processing influence on time-of-flight estimation,» *Ultragarsas (Ultrasound)*, 2010.
- [B.8] J. Ophir, Y. Yazdi, T. S. Lin et D. P. Shattuck, «Optimization of speed-of-sound estimation from noisy ultrasonic signals,» *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, vol. 36, n° 11, pp. 16-24, 1989.
- [B.9] R. Demirli et J. Saniie, «Model-based estimation of ultrasonic echoes. Part I: Analysis and algorithms,» *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, vol. 48, n° 13, pp. 787-802, 2001.
- [B.10] R. Demirli et J. Saniie, «Model-based estimation of ultrasonic echoes. Part II: Nondestructive evaluation applications,» *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, vol. 48, n° 13, pp. 803-811, 2001.



## Annexe C Linéarisation du modèle d'Arrhenius

La loi d'Arrhenius s'écrit sous la forme suivante:

$$c_{th,T}(T_K) = c_{h,T_{amb}} e^{B \cdot \left( \frac{1}{T_K} - \frac{1}{T_{amb,K}} \right)} \quad (C.1)$$

$$\text{où} \quad \begin{cases} T_K = T_0 + T \\ T_{amb,K} = T_0 + T_{amb} \end{cases} \quad (C.2)$$

$$\text{et} \quad \begin{cases} T_0 = 273\text{K} \\ T_{amb} = 23^\circ\text{C} \\ T = \{20^\circ\text{C}, 40^\circ\text{C}\} \end{cases} \quad (C.3)$$

La linéarisation de l'équation (C.1) donne:

$$c_{th,T,lin}(T_K) \approx c_{h,T_{amb}} \cdot \left( 1 + B \cdot \left( \frac{1}{T_K} - \frac{1}{T_{amb,K}} \right) \right) \quad (C.4)$$

$$\text{i.e.} \quad c_{th,T,lin}(T_K) = c_{h,T_{amb}} \cdot \left( 1 + \frac{B}{T_0} \cdot \left( \frac{1}{1 + \frac{T}{T_0}} - \frac{1}{1 + \frac{T_{amb}}{T_0}} \right) \right) \quad (C.5)$$

$$\text{et} \quad c_{th,T,lin}(T_K) \approx c_{h,T_{amb}} \cdot \left( 1 + \frac{B}{T_0^2} \cdot (T_{amb} - T) \right) \quad (C.6)$$

Par identification des équations (2.30) et (C.6), on peut écrire :

$$\begin{cases} c_{h,T_{amb}} + \frac{B \cdot c_{h,T_{amb}}}{T_0^2} T_{amb} \approx 1059 \text{ m.s}^{-1} \\ -\frac{B \cdot c_{h,T_{amb}}}{T_0} \approx -2,64 \text{ m.s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1} \end{cases} \quad (C.7)$$

Nous trouvons les ordres de grandeur attendus (équation (1.30)).





## Annexe D Identification de la transformation de phase par la distribution de Weibull.

La fonction de distribution de Weibull permet de modéliser une famille de courbes dites "en S" au moyen de deux paramètres  $\{k; \lambda\}$  en faisant intervenir une fonction exponentielle (équation (D.1)). Elle présente ainsi l'avantage d'être continûment dérivable, et solution potentielle à des équations différentielles. Ainsi, elle permet de modéliser des phénomènes physiques de type réponse indicielle du premier ordre avec  $\{k; \lambda\} = \{1; \tau\}$ , et d'approcher par identification les réponses indicelles amorties du deuxième ordre. La distribution de Weibull s'écrit sous la forme suivante :

$$P(t_{acq}) = 1 - e^{-\left(\frac{t_{acq}}{\lambda}\right)^k} \quad (D.1)$$

La dérivée par rapport au temps d'acquisition de l'équation (D.1) donne :

$$P'(t_{acq}) = \frac{k}{\lambda} \left(\frac{t_{acq}}{\lambda}\right)^{k-1} e^{-\left(\frac{t_{acq}}{\lambda}\right)^k} \quad (D.2)$$

La dérivée seconde de l'équation (D.1) par rapport au temps d'acquisition donne :

$$P''(t_{acq}) = \frac{k}{\lambda} \lambda^{1-k} (t_{acq})^{k-2} \left( (k-1) - k \lambda^{-k} (t_{acq})^k \right) e^{-\left(\frac{t_{acq}}{\lambda}\right)^k} \quad (D.3)$$

Le point d'inflexion  $t_{ifx}$  de la distribution de Weibull est la solution de l'équation  $P''(t_{acq}) = 0$  :

$$t_{ifx} = \lambda \left( \frac{k-1}{k} \right)^{\frac{1}{k}} \quad (D.4)$$

L'ordonnée au point d'inflexion  $P(t_i)$  est donné par :

$$P(t_{ifx}) = 1 - e^{-\left(\frac{k-1}{k}\right)} \quad (D.5)$$

Le coefficient directeur au point d'inflexion  $t_{ifx}$  s'écrit :

$$P'(t_{ifx}) = \frac{k}{\lambda} \left( \frac{k-1}{ke} \right)^{\left(\frac{k-1}{k}\right)} \quad (D.6)$$

La tangente au point d'inflexion  $y(t_{acq})$  s'écrit alors avec l'équation suivante :

$$y(t_{acq}) = P'(t_{ifx})(t_{acq} - t_{ifx}) + P(t_{ifx}) \quad (D.7)$$

Les temps de gel  $t_{gel}$  et le temps de saturation  $t_{sat}$  vérifient respectivement les solutions  $y(t_{gel}) = 0$  et  $y(t_{sat}) = 1$  :

$$\begin{cases} t_{gel} = t_{ifx} - \frac{P(t_{ifx})}{P'(t_{ifx})} \\ t_{sat} = t_{ifx} + \frac{1 - P(t_{ifx})}{P'(t_{ifx})} \end{cases} \quad (D.8)$$

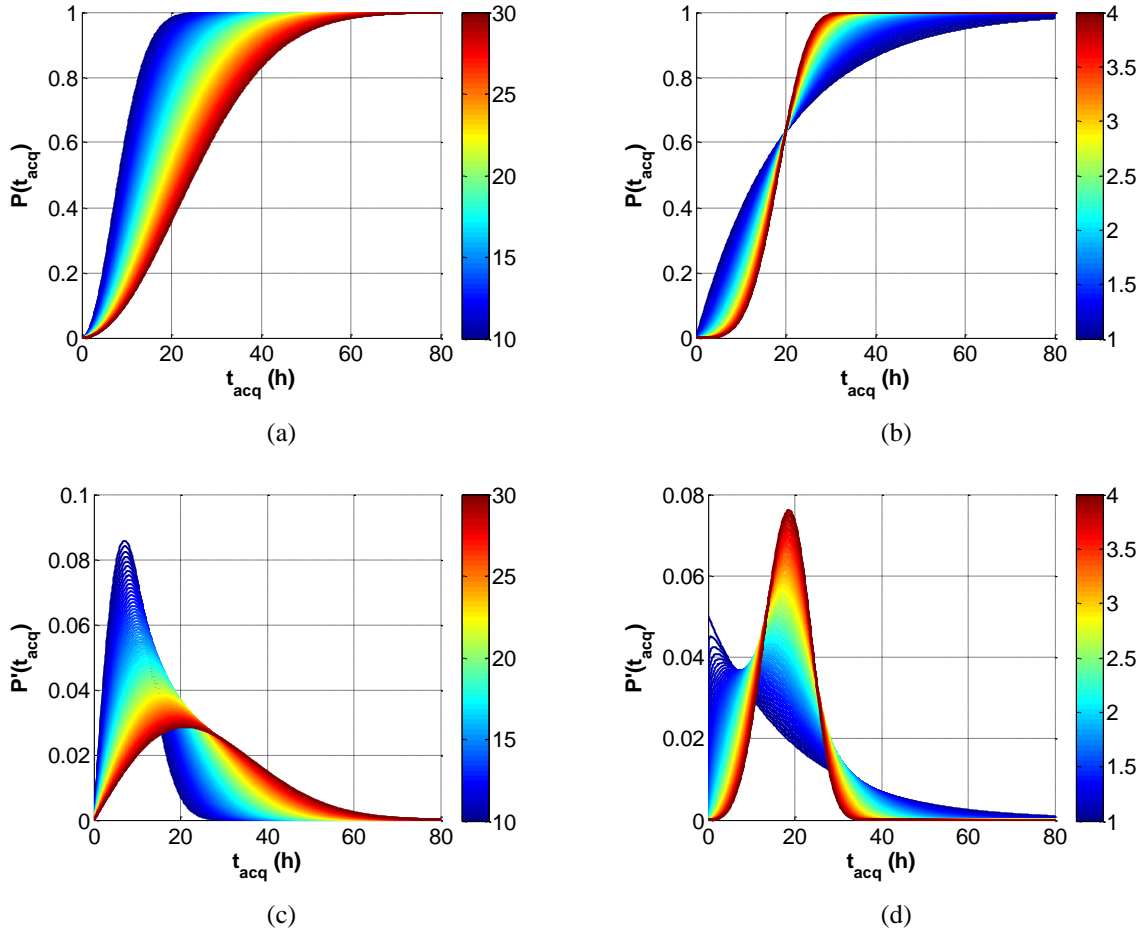


Figure D.1: Distribution de Weibull : (a)  $P(t_{acq})$  pour  $\{k; \lambda\} = \{2; 10 \text{ à } 30\}$ , (b)  $P(t_{acq})$  pour  $\{k; \lambda\} = \{1 \text{ à } 4; 20\}$ ; dérivée associée : (c)  $P'(t_{acq})$  pour  $\{k; \lambda\} = \{2; 10 \text{ à } 30\}$ , (d)  $P'(t_{acq})$  pour  $\{k; \lambda\} = \{1 \text{ à } 4; 20\}$ .

