



HAL
open science

Viscosimétrie ultrasonore ultra large bande

Med Abderrahmane Mograne

► **To cite this version:**

Med Abderrahmane Mograne. Viscosimétrie ultrasonore ultra large bande. Autre. Université Montpellier, 2018. Français. NNT : 2018MONT089 . tel-02139470

HAL Id: tel-02139470

<https://theses.hal.science/tel-02139470>

Submitted on 24 May 2019

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.

THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER

En Electronique

École doctorale I2S - Information, Structures, Systèmes

Unité de recherche – Institut d'Electronique et des Systèmes (IES)

VISCOSIMETRIE ULTRASONORE ULTRA LARGE BANDE

Présentée par Mohamed Abderrahmane MOGRANE
Le 22 Novembre 2018

Sous la direction de Didier LAUX et Jean-Yves FERRANDIS

Devant le jury composé de

André BIGAND, Maître de Conférences HDR. Université Littoral Côte d'Opale.

Emmanuel MOULIN, Professeur. Université Polytechnique. Hauts- de-France

Hugues DUFLO, Professeur. Université du Havre.

Christian SANCHEZ, Professeur. Université de Montpellier.

Jean-Yves FERRANDIS, Ingénieur de Recherche CNRS HDR. Université de Montpellier.

Didier LAUX, Maître de Conférences HDR. Université de Montpellier.

Rapporteur

Rapporteur

Président du jury

Examineur

Co-Directeur de thèse

Directeur de thèse



UNIVERSITÉ
DE MONTPELLIER

Résumé

Cette thèse a pour objectif d'instrumenter un contenant familial dans le domaine du biomédical et de la chimie (un tube à essai) avec des éléments piézoélectriques à ondes longitudinales (L) et d'implémenter, en les optimisant, diverses méthodes ultrasonores pour mesurer les viscosités rapidement, sans changer de banc de mesure et cela de quelques Hz à plusieurs dizaines de mégahertz au voisinage de la température ambiante. Grâce au système mis en place il est possible en quelques minutes de déterminer le comportement rhéologique du liquide étudié en mesurant sa viscosité de cisaillement. Par ailleurs, la gamme de viscosité atteinte est extrêmement large puisque les mesures sont possibles de quelques dizaines de mPa.s à plusieurs centaines de Pa.s. Enfin, au-delà de résultats quantitatifs en terme de viscosité, le banc de mesure peut être aussi utilisé pour suivre de façon qualitative des cinétiques de réaction (polymérisation par exemple).

VISCOSIMETRIE ULTRASONORE ULTRA LARGE BANDE

Mots-clés : *ultrasons, large bande fréquentielle, rhéologie, viscosité, chute de bille, ondes de volume, ondes guidées, tube à essais.*

Université de Montpellier.

Institut d'Electronique et des Systèmes.

UMR CNRS 5214.

Abstract

The main goal of this thesis is to set specific piezoelectric elements emitting longitudinal waves (L) on a well-known container in the field of biomedical and chemistry (a test tube) and to implement with some optimizations various ultrasonic methods to measure viscosities quickly, without changing the measurement bench. The measurement has to be done from a few Hz to several tens of megahertz around room temperature. Up to now it is possible to determine in a few minutes the rheological behavior of the liquid studied thanks to the evaluation of its shear viscosity. Furthermore, the viscosity range reached is extremely wide: the measurements are possible from a few tens of mPa.s to several hundreds of Pa.s. Finally, beyond quantitative results in terms of viscosity, the measurement bench can also be used to qualitatively monitor reactions (polymerization for example).

ULTRA LARGE BANDWIDTH ULTRASONIC VISCOMETRY

Key-words : *ultrasonic waves, large frequency bandwidth, rheology, viscosity, falling ball, bulk waves, guided waves, test tube.*

University of Montpellier.

Institut of Electronics and Systems.

UMR CNRS 5214.

Table des matières

INTRODUCTION GENERALE

CONTEXTE DE L'ETUDE

p 4

CHAPITRE 1

p 6

NOTIONS DE RHEOLOGIE, VISCOSIMETRIE ET ETAT DE L'ART

Introduction

1. Grandeurs et concepts fondamentaux de la rhéologie

1.1. Introduction de modules complexes

1.2. Les viscosités

1.2.1. Viscosité de cisaillement dynamique

1.2.2. Viscosité longitudinale et viscosité de volume

1.3. Courbe maîtresse, superposition temps-température

2. Eléments de rhéométrie

3. Viscosimétrie « classique »

3.1. Viscosimètres capillaires

3.2. Viscosimètres à chute de billes

3.3. Viscosimètres à roulement de billes

4. Rhéomètres ultrasonores

4.1. Modules rhéologiques et caractéristiques des ondes ultrasonores de volume

4.2. Méthodes utilisant des ondes longitudinales de volume

4.2.1. Méthode temporelle par indentation

4.2.2. Méthode spectrale SFAI

4.3. Méthodes utilisant des ondes de cisaillement

4.3.1. Approche par réflectométrie

4.3.2. Approches par méthodes résonnantes : TSM et Pavillons résonnants

4.3.3. Approches par ondes guidées

Conclusion

Références bibliographiques

Introduction**1. Eléments de théorie****1.1. Approche simplifiée en milieu infini****1.2. Approche en milieu confiné****2. Banc expérimental****2.1. Description générale, principe de la mesure et choix des billes****2.2. Caractérisation des transducteurs ultrasonores****3. Résultats expérimentaux****3.1. Validation de la correction des effets de bord****3.2. Mesures sur divers liquides transparents****3.2.1. Miel****3.2.2. Huiles silicone****3.3. Tests sur un liquide opaque non newtonien : le ketchup****3.4. Synthèse et discussion****Conclusion****Références bibliographiques****Introduction****1. Méthode de référence au laboratoire : l'indentation****1.1. Description de la méthode****1.2. Prise en compte des effets de diffraction****2. Méthode adaptée aux mesures sur tube à essai****2.1. Description générale de la méthode et traitement des signaux****2.1.1. Traitement A : double transformée de Fourier****2.1.2. Traitement B : méthode différentielle****2.2. Validation numérique des traitements du signal proposés****2.3. Protocole de mesure****3. Résultats expérimentaux****3.1. Validation de la méthode****3.1.1. Vitesse****3.1.2. Atténuation et viscosité longitudinale**

3.2. Premières courbes maîtresses

- 3.2.1. Glycérine
- 3.2.2. Miel
- 3.2.3. Huile V350
- 3.2.4. Huile Brookfield
- 3.2.5. Ketchup

Conclusion

Références bibliographiques

CHAPITRE 4

p 87

VISCOSIMETRIE ULTRASONORE UTILISANT DES ONDES GUIDEES

Introduction

1. Eléments de théorie dans les tubes infinis

- 1.1. Eléments succincts concernant la propagation dans les tubes infinis**
- 1.2. Etablissement d'une équation de propagation simplifiée**
- 1.3. Utilisation du logiciel Disperse et modification de la loi simple**
 - 1.3.1. Paramètres d'entrée
 - 1.3.2. Résultats

2. Approche expérimentale dans la gamme du MHz

- 2.1. Rappel des travaux déjà effectués au laboratoire sur tube**
- 2.2. Protocole expérimental et mesures sur tube à essais**
 - 2.2.1. Protocole et transducteurs spécifiques
 - 2.2.2. Etude du tube à essais vide
 - 2.2.3. Résultats sur la glycérine
 - 2.2.4. Résultats sur l'huile V350
 - 2.2.5. Résultats sur l'huile Brookfield
 - 2.2.6. Résultats sur du miel

3. Discussion. Accès aux fréquences voisines de quelques 10^{aines} de kHz

Conclusion

Références bibliographiques

CONCLUSION GENERALE - Perspectives

p 111

INTRODUCTION GENERALE

Contexte de l'étude

La connaissance des viscosités (de cisaillement η_s , longitudinale η_L et de volume η_B) ou plus généralement des modules viscoélastiques (G^* , M^* et K^*) sur la plus grande gamme de fréquences ou de taux de cisaillement possible est d'un point de vue scientifique d'un grand intérêt puisqu'elle permet indirectement d'obtenir des informations sur la microstructure du matériau analysé : longueur des chaînes de polymères, distances entre enchevêtrements, nature fractale... Cela permet d'obtenir en particulier les fréquences pour lesquelles par exemple $G' = G''$, fréquences qui marquent le début de transitions comme la transition sol-gel, les transitions α , β ... Par ailleurs, les viscosités sont des paramètres clé dans les domaines de l'agroalimentaire (optimisation des procédés de fabrication) et du biomédical (analyse du sang et des fluides biologiques) par exemple.

Pour mesurer la viscosité de cisaillement η_s (la plus connue, celle du rhéologue), on peut en pratique utiliser des viscosimètres rotatifs, capillaires, à chute de bille, à chute de cylindre ou des rhéomètres « Couette », « plan-plan », « cône-plan » en basse fréquence (jusqu'au kHz en faisant varier la température), des piézorhéomètres en transmission jusqu'à des fréquences voisines de 10 kHz, des systèmes vibratoires de 10 kHz à quelques centaines de kHz et des systèmes utilisant la propagation d'ondes ultrasonores de volume ou de surface (ondes de Love) pour les fréquences au-delà.

Pour mesurer la viscosité longitudinale η_L (souvent plus connue par le chimiste) on utilise la propagation d'ondes ultrasonores longitudinales hautes fréquences (MHz par exemple) et on estime la vitesse de propagation de ces ondes ainsi que leur atténuation. En utilisant cette viscosité et celle de cisaillement on peut déduire la viscosité de volume qui est parfois riche d'informations concernant la microstructure du système étudié. Le seul problème est que souvent on mesure η_L au MHz et η_s en basses fréquences. La déduction de η_B devient difficile pour les liquides non newtoniens à cause de la dépendance fréquentielle des viscosités. Il est donc clairement nécessaire de changer de banc de mesure pour chaque gamme de fréquence. Les chercheurs et industriels sont donc très souvent limités dans les mesures accessibles car ils ne disposent pas de tous les bancs expérimentaux. Les mesures sont généralement longues, fastidieuses et le volume d'échantillon à utiliser peut devenir important. Par ailleurs pour suivre des cinétiques il faut répéter l'expérience sur les divers bancs.

A notre connaissance aucun industriel et aucun laboratoire de recherche ne propose de système permettant de passer au-delà de ces contraintes.

Pour résoudre ces problèmes, l'objectif principal de ce travail de thèse est de mettre au point un banc de mesure unique dédié à la mesure des viscosités dans différentes gammes de fréquence. Il s'agit donc d'une spectroscopie ultrasonore ultra-large bande. Pour ce faire nous proposons d'instrumenter un contenant familier dans le domaine du biomédical et de la chimie (un tube à essais) avec des transducteurs piézoélectriques émettant des ondes longitudinales (L) et d'implémenter diverses méthodes ultrasonores pour mesurer les 3 viscosités ou les modules viscoélastiques

rapidement, sans changer de banc de mesure et cela de quelques Hz à plusieurs dizaines de MHz au voisinage de la température ambiante. Le choix des piézoélectriques longitudinaux a été dicté par le fait que, contrairement aux ondes de cisaillement, les ondes L se propagent sans trop d'atténuation et que le couplage transducteur/matériau à étudier est facile à réaliser, limitant ainsi les pertes d'insertion. Par ailleurs, la conception de transducteurs à ondes L est mieux maîtrisée et au laboratoire nous disposons de méthodes de sérigraphie très performantes qui devraient nous permettre, in fine de réaliser nos piézoélectriques sur mesure.

L'étude sera essentiellement focalisée sur les viscosités car théoriquement elles sont suffisantes pour déduire les modules complexes si elles sont connues sur de très larges gammes de fréquences. Par exemples si la viscosité de cisaillement est connue pour des fréquences ou des taux de cisaillement allant de 10^{-2} à environ 10^8 s^{-1} , la déduction du module de perte G'' est immédiate. Ensuite, l'application des relations de Kramers-Krönig permet ensuite de déduire G' .

Ce travail de thèse sera présenté en 4 chapitres.

Dans le chapitre 1 une synthèse bibliographique et des éléments de base concernant la viscosimétrie au sens large seront présentés. Même si la plupart des viscosimètres seront évoqués, nous focaliserons bien-sûr notre attention sur les méthodes développées dans la suite de ce manuscrit : viscosimétrie par ultrasons hautes fréquences, viscosimétrie par ondes guidées, viscosimétrie à chute d'objets...

C'est dans le chapitre 2 que la méthode de la « chute de bille » sera implémentée pour des taux de cisaillement faibles. Cette approche, très simple en milieu infini doit être modifiée en milieu confiné comme notre tube à essai. Ici la mesure n'est pas directement ultrasonore mais c'est la détection de la position de la bille qui chute, et donc sa vitesse de chute qui sera déterminée par rupture d'un faisceau ultrasonore. Après validation, la méthode sera testée sur divers matériaux transparents ou opaques.

Dans le chapitre 3 nous présenterons comment obtenir η_L en utilisant des ondes L de volume au voisinage de quelques MHz. Une première partie sera consacrée à l'étude d'une méthode spectrale que nous utilisons par ailleurs dans l'équipe pour caractériser des gaz. Cette approche conduira à l'estimation de la vitesse longitudinale V_L . Pour la mesure de l'atténuation longitudinale nous procéderons très simplement en exploitant directement les transformées de Fourier de signaux transmis dans un liquide de référence puis dans le liquide à étudier. Les résultats seront systématiquement comparés à une méthode de référence d'ores et déjà disponible au laboratoire : méthode dite « d'indentation ».

Le chapitre 4, quant à lui, sera consacré à l'utilisation d'ondes guidées dans les parois du tube à essais. Par une approche théorique simplifiée nous montrerons qu'il est possible de mesurer directement la viscosité de cisaillement dans la gamme des moyennes fréquences c'est-à-dire fréquences comprises entre quelques kHz et quelques dizaines de kHz par la mise en vibration du tube à essais complet. Nous montrerons que l'on peut aussi accéder à cette viscosité aux alentours du MHz en exploitant la propagation des ondes ultrasonores dans les parois du tube. Les calculs simplifiés réalisés dans le cadre de tubes infinis seront comparés aux résultats fournis par des simulations avec un logiciel commercial (Disperse) avant de passer à l'étude de liquides connus pour validation expérimentale : glycérine, miel, huiles silicone...

CHAPITRE 1

NOTIONS DE RHEOLOGIE, VISCOSIMETRIE ET ETAT DE L'ART



www.malvern.com

Introduction

1. Grandeurs et concepts fondamentaux de la rhéologie

1.1. Introduction de modules complexes

1.2. Les viscosités

1.2.1. Viscosité de cisaillement dynamique

1.2.2. Viscosité longitudinale et viscosité de volume

1.3. Courbe maîtresse, superposition temps-température

2. Eléments de rhéométrie

3. Viscosimétrie « classique »

3.1. Viscosimètres capillaires

3.2. Viscosimètres à chute de billes

3.3. Viscosimètres à roulement de billes

4. Rhéomètres ultrasonores

4.1. Modules rhéologiques et caractéristiques des ondes ultrasonores de volume

4.2. Méthodes utilisant des ondes longitudinales de volume

4.2.1. Méthode temporelle par indentation

4.2.2. Méthode spectrale SFAI

4.3. Méthodes utilisant des ondes de cisaillement

4.3.1. Approche par réflectométrie

4.3.2. Approches par méthodes résonnantes : TSM et Pavillons résonnants

4.3.3. Approches par ondes guidées

Conclusion

Références bibliographiques

Introduction

De façon très générale, la rhéologie s'intéresse à l'étude de la matière en écoulement. Les premiers travaux donnant naissance à la rhéologie moderne remontent aux XVII^e et XIX^e siècles avec Newton et Hooke [COUS-01]. Newton mit en évidence l'existence sans preuve d'une force de frottement lors de l'écoulement d'un fluide. Cette force résulte de la viscosité. Hooke mit en évidence le comportement élastique des solides avec une démonstration théorique. Au XIX^e siècle de nombreux scientifiques ont consacré leurs travaux aux matériaux et modèles complexes alliant, viscosité, élasticité et plasticité. Parmi eux nous trouvons Cauchy, Fourier, Poisson, qui contribuent largement au fondement de la base théorique dans la mécanique des milieux continus. On trouve aussi une hypothèse permettant de simplifier considérablement les choses, qui est hypothèse de Stokes pour l'écoulement qui porte son nom. Quant à lui, Poiseuille a largement étudié un autre écoulement appelé l'écoulement capillaire. Couette poursuivra ensuite les études de Poiseuille. Actuellement on parle souvent de Rhéophysique [COUS-13]. Dans ce cas, on tente de décrire l'écoulement de la matière par l'origine physique et physico-chimique de la matière à toutes les échelles.

Inversement, la détermination du comportement rhéologique d'un fluide sur une très large gamme de fréquences ou de taux de cisaillement permet d'obtenir des informations sur la structure interne de la matière. Ce genre d'approche, initiée par Pierre-Gilles De Gennes, prix Nobel 1991, est toujours d'actualité.

Dans les paragraphes qui suivent, nous donnons quelques notions et grandeurs fondamentales avant de nous intéresser aux diverses approches expérimentales permettant de les mesurer. Nous mettrons l'accent sur la rhéologie ultrasonore qui constitue le cœur de ce manuscrit.

1. Grandeurs et concepts fondamentaux de la rhéologie

1.1. Introduction de modules complexes

Comme nous l'avons signalé précédemment, la rhéologie est la science qui traite de l'écoulement de la matière. De par la complexité des écoulements au sens large, il est nécessaire de se placer dans des cas particuliers pour simplifier les problèmes. En rhéologie classique on choisit préférentiellement les écoulements laminaires sous contrainte de cisaillement. Ce choix simplifie considérablement l'approche théorique par rapport à la théorie de la mécanique des fluides (équations de Navier-Stokes). Cependant comme nous le verrons plus loin, on peut utiliser certaines approches par compression ou élongation.

Contrairement aux matériaux élastiques (qui retrouvent instantanément leur état si la sollicitation cesse), les matériaux analysés dans le cadre de la rhéologie (ou tout du moins dans le cadre de notre travail) sont viscoélastiques. Cela signifie que lorsque la sollicitation cesse, ils retrouvent leur état mais après un certain temps. Il existe donc un retard, un déphasage. Ce comportement retardé que l'on étudie lors d'expériences de fluage ou de relaxation est dû à l'existence de frottements qui s'opposent à la sollicitation. Pour traduire ces frottements on introduit une nouvelle grandeur : la viscosité. Ceci dit, nous verrons dans la suite qu'en réalité on peut définir plusieurs viscosités.

L'introduction de ces viscosités conduit à généraliser la notion de modules élastiques et à introduire des modules élastiques complexes que nous pouvons par exemple noter :

$$X_i^* = X_i' + jX_i'' \quad (I.1)$$

- La partie réelle (X_i') de ces modules représente la partie élastique du comportement.
- La partie imaginaire (X_i'') est directement liée à la viscosité, à la résistance à l'écoulement.

Remarque : cette démarche est tout à fait analogue à celle que l'on suit en électricité et en électronique lorsque l'on introduit des impédances complexes à la place de simples résistances réelles. Pour poursuivre cette analogie on peut par exemple remarquer qu'un condensateur a un certain temps de charge ou de décharge, ce qui introduit un retard et donc un déphasage entre l'entrée et la sortie du composant.

Selon le type de sollicitation, le module X_i' peut être (pour un matériau isotrope) :

- Le module de Young E qui traduit la capacité d'un matériau à s'allonger si on lui applique une contrainte de traction.
- Le module de cisaillement G qui traduit le lien entre une contrainte tangentielle et la déformation angulaire.
- Le module de compressibilité K qui quantifie le rapport entre une contrainte générée par une pression isostatique et la variation de volume qui en résulte.
- Le module M qui traduit le lien entre la contrainte induite par une onde longitudinale et la déformation résultante. Nous reviendrons longuement sur ce module plus loin dans le manuscrit.

Si maintenant on s'intéresse au comportement visqueux uniquement (comportement élastique nul), les modules précédemment définis sont qualifiés de modules visqueux ou de modules de perte. Quel que soit le module X_i'' , il est le produit d'une viscosité et d'une pulsation $\omega = 2\pi A$ où A s'exprime en s^{-1} . Nous verrons plus loin que cette grandeur A peut représenter la fréquence de sollicitation lors d'essais dynamiques ou représenter le taux de cisaillement que nous allons définir dans les paragraphes suivants.

Ainsi donc on écrira :

$$X_i'' = \omega \eta_i \quad (I.2)$$

Dans cette expression η_i s'exprime en Pa.s et représente la viscosité reliée au module X_i'' . Nous reviendrons sur ces différentes viscosités au paragraphe 1.2. Ainsi donc on parlera de viscosité de cisaillement si l'on parle du module G , de la viscosité longitudinale si l'on s'intéresse au module M , ...

Le tableau suivant donne les diverses relations entre les modules. Il est à noter que dans le tableau figure aussi le coefficient de Poisson ν . Ce coefficient est défini par le rapport entre la contraction transversale causée par un allongement axial.

	E^*, ν^*	E^*, G^*	M^*, G^*
K^*	$\frac{E^*}{3(1-2\nu^*)}$	$\frac{G^*E^*}{3(G^*-E^*)}$	$M^* - \frac{4G^*}{3}$
E^*	$\frac{E^*}{3(1-2\nu^*)}$	E^*	$\frac{G^*(3M^* - 4G^*)}{M^* - G^*}$
G^*	$\frac{E^*}{2(1+\nu^*)}$	G^*	G^*
M^*	$\frac{E^*(1-\nu^*)}{(1+\nu^*)(1-2\nu^*)}$	$\frac{G^*(4G^* - E^*)}{3G^* - E^*}$	M^*

Tableau I.1. Modules rhéologiques ou modules viscoélastiques.

Remarque : si le matériau est anisotrope, les coefficients du tenseur d'élasticité C_{ijkl} sont alors définis de façon complexe et notés C_{ijkl}^* .

1.2. Les viscosités [COUS-01]

1.2.1. Viscosité de cisaillement dynamique

Considérons un fluide confiné entre deux plaques parallèles plates de surface S , séparées par une distance e . Une force est appliquée sur la plaque supérieure, ce qui entraîne son déplacement à une vitesse V constante par rapport à la plaque inférieure qui est fixe, comme le montre la figure suivante.

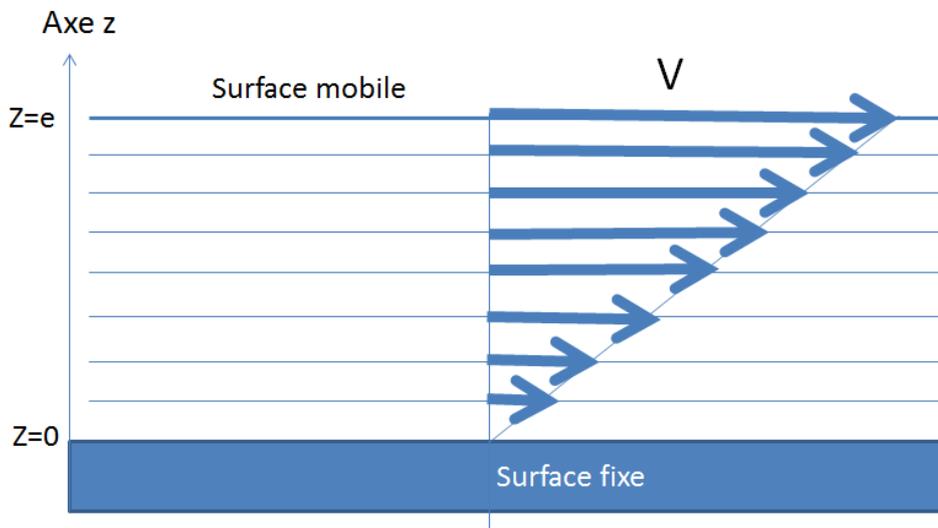


Figure I.1. Mouvement de cisaillement entre une plaque fixe et une mobile.

Sous l'effet du cisaillement, le matériau s'écoule en couches planes parallèles entre elles animées de vitesses différentes qui varient de 0 sur la surface fixe à V sur la surface mobile. On admet ici que le fluide suit totalement la paroi mobile sans glisser, ce que l'on nomme d'ailleurs l'hypothèse de non glissement à la paroi.

On définit alors $\dot{\gamma}$ le taux (ou vitesse) de cisaillement en s^{-1} comme le gradient des vitesses. On peut donc écrire $\dot{\gamma} = \frac{dV}{dz}$. On remarquera que ce taux est homogène à une fréquence. Ce taux de cisaillement est bien-sûr fonction de V mais surtout de l'épaisseur cisailée. Si cette épaisseur est très faible, le taux de cisaillement peut devenir très fort. C'est souvent le cas dans les méthodes utilisant des ondes ultrasonores transverses pour lesquelles les profondeurs de pénétration et donc les profondeurs cisillées sont de l'ordre de quelques μm .

Sous l'effet du cisaillement, des forces de frottement apparaissent entre les couches et s'exercent tangentiellement à la surface de ces couches. Si la résultante de ces forces est notée F on définit alors la contrainte de cisaillement (en Pa) de la façon suivante :

$$\tau = \frac{F}{S} \quad (I.3)$$

Enfin pour relier les deux grandeurs précédentes on introduit la viscosité dynamique du fluide cisailé η_s :

$$\tau = \eta_s(\dot{\gamma})\dot{\gamma} \quad (I.4)$$

Si l'on divise maintenant cette viscosité par la masse volumique ρ on définit alors la viscosité de cisaillement cinématique. Son unité est le $m^2.s^{-1}$.

Dans la relation I.4, la viscosité de cisaillement est notée $\eta_s(\dot{\gamma})$ car à priori elle peut dépendre du taux de cisaillement. Si elle est constante on parle de fluide newtonien. Si ce n'est pas le cas et si la viscosité évolue avec le taux de cisaillement, les rhéogrammes (graphes représentant τ en fonction de $\dot{\gamma}$) ne sont plus des droites et deviennent non linéaires.

Il existe principalement 3 rhéogrammes non linéaires typiques traduisant 3 comportements viscoélastiques rencontrés très fréquemment (*Figure I.2*):

- Comportement rhéofluidifiant (pseudo-plastique) : la viscosité diminue lorsque le taux de cisaillement augmente. Généralement la viscosité est constante à très faible taux de cisaillement (1^{er} plateau newtonien), puis chute brutalement avant de se re-stabiliser à fort taux de cisaillement (2^{ième} plateau newtonien). Le rhéogramme présente une concavité tournée vers le bas.

- Comportement rhéoépaississant (dilatant) : la viscosité augmente lorsque le taux de cisaillement augmente. Le fluide devient plus visqueux, plus difficile à étaler. La concavité du rhéogramme est tournée vers le haut.

- Comportement à seuil (plastique) : il est nécessaire d'atteindre une contrainte critique τ_c pour que le fluide commence à s'écouler. Ainsi au lieu de débiter au point (0,0), le rhéogramme débute au point (0, τ_c).

Remarque :

Il existe bien-sûr d'autres types de comportements comme par exemple la thixotropie qui correspond à une diminution de viscosité (au cours du temps) si le matériau est soumis à un cisaillement constant.

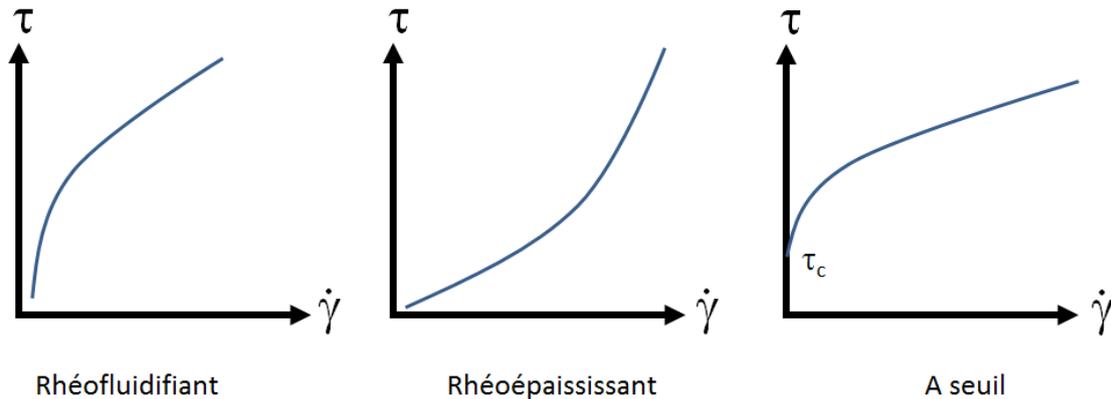


Figure 1.2. Rhéogrammes des 3 comportements les plus fréquemment rencontrés.

1.2.2. Viscosité longitudinale et viscosité de volume

Lorsqu'il s'agit d'une sollicitation longitudinale (uni-axiale) ce qui est le cas lorsqu'une onde ultrasonore longitudinale se propage dans le fluide, on introduit une nouvelle viscosité : la viscosité longitudinale [ANTL-13][DUKH-09] noté η_L . Nous montrerons comment la définir très simplement en considérant un facteur d'amortissement visqueux au paragraphe 4 lorsque nous présenterons les méthodes rhéologiques basées sur les ultrasons. Cette viscosité, moins étudiée que la viscosité de cisaillement est une combinaison linéaire de la viscosité de cisaillement et d'une autre viscosité : la viscosité de volume. Ceci n'est pas surprenant puisque l'on peut montrer qu'un mouvement longitudinal se décompose en un mouvement de cisaillement pur combiné avec une compression isostatique. A l'image de la relation qui relie les modules M , G et K (voir *Tableau 1.1*) :

$$M^* = K^* + \frac{4}{3}G^* \quad (I.5)$$

On peut écrire [DUKH-09] :

$$\eta_L = \eta_B + \frac{4}{3}\eta_S \quad (I.6)$$

où η_S est la viscosité de cisaillement dynamique, η_B est la viscosité volumique (bulk viscosity en anglais) et est généralement proportionnelle à η_S . Cette viscosité de volume,

qui apparaît dans l'équation de Navier-Stokes disparaît pour les fluides que l'on considère généralement incompressibles. Ainsi seule la viscosité de cisaillement reste. Si la compressibilité du fluide est prise en compte, on pose alors $\eta_B = \Delta \eta_S$. Le facteur Δ est généralement compris entre 1 et 3.

Par exemple, pour l'eau, Δ est d'environ 3 et est égal à 1 pour la glycérine. Il semble cependant que cette règle n'est pas universelle et que pour certains liquides spécifiques Δ puisse être supérieur. Ce sujet fait toujours l'objet de recherches actuellement [JU-10][ANTL-13].

La connaissance de cette viscosité de volume peut donner des informations sur la présence ou non de groupements moléculaires spécifiques par exemple dans les huiles [GLAD-85].

1.3. Courbe maitresse, superposition temps-température [FERR-80]

Il est particulièrement intéressant d'étudier le comportement d'un polymère en fonction de la température, de la fréquence de sollicitation [GASP-07] (avec des rhéomètres dynamiques qui imposent des mouvements oscillatoires à une certaine fréquence: cf partie suivante) ou en fonction de $\dot{\gamma}$ (avec les viscosimètres ou les rhéomètres utilisés en mode écoulement : « steady state » ou « flow test »). Les valeurs de viscosités mesurées par des tests en fréquence ou en $\dot{\gamma}$ sont identiques selon une loi empirique dite de Cox-Merz.

Empiriquement on se rend compte que l'étude en température est équivalente à une étude en fréquence. Ainsi étudier un polymère à très haute fréquence ou très fort taux de cisaillement revient à l'analyser en basse fréquence (en statique même) mais à très basse température.

Inversement, une étude en basse fréquence ou faible $\dot{\gamma}$ est identique à une étude à haute température. C'est ce que l'on nomme le principe de Superposition Temps-Température. On le désigne souvent par TTS pour : « Time-Temperature Superposition Principle » en anglais.

L'évolution des modules lors de grandes variations de température ou de fréquence ou de taux de cisaillement va permettre d'établir des courbes appelées courbes maitresses.

Pour la plupart des polymères on peut distinguer 4 zones (voir *Figure I.3*).

Ces régions sont :

- Zone 1 : plateau vitreux. En dessous de la température de transition vitreuse T_g le matériau passe à l'état vitreux (solide) avec un comportement élastique. Les parties imaginaires des modules peuvent être supposées nulles.
- Zone 2 : zone de transition vitreuse. C'est dans cette zone que les parties réelles des modules augmentent plus vite que les parties imaginaires lorsque l'on refroidit le polymère. Ainsi le polymère devient petit à petit plus élastique que visqueux. Dans cette

zone il existe une température particulière pour laquelle $G'=G''$. Cette température est souvent choisie comme le point de transition α .

- Zone 3 : plateau caoutchoutique. Dans cette zone les parties réelles et imaginaires (élasticité et viscosité) suivent la même tendance. La valeur des modules au niveau de ce plateau permet par exemple de calculer la masse en enchevêtrements pour les polymères dits enchevêtrés, c'est-à-dire que d'un point de vue microscopique les chaînes moléculaires se présentent comme « une pelote de laine ».

- Zone 4 : région terminale ou d'écoulement. Ce comportement est observé à des grandes températures. Le module G' devient très faible alors que le module G'' est bien supérieur. A la limite, $G'=0$ le polymère s'écoule comme un liquide purement visqueux puisque seul G'' est différent de zéro. Dans certains ouvrages, la zone 4 est divisée en deux parties : zone d'écoulement et zone terminale.

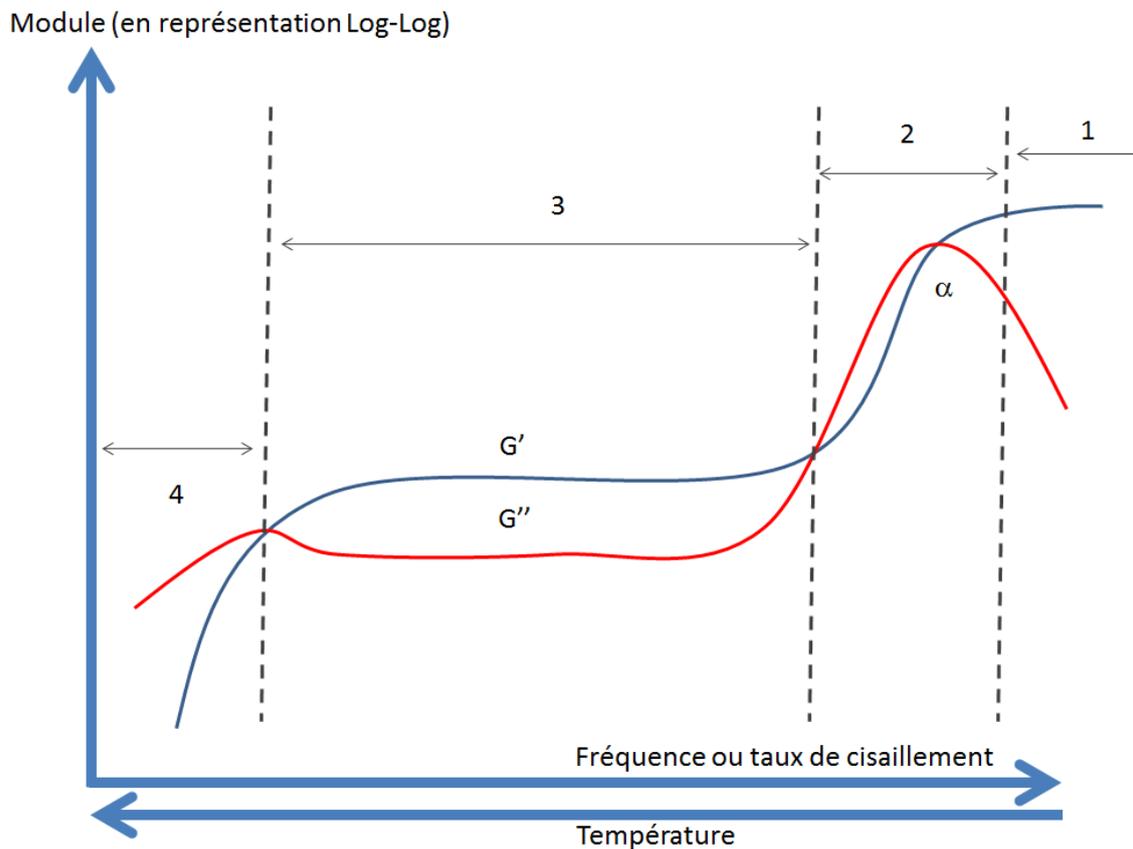


Figure 1.3. Allure schématique d'une courbe maitresse de polymère amorphe. Pour les polymères réticulés la zone 4 est absente. [CERE-10]

Pour construire ce type de courbe maitresse il faut donc balayer les fréquences ou les taux de cisaillement de 0 à l' ∞ ou réaliser une très grande excursion en température. Les deux approches sont généralement mises en échec faute d'appareil ultra large bande. On utilise alors la TTS de la façon suivante : on réalise de petites variations de fréquences ou de $\dot{\gamma}$ et cela pour diverses températures. Grâce à la TTS les courbes présenteront des zones de recouvrement. Ensuite il suffit de choisir une température de référence T_{ref} et

de faire glisser les autres courbes horizontalement pour construire la courbe maîtresse à la température de référence choisie mais sur une large gamme de fréquences (voir Figure I.4). La dépendance du facteur de glissement fréquentiel noté généralement $a(T \rightarrow T_{ref})$ en fonction de la température est généralement modélisée par un modèle de type Arrhenius qui permet de calculer une énergie d'activation ou WLF (Williams-Landel-Ferry) [CERE-10].

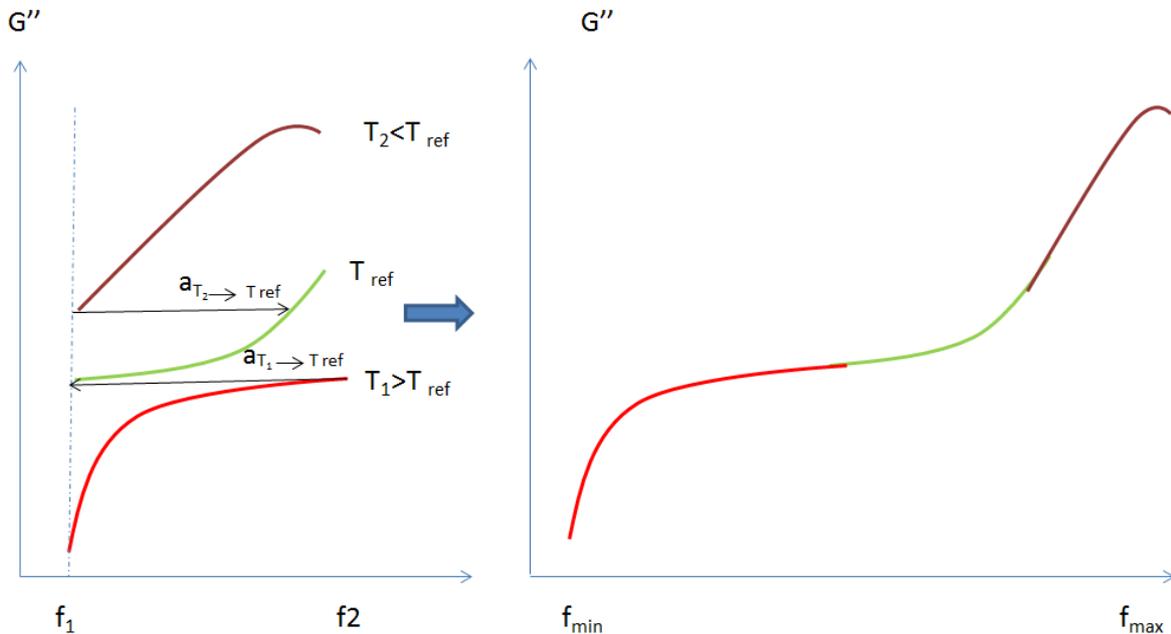


Figure I.4. Construction d'une courbe maîtresse à une température de référence.

Dans les paragraphes suivants nous allons donner quelques éléments concernant les approches expérimentales actuelles permettant d'évaluer les modules élastiques ainsi que les viscosités.

2. Éléments de rhéométrie

La rhéométrie a pour objectif principal de mesurer les propriétés rhéologiques de la matière à savoir la relation existant entre la contrainte et l'historique de déformation subi par la matière. De façon plus générale la rhéométrie s'attache à mesurer G' et G'' en fonction de la fréquence ou de la pulsation de sollicitation ω . La différence entre rhéométrie et viscosimétrie réside dans la contrainte appliquée. Dans le cas d'un rhéomètre on utilise plutôt une contrainte oscillante de pulsation $\omega = 2\pi f$. Au contraire, dans un viscosimètre la contrainte est permanente ou stationnaire. Les rhéomètres permettent d'accéder à G' , G'' mais aussi la viscosité de cisaillement complexe calculée à partir de G' et G'' de la façon suivante : $\eta^* = \eta' + j\eta''$ où les parties réelle et imaginaire sont exprimées ainsi [BARN-00] :

$$\eta' = \frac{G''}{\omega} \quad (I.7a)$$

$$\eta'' = \frac{G'}{\omega} \quad (I.7b)$$

Généralement et surtout en basse fréquence lorsque G' est très faible on s'intéresse surtout à $\eta' = G''/\omega$. Ainsi donc on définira la viscosité de cisaillement η_s de la façon suivante : $G^* = G' + j\omega\eta_s$ avec donc $\eta_s = G''/\omega$.

Comme nous l'avons signalé cette viscosité calculée s'identifie à celle mesurée en mode stationnaire ou écoulement, ce que peut d'ailleurs aussi faire le rhéomètre. Dans ce cas, au lieu d'imposer une oscillation au matériau, le rhéomètre impose un mouvement continu à $\dot{\gamma}$ donné ou encore à vitesse de rotation angulaire constante. Les rhéogrammes sont alors ensuite obtenus en faisant varier $\dot{\gamma}$ en fonction du temps.

Dans tous les cas, le rhéomètre impose une contrainte et mesure la déformation. A partir du déphasage mesuré entre contrainte et déformation et du rapport des amplitudes entre contrainte et déformation il est possible d'accéder à G' , G'' , η^* en mode oscillant ou à η_s en mode écoulement. Par exemple pour un matériau purement élastique il n'y a aucun déphasage.

Le matériau à étudier doit être maintenu dans une géométrie confinée, limitant ainsi l'influence de la gravité. Trois géométries différentes: plan-plan, Couette ou cylindres coaxiaux et cône-plan sont généralement rencontrées (Voir Figure I.5).

La géométrie Couette est bien adaptée pour les liquides très peu visqueux surtout si l'on utilise des formes plus évoluées dites à double gap. Les géométries plan-plan et cône plan sont plus adaptées pour les matériaux plus visqueux. Pour les géométries plan-plan et cône-plan, le matériau est donc confiné entre 2 plateaux de rayon r . Le plateau supérieur est mobile et peut être mis en rotation continue (mode écoulement ou steady state) ou en oscillation. Le plateau inférieur est fixe. L'avantage de la géométrie cône-plan est d'assurer un taux de cisaillement constant dans le plan x-y. En effet, près de l'axe de rotation la vitesse est plus faible mais la profondeur cisailée est plus faible aussi. A l'inverse loin de l'axe de rotation la vitesse est plus grande mais la zone cisailée est plus grande. Les taux de cisaillement ou fréquences accessibles par ces géométries sont de quelques Hz à 10^3 Hz.

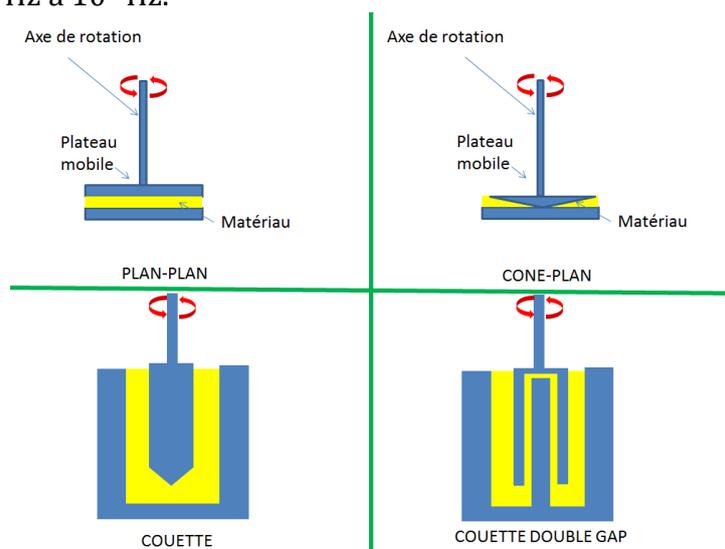


Figure I.5. Principales géométries des rhéomètres.

Remarque : en toute rigueur dans le rhéomètre Couette c'est le récipient qui tourne. Sur nos schémas on devrait parler de rhéomètre Searle. Nous avons conservé le terme Couette, plus connu en général.

3. Viscosimétrie « classique »

La viscosimétrie (voir *Figure 1.6*), quant à elle s'intéresse à mesurer seulement la viscosité directement sans mesurer G' et G'' . On retrouve bien-sûr le viscosimètre Couette simple ou double gap dans lequel le fonctionnement est le même qu'un rhéomètre Couette mais seul le mode écoulement (rotation continue) est disponible. En choisissant une gamme de variation de $\dot{\gamma}$ le viscosimètre trace le rhéogramme (contrainte de cisaillement τ en fonction de $\dot{\gamma}$) ainsi que pour chaque $\dot{\gamma}$, la valeur de viscosité qui rappelons le vaut $\tau / \dot{\gamma}$.



Figure 1.6. Viscosimètre RhéolabQC (Anton Paar, Autriche) disponible au laboratoire avec sa géométrie Couette simple et double gap.

Il existe ensuite de nombreux appareils plus simples, très précis, peu coûteux permettant de mesurer la viscosité instantanément. Nous donnons la description rapide de certains d'entre eux sans entrer dans les détails. Plus d'informations peuvent être trouvées dans l'ouvrage de Viswanath [VISW-89].

3.1. Viscosimètres capillaires

Dans ce type de viscosimètre, le liquide s'écoule à l'intérieur d'un tube cylindrique de faible section sous l'effet de la pesanteur. On détermine simplement le temps d'écoulement du liquide. La valeur de la viscosité est déduite via la loi de Poiseuille. On peut montrer que la viscosité est proportionnelle au temps d'écoulement. Il faut donc au préalable étalonner le système pour déterminer la constante de proportionnalité entre le temps et η_s .

Ce viscosimètre (voir *Figure 1.7*) offre des mesures rapides et assez précises sur des liquides newtoniens. Il est généralement utilisé pour les liquides faiblement visqueux qui sont généralement newtoniens à faible taux de cisaillement. Ils sont bien-sûr très peu utilisés pour les liquides fortement visqueux qui s'écoulent mal et peuvent contenir des bulles d'air... Par ailleurs entre deux mesures il faut nettoyer le tube capillaire ce qui s'avère délicat à forte viscosité. Il existe plusieurs variantes de ce type d'appareil. On

peut citer le viscosimètre d'Ostwald ou celui de Ubbelohde par exemple. On peut soi-même en concevoir une version simplifiée en utilisant directement un capillaire sur lequel on trace 2 repères de position.

Un des inconvénients est que suivant le diamètre du tube le taux de cisaillement n'est pas constant. On pourra juste estimer un $\dot{\gamma}$ moyen. Voilà pourquoi il est préférable d'utiliser le viscosimètre pour des liquides newtoniens. Si l'on veut ensuite faire varier ce $\dot{\gamma}$ moyen il faut changer le rayon du tube ce qui peut devenir fastidieux [WAZE-63]. Par ailleurs les calculs supposent que l'écoulement soit laminaire et non turbulent. Il faut donc choisir un tube dans lequel le temps d'écoulement est suffisamment long, typiquement une centaine de secondes pour un viscosimètre du commerce.



Figure 1.7. Exemple de viscosimètre capillaire (pour des travaux pratiques) avec régulation thermique (phywe.fr).

3.2. Viscosimètres à chute de billes

Pour ce type de viscosimètre (voir *Figure 1.8*), une bille est lâchée verticalement dans un tube rempli du liquide à étudier. La mesure de la vitesse de chute permet de déduire η_s .

Dans la littérature on trouve de nombreux auteurs qui ont travaillé sur la chute de bille pour caractériser des liquides. On peut citer Hoppler [GROS-13], Bridgam... Le premier à développer la théorie mathématique est Lorenz pour un cylindre. Il a proposé le principe d'un long tube étroit pour supprimer les effets finaux [ZENG-09].

La majorité des études se sont intéressées aux fluides newtoniens avec une instrumentation optique, la plus simple étant l'observation directe à l'œil. Plus

récemment nous pouvons citer Brizard qui a utilisé une camera CCD montée sur une platine de translation qui suit la position de la bille tout au long de sa chute [BRIZ-05].

On trouve aussi Gui, qui a utilisé le même principe mais en remplaçant la bille par un cylindre de diamètre proche de zéro [GUI-96]. On parle alors de viscosimètre à chute d'aiguille [SUZU-14].

Les viscosimètres cités précédemment sont généralement utilisés pour des fluides newtoniens, et leur inconvénient est de ne pas pouvoir étudier des liquides opaques puisque l'observation est optique. Dans la littérature on peut cependant citer Eguchi [EGUC-08] ou Mordant [MORD-00] qui se sont intéressés à cette problématique en concevant un viscosimètre ultrasonore à chute de bille basé soit sur une méthode de temps de vol soit sur une analyse Doppler. Nous reviendrons sur ces approches plus loin dans le manuscrit.

Sans rentrer dans les détails des calculs (qui restent très simples si l'on néglige les effets de bord, de bout...), on considère une sphère solide rigide, de rayon R , de diamètre d et de masse volumique ρ_B qui tombe sous l'effet de la gravité dans un liquide de masse volumique ρ_L et de viscosité dynamique de cisaillement η_S .

Les forces qui s'exercent sur la sphère sont la force de frottement du fluide ou force de Stokes ($-6\pi R\eta_S v$ où v est la vitesse de chute), la force gravitationnelle et la poussée d'Archimède. L'écriture du principe fondamental de la dynamique permet alors de montrer qu'au-delà d'un temps caractéristique généralement très court ($\ll 1$ s), la bille atteint une vitesse constant notée v_∞ valant :

$$v_\infty = \frac{d^2 g(\rho_B - \rho_L)}{18\eta_S} \quad (I.8)$$

On peut aussi calculer la contrainte de cisaillement

$$\tau = \frac{f_{Stokes}}{\pi d^2} = \eta_S \dot{\gamma} = \eta_S \left(\frac{3v_\infty}{d}\right) = \frac{gd(\rho_B - \rho_L)}{6} \quad (I.9)$$

Ainsi donc en choisissant plusieurs billes de diamètres différents il est possible de faire varier τ et pour chaque τ calculé avec (I.9) de mesurer η_S via l'estimation de v_∞ (relation I.8) [EGUC-08][TRAN-88]. Donc, $\dot{\gamma}$ est connu puisqu'il vaut τ/η_S . On peut alors tracer un rhéogramme ou η_S en fonction de $\dot{\gamma}$.

Comme pour le viscosimètre capillaire, un des inconvénients est que le taux de cisaillement n'est pas constant autour de la bille. On pourra juste estimer un $\dot{\gamma}$ moyen. Pour les fluides non newtoniens on aura donc accès à une viscosité apparente pour le $\dot{\gamma}$ moyen considéré. Ceci est cependant souvent suffisant pour avoir un très bon ordre de grandeur. En réalité ce calcul est conditionné par le fait que l'écoulement soit laminaire (nombre de Reynolds $= \frac{dv_\infty \rho_L}{\eta} \ll 1$), que la bille soit très petite pour limiter les effets de bords. Nous verrons plus loin dans ce manuscrit (Chapitre 2) que pour notre étude il a été nécessaire de prendre en compte de nombreuses corrections présentées dans la thèse de Brizard [BRIZ-05].



Figure 1.8. Exemple de viscosimètre à chute de bille (dédié aux travaux pratiques) avec régulation thermique (phywe.fr).

3.3. Viscosimètres à roulement de billes

Lorsque la viscosité du liquide est trop faible et que la vitesse de chute est trop grande on préfère utiliser une variante : le viscosimètre à bille roulante. Dans ce cas on utilise une bille qui roule dans un cylindre incliné et rempli du fluide à caractériser. Ce principe a été développé par Hubbard et Brown [HUBB-43]. Ce type de viscosimètre est connu sous le nom de viscosimètre de Hoppler ou sous le nom de Rolling ball viscometer. On peut montrer qu'ici encore dans les hypothèses d'écoulement laminaire, la viscosité est liée à la vitesse de déplacement de la bille de la façon suivante :

$$\eta_s = \frac{\Phi(\rho_B - \rho_L)}{v_\infty} \quad (\text{I.10})$$

Dans cette expression Φ est une constante propre au tube utilisé et à l'angle d'inclinaison du tube par rapport à l'horizontale. Les viscosimètres présentés précédemment permettent d'atteindre des taux de cisaillement assez faibles et ne donnent accès qu'à la viscosité de cisaillement. Par ailleurs pour les viscosimètres à bille, ils sont peu adaptés à l'étude de liquides opaques. Nous présentons dans le paragraphe 4 les rhéomètres ultrasonores qui permettent de palier certaines de ces difficultés : taux de cisaillement plus élevé, accès à G' , G'' , M' et M'' selon le type d'onde utilisée.

4. Rhéomètres ultrasonores

4.1. Modules rhéologiques et caractéristiques des ondes ultrasonores de volume

Lorsque des ondes mécaniques, telles que les ultrasons se propagent dans un matériau viscoélastique, elles sont soumises à une atténuation qui peut être très élevée pour les

ondes de cisaillement. Par exemple, pour les fréquences autour de 10 MHz, une onde de cisaillement ne se propage que sur quelques centaines de μm dans du miel autour de la température ambiante. Afin de prendre en compte cette atténuation, on écrit en général le nombre d'onde k comme un nombre complexe k^* comme suit :

$$k^* = \frac{\omega}{V} - j\alpha \quad (\text{I.11})$$

Remarque : ceci revient en fait à écrire l'onde propagative amortie sous forme : $\sim e^{-\alpha x} e^{j(\omega t - kx)}$ où $k = \omega/V$.

Dans cette expression, α est l'atténuation des ondes ultrasonores et ω la pulsation. V est la vitesse de l'onde mécanique. On définit alors un nombre d'onde complexe k^* et une vitesse complexe associée (V^*) avec l'aide de V (vitesse de l'onde) et α (atténuation de l'onde) :

$$k^* = \frac{\omega}{V^*} \quad (\text{I.12})$$

Ceci permet d'obtenir facilement :

$$V^* = \frac{V\omega^2}{\omega^2 + V^2\alpha^2} + j \frac{V^2\alpha\omega}{\omega^2 + V^2\alpha^2} \quad (\text{I.13})$$

Pour un solide élastique les modules E , G , M sont toujours définis comme proportionnels au produit d'une vitesse de propagation ultrasonore au carré, et de la masse volumique. Par exemple si l'onde ultrasonore est purement transverse (la déformation est donc une déformation de cisaillement comme le montre la *Figure I.9*) alors $G = \rho V_T^2$ où ρ est la masse volumique et V_T la célérité de l'ébranlement mécanique polarisé transversalement (onde de cisaillement) [BRUH-61].

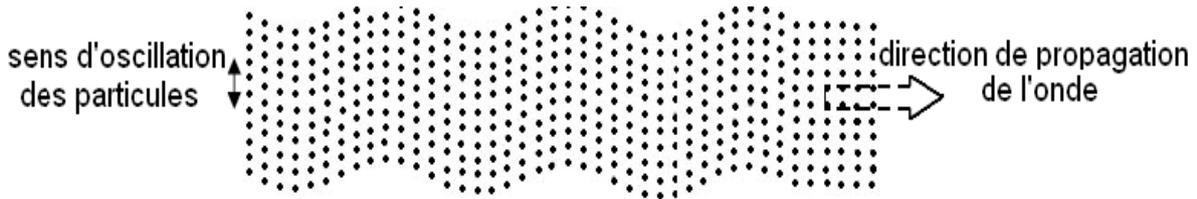


Figure I.9. Représentation de la propagation d'une onde acoustique ou ultrasonore polarisée transversalement.

Par analogie on définit le module de cisaillement complexe par : $G^* = \rho(V_T^*)^2$.

Alors G^* peut se mettre sous la forme suivante où α_T représente l'atténuation de l'onde de cisaillement lors de sa propagation :

$$G^* = G' + jG'' = \frac{\rho V_T^2}{\left[1 - j \frac{\alpha_T V_T}{\omega}\right]^2} \quad (\text{I.14})$$

Alors les expressions de G' et G'' deviennent [ETIE-02] :

$$G' = \rho V_T^2 \frac{1 - \left[\frac{\alpha_T V_T}{\omega} \right]^2}{\left[1 + \left(\frac{\alpha_T V_T}{\omega} \right)^2 \right]^2} \quad (\text{I.15a})$$

$$G'' = \rho V_T^2 \frac{2 \frac{\alpha_T V_T}{\omega}}{\left[1 + \left(\frac{\alpha_T V_T}{\omega} \right)^2 \right]^2} \quad (\text{I.15b})$$

De même, on définit le module $M^* = M' + jM'' = \rho(V_L^*)^2$ où cette fois V_L représente la vitesse de propagation d'ondes longitudinales (Figure I.10). Dans ce cas, la perturbation mécanique engendrée par l'onde est colinéaire à la direction de propagation. Si α_L désigne l'atténuation de cette onde longitudinale, alors :

$$M' = \rho V_L^2 \frac{1 - \left[\frac{\alpha_L V_L}{\omega} \right]^2}{\left[1 + \left(\frac{\alpha_L V_L}{\omega} \right)^2 \right]^2} \quad (\text{I.16a})$$

$$M'' = \rho V_L^2 \frac{2 \frac{\alpha_L V_L}{\omega}}{\left[1 + \left(\frac{\alpha_L V_L}{\omega} \right)^2 \right]^2} \quad (\text{I.16b})$$

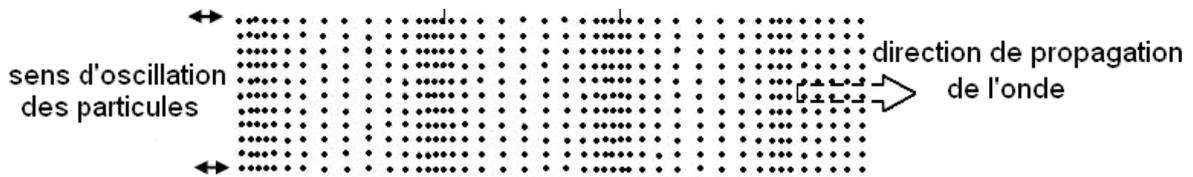


Figure I.10. Représentation de la propagation d'une onde acoustique ou ultrasonore polarisée longitudinalement.

Ainsi donc, à priori, via la mesure des couple (V_T , α_T) et (V_L , α_L) on peut déduire G^* et M^* en hautes fréquences avec des ultrasons excitant la matière en cisaillement ou longitudinalement [ALIG-00][MASO-64]. On peut donc penser qu'en générant une onde ultrasonore et en la faisant traverser une certaine épaisseur de matière (méthode des temps de vol) on déduira les modules complexes à partir de la mesure de son temps de parcours et de sa variation d'amplitude.

En réalité cette approche est totalement impossible dans la plupart des cas pour les ondes de cisaillement, la distance de propagation étant trop faible, l'atténuation étant trop forte. A notre connaissance pour les liquides, peu d'appareils en transmission utilisant directement des ondes transverses ont été développés. On peut citer le banc expérimental de P. Martinoty. Ce piézorhéomètre fonctionnant dans la gamme 10^{-2} - 10^4 Hz utilise directement les contraintes et déformations de piézoélectriques en mode transmission et ne mesure donc pas les couples (vitesse, atténuation) [MARTI-06]. Par

ailleurs, très récemment, on trouve aussi dans la littérature des mesures utilisant des cales très fines permettant des distances de propagation contrôlées très faibles [LEFE-18].

La méthode des temps de vol en ondes transverses demeure toutefois applicable pour les polymères à l'état solide à l'ambiante (Téflon, PMMA...). C'est pourquoi en mode cisaillement on préfère utiliser une autre approche basée sur la réflexion des ondes de cisaillement à l'interface (milieu élastique) / (solide viscoélastique). Cette approche sera présentée au paragraphe 4.3.

A contrario, lorsque les ondes utilisées sont les ondes longitudinales, l'atténuation est plus faible et la mesure de V_L et α_L est possible. Dans ce cas on peut déterminer la viscosité longitudinale définie à partir de M'' (par analogie avec la viscosité de cisaillement) comme :

$$\eta_L = \frac{M''}{\omega} \quad (\text{I.17})$$

Dans la plupart des cas, le facteur $(\alpha_L V_L / \omega)$ est très faible devant 1. Les relations (I.16b) et (I.17) conduisent à :

$$\eta_L = \frac{2\alpha_L \rho V_L^3}{\omega^2} \quad (\text{I.18})$$

Pour obtenir des valeurs précises de la vitesse et de l'atténuation il est très important de se doter de méthodes expérimentales fiables et rigoureuses. Dans les 2 paragraphes suivant nous présentons rapidement deux approches. La première, développée à l'IES utilise une mesure dans le domaine temporel. Elle a permis d'obtenir de nombreux résultats sur des jus de fruits, de l'eau de coco, des huiles [LAUX-09][LAUX-11][LAUX-13][LAUX-14a][LAUX-14b][ALOU-16]. La seconde, elle, utilise une approche spectrale directe. Nous reviendrons sur cette dernière au chapitre 3.

Remarque : la relation (I.18) montre donc que l'absorption ultrasonore est fonction du carré de la fréquence si la viscosité est constante. Ce n'est pas toujours le cas et il est parfois nécessaire d'utiliser des modèles plus complexes introduisant des exposants fractionnaires [ALOU-18].

4.2. Méthodes utilisant des ondes longitudinales de volume

4.2.1. Méthode temporelle par indentation [LAUX-14b]

Cette approche permet de mesurer à la fois la vitesse et l'atténuation ultrasonore. Le principe de mesure consiste à utiliser un transducteur ultrasonore plan large bande qui génère dans le liquide à étudier une onde longitudinale. Ce signal, réfléchi sur le fond du récipient contenant le liquide constitue l'écho à traiter. Ensuite, avec un moteur micrométrique pas à pas, la distance (transducteur, fond du récipient) est réduite. A chaque distance, l'écho est acquis via une interface USB/GPIB.

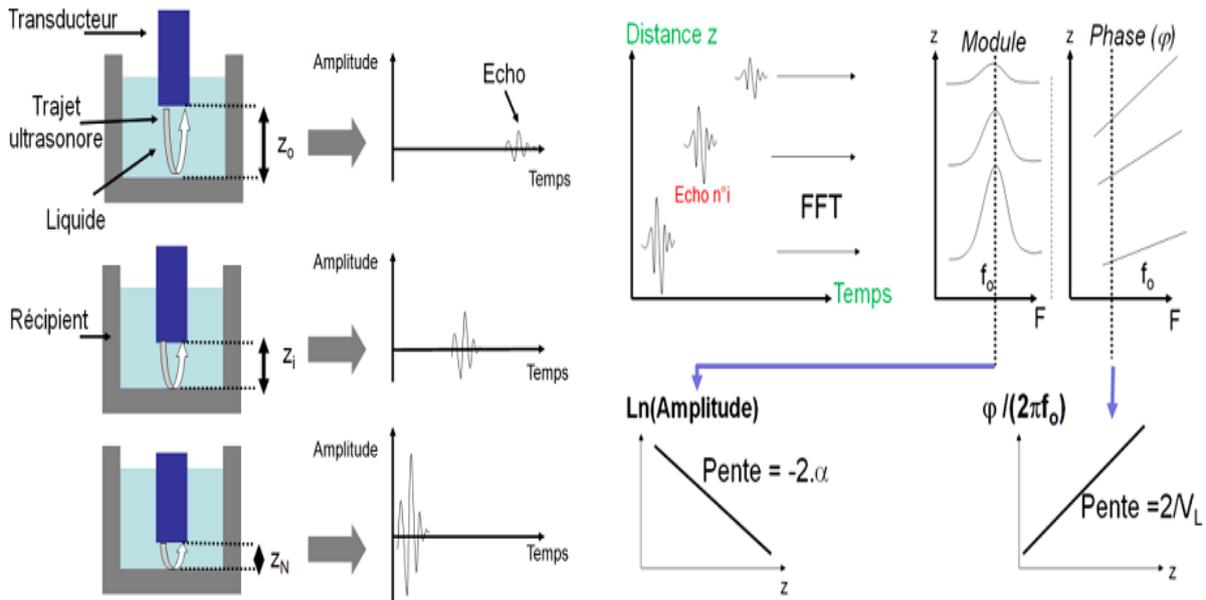


Figure 1.11 : principe de la viscosimétrie longitudinale par « indentation » [LAUX-14b].

A la fin de l'expérience (voir Figure 1.11), on obtient donc un certain nombre d'échos correspondant à n distances entre le capteur et le fond du récipient. Comme la distance est réduite au cours de chaque étape de la mesure, le temps de vol (temps nécessaire à la propagation dans le liquide) des échos successifs a également été réduit. En outre, l'amplitude des échos a augmenté lors de l'expérience, car la distance est réduite et le signal ultrasonore s'est propagé sur une distance de plus en plus petite dans le liquide viscoélastique.

D'un point de vue pratique, des fréquences assez élevées sont utilisées pour limiter les pertes par diffraction dues au fait que le transducteur n'est pas de taille infinie. Cependant, si les pertes par diffraction sont non négligeables un protocole permet de les prendre en compte [LEVE-07].

Un traitement du signal par transformée de Fourier est ensuite utilisé pour extraire la vitesse ultrasonore et l'atténuation en fonction de la fréquence :

- Dans un premier temps, la transformée de Fourier rapide (FFT) en module et phase de chaque écho acquis est effectuée. Des étapes préliminaires de suppression d'échos d'allers-retours sont parfois nécessaires et non détaillées ici.
- Pour chaque fréquence le logarithme du module de la FFT est tracé. Ceci conduit à l'atténuation α du signal ultrasonore en fonction de la fréquence. Ensuite, la vitesse est également évaluée en fonction de la fréquence en utilisant la phase de la FFT à chaque fréquence.
- Ensuite la viscosité longitudinale η_L peut être calculée pour chaque fréquence de la bande passante du capteur. Ceci permet de voir en particulier si la viscosité évolue en fonction de la fréquence. On peut aussi tracer α en fonction de $(2\pi^2 f^2)/(\rho V_L^3)$. Si le

matériau est newtonien ou si la viscosité évolue peu sur la bande passante, une droite de pente η_L est obtenue (voir relation I.18).

Le temps nécessaire pour effectuer la mesure et le traitement du signal est d'environ 2 minutes et donc, cette approche est très intéressante pour traiter un grand nombre d'échantillons ou des échantillons qui peuvent rapidement évoluer.

4.2.2. Méthode Spectrale SFAI

Dans une méthode expérimentale qu'il nomme Swept-Frequency Acoustic Interferometry, Sinha utilise en fait une adaptation en hautes fréquences de la méthode très ancienne du tube de Kundt. Il dispose deux transducteurs piézoélectriques à ondes longitudinales de part et d'autre d'une cuve centimétrique. L'un est donc émetteur, l'autre récepteur. L'utilisation d'un générateur de fonctions permet d'imposer à l'émetteur un signal de fréquence variable au cours du temps (signal de type « Chirp ») ce qui permet de couvrir une large gamme fréquentielle en un minimum de temps. L'analyse fréquentielle du signal reçu par le récepteur est faite grâce à un analyseur de spectre. Du fait de l'excitation continue du système, des ondes stationnaires sont créées d'une part dans le liquide à analyser mais aussi dans les parois de la cuve. Il est possible de montrer que le signal fréquentiel obtenu présente une périodicité due à la mise en résonance du liquide (Δf_L) et une périodicité due à la résonance de la cuve (Wall Peak) (voir *Figure I.12*). Grâce à la mesure de Δf_L la vitesse V_L des ultrasons dans le liquide est obtenue. Par ailleurs le tracé de δf_L (largeur des pics à mi-hauteur) en fonction de f permet d'obtenir une évaluation de α_L . Par ailleurs une estimation de la masse volumique est obtenue. Il devient alors simple de calculer η_L .

Nous reviendrons sur cette approche au chapitre 3 et nous présenterons une méthode alternative d'excitation et de traitement du signal qui permettra de travailler à la fois dans le domaine fréquentiel et temporel.

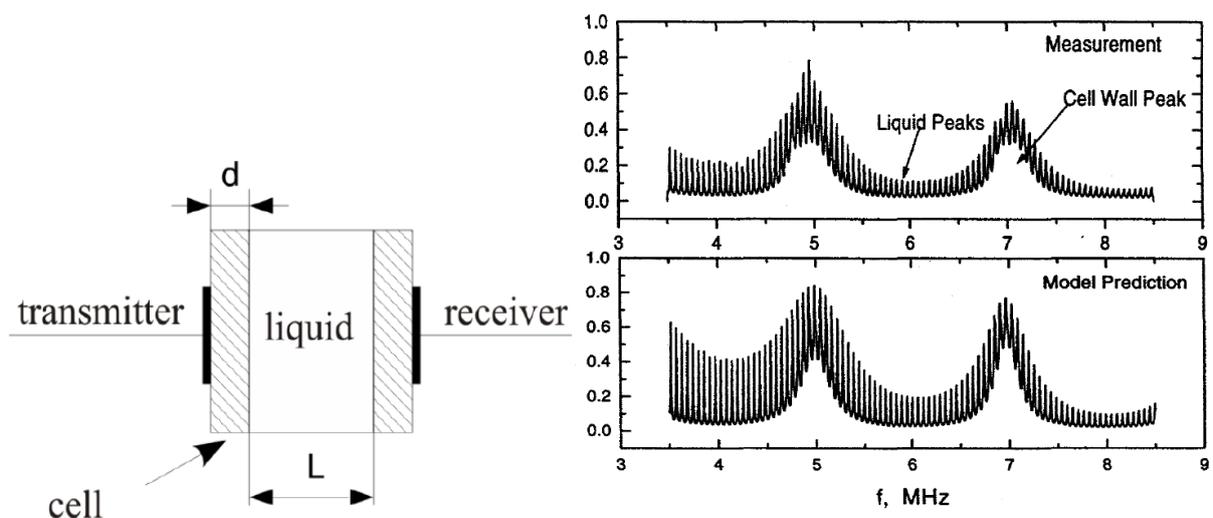


Figure I.12. Principe de mesure de la méthode SFAI et spectre typique acquis [BLAH-10][SINH-01].

4.3. Méthodes utilisant des ondes de cisaillement

4.3.1. Approche par réflectométrie

Il existe une autre technique variante de la technique échographique. Cette technique est la réflectométrie proposée par O'Neil et Mason [MASO-49] en 1949. Dans cette technique on détermine l'impédance acoustique caractéristique du milieu à partir du module et de la phase du coefficient de réflexion à une interface matériau élastique / liquide viscoélastique. La méthode repose sur l'analyse des échos ultrasonores (générées par un piézoélectrique à ondes de cisaillement) ayant parcouru plusieurs aller-retours dans le matériau élastique en se réfléchissant de multiples fois à l'interface visqueuse. A chaque réflexion l'écho subit une perte d'amplitude et un déphasage à cause de la viscosité. Ceci se traduit par un coefficient de réflexion complexe. La mesure de son module et de sa phase permet ensuite d'évaluer G' et G'' .

On trouve deux configurations possibles dans cette technique : incidence normale et oblique. Il a été prouvé que l'incidence oblique est cinq fois plus sensible que l'incidence normale. En revanche l'effet de diffraction est moins important dans l'incidence normale. Cette technique ne nécessite pas la propagation d'onde dans le milieu à caractériser et permet donc de s'affranchir de l'atténuation.

Cette méthode utilisée depuis longtemps dans la littérature a permis récemment au sein de l'équipe M²A de l'IES de confirmer le comportement newtonien de la glycérine même à très haute fréquence (*Figure I.13*) [LAUX-14b], de caractériser des relaxations α dans des polymères enchevêtrés ou de faire une étude rhéologique de gouttes de sang en cours de séchage [LAUX-11][LAUX-16]. Il faut cependant signaler que la méthode n'est applicable que pour des fréquences élevées (> MHz) et reste délicate à mettre en œuvre car les déphasages à mesurer sont extrêmement faibles. Dans de nombreux cas, la détermination précise de G' et G'' reste impossible. Enfin la conception de transducteurs à ondes purement transverses reste assez complexe. C'est la raison pour laquelle on préfère souvent utiliser des ondes longitudinales.

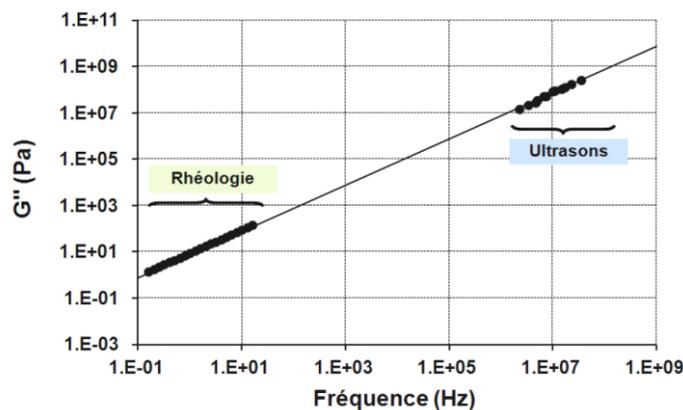


Figure I.13. Evolution de G'' pour de la glycérine en utilisant d'une part un rhéomètre et d'autre par la réflectométrie ultrasonore [LAUX-14b]. Dans les deux cas la température a été modifiée et la superposition Temps-Température a été utilisée.

4.3.2. Approche par méthodes résonantes : TSM et Pavillons Résonnants

Le principe général de toutes ces approches consiste à modifier les conditions aux limites d'un système vibrant en cisaillement en le chargeant avec un matériau. La charge additionnelle décale la fréquence de résonance propre du système. Par ailleurs par rapport au système non chargé, le pic de résonance s'élargit et voit son amplitude diminuer. L'analyse du shift en fréquence et de la variation d'amplitude permet de mesurer certains paramètres physiques du milieu analysé.

Historiquement la première application de ces méthodes est la QCM (Quartz micro-balance). Un quartz vibrant en cisaillement est chargé par une certaine masse. Le shift fréquentiel permet de mesurer précisément la masse additionnelle. Les applications sont, par exemple les détections de polluants, la mesure de masses de couches...

Pour la caractérisation des propriétés viscoélastiques, on utilise le même principe (quartz ou plus généralement transducteurs piézoélectriques vibrant en mode de cisaillement) et l'on charge le quartz par un matériau viscoélastique. La méthode s'appelle alors la méthode TSM (Thickness Shear Method). Le résonateur TSM est constitué d'une fine tranche de quartz avec des électrodes en métal déposés sur les deux faces. Même s'il est possible de modéliser mécaniquement le résonateur avec l'approche physique de Mason, la plupart des auteurs choisissent d'utiliser un circuit électrique équivalent. La résonance du quartz à vide est modélisée par un circuit résonnant RLC. Une capacité statique placée en parallèle avec ce résonateur complète le modèle du quartz à vide. Une fois que les paramètres du circuit sont déterminés (système à vide) le matériau viscoélastique est pris en compte via l'ajout en série d'une impédance électrique complexe. L'ajustement de la nouvelle courbe de résonance en modifiant l'impédance électrique additionnelle permet de remonter à G' et G'' . Les gammes couvertes par cette approche sont typiquement du MHz à quelques dizaines de MHz.

Au lieu d'utiliser un quartz et de le faire vibrer à sa fréquence propre, il est aussi possible d'utiliser des transducteurs piézoélectriques longitudinaux qui vont jouer le rôle d'excitateur dans une structure de forme définie : lame, cylindre... On parle parfois de pavillon résonant. Dans ce cas, la fréquence d'étude n'est plus celle du piézoélectrique mais la fréquence propre fondamentale de la lame, du cylindre... Cette fréquence est essentiellement fonction des dimensions. Ici encore l'objectif est de faire vibrer le système à vide, de le charger avec le matériau visqueux et d'extraire les modules rhéologiques à partir de la comparaison des courbes de résonance. Pour extraire G' et G'' il est nécessaire que le système vibre dans un mode de cisaillement pur. Historiquement c'est Roth [ROTH-53] qui a proposé d'exciter une lame avec un transducteur magnétostrictif vibrant en mode longitudinal pour générer des ondes de cisaillement dans le liquide (*Figure 1.14*). Le mode purement transverse n'existe qu'à très basse fréquence (quelques kHz) surtout si l'on utilise des lames centimétriques avec une épaisseur voisine du mm. Il est assez difficile de travailler à des fréquences élevées pour des raisons de fragilité des lames.

Cette approche a été reprise plus récemment par Cereser Camara à l'IES pour des fréquences de 13, 25 et 57 kHz [CERE-10] (*Figure 1.15*).

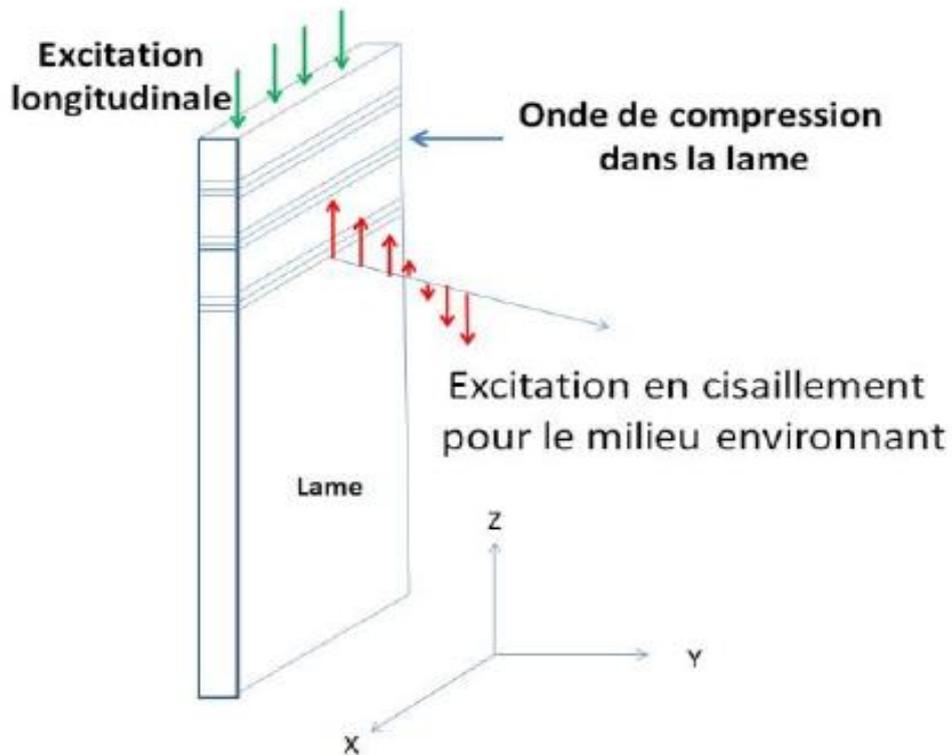


Figure I.14. Excitation transverse du matériau par excitation longitudinale d'une lame mince [LAUX-14b].

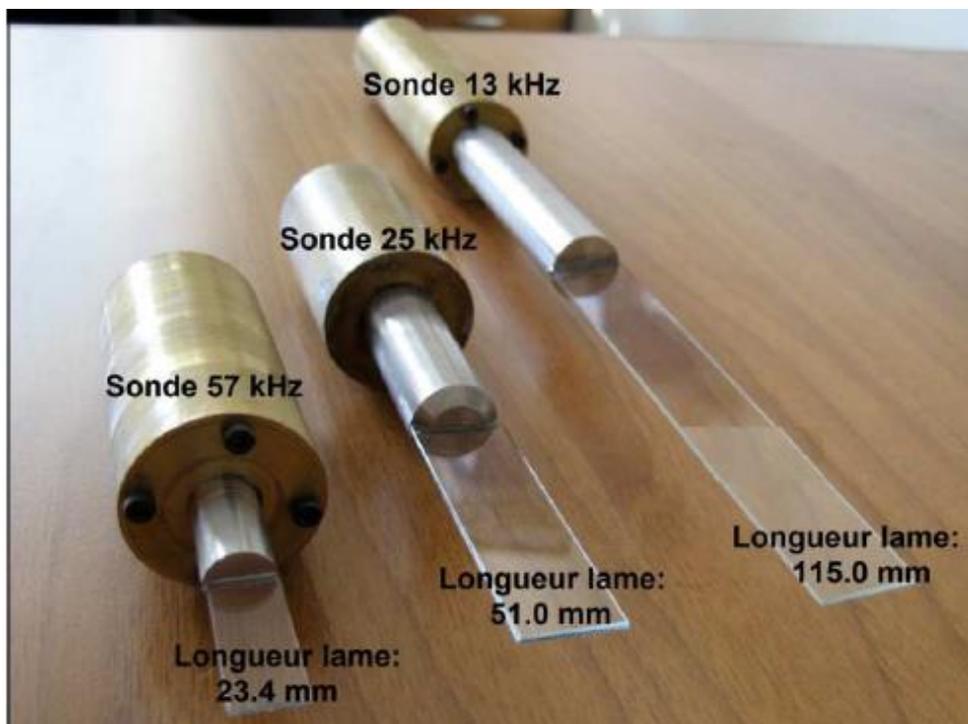


Figure I.15. Photographies de lames vibrantes [CERE-10].

4.3.3. Approches par ondes guidées

La terminologie « approches par ondes guidées » est très générale et regroupe toutes les méthodes qui confinent une onde de polarisation donnée dans un milieu de dimensions réduites (inférieures à la longueur d'onde). On peut citer les méthodes à ondes de Lamb, à ondes de Sezawa, de Rayleigh... Contrairement aux méthodes résonnantes où l'excitation est continue et excite les modes propres, dans les approches à ondes guidées, l'excitation est assurée par un pulse. La mesure de la vitesse de ce pulse en fonction de la fréquence permet ensuite de tracer les courbes de dispersion de la structure [GAZI-59]. Ainsi donc, contrairement aux méthodes résonnantes qui donnent des informations pour les premières fréquences de résonance de la structure analysée, les méthodes par ondes guidées peuvent théoriquement donner de l'information sur la bande passante du pulse d'excitation.

Elles sont généralement utilisées pour des fréquences supérieures au MHz. Ici encore pour relier l'atténuation des ondes à la viscosité de cisaillement par exemple il faudra essayer de générer à haute fréquences des modes de propagation proches d'une onde transverse. Dans la littérature des ondes de type SH (Shear Horizontal) comme les ondes de Love sont souvent utilisées mais nécessitent l'utilisation de transducteurs piézoélectriques transverses ce que nous souhaiterions éviter dans ce travail [KIEL-14].

Dans toutes ces approches il est cependant important de résoudre le problème inverse c'est-à-dire retrouver les propriétés mécaniques à partir des courbes de dispersion ce qui s'avère souvent très complexe. On dispose aujourd'hui de logiciels certes performants comme « Disperse » [LOWE-13] mais qui se heurtent encore à des difficultés surtout pour les géométries tubulaires si la viscosité est prise en compte. Même si nous utiliserons ce genre de logiciel, nous essaierons de nous focaliser sur un mode de propagation particulier au lieu de considérer toutes les courbes de dispersion pour obtenir des équation simplifiées permettant de développer un appareil de mesure simple ne nécessitant pas la résolution d'un problème inverse trop complexe.

Ainsi donc, comme nous le verrons plus loin au (chapitre 4) nous préférerons utiliser des ondes L dans un tube rempli du liquide à étudier. Nous essaierons de voir dans quelle mesure les ondes injectées par un piézoélectrique longitudinal haute fréquence permettent simplement d'obtenir η_s . Nous nous inspirerons des travaux de P. Nagy [NAGY-96].

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté la plupart des méthodes classiques de la rhéologie et de la viscosimétrie. Ce chapitre ne se voulant pas exhaustif, il existe d'autres méthodes comme les méthodes à écoulement dans un récipient de type « entonnoir » nommé « coupe de Ford ». On peut juste noter qu'il existe dans une telle coupe une expérience visant à démontrer que la poix est viscoélastique. Depuis 1938 où cette coupe de Ford a été remplie, seulement 9 gouttes sont tombées, dont la dernière en 2014 (Voir *Figure I.16*). En ce qui concerne les approches ultrasonores nous avons totalement occulté les méthodes qui grâce aux signaux rétrodiffusés par un liquide préalablementensemencé de traceurs permettent d'estimer les champs de vitesses et de

déplacements. Ces approches utilisant le speckle ultrasonore sont aujourd'hui couplées à des viscosimètres pour estimer le champ des vitesses dans fluides en écoulement. L'utilisation de transducteurs multiéléments ultra rapides permet d'améliorer encore la méthode. Cette approche, initié par Manneville [MANN-04] dans les années 2000 donne beaucoup de résultats mais reste relativement lourde et complexe à mettre en œuvre d'un point de vue expérimental.



Figure I.16. Expérience de la goutte de poix.

Nous pouvons voir dans ce chapitre qu'aucun appareil ne permet de faire des mesures simplement sur une large gamme de fréquences. Dans le chapitre suivant nous présentons la méthode dédiée à la mesure de η_s en basses fréquence basée sur la chute d'une bille. La détection de la position et la mesure de la vitesse de chute se feront par ultrasons. Comme nous l'avons mentionné en introduction générale le contenant est un tube à essais.

Références bibliographiques

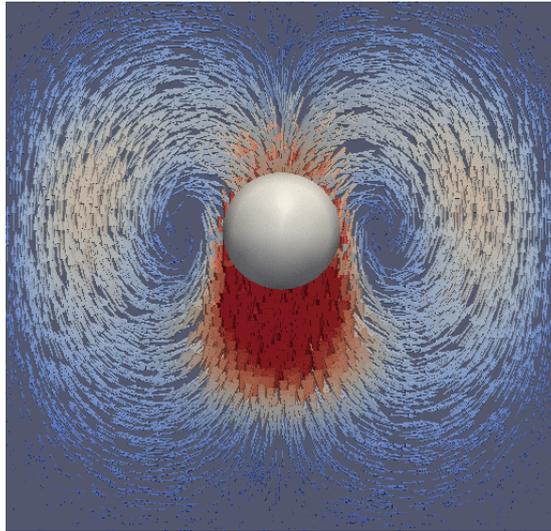
- [ALIG-00] I. Alig et D. Lellinger. Ultrasonic methods for characterizing polymeric material. *Chemical Innovation*. 30(2) (2000) 12-18.
- [ALOU-16] B. Alouache, D. Laux, T. Boutkedjirt. Ultrasonic assessment of olive oil mixtures properties. IEEE IUS. IEEE International Ultrasonic Symposium. 18-21 Septembre. Tours, France.
- [ALOU-18] B. Alouache, D. Laux, A. Hamitouche, K. Bachari and T. Boutkedjirt. Ultrasonic characterization of edible oils using a generalized fractional model. *Applied Acoustics*. 131 (2018) 70-78.
- [ANTL-13] H. Antlinger et al. An acoustic transmission sensor for the longitudinal viscosity of fluids. *Sensors and actuators A*. 202 (2013) 23-29.
- [BARN-00] H.A. Barnes. *A Handbook of elementary rheology*. University of Wales. 2000.
- [BLAH-10] I.A. Bláhová. Measurement of liquid characteristics using ultrasound resonator. *Proceedings of 20th International Congress on Acoustics, ICA 2010* 23-27 August 2010, Sydney, Australia.
- [BRIZ-05] M. Brizard. Développement et étude d'un viscosimètre absolue à chute de bille. Thèse de Doctorat de l'Université de Joseph Fourier. Soutenue le 20 Mai 2005.
- [BRUH-61] G. Bruhat. *Cours de Physique Générale. Mécanique*. Masson 1961.
- [CERE-10] V. Cereser Camara. Piézorhéomètres pour la caractérisation large bande des propriétés viscoélastiques de matériaux au voisinage de la température ambiante. Thèse de Doctorat de l'Université Montpellier 2. Soutenance le 10 Juillet 2010.
- [COUS-01] P. Coussot et J.L. Grossiord. *Comprendre la rhéologie, de la circulation du sang à la prise du béton*. EDP Science. 2001.
- [COUS-13] P. Coussot. *Rhéophysique : la matière dans tous ses états*. EDP Science. 2013.
- [DUKH-09] A. S. Dukhin et P.J. Goetz, Bulk viscosity and compressibility measurement using acoustic Spectroscopy. *Journal of Chemical Physics* 130 (2009).
- [EGUC-08] Y. Eguchi, T. Karino. Measurement of rheologic property of blood by a falling-ball viscometer. *Annals of Biomedical Engineering*, Vol. 36, No. 4, April 2008.
- [ETIE-02] S. Etienne, L. David. *Introduction à la physique des polymères*. Dunod, 2002.
- [FERR-80] J. P. Ferry. *Viscoelastic Properties of polymers*. Wiley, New York, 1980.
- [GASP-07] J. Gasparoux. Etude Rhéoacoustique de gels Polymères Polydiméthylsiloxane. Thèse de Doctorat de l'Université Montpellier 2. Soutenance le 2 Mai 2007.

- [GAZI-59] D. Gazis. Three dimensional investigation of the propagation of waves in hollow circular cylinders. The journal of the acoustical society of America. 31(5) (1959) 568- 578.
- [GLAD-85] N. Gladwell, C. Javanaud, K.E. Peers and R.R. Rahalka. Ultrasonic Behavior of Edible Oils: Correlation with Rheology. Journal of the American Oil Chemists' Society, 1985, 62, pp.1231–1236.
- [GROS-13] J-L. Grossiord, A. Ponton. La mesure en rhéologie : des avancées récentes et perspectives. Groupe Français de Rhéologie. EDP Sciences. 2013.
- [GUI-96] F. Gui, T. F. Irvine, Jr. An absolute Falling tube Viscosimeter. Experimental Thermal and Fluid Science. 1996 (12:325-337).
- [HUBB-43] R. M. Hubbard, G. G. Brown. The rolling ball Viscometer. Industrial and Engineering Chemistry. Vol.15, No. 3. 1943.
- [JU-10] H. S. Ju et al. An empirical method to estimate the viscosity of mineral oil by means of ultrasonic attenuation. IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics and frequency control. 57(7) (2010) 1612-1620.
- [KIEL-14] P. Kiełczyński, M. Szalewski, A. Balcerzakl. Inverse procedure for simultaneous evaluation of viscosity and density of Newtonian liquids from dispersion curves of Love waves. J. Appl. Phys. 116, 044902 (2014).
- [LAUX-09] D. Laux, G. Levêque, V. Cereser Camara. Ultrasonic properties of water / Sorbitol solutions. Ultrasonics 49 (2009) 159-161.
- [LAUX-11] D. Laux, V. Cereser Camara, E. Rosenkrantz. α - relaxation in honey study versus moisture content : high frequency ultrasonic investigation around room temperature. Journal of Food Engineering. 103 (2011) 165-169.
- [LAUX-13] D. Laux, M. Valente, J-Y. Ferrandis, N. Talha, O. Gibert, A. Prades. Shear viscosity investigation on mango juice with high frequency longitudinal ultrasonic waves and rotational viscosimetry. Food biophysics. Vol 8. Issue 4. October (2013). 233-239.
- [LAUX-14a] D. Laux, O. Gibert, J-Y. Ferrandis, M. Valente, A. Prades. Ultrasonic evaluation of coconut water shear viscosity. J.Food Engineering. 126 (2014) 62-64.
- [LAUX-14b] D. Laux. Ultrasons et milieux complexes : de la mesure du module d'Young des céramiques nucléaires irradiées à l'évaluation de la viscosité des fluides biologiques. Mémoire HDR de l'Université Montpellier 2. Soutenance 10 Octobre 2014.
- [LAUX-16] D. Laux, D. Brutin, J-Y Ferrandis. Ultrasonic monitoring of droplets' evaporation: application to human whole blood. Ultrasonics Sonochemistry. Vol 32 (2016) 132-136.