Pour l'application à laquelle on s'intéresse, on cherche à modéliser une transition de phase depuis l'état liquide, vers l'état solide avec une fonction continûment variable et permettant un ajustement de la date du point d'inflexion  $t_{ifx}$  (équation (D.4)), dont la valeur est imposée par le paramètre  $\lambda$ , dès lors que  $k$  est fixé ou bien même  $t_{ifx} \approx \lambda$  pour  $k > 5$ . Ainsi, pour  $\{k; \lambda\} = \{2; 10 \text{ à } 30\}$  (Figure D.1 (a)), on obtient  $t_{ifx} \approx 0,707.\lambda$ , soit  $t_{ifx} \approx 7$  à  $21$  h (Figure D.1 (c)). Par ailleurs, ce paramètre  $k$  permet aussi de moduler la pente de la courbe pour  $\{k; \lambda\} = \{1 \text{ à } 4; 20\}$  (Figure D.1 (b)). Ainsi, on peut observer clairement l'augmentation de la pente la courbe autour du point  $t_{acq} \approx \lambda$ , avec une dérivée  $P'(\lambda) = e^{-1}.k/\lambda$  (équation (D.2)), qui

évolue de 0,018 à 0,074 (Figure D.1 (d)). En résumé, les deux paramètres  $\{k; \lambda\}$  de cette fonction peuvent être identifiés avec deux points caractéristiques, tels que la date à mi-hauteur  $t_{50} = \lambda.(\ln(2))^{1/k}$ , et la date à 95% du maximum  $t_{95} = \lambda.3^{1/k}$ . Cette première identification peut alors être affinée via une procédure d'ajustement par moindres carrés.



## Annexe E Dilatation et sensibilité thermiques

### E.1. Dilatation thermique

La dilatation thermique joue un rôle dans l'évaluation de la vitesse longitudinale qu'il est indispensable de quantifier :

$$c_L(T) = \frac{2d(T)}{\tau(T)} \quad (\text{E.1})$$

Cette expression dépend de nombreux facteurs, dont la température. Afin de quantifier son effet, on détaille les expressions pour des petites variations autour d'un point d'équilibre :

$$c_L(1 + \delta_c) = \frac{2d(1 + \delta_d)}{\tau(1 + \delta_\tau)} \quad (\text{E.2})$$

$\delta_c = \alpha_{T,c} \cdot (T - T_{ref})$  : variation de la vitesse avec la température.

$\delta_d = \alpha_{T,d} \cdot (T - T_{ref})$  : variation de l'épaisseur liée à la dilatation thermique.

$\delta_\tau$  : différentiel de temps de vol relatif obtenu à partir des mesures.

Un développement limité au premier ordre de l'équation (E.2) donne :

$$c_L(1 + \delta_c) \approx \frac{2d}{\tau} (1 + \delta_d - \delta_\tau) \quad (\text{E.3})$$

$$\text{soit } \delta_c \approx \delta_d - \delta_\tau \quad (\text{E.4})$$

Le coefficient de dilatation thermique  $\alpha_{T,d}$  est très dépendant de la gamme de température et de la composition du matériau considéré. En particulier, pour les résines époxy, le coefficient de dilatation thermique  $\alpha_{T,d}$  varie typiquement de +40% entre 0 et 60°C [E.1]. Néanmoins, usuellement, on considère le coefficient de dilatation thermique  $\alpha_{T,d}$  constant sur deux plages de température, la première s'étendant de la température ambiante jusqu'à celle de transition vitreuse  $T_g$ , et la seconde s'étendant depuis la température de transition vitreuse  $T_g$  jusqu'à 200°C. Par ailleurs, cette température de transition vitreuse  $T_g$  est elle-même dépendante de la composition de la résine, et peut varier typiquement de 90°C à 190°C, comme rapporté par Barrère et Dal Maso [E.2].

Sur la base de travaux sur ce sujet [E.3, E.4, E.5, E.6], les coefficients d'expansion thermique de la résine époxy étudiée pour  $0 \leq T \leq 200^\circ\text{C}$  sont estimés par :

$$\begin{cases} \alpha_{T < T_g} \approx 75 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1} \\ \alpha_{T > T_g} \approx 190 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1} \end{cases} \quad (\text{E.5})$$

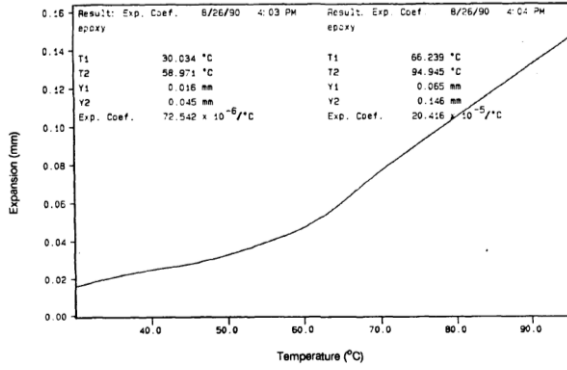


Figure 1a. The thermal expansion of epoxy resin.

(a)

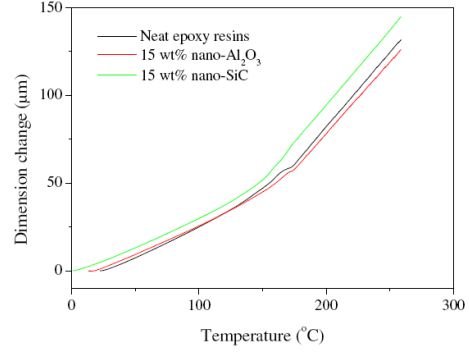


Fig. 9. Dimensional change of DGEBA/nano- $\text{Al}_2\text{O}_3$  and DGEBA/nano-SiC composites as a function of temperature.

(b)

Figure E.1 : Coefficients d'expansion thermique donnés par les pentes de sensibilité à la température selon (a) [E.3] et (b) [E.5].

Pour une variation de température entre  $28^{\circ}\text{C}$  et  $46^{\circ}\text{C}$ , la variation de  $\delta_c = -6,8 \cdot 10^{-2}$ ,  $\delta_\tau = -6,7 \cdot 10^{-2}$  et  $\delta_d = -0,1 \cdot 10^{-2}$  donc  $\delta_d \ll \delta_\tau$ . L'équation (E.4) devient :

$$\delta_c \approx -\delta_\tau \quad (\text{E.6})$$

Dans ce cas, on peut négliger l'effet de la dilatation thermique dans cette gamme de température et l'équation (E.1) devient :

$$c_L(T) \approx \frac{2d}{\tau(T)} \quad (\text{E.7})$$

Pour les autres matériaux concernant les études menées, les coefficients de dilatation thermique ont été évalués à  $\alpha_{T,d} \approx 25 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  pour l'aluminium et  $\alpha_{T,d} \approx 12 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  pour l'acier pour des températures  $0 \leq T \leq 200^{\circ}\text{C}$ .