- [LEFE-18] G. Lefebvre, R. Wunenburger, T. Valier-Brasier. Ultrasonic rheology of viscoelastic materials using shear and longitudinal waves. *Applied Physic Letters*. Volume 112. 241906. DOI : 10.1063/1.5029905.
- [LEVE-07] G. Lévêque et al. Correction of diffraction effects in sound velocity and absorption measurements. *Measurement science and technology*. 18 (2007) 3458-3462.
- [LOWE-13] M.Lowe and B. Pavlakovic. *Disperse User's Manual*. Imperial College London. 2013.
- [MARTI-06] P.Martinyoty. Brevet WO 2006/018516 A1.
- [MASO-49] W. P. Mason et al. Measurement of shear elasticity and viscosity of liquids at ultrasonic frequencies. *Physical Review*. 75(6) (1949) 936-946.
- [MASO-64] W. P. Mason. *Physical Acoustics*. Ed. Academic Press, New York, vol.1, Part A, 1964.
- [MANN-04]. S. Manneville, L. Bécu, A. Colin. High-frequency ultrasonic speckle velocimetry in sheared complex fluids. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* 28, 361-373 (2004).
- [MORD-00]. N. Mordant and J.-F. Pinton. Velocity measurement of a settling sphere. *Eur. Phys. J. B* 18, 343-352 (2000).
- [NAGY-96] P.B. Nagy et al. Viscosity-induced attenuation of longitudinal guided waves in fluid-loaded rods. *J. Acoust. Soc. Am.* 100 (3), Septembre 1996.
- [ROTH-53] W. Roth and S. R. Rich. A new method for continuous viscosity measurement. General theory if the ultra-viscoson. *Journal of Applied Physics*. 24(7) 1953 940-951.
- [SINH-01] D.N. Sinha and G. Kaduchak. Noninvasive determination of sound speed and attenuation in liquids. *Experimental Methods in the Physical Sciences* 39(2001).
- [SUZU-14] T. Suzuki, S. Araki and H. Yamamoto. Measurement of flow properties of mammalian blood with different hematocrit values using falling needle rheometer. *Systemics, Cybernetics and informatics*. Volume 12. Number 4. 2014.
- [TRAN-88] R. Tran-Son-Tay, B. E. Coffey, R. M. Hochmuth. A rheological study of packed red blood cell suspensions with an oscillating ball micro rheometer. *Biorheology*. 26. 143-151. 1989.
- [VISW-89] D. S. Viswanath and G. Natarajan, *Databook on Viscosity of Liquids*. Hemisphere. NewYork (1989).
- [WAZE-63] J.R. Wazer, J.W. Lyons, K.Y. Kim, R.E. Colwell. *Viscosity and flow measurement*. Interscience Publishers. Wiley and sons. New York. London. 1963
- [ZENG-09] M. Zeng, C. Schaschke. High pressure falling sinker liquid viscosity determination without supplementary density data: A new approach. *International Journal of Chemical Engeneering*. Volume 2009, Article ID 747592, 8 pages.

CHAPITRE 2

VISCOSIMETRIE ULTRASONORE A CHUTE DE BILLE



Champ de vitesse autour d'une bille chutant dans un fluide.

(Sébastien Martin. Université Paris Descartes. CNRS UMR 8145. http://www.math-info.univ-paris5.fr/~smarti02/Code_SEVEOS.html)

Introduction

1. Eléments de théorie

- 1.1. Approche simplifiée en milieu infini
- 1.2. Approche en milieu confiné

2. Banc expérimental

- 2.1. Description générale, principe de la mesure et choix des billes
- 2.2. Caractérisation des transducteurs ultrasonores

3. Résultats expérimentaux

- 3.1. Validation de la correction des effets de bord
- 3.2. Mesures sur divers liquides transparents
 - 3.2.1. Miel
 - 3.2.2. Huiles silicone
- 3.3. Tests sur un liquide opaque non newtonien : le ketchup
- 3.4. Synthèse et discussion

Conclusion

Références bibliographiques

Introduction

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre précédent, assez peu d'auteurs se sont intéressés à la conception de viscosimètres à chutes de billes dans des liquides opaques par rapport aux liquides non opaques [OH-95, FLUD-82, WANG-94, GUI-96, LOMM-01].

Dans la littérature récente on peut citer Eguchi [EGUC-08] ou Mordant [MORD-00] mais il existe des travaux plus anciens comme ceux de Tran Son Tai en 1988 [TRAN-88]. Mordant par exemple utilise une mesure Doppler. Lors de la chute de la bille, des signaux ultrasonores réfléchis sur celle-ci changent de fréquence par effet Doppler. De ce décalage fréquentiel la vitesse de chute est déduite.

Eguchi, quant à lui utilise une méthode plus simple basée sur le temps d'aller-retour d'un écho ultrasonore réfléchi sur la bille lors de sa chute. Il emploie de petites billes (800 μm - 2 mm) en polystyrène recouvertes d'une couche de platine-palladium. Cette couche permet d'avoir une rupture d'impédance acoustique suffisante par rapport au liquide étudié (du sang) et donc de rendre la bille détectable. Le polystyrène ayant une masse volumique proche de celle de l'eau, ceci permet de ralentir la bille lors de sa chute, de rester en régime d'écoulement laminaire et d'avoir un temps de chute mesurable facilement même pour des liquides très peu visqueux comme de l'eau ou du sang. Le transducteur ultrasonore de fréquence centrale 5 MHz est positionné verticalement. Le tube qui contient le liquide repose sur le capteur. Le signal ultrasonore généré par le transducteur excité en mode impulsif se propage dans le liquide puis est réfléchi sur la bille en mouvement. De la mesure de la position temporelle de l'écho en fonction du temps, la vitesse de chute est déduite (Voir *Figure II.1*). Les auteurs donnent peu de détails et ne montrent pas l'allure des signaux réfléchis qui, à notre avis, doivent être difficilement observables sur une bille de 800 μm . Par ailleurs comme cela est très clairement expliqué dans l'article de Tran Son Tai, pour déduire la vitesse de chute à partir de la position temporelle de l'écho ultrasonore il faut au préalable connaître la vitesse de propagation des ultrasons dans le milieu, point sur lequel Eguchi ne dit rien. Enfin il ne semble pas prendre en compte d'éventuels effets de bord. Ceci peut conduire à une surestimation de la viscosité comme nous le verrons plus loin.

La configuration proposée suppose que les signaux ultrasonores se propagent avec peu d'atténuation dans le liquide sur plusieurs centimètres pour obtenir un écho exploitable et une distance de chute assez longue pour mesurer η_s avec une précision acceptable. La méthode semble donc bien adaptée pour les très faibles viscosités mais peu envisageable pour des viscosités de plusieurs dizaines de Pa.s.

Nous proposerons donc un autre protocole expérimental ce qui devrait nous conduire à couvrir une gamme de viscosité très large typiquement de quelques mPa.s ou dizaines de mPa.s à plusieurs dizaines de Pa.s.

Après une partie théorique en milieu infini puis confiné, nous présenterons le banc expérimental développé (qui d'ailleurs sera le même dans les autres chapitres), la méthode d'acquisition des données, le traitement du signal mis en place et enfin les résultats expérimentaux qui seront comparés à ceux obtenus avec un viscosimètre Couette disponible au laboratoire.

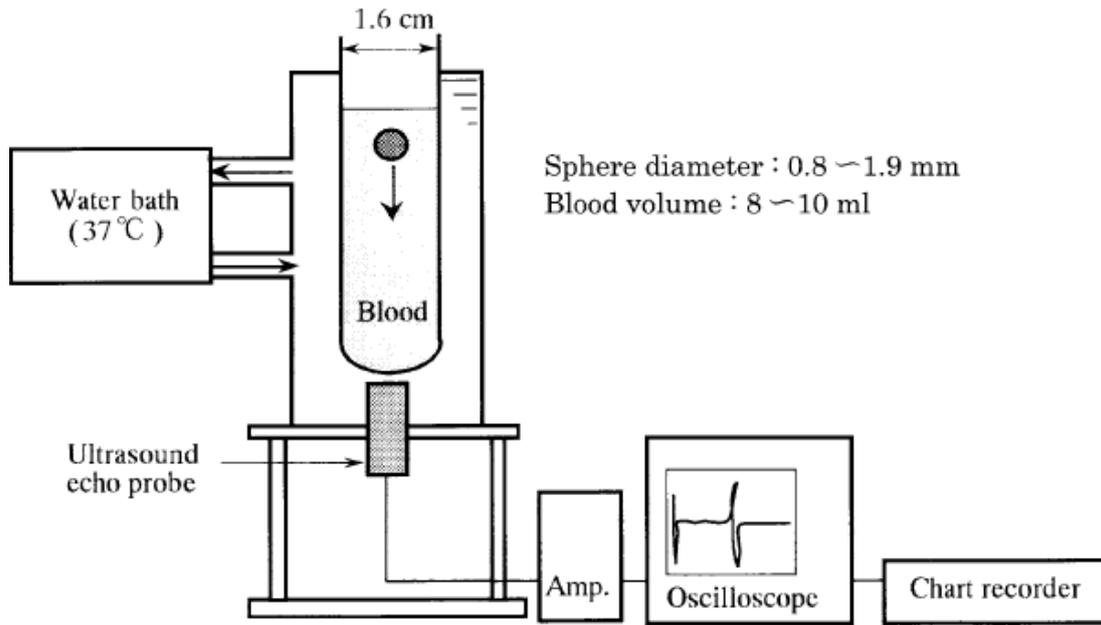


Figure II.1. Viscosimètre ultrasonore proposé par Eguchi [EGUC-08].

1. Éléments de théorie

1.1. Approche simplifiée en milieu infini [STOK-51]

Si l'on considère une bille de masse m_B chutant lentement et verticalement dans un liquide visqueux de viscosité de cisaillement η_s à la vitesse \vec{v} sans tourner sur elle-même, elle est soumise à son poids \vec{P} , à la force de Stokes \vec{F}_S et à la poussée d'Archimède \vec{F}_A (Voir Figure II.2). Par ailleurs le milieu est supposé infini dans les trois directions spatiales. Enfin la bille est lâchée sans vitesse initiale [BRIZ-05, LOHR-60, HAPP-83].

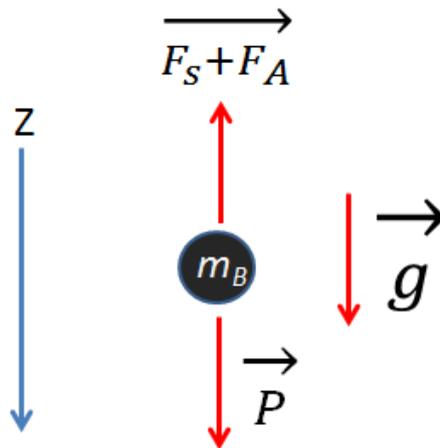


Figure II.2. Forces prises en compte lors de la chute lente, verticale et sans rotation d'une bille de masse m_B dans un milieu supposé infini.

En notant R_B le rayon de la bille, V_B son volume, ρ_B sa masse volumique et enfin ρ_L la masse volumique du liquide, les trois forces s'écrivent ainsi :

$$\vec{P} = m_B \vec{g} = \rho_B V_B \vec{g} = \rho_B \frac{4\pi R_B^3}{3} \vec{g} \quad (\text{II.1})$$

$$\vec{F}_S = -6\pi R_B \eta_S \vec{v} \quad (\text{II.2})$$

$$\vec{F}_A = -\rho_L V_B \vec{g} = -\rho_L \frac{4\pi R_B^3}{3} \vec{g} \quad (\text{II.3})$$

La deuxième loi de Newton conduit alors après projection sur l'axe z à la relation suivante où \dot{v} représente l'accélération de la bille :

$$\dot{v} + \frac{9\eta_S}{2\rho_B R_B^2} v = g \left(1 - \frac{\rho_L}{\rho_B} \right) \quad (\text{II.4})$$

Cette équation différentielle de premier ordre à coefficients constants avec second membre se résout sans difficultés [BASS-88] et la vitesse de chute s'exprime ainsi où cette fois le diamètre d de la bille a été introduit ainsi qu'un temps caractéristique $t_c = \frac{d^2 \rho_B}{9\eta_S}$:

$$v = \frac{d^2}{18\eta_S} g (\rho_B - \rho_L) \left(1 - e^{-\frac{t}{t_c}} \right) \quad (\text{II.5})$$

Ainsi donc, si $t \gg t_c$, la bille atteint une vitesse de chute constante notée v_∞ et valant [BOUS-03, OSSE-27] :

$$v_\infty = \frac{d^2}{18\eta_S} g (\rho_B - \rho_L) \quad (\text{II.6})$$

Ces résultats ne sont valables que si la bille chute lentement. Pour quantifier cette condition le nombre de Reynolds $Re = \frac{\rho_L v d}{\eta_S}$ est introduit. La condition $Re < 0.1$ doit toujours être respectée [CLIF-78]. Comme nous le verrons par la suite, les billes utilisées pour respecter la condition $Re < 0.1$ conduiront à des valeurs de t_c très faibles par rapport au temps de chute total. Ainsi donc on pourra toujours considérer que le régime transitoire d'accélération est infiniment rapide et que par conséquent la bille chute à la vitesse v_∞ .

Enfin, comme cela a déjà été signalé lors de la revue bibliographique du chapitre 1, on peut aussi calculer la contrainte de cisaillement :

$$\tau = \frac{\|\vec{F}_S\|}{\text{Surface de la bille}} = \frac{\|\vec{F}_S\|}{\pi d^2} = \eta_S \dot{\gamma} = \eta_S \left(\frac{3v_\infty}{d} \right) = \frac{gd(\rho_B - \rho_L)}{6} \quad (\text{II.7})$$

Ainsi donc en choisissant plusieurs billes de diamètres différents il est possible de faire varier τ et pour chaque τ calculé de mesurer η_S via la mesure de v_∞ . $\dot{\gamma}$ est alors connu puisqu'il vaut τ/η_S . On peut alors tracer le rhéogramme c'est-à-dire η_S en fonction de $\dot{\gamma}$.

1.2. Approche en milieu confiné [HAPP-83]

La résolution du problème de chute d'une bille sans hypothèse particulière en milieu confiné cylindrique de diamètre D peut être abordée via l'équation générale de Navier-Stokes mais l'obtention de solutions analytiques n'est possible que sous certaines hypothèses.

Toujours en supposant que le nombre de Reynolds est faible, ce qui garantit un écoulement rampant ou laminaire autour de la bille, en négligeant les effets de bout, la rotation de la bille et tout décentrement par rapport à l'axe du contenant cylindrique, Brizard dans sa thèse de doctorat [BRIZ-05] propose l'expression suivante qui permet de tenir compte des effets de bord [LORE-07, FAXE-22] (la vitesse de chute est notée simplement v puisque nous ne sommes plus dans le cas d'un milieu infini):

$$\eta_S = \frac{d^2 g(\rho_B - \rho_L)}{18v} \left[1 - \frac{3}{16} Re - \frac{d}{D} f\left(\frac{Re/4}{d/D}\right) + 2,09 \left(\frac{d}{D}\right)^3 - 0,95 \left(\frac{d}{D}\right)^5 \right] \quad (\text{II.8})$$

Avec :

$$f\left(\frac{Re/4}{d/D}\right) = 2.104 - 0.768 \left(\frac{Re/4}{d/D}\right)^1 + 0.178 \left(\frac{Re/4}{d/D}\right)^2 - 0.038 \left(\frac{Re/4}{d/D}\right)^3 + 0.004 \left(\frac{Re/4}{d/D}\right)^4$$

Le nombre de Reynolds dépendant de la viscosité, la résolution directe de l'équation (II.8) n'est pas immédiate. Brizard calcule d'abord lors d'une première itération η_{S1} en supposant le nombre de Reynolds nul. Ainsi donc :

$$\eta_S \sim \frac{d^2 g(\rho_B - \rho_L)}{18v} \left[1 - 2.104 \frac{d}{D} + 2,09 \left(\frac{d}{D}\right)^3 - 0,95 \left(\frac{d}{D}\right)^5 \right] \quad (\text{II.9})$$

Avec ce η_S cela permet d'estimer le nombre de Reynolds $Re_1 = \frac{\rho_L v d}{\eta_S}$.

La viscosité est alors recalculée avec la relation (II.8) et ainsi de suite jusqu'à convergence. En réalité, comme le mentionne Brizard dans sa thèse il est inutile de réaliser plusieurs itérations car le nombre de Reynolds Re_1 n'évolue ensuite quasiment plus. Dans le cas des chutes très lentes il est même possible d'utiliser directement la relation (II.9). Dans la suite nous utiliserons d'ailleurs systématiquement cette relation tout en veillant à ce que les nombre de Reynolds restent faibles.

A titre d'exemple voici la valeur de viscosité obtenue avec une bille 5 mm de diamètre chutant dans un cylindre de diamètre interne $D=1$ cm à la vitesse de $1.05 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$. La masse volumique est $1050 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ pour la bille et $970 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ pour le liquide. Il apparait clairement que les effets de bord ne sont pas négligeables (voir *Figure II.3*). La viscosité corrigée n'évolue quasiment pas dès la première itération ce qui montre d'ailleurs que le nombre de Reynolds est très faible et n'évolue pas non plus.

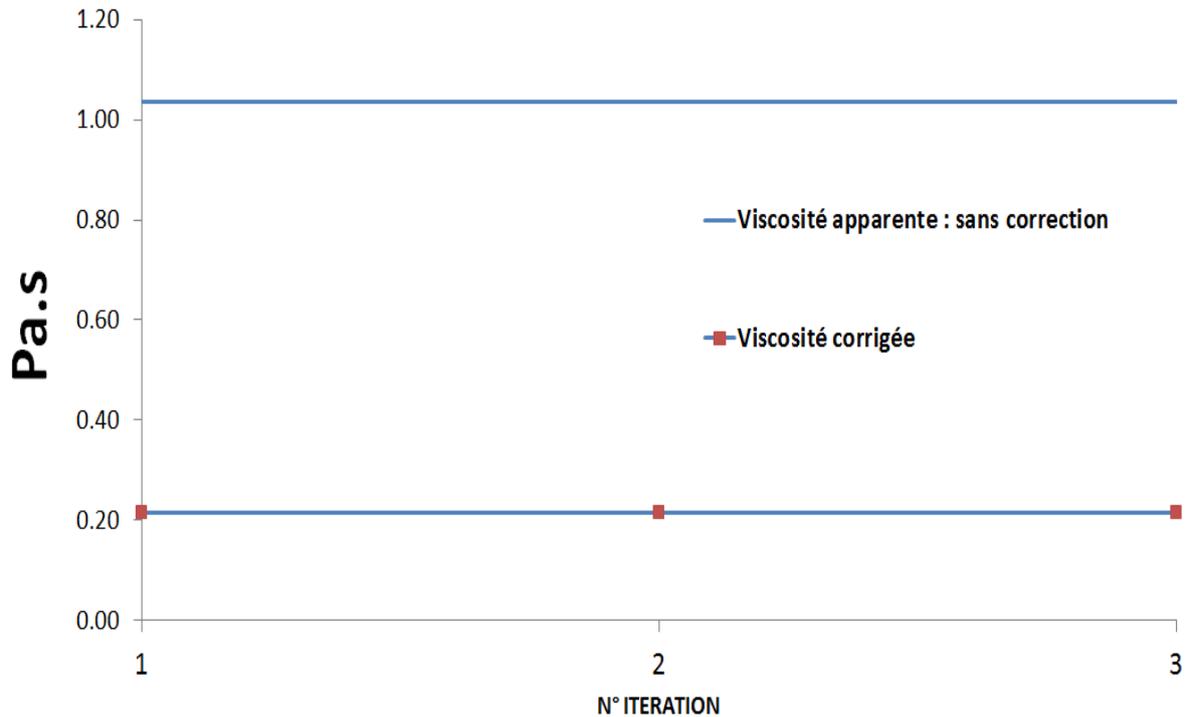


Figure II.3. Viscosité obtenue en corrigeant les effets de bords.
 Bille de masse volumique 1050 kg.m^{-3} , diamètre de la bille 5 mm, liquide de masse volumique 970 kg.m^{-3} , tube de diamètre interne 1 cm, vitesse de chute de 1.05 mm.s^{-1} .

2. Banc expérimental

2.1. Description générale, principe de la mesure et choix des billes

Le banc de mesure que nous retrouverons d'ailleurs tout au long de ce travail de thèse se compose d'un générateur d'impulsions électriques (Olympus 5073PR), d'un oscilloscope de visualisation (Lecroy Wavejet 334) relié à l'ordinateur avec un câble USB/GPIB permettant de transférer les signaux ultrasonores pour traitement avec des logiciels réalisés avec Labview. Il est bien-sûr indispensable d'utiliser une fréquence d'échantillonnage au moins égale à 2 fois la fréquence du signal pour respecter le critère de Shannon. Deux sondes ultrasonores sont connectées au générateur électrique, le système fonctionnant en mode transmission.

Les deux sondes cylindriques, réalisées spécifiquement par l'entreprise Sonaxis à Besançon pour s'adapter au tube à essais contenant le liquide (diamètre externe 12.25 mm et diamètre interne $D=1 \text{ cm}$) sont couplées au tube avec un peu de miel. Nous disposons de 3 couples de sondes : 2, 5 et 10 MHz. Un schéma technique d'une sonde 5 MHz est donné sur la Figure II.4. Ces sondes sont une adaptation de sondes commerciales pour lesquelles une face avant spécifique s'adaptant au diamètre du tube a été rajoutée. La réalisation de ces sondes a été possible grâce à un financement obtenu auprès du Labex NUMEV (ANR-10-LABX-20-01). Le choix de la fréquence de travail sera dicté par le liquide étudié, la seule condition étant d'obtenir un signal transmis.

Une photographie du banc de mesure complet est donnée sur la Figure II.5.

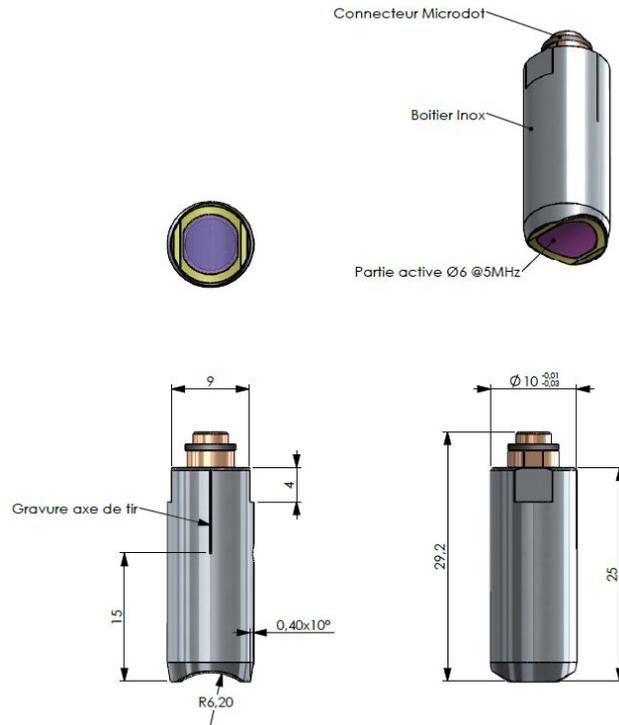


Figure II.4. Schéma d'un transducteur 5 MHz cylindrique spécialement conçu pour s'adapter au tube à essais de diamètre externe 12.25 mm et de diamètre interne $D=1\text{cm}$.

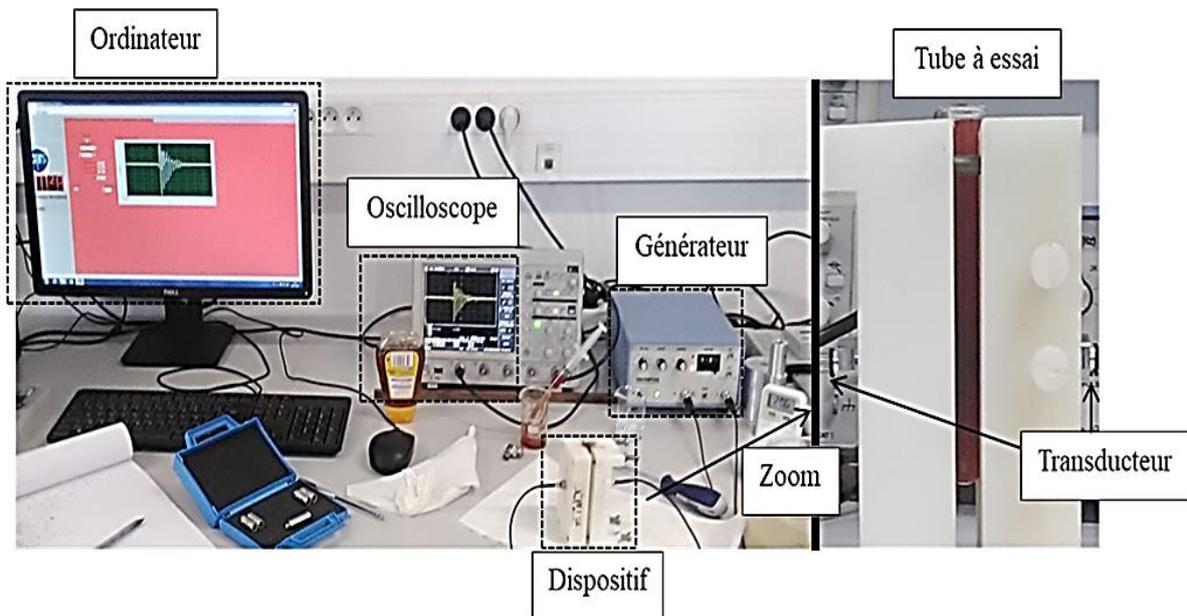


Figure II.5. Photographies de banc expérimental.

En pratique, la bille est lâchée sans vitesse initiale dans le liquide. Lorsqu'elle coupe le faisceau ultrasonore, l'amplitude du signal est affectée. Si B_s représente la taille du faisceau, T_p le temps pendant lequel le faisceau est perturbé (Figures II.6 et II.7) et d le diamètre de la bille alors :

$$v = (B_s + d)/T_p \quad (\text{II.10})$$

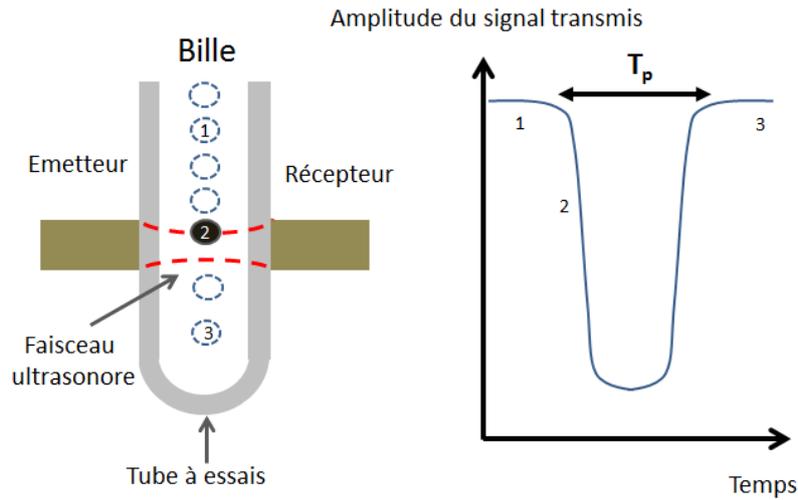


Figure II.6. Principe de la mesure de v par méthode ultrasonore.

Pendant que la bille chute dans le tube, le signal ultrasonore transmis est acquis et envoyé à l'ordinateur. Le temps absolu est aussi mesuré grâce à l'horloge interne du microprocesseur de l'ordinateur. Les divers signaux sont stockés (concaténés) à la suite les uns des autres. A la fin de l'expérience l'amplitude du signal est tracée en fonction du temps.

Le temps de perturbation T_p est mesuré sur la courbe d'évolution de l'amplitude du signal transmis en fonction du temps. Dès que la bille intercepte le faisceau, la chute d'amplitude est brutale si bien que le repérage est aisé. De même, à la fin de la perturbation, la bille sort du faisceau ultrasonore et le signal transmis se rétablit rapidement.

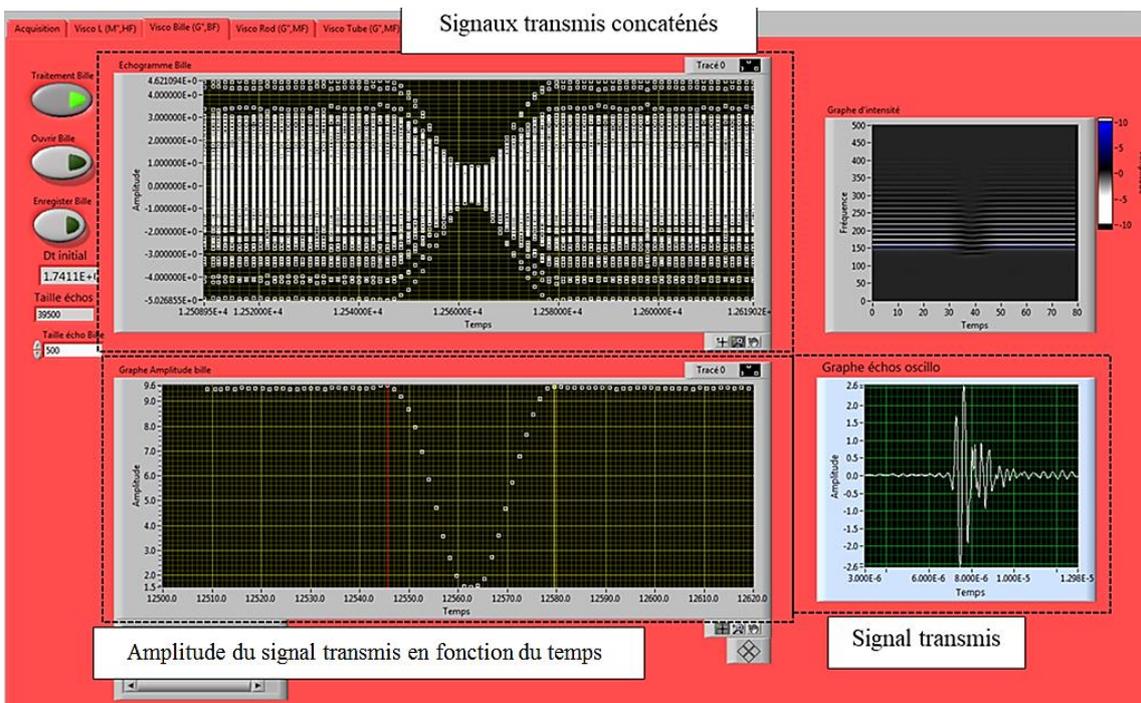


Figure II.7. Visualisation de la perturbation du faisceau ultrasonore.

Pour réaliser les expériences, diverses billes ont été acquises. L'objectif est double : il faut premièrement pouvoir travailler avec des billes de diamètre assez grand pour faciliter leur manipulation et deuxièmement garantir un nombre de Reynolds faible. Bien sûr il faudra aussi veiller à ce que les effets de bord soient corrigés correctement.

Tout d'abord des billes en Téflon et Polyacétal de diamètre de 2, 3, 4 et 5 mm ont été achetées auprès de l'entreprise « Marteau & Lemarié ». Les masses volumiques des billes sont 2150 kg.m^{-3} pour le Téflon et de 1400 kg.m^{-3} pour le Polyacétal avec une incertitude annoncée de 50 kg.m^{-3} . Des billes en Polystyrène et en Acétate de Cellulose ont été achetées auprès de l'entreprise « Cospheric ». Les masses volumiques annoncées par le constructeur sont 1300 kg.m^{-3} pour l'Acétate de Cellulose et de 1050 kg.m^{-3} pour le Polystyrène avec une incertitude de 2 kg.m^{-3} . Pour ces billes nous avons opté pour des diamètres de 1 et 2 mm. Les valeurs de diamètre et de masses volumiques annoncées par les constructeurs ont été vérifiées. Les résultats sont présentés sur la *Figure II.8*.

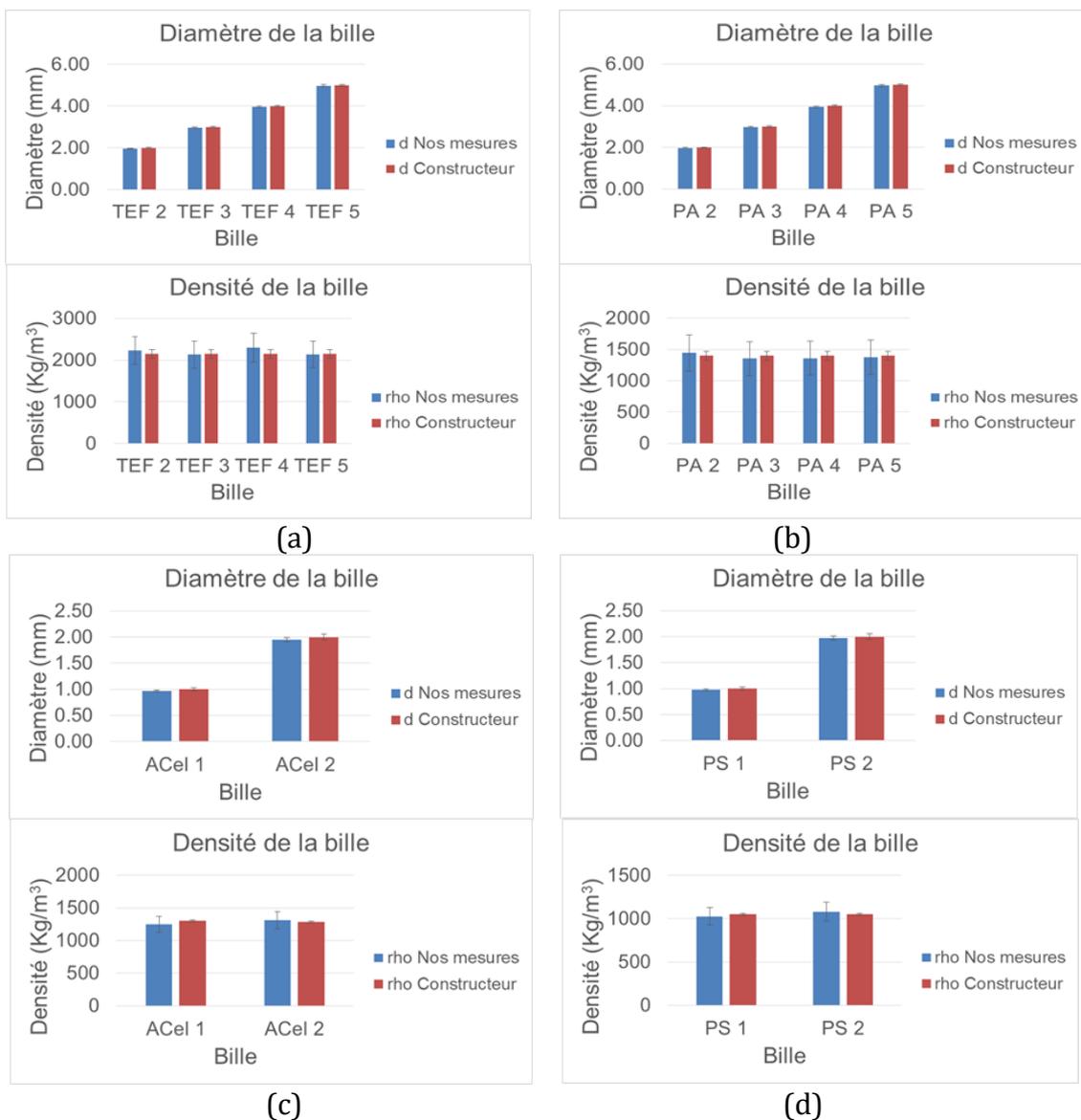


Figure II.8. Caractérisation des billes et comparaison aux valeurs données par le constructeur. (a) Billes en Téflon (TEF), (b) billes en Polyacétal (PA), (c) billes en Acétate de Cellulose (ACel) et (d) billes en Polystyrène (PS).

Les résultats sont cohérents par rapport à ceux donnés par les fabricants. Par la suite nous utiliserons les valeurs remesurées au laboratoire pour l'estimation de la viscosité de cisaillement.

Avant de passer à la mesure de la viscosité de cisaillement, nous avons évalué le temps de chute ou le temps de perturbation par rapport aux gammes de viscosité souhaitées (Tableau II.1). Nous avons utilisé les caractéristiques des billes, pour choisir les billes adéquates ou optimales. La bille optimale correspond à un temps de perturbation « ni trop grand ni trop faible ». Pour estimer ce temps de perturbation nous avons utilisé la relation (II.9) en inversant le problème. Nous définissant ou nous imposons la valeur de la viscosité, nous cherchons l'inconnu qui est le temps de perturbation en calculant d'abord la vitesse de la bille. Pour ces simulations le diamètre du faisceau est 6 mm. Nous avons choisi cette valeur car elle correspond en première approximation à la taille des faisceaux des transducteurs utilisés par la suite. Bien-sûr pour chaque liquide la densité de la bille influence beaucoup le temps de perturbation. Si la densité de la bille est très proche de la densité du liquide, ce temps est très grand. De même, le diamètre de la bille est un paramètre de premier ordre. Les liquides choisis pour l'estimation du temps de chute et qui constitueront d'ailleurs nos liquides de tests tout au long de ce travail de thèse sont : l'eau sucrée avec plusieurs pourcentage de sucre (de 0 à 60) [CONT-92], les huiles silicone Rhodorsil (V50, V350) [BLUE-18], l'huile silicone Brookfield [BROO-18a], la glycérine [GPA-63] et le miel [LAUX-11].

Liquide	Suc0	Suc5	Suc10	Suc20	Suc40	Suc60	V50	V350	Glycérol	Miel	Brookfield
ρ_L (Kg.m ⁻³)	1000	1021.5	1043	1086	1172	1258	959	970	1260	1401	970
η_s (Pa.s)	0.001	0.0012	0.0014	0.002	0.0062	0.058	0.050	0.350	1	10	30
Bille											
TEF 2	0.005	0.006	0.008	0.011	0.038	0.4	0.2	1.8	6.7	79.2	150.8
TEF 3	0.004	0.004	0.005	0.008	0.026	0.3	0.2	1.2	4.6	54.2	103.1
TEF 4	0.003	0.004	0.005	0.007	0.023	0.2	0.2	1.1	4.1	48.9	93.0
TEF 5	0.003	0.004	0.005	0.007	0.025	0.3	0.2	1.2	4.4	52.1	99.2
PA 2	0.015	0.019	0.023	0.039	0.16	2.4	0.7	4.8	42.4	-5.9 10 ⁴	413.9
PA 3	0.01	0.013	0.016	0.026	0.11	1.7	0.5	3.3	29.0	-4.0 10 ⁴	283.0
PA 4	0.009	0.012	0.014	0.023	0.1	1.5	0.4	3.0	26.1	-3.7 10 ⁴	255.3
PA 5	0.01	0.012	0.015	0.025	0.1	1.6	0.4	3.2	27.9	-3.9 10 ⁴	272.4
ACel 1	0.05	0.07	0.087	0.1	0.8	22.6	2.3	17.0	409.5	-1.6 10 ³	1456.4
Acel 2	0.02	0.03	0.036	0.1	0.3	13.2	0.9	6.6	247.2	-0.5 10 ³	566.9
PS 1	0.3	0.7	3.2	-0.887	-0.81	-4.45	8.8	69.9	-76	-0.5 10 ³	5989.5
PS 2	0.1	0.2	1.2	-0.33	-0.3	-1.65	3.3	26.0	-28.3	-0.2 10 ³	2225.0

Tableau II.1. Estimation du temps de perturbation T_p (s) pour chaque bille en fonction de la viscosité et de la masse volumique du liquide.

Avec ce tableau il est possible d'établir que pour chaque liquide ou pour chaque viscosité il existe une bille optimale. Les temps négatifs correspondent aux densités de billes inférieures aux densités des liquides. Ils ont été conservés mais n'ont bien-sûr aucun sens. Avec le banc, la précision de mesure du temps de perturbation est impactée par le

temps d'acquisition. Cette précision est de l'ordre de 1 s. Ceci implique qu'il faut des temps de perturbation relativement élevés pour que la mesure ne soit pas trop erronée. Actuellement nous avons fixé le temps minimum mesurable à environ 9-10 s. Ceci pourra être amélioré si nous nous dotons d'un système de mesure plus performant. Si le temps de chute devient faible il faudra cependant veiller à ce que le nombre de Reynolds reste aussi faible pour rester dans le cadre de la théorie décrite plus haut. Nous reviendrons sur ce point à la fin de ce chapitre. Si nous reprenons l'estimation du temps de chute pour le choix de la bille optimale, nous obtenons les valeurs suivantes, en gras, italique dans le *Tableau II.2*. Ainsi la viscosité minimale mesurable serait voisine de 50 mPa.s. Nous avons donc repris le tableau précédent en ne laissant que les temps mesurables (arrondis sans décimale) au-delà de 9-10 s.

liquide	Suc60	V50	V350	glycérine	Miel	Brookfield
ρ_L (Kg/m ³)	1258	959	970	1260	1401	970
η_L (Pa.s)	0.058	0.050	0.350	1	10	30
Bille						
TEF 2	-	-	-	-	79	151
TEF 3	-	-	-	-	54	103
TEF 4	-	-	-	-	49	93
TEF 5	-	-	-	-	52	99
PA 2	-	-	-	42	-	414
PA 3	-	-	-	29	-	283
PA 4	-	-	-	26	-	255
PA 5	-	-	-	28	-	272
ACel 1	23	-	17	-	-	1456
Acel 2	13	-	-	-	-	567
PS 1	-	9	70	-	-	5990
PS 2	-	-	26	-	-	2225

Tableau II.2. Estimation du temps de perturbation T_p en prenant en compte le temps d'acquisition pour chaque bille en fonction de la viscosité du liquide.

En conclusion, pour l'huile Brookfield et le miel les billes optimales sont en téflon. Pour la glycérine notre choix se porte sur les billes en Polyacétal. Quant à l'huile V350, on peut choisir la bille de 1mm en Acétate de Cellulose mais les billes en Polystyrène conviennent aussi. Pour la V50 nous choisissons la bille de 1mm en Polystyrène.

2.2. Caractérisation des transducteurs ultrasonores

La connaissance précise de la taille du faisceau est un élément important puisqu'elle intervient directement dans le calcul de la vitesse de chute v . Une des méthodes les plus simples et nommée « méthode du fil » consiste simplement à faire passer un fil très fin perpendiculairement au faisceau ultrasonore et à observer la distance pendant laquelle le faisceau est perturbé, ce qui conduit directement à la taille effective du faisceau. En pratique nous disposons d'un moteur pas à pas permettant d'assurer un déplacement

vertical. Les 2 transducteurs ont été positionnés l'un en face de l'autre dans une cuve remplie d'eau. Un fil métallique coudé est alors déplacé dans le faisceau verticalement (Figures II.9 et II.10).

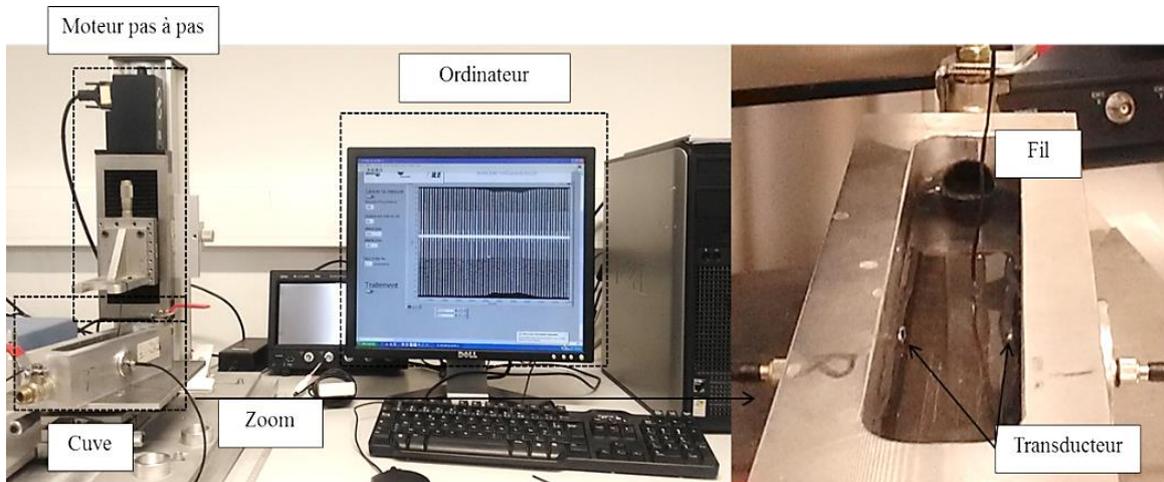


Figure II.9. Banc de mesure de la largeur du faisceau avec la méthode du fil.

Dès que le signal transmis diminue brutalement (comme dans le cas du passage d'une bille), nous obtenons la première position limite notée « limite 1 ». Une fois que le fil quitte le faisceau ultrasonore, le signal transmis se rétablit brutalement. Nous notons cette position « limite 2 ». De façon évidente, pour avoir la largeur du faisceau ultrasonore nous prenons : limite 2 – (diamètre du fil + limite 1). Les mesures ont été réalisées pour diverses positions horizontales (le long du faisceau) espacées de 5 mm sur une distance de 30 mm qui sépare les deux transducteurs ultrasonores. Les résultats obtenus sont présentés sur les graphes suivants pour les transducteurs 2, 5 et 10 MHz.

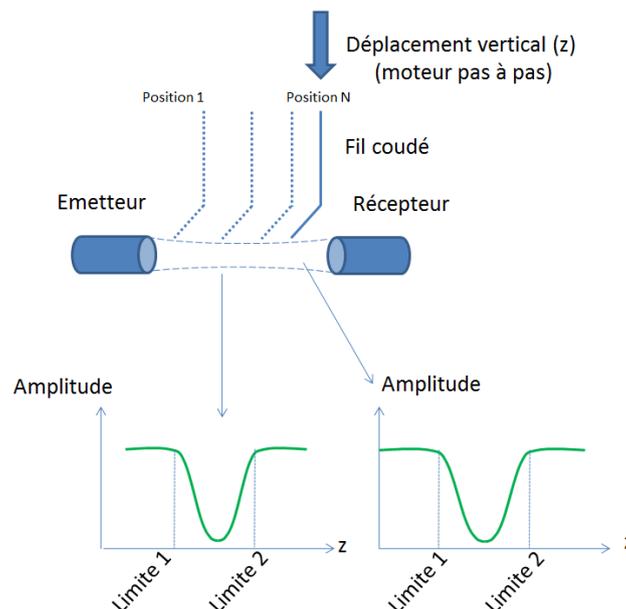


Figure II.10. Principe de la mesure permettant d'estimer la largeur du faisceau.

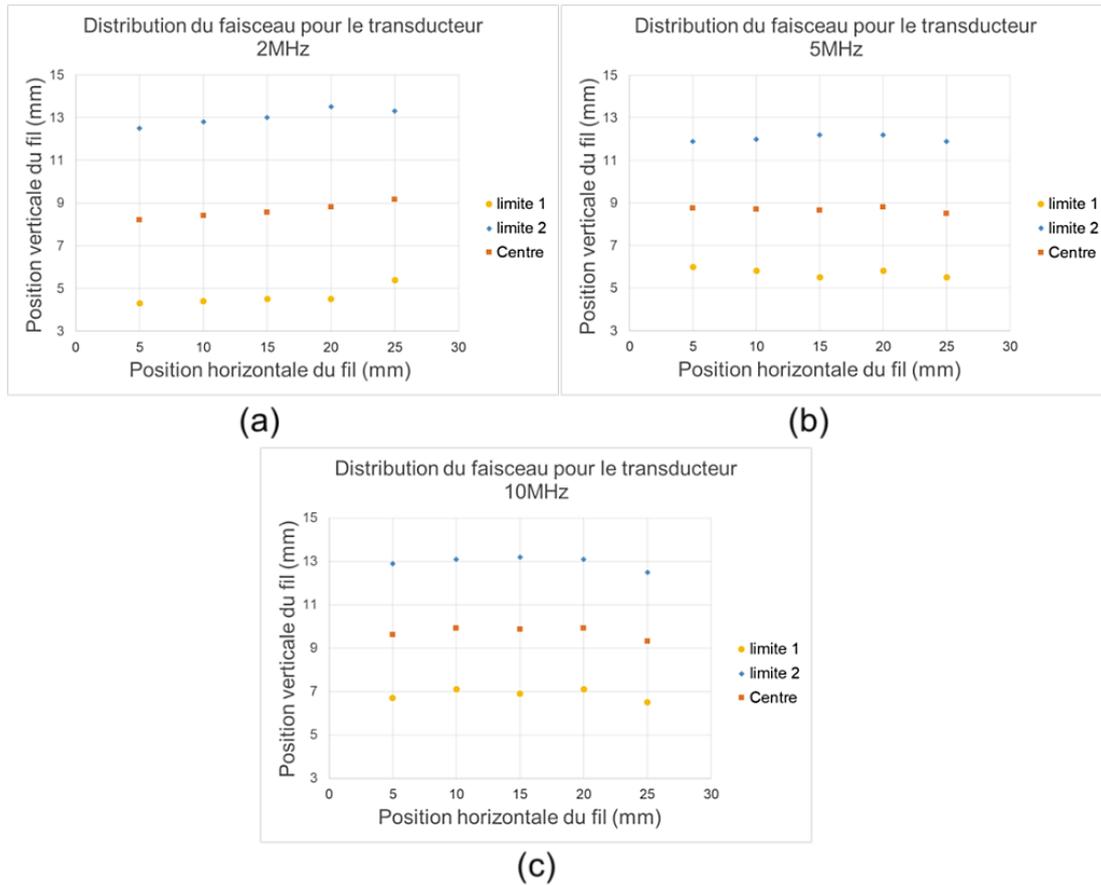


Figure II.11. Caractérisation des transducteurs de (a) 2 MHz, (b) 5 MHz et (c) 10 MHz avec l'estimation des limites et du centre du faisceau ultrasonore.

Par la suite, pour chaque mesure de viscosité nous avons utilisé indifféremment l'un de ces 3 couples de capteurs. Le choix est uniquement guidé par l'obtention d'un signal transmis dans le tube à essais. Ainsi donc pour des matériaux très visqueux le choix s'est plutôt orienté vers le couple 2 MHz, alors que pour les liquides peu visqueux, travailler à plus haute fréquence (5 ou 10 MHz) est possible.

3. Résultats expérimentaux

Notre démarche scientifique a pour objectif de valider la méthode de mesure de viscosité de cisaillement proposée, et ce, sur la plus grande gamme de viscosités possible. Nous comparerons donc les mesures effectuées avec les billes à des mesures réalisées systématiquement avec un viscosimètre Couette présent au sein de notre laboratoire. Le protocole expérimental est le suivant : d'abord des mesures sont réalisées avec le viscosimètre à bille en prenant soin de faire des mesures avec plusieurs diamètres si cela est possible (voir *Tableau II.2*). Ensuite la viscosité apparente non corrigée est calculée et sera notée (η_{S2} App). La viscosité réelle (η_{S2} Re=0) est ensuite obtenue en corrigeant les effets de bord. Le calcul du taux de cisaillement permet enfin de tracer $\eta = f(\dot{\gamma})$. Le liquide utilisé est ensuite étudié avec le rhéomètre. La viscosité mesurée sera notée (η_{S1} Ref). En fonction des gammes de viscosités diverses géométries Couette du Rheolab QC (Anton Paar, Autriche) ont été utilisées (DG42, CC17, CC10...). Pour chaque expérience la température de mesure, identique pour les deux expériences, est notée.

3.1. Validation de la correction des effets de bord

Pour valider la méthode nous avons réalisé une trentaine de mesures sur de la glycérine. Ce matériau a un comportement newtonien : sa viscosité ne dépend pas du taux de cisaillement. Nous avons relevé une température de 21.8 ± 0.4 °C pendant ces mesures. Nous avons utilisé pour faire ces mesures les 4 billes en Polyacétal de diamètre variant entre 2 et 5 mm.

Les résultats obtenus avec la méthode de la bille et le viscosimètre sont représentés sur la *Figure II.12*.

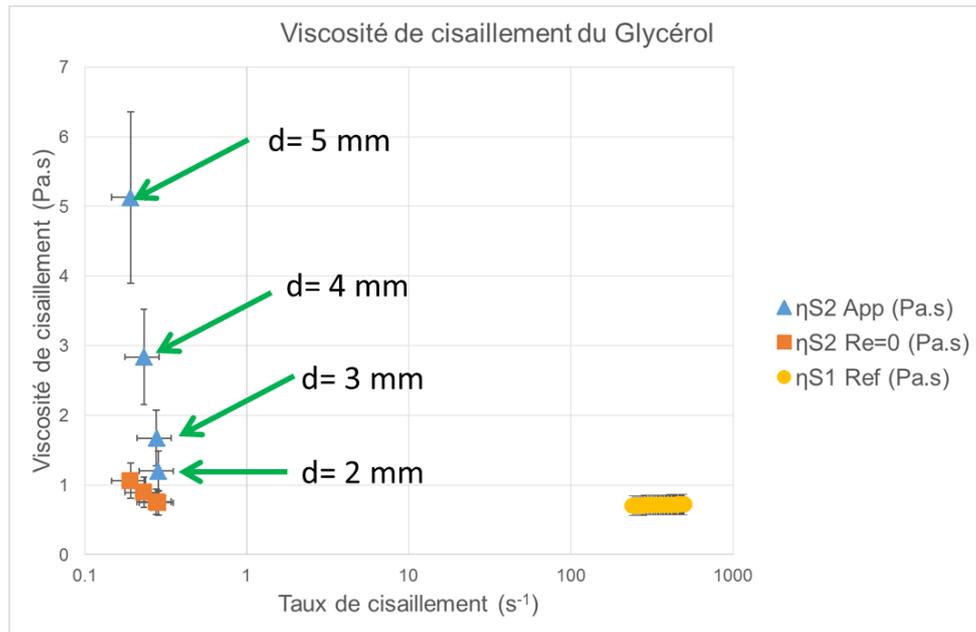


Figure II.12. Mesure de la viscosité de cisaillement pour la glycérine avec la méthode de la bille et le viscosimètre.

Le premier constat est que la correction des effets de bords est correcte puisque toutes les viscosités après correction des effets de bord sont du même ordre de grandeur. Il est cependant à noter que l'on a tendance à sous-estimer la correction. On peut cependant remarquer que la viscosité obtenue avec la bille se rapproche de plus en plus de la viscosité du rhéomètre si les billes sont de plus en plus petites. Ceci revient à dire que les effets de bord sont de moins en moins importants même s'ils restent quand même très élevés. Par exemple avec la bille de 2 mm il existe un facteur 2 entre la viscosité apparente et corrigée. Pour cette méthode, la viscosité obtenue est 0.76 ± 0.15 Pa.s et la viscosité mesurée avec le rhéomètre vaut 0.70 ± 0.10 Pa.s. Il est à noter par ailleurs que ces valeurs obtenues sont en accord avec les valeurs données dans la référence « Glycerine Producer's Association book » [GPA-63].

3.2. Mesures sur divers liquides transparents

3.2.1. Miel

Pour valider la méthode pour des valeurs de viscosités élevées nous avons d'abord choisi le miel car c'est un liquide facile à se procurer. Il s'agit d'un miel de supermarché dont la teneur en eau (qui conditionne fortement la viscosité) a été estimée à 17 % en

utilisant un réfractomètre à miel (ATAGO Pocket). Pour ce liquide, les billes utilisées sont celles en Téflon avec tous les différents diamètres. La température relevée est de 21.4 ± 0.6 °C. Les résultats sont présentés ci-dessous (*Figure II.13*). Nous constatons que nous avons obtenu des valeurs cohérentes par rapport à celles données par le viscosimètre. En moyenne la méthode de la bille donne pour le miel une viscosité de 9 ± 2 Pa.s pour des taux de cisaillement de 0.1 à 0.2 s^{-1} . L'erreur de mesure assez importante est due à la présence de microbulles qui perturbent la chute.

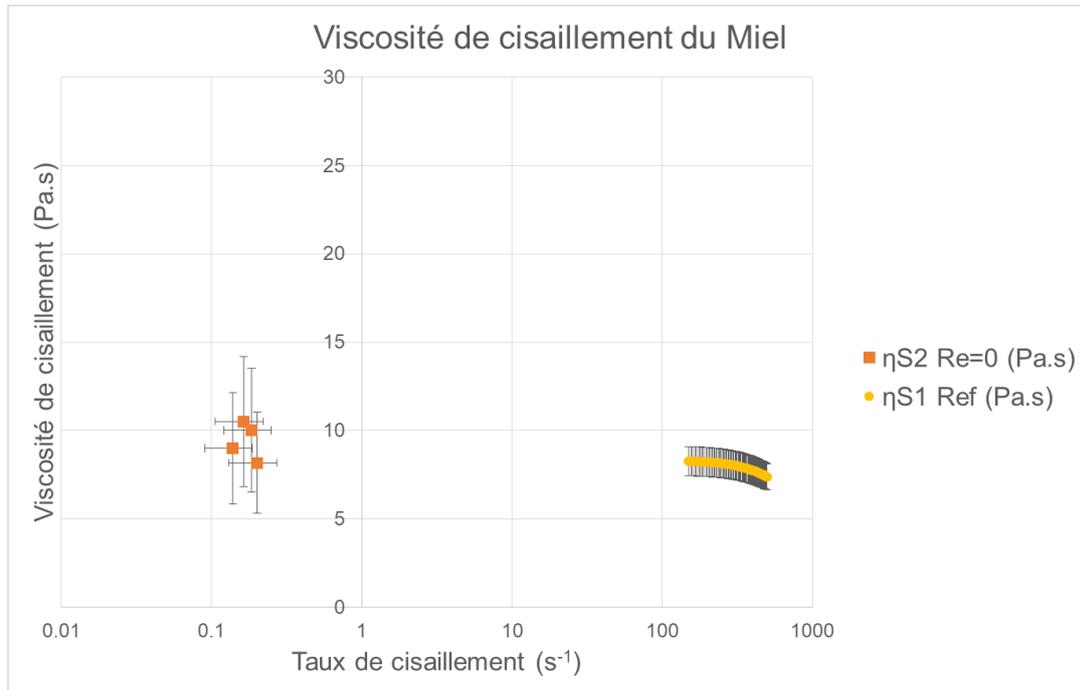


Figure II.13. Mesure de la viscosité de cisaillement pour le Miel avec la méthode de la bille et le viscosimètre.

3.2.2. Huiles silicone

Pour élargir la gamme de viscosités nous nous sommes intéressés aux viscosités des huiles silicone qui sont des liquides newtoniens en basses fréquences et rhéo-fluidifiants en hautes fréquences. Nous avons utilisé les huiles silicone présentées dans les *tableaux II.1 et II.2*. La première l'huile (Brookfield Middleborough, MA 02346, USA) que nous possédions déjà au niveau du laboratoire est visuellement plus visqueuse que le miel. La viscosité annoncée par le fabricant est 30 Pa.s. Les autres huiles V50 et V350 (fournies par P. Maréchal du Havre) sont censées avoir des viscosités de 50 et 350 mPa.s pour les faibles taux de cisaillement (Voir *Figure II.14*) pour une température de 25°C. Sur le graphe suivant la viscosité présentée par le fabricant est la viscosité cinématique c'est-à-dire la viscosité divisée par la masse volumique. Sachant que pour les différentes huiles la masse volumique est très proche de 1000 $Kg.m^{-3}$ il suffit de multiplier par 1000 les valeurs données dans le tableau puis de les diviser par 10^6 pour les obtenir en Pa.s. Ceci revient en fait à conserver les valeurs de ce graphe et de considérer qu'il s'agit de la viscosité dynamique en mPa.s. Ainsi, ce graphique présente les viscosités des huiles allant de 1000 à 500 000 mPa.s. Les courbes de nos huiles V50 (50 mPa.s) et V350 (350 mPa.s) ne sont pas représentées mais le fabricant les garantit newtoniennes pour les faibles taux de cisaillement (ou gradient de vitesse).

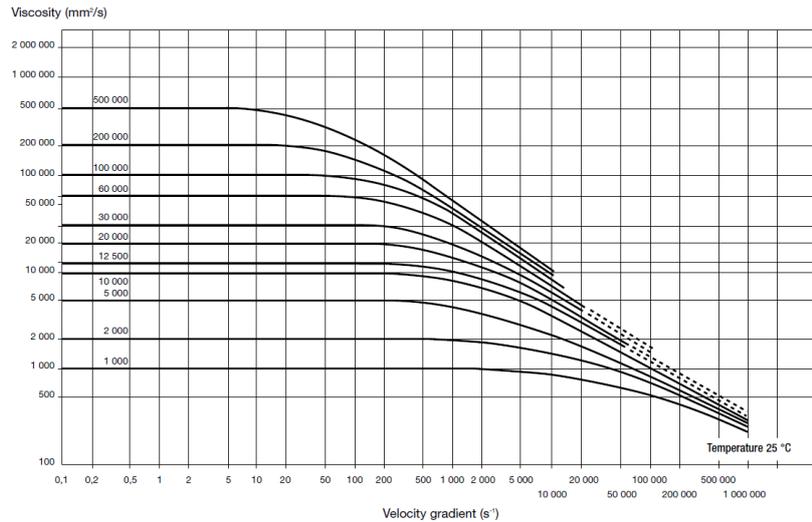


Figure II.14. Viscosité cinématique des huiles silicone [BLUE-18].

Dans sa thèse, N. Samet [SAME-12] qui lui aussi s'est intéressé aux huiles silicones Rhodorsil propose une loi (loi de Cross) générale permettant d'ajuster en première approximation toutes ces courbes. Dans ces relations, f représente la fréquence ou le taux de cisaillement (grandeurs équivalentes en vertu du principe de Cox-Merz) et η_0 la viscosité sur le plateau newtonien basse fréquence. Par exemple pour l'huile V50, η_0 vaut 50 mPa.s

$$\eta = \eta_0 \left[1 + \frac{f}{f_0} \right]^{m-1} \quad (\text{II.11-a})$$

Avec :

$$f_0 = \frac{5 \cdot 10^7}{\eta_0} \quad (\text{II.11-b})$$

Et

$$m = 1 - 0.05 \left[9 + \log_{10}(\eta_0) \right] \quad (\text{II.11-c})$$

Le graphe suivant (Figure II.15), que l'on retrouve d'ailleurs dans la thèse de Samet met clairement en évidence que pour les taux de cisaillement que nous considérons ici, les huiles V50 et V350 étudiées sont newtoniennes.

Nos résultats expérimentaux sont présentés sur la Figure II.16. Ici encore on obtient un très bon accord entre les mesures effectuées avec la méthode de chute de bille et celles du rhéomètre. La viscosité minimale mesurée est voisine de 40 mPa.s. Les résultats obtenus pour l'huile Brookfield sont donnés Figure II.17.

Remarque : puisque la mesure a été possible sur l'huile V50, on pouvait s'attendre à mesurer la viscosité de la solution eau/sucre pour une teneur en sucre de 60 %. Divers tests réalisés n'ont pas permis d'y parvenir. La bille semble avoir un mouvement assez aléatoire lors de sa chute. Nous attribuons cela à des inhomogénéités de concentration

dans la solution sucrée. Par ailleurs la rupture d'impédance acoustique est très faible entre l'eau sucrée et la bille ce qui complique encore la mesure.

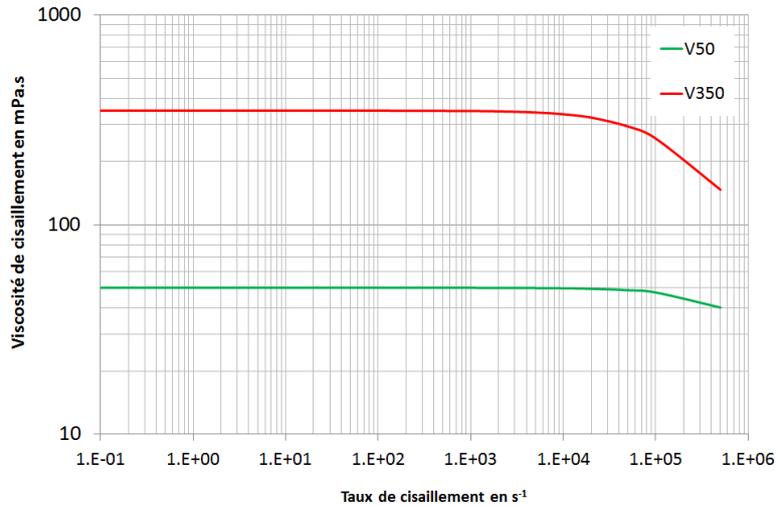


Figure II.15. Viscosité dynamique des huiles silicone V50 et V350 obtenues avec les relations (II-11-a), (II-11-b) et (II-11-c).

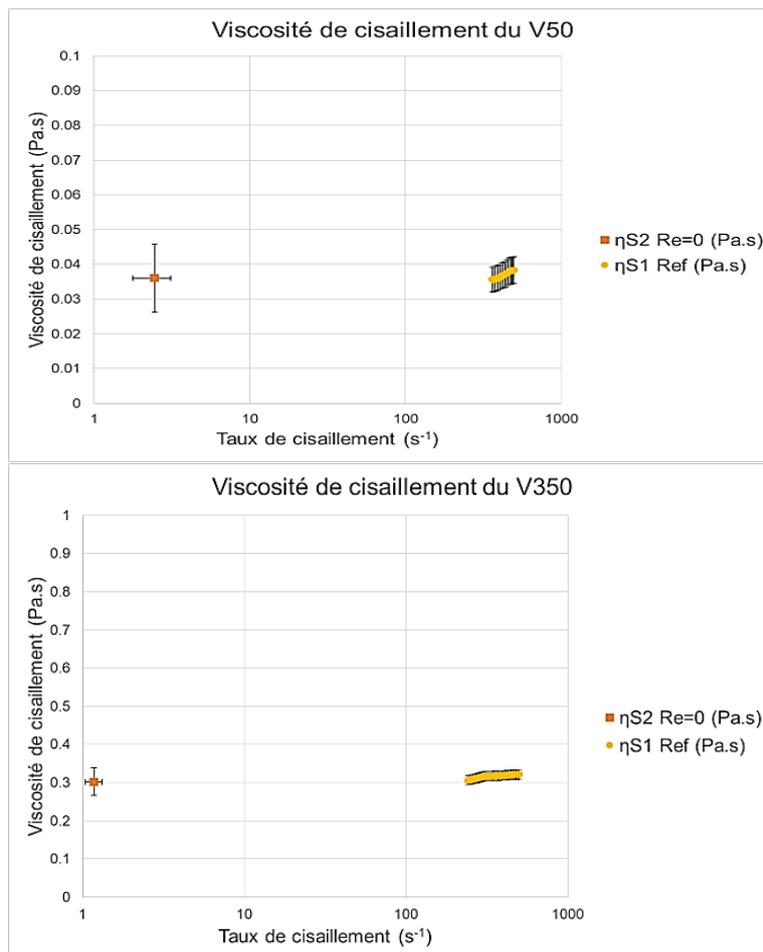


Figure II.16. Mesure de la viscosité de cisaillement pour les huiles V50 et V350 avec la méthode de la bille et le viscosimètre.

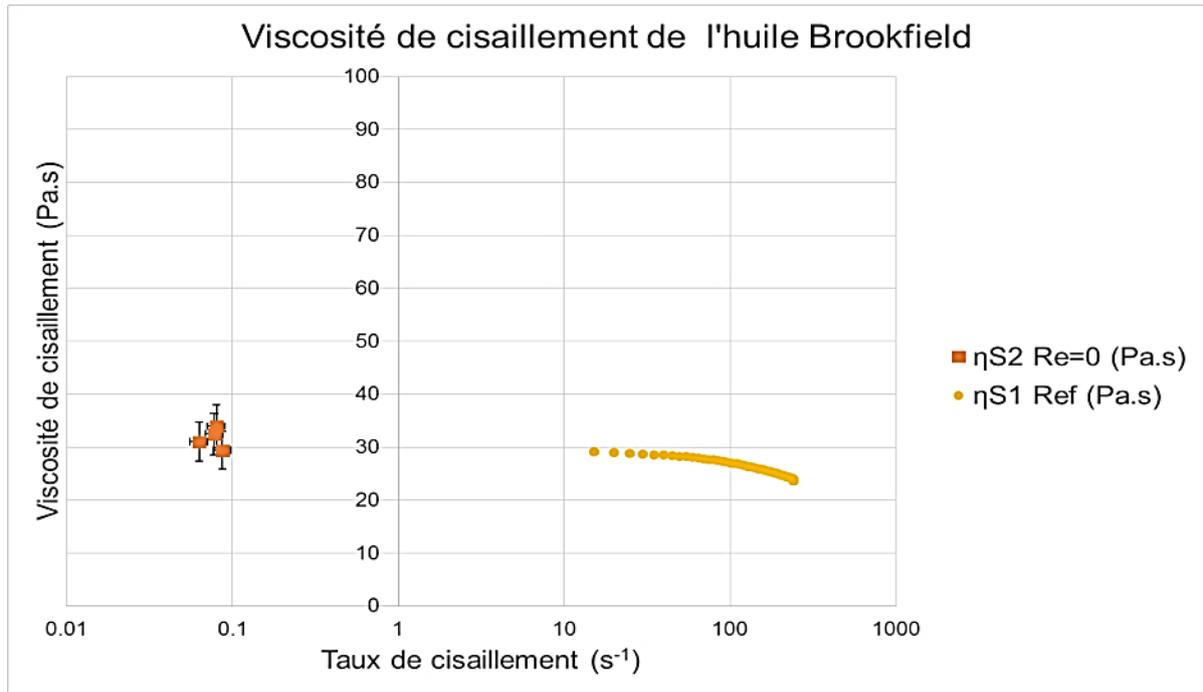


Figure II.17. Mesure de la viscosité de cisaillement pour l'huile de Brookfield avec la méthode de la bille et le viscosimètre.

3.3. Test sur un liquide opaque non newtonien : le ketchup

Pour tester le banc de mesure sur un liquide opaque nous avons choisi le ketchup. Il est doublement intéressant car il est non newtonien. Il s'agit d'un fluide à seuil thixotrope. Sa viscosité diminue dans le temps pour un taux de cisaillement donné. Par contre il présente aussi un comportement rhéofluidifiant : sa viscosité diminue si le taux de cisaillement augmente. Dans la littérature nous avons trouvé deux graphes (Figure II.18 a et b) qui montrent que pour les taux de cisaillement généralement obtenus avec un viscosimètre à bille il faut s'attendre à une viscosité très élevée (> 100 Pa.s). S'agissant de captures d'écran sur internet il n'a pas été possible d'obtenir une meilleure qualité d'image.

Pour ce liquide les billes précédemment décrites ont des temps de chute extrêmement longs. C'est pourquoi nous avons utilisé une bille en acier de diamètre 6 mm. Par ailleurs comme pour les autres matériaux le ketchup a été analysé avec le viscosimètre Couette. Les résultats sont présentés sur la Figure II.19.

Avec cette bille nous avons obtenu une viscosité de 204 ± 30 Pa.s. Cela reste conforme à la mesure faite avec le viscosimètre et la bibliographie. La température notée était de 21.1 °C.

Il est important de remarquer que la correction des effets de bords reste efficace même pour cette bille qui fait 6 mm de diamètre pour un tube de diamètre interne de 10 mm. La viscosité apparente est de l'ordre de 1200 Pa.s, ce qui constitue un facteur 6 par rapport à la viscosité de cisaillement réelle.

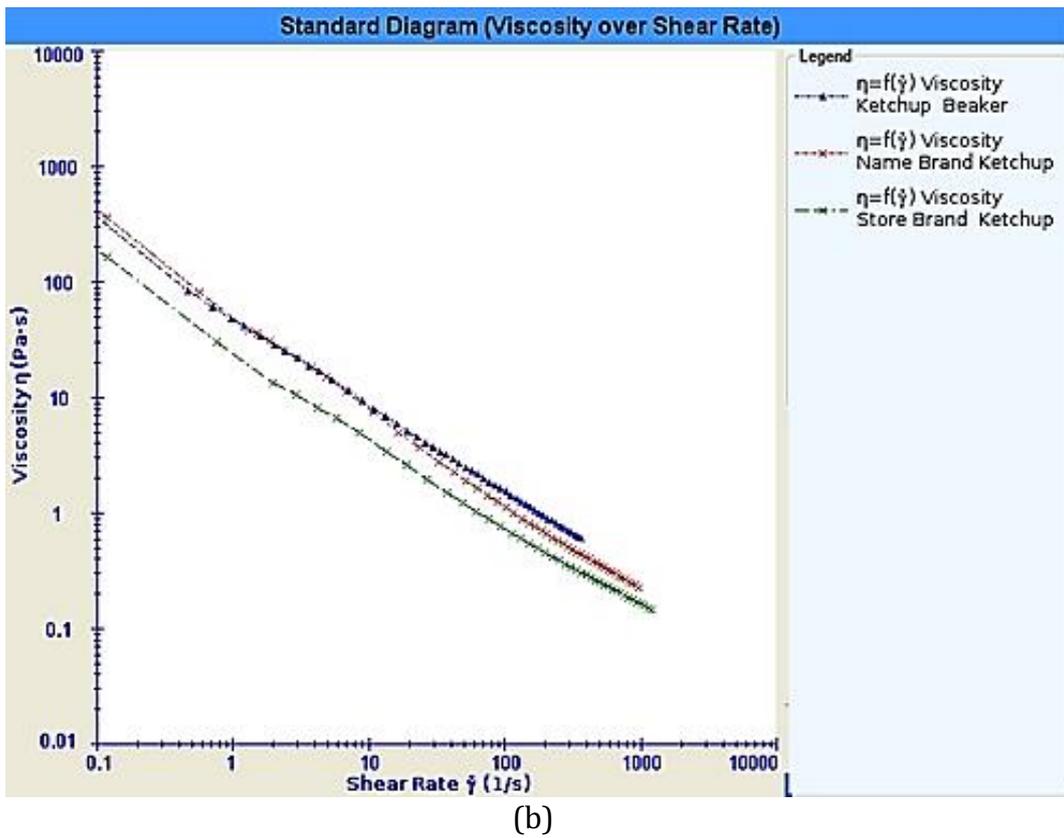
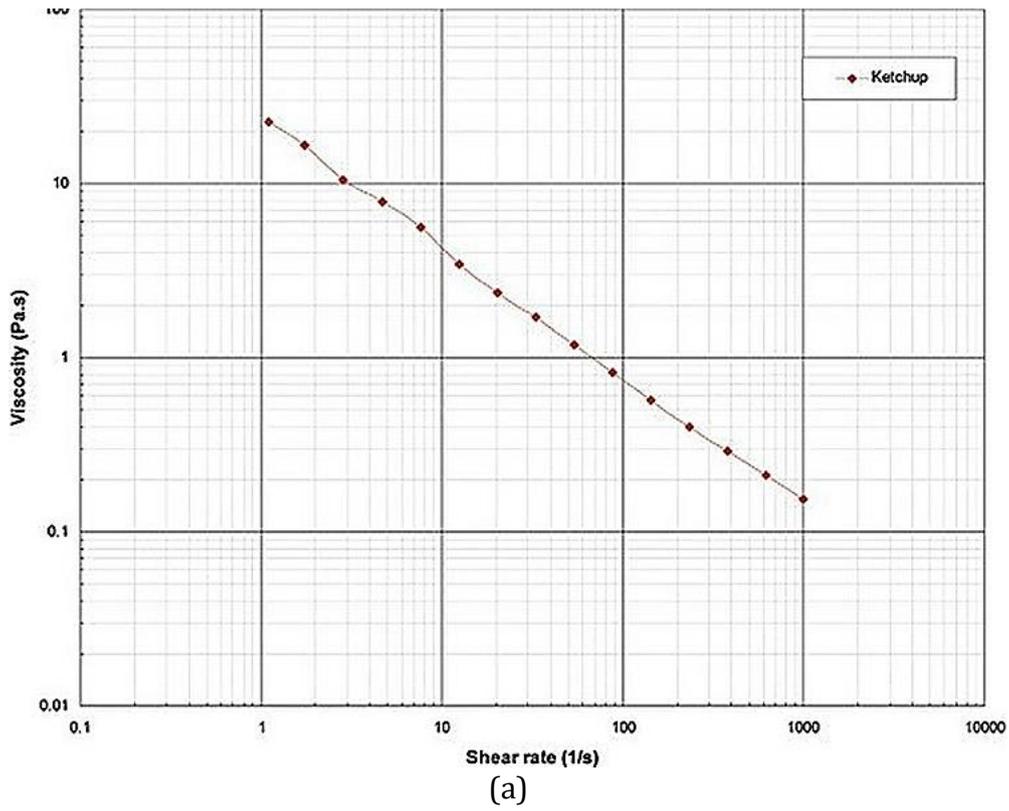


Figure II.18. Viscosité d'un ketchup.
 (a) [LABC-18] $T^{\circ}=25^{\circ}\text{C}$.
 (b) [BROO-18b] T° non précisée.

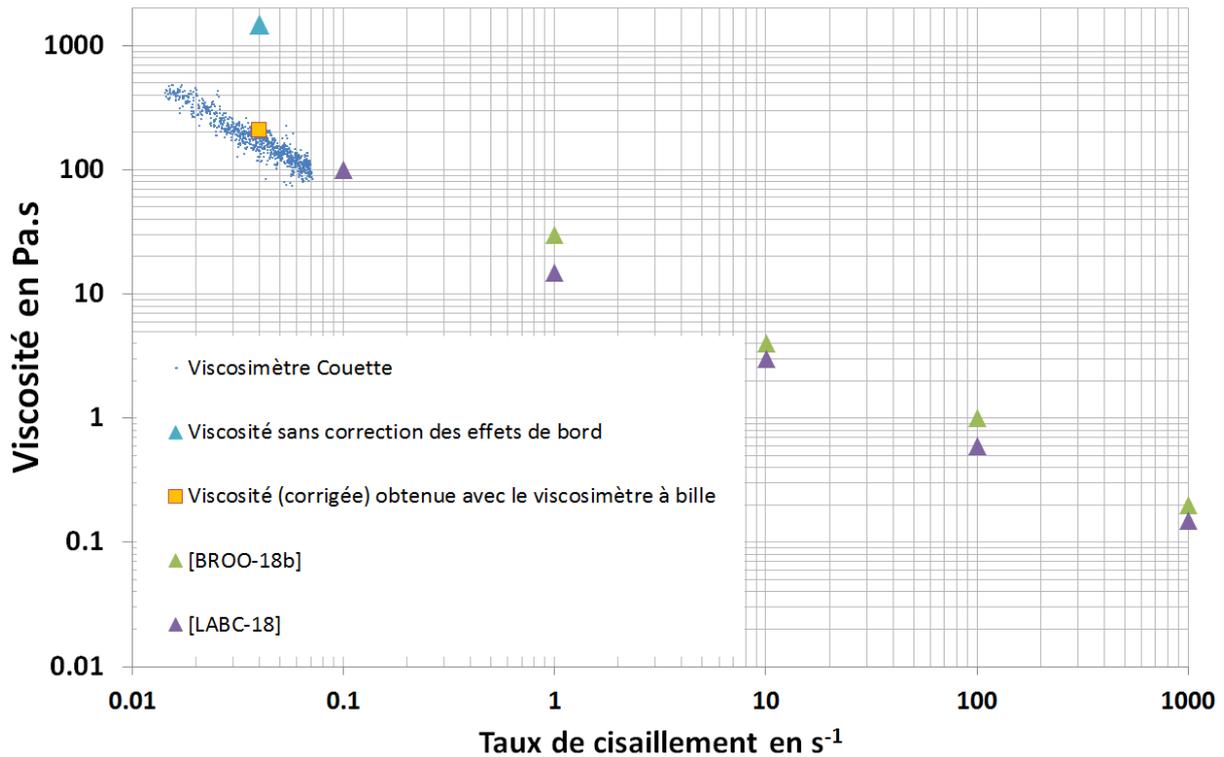


Figure II.19. Synthèse de l'analyse du Ketchup.

3.4. Synthèse et discussion

Pour synthétiser l'ensemble des mesures nous avons reporté sur la *Figure II.20* pour chaque liquide étudié la moyenne des viscosités mesurées avec les billes en fonction de la viscosité de référence mesurée par le viscosimètre Couette. Pour le cas du ketchup il s'agit de la viscosité mesurée pour le taux de cisaillement valant 0.04 s^{-1} .

Sans surprise au regard des paragraphes précédents la courbe suit la première bissectrice montrant l'excellente corrélation entre les mesures réalisées avec la chute de bille et le rhéomètre de référence. Le tracé est logarithmique car la gamme de viscosité couverte est très étendue : 40 mPa.s à plus de 200 Pa.s.

En moyenne la viscosité reste mesurée avec une incertitude assez élevée valant environ 20 %. Ceci est dû à divers aléas que nous ne pouvons pas contrôler avec le banc actuel : chute exactement au centre du tube, mouvement de rotation, lenteur de l'acquisition des signaux ($> 1 \text{ s}$ entre deux acquisitions). Pour réduire cette dernière incertitude, utiliser la mémoire interne d'un oscilloscope et ne rapatrier les signaux qu'après l'expérience serait une voie intéressante que nous n'avons pas encore testée. Par contre un positionnement différent des transducteurs a été testé. Dans cette configuration nous avons utilisé 2 transducteurs en mode réflexion, relié ensemble avec un « T » au niveau du générateur de pulses. Ainsi donc le signal visualisé à l'oscilloscope est la somme de l'écho réfléchi dans le tube pour la sonde n°1 et de l'écho réfléchi dans le tube pour la sonde n°2. Si une bille chute dans le tube, le signal sera alors perturbé 2 fois. Comme la

distance entre les 2 sondes est grande (environ 6 cm), la précision de mesure sur le temps de perturbation T_p' sera meilleure (Voir Figure II.21).

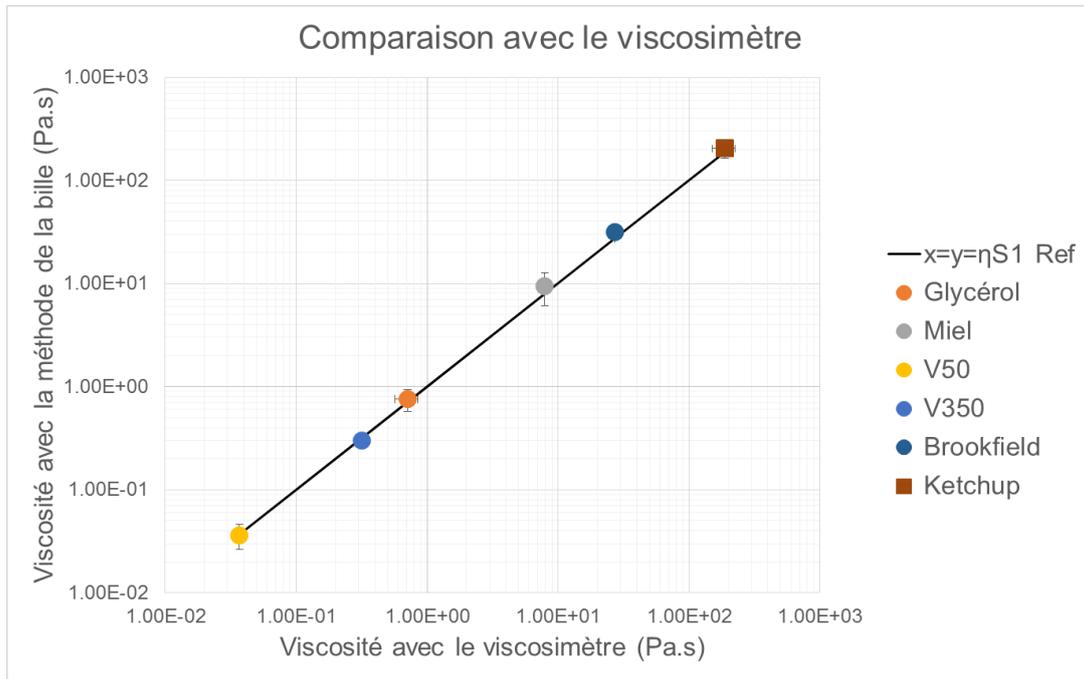


Figure II.20. Comparaison des mesures de viscosité de cisaillement faites avec la méthode de la bille et le viscosimètre.

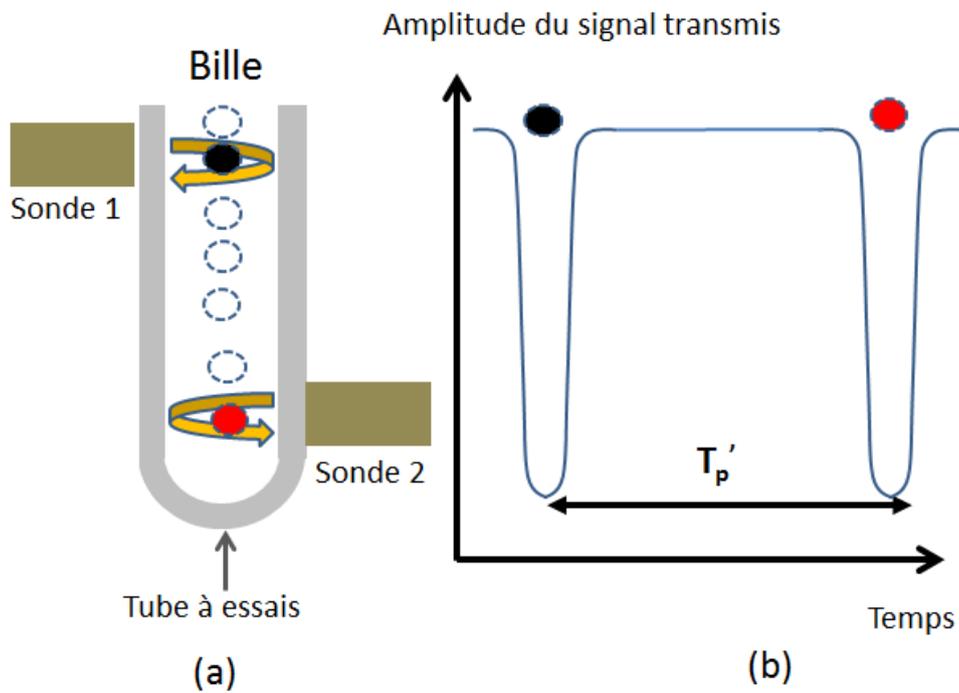


Figure II.21. Principe de la mesure de ν par méthode ultrasonore en configuration dite « décalée ».

Cette configuration est fonctionnelle (Voir *Figure II.22*) et peut donc être utilisée mais nécessite le démontage des transducteurs après l'expérience pour passer à la mesure de viscosité longitudinale que nous allons présenter au prochain chapitre. C'est pour cette raison que nous avons préféré conserver la configuration présentée sur la *Figure II.6* tout au long de ce travail puisqu'elle permet d'obtenir à la fois η_S , η_L et V_L sans modification du banc expérimental.

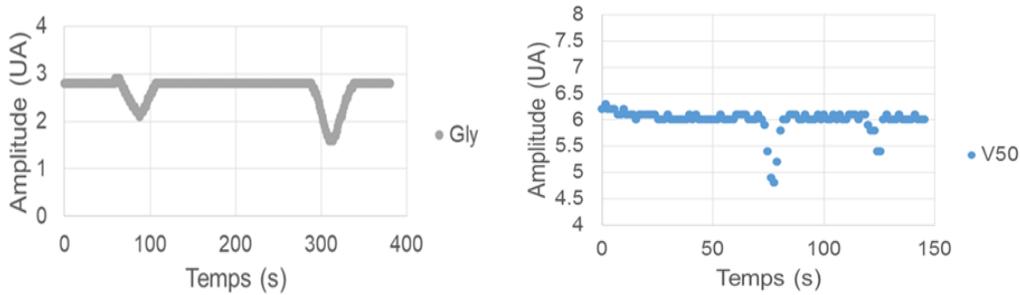


Figure II.22. Perturbation des faisceaux ultrasonores dans la configuration « décalée » pour le glycérol et l'huile V50. T_p est voisin de 220 secondes pour le glycérol et de 38 secondes pour l'huile V50.

Conclusion

Tout au long de ce chapitre nous avons présenté la mise en place d'un banc de mesure dédié à la mesure de la viscosité de cisaillement de liquides opaques ou transparents en utilisant la détection d'une bille par ultrasons. La gamme de viscosités atteinte est très large puisqu'elle s'étend environ de 40 mPa.s à plus de 200 Pa.s. En ce qui concerne la limite supérieure, à priori rien n'interdit de mesurer les viscosités encore plus grandes. En effet en utilisant une bille d'acier de 6 mm de diamètre chutant dans le ketchup le temps d'interception du faisceau valait 145 s soit 2 minutes 25 s. Réaliser des mesures sur des temps de 5 à 10 minutes reste très tolérable, ce qui permet donc à priori d'atteindre des viscosités de 500 Pa.s à 1000 Pa.s.

En ce qui concerne la limite basse, la problématique est un peu plus complexe. En effet, tout d'abord, si les temps de chute deviennent plus faibles, le système d'acquisition actuel reste trop lent. Ceci n'est cependant pas rédhibitoire car, comme cela a été mentionné, l'acquisition d'un oscilloscope plus rapide ou la modification de la récupération des données devrait régler le problème. Par ailleurs on peut augmenter le temps à mesurer en utilisant la configuration « décalée » même si cela n'est pas trop souhaitable pour conserver un banc de mesure compatible avec la mesure conjointe de η_S , η_L et V_L . En fait le problème majeur vient du nombre de Reynolds. Pour toutes les mesures réalisées, nous avons bien pris soin de vérifier que $Re < 0.1$ (Voir *Figure II.23*).

En se rappelant que pour un milieu infini le nombre de Reynolds est donné par la relation (II.12), la solution est de prendre des billes petites en polystyrène (~ 1 mm) en espérant que le liquide étudié ait une masse volumique proche de 1050 kg.m^{-3} .

$$Re = \frac{d^3}{18\eta_S^2} g(\rho_B - \rho_L) \rho_L \quad (\text{II.12})$$

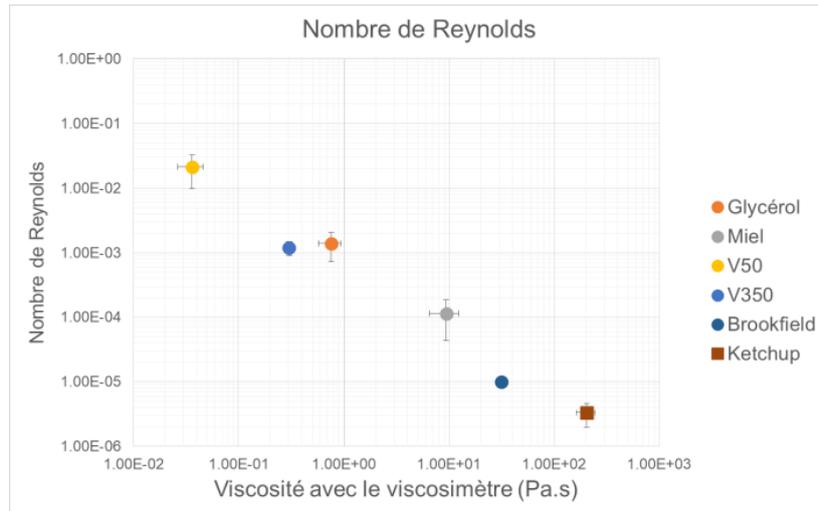


Figure II.23. Valeur du nombre de Reynolds en fonction de la viscosité de cisaillement mesurée avec la méthode de la bille pour chaque liquide.