## E.2. Sensibilité à la température

Dans l'expression de l'équation (4.9), on définit les deux termes  $\delta t_{Alu}$  le décalage temporel et  $\delta \alpha_{Alu}$  la variation d'atténuation dans les moules d'aluminium qui s'écrivent :

$$\begin{cases} \delta t_{Alu} = 2d_{Alu} \left( \frac{c_{Alu,ref}(T_{ref}) - c_{Alu}(T)}{c_{Alu,ref}(T_{ref}) \cdot c_{Alu}(T)} \right) \\ \delta \alpha_{Alu} = 2 \frac{d_{Alu}}{d_{Epo}} \left( \alpha_{Alu,ref}(T_{ref}) - \alpha_{Alu}(T) \right) \end{cases} \quad (\text{E.8})$$

Les paramètres  $\delta t_{Alu,exp}$  et  $\delta \alpha_{Alu,exp}$  présentent l'influence de la variation des propriétés ultrasonores dans les moules sur les propriétés ultrasonores de l'époxy. Pour une polymérisation isotherme, les expressions de l'équation (E.8) sont théoriquement égales à zéro. Dans notre configuration et pour une réaction de polymérisation, la vitesse ultrasonore et l'atténuation dans les moules varient entre une température initiale de référence  $T_{ref}$  et une

température de stabilisation. Pour une polymérisation à une température de consigne  $T = 40^{\circ}\text{C}$ , l'ordre de grandeur de la température de référence est  $T_{ref} \approx 34^{\circ}\text{C}$ . L'équation (3.1) du chapitre III donne les tendances de la vitesse ultrasonore et l'atténuation:

$$\begin{cases} c_{Alu,lin}(T) \approx b_{c,Alu} + a_{c,Alu} \cdot T \\ \alpha_{Alu,lin}(T) \approx b_{\alpha,Alu} + a_{\alpha,Alu} \cdot T \end{cases} \quad (\text{E.9})$$

avec  $b_{c,Alu} = 6466 \text{ m.s}^{-1}$ ,  $a_{c,Alu} = -2,52 \text{ m.s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ,  $b_{\alpha,Alu} = 3,72 \text{ Np.m}^{-1}$  et  $a_{\alpha,Alu} = -0,024 \text{ Np.m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ . En prenant en compte l'équation (E.9), l'expression du décalage temporel  $\delta t_{Alu,app}$  dans les moules de l'équation devient :

$$\delta t_{Alu,app} = 2d_{Alu} \frac{a_{c,Alu} \cdot (T_{ref} - T)}{b_{c,Alu}^2 + a_{c,Alu} b_{c,Alu} (T + T_{ref}) + a_{c,Alu}^2 T T_{ref}} \quad (\text{E.10})$$

Une forme approchée de l'équation (E.10) donne :

$$\delta t_{Alu,app} \approx 2d_{Alu} \frac{a_{c,Alu} \cdot (T_{ref} - T)}{b_{c,Alu}^2} \quad (\text{E.11})$$

En tenant compte des équations (E.8) et (E.9), la variation d'atténuation  $\delta \alpha_{Alu,app}$  dans les moules s'écrit sous la forme suivante :

$$\delta \alpha_{Alu,app} = 2 \frac{d_{Alu}}{d_{Epo}} a_{\alpha,Alu} (T_{ref} - T) \quad (\text{E.12})$$

### E.3. Références

- [E.1] H. Patterson, «Evaluation of four organic resin binder systems,» 1976.
- [E.2] C. Barrere et F. Dal Maso, «Résines époxy réticulées par des polyamines : structure et propriétés,» *Rev. Inst. Fr. Pét.*, vol. 52, n° 13, pp. 317-335, 1997.
- [E.3] L. C. Sengupta et W. A. Spurgeon, «Thermal expansion measurements of polymer matrix composites and syntactics,» 1992.
- [E.4] R. J. Crowson et R. G. Arridge, «Linear viscoelastic properties of epoxy resin polymers in dilatation and shear in the glass transition region. 1. Time-temperature superposition of creep data,» *Langley Research Center*, vol. 20, n° 16, pp. 737-746, 1979.
- [E.5] F.-L. Jin et S.-J. Park, «Thermal properties of epoxy resin/filler hybrid composites,» *Polymer Degradation and Stability*, vol. 97, n° 111, pp. 2148-2153, 2012.
- [E.6] S. Tognana, W. Salgueiro, A. Somoza, J. Pomarico et H. Ranea-Sandoval, «Influence of the filler content on the thermal expansion behavior of an epoxy matrix particulate composite,» *Materials Science and Engineering: B*, vol. 157, n° 11 à 3, pp. 26-31, 2009





## Annexe F Configuration en émission/transmission (ET)

### F.1. Mise en équation

Soit  $s_{1,ref,ET}(t)$  le signal correspondant à la propagation d'une onde plane à travers une structure tricouche à l'instant de référence. La structure tricouche est composée d'un sandwich de matériaux référencés ①/②/①, de longueurs respectives  $d_1, d_2, d_1$  (Figure F.1). Le signal  $s_{1,ET}(t)$  est le signal correspondant à la propagation de onde à un instant  $t_{acq}$ .

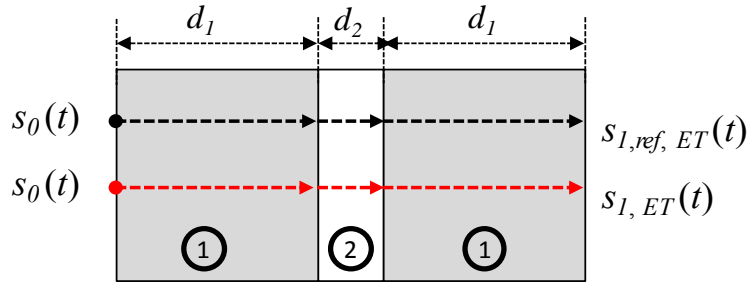


Figure F.1 : Transmission d'une onde plane à travers une structure tricouche.

Les spectres  $\underline{S}_{1,ET}(f)$  et  $\underline{S}_{1,ref,ET}(f)$  des signaux  $s_{1,ET}(t)$  et  $s_{1,ref,ET}(t)$  s'écrivent sous la forme suivante :

$$\begin{cases} \underline{S}_{1,ET}(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2jk_1 d_1} e^{-jk_2 d_2} \underline{T}_{12} \underline{T}_{21} \\ \underline{S}_{1,ref,ET}(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2jk_{1,ref} d_1} e^{-jk_{2,ref} d_2} \underline{T}_{12,ref} \underline{T}_{21,ref} \end{cases} \quad (F.1)$$

On remplaçant les vecteur d'onde  $\underline{k}_{i,ref} = \omega/c_{i,ref}(f) + j\alpha_{i,ref}(f)$  et  $\underline{k}_i = \omega/c_i(f) + j\alpha_i(f)$  par leurs valeurs dans l'expression précédente, on trouve :

$$\begin{cases} \underline{S}_{1,ET}(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2\alpha_1(f)d_1} e^{-\alpha_2(f)d_2} e^{-j\frac{2\pi f 2d_1}{c_1(f)}} e^{-j\frac{2\pi f d_2}{c_1(f)}} \underline{T}_{12} \underline{T}_{21} \\ \underline{S}_{1,ref,ET}(f) = \underline{S}_0(f) e^{-2\alpha_{1,ref}(f)d_1} e^{-\alpha_{2,ref}(f)d_2} e^{-j\frac{2\pi f 2d_1}{c_{1,ref}(f)}} e^{-j\frac{2\pi f d_2}{c_{2,ref}(f)}} \underline{T}_{12,ref} \underline{T}_{21,ref} \end{cases} \quad (F.2)$$

Les modules des spectres  $\underline{S}_{1,ET}(f)$  et  $\underline{S}_{1,ref,ET}(f)$  s'écrivent :

$$\begin{cases} |\underline{S}_{1,ET}(f)| = e^{-2\alpha_1(f)d_1} e^{-\alpha_2(f)d_2} |\underline{S}_0(f) \underline{T}_{12} \underline{T}_{21}| \\ |\underline{S}_{1,ref,ET}(f)| = e^{-2\alpha_{1,ref}(f)d_1} e^{-\alpha_{2,ref}(f)d_2} |\underline{S}_0(f) \underline{T}_{12,ref} \underline{T}_{21,ref}| \end{cases} \quad (F.3)$$

Le module de la fonction de transfert  $|\underline{T}_{11,ET}(f)| = |\underline{S}_{1,ET}(f) / \underline{S}_{1,ref,ET}(f)|$  s'écrit alors :

$$\left| \underline{T}_{11,ET}(f) \right| = \frac{\left| \underline{S}_{1,ET}(f) \right|}{\left| \underline{S}_{1,ref,ET}(f) \right|} = \frac{e^{-2\alpha_1(f)d_1} e^{-\alpha_2(f)d_2} \left| \underline{T}_{12} \underline{T}_{21} \right|}{e^{-2\alpha_{1,ref}(f)d_1} e^{-\alpha_{2,ref}(f)d_2} \left| \underline{T}_{12,ref} \underline{T}_{21,ref} \right|} \quad (F.4)$$