On retrouve donc la configuration proposée par Eguchi pour du sang. Nous pensons cependant que la manipulation de si petites billes reste complexe pour réaliser un appareil pratique à utiliser. Par ailleurs la rupture d'impédance entre le liquide et la bille est si faible que la perturbation du faisceau par la bille passe inaperçue. Nous avons pu vérifier cela sur les solutions à faibles taux de sucre. C'est pourquoi Eguchi d'ailleurs revêt ses billes d'une couche de platine-palladium. Ici encore nous pensons que cela complique trop le banc expérimental.

Pour la suite nous proposons donc de mettre en œuvre pour les très faibles viscosités un système de mesure à bille roulante (voir Figure II.24). Il est possible de montrer que dans ce cas le temps de roulage est proportionnel à la viscosité, le facteur de proportionnalité étant établi pour le couple (bille / tube) par un étalonnage préalable [HUBB-43]. Cette approche combinée à la configuration « décalée » devrait permettre d'obtenir des résultats précis pour des viscosités de l'ordre de quelques mPa.s. Les travaux sont en cours en ce sens.

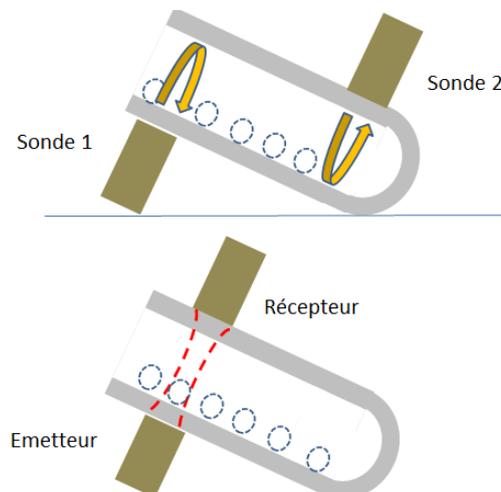


Figure II.24. Méthode à bille roulante en mode transmission ou « décalée ».

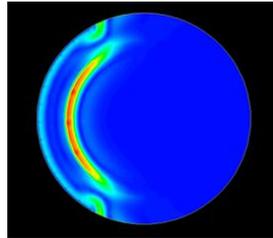
Références bibliographiques

- [BASS-88] A. B. Basset. A treatise of hydrodynamics. Deighton Bell, Cambridge (republished: Dover publications, New York, 1961). (1888).
- [BLUE-18] BlueStar Silicones. Rhodorsil Huiles 47 : information technique. Web Site <http://www.bluestarsilicones.com/> (2018).
- [BOUS-03] V. Boussinesq. Théorie analytique de la chaleur. Gauthier-Villars, Paris. 2 (1903).
- [BRIZ-05] M. Brizard. Développement et étude d'un viscosimètre absolue à chute de bille. Thèse de Doctorat de l'Université de Joseph Fourier. Soutenue le 20 Mai 2005.
- [BROO-18a] Brookfield Ametek. Web Site. www.brookfieldengineering.com/products/viscosity-standards/general-purpose-oil.
- [BROO-18b] Brookfield Ametek. Web Site <http://www.brookfield.co.uk/education/applications/laboratory-ketchup.asp>.
- [CLIF-78] R. Clift, J. R. Grace and M. E. Weber. Bubbles, drops and particles. Academic Press, New York/London (1978).
- [CONT-92] Contreras, N.I., Fairley, P., McClements, D.J., Povey, M.J.W., Analysis of the sugar content of fruit juices and drinks using ultrasonic velocity measurements. International Journal of Food Science & Technology, 27(5), 515-529 (1992).
- [EGUC-08] Y. Eguchi, T. Karino. Measurement of rheologic property of blood by a falling-ball viscometer. Annals of Biomedical Engineering, Vol. 36, No. 4, April 2008.
- [FAXE-22] H. Faxen. Die Bewegung einer starren Kugel langs der Achse eines mit zäher Flüssigkeit gefüllten Rohres. Arkiv für matematik, Astronomi och Fysic. 17, 1-28 (1922).
- [FLUD-82] C. Flude and J. E. Daborn. Viscosity measurement by means of falling spheres compared with capillary viscometry. J. Phys. E : Sci. Instrum. 15, 1313-1321 (1982).
- [GPA-63] Glycerine Producers' Association, 1963. Physical properties of glycerine and its solutions.
- [GUI-96] F. Gui, T. F. Irvine, Jr. An absolute Falling tube Viscosimeter. Experimental Thermal and Fluid Science. 1996 (12:325-337).
- [HAPP-83] J. Happel and H. Brenner. Low Reynolds number hydrodynamics. Nijhoff, Dordrecht. (1983).
- [HUBB-43] R.M. Hubbard and G. Granger Brown. The Rolling Ball Viscometer. Industrial and Engineering Chemistry. Mars 1943.

- [LABC-18] <https://www.labcompare.com/10-Featured-Articles/681-A-High-Performance-Fully-Self-Contained-Rotational-Viscometer/>.
- [LAUX-11] D. Laux, V. Cereser Camara, E. Rosenkrantz. α - relaxation in honey study versus moisture content : high frequency ultrasonic investigation around room temperature. *Journal of Food Engineering*. 103 (2011) 165-169.
- [LOHR-60] J. Lohrenz, G.W. Swift, F. Kurata. An experimentally verified theoretical study of the falling cylinder viscometer. *AIChE. J.* 6 (4) (1960) 547-550.
- [LOMM-01] T. Lommatzsch, M. Megharfi, E. Mahe et E. Devin. Conceptual study of an absolute falling ball viscometer. *Metrologia*, 38, 531-534 (2001).
- [LORE-07] H. A. Lorentz. *Abhand. Theor. Phys.* 1,23 (1907).
- [MORD-00] N. Mordant and J.-F. Pinton. Velocity measurement of a settling sphere. *Eur. Phys. J. B* 18, 343-352 (2000).
- [OH-95] M. Oh, Y. Tanaka and S. Fujino. The Development of viscosity measurement system based on the falling ball method using image processing. *Keisoku Jido Seigyo Gakkai Rombunshu*. 31, 399-401 (1995).
- [OSSE-27] C. W. Ossen. *Neuere Methoden und Ergebnisse in der Hydrodynamik*. Akademische Verlagsgesellschaft. Leipzig. 10 (1927).
- [SAME-12]. N. Samet. Evaluation ultrasonore des propriétés d'une résine et détection de porosité à l'aide d'un transducteur multiéléments. Application aux matériaux composites en cours de fabrication. Thèse de doctorat de l'Université du Havre. 2012.
- [STOK-51] G. C. Stokes. On the theories of the Internal Friction of Fluids in Motion, and of the Equilibrium and Motion of Elastic Solids. *Transactions of Cambridge Philosophical Society*. 9, 8-106 (1851).
- [TRAN-88] R. Tran-Son-Tay, B. E. Coffey, R. M. Hochmuth. A rheological study of packed red blood cell suspensions with an oscillating ball micro rheometer. *Biorheology*. 26. 143-151. (1989).
- [WANG-94] J. Wang et al A computer-interfaced falling ball viscometer. *Journal Biochem. Biophys. Methods*' 28 (1994)251-261.

CHAPITRE 3

VISCOSIMETRIE ULTRASONORE LONGITUDINALE HAUTE FREQUENCE



Propagation d'une onde longitudinale cylindrique dans un liquide visqueux. Simulation par éléments finis (CAST3M)

Introduction

1. Méthode de référence au laboratoire : l'indentation

- 1.1. Description de la méthode
- 1.2. Prise en compte des effets de diffraction

2. Méthode adaptée aux mesures sur tube à essai

- 2.1. Description générale de la méthode et traitement des signaux
 - 2.1.1. Traitement A : double transformée de Fourier
 - 2.1.2. Traitement B : méthode différentielle
- 2.2. Validation numérique des traitements du signal proposés
- 2.3. Protocole de mesure

3. Résultats expérimentaux

- 3.1. Validation de la méthode
 - 3.1.1. Vitesse
 - 3.1.2. Atténuation et viscosité longitudinale
- 3.2. Premières courbes maîtresses
 - 3.2.1. Glycérine
 - 3.2.2. Miel
 - 3.2.3. Huile V350
 - 3.2.4. Huile Brookfield
 - 3.2.5. Ketchup

Conclusion

Références bibliographiques

Introduction

Les approches expérimentales dédiées à la mesure de la viscosité longitudinale et donc à la mesure de la célérité et de l'atténuation longitudinale sont extrêmement nombreuses dans la littérature. On peut cependant se référer aux travaux de Dukhin pour avoir une vision assez complète de la problématique [DUKH-09]. Ce genre de thématique est d'ailleurs toujours d'actualité puisque l'on peut citer les travaux récents de Voleisis [VOLE-17] qui utilise plusieurs transducteurs pour la caractérisation de la coagulation sanguine.

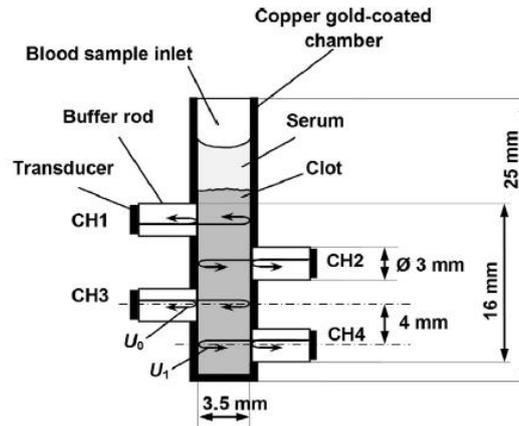


Figure III.1. Utilisation de 4 transducteurs pour le suivi de la coagulation sanguine [VOLE-17].

Quelle que soit la méthode expérimentale, en fait il s'agit de mesurer la vitesse et l'atténuation lors de la propagation de l'onde acoustique. Donc il s'agit toujours d'évaluer soit un temps de vol dans le domaine temporel soit un espacement fréquentiel si les traitements sont réalisés dans le domaine des fréquences. Comme nous l'avons déjà mentionné en introduction générale de ce travail de thèse, Sinha [SINH-01] en particulier a réalisé un important travail à ce sujet pour obtenir un banc de mesure très performant. En ce qui nous concerne, ses travaux ne sont pas directement transposables à notre étude. En particulier, pour la mesure d'atténuation Sinha précise bien que l'étude de la largeur des pics dans le domaine de Fourier permet d'estimer l'atténuation mais après un étalonnage préalable [BLAH-10]. Ceci implique donc que les transducteurs soient fixés définitivement au récipient contenant le liquide. Si les transducteurs sont démontés, l'étalonnage est à refaire. Ainsi donc, comme nous souhaitons développer un instrument où le tube à essai peut être retiré après chaque mesure il faudra procéder différemment et développer une méthode absolue de mesure.

Dans ce chapitre nous allons présenter deux méthodes permettant de mesurer la célérité ultrasonore dans notre tube à essai. Nous avons opté pour deux méthodes pour pouvoir ici encore couvrir une large gamme de viscosités. Nous reviendrons sur ce point plus loin.

En ce qui concerne la mesure d'atténuation, les divers tests réalisés pendant cette thèse ont conduit à choisir une méthode dite « référentielle » (d'ailleurs évoquée par Sinha) qui, nous le verrons, donne de bons résultats. Bien-sûr tous les résultats obtenus seront comparés à une méthode de référence au sein de l'équipe, la méthode d'indentation

présentée au Chapitre 1. Ainsi donc après avoir évoqué à nouveau cette méthode d'indentation très rapidement nous insisterons sur les effets de diffraction qui peuvent fausser les mesures d'atténuation. Ce point n'avait pas été détaillé au Chapitre 1. Dans un second temps nous présenterons l'approche expérimentale mise en place pour mesurer η_L ainsi que les divers traitements du signal mis en œuvre.

Après validation de ces traitements du signal et des logiciels associés sur des signaux simulés, les résultats expérimentaux concernant la mesure de la célérité et de l'atténuation seront présentés et commentés. Ici encore les matériaux test seront la glycérine, l'eau sucrée, le miel et les huiles silicone.

1. Méthode de référence au laboratoire : l'indentation

1.1. Description rapide de la méthode

Comme nous l'avons déjà signalé dans le Chapitre 1, le principe de mesure consiste à utiliser un transducteur ultrasonore plan large bande qui génère dans le liquide à étudier une onde longitudinale. Ce signal, réfléchi sur le fond du récipient contenant le liquide constitue l'écho à traiter. Ensuite, pas à pas, la distance (transducteur, fond du récipient) est réduite. A chaque pas, l'écho est acquis via une interface USB/GPIB. A la fin de l'expérience, on obtient donc n échos correspondant à n distances entre le capteur et le fond du récipient. Comme la distance est réduite au cours de chaque étape de la mesure, le temps de vol (temps nécessaire à la propagation dans le liquide) des échos successifs a également été réduit. En outre, l'amplitude des échos a augmenté lors de l'expérience, car la distance est réduite et le signal ultrasonore s'est propagé sur une distance de plus en plus petite dans le liquide viscoélastique. Après traitement, la vitesse longitudinale ainsi que l'atténuation (en fonction de la fréquence) sont obtenues sur la bande passante du transducteur ultrasonore.

La photographie ci-dessous présente notre banc de mesure actuel. Contrairement aux mesures en transmission pour lesquelles la correction des effets de diffraction n'a pas à être effectuée si on utilise une pré-mesure de référence, dans le cas des mesures en réflexion il est nécessaire de s'intéresser à ce phénomène. Ceci est l'objet du paragraphe suivant.

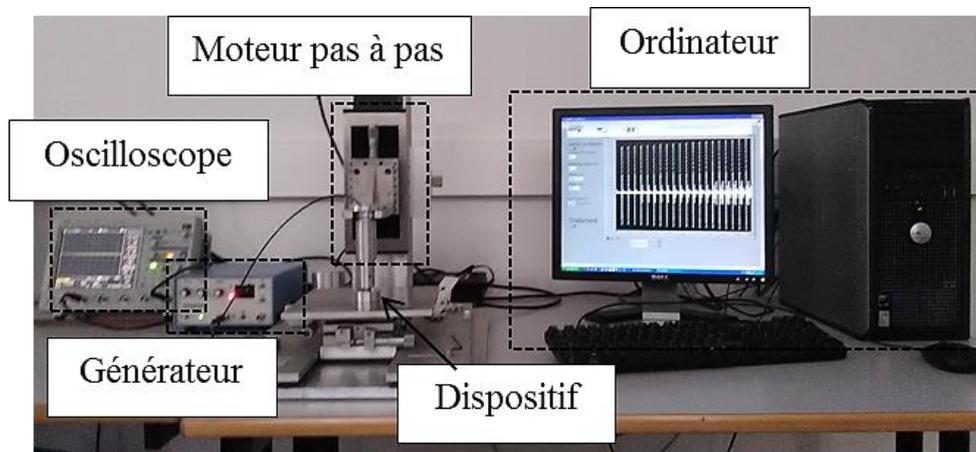


Figure III.2. Banc de mesure de la méthode d'indentation.

1.2. Prise en compte des effets de diffraction

Les dimensions finies du transducteur font que le champ émis par la sonde n'est pas celui d'une onde plane [LAUX-18a][LEVE-07][ROUM-12]. Ainsi, le champ de pression est beaucoup plus complexe que l'on peut l'imaginer. Une des conséquences majeures est l'apparition de phénomènes de diffraction conduisant en particulier à une non-directivité du faisceau (Figure III.3).

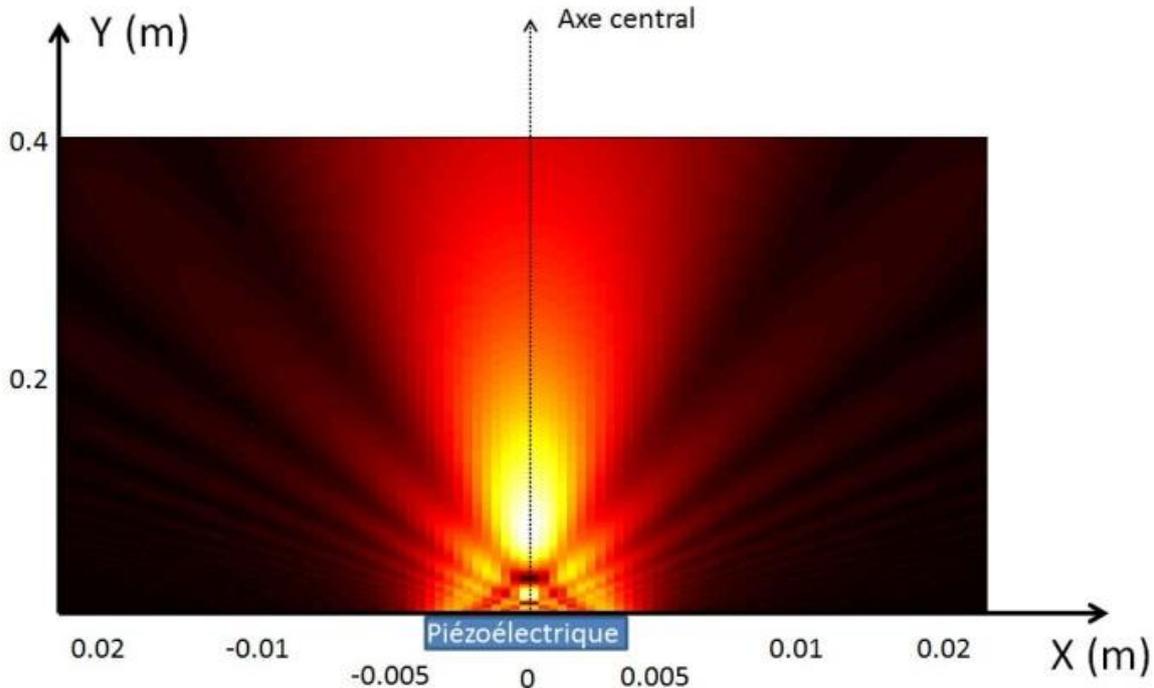


Figure III.3. Représentation dans le plan X-Y du champ de pression théorique d'une sonde de 10 mm de diamètre émettant dans de l'eau.

L'analyse détaillée du champ de pression (calculé par l'intégrale de Rayleigh) sur l'axe de la sonde (c'est-à-dire en $X = 0$) fait majoritairement apparaître deux zones : celle du champ proche et celle du champ lointain (Figure III.4).

La zone de champ proche (ou zone de Fresnel) est caractérisée par une variation rapide du module et de la phase du champ de pression jusqu'à la distance N de la sonde égale à a^2/λ où a est le rayon actif de la sonde, λ la longueur d'onde pour la fréquence d'émission ultrasonore f . La distance N correspond à la tache focale naturelle d'une sonde plane. Ainsi donc, aussi surprenant que cela puisse paraître, une sonde plane focalise légèrement les ondes ultrasonores. Cette distance correspond au dernier maximum de pression. Au-delà la pression décroît de manière monotone. La tache focale fait approximativement 0.27 fois le diamètre actif de la sonde à la distance N . L'adjonction d'une lentille permet d'obtenir des sondes fortement focalisées ce qui permet de réduire encore cette tache focale. Elles ont par exemple tout leur intérêt en microscopie acoustique, ou dans la détection de défauts de petite taille.

La zone de champ lointain (ou zone de Fraunhofer), au-delà de N , est caractérisée par une variation d'amplitude et de phase lente de la pression et une divergence du faisceau. Le faisceau est globalement contenu dans un cône d'angle au sommet β tel que [ROYE-

99]: $\sin(\beta) = 1.22 \frac{V_L}{2af}$, où V_L est la vitesse ultrasonore des ondes longitudinales dans le liquide. Cette expression est souvent approximée par $\beta \sim \frac{\lambda}{a}$ [GAZA-70].

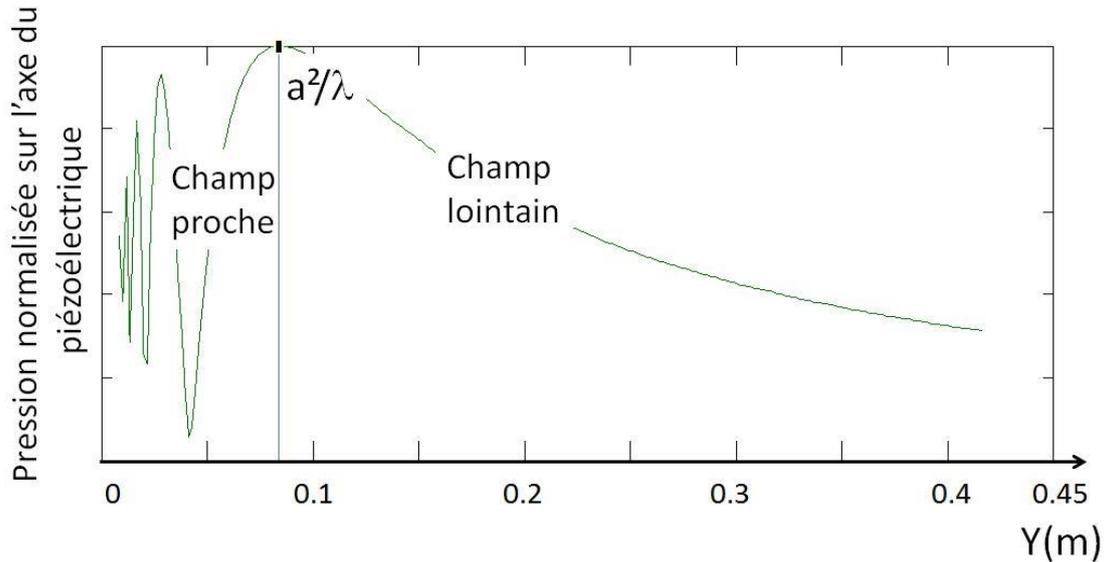


Figure III.4. Champ de pression suivant l'axe de la sonde (X=0).

A cause des effets précédemment décrits, après réflexion sur une surface, toute l'énergie n'est pas réintégrée au niveau du piézoélectrique. On assiste à des pertes que nous qualifierons de pertes par diffraction. Ce phénomène s'ajoute aux pertes par absorption (effet de viscosité). On dira que le faisceau s'atténue par diffraction et absorption (Figure III.5).

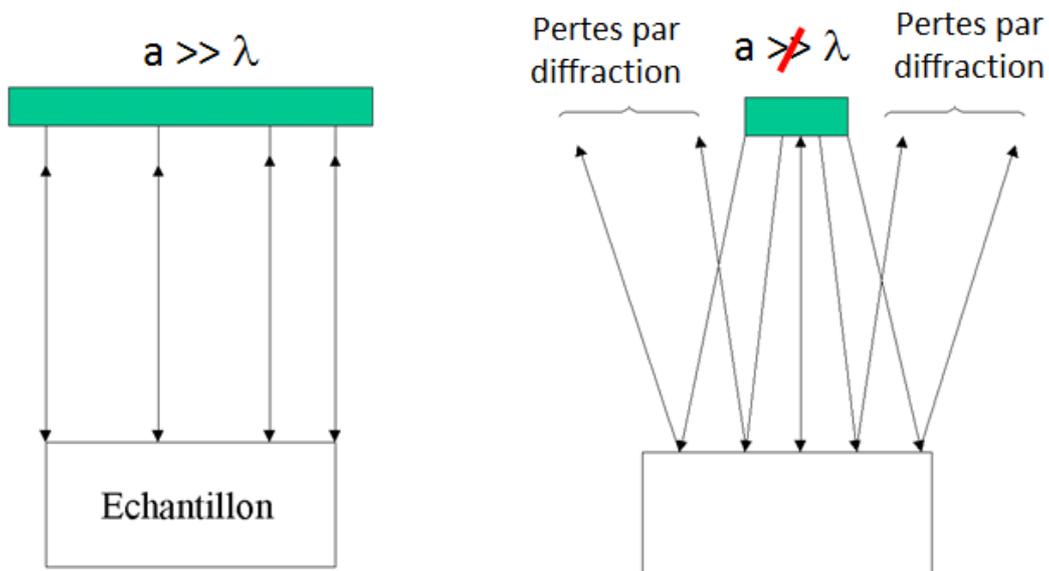


Figure III.5. Représentation schématique des pertes par diffraction.

L'amplitude A de l'écho ultrasonore dépend de la distance entre le transducteur et l'échantillon et de la fréquence considérée. Si A_0 représente l'amplitude du signal pour $Y=0$, et α_L l'absorption dans le milieu d'émission, alors on peut montrer que [LEVE-07] (le facteur 2 provient du mode de mesure qui est la réflexion):

$$A(Y, f) = A_0(f) e^{-2\alpha_L Y} |I| \quad (\text{III.1})$$

Le terme correctif I est un nombre complexe et dépend du rayon du piézo-électrique, de la fréquence, de la distance Y et de la vitesse V_L :

$$I = 1 - e^{\left(\frac{-2\pi a^2 f}{Y.V_L}\right)} \left[J_0\left(\frac{2\pi a^2 f}{Y.V_L}\right) + iJ_1\left(\frac{2\pi a^2 f}{Y.V_L}\right) \right] \quad (\text{III.2})$$

Dans cette expression :

J_0 et J_1 sont les fonctions de Bessel d'ordre 0 et 1.

a est le rayon du piézo-électrique

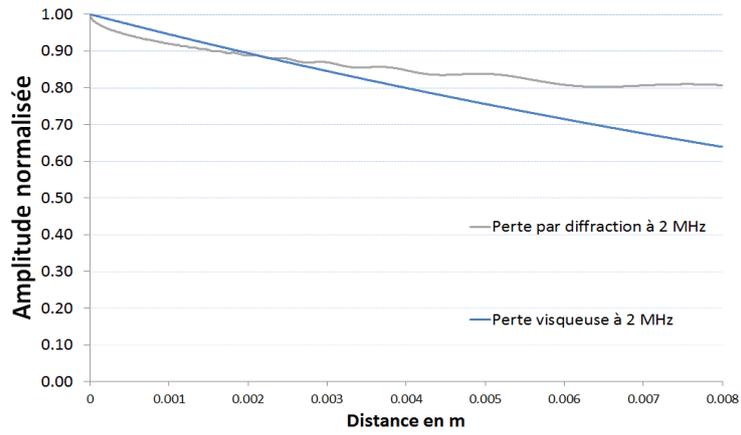
V_L est Vitesse de l'onde dans le liquide étudié

Les mesures ont été réalisées à 2, 5 et 10 MHz avec les transducteurs cylindriques sur le banc avec le tube à essais et avec des transducteurs plans de fréquences 2, 5 et 10 MHz pour la méthode d'indentation. Pour les 3 transducteurs plans nous avons étudié l'effet de la diffraction par rapport aux pertes par absorption (effet de la viscosité). L'objectif est de quantifier les effets d'un phénomène par rapport à l'autre. Les pertes par diffraction peuvent en basse fréquence être du même ordre de grandeur que les pertes visqueuses (qui nous permettent de mesurer la viscosité) si la viscosité est faible. Une mauvaise prise en compte des effets de diffraction induira de fortes perturbations sur les mesures. Sachant que la prise en compte des effets de diffraction par la relation (III.2) est en réalité une correction à l'ordre 1 qui reste donc approchée, il faudra analyser finement les résultats pour savoir quel crédit leur apporter.

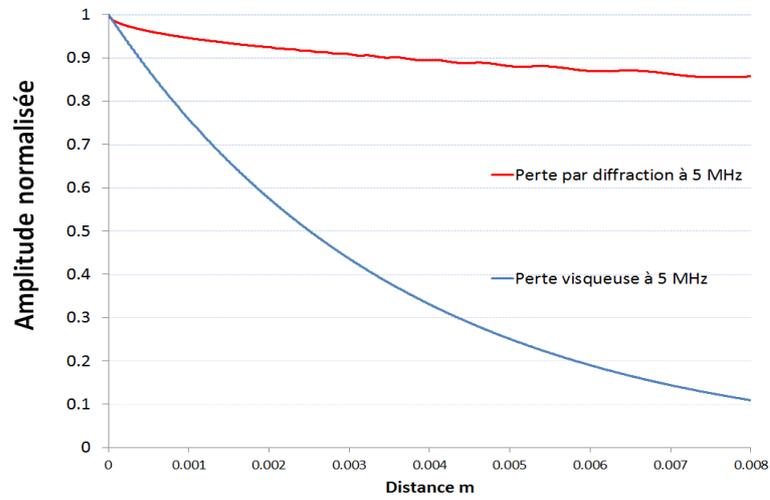
Sur les figures suivantes nous avons tracé pour de la glycérine et pour les trois fréquences citées ci-dessus le module du terme correctif I (relation III.1) qui représente la perte par diffraction à une certaine distance du transducteur ainsi que $e^{-2\alpha_L Y}$ où α_L représente l'atténuation longitudinale. Cette atténuation a été calculée en utilisant la relation (I.18) et une valeur de η_L valant 2.3 Pa.s (voir relation I.3).

Pour rendre l'interprétation des résultats plus simple nous avons ajusté I par une loi exponentielle ce qui permet en première approximation d'interpréter I comme une absorption due à une viscosité additionnelle. Grâce à cette absorption nous avons donc calculé cette pseudo viscosité en utilisant de nouveau la relation I.18. Ceci revient à dire que si les effets de diffraction sont non corrigés on surestime la viscosité longitudinale d'une valeur égale à cette pseudo viscosité.

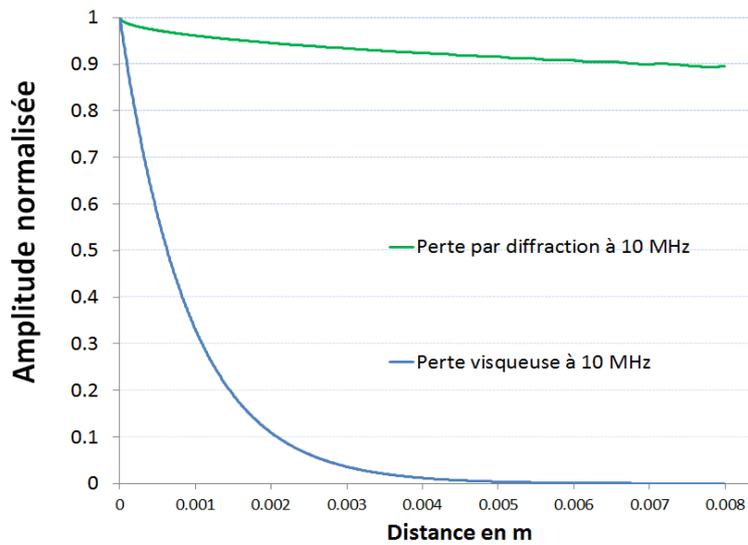
Les résultats sont donnés après les *Figures III.6* à la page 65.



(a)



(b)



(c)

Figures III.6 a) b) et c). Comparaison des pertes par diffraction et des pertes visqueuses pour de la glycérine et pour des transducteurs de fréquences 2, 5 et 10 MHz ayant tous un diamètre de piézoélectrique valant 6 mm.

- A 2MHz pour de la glycérine, négliger les effets de diffraction revient à surestimer la viscosité longitudinale d'une valeur voisine de 1.6 Pa.s.
- A 5 MHz pour de la glycérine, négliger les effets de diffraction revient à surestimer la viscosité longitudinale d'une valeur voisine de 0.145 Pa.s.
- A 10 MHz pour de la glycérine, négliger les effets de diffraction revient à surestimer la viscosité longitudinale d'une valeur voisine de 0.025 Pa.s.

Compte tenu de la valeur de viscosité attendue (2.3 Pa.s) il est possible que les résultats à 2 MHz soient perturbés puisque la correction de diffraction est du même ordre de grandeur que la perte visqueuse (voir commentaires page 63). Le même travail a été réalisé pour les huiles silicones qui en hautes fréquences présentent des viscosités assez voisines de quelques dizaines de mPa.s (voir chapitre 2), les résultats sont les suivants :

- A 2MHz pour les huiles silicone, négliger les effets de diffraction revient à surestimer la viscosité longitudinale d'une valeur voisine de 0.12 Pa.S soit 120 mPa.s.
- A 5 MHz pour les huiles silicone, négliger les effets de diffraction revient à surestimer la viscosité longitudinale d'une valeur voisine de 0.016 Pa.S soit 16 mPa.s.
- A 10 MHz pour les huiles silicone, négliger les effets de diffraction revient à surestimer la viscosité longitudinale d'une valeur voisine de 0.002 Pa.S soit 2 mPa.s.

Compte tenu de la valeur de viscosité attendue on peut s'attendre à ce que les résultats à 2 MHz et même peut être 5 MHz soient obtenus avec une grande marge d'incertitude.

Remarque : pour le miel, au contraire la viscosité est si forte que les pertes par diffraction sont négligeables. Par contre l'atténuation est si forte qu'on peut s'attendre à avoir des difficultés expérimentales à 10 MHz.

2. Méthode adaptée aux mesures sur tube à essai

2.1. Description générale de la méthode et traitement des signaux

Comme cela a déjà été signalé, nous utilisons toujours le même banc de mesure. Les transducteurs cylindriques sont toujours positionnés de part et d'autre du tube à essais en mode transmission (*Figure III.7*).

L'excitation est donc toujours réalisée avec le générateur d'impulsions Sofranel Panamérix 5800. Nous avons une interface USB/GPIB pour rapatrier les échos. L'oscilloscope utilisé est toujours un Lecroy. Généralement 10000 points sont acquis avec une base de temps de 1 μ s. Ainsi donc la fréquence d'échantillonnage vaut 1 GHz. Une fois les signaux acquis ils sont traités de différentes façons pour mesurer la vitesse et l'atténuation.

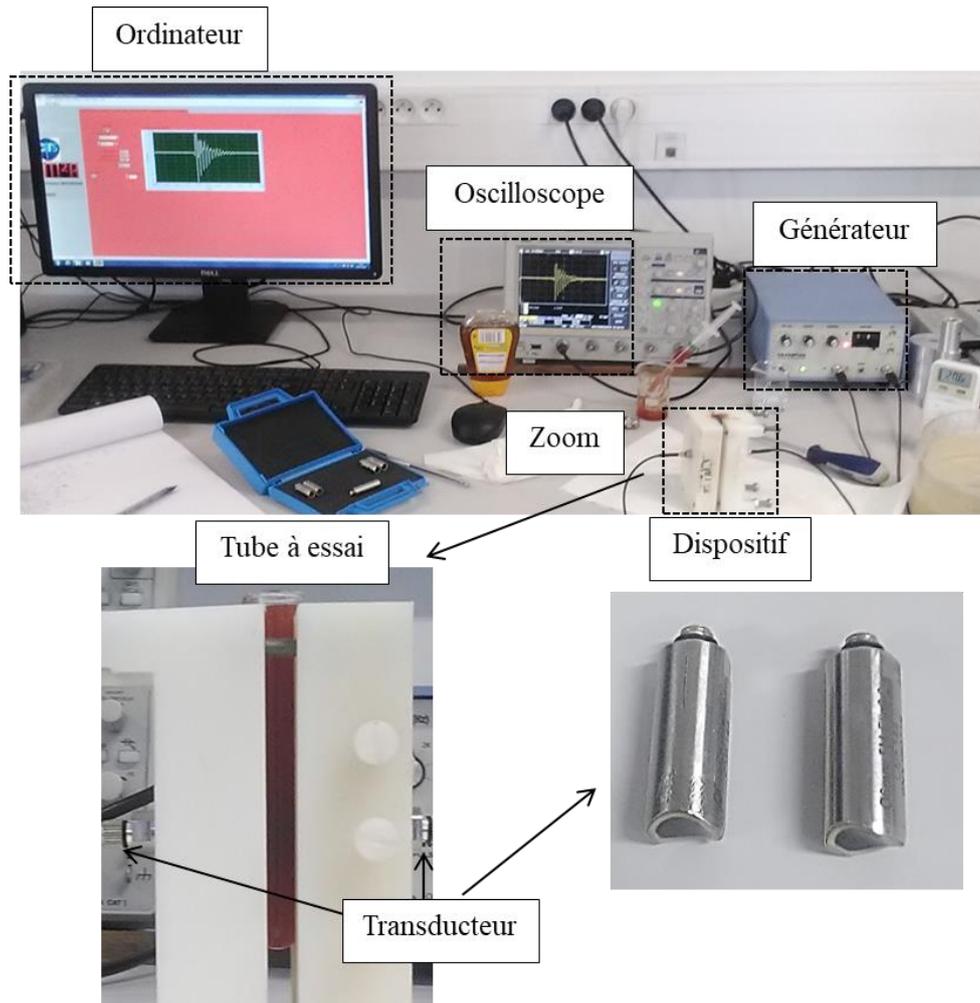


Figure III.7. Banc de mesure avec la configuration : ondes longitudinales de volume.

2.1.1. Traitement A : double transformée de Fourier

Dans les cavités parallélépipédiques, il est possible généralement possible de considérer que les ondes ultrasonores sont planes surtout en hautes fréquences. Ainsi, pour évaluer la vitesse de propagation, il suffit de diviser la distance parcourue par le temps de parcours. Pour les systèmes cylindriques, les problèmes sont plus complexes mais théoriquement bien connus. Mais, si la fréquence est suffisamment élevée pour considérer que la longueur d'onde est faible par rapport au rayon de courbure du tube cylindrique, il est possible de mesurer la célérité de manière simple comme pour les ondes planes en milieu infini. Ce point est clairement détaillé dans les travaux de E. Rosenkrantz [ROSE-07][ROSE-10].

Ainsi, la relation élémentaire « distance = vitesse × temps de parcours » reste valide. Généralement, afin d'évaluer la vitesse ultrasonore, les auteurs évaluent directement le temps de parcours du signal ultrasonore (souvent appelé temps de vol) dans le domaine temporel. Par exemple, la position du maximum de chaque écho peut être tracée en fonction du nombre d'échos. Certaines procédures utilisant des méthodes d'intercorrélacion peuvent également être mises en œuvre [HULL-85]. Dans de telles approches, la difficulté majeure est de trouver un critère de similarité entre les échos

successifs. En raison de l'atténuation, les hautes fréquences peuvent être filtrées pendant la propagation et les échos deviennent de moins en moins semblables pendant leur propagation. L'application de la méthode de traitement de signal précédente devient délicate. De plus, lorsque les échos se chevauchent, l'analyse dans le domaine temporel est totalement impossible.

Afin de surmonter ces difficultés, travailler dans le domaine fréquentiel est préférable.

Il est important de préciser que dans notre tube à essais de diamètre interne D , le signal transmis est constitué de multiples aller-retours (Figure III.8). Si V_L représente la vitesse longitudinale dans le liquide étudié, le premier signal transmis arrivera au temps $\frac{D}{V_L}$ et les signaux suivants seront espacés d'un temps $\frac{2D}{V_L}$.

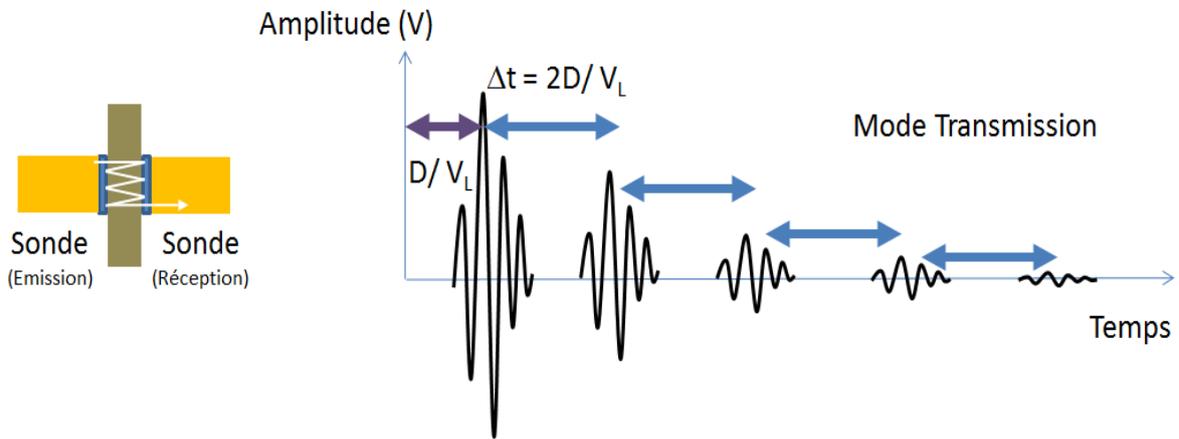


Figure III.8. Allure des signaux transmis [LAUX-18a].

Si l'on réalise la transformée de Fourier (FFT) de l'échogramme, son module est une courbe pseudo-périodique constituée de plusieurs pics. La distance entre deux pics Δf est donnée en première approximation par la relation suivante [ROSE-07][ROSE-09][ROSE-10][SINH-01]

$$\Delta f = \frac{V_L}{2D} \quad (\text{III.3})$$

Afin d'évaluer V_L , il est possible de tracer la position de nombreux pics en fonction de l'indice. Un ajustement linéaire donne directement V_L si bien-sûr D est connue. Mais, comme le module de la FFT est un signal pseudo-périodique, on peut aussi effectuer une seconde transformation de Fourier rapide qui ramène dans le domaine temporel et en reprendre le module. Cette opération fournit ce que E. Rosenkrantz [ROSE-07] appelle le « tempographe » également constitué de plusieurs pics. Dans ce graphique, la position du premier pic est ainsi le temps de vol du signal ultrasonore dans le tube. Ainsi, V_L est déduite avec la relation élémentaire suivante :

$$V_L = \frac{2D}{t_{\text{premier pic}}} \quad (\text{III.4})$$

E. Rosenkrantz signale d'ailleurs que ce traitement du signal réduit le bruit et reste applicable en cas d'échos superposés. Il est donc particulièrement bien adapté à notre problématique car en plus des échos d'aller-retour dans le liquide nous aurons aussi les échos d'aller-retour dans les parois du tube à essais. Une représentation schématique de ce traitement de signal est donnée sur la *Figure III.9*.

Dans la suite de ce manuscrit, la vitesse V_L mesurée avec ce traitement sera notée V_{L-A} .

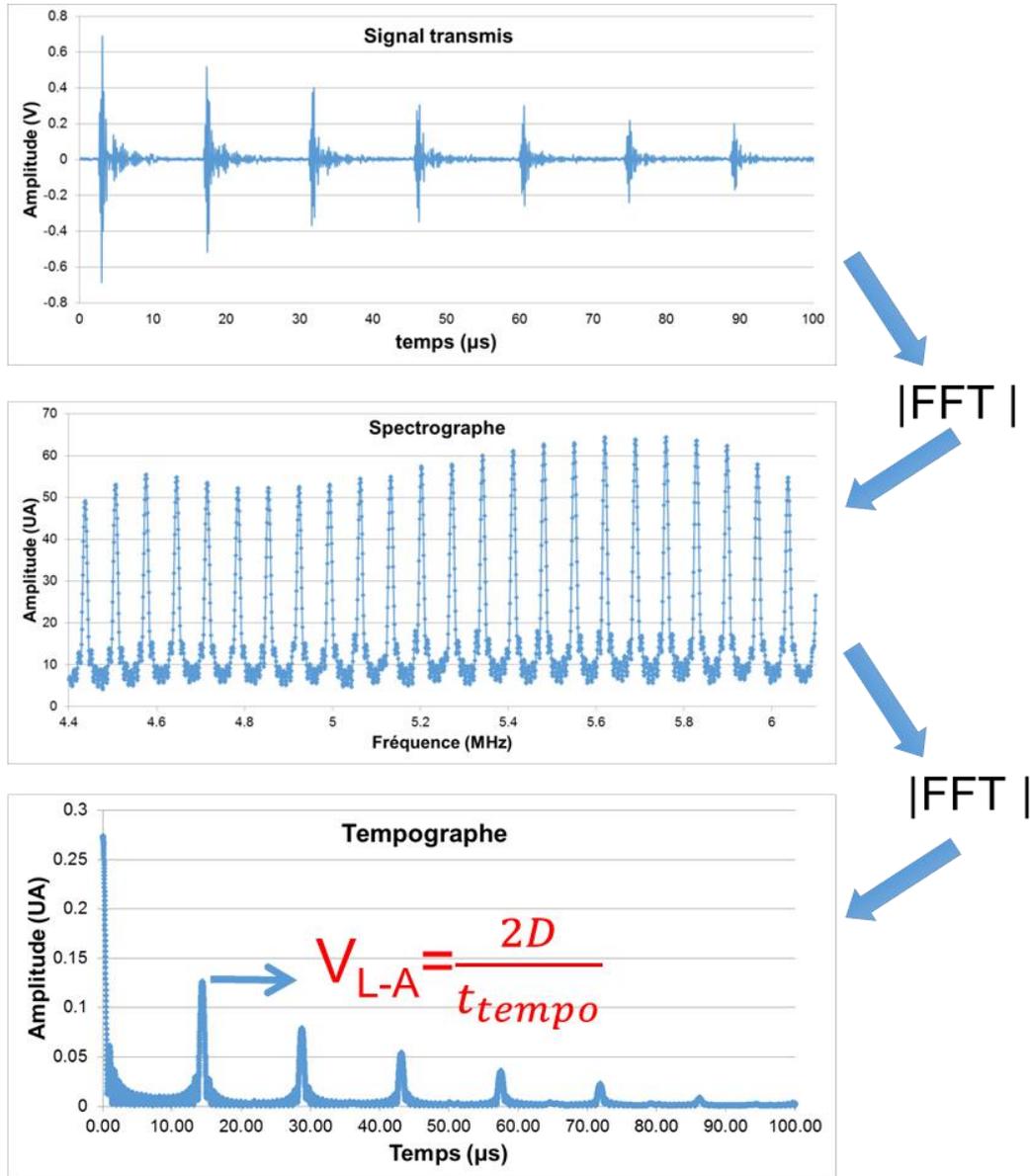


Figure III.9. Principe du traitement A avec double FFT.

Si cette méthode s'avère très performante il est cependant clair qu'il faut avoir au moins 2 signaux d'aller-retour dans le signal transmis. Si la viscosité est forte et donc si l'absorption est grande il se peut que le seul signal transmis soit le signal direct arrivant au temps $\frac{D}{V_L}$. La méthode précédente est dans ce cas mise en échec. Par ailleurs l'estimation directe de l'atténuation par cette méthode reste difficile même si théoriquement un ajustement de la forme des pics de la première FFT par une

Lorenzienne permet de résoudre le problème [ROSE-07]. Ainsi donc ce traitement A sera uniquement utilisé pour avoir une mesure précise et automatique de la vitesse ultrasonore dans le cas des faibles viscosités. Nous verrons que ce traitement sera aussi fondamental dans les étapes préliminaires du protocole expérimental pour estimer le diamètre exact du tube à essai avant la mesure.