Si on définit  $\underline{T}(f) = \frac{\underline{T}_{12} \underline{T}_{21}}{\underline{T}_{12,ref} \underline{T}_{21,ref}}$ , l'atténuation s'écrit alors sous la forme suivante :

$$\alpha_1(f) = \alpha_{1,ref}(f) - \frac{1}{d_1} \ln \left( \left| \frac{\underline{T}_{11,ET}(f)}{\underline{T}(f)} \right| \right) + 2 \frac{d_1}{d_2} (\alpha_{1,ref}(f) - \alpha_1(f)) \quad (F.5)$$

L'argument de la fonction de transfert  $Arg(\underline{T}_{11,ET}(f))$  s'écrit sous l'expression suivante:

$$Arg(\underline{T}_{11,ET}(f)) = Arg \left( \frac{\underline{S}_{1,ET}(f)}{\underline{S}_{1,ref,ET}(f)} \right) = Arg \left( \frac{e^{-j \frac{2\pi f 2d_1}{c_1(f)}} e^{-j \frac{2\pi f d_2}{c_2(f)}}}{e^{-j \frac{2\pi f 2d_1}{c_{1,ref}(f)}} e^{-j \frac{2\pi f d_2}{c_{2,ref}(f)}}} \underline{T}(f) \right) \quad (F.6)$$

$$\text{soit } Arg(\underline{T}_{11,ET}(f)) = Arg \left( e^{j \frac{4\pi f d_1}{\delta c_1(f)}} e^{j \frac{2\pi f d_2}{\delta c_2(f)}} \underline{T}(f) \right) \quad (F.7)$$

$$\text{avec } \frac{1}{\delta c_n(f)} = \frac{1}{c_{n,ref}(f)} - \frac{1}{c_n(f)} = \frac{c_n(f) - c_{n,ref}(f)}{c_{n,ref}(f)c_n(f)} \quad \text{et } n = \{1, 2\}$$

Ainsi, en prenant en compte les variations de vitesse dans les milieux 1 et 2, on obtient :

$$Arg(\underline{T}_{11,ET}(f)) = \frac{4\pi f d_1}{\delta c_1(f)} + \frac{2\pi f d_2}{\delta c_2(f)} + Arg(\underline{T}(f)) \quad (F.8)$$

La vitesse dans le milieu 1 s'écrit alors sous la forme suivante :

$$c_2(f) = \frac{2\pi f d_2}{\frac{2\pi f d_2}{c_{2,ref}(f)} + \frac{4\pi f d_1}{\delta c_1(f)} - Arg(\underline{T}_{11,ET}(f)) + Arg(\underline{T}(f))} \quad (F.9)$$

Ainsi, la vitesse de phase et l'atténuation dans le milieu 2 s'écrivent finalement :

$$\left\{ \begin{array}{l} c_2(f) = \frac{d_2}{\frac{d_2}{c_{1,ref}(f)} + \frac{2d_1}{\delta c_1(f)} - \frac{Arg(\underline{T}_{11,ET}(f))}{2\pi f} + \frac{Arg(\underline{T}(f))}{2\pi f}} \\ \alpha_2(f) = \alpha_{2,ref}(f) - \frac{1}{d_2} \ln \left( \left| \frac{\underline{T}_{11,ET}(f)}{\underline{T}(f)} \right| \right) + 2 \frac{d_1}{d_2} (\alpha_{1,ref}(f) - \alpha_1(f)) \end{array} \right. \quad (F.10)$$

## F.2. Forme analytique du coefficient de transmission

Le coefficient de transmission complexe d'une onde plane qui se propage d'un milieu 1 vers un milieu 2 s'écrit en fonction des impédances acoustiques complexes sous la forme suivante :

$$\underline{T}_{12} = \frac{2\underline{Z}_2}{\underline{Z}_2 + \underline{Z}_1} = \frac{2\rho_2 c_{L,2}(1 + j\delta_{c,2})}{\rho_2 c_{L,2}(1 + j\delta_{c,2}) + \rho_1 c_{L,1}(1 + j\delta_{c,1})} = \frac{2Z_2(1 + j\delta_{c,2})}{Z_2(1 + j\delta_{c,2}) + Z_1(1 + j\delta_{c,1})} \quad (\text{F.11})$$

avec  $\delta_{c,1} = \alpha_{L,1}c_{L,1}/\omega$  et  $\delta_{c,2} = \alpha_{L,2}c_{L,2}/\omega$  les pertes mécaniques respectivement dans les milieux 1 et 2. En factorisant les parties réelles et imaginaires du numérateur et du dénominateur séparément, le coefficient de transmission complexe devient :

$$\underline{T}_{12} = \frac{2Z_2 + j2Z_2\delta_{c,2}}{Z_1 + Z_2 + j(Z_1\delta_{c,1} + Z_1\delta_{c,1})} \quad (\text{F.12})$$

En regroupant les parties réelles et imaginaires, on obtient :

$$\underline{T}_{12} = \frac{2Z_2}{(Z_1 + Z_2)} \left( \frac{1 + \delta_{c,2} \left( \frac{Z_1\delta_{c,1} + Z_2\delta_{c,2}}{Z_1 + Z_2} \right) + j \frac{Z_1(\delta_{c,2} - \delta_{c,1})}{Z_1 + Z_2}}{1 + \left( \frac{Z_1\delta_{c,1} + Z_2\delta_{c,2}}{Z_1 + Z_2} \right)^2} \right) \quad (\text{F.13})$$

Le coefficient de transmission est considéré réel  $\underline{T}_{12} = T_{12} = 2\underline{Z}_2 / (\underline{Z}_1 + \underline{Z}_2)$  si et seulement si :

$$\begin{cases} \frac{Z_1\delta_{c,1} + Z_2\delta_{c,2}}{Z_1 + Z_2} \ll 1 \\ \frac{Z_1(\delta_{c,2} - \delta_{c,1})}{Z_1 + Z_2} \ll 1 \end{cases} \quad (\text{F.14})$$

Ces hypothèses sont quasiment systématiquement vérifiées, dès lors que les pertes  $\delta_{c,n}$  sont de l'ordre de quelques pourcents.



## Annexe G    Signaux    à    enveloppe    gaussienne atténuée.

### G.1.    Enveloppe gaussienne

#### G.1.1 Transformée de Fourier

D'une façon générale, les propriétés temporelle (durée) et spectrale (bande passante) d'un signal quelconque sont reliées. Plus la bande passante est large, plus l'écho est court; ainsi à un spectre d'amplitude uniforme correspond une impulsion de type Dirac. Plus la bande passante est réduite, plus l'écho est long; ainsi à un spectre de type Dirac correspond une impulsion harmonique d'amplitude uniforme. La fonction gaussienne permet de faire le lien direct entre ces formulations temporelle et fréquentielle, avec la spécificité de conserver cette même fonction gaussienne caractéristique. Une fois ajustée [G.3], cette correspondance permet ainsi d'estimer un temps de vol [G.1, G.4, G.7] et une atténuation relative [G.2, G.5] entre deux échos.

#### G.1.2 Enveloppe gaussienne

Dans le cas d'un signal dit gaussien, c'est-à-dire avec une enveloppe gaussienne, le spectre d'une excitation gaussienne centrée en  $f = f_0$ , d'écart-type  $\sigma_f$ , avec un retard  $t_0$  s'écrit :

$$\underline{U}(f) = e^{-\frac{1}{2} \left( \frac{f-f_0}{\sigma_f} \right)^2} e^{-j2\pi f t_0} \quad (\text{G.1})$$

Via la transformée de Fourier inverse [G.6], on démontre que :

$$u(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \underline{U}(f) \cdot e^{+j2\pi f t} \cdot df = \sqrt{2\pi} \sigma_f e^{-2(\sigma_f \pi (t-t_0))^2} e^{j2\pi f_0 (t-t_0)}$$

soit 
$$u(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_t} e^{-\frac{1}{2} \left( \frac{t-t_0}{\sigma_t} \right)^2} e^{j2\pi f_0 (t-t_0)} \quad (\text{G.2})$$

Il en résulte la formulation temporelle centrée en  $t = t_0$ , d'écart-type  $\sigma_t$ , avec un retard  $t_0$ .

Les formulations spectrale (G.1) ou temporelle (G.2) d'un signal gaussien sont donc liées par la correspondance entre les écart-types temporel  $\sigma_t$  et spectral  $\sigma_f$  :

$$\sigma_t = \frac{1}{2\pi \sigma_f} \quad (\text{G.3})$$

Ainsi, la durée d'un écho gaussien et la bande passante d'un spectre gaussien peuvent être évaluées indifféremment avec les expressions temporelle ou spectrale du signal gaussien.