2.1.2. Traitement B : méthode différentielle

Pour pallier les défauts du traitement A et s'assurer de pouvoir effectuer des mesures sur une large gamme de viscosités, un second traitement différentiel a aussi été mis en place. Le tube à essais (de diamètre interne D) est d'abord rempli avec un liquide étalon (de l'eau dans notre cas) pour lequel la vitesse $V_{Réf}$ et la valeur de l'atténuation $\alpha_{Réf}$ sont connues ou mesurées de façon indépendante (par indentation par exemple). Le signal de référence ($S_{Réf}$), transmis au travers des parois du tube à essais et du liquide étalon est acquis. Dans un second temps, le liquide étalon est remplacé par le liquide à étudier et le signal transmis (S_{Liq}) est aussi acquis. Ici il s'agit du premier signal transmis sans aucun aller-retour dans le tube à essais (Figure III.10).

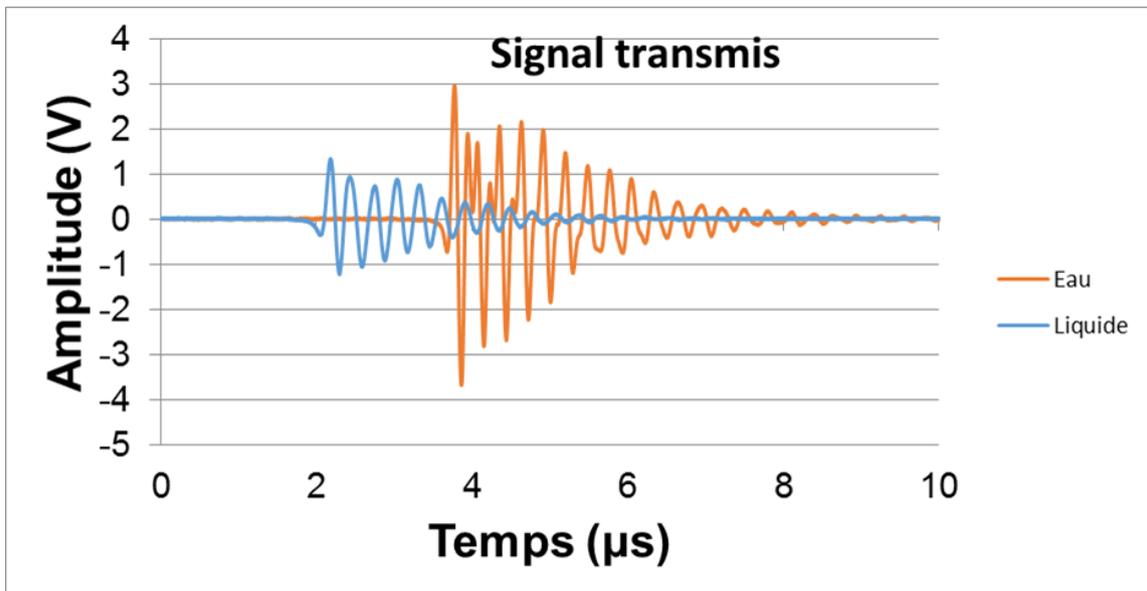


Figure III.10. Traitement B différentiel pour la mesure de la vitesse.

En calculant les temps de parcours dans le cas du liquide de référence et dans le cas du liquide étudié il est facile de montrer que la vitesse ultrasonore que nous noterons V_{L-B} dans le liquide est alors exprimée de la façon suivante :

$$V_{L-B} = \frac{1}{\frac{1}{V_{Réf}} - \frac{\Delta t}{D}} \quad (III.5)$$

où :

$\Delta t = t_{Réf} - t_{Liq}$ représente le temps entre ($S_{Réf}$) et (S_{Liq}). Il peut être estimé soit par méthode d'intercorrélacion soit tout simplement en mesurant le temps entre les maximas des signaux.

Les effets de diffraction étant sensiblement les mêmes pour le liquide étalon et pour le liquide étudié, il n'est pas nécessaire de les corriger et l'absorption α_{L-B} à la fréquence f est alors donnée par la relation suivante [LAUX-18a]:

$$\alpha_{L-B}(f) = -\frac{1}{D} \ln \frac{t_{p.réf}^2 A_{Liq}(f)}{t_{p.Liq}^2 A_{Réf}(f)} + \alpha_{Réf}(f) \quad (III.6)$$

où:

- $t_{p.Réf}$ et $t_{p.Liq}$ représentent respectivement les coefficients de transmission aux interfaces (paroi du tube) / (liquide de référence) et (paroi du tube) / (liquide étudié).
- $A_{Réf}(f)$ et $A_{Liq}(f)$ sont les amplitudes des modules de la transformée de Fourier des signaux ($S_{Réf}$) et (S_{Liq}) (Figure III.11). En pratique il est nécessaire de réaliser un fenêtrage préalable sur les signaux pour supprimer les trajets aller-retour dans les parois du tube. Cela revient en pratique à ne considérer qu'une ou deux périodes dans les signaux transmis. Le fenêtrage est adapté pour que, in fine les transformées de Fourier aient l'allure présentée ci-dessous.

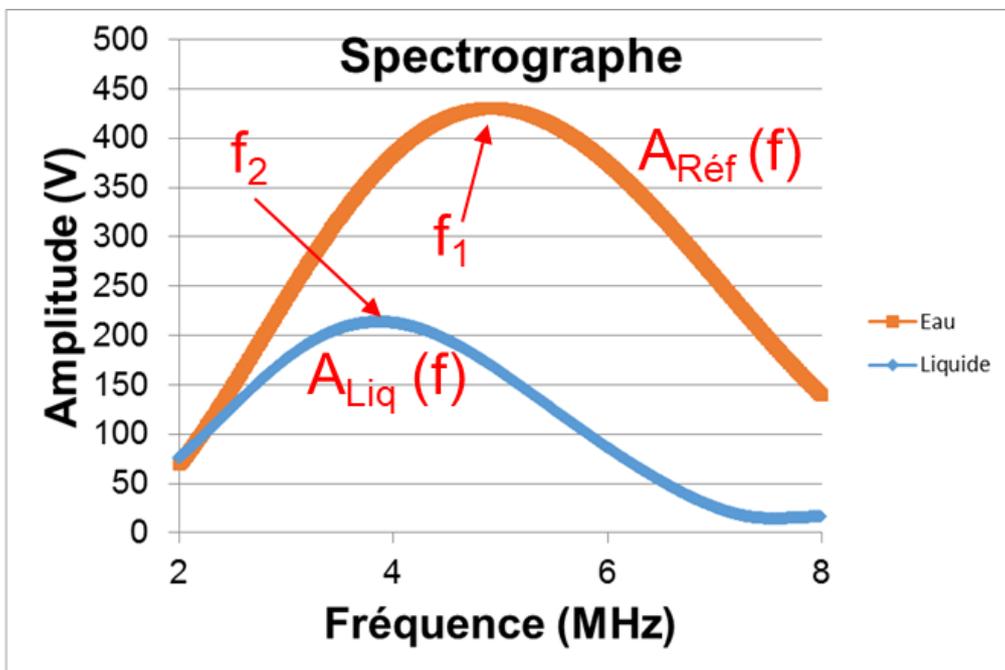


Figure III.11. Traitement différentiel pour la mesure du coefficient d'absorption.

Visualisation des transformées de Fourier après fenêtrage. On peut remarquer qu'à cause de l'atténuation, les maxima des 2 FFT ne se situent pas aux mêmes fréquences mais aux fréquences f_1 et f_2 .

2.2. Validation numérique des traitements du signal proposés

Divers logiciels ont été réalisés durant ce travail de thèse pour in fine disposer d'un banc de mesure « plug and play ». Avant de les implémenter sur le banc de mesure ils ont été testés sur des signaux simulés. Les seules opérations un peu délicates étant les transformées de Fourier pour lesquelles un fenêtrage préalable et des opérations de zéro filling sont effectuées nous avons décidé de les tester et de générer des échogrammes artificiels pour lesquels V_L et α_L (et donc η_L) sont imposés. Ensuite V_{L-A} et α_{L-B} qui utilisent des FFT sont estimés. Ainsi donc la viscosité longitudinale peut être déduite et comparée à celle qui avait été introduite dans la simulation. Nous ne présentons pas le test de la mesure de V_{L-B} car il repose uniquement sur la mesure de Δt entre deux signaux simulés. Ceci ne présente aucune difficulté numérique en utilisant le temps entre les maxima des signaux par exemple.

Afin de simuler le signal ultrasonore après propagation dans une petite cellule, la méthode la plus simple consiste à utiliser la convolution entre un motif d'écho typique et une réflectivité. Cette méthode est généralement utilisée dans la recherche sismique pour les tests de méthodes de déconvolution aveugle [GLAN-04a][GLAN-04b]. En première approximation, le modèle d'écho peut être défini comme une fonction sinus multipliée par une tendance gaussienne. La réflectivité est définie comme une succession de pics de Dirac régulièrement espacés (peigne de Dirac) dans le domaine temporel. Une décroissance exponentielle peut être ajoutée afin de simuler l'amortissement dû à la viscosité. Enfin, le bruit blanc peut également être superposé. Cette procédure est illustrée sur la *Figure III.12*. L'espace régulier entre les échos est égal à $2D / V_L$. Dans cette simulation les allers-retours dans les parois du tube à essais ne sont pas pris en compte. Une fois l'échogramme généré il est enregistré pour post traitement. Nous avons d'ailleurs utilisé cette démarche dans un récent article consacré à l'étude de l'eau de coco par méthode ultrasonore [LAUX-18b].

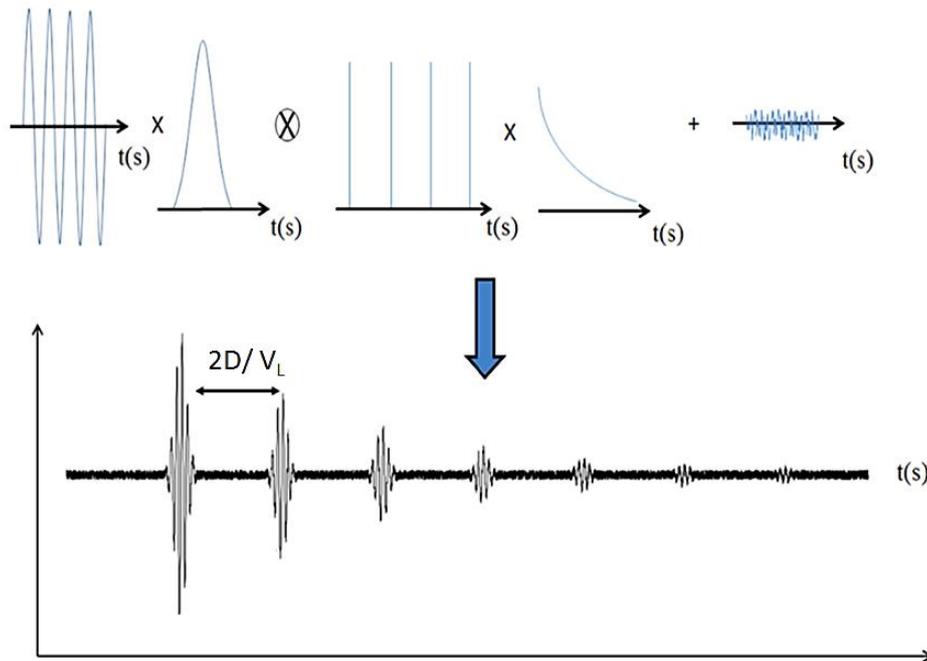


Figure III.12. Principe de génération des signaux ultrasonores.

Nous avons imposé des vitesses correspondant à la plupart des liquides qui seront étudiés par la suite en essayant de couvrir une large gamme de vitesses. Les valeurs de vitesses imposées ainsi que V_{L-A} sont données ci-dessous ce qui valide clairement la programmation de la méthode A.

Liquide simulé	V_L imposée (m.s ⁻¹)	V_{L-A} déduite (m.s ⁻¹)
Sucre 0 %	1500	1499
Sucre 5 %	1505	1504
Sucre 10 %	1520	1520
Sucre 20 %	1560	1559
Sucre 40 %	1660	1660
Glycérine	1920	1919
Miel	2100	2100

Tableau III.1. Validation de la méthode A pour l'estimation de la vitesse ultrasonore.

Dans un second temps des échogrammes prenant en compte la viscosité ont été générés. Les paramètres d'entrée sont la masse volumique, la fréquence, la vitesse longitudinale, la viscosité de cisaillement et la viscosité longitudinale déduite avec le facteur Δ (voir paragraphe 1.2.2 du Chapitre 1). Grâce à ces paramètres l'atténuation est calculée avec la relation I.18 donnée au Chapitre 1. Ainsi donc la décroissance exponentielle des signaux peut être prise en compte. Après traitement, η_{L-B} est estimée et enfin η_S déduite.

Liquide	η_S imposée (Pa.s)	η_S déduite (Pa.s)
Sucre 5 %	1.20E-03	0.00119
Sucre 10 %	1.40E-03	0.00146
Sucre 20 %	2.00E-03	0.00202
Sucre 40 %	6.40E-03	0.00634
Ethanol	1.20E-03	0.00129
Glycérol	1.00E+00	0.99918
Miel	1.00E+01	9.97

Tableau III.2. Validation de la méthode B pour l'estimation de la viscosité.

Ici encore il apparaît clairement que les traitements mis en œuvre dans le cadre de la méthode B n'introduisent pas d'erreur importante sur les résultats attendus. Ces logiciels ont donc été ensuite directement transférés sur le banc de mesure pour passer à des mesures réelles après description du protocole de mesure mis en œuvre pour standardiser le système.

Les 2 captures d'écran suivantes montrent le logiciel mis en place.

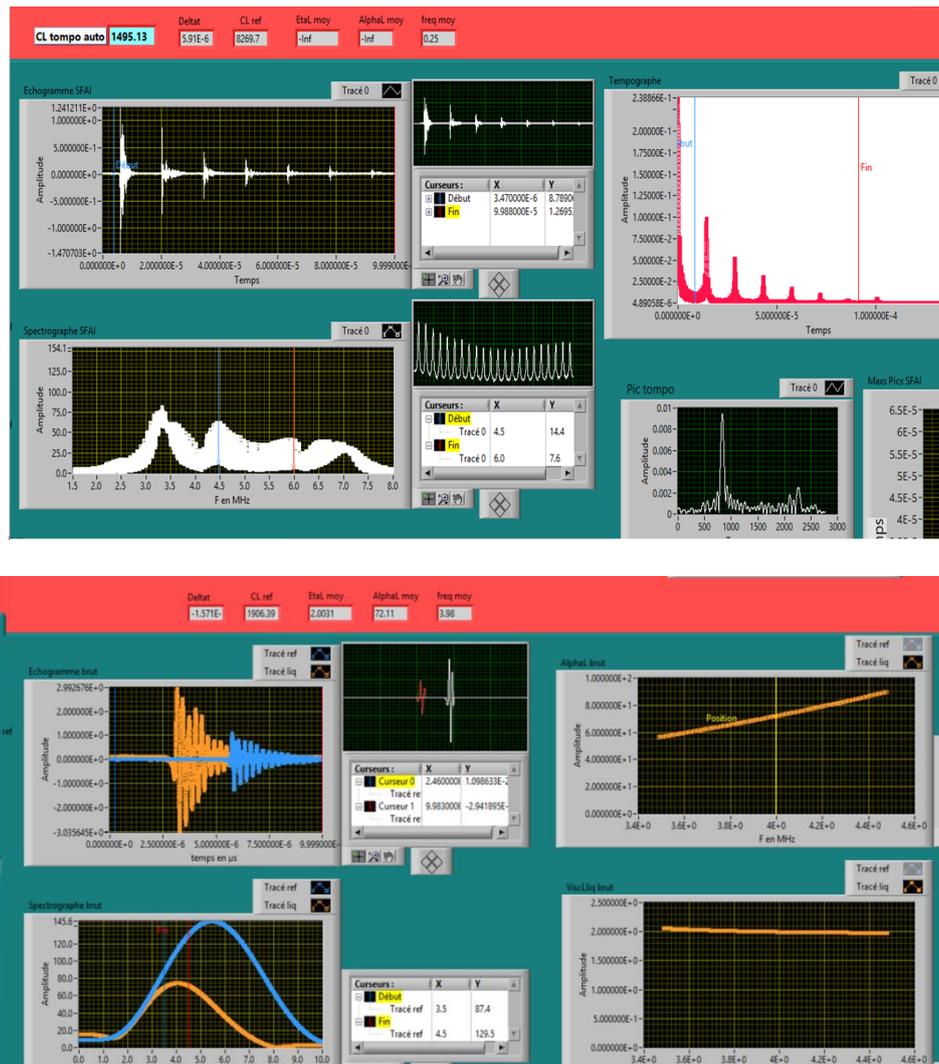


Figure III.13. Copies d'écran du logiciel de mesure et de traitement mis en place sur le banc de mesure.

2.3. Protocole de mesure

A priori lors de l'utilisation d'un tube à essais son diamètre interne est connu précisément. Cependant lors de la mise en place des transducteurs il se peut que pour des raisons d'alignement un peu imparfait le trajet acoustique effectif à prendre en compte soit un peu différent. Il est facile de montrer que quelques centaines de microns d'erreur peuvent se répercuter par plusieurs dizaines de mètres d'erreur sur la vitesse. C'est la raison pour laquelle une étape importante utilisant le traitement A a été mise en place afin de déterminer cette distance effective.

- **Etape 1** : mise en place des transducteurs couplés au tube à essai avec une fine couche de miel.

- **Etape 2** : remplissage avec de l'eau et mesure de la température.

- **Etape 3** : utilisation de la relation donnée par A. Briggs [BRIG-92] (et vérifiée au sein de notre laboratoire) permettant de déduire la vitesse dans l'eau $V_{Réf}$.

$$V_{Réf} = k_5 T^5 + k_4 T^4 + k_3 T^3 + k_2 T^2 + k_1 T + k_0 \quad (III.7)$$

Où les constantes k_i sont données ci-dessous :

k0	1402,38754
k1	5,03711129
k2	-0,05808522
k3	0,0003342
k4	-1,478 ^{E-06}
k5	3,1464 ^{E-09}

Tableau III.3. Valeurs des k_i de la relation (III.7).

- **Etape 4** : acquisition du signal transmis comprenant le maximum d'échos d'aller-retour et traitement par la méthode A. Ajustement de la valeur du diamètre du tube pour retrouver $V_{Réf}$.

- **Etape 5** : aspiration de l'eau et mise en place du liquide à étudier en prenant soin de ne pas toucher au tube à essai pour ne pas modifier la position des transducteurs.

- **Etape 6** : acquisition du signal transmis et traitement. Déduction de V_{L-A} si cela est possible (nombre d'aller-retour suffisant), calcul de V_{L-B} en utilisant le signal de l'eau. Estimation de α_{L-B} .

Remarques :

- Comme cela apparait dans la relation (III.6) il est nécessaire de connaître les facteur de transmission $t_{p.Réf}$ et $t_{p.Liq}$. Ceci ne pose aucun problème particulier sachant que : à l'interface entre deux milieux 1 et 2, le coefficient de réflexion en pression qui représente le rapport entre la pression ultrasonore réfléchiée et la pression incidente prend la forme $r = (Z_2 - Z_1)/(Z_1 + Z_2)$ [ROYE-99]. Le coefficient de transmission en pression noté t vaut alors $(1 + r)$. Dans ces expressions, Z est l'impédance acoustique, et s'exprime en Rayleigh. Elle représente le rapport entre la pression acoustique et la vitesse particulière. C'est une grandeur locale qui dans le cas particulier d'une onde plane s'écrit $Z = \rho V$ où V peut désigner la vitesse longitudinale ou transverse et ρ représente la masse volumique.

- Pour l'atténuation dans l'eau nous avons pris : 0,2dB/μm/GHz² [BRIG-92]. Ceci correspond en fait à une atténuation longitudinale due à une viscosité de 1 mPa.s et un facteur $\Delta=3$.

3. Résultats expérimentaux

3.1. Validation de la méthode

Pour valider la méthode expérimentale, chaque liquide testé a d'abord été étudié avec la méthode d'indentation. Dans la suite la valeur de vitesse obtenue sera notée V_{L-Ind} . Comme cela a été expliqué au chapitre 1 il s'agit d'une vitesse mesurée en domaine temporel. Elle ne prend pas en compte un éventuel effet de dispersion sur la bande passante du capteur ce qui n'est pas gênant, la dispersion sur la vitesse étant généralement très faible sur des bandes passantes de quelques MHz pour des liquides ne présentant pas de transition de phase. La valeur d'atténuation obtenue par indentation après traitement fréquentiel sera notée α_{L-Ind} . Elle sera donc calculée à une fréquence donnée.

3.1.1. Vitesse

Les résultats en termes de vitesse ultrasonore sont présentés ci-dessous. Les barres d'erreurs correspondent à 2 écarts types. Dans le cas de la glycérine et du miel les mesures à 10 MHz se sont avérées impossibles avec le tube à essais l'atténuation étant trop forte.

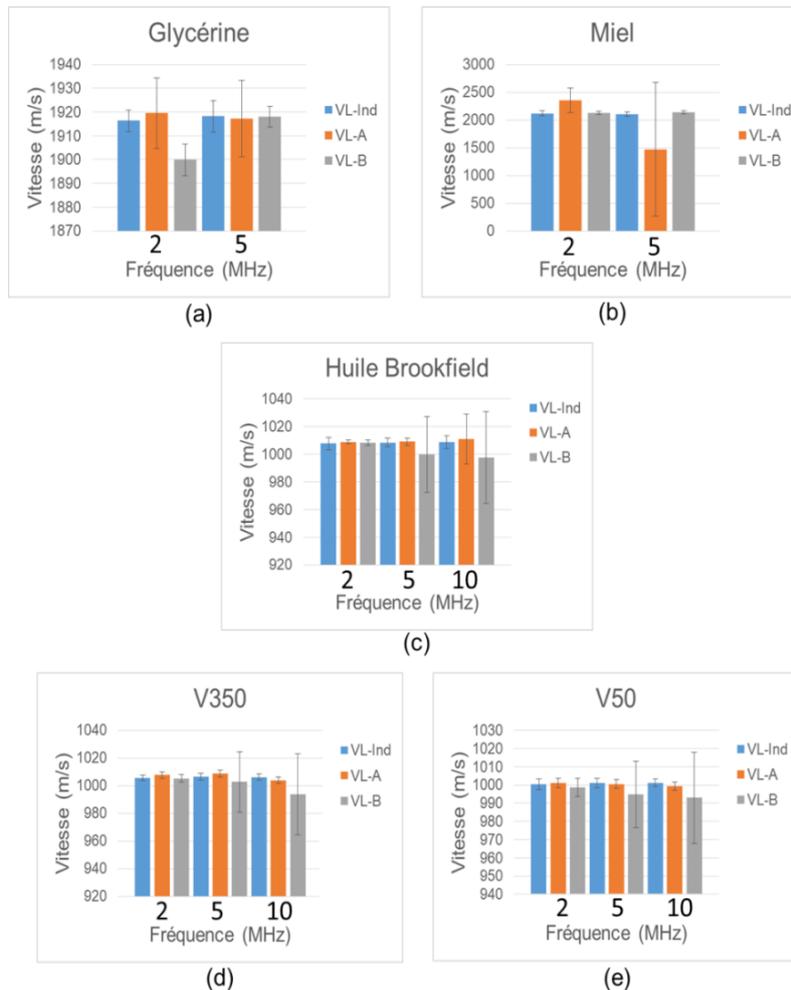


Figure III.14. Vitesses mesurées sur la glycérine, le miel et les huiles silicone.

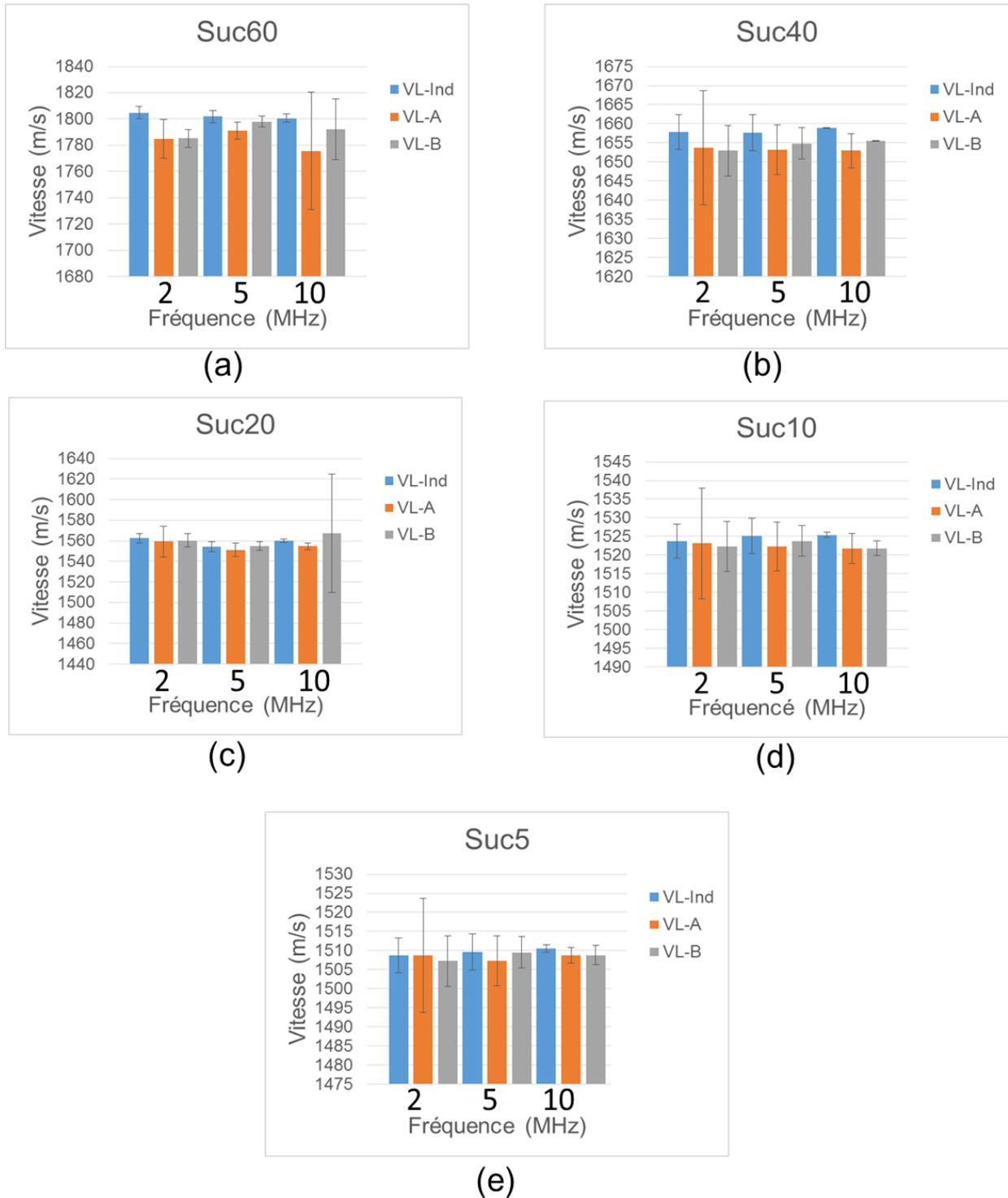


Figure III.15. Vitesses mesurées sur les solutions de sucre.

Compte tenu de ces résultats il apparaît que l'on peut utiliser indifféremment le traitement A ou le traitement B. Cependant si le nombre d'allers-retours est faible le choix du traitement B s'avère préférable. Il est à noter que, comme dans la relation I.18 la vitesse ultrasonore intervient à la puissance 3, sa mesure précise est un facteur déterminant pour l'estimation de la viscosité.

3.1.2. Atténuation et viscosité longitudinale

Les résultats bruts (sans correction des effets de diffraction pour la méthode d'indentation) sont présentés ci-dessous pour les différents liquides étudiés. Grâce à la vitesse précédemment mesurée et à la mesure de α_{L-B} , la viscosité η_{L-B} a été calculée et comparée à η_{L-Ind} .

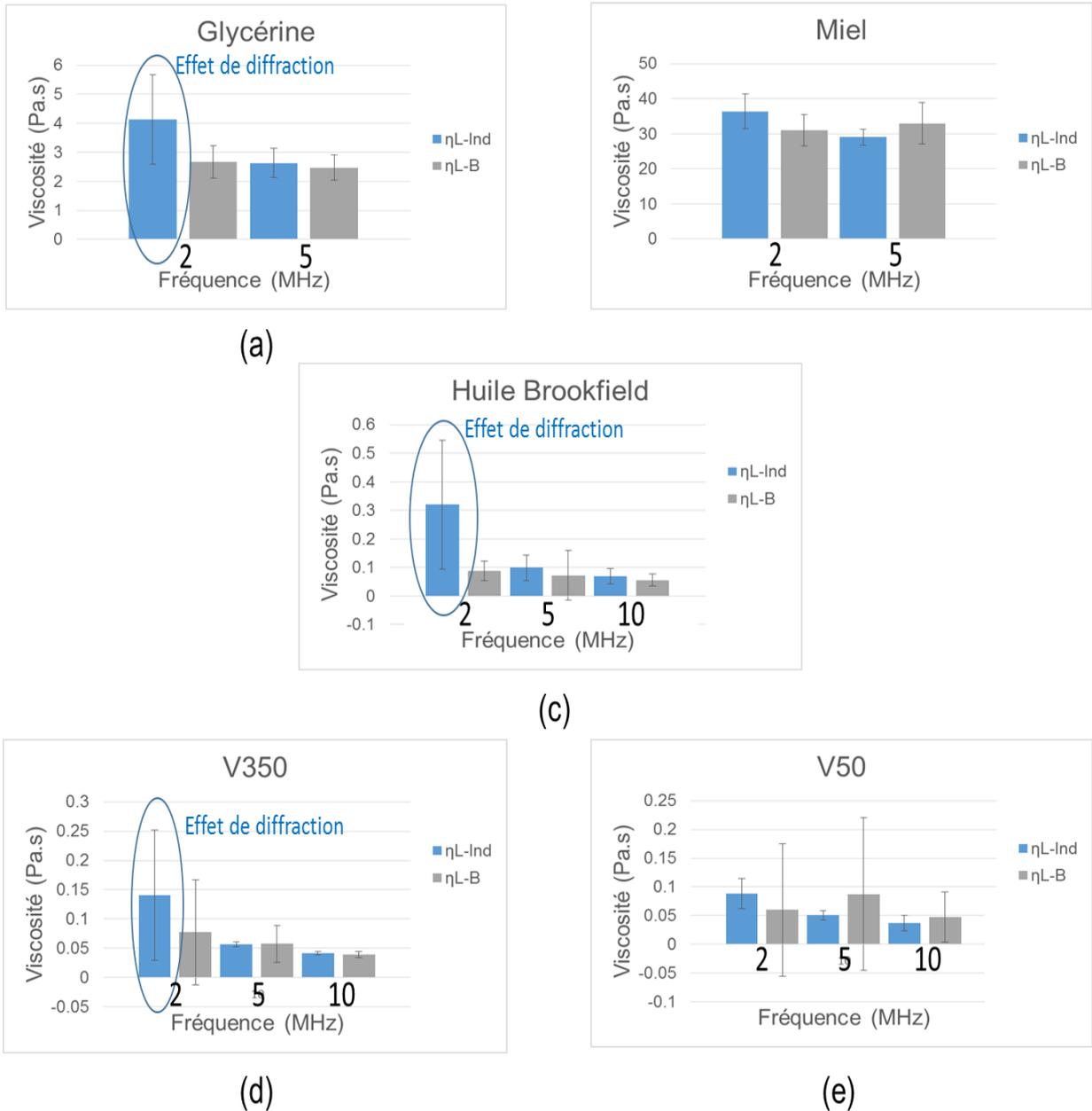


Figure III.16. Viscosités longitudinales mesurées sur la glycérine, le miel et les huiles silicone.

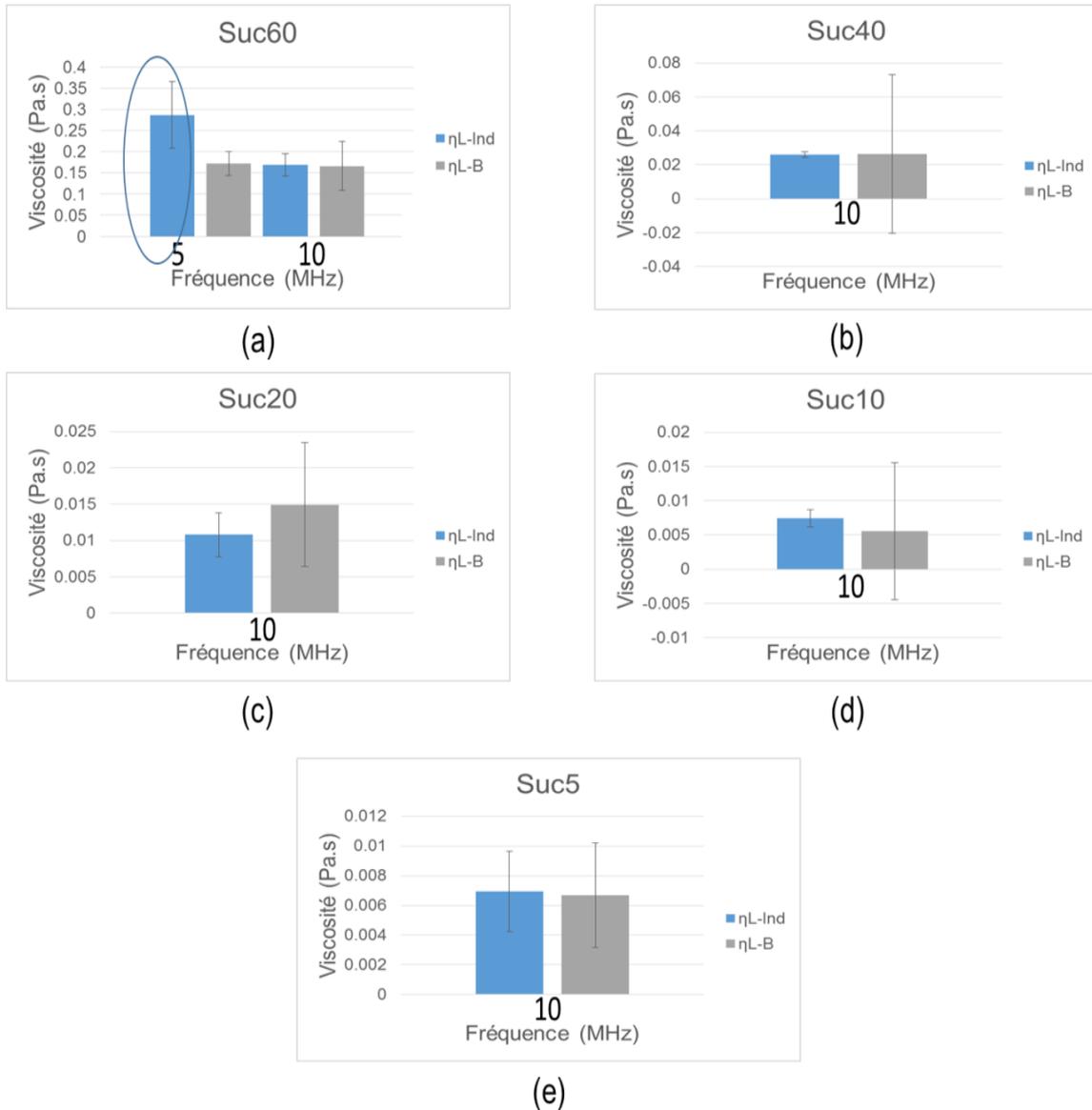


Figure III.17. Viscosités longitudinales mesurées sur les solutions de sucre.

Sans surprise la viscosité est surestimée en basse fréquence pour les liquides à faible viscosité avec la méthode d'indentation. Seule l'huile V50 semble se démarquer. Cependant compte tenu de sa très faible viscosité les résultats sont à prendre avec beaucoup de précaution.

Pour les solutions de sucre faiblement concentrées, seules les mesures à 10 MHz sont présentées : travailler en plus basse fréquence étant impossible, l'atténuation étant trop faible.

Dans un second temps les effets de diffraction ont été pris en compte sur η_{L-Ind} . Lorsque la correction s'est avérée trop forte (par exemple pour les huiles à 2 MHz pour lesquelles l'effet de la diffraction est du même ordre de grandeur que les pertes visqueuses), le point de mesure a été supprimé (Figure III.18).

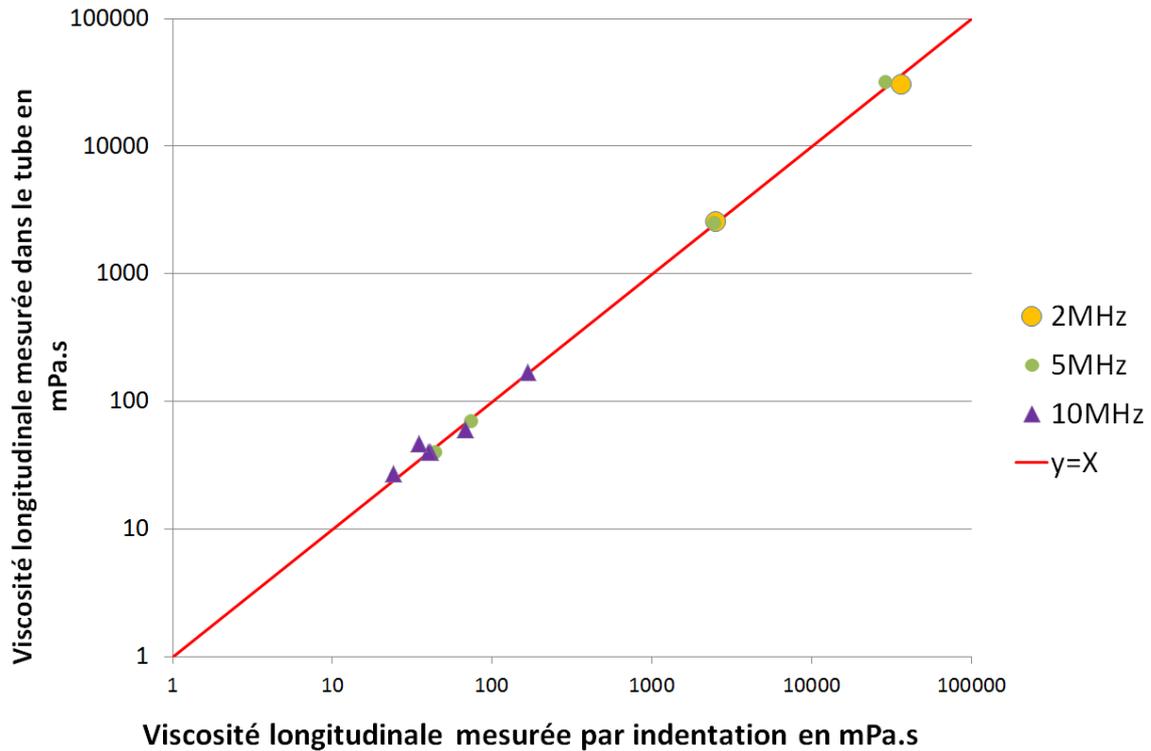


Figure III.18. Comparaison des valeurs de η_{L-B} et η_{L-Ind} (avec correction des effets de diffraction).

Compte tenu de ces résultats on peut affirmer que l'approche expérimentale sur le tube à essais permet d'estimer la viscosité longitudinale avec le traitement B sur une gamme extrêmement large : ~ 50 mPa.s - 30 000 mPa.s. L'écart observé entre η_{L-B} et η_{L-Ind} est globalement inférieur à 20% sauf pour des viscosités < 50 mPa.s. Au regard des Figures III.16 et III.17 l'incertitude sur l'estimation de η_{L-B} reste cependant élevée : en moyenne 25 %, mais n'est pas surprenante pour ce genre de mesure basée sur des estimations absolues d'atténuation.

3.2. Premières courbes maîtresses

3.2.1. Glycérine

Pour établir les premières courbes maîtresses large bande et donc tracer η_S en fonction de la fréquence ou du taux de cisaillement, il est nécessaire de déduire η_S à partir de η_L . A priori, le facteur Δ (voir chapitre 1 paragraphe 1.2.2) n'est pas connu mais rappelons que, selon Dukhin il est généralement compris entre 1 et 3 sauf cas très particulier. Ainsi nous choisissons pour l'instant une valeur moyenne de Δ valant 2. Ainsi nous utiliserons la relation $\eta_S = (0.3 \pm 0.1) \eta_L$. Ceci introduit bien-sûr une incertitude sur la valeur de η_S en hautes fréquences. Ainsi, à nos mesures sur la glycérine, avec la méthode d'onde longitudinale de volume, nous ajoutons les mesures que nous avons faites avec la configuration de chute de bille ainsi que les mesures que nous avons faites avec le viscosimètre (Figure III.19).

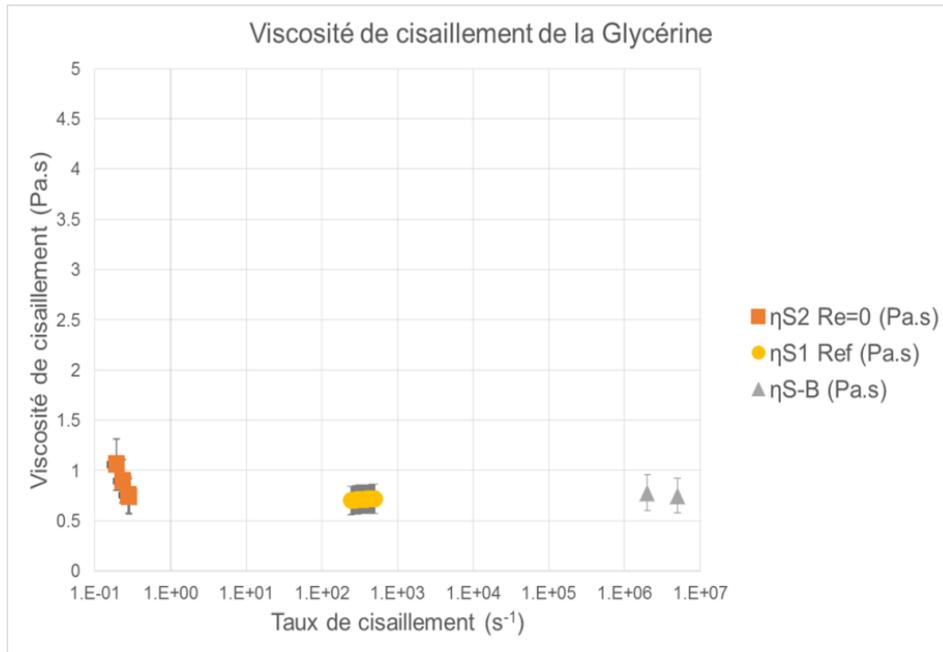


Figure III.19. Mesure de viscosité longitudinale sur une très large gamme fréquentielle pour de la glycérine.

3.2.2. Miel

Nous avons reporté sur le graphe suivant les valeurs mesurées avec la bille, avec le rhéomètre ainsi que la valeur de η_s déduite à partir de η_L . La tendance rhéofluidifiante qui semblait se dessiner avec le viscosimètre Couette n'est pas confirmée en haute fréquence. Il tendrait plutôt vers un comportement newtonien. Un tel comportement pour un miel toutes fleurs est d'ailleurs en accord avec la littérature [WITC-11]

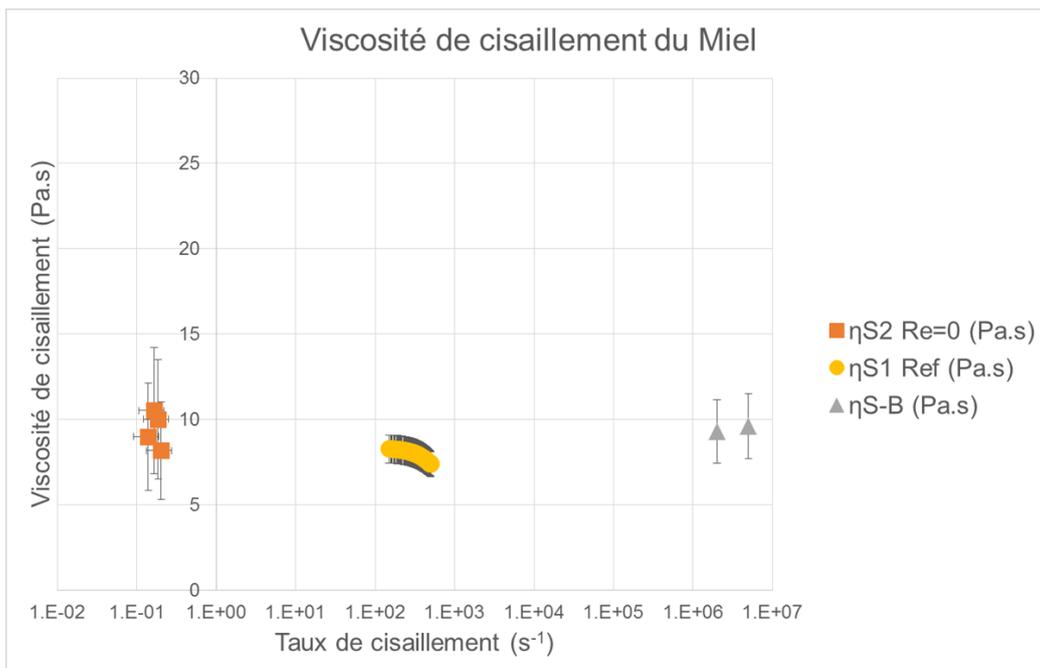


Figure III.20. Mesure de viscosité de cisaillement pour le miel.