### G.1.2.1 Expression temporelle

La durée relative (ou normalisée) à la période  $T_0$  du signal à  $-n$  dB est notée  $d_{n,r}$  et s'écrit directement en fonction de l'écart-type temporel  $\sigma_t$  :

$$d_{n,r} = \frac{d_n}{T_0} = \left( \frac{d}{T_0} \right)_{-n \text{ dB}} = 2\sqrt{\frac{n \ln(10)}{10}} \frac{\sigma_t}{T_0} \quad (\text{G.4})$$

soit 
$$\frac{d_6}{T_0} = \frac{2\sqrt{2 \ln(2)} \sigma_t}{T_0} \quad (\text{G.5})$$

### G.1.2.2 Expression spectrale

De même, la bande passante relative (ou normalisée) à  $-n$  dB est notée  $\Delta f_{n,r}$  et s'écrit :

$$\Delta f_{n,r} = \frac{\Delta f_n}{f_0} = \left( \frac{\Delta f}{f_0} \right)_{-n \text{ dB}} = 2\sqrt{\frac{n \ln(10)}{10}} \frac{\sigma_f}{f_0} \quad (\text{G.6})$$

soit 
$$\frac{\Delta f_6}{f_0} = \frac{2\sqrt{2 \ln(2)} \sigma_f}{f_0} \quad (\text{G.7})$$

### G.1.2.3 Dualité temps-fréquence

A partir des expressions de la durée normalisée (équation (G.4)), de la bande passante normalisée (équation (G.6)) et du lien entre les écarts-types temporel et spectral (équation (G.3)), on déduit la correspondance entre la bande passante  $\Delta f_n$  et la durée de l'excitation  $d_n$  :

$$d_n = \frac{n \ln(10)}{5\pi \Delta f_n} \quad (\text{G.8})$$

Plus particulièrement, en combinant les équations (G.5) et (G.7), à  $-6$  dB, on obtient une relation entre la durée  $d_6$  et la bande passante à mi-hauteur  $\Delta f_6$  :

$$d_6 = \frac{4 \ln(2)}{\pi \Delta f_6} \approx \frac{0,88}{\Delta f_6} \quad (\text{G.9})$$

La dualité temps-fréquence formalisée par la relation (G.3) entre durée et bande passante à  $-n$  dB (équation (G.8)) est illustré par la Figure G.1 : la durée est inversement proportionnelle à la bande passante.

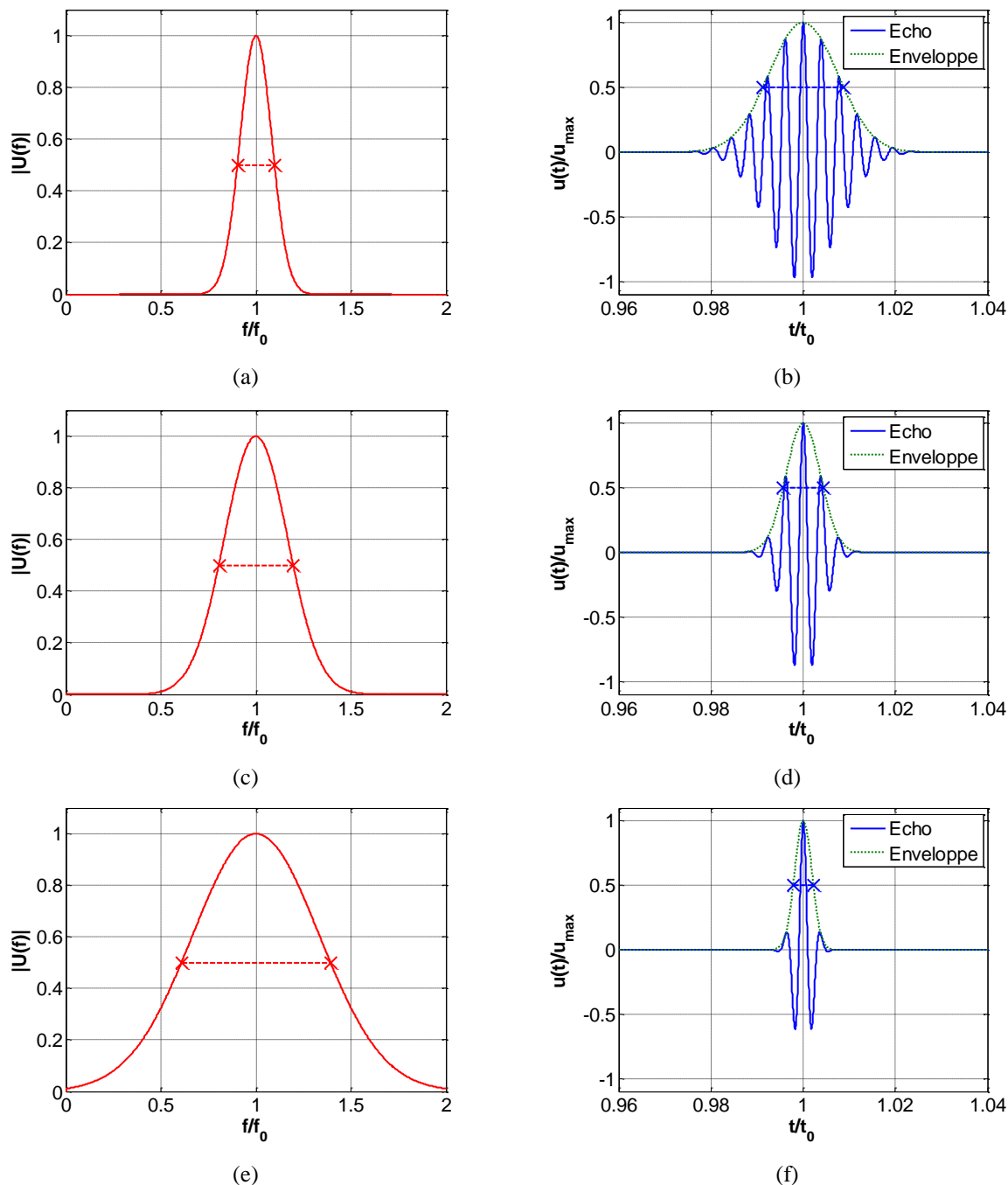


Figure G.1 : (a), (c), (e) Spectres et (b), (d), (f) échos associés pour une bande passante relative

$\Delta f_{\delta,r}$  à (a), (b) 20% ; (c), (d) 40% ; (e), (f) 80%.

## G.2. Enveloppe gaussienne atténué

### G.2.1 Atténuation linéaire

D'une façon générale, un signal physique quelconque comporte une atténuation. Celle-ci vient dans le cas présent, pondérer un signal à enveloppe gaussienne. Le spectre d'un signal à enveloppe gaussienne centrée en  $f = f_0$ , atténué par une atténuation dépendant linéairement de



la fréquence et sa formulation temporelle centrée en  $t = t_0$  sont liés par la transformée de Fourier :

$$u(f) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f-f_0}{\sigma_f}\right)^2} e^{-j2\pi f t_0} e^{-\alpha_0 \frac{f}{f_0}} \quad (\text{G.10})$$

$$\Leftrightarrow u(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} u(f) \cdot e^{+j2\pi f t} \cdot df = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f-f_0}{\sigma_f}\right)^2} e^{-\alpha_0 \frac{f}{f_0}} \cdot e^{+j2\pi f (t-t_0)} \cdot df$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{1}{2\sigma_f^2} f^2 + \left(\frac{f_0}{\sigma_f^2} - \frac{\alpha_0}{f_0} + j2\pi(t-t_0)\right) f} \cdot df \quad (\text{G.11})$$

Les tables d'intégrales [G.6] donnent :

$$I = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-af^2 - bf} df = \sqrt{\frac{\pi}{a}} e^{\frac{b^2}{4a}} \quad (\text{G.12})$$