3.2.3. Huile V350

Pour l'huile V350 pour laquelle les mesures avec le tube à essais sont possibles et fiables nous avons reporté sur le graphe suivant les valeurs mesurées avec la bille, avec le rhéomètre ainsi que la valeur de η_s déduite à partir de η_L . Les valeurs du rhéomètre sont aussi reportées. Un ajustement par une loi de Cross est possible. Par rapport à ce que propose Samet dans sa thèse (Voir chapitre 2) nous avons seulement un peu modifié la relation (II.11.c) dans laquelle le facteur 0.05 est modifié en 0.07. Ce genre de modification dans les lois proposées par Samet ne pose aucun problème car, rappelons-le, Samet présente ces lois comme des estimations au premier ordre. Par ailleurs la température de travail est différente dans les deux thèses. Pour η_0 nous avons pris la valeur donnée par la méthode de chute de bille soit 306 mPa.s

$$\eta = \eta_0 \left[1 + \frac{f}{f_0} \right]^{m-1} \quad (\text{III.9})$$

Avec :

$$f_0 = \frac{5 \cdot 10^7}{\eta_0} \quad (\text{III.10})$$

Et

$$m = 1 - 0.07 [9 + \log_{10}(\eta_0)] \quad (\text{III.11})$$

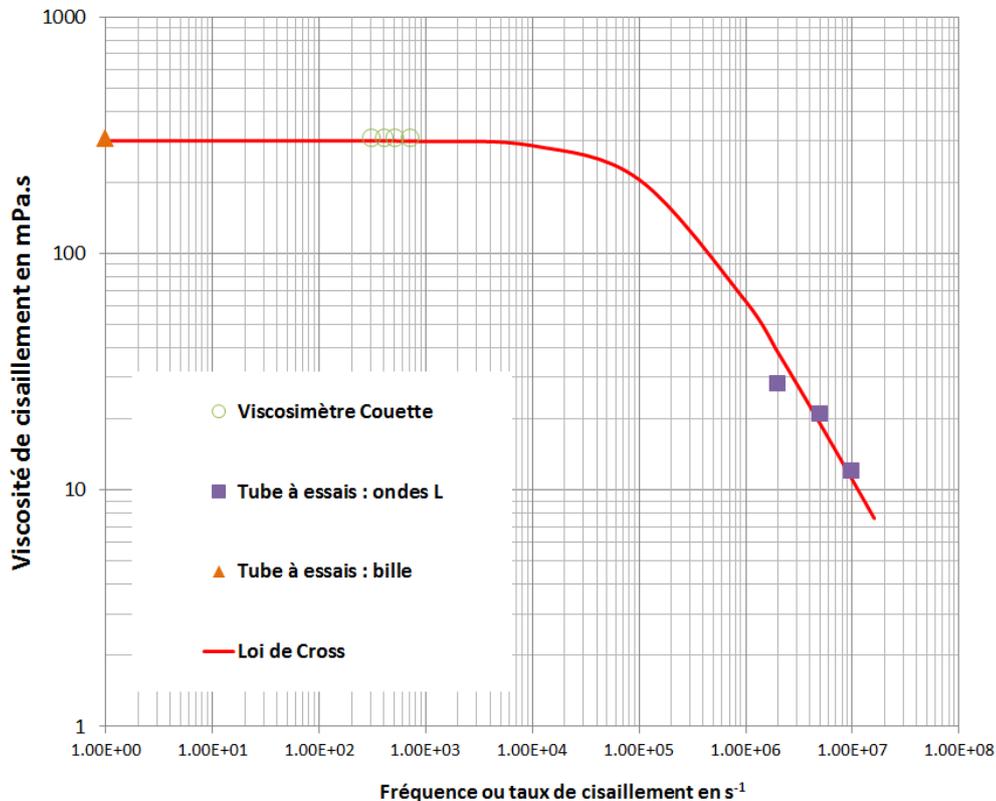


Figure III.22. Mesure de viscosité de cisaillement sur une très large gamme fréquentielle pour de l'huile V350.

3.2.4. Huile Brookfield

Le cas de l'Huile Brookfield est particulièrement intéressant car le comportement rhéofluidifiant pressenti avec le rhéomètre est confirmé par les mesures hautes fréquences. En effet le second plateau newtonien semble atteint. Ainsi donc, mieux qu'une loi de Cross, une loi de type puissance a été choisie (III.12):

$$\frac{\eta_s - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{1 + K\dot{\gamma}^\beta} \quad (\text{III.12})$$

Avec :

- $\eta_0 = 30\,000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$

- $\eta_\infty = 15 \text{ mPa}\cdot\text{s}$

- $\beta=1$ et $K= 0.001$ et $\dot{\gamma} = \text{fréquence en Hz}$

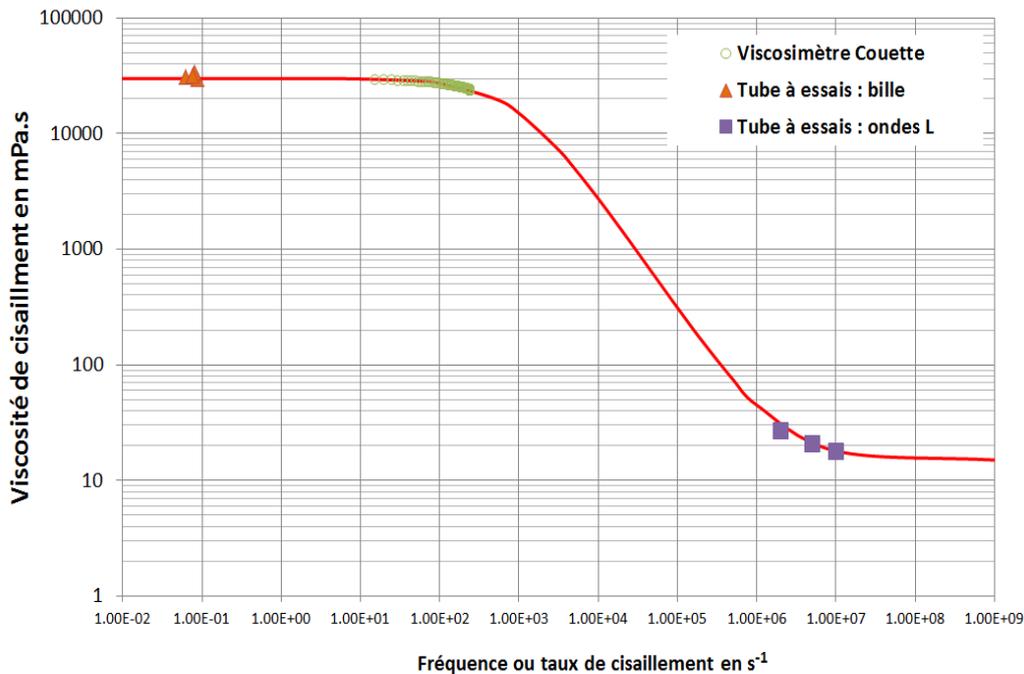


Figure III.23. Mesure de viscosité de cisaillement sur une très large gamme fréquentielle pour l'huile Brookfield.

3.2.5. Ketchup

Nous avons reporté sur le graphe suivant les valeurs mesurées avec la bille, avec le rhéomètre ainsi que la valeur de η_s déduite à partir de η_L . La tendance rhéofluidifiante est tout à fait confirmée. Par contre il est impossible de dégager une loi générale, les données provenant de sources trop diverses. D'ailleurs, rien ne garantit que pour ce matériau complexe le choix de $\Delta=2$ soit valable.

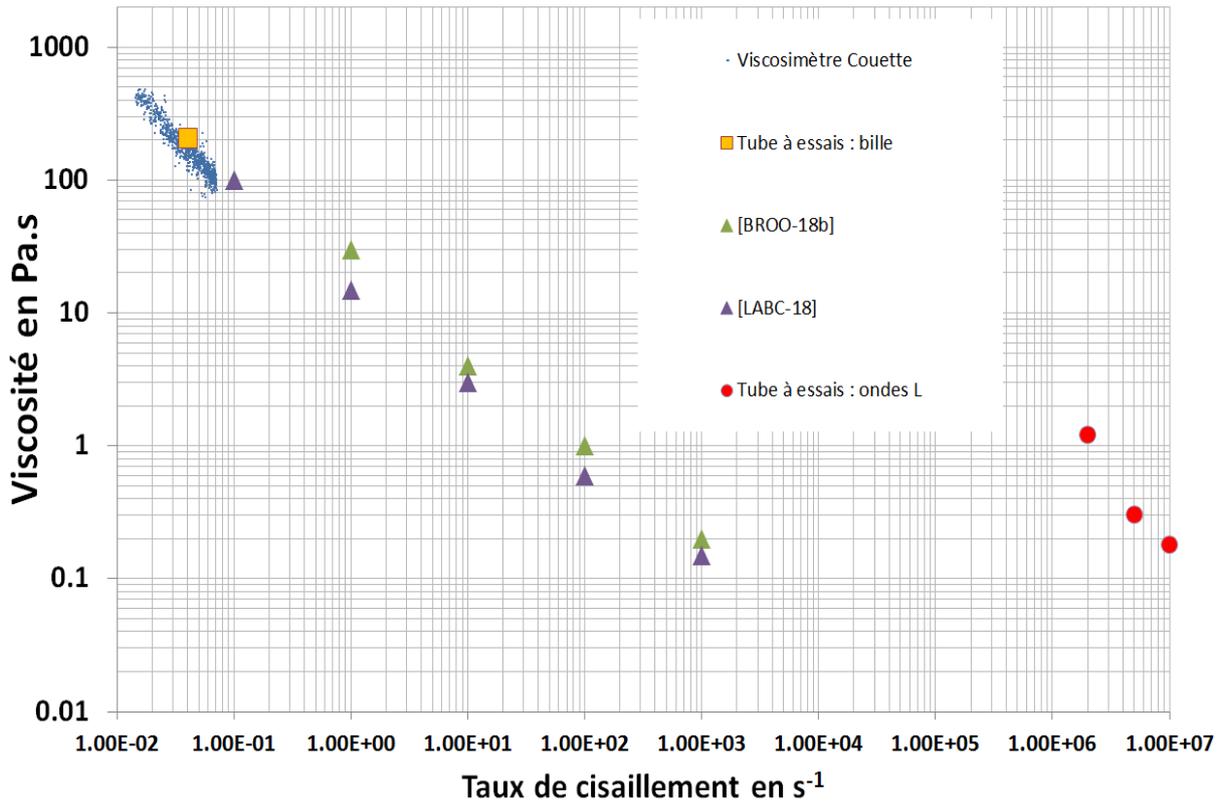


Figure III.23. Mesure de viscosité de cisaillement sur une très large gamme fréquentielle pour le Ketchup.

Conclusion

Dans ce chapitre nous nous sommes attachés à mettre en place une méthode absolue de mesure de la viscosité longitudinale. Grâce aux méthodes expérimentales proposées et aux outils mis en place le banc de mesure permet d'ores et déjà de mesurer la vitesse ultrasonore longitudinale et la viscosité longitudinale entre 1 et 10 MHz.

A priori, en se dotant de transducteurs de fréquences différentes et en modifiant légèrement la température de mesure cette gamme fréquentielle devrait pouvoir s'entendre de quelques centaines de kHz à plusieurs dizaines de MHz en vertu du principe de superposition temps-température.

Nous avons déjà pu établir des courbes maîtresses ultra large bande conformes aux attentes : comportement newtonien de la glycérine, rhéofluidification pour les huiles silicone, le ketchup. Par ailleurs la gamme de mesures est très large : de quelques dizaines de mPa.s à plusieurs dizaines de Pa.s. Même si tous ces éléments sont très positifs de nombreux points sont à améliorer :

- Les courbes maîtresses sont obtenues de façon totalement discontinues et la zone fréquentielle proche de quelques kHz n'est pour l'instant pas atteinte et ne peut pas l'être avec des méthodes de type pulse-écho du chapitre 3, compte tenu des dimensions trop réduites du tube à essai.

-La viscosité de cisaillement haute fréquence est déduite de la viscosité longitudinale ce qui comme nous l'avons vu est source de grosse incertitude compte tenu du fait que le facteur de proportionnalité entre η_L et η_S n'est pas connu à priori.

Le chapitre suivant se propose de tenter de résoudre ce dernier point en proposant une approche expérimentale toujours basée sur des ondes L mais qui devrait conduire à estimer η_S directement. Ainsi donc la mesure sera directe et devrait donc à l'inverse donner la valeur du facteur Δ . Sa connaissance est souvent intéressante car elle est reliée aux conformations moléculaires des liquides. En ce qui concerne les mesures aux fréquences voisines du kHz une discussion sera menée en fin de Chapitre 4.

Références bibliographiques :

- [BLAH-10] Blahova (I.A.). Measurement of liquid characteristics using ultrasound resonator. Proceedings of 20th International Congress on Acoustics, ICA 2010 23-27 August 2010, Sydney, Australia.
- [BRIG-92] A. Briggs, Acoustic microscopy, Clarendon, Oxford (1992).
- [DUKH-09] A.S. Dukhin, P.J. Goetz. Bulk viscosity and compressibility measurement using acoustic spectroscopy. Dukhin AS1, Goetz PJ.J. Chem. Phys. 130-124519. (2009).
- [GAZA-70] C. Gazanhes, M. Jessel. Techniques de l'ingénieur. Ultrasons. E2690. (1970).
- [GLAN-04a] F. Glangeaud, J.L. Lacoume, J.L. Mari, J. Mars. Traitement du signal pour géologues et géophysiciens. Volume 3. Techniques avancées. Publications de l'Institut Français du Pétrole. Editions Technip (2004).
- [GLAN-04b] F. Glangeaud, J.L. Mari. Wave separation. Institut français du pétrole. Editions Technip. (1994).
- [HULL-85] D.R. Hull (D.R.), H.E. Kautz, A. Vary. Measurements of ultrasonic velocity using phase-slope and cross-correlation methods. Material Evaluation, 43 (1985) 1455.
- [LAUX-18a] D. Laux, F. Augereau, G. Despau, E Le Clézio, J-Y Ferrandis, E. Rosenkrantz. Caractérisation de solides ou liquides par méthode de pulse echo. Techniques de l'Ingénieur. (2018).
- [LAUX-18b] D. Laux, O. Gibert, J-Y. Ferrandis, E. Rosenkrantz, M.A. Mograne, A.Prades. In pipe coconut water rheological characterization with ultrasonic waves. Journal of Food Engineering 235 (2018) 59-63.
- [LEVE-07] G. Lévêque, E. Rosenkrantz, D. Laux. Correction of diffraction effects in sound velocity and absorption measurements. Measurement science and technology, 18 (2007) 3458-3462.
- [ROUM-12] L. De Roumilly. Introduction à la technique ultrasonore multiéléments. Techniques de l'ingénieur. P 3790. (2012).
- [ROYE-99] D. Royer, E. Dieulesaint. Ondes élastiques dans les solides. Masson Editeur. Vol. 1 (1996) et Vol. 2 (1999).
- [ROSE-07] E. Rozenkrantz. Conception et tests d'un capteur ultrasonore dédié à la mesure de la pression et de la composition des gaz de fission dans les crayons combustibles. Thèse de Doctorat. Université de Montpellier (2007).
- [ROSE-09] E. Rosenkrantz, J-Y. Ferrandis, G. Lévêque, D. Baron (2009). Ultrasonic measurement of gas pressure and composition for nuclear fuel rods. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 603(3), 504-509.
- [ROSE-10] E. Rozenkrantz, J-Y Ferrandis, G. Lévêque, D. Baron. Caractérisation d'un gaz confiné à l'aide d'un capteur acoustique - Application aux crayons combustibles

nucléaires. Technique de l'ingénieur. IN113. (2010).

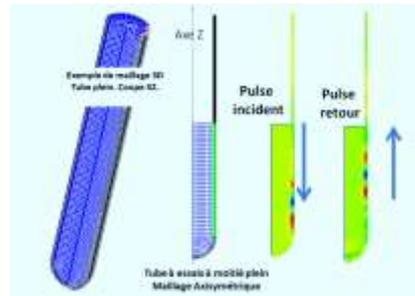
[SINH-01] D.N. Sinha and G. Kaduchak. Noninvasive determination of sound speed and attenuation in liquids. *Experimental Methods in the Physical Sciences* 39(2001).

[VOLE-17] A. Voleisis, R. Kazys, B. Voleisiene, R. Sliteris, L. Mazeika. Ultrasonic method for monitoring the clotting process during whole blood coagulation. *Ultrasonics*, 78 (2018), 146-151.

[WITC-11] M. Witczak, L. Juszcak, D. Gałkowska. Non-Newtonian behaviour of heather honey. *Journal of Food Engineering*, 104 (2011), 532-537.

CHAPITRE 4

VISCOSIMETRIE ULTRASONORE UTILISANT DES ONDES GUIDEES



Propagation d'un mode guidé dans les parois d'un tube à essais rempli de liquide viscoélastique. Simulation par éléments finis (CAST3M).
Source : Techniques de l'ingénieur. 2018. D. Laux et al. Caractérisation de solides ou de liquides par méthode de pulse écho.

Introduction

1. Eléments de théorie dans les tubes infinis

- 1.1. Eléments succincts concernant la propagation dans les tubes infinis
- 1.2. Etablissement d'une équation de propagation simplifiée
- 1.3. Utilisation du logiciel Disperse et modification de la loi simple
 - 1.3.1. Paramètres d'entrée
 - 1.3.2. Résultats

2. Approche expérimentale dans la gamme du MHz

- 2.1. Rappel des travaux déjà effectués au laboratoire sur tube
- 2.2. Protocole expérimental et mesures sur tube à essais
 - 2.2.1. Protocole et transducteurs spécifiques
 - 2.2.2. Etude du tube à essais vide
 - 2.2.3. Résultats sur la glycérine
 - 2.2.4. Résultats sur l'huile V350
 - 2.2.5. Résultats sur l'huile Brookfield
 - 2.2.6. Résultats sur du miel

3. Discussion. Accès aux fréquences voisines de quelques 10^{aines} de kHz

Conclusion

Références bibliographiques

Introduction

Dans de nombreuses méthodes de pulse-écho, les utilisateurs emploient des transducteurs longitudinaux pour générer des ondes longitudinales et des transducteurs transverses pour générer les ondes transverses. Il est cependant possible de mettre à profit des conversions de modes, ce qui signifie, générer des ondes transverses ou présentant une composante transverse par exemple à partir d'ondes purement longitudinales. Ceci est particulièrement intéressant car la conception des transducteurs longitudinaux est mieux maîtrisée. Par ailleurs les ondes longitudinales sont moins atténuées que les ondes transverses. Enfin le couplage transducteur / matériau à étudier est plus facile avec des ondes longitudinales. Ceci est couramment pratiqué dans le domaine du Contrôle Non Destructif en utilisant une incidence oblique avec des transducteurs de type « sabot ».

Historiquement une approche plus simple a été proposée par Roth en 1953 [ROTH-53]. L'idée, simple mais ingénieuse, consiste à utiliser un transducteur générant des ondes longitudinales dans une lame mince pour cisailer le fluide au contact de la lame.

Une représentation schématique est donnée *Figure IV.1* et une simulation par éléments finis extraite du mémoire d'HDR de D. Laux est donnée *Figure IV.2*.

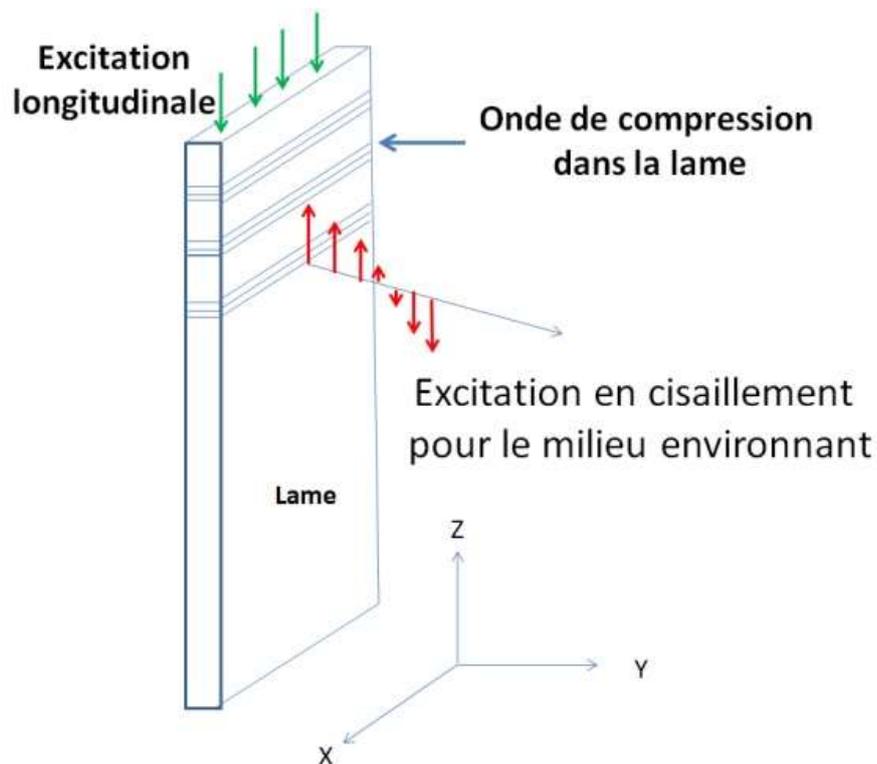


Figure IV.1. Génération d'ondes de cisaillement par onde longitudinale dans une lame fine [LAUX-14].

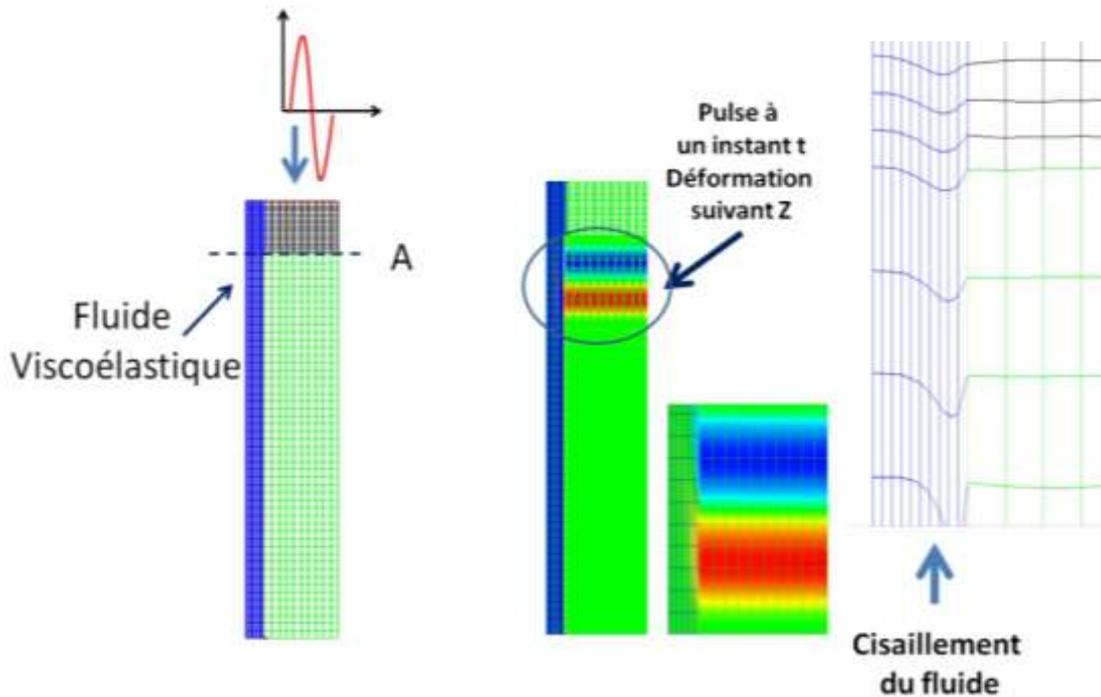


Figure IV.2. Simulation par éléments finis de la propagation d'un pulse mécanique dans une lame (maillage noir/vert), Vue en coupe YZ, Cisaillement du fluide visqueux [LAUX-14].

On peut montrer que si la longueur d'onde longitudinale λ_{lame} dans la lame est très grande par rapport aux dimensions latérales de la lame, l'onde est purement élongationnelle dans la lame. Cela signifie que les déformations latérales (suivant X et Y) de la lame sont négligeables, ce qui revient à négliger le coefficient de Poisson. Dans ce cas l'onde de compression élongationnelle (nommée mode L(0,1)) se propage dans la lame libre à la vitesse $[E_{lame}/\rho_{lame}]^{0.5}$ où E_{lame} est le module d'Young et ρ_{lame} la masse volumique. Il est à noter que cette vitesse est différente de la vitesse longitudinale à laquelle se propage une onde de compression dans le matériau si celui très grand dans les 3 directions par rapport à la longueur d'onde (milieu infini). Dans la plupart des cas, pour des lames en verre ou en métal, ceci conduit à des vitesses de l'ordre de 5000 à 6000 m.s⁻¹.

Dans ce cas, si cette lame est plongée dans un liquide, les ondes produites dans le liquide sont, quant à elles, purement transverses. En effet, la lame ne se déformant pas suivant Y, aucune onde de compression n'est générée dans le fluide. Il est alors assez facile de modéliser l'effet de la viscoélasticité du fluide sur la lame. L'onde qui se propage dans la lame est ralentie par les frottements visqueux générés sur les faces de la lame et l'onde perd de l'énergie, son amplitude décroît. Ainsi, en analysant la vitesse et l'amplitude de l'onde guidée dans la lame, on peut avoir un accès assez simple et direct aux propriétés viscoélastiques du fluide.

Par exemple dans son mémoire d'HDR, D. Laux montre que si le mode propagé L(0,1) dans la lame est purement élongationnel, la vitesse de propagation dans la lame prend la forme suivante lorsque la lame est plongée dans un liquide parfait sans élasticité ($G' = 0$ et $G'' = \omega\eta$) :

$$V_{visq} = \frac{1}{\frac{1}{V_{lame}} + \frac{\chi}{\rho_{lame} V_{lame}} \sqrt{\frac{\rho_{lame} \eta_S}{2\omega}}} \quad (IV.1)$$

Avec :

- V_{lame} : vitesse de propagation dans la lame à vide
- V_{visq} : vitesse de propagation dans la lame plongée dans le liquide visqueux
- ρ_{lame} : masse volumique de la lame
- ρ_{fluide} : masse volumique du fluide
- χ : paramètre valant $1/e$ (si un seul côté de la lame est au contact du fluide) et valant $(2/e)$ si la lame est plongée dans le fluide
- ω : pulsation

Plus la lame sera fine, et plus sa masse volumique sera faible, plus l'effet de la viscosité sera fort. Ainsi, classiquement des lames d'épaisseur inférieures au 1 mm sont souhaitables si l'on veut sonder des viscosités faibles. Au regard de la vitesse dans la lame, si l'on veut respecter les conditions classiques (épaisseur $\ll \lambda$), cela donne des fréquences de l'ordre de 250 kHz au maximum.

Dans ses travaux, Roth ne mesure pas directement la vitesse de propagation dans la lame mais exploite les résonances de la lame. Il utilise des fréquences de l'ordre de 30 kHz. Si l'on considère par exemple un mode de résonance (libre / libre) de la lame (mode en $\lambda/2$) cela conduit à des longueurs de lame voisines de 10 cm. Les limitations du système sont donc sa fréquence maximale d'utilisation. Si l'on veut sonder des fréquences plus hautes il faut redimensionner une nouvelle sonde plus courte. Par ailleurs, l'utilisation de lames très fines peut poser problème compte tenu de la fragilité.

Une solution possible est alors de ne plus utiliser une lame mais un tube creux aux parois fines. De par sa géométrie il sera plus résistant. Ce genre d'approche, cette fois, issue du domaine pétrolier et largement décrite dans l'ouvrage de Rose par exemple [ROSE-99] pour sonder la viscosité du pétrole dans les pipelines a été largement étudiée dans la littérature. Un des premiers à poser les équations de base est Gazis dans un article fondateur [GAZI-59]. Le sujet est toujours d'actualité et l'on peut citer par exemple les travaux plus récents de Vollmann, Segura, Ma et Prasad [VOLL-97][SEGU-00][MA-07][PRASA-08]. Un travail de synthèse important a été réalisé par B. N. Pavlakovich dans sa thèse [PAVL-98]. Généralement les auteurs s'intéressent plutôt à l'atténuation des ondes [NAGY-95][NAGY-96].

Nous préférons focaliser notre attention sur la vitesse des ondes. En effet l'atténuation des modes propagés est due d'une part à la viscosité du fluide environnant mais aussi au phénomène de Leakage : de l'énergie est rayonnée dans le fluide dès que le mode n'est plus purement élongationnel, ce qui est le cas pour le mode que nous utiliserons. Le modèle simple que nous utiliserons ne prendra pas ce phénomène en compte.

Après une présentation très rapide des modes de propagation dans un cylindre infini nous développerons une relation simple analogue à la relation IV.1 dans le cas d'un tube infini de diamètre de l'ordre du cm pour des fréquences de travail comprises en 500 kHz

et 1 MHz. Cette relation, établie dans le cadre d'hypothèses très strictes sera ensuite modifiée pour s'adapter à notre problématique réelle en utilisant le logiciel Disperse [DISP-13]. La fin du chapitre sera consacré à la transposition à la configuration « tube à essais ». Nous tenterons de valider cette approche, d'en donner les limites et de proposer des améliorations.

En particulier au paragraphe 3 nous discuterons des adaptations nécessaires pour éventuellement accéder aux fréquences voisines de quelques dizaines de kHz.

1. Eléments de théorie dans les tubes infinis

1.1. Eléments succincts concernant la propagation dans les tubes infinis

Si l'on s'intéresse uniquement aux modes axisymétriques pour lesquels la déformation ne dépend pas de l'angle θ des coordonnées cylindriques, pour un tube creux, en très basse fréquence, on retrouve le mode d'élongation nommé L(0,1) se propageant suivant l'axe (Z) du tube sans le déformer suivant la composante r des coordonnées cylindriques, donc radialement. Cependant ce mode disparaît rapidement dès que la fréquence augmente. De nombreux modes dispersifs apparaissent et généralement déforment fortement radialement les parois du tube. Parmi ces modes, le mode L(0,2), quant à lui présente une particularité. Lorsque le produit (fréquence (MHz), épaisseur (mm)) est compris entre 0.5 et 1.5 il devient assez peu dispersif [DJIL-09]. C'est la raison pour laquelle nous allons focaliser notre attention sur ce mode pour évaluer la viscosité de cisaillement aux alentours du MHz (voir *Figure IV.3*).

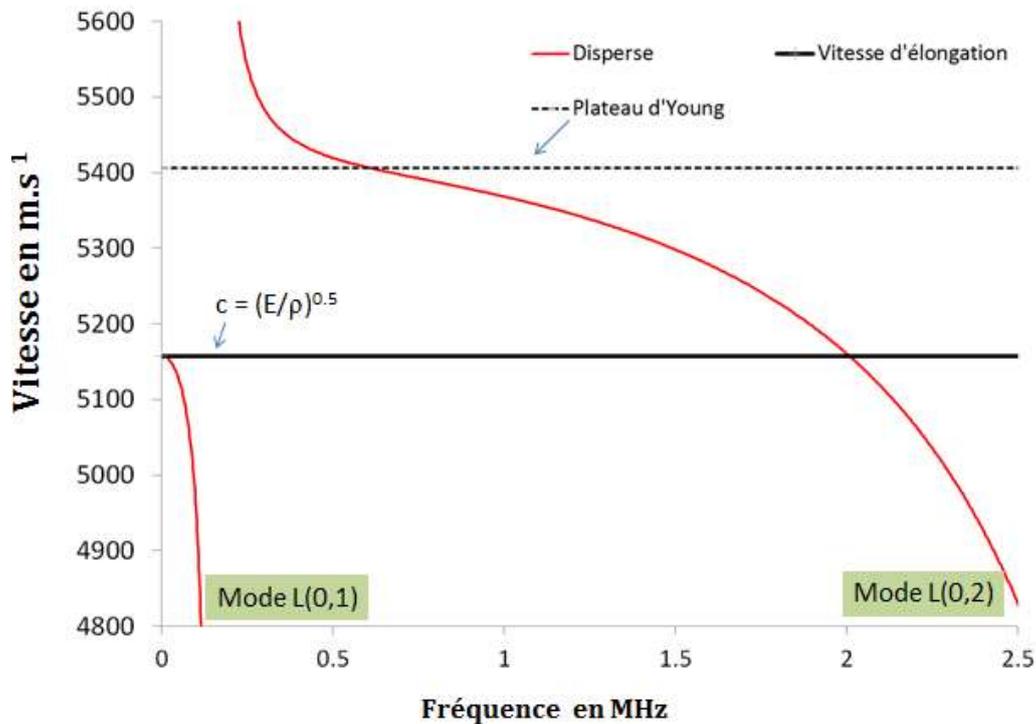


Figure IV.3. Modes L(0,1) et L(0,2) dans un tube en verre vide de diamètre 1 cm et d'épaisseur 1 mm. Simulation réalisée avec le logiciel Disperse.

1.2. Etablissement d'une équation de propagation simplifiée

Considérons donc un tube infini d'épaisseur e , de rayon interne r , de rayon externe R et de masse volumique ρ_T pour lequel un mode élongationnel pur se propage dans les parois. L'application du principe de la dynamique sans frottement conduit à l'équation d'Alembert où u représente le déplacement particulaire et E le module d'Young :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{E}{\rho_T} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \quad (\text{IV.2})$$

Si maintenant un fluide visqueux ayant un module de cisaillement complexe G^* et une masse volumique ρ_L remplit ou entoure le tube, il faut prendre en compte les frottements visqueux. La force de frottement F (suivant l'axe Z des coordonnées cylindriques) sera directement liée à l'impédance acoustique transverse qui s'exprime par la relation suivante car il s'agit d'un cisaillement pur du fluide (relation IV.3). Si le mode n'est pas élongationnel Z_L ne peut pas s'écrire ainsi.

$$Z_L = \frac{F/S_L}{\partial u / \partial t} = \sqrt{\rho_L \cdot G^*} \quad (\text{IV.3})$$

La surface latérale S_L dépendra de la configuration expérimentale.

Si le fluide est présent à l'intérieur et à l'extérieur du tube alors $S_L = 2 \cdot \pi (R + r) \cdot dz$

S'il n'est présent qu'à l'intérieur $S_L = 2 \cdot \pi (r) \cdot dz$

Enfin s'il n'est présent qu'à l'extérieur $S_L = 2 \cdot \pi (R) \cdot dz$

L'équation d'Alembert prend alors la forme suivante [ROTH-53] :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{E}{\rho_T} \cdot \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{2 \cdot \sqrt{\rho_L \cdot G^*}}{\rho_T} \cdot \beta \cdot \dot{u} \quad (\text{IV.4})$$

où β est un paramètre fixé par la configuration expérimentale :

- liquide présent des 2 côtés du tube : $\beta = \frac{1}{e}$ e : épaisseur du tube

- liquide présent à l'extérieur : $\beta = \frac{R}{R^2 - r^2}$

- liquide présent seulement à l'intérieur : $\beta = \frac{r}{R^2 - r^2}$

Pour une onde ultrasonore qui se propage dans les parois du tube en s'amortissant par frottement visqueux on peut écrire : $u = e^{j(\omega t - k^* x)}$ avec $k^* = \frac{\omega}{c_{visq}} - j\alpha$. La vitesse de l'onde est notée c_{visq} puisqu'elle est différente de la vitesse de propagation dans le tube vide. Ceci revient en fait à écrire l'onde sous forme $u = e^{-\alpha x} e^{j(\omega t - kx)}$ où α représente l'atténuation. L'introduction de cette forme d'onde dans la relation (IV.4) conduit alors à définir k^* de la façon suivante :

$$k^* = \frac{\omega}{c_{visq}} - j\alpha = \left[\left(\frac{\omega}{c_T} \right)^2 - j \cdot \frac{2\omega \sqrt{\rho_L \cdot G^*}}{\rho_T \cdot c_T^2} \cdot \beta \right]^{1/2} \quad (IV.5)$$

Avec :

$$c_T = \sqrt{\frac{E}{\rho_T}} : \text{vitesse de l'onde dans le tube vide.}$$

Si l'on parvient donc à mesurer c_{visq} et α , k^* est déterminé. Il ne reste plus qu'à calculer k^{*2} puis à utiliser (IV.5) pour déduire G' , G'' et enfin la viscosité de cisaillement $\eta_s = G''/\omega$. Les calculs sont simples mais les expressions de G' et G'' obtenues analytiquement sont assez lourdes et difficiles à analyser.

Nous allons traiter le cas du fluide parfait sans élasticité. Ceci est certes une approximation, mais généralement avant les transitions vitreuses en hautes fréquences $G'' \gg G'$. Par ailleurs nous supposerons que $\frac{\beta}{\rho_T} \sqrt{\frac{2\rho_M \eta_s}{\omega}} \ll 1$, ce qui pour un tube en verre de 1 cm de diamètre et d'épaisseur 1 mm étudié à une fréquence de plusieurs dizaines ou centaines de kHz revient à dire que la viscosité reste inférieure à quelques dizaines de Pa.s. Cette hypothèse est tout à fait valable pour la glycérine, le miel, les huiles silicone, et même le ketchup étudié en haute fréquence puisqu'il est rhéofluidifiant. Les calculs conduisent alors à la relation suivante :

$$c_{visq} = \frac{c_T}{1 + \frac{\beta}{\rho_T} \cdot \sqrt{\frac{\rho_L \eta_s}{2 \cdot \omega}}} \quad (IV.6)$$

Une expression de l'atténuation $\alpha_{visq} = \frac{\beta}{\rho_T c_T} \sqrt{\frac{\omega \eta_s \rho_L}{2}}$ est aussi obtenue et est conforme à celle donnée par [NAGY-96] pour un mode élongationnel en prenant $\beta=1/r$ puisque dans cette communication Nagy étudie une barre de rayon r .

1.3. Utilisation du logiciel Disperse et modification de la loi simple

1.3.1. Paramètres d'entrée

Les paramètres d'entrée correspondent aux caractéristiques de nos tubes. Elles sont données dans le tableau suivant. Les vitesses ultrasonores ont été mesurées par méthode de pulse-écho.

ρ_T	2500 kg.m ⁻³
e	830 μ m
R	5.1 mm
Vitesse longitudinale	5980 m.s ⁻¹
Vitesse transverse	3197 m.s ⁻¹
Module d'Young	66.5 GPa
Module de cisaillement	26 GPa
Coefficient de Poisson	0.3
Vitesse d'élongation	5157 m.s ⁻¹
Plateau d'Young	5406 m.s ⁻¹

Tableau IV.1. Paramètres d'entrée de la simulation.

Pour le liquide la masse volumique est celle de la glycérine, soit 1260 kg.m⁻³ et la vitesse longitudinale est 1920 m.s⁻¹. Pour la simulation nous avons dû ajouter l'option « Sink » dans le logiciel Disperse qui permet de supprimer les aller-retour longitudinaux dans le liquide et qui se manifestent en hautes fréquences. Ces modes sont générés par la déformation radiale des parois du tube en hautes fréquence. C'est d'ailleurs cette déformation que nous avons négligée.

1.3.2. Résultats

Comme prévu, lorsque la viscosité augmente la vitesse de propagation du mode L(0,2) dans les parois du tube suivant l'axe z des coordonnées cylindriques (supposé infini dans Disperse) diminue (voir *Figure IV.4*).

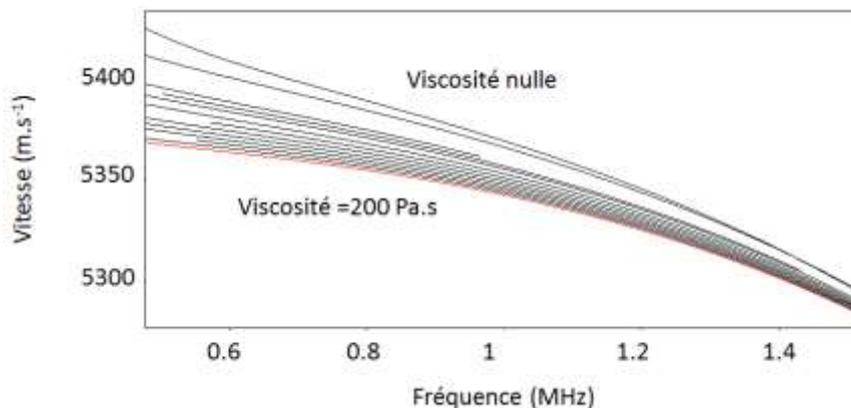


Figure IV.4. Influence de la viscosité sur la vitesse du mode L(0,2) dans le cas d'un tube infini rempli de glycérine.

A la fréquence de 1 MHz par exemple nous avons tracé sur le graphe suivant $1/c_{visq}$ donné par Disperse en fonction de $\sqrt{\eta_s}$. La courbe obtenue est une droite, ce qui est conforme à la relation (IV.4).

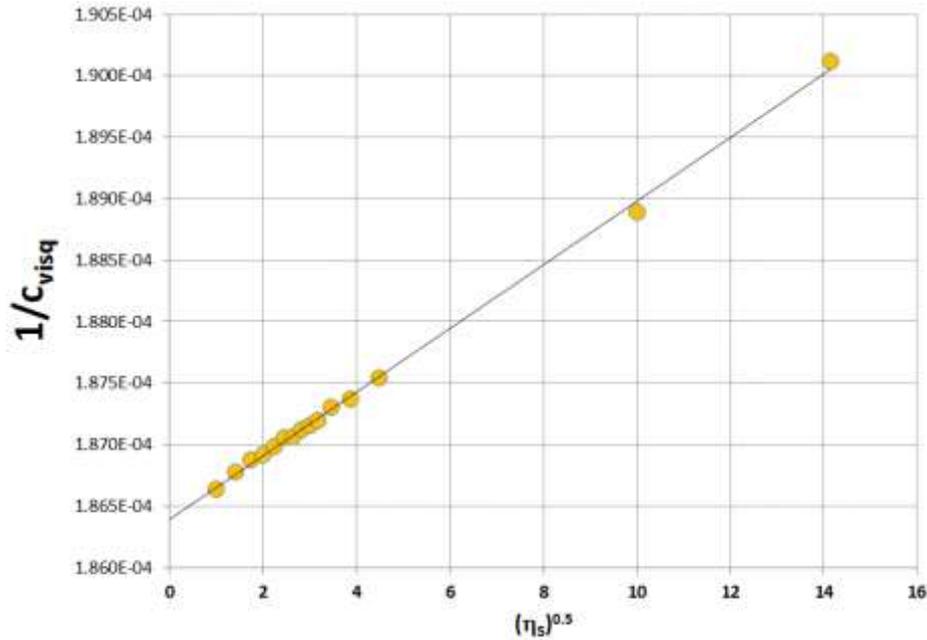


Figure IV.5. Evolution à 1 MHz de $1/c_{visq}$ donné par Disperse en fonction de $\sqrt{\eta_s}$.

Par contre sur le graphe suivant il apparait que même si la tendance est bonne, la relation IV.4 n'est pas conforme à la modélisation par Disperse, ce qui est normal puisque rappelons le, la relation IV.4 suppose le mode purement élongationnel ce qui n'est pas le cas pour L(0,2). Nous avons donc ajouté un facteur correctif dans la relation (IV.4) qui permet d'ajuster notre relation analytique aux résultats de Disperse. Plusieurs simulations à des fréquences différentes avec Disperse ont montré que le facteur correctif dépend légèrement de la fréquence mais sur la gamme 0.6 MHz-1 MHz il évolue peu.

Ainsi donc nous proposons dans la suite d'utiliser la relation suivante où c_T représente la vitesse du mode dans le tube vide à la fréquence d'étude. Pour L(0,2) c_T ne sera donc pas égal à $\sqrt{\frac{E}{\rho_T}}$. A priori il peut y avoir une légère différence entre la vitesse dans le tube vide et la vitesse dans le tube rempli d'un liquide à viscosité quasi nulle par effet de charge. Les simulations ayant montré que l'écart est très faible pour L(0,2), nous conserverons $c_T =$ vitesse du mode dans le tube vide à la fréquence d'étude. Ainsi :

$$c_{visq} = \frac{c_T}{1 + \frac{\beta}{\rho_T} \cdot \sqrt{\frac{Corr \cdot \rho_L \eta_s}{2 \cdot \omega}}} \quad (IV.7)$$

Avec $Corr \in (0.5, 0.9)$ dans la gamme 600 kHz-1.5 MHz

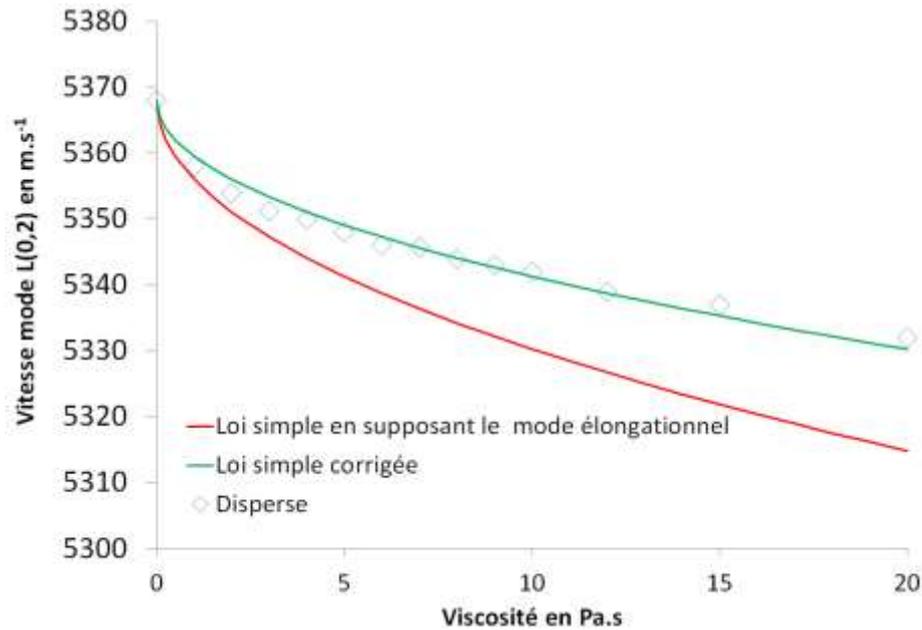


Figure IV.6. Ajustement à 1 MHz des résultats de la simulation par la relation IV.6. $Corr=0.5$.