L'équation (G.11) devient :

$$\begin{aligned} u(t) &= e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{2\sigma_f^2 \left(\frac{f_0}{2\sigma_f^2} - \frac{\alpha_0}{2f_0} + j\pi(t-t_0)\right)^2} \\ \Leftrightarrow u(t) &= e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{\frac{1}{2\sigma_f^2} \left(f_0 - \frac{\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0} + j2\sigma_f^2 \pi(t-t_0)\right)^2} \\ \Leftrightarrow u(t) &= e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{\frac{1}{2\sigma_f^2} \left( (f_0)^2 + \left(\frac{\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0}\right)^2 - (2\sigma_f^2 \pi(t-t_0))^2 - 2\sigma_f^2 \alpha_0 + j2\sigma_f^2 2\pi f_0(t-t_0) - j2\sigma_f^2 \pi(t-t_0) \frac{2\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0} \right)} \\ \Leftrightarrow u(t) &= \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{\frac{1}{2\sigma_f^2} \left( \left(\frac{\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0}\right)^2 - (2\sigma_f^2 \pi(t-t_0))^2 - 2\sigma_f^2 \alpha_0 + j2\sigma_f^2 2\pi f_0(t-t_0) - j2\sigma_f^2 \pi(t-t_0) \frac{2\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0} \right)} \\ \Leftrightarrow u(t) &= \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{\frac{\sigma_f^2}{2} \left(\frac{\alpha_0}{f_0}\right)^2 - 2\sigma_f^2 (\pi(t-t_0))^2 - \alpha_0 + j2\pi f_0(t-t_0) - j2\pi(t-t_0) \frac{\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0}} \\ \Leftrightarrow u(t) &= \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{-2\sigma_f^2 (\pi(t-t_0))^2 + j2\pi f_0 \left(1 - \frac{\sigma_f^2 \alpha_0}{(f_0)^2}\right) (t-t_0) + \frac{\sigma_f^2}{2} \left(\frac{\alpha_0}{f_0}\right)^2 - \alpha_0} \\ \Leftrightarrow u(t) &= \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{-2\sigma_f^2 (\pi(t-t_0))^2} e^{+j2\pi f_0 \left(1 - \frac{\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0^2}\right) (t-t_0)} e^{-\alpha_0 + \frac{\sigma_f^2}{2} \left(\frac{\alpha_0}{f_0}\right)^2} \\ \Leftrightarrow u(t) &= \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{-2\sigma_f^2 (\pi(t-t_0))^2} e^{+j2\pi f_0 \left(1 - \frac{\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0^2}\right) (t-t_0)} e^{-\alpha_0 \left(1 - \frac{\sigma_f^2 \alpha_0}{2f_0^2}\right)} \end{aligned} \quad (\text{G.13})$$

Composante : Gaussienne Périodique Atténuation

Au premier ordre :

$$u(t) \approx \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{-2\sigma_f^2 (\pi(t-t_0))^2} e^{+j2\pi f_0(t-t_0)} e^{-\alpha_0} \quad (\text{G.14})$$

Cela correspond bien au résultat attendu: atténuation de  $e^{-\alpha_0}$  d'un spectre centré en  $f_0$ .

## G.2.2 Atténuation quadratique

Comme dans le paragraphe précédent, l'atténuation vient pondérer un signal à enveloppe gaussienne. Le spectre d'un signal à enveloppe gaussienne centrée en  $f=f_0$ , atténué par une atténuation dépendant quadratiquement de la fréquence et sa formulation temporelle centrée en  $t=t_0$  sont liés par la transformée de Fourier :

$$u(f) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f-f_0}{\sigma_f}\right)^2} e^{-j2\pi f t_0} e^{-\alpha_0 \left(\frac{f}{f_0}\right)^2} \quad (\text{G.15})$$

$$\Leftrightarrow u(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} u(f) \cdot e^{+j2\pi f t} \cdot df = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f-f_0}{\sigma_f}\right)^2} e^{-\alpha_0 \left(\frac{f}{f_0}\right)^2} \cdot e^{+j2\pi f (t-t_0)} \cdot df$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{1}{2\sigma_f^2} + \frac{\alpha_0}{f_0^2}\right) f^2 + \left(\frac{f_0}{\sigma_f} + j2\pi(t-t_0)\right) f} \cdot df$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{1}{2\sigma_f^2} \left(1 + \frac{2\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0^2}\right) f^2 + \left(\frac{f_0}{\sigma_f} + j2\pi(t-t_0)\right) f} \cdot df$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{\frac{-1}{2\sigma_{fc}^2} f^2 + \left(\frac{f_0}{\sigma_f} + j2\pi(t-t_0)\right) f} \cdot df \quad \text{où } \sigma_{fc}^2 = \frac{\sigma_f^2}{1 + \frac{2\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0^2}} \quad (\text{G.16})$$

D'après les tables d'intégrales [G.6], l'intégrale (G.16) devient :

$$u(t) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_{fc}^2} e^{\frac{\sigma_{fc}^2}{2} \left(\frac{f_0}{\sigma_f} + j2\pi(t-t_0)\right)^2}$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_{fc}^2} e^{\frac{1}{2} \frac{\sigma_{fc}^2}{\sigma_f^2} \left(\frac{f_0}{\sigma_f} + j\sigma_f 2\pi(t-t_0)\right)^2}$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_{fc}^2} e^{\frac{1}{2} \frac{\sigma_{fc}^2}{\sigma_f^2} \left(\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2 - (\sigma_f 2\pi(t-t_0))^2 + j2\pi 2f_0(t-t_0)\right)}$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{\left(\frac{1}{2} \frac{\sigma_{fc}^2}{\sigma_f^2} - \frac{1}{2}\right) \left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_{fc}^2} e^{\frac{1}{2} \frac{\sigma_{fc}^2}{\sigma_f^2} \left(-(\sigma_f 2\pi(t-t_0))^2 + j2\pi 2f_0(t-t_0)\right)} \quad \text{où } \frac{\sigma_{fc}^2}{\sigma_f^2} = \frac{1}{1 + \frac{2\sigma_f^2 \alpha_0}{f_0^2}}$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{\left(\frac{1}{2} \frac{\sigma_{fc}^2}{\sigma_f^2} - \frac{1}{2}\right) \left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_{fc}^2} e^{\frac{1}{2} \frac{\sigma_{fc}^2}{\sigma_f^2} \left(-(\sigma_f 2\pi(t-t_0))^2 + j2\pi 2f_0(t-t_0)\right)}$$

$$\text{où } \frac{\sigma_{fc}^2}{\sigma_f^2} - 1 = \frac{1}{1 + 2\sigma_f^2\alpha_0/f_0^2} - \frac{1 + 2\sigma_f^2\alpha_0/f_0^2}{1 + 2\sigma_f^2\alpha_0/f_0^2} = \frac{-2\sigma_f^2\alpha_0/f_0^2}{1 + 2\sigma_f^2\alpha_0/f_0^2} = \frac{-2\sigma_f^2\alpha_0}{f_0^2 + 2\sigma_f^2\alpha_0}$$

$$\Leftrightarrow u(t) = e^{\frac{1}{2}\left(\frac{-2\sigma_f^2\alpha_0}{f_0^2 + 2\sigma_f^2\alpha_0}\right)\left(\frac{f_0}{\sigma_f}\right)^2} \sqrt{2\pi\sigma_{fc}^2} e^{\frac{1}{2}\left(-(\sigma_{fc}2\pi(t-t_0))^2 + j\frac{4\pi f_0(t-t_0)}{1 + 2\sigma_f^2\alpha_0/f_0^2}\right)}$$

$$\Leftrightarrow \boxed{u(t) = \sqrt{2\pi\sigma_{fc}^2} e^{-2\sigma_{fc}^2(\pi(t-t_0))^2} e^{j\frac{2\pi f_0(t-t_0)}{1 + 2\sigma_f^2\alpha_0/f_0^2}} e^{\frac{-\alpha_0}{1 + 2\sigma_f^2\alpha_0/f_0^2}}} \quad (\text{G.17})$$

Composante : Gaussienne Périodique Atténuation

Au premier ordre :

$$u(t) \approx \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{-2\sigma_f^2(\pi(t-t_0))^2} e^{+j2\pi f_0(t-t_0)} e^{-\alpha_0} \quad (\text{G.18})$$

### G.2.3 Atténuation en loi puissance

Dans le cas plus général, l'atténuation s'écrit sous forme d'une loi puissance. Ainsi, le spectre d'un signal à enveloppe gaussienne centrée en  $f = f_0$ , atténué par une atténuation dépendant de la fréquence selon une loi puissance et sa formulation temporelle centrée en  $t = t_0$  sont liés par la transformée de Fourier :

$$u(f) = e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{f-f_0}{\sigma_f}\right)^2} e^{-j2\pi f t_0} e^{-\alpha_0\left(\frac{f}{f_0}\right)^n} \quad (\text{G.19})$$

L'inconvénient d'une telle formulation est qu'elle ne possède pas de transformée de Fourier inverse analytique. On se propose donc de procéder par une identification de la loi puissance à une somme de contributions linéaire (équation (G.13)) et quadratique (équation (G.17)) :

$$e^{-\alpha_n\left(\frac{f}{f_0}\right)^n} \approx e^{-\alpha_1\left(\frac{f}{f_0}\right)^1 - \alpha_2\left(\frac{f}{f_0}\right)^2} \quad (\text{G.20})$$

$$\text{soit } \alpha_n\left(\frac{f}{f_0}\right)^n \approx \alpha_1\left(\frac{f}{f_0}\right) + \alpha_2\left(\frac{f}{f_0}\right)^2 \quad (\text{G.21})$$

#### G.2.3.1. Hypothèse 1 : $(\alpha_1, \alpha_2)$ connus

Fréquence caractéristique :  $f = f_0$

$$\Rightarrow \boxed{\alpha_n \approx \alpha_1 + \alpha_2} \quad (\text{G.22})$$

Facteur puissance :

$$\Leftrightarrow \alpha_n\left(\frac{f}{f_0}\right)^n \approx \alpha_1\left(\frac{f}{f_0}\right)\left(1 + \frac{\alpha_2}{\alpha_1}\left(\frac{f}{f_0}\right)\right)$$

$$\Leftrightarrow \ln \alpha_n + n \ln \left( \frac{f}{f_0} \right) \approx \ln \alpha_1 + \ln \left( \frac{f}{f_0} \right) + \ln \left( 1 + \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \left( \frac{f}{f_0} \right) \right)$$

$$\Leftrightarrow (n-1) \ln \left( \frac{f}{f_0} \right) \approx \ln \left( 1 + \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \left( \frac{f}{f_0} \right) \right) - \ln \left( \frac{\alpha_n}{\alpha_1} \right) \Leftrightarrow n \approx 1 + \frac{\ln \left( 1 + \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \left( \frac{f}{f_0} \right) \right) - \ln \left( \frac{\alpha_n}{\alpha_1} \right)}{\ln \left( \frac{f}{f_0} \right)}$$

$$\Leftrightarrow n \approx 1 + \frac{\ln \left( 1 + \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \left( \frac{f}{f_0} \right) \right) - \ln \left( \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\alpha_1} \right)}{\ln \left( \frac{f}{f_0} \right)}$$

Fréquences caractéristiques :  $f = x.f_0$ , avec  $x < 0$

$$\Leftrightarrow n \approx 1 + \frac{\ln \left( 1 + \frac{\alpha_2}{\alpha_1} x \right) - \ln \left( \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\alpha_1} \right)}{\ln(x)} \Leftrightarrow n \approx 1 - \frac{\ln \left( \frac{\alpha_1 + x\alpha_2}{\alpha_1} \right) - \ln \left( \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\alpha_1} \right)}{\ln(1/x)}$$

$$\Leftrightarrow n \approx 1 - \frac{\ln \left( \frac{\alpha_1 + x\alpha_2}{\alpha_1 + \alpha_2} \right)}{\ln(1/x)} \Leftrightarrow n \approx 2 - \frac{\ln \left( \frac{\alpha_1 + x\alpha_2}{\alpha_1 + \alpha_2} \right) + \ln(1/x)}{\ln(1/x)}$$

$$\Leftrightarrow n \approx 1 + \frac{\ln \left( \frac{\alpha_1 + x\alpha_2}{\alpha_1 + \alpha_2} \right)}{\ln(x)} \Leftrightarrow n \approx 2 - \frac{\ln \left( \frac{(1/x)\alpha_1 + \alpha_2}{\alpha_1 + \alpha_2} \right)}{\ln(1/x)}$$

### G.2.3.2. Hypothèse 2 : $(n, \alpha_n)$ connus

A partir de l'équation (G.21), on procède à une linéarisation, avec :  $0 < x < 2$  et

$$1 < n < 2.$$

soit  $\alpha_n x^{n-1} \approx \alpha_1 + x\alpha_2$  (G.23)

avec  $\alpha_n \approx \alpha_1 + \alpha_2$  en  $x = 1$ , à la fréquence caractéristique (équation (G.22)),

et  $\lim_{x \ll 1} \alpha_n x^{n-1} \approx \alpha_1$  ajustement linéaire suffisant,

et  $\lim_{x \gg 1} \alpha_n x^{n-2} \approx \alpha_2$  ajustement quadratique suffisant.

Ces trois conditions permettent d'ajuster au mieux les paramètres  $(\alpha_1, \alpha_2)$ , pour  $(n, \alpha_n)$  connus.

Plus particulièrement, pour un facteur puissance  $n \approx 1$  ou  $2$ , le couple de valeurs solutions est :

$$\begin{cases} \{\alpha_1, \alpha_2\} \approx \{\alpha_n, 0\} & \text{si } n \approx 1 \\ \{\alpha_1, \alpha_2\} \approx \{0, \alpha_n\} & \text{si } n \approx 2 \end{cases} \quad (\text{G.24})$$

Par extrapolation, on peut conjecturer que l'ajustement optimal va prendre la forme d'une loi de mélange fonction de  $g(n)$  de la forme suivante :

$$\alpha_n \approx (1 - g(n)) \cdot \alpha_1 + g(n) \cdot \alpha_2 \quad (\text{G.25})$$

avec une fonction  $g(n)$  évoluant de 0 à 1 lorsque  $n$  croît de 1 à 2.

Sur la base des équations (G.22), (G.23) et (G.25), on obtient :

$$(\alpha_1 + \alpha_2)x^{n-1} \approx \alpha_1 + x\alpha_2$$

$$\text{soit } \alpha_1(x^{n-1} - 1) \approx \alpha_2(x - x^{n-1}) \quad (\text{G.26})$$

En posant  $x = 1 + \varepsilon$ , et avec un développement limité de  $x^{n-1}$  au premier ordre, on obtient une expression de  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  en fonction de  $n$  au voisinage de  $x = 1$  :

$$\alpha_1(n-1)\varepsilon \approx \alpha_2((1+\varepsilon) - (1+(n-1)\varepsilon)) \approx \alpha_2(2-n)\varepsilon$$

$$\text{soit } (n-1)\alpha_1 \approx (2-n)\alpha_2 \quad (\text{G.27})$$

Par identification des équations (G.25) et (G.27), on montre que :  $g(n) = 2 - n$ .

Avec un développement limité de  $x^{n-1}$  au deuxième ordre, on obtient  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  en fonction de  $n$  au voisinage de  $x = 1$  :

$$\alpha_1 \left( (n-1)\varepsilon + \frac{(n-1)(n-2)}{2} \varepsilon^2 \right) \approx \alpha_2 \left( (1+\varepsilon) - \left( 1 + (n-1)\varepsilon + \frac{(n-1)(n-2)}{2} \varepsilon^2 \right) \right)$$

$$\text{d'où } \alpha_1(n-1) \left( 1 + \frac{(n-1)(n-2)}{2} \varepsilon \right) \approx \alpha_2(2-n) \left( 1 - \frac{n^2 - 3n + 2}{2(2-n)} \varepsilon \right) \quad (\text{G.28})$$

Comme l'illustre la Figure G.2, les expressions approchées obtenues (équation (G.28)) pour  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  sont en très bon accord avec celles exactes (équation (G.26)). De plus, ces expressions sont très proches de celles obtenues au premier ordre (équation (G.27)), illustrées par les diagonales (Figure G.2 (a) et (b)).

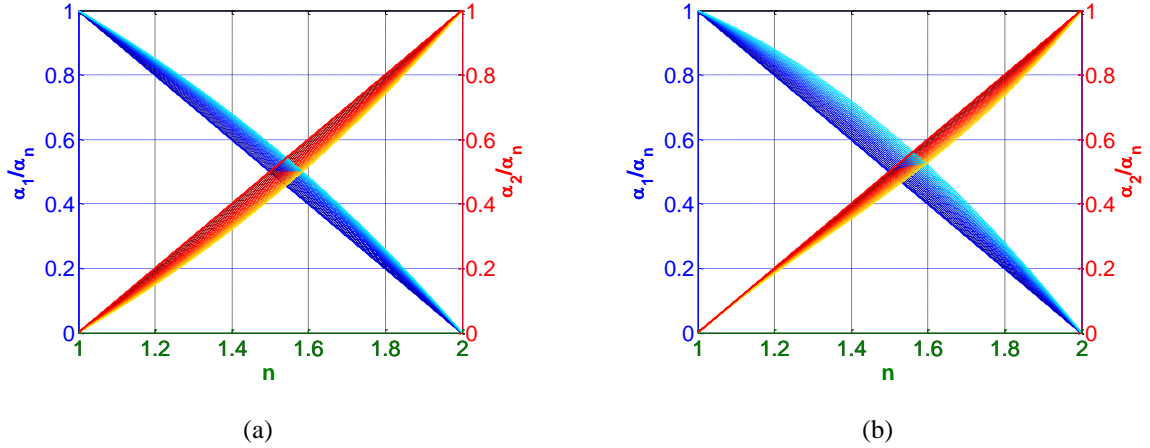


Figure G.2: Valeurs normalisées des paramètres ( $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$ ), en fonction de ( $n$ ,  $\alpha_n$ ) : (a) formulation exacte (équation (G.26)) et (b) au deuxième ordre (équation (G.28)), au voisinage de  $x = 1$ , avec  $x = 1 + \varepsilon$ , et  $-1 \leq \varepsilon \leq +1$ .

### G.3. Corrélation de signaux à enveloppe gaussienne atténuée

#### G.3.1 Signaux de référence

D'une façon générale, un signal à enveloppe gaussienne atténué par l'opérateur  $e^{+j2\pi f_0 \tau_{12}} e^{-\alpha_0 d}$  s'écrit :

$$s_1(t) = \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{-2\sigma_f^2(\pi(t-t_0))^2} e^{+j2\pi f_0(t-t_0)} \quad (\text{G.29})$$

et 
$$s_2(t) = \sqrt{2\pi\sigma_f^2} e^{-2\sigma_f^2(\pi(t-t_0-\tau_{12}))^2} e^{+j2\pi f_0(t-t_0-\tau_{12})} e^{-\alpha_0 d} \quad (\text{G.30})$$

Ces expressions constituent une écriture contractée au premier ordre des effets de l'atténuation, qu'elle soit linéaire (équation (G.14)) ou quadratique (équation (G.18)) avec la fréquence.

Dans le cas du signal périodique à enveloppe gaussienne, une écriture contractée se réduit à :

$$s_1(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{t,1}^2}} e^{\frac{-1}{2}\left(\frac{t-t_1}{\sigma_{t,1}}\right)^2} e^{+j2\pi f_0(t-t_1)} \quad (\text{G.31})$$

Après propagation dissipative, ce signal à enveloppe gaussienne est atténué et  $s_2(t)$  résulte de  $s_1(t)$  via la convolution par l'opérateur propagation  $e^{+jkd} e^{-\alpha_0 d}$  :

$$s_2(t) = s_1(t) * h(t) = s_1(t) * e^{+j2\pi f \tau_{12}} e^{-\alpha_0 d} \quad (\text{G.32})$$

soit 
$$s_2(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{t,2}^2}} e^{\frac{-1}{2}\left(\frac{t-t_2}{\sigma_{t,2}}\right)^2} e^{+j2\pi f_0(t-t_2)} e^{-\alpha_0 d} \quad (\text{G.33})$$

avec  $t_2 = t_1 + kd = t_1 + \tau_{12}$ .

### G.3.2 Corrélation

D'une façon générale, la corrélation entre deux signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$  s'écrit :

$$\boxed{cor_{s_1,s_2}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} s_1(\tau).s_2(t-\tau).d\tau} \quad (G.34)$$

Dans le cas où l'on s'intéresse aux enveloppes gaussiennes des deux signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ , notées respectivement  $e_1(t)$  et  $e_2(t)$ , on obtient :

$$cor_{e_1,e_2}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} e_1(\tau).e_2(t-\tau).d\tau \quad (G.35)$$

$$\Leftrightarrow \boxed{cor_{e_1,e_2}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi(\sigma_{t,1}^2 + \sigma_{t,2}^2)}} e^{\frac{-1}{2}\left(\frac{t-(t_1+t_2)}{\sqrt{\sigma_{t,1}^2 + \sigma_{t,2}^2}}\right)^2} e^{-\alpha_0 d}} \quad (G.36)$$

a) Dans le cas de l'auto-corrélation du signal  $s_1(t)$ , d'écart type  $\sigma_t$ , on obtient :

$$cor_{e_1,e_1}(t) = \frac{1}{\sqrt{2}\sqrt{2\pi\sigma_t^2}} e^{\frac{-1}{2}\left(\frac{t-2t_1}{\sqrt{2}\sigma_t}\right)^2}$$

b) Dans le cas de signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ , ayant le même écart type  $\sigma_t = \sigma_{t,1} = \sigma_{t,2}$ , on obtient :

$$cor_{e_1,e_2}(t) = \frac{1}{\sqrt{2}\sqrt{2\pi\sigma_t^2}} e^{\frac{-1}{2}\left(\frac{t-(t_1+t_2)}{\sqrt{2}\sigma_t}\right)^2} e^{-\alpha_0 d}$$

c) Pour deux signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ , caractérisés par un rapport d'écart type  $\sigma_t = \sigma_{t,1} = K.\sigma_{t,2}$ , on

a :

$$cor_{e_1,e_2}(t) = \frac{1}{\sqrt{1+K^2}\sqrt{2\pi\sigma_t^2}} e^{\frac{-1}{2}\left(\frac{t-(t_1+t_2)}{\sqrt{1+K^2}\sigma_t}\right)^2} e^{-\alpha_0 d}$$

Ainsi, le maximum de corrélation  $cor_{e_1,e_2,\max}$  normalisé par l'auto-corrélation  $cor_{e_1,e_1,\max}$  du signal de référence permet d'obtenir une estimation de l'atténuation  $\alpha_0$  caractéristique de la fonction de transfert entre les deux signaux :

$$cor_{e_1,e_2,\max} = \frac{e^{-\alpha_0 d}}{\sqrt{1+K^2}\sqrt{2\pi\sigma_t^2}} \quad \text{et} \quad cor_{e_1,e_1,\max} = \frac{1}{\sqrt{2}\sqrt{2\pi\sigma_t^2}},$$

soit  $\boxed{\alpha_0 = \frac{-1}{d} \ln\left(\frac{cor_{e_1,e_2,\max}}{cor_{e_1,e_1,\max}} \sqrt{\frac{2}{1+K^2}}\right)}$  (G.37)

On note les dates des maximums de corrélation  $t_{cor,e_1,e_2}$  et  $t_{cor,e_1,e_1}$  des fonctions de corrélation  $cor_{e_1,e_2}(t)$  et d'auto-corrélation  $cor_{e_1,e_1}(t)$ , respectivement. Ces estimations  $t_{cor,e_1,e_2}$  et  $t_{cor,e_1,e_1}$ ,

respectivement centrées en  $t_1 + t_2$  et en  $2.t_1$ , permettent de déduire le temps de vol [G.8, G.9] entre les signaux  $s_1(t)$  et  $s_2(t)$ . La vitesse associée peut alors être déduite :

$$c_{cor} = \frac{d}{\delta t_{cor}} = \frac{d}{t_{cor,e1,e2} - t_{cor,e1,e1}} \quad (G.38)$$

## G.4. Références

- [G.1] Billur Barshan and Birsal Ayrulu. «A comparison of four methods for accurate ultrasonic range estimation,» In *Proc. of 1st IEEE Balkan Conf. on Signal Processing, Communications, Circuits and Systems*, 2000.
- [G.2] Nacef Ghodhbane, Pierre Marechal, and Hugues Duflo. «Ultrasonic broadband characterization of a viscous liquid: Methods and perturbation factors,» *Ultrasonics*, n°56, pp. 308–317, 2015.
- [G.3] H. Guo. «A simple algorithm for fitting a gaussian function,» *IEEE Signal Processing Magazine*, n°28, pp. 134–137, 2011.
- [G.4] Mohammad R. Hoseini, Xiaodong Wang, and Ming J. Zuo. «Estimating ultrasonic time of flight using envelope and quasi maximum likelihood method for damage detection and assessment, » *Measurement*, n°45, pp. 2072–2080, 2012.
- [G.5] Yassin Labyed. «Optimization and Application of Ultrasound Attenuation Estimation Algorithms,» PhD thesis, Ames, IA, USA, 2010.
- [G.6] John. Liu, Murray R. Spiegel, and Murray R. Spiegel. «Mathematical handbook of formulas and tables,» 1999.
- [G.7] Zhenkun Lu. «Estimating time-of-flight of multi-superimposed ultrasonic echo signal through envelope, »In *Computational Intelligence and Communication Networks (CICN), 2014 International Conference on*, pages 300–303, 2014.
- [G.8] Noor Shafiza Mohd Tamim and Farid Ghani. «Hilbert transform of fft pruned cross correlation function for optimization in time delay estimation, » In *IEEE 9th Malaysia International Conference on Communications (MICC) - Kuala Lumpur, Malaysia*, 2009.
- [G.9] Noor Shafiza Mohd Tamim and Farid Ghani. «Techniques for optimization in time delay estimation from cross correlation function,» *Int J Eng Technol*, 10:69–75, 2010.