2. Approche expérimentale dans la gamme du MHz

2.1. Rappel des travaux déjà effectués au laboratoire sur tube

Dans le cadre d'un stage réalisé en 2013 au sein de l'équipe, un tube était immergé progressivement dans le liquide visqueux. Le déplacement du tube était contrôlé par un moteur. Cette méthode est totalement analogue à la méthode d'indentation présentée dans ce manuscrit. Un transducteur piézoélectrique positionné à l'extrémité non immergée du tube permettait de générer les ondes dans les parois du tube. Le signal acoustique se propageant dans les parois du tube suivant l'axe z était réfléchi en bout de tube générant ainsi un écho. Le retard subi par l'écho dû à l'immersion dans le liquide visqueux avait pu être observé et la mesure de c_{visq} avait donné de bons résultats en utilisant la relation (IV.7) (voir Figure IV.7)

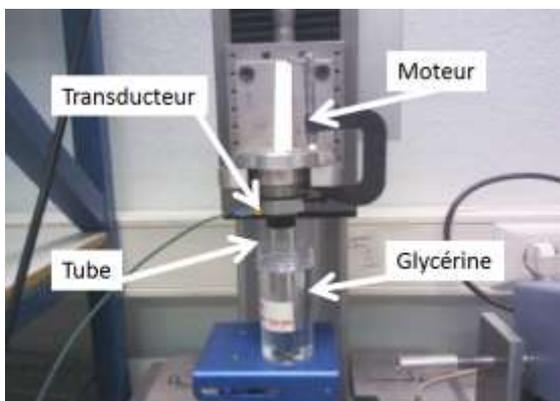


Figure IV. 7. Banc expérimental mis au point en 2013 et visualisation du décalage temporel de l'écho d'aller-retour dans les parois du tube [LIEB-13].

2.2. Protocole expérimental et mesures sur tube à essais

2.2.1. Protocole de mesure et transducteurs spécifiques

Pour s'adapter à notre tube à essais, 2 transducteurs annulaires spécifiques ont été réalisés par l'entreprise Sonaxis à Besançon et financés par des fonds du labex NUMEV. Leur originalité réside dans le fait qu'ils sont percés en leur centre. Ainsi, un fois couplés au tube à essai on pourra remplir ce dernier progressivement et analyser le décalage temporel de l'écho comme lors d'une procédure d'indentation. On pourra aussi d'ailleurs lâcher la bille sans enlever le transducteur et déduire la viscosité en très basse fréquence en utilisant la méthode proposée au chapitre 2. Le premier transducteur présente un trou plus petit. Le second sera plus adapté au lâcher de bille. (voir *Figure IV.8*).

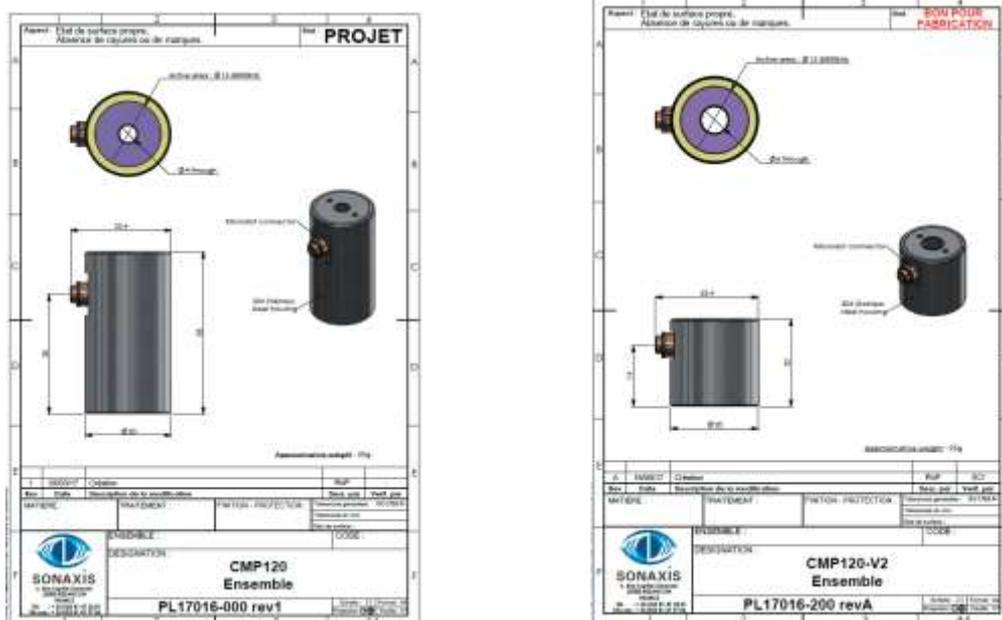


Figure IV.8. Transducteurs annulaires.

Pour s'affranchir du fond du tube à essais, on le remplit d'abord d'un peu de liquide (quelques mm). Dans ce cas, le temps d'aller-retour du signal dans les parois du tube s'écrit (Figure IV.9) :

$$t_1 = t_{fond} + \frac{2d}{c_T} \quad (IV.8)$$

où t_{fond} représente le temps d'aller-retour dans le fond du tube à essais.

Ensuite on ajoute une hauteur dz de liquide. Le nouveau temps de parcours devient (Figure IV.9):

$$t_2 = t_{fond} + \frac{2(d-dz)}{c_T} + \frac{2dz}{c_{visq}} = t_{fond} + \frac{2d}{c_T} + 2dz \left[\frac{1}{c_{visq}} - \frac{1}{c_T} \right] \quad (IV.9)$$

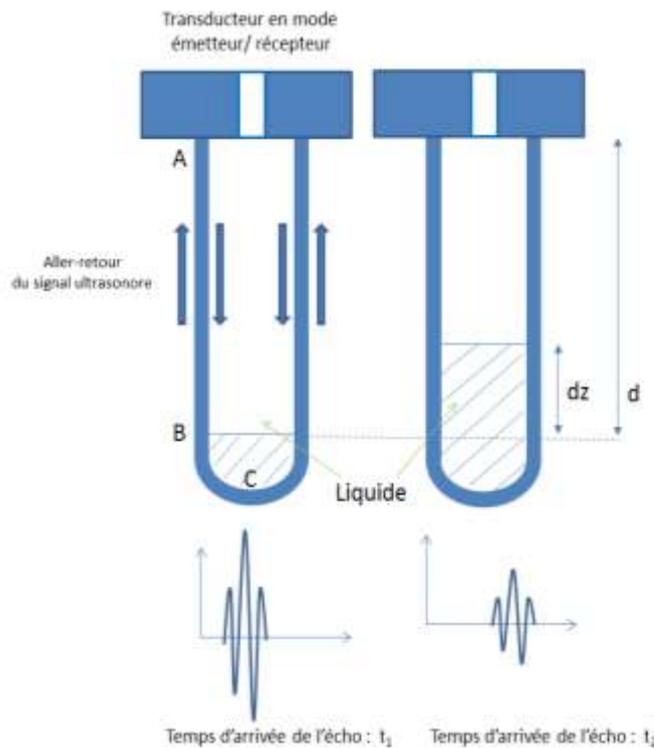


Figure IV.9. Trajets ultrasonores dans les parois.

Par conséquent, si l'on trace le déplacement de l'écho en fonction de la hauteur de remplissage la pente P est directement liée à c_{visq} par la relation suivante :

$$P = 2 \cdot \left(\frac{1}{c_{visq}} - \frac{1}{c_T} \right) \quad (IV.10)$$

En combinant cette relation avec la relation IV.7, la viscosité de cisaillement s'exprime de la façon suivante :

$$\eta_s = \frac{P^2 \omega [\rho_T c_T]^2}{2\beta^2 \rho_L \cdot Corr} \quad (IV.11)$$

Avec $\beta = \frac{r}{R^2 - r^2}$ puisque le liquide est à l'intérieur. Pour notre tube à essais cela donne une valeur proche de 559 m^{-1} .

-Remarque 1 : nos transducteurs présentent une fréquence centrale de 850 kHz. Dans ce cas, les simulations avec Disperse, comparées à notre relation simplifiée ont conduit à utiliser $\text{Corr}=0.7$.

-Remarque 2 : pour les liquides fortement visqueux, les multiples aller-retours dans les parois du tube à essais sont trop atténués pour être exploitables mais le décalage temporel est mesurable au premier aller-retour. Ainsi donc pour ces liquides nous travaillons avec le premier écho.

A l'inverse pour les liquides faiblement visqueux nous avons utilisé le $n^{\text{ième}}$ aller-retour qui permet d'avoir un décalage temporel mesurable. Lors de la mesure, la pente mesurée est alors divisée par n pour déduire P . En effet pour un remplissage dz l'écho n parcourt $2ndz$.

-Remarque 3 : pour la validation de l'approche, le tube a été gradué et maintenu dans un système mécanique, certes rudimentaire mais efficace. De la mousse a été ajoutée au fond du tube pour limiter le couplage tube / structure (*Figure IV.10*). Une seringue, introduite par le haut, permet le remplissage.

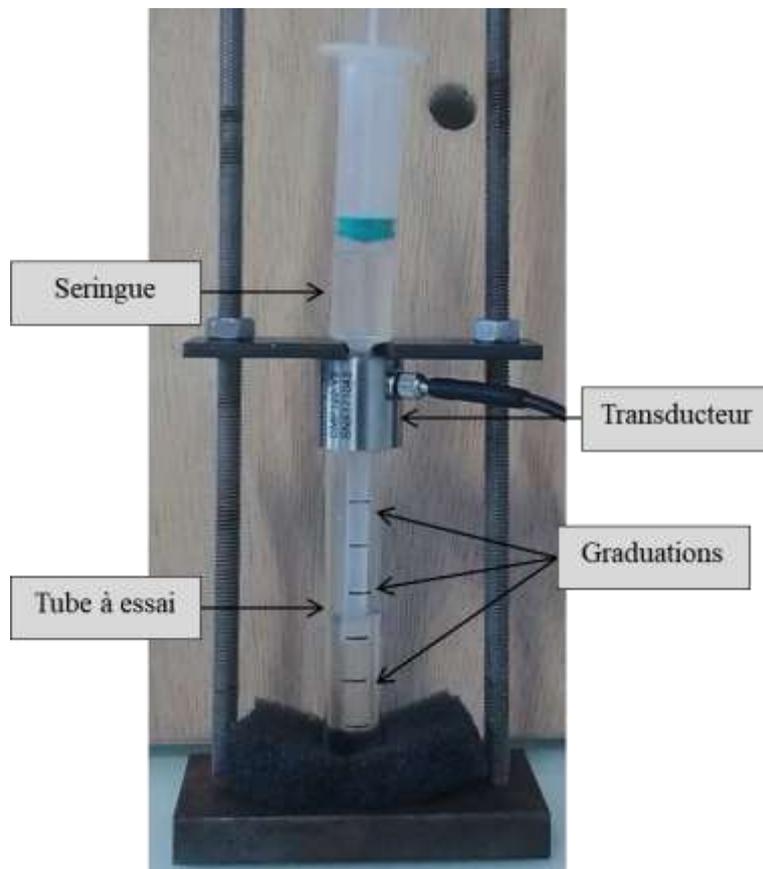


Figure IV.10. Dispositif de mesure avec le tube à essai.

2.2.2. Etude du tube à essais vide

Pour déduire la viscosité de cisailment nous avons besoin de connaître la vitesse ultrasonore dans le tube vide. Nous avons coupé plusieurs tubes à essai avec différentes longueurs (21.16, 30.94, 40.23 et 61.97 mm). Ensuite nous avons mesuré la vitesse ultrasonore avec la méthode A du chapitre III (Double FFT) (voir *Figure IV.11*).

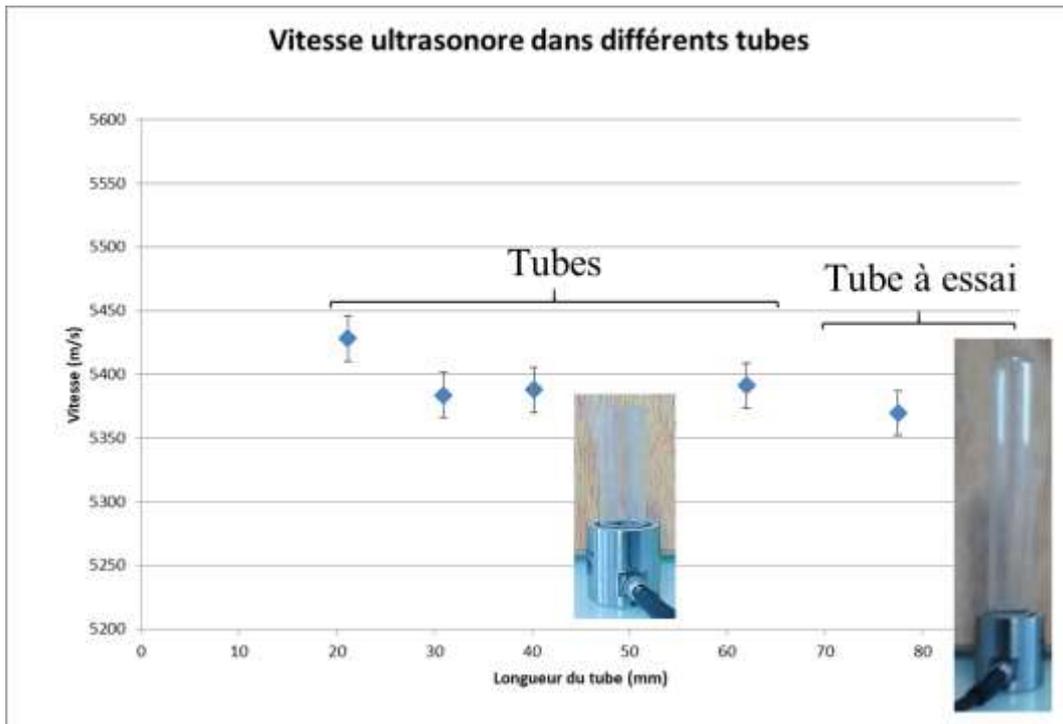


Figure IV.11. Mesures de la vitesse ultrasonore du mode $L(0,2)$ pour différents tubes.

Pour que la vitesse moyenne dans les tubes c'est-à-dire 5365 m.s^{-1} soit la même dans le tube à essais (mesurée de la même façon) nous avons dû imposer une longueur de tube à essais valant 77.5 mm . Ceci correspond en fait exactement à la longueur ABC (Voir Figure IV.9) et représente la demi distance parcourue par l'onde guidée.

2.2.3. Résultats sur la glycérine

Le contrôle de température a été réalisé au moyen d'une étuve Binder permettant une régulation de -10°C à 100°C avec une précision annoncée par le constructeur de 0.1°C . Le tube à essais, le transducteur ainsi que le liquide à étudier sont introduits ensemble dans l'étuve. Pour chaque température le fond du tube à essais est rempli et l'écho correspondant acquis. Ensuite, le tube est progressivement rempli par pas de 1 cm . A chaque pas, l'écho est sauvé. Enfin le temps ($t_2 - t_1$) est mesuré et tracé en fonction de dz .

Comme attendu les courbes obtenues sont bien des droites (voir *Figure IV. 12*). Enfin la viscosité est calculée.

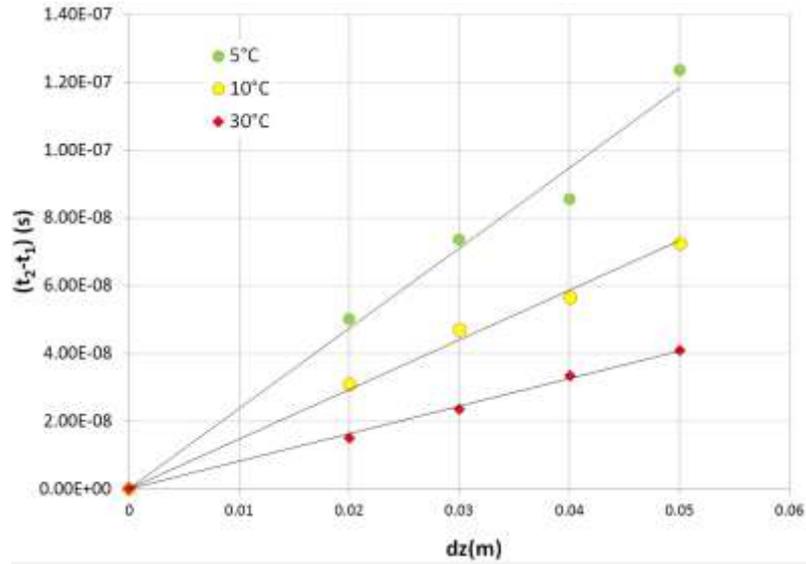


Figure IV.12. Evolution du temps de vol en fonction de la hauteur de remplissage du tube à essais.

Pour compléter la Figure IV.7, les nouvelles valeurs de viscosité obtenues ainsi que celle trouvée par la méthode de la bille ont été reportées sur la figure suivante.

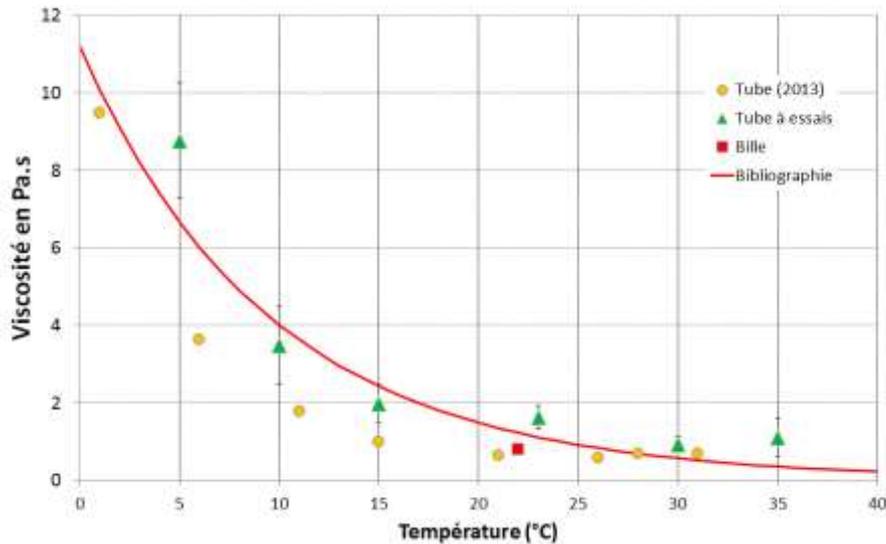


Figure IV.13. Viscosité mesurée pour de la glycérine en fonction de la température.

A 22°C, les viscosités mesurées par la méthode de chute de bille, par le viscosimètre Couette, par les ondes de volume longitudinales et par le mode guidé L(0,2) sont très proches conduisant au fait que la glycérine présente bien un comportement Newtonien jusqu'à 10 MHz.

2.2.4. Résultats sur l'huile V350

Les mesures sur l'huile V350 se sont avérées difficiles voire impossibles à 22 °C, le décalage temporel de l'écho étant vraiment trop faible. Nous avons donc refroidi le système à 10°C pour obtenir un résultat. Grâce à la relation (IV.12) donnée par le

fabriquant [BLUE-18], permettant en basse fréquence de prendre en compte l'effet de la température, nous avons pu construire une loi de Cross à 10°C en choisissant la viscosité calculée à 10°C (472 mPa.s) comme valeur de η_0 dans la relation (III.9).

$$\eta(T) = 0.350. e^{1683 \left[\frac{1}{T} - \frac{1}{298} \right]} \quad (IV.12)$$

Le résultat est présenté en pointillés oranges sur la *Figure IV.14*. Le résultat obtenu grâce au mode L(0,2) est cohérent avec cette loi de Cross même si la barre d'erreur reste grande. Nous estimons que nous atteignons la limite de sensibilité du banc actuel c'est-à-dire environ 150 mPa.s.

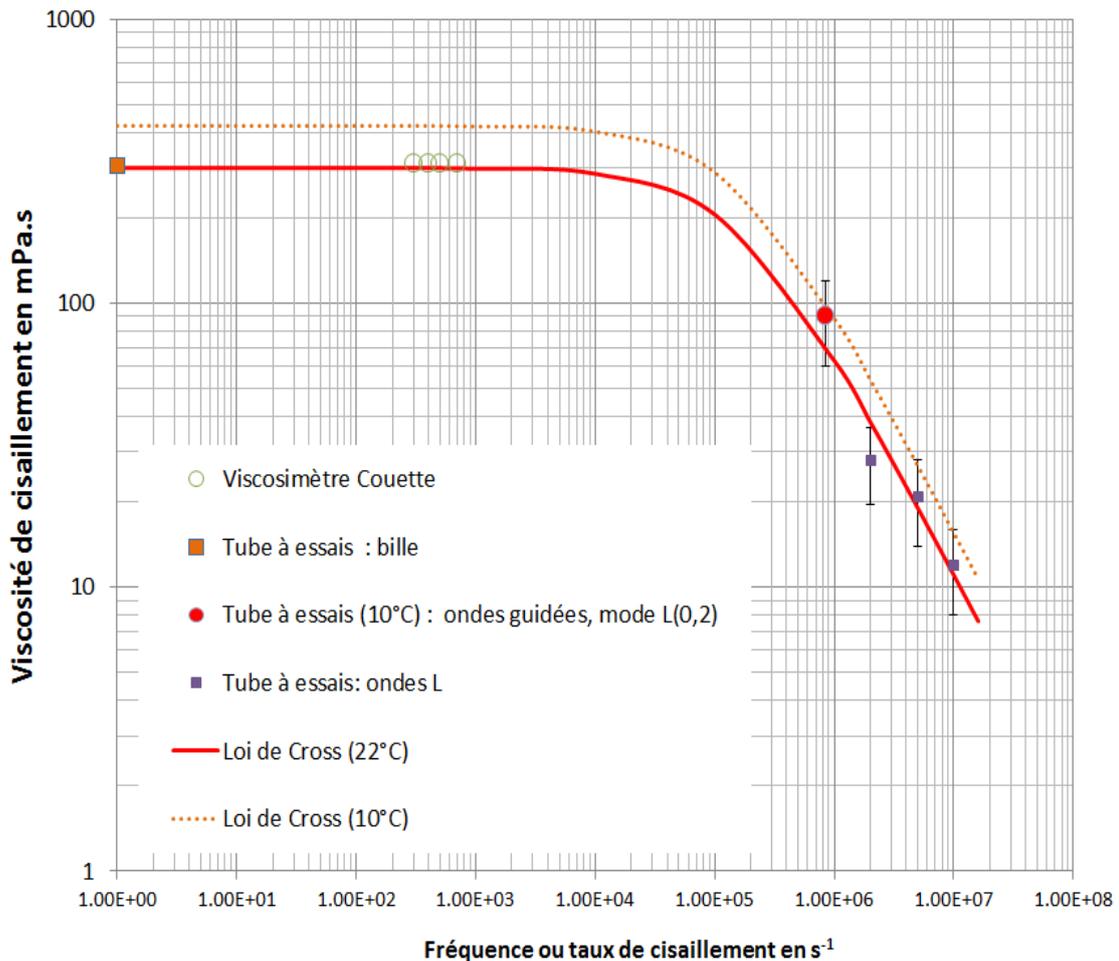


Figure IV.14. Courbe maîtresse à 22°C pour l'huile V350.

2.2.5. Résultats sur l'huile Brookfield

Pour l'huile Brookfield aucun résultat n'a pu être obtenu. Par contre, si l'on se fie au comportement pressenti et présenté *Figure III.23* on peut estimer que la viscosité est supérieure à 30 mPa.s et inférieure à la limite de mesure de 150 mPa.s (voir *Figure IV.15*). Une valeur moyenne entre ces deux limites conduit à 60 mPa.s, ce qui est cohérent avec la *Figure III.23*.

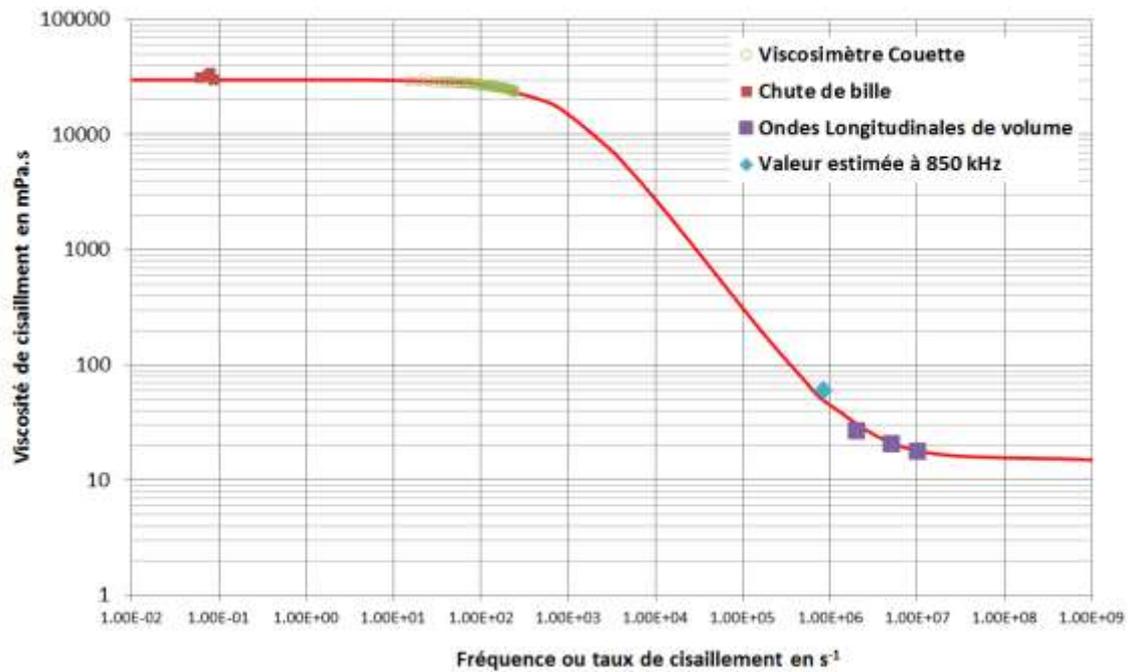


Figure IV.15. Courbe maîtresse à 22°C pour l'huile Brookfield.

2.2.6. Résultats sur du miel

Quatre miels dont les taux d'humidité ont été évalués au moyen d'un réfractomètre de poche (Atago-Pocket) ont été étudiés. Un des miels a été dilué pour élargir la gamme de mesure. Le graphe ci-dessous présente l'évolution de τ en fonction de dz . Enfin, la viscosité en fonction du taux d'humidité est reportée sur la Figure IV.17. Les ordres de grandeur obtenus sont en accord avec les valeurs données par Yanniotis dans la référence [YANN-06].

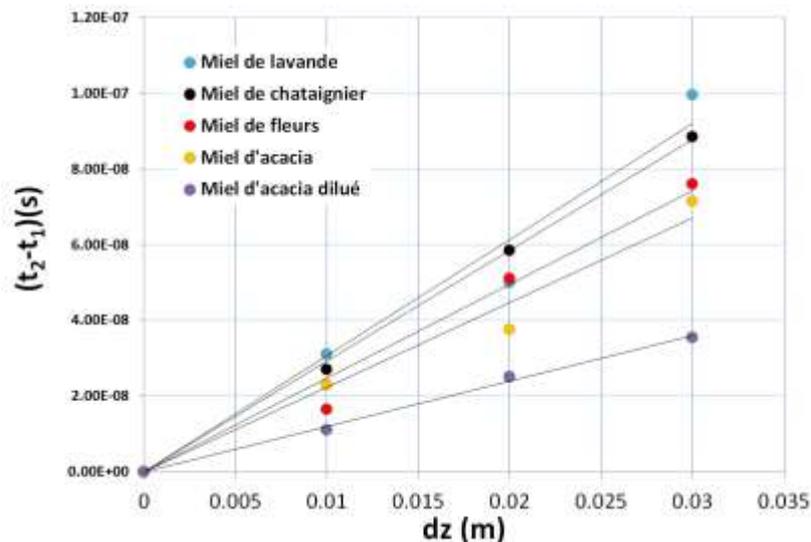


Figure IV.16. Miel : évolution du temps de vol en fonction de la hauteur de remplissage du tube à essai.

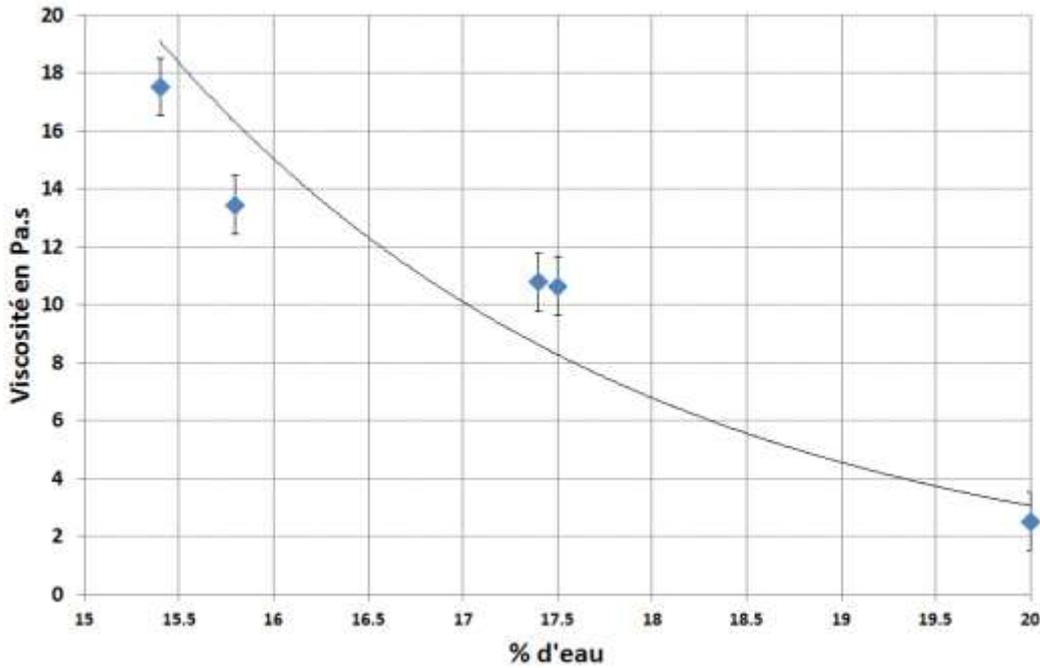


Figure IV.17. Viscosité mesurée en fonction du pourcentage d'eau dans 5 miels différents.

3. Discussion : accès aux fréquences voisines de quelques dizaines de kHz

En basses fréquences et donc pour le mode L(0,1), plusieurs simulations avec le logiciel Disperse ont montré que la masse volumique du liquide avait un effet notable (effet de charge), phénomène non constaté pour le mode L(0,2). Ainsi donc nous avons tracé ci-dessous la vitesse du mode L(0,1) en fonction de la masse volumique pour une viscosité nulle.

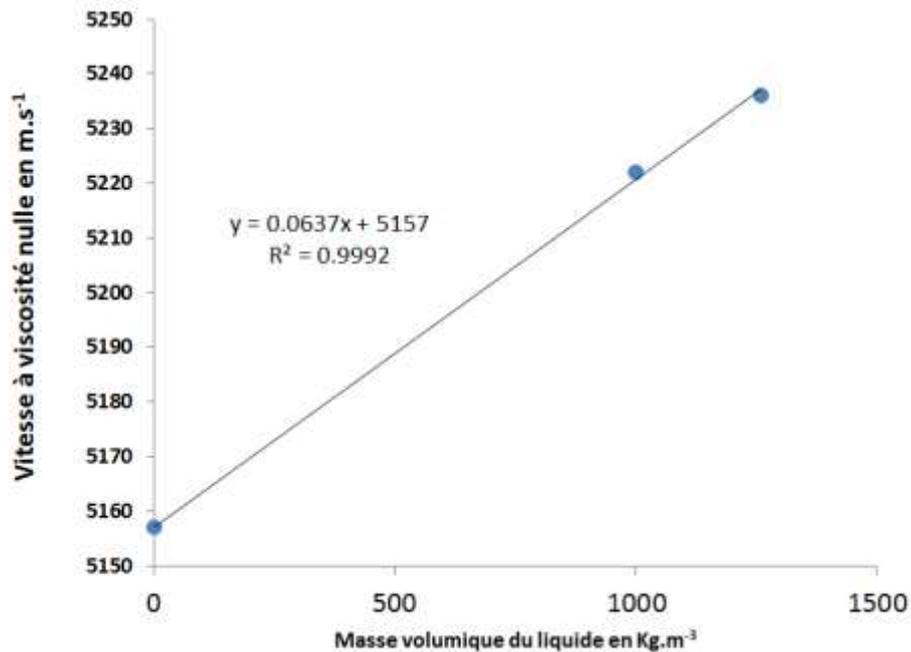


Figure IV.18. Effet de charge ou l'effet de la densité sur vitesse visqueuse.

Le mode L(0,1) étant élongationnel, le facteur Corr est choisi égal à 1. Ainsi nous proposons comme ajustement :

$$c_{visq} = \frac{5157+0.064\rho}{1+\frac{\beta}{\rho_T} \cdot \sqrt{\frac{\rho_L \eta_S}{2 \cdot \omega}}} \quad (IV.13)$$

Sur le graphe suivant nous avons représenté le mode L(0,1) pour un tube infini vide et pour un tube infini rempli d'un matériau ayant la masse volumique de la glycérine et une viscosité de 5, 10 et 20 Pa.s. L'ajustement par la relation (IV.12) s'avère très satisfaisant.

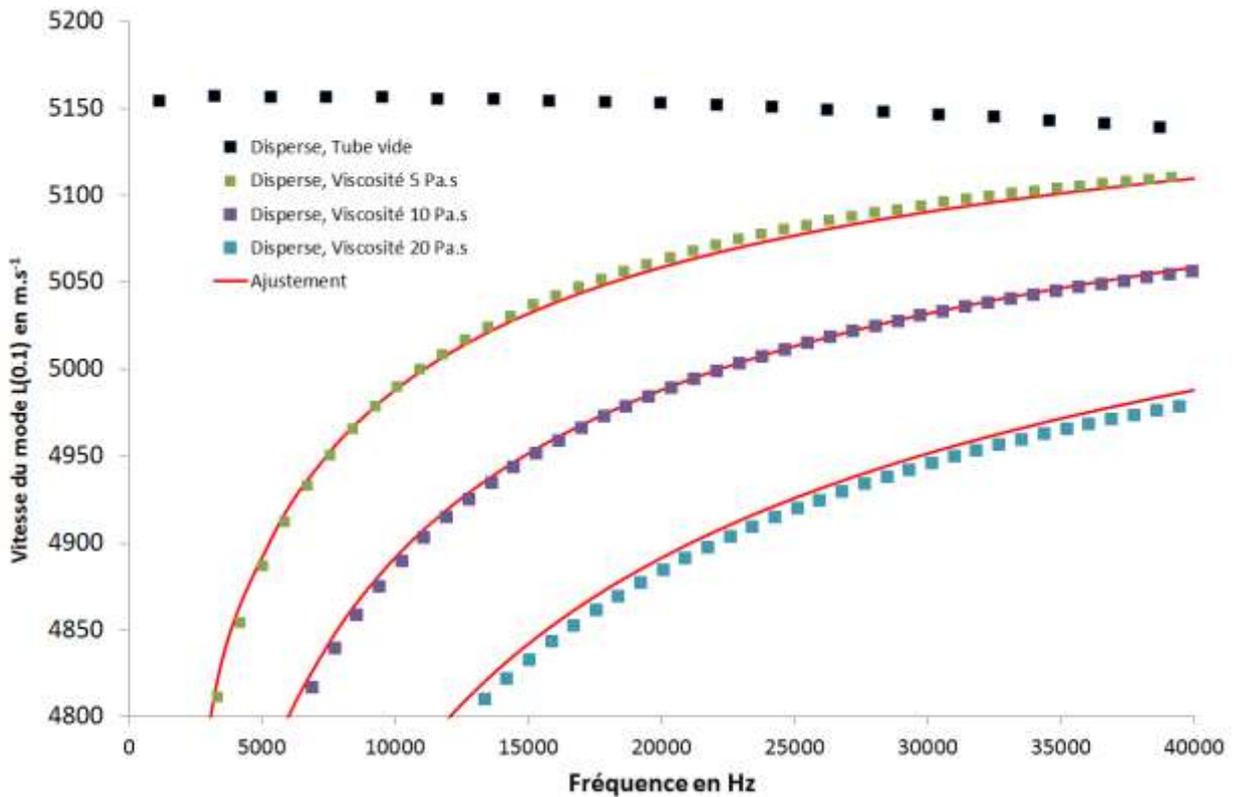


Figure IV.19. Vitesse du mode L(0,1) pour différentes viscosités.

En basses fréquences, compte tenu des dimensions du tube il est impossible de procéder par méthode de pulse écho comme pour le mode L(0,2). En effet, les échos d'aller-retour se chevauchent totalement.

Nous proposons donc de mettre le tube en résonance. Compte tenu des dimensions du tube à essais (7.75 cm) et de la vitesse élongationnelle chargée par exemple par de la glycérine (5236 m.s⁻¹), la première fréquence propre de vibration en mode libre / libre correspondant à un mode en $\lambda/2$ devrait se situer aux alentours de 34 kHz. Ceci n'est qu'une approximation pour fixer les idées car on suppose que le tube à essais vibre comme un cylindre libre aux deux extrémités, ce qui n'est certainement pas le cas exactement. Cet ordre de grandeur est juste donné ici pour voir où l'on se situe sur les courbes de dispersion.

Expérimentalement le transducteur annulaire resterait positionné sur le tube et serait excité par un GBF. L'amplitude du signal réfléchi serait analysée. La fréquence de résonance correspondra au maximum d'amplitude. Si effectivement le mode en $\lambda/2$ est excité à la fréquence de résonance f_R , alors $L = \frac{\lambda}{2} = \frac{c_{visq}}{2f_R}$, ce qui devrait permettre de déduire c_{visq} à la fréquence f_R .

Ainsi donc :

$$c_{visq} = 2Lf_R = \frac{5157+0.064\rho_L}{1+\frac{\beta}{\rho_T} \cdot \sqrt{\frac{\rho_L \eta_s}{2 \cdot 2\pi f_R}}} \quad (IV.14)$$

Et enfin :

$$\eta_s = \left[\frac{5157+0.064\rho_L - 2Lf_R}{2Lf_R \left[\frac{\beta}{\rho_T} \cdot \sqrt{\frac{\rho_L}{2 \cdot 2\pi f_R}} \right]} \right]^2 \quad (IV.15)$$

Cette expression (voir *Figure IV.20*), purement théorique sera certainement à modifier légèrement pour s'adapter à notre géométrie très spécifique. Les travaux continuent encore aujourd'hui dans cette direction.

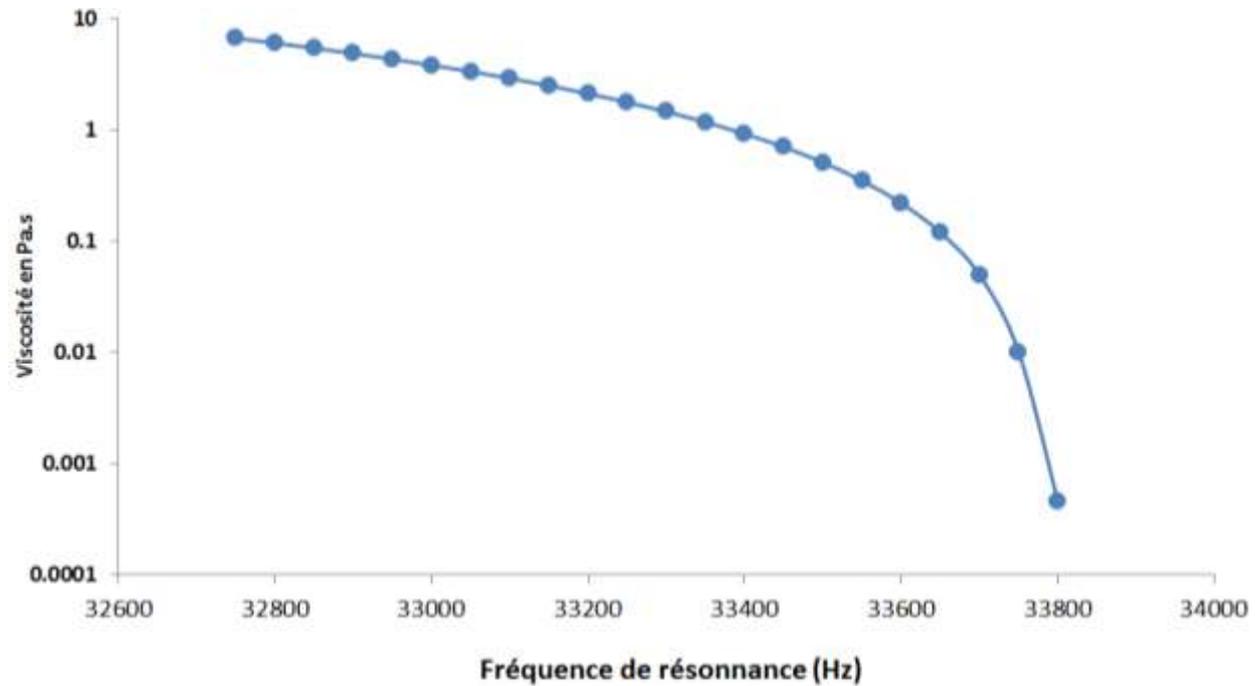


Figure IV.20. Viscosité en fonction de la fréquence de résonance pour un tube entièrement rempli de glycérine et vibrant en mode $\lambda/2$.

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons montré que l'utilisation d'ondes guidées dans les parois du tube à essai permettait un accès direct à la viscosité de cisaillement pour les fréquences aux alentours de 800 kHz en exploitant le mode $L(0,2)$. Par rapport à d'autres travaux de la littérature nous avons exploité la vitesse de mode et non son absorption. Ceci permet de simplifier la résolution du problème inverse. A priori nos expressions analytiques ne sont valables que pour les liquides parfaits mais restent vraies tant que $G' < G''$ ce qui est généralement le cas à la température ambiante pour les gammes de fréquences considérées.

La méthode s'est avérée adaptée pour des viscosités > 100 mPa.s et devient facile à mettre en œuvre dès que la viscosité est voisine ou supérieure à 1 Pa.s. Pour les faibles viscosités nous prévoyons l'utilisation d'un oscilloscope ayant une plus grande précision temporelle pour avoir accès à des décalages temporels plus faibles.

Par la suite l'amélioration majeure de notre instrument serait d'ajouter la régulation de température (*Figure IV.21 (a,b)*) pour la contrôler et la faire varier facilement et rapidement sans utiliser l'étuve. Nous pourrions aussi utiliser un transducteur plan pour la mesure de vitesse de chute de la bille par Doppler.

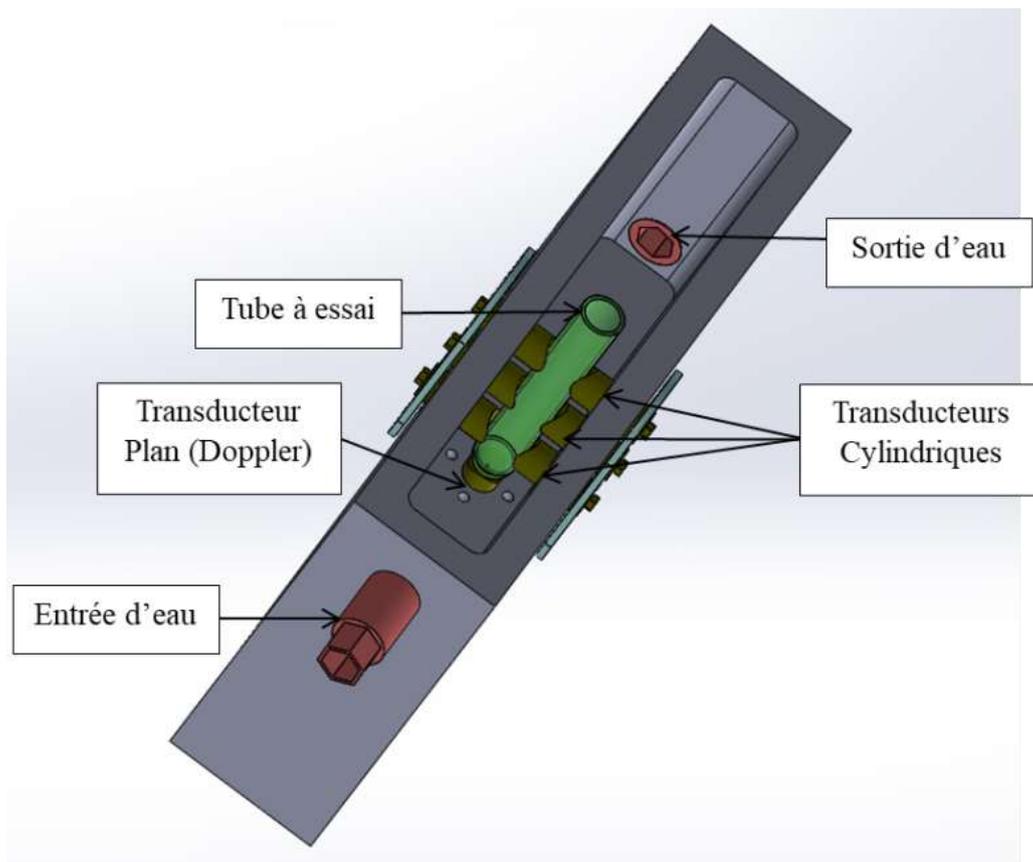


Figure IV.21. (a) Visualisation 3D du dispositif expérimental pour la régulation de température.

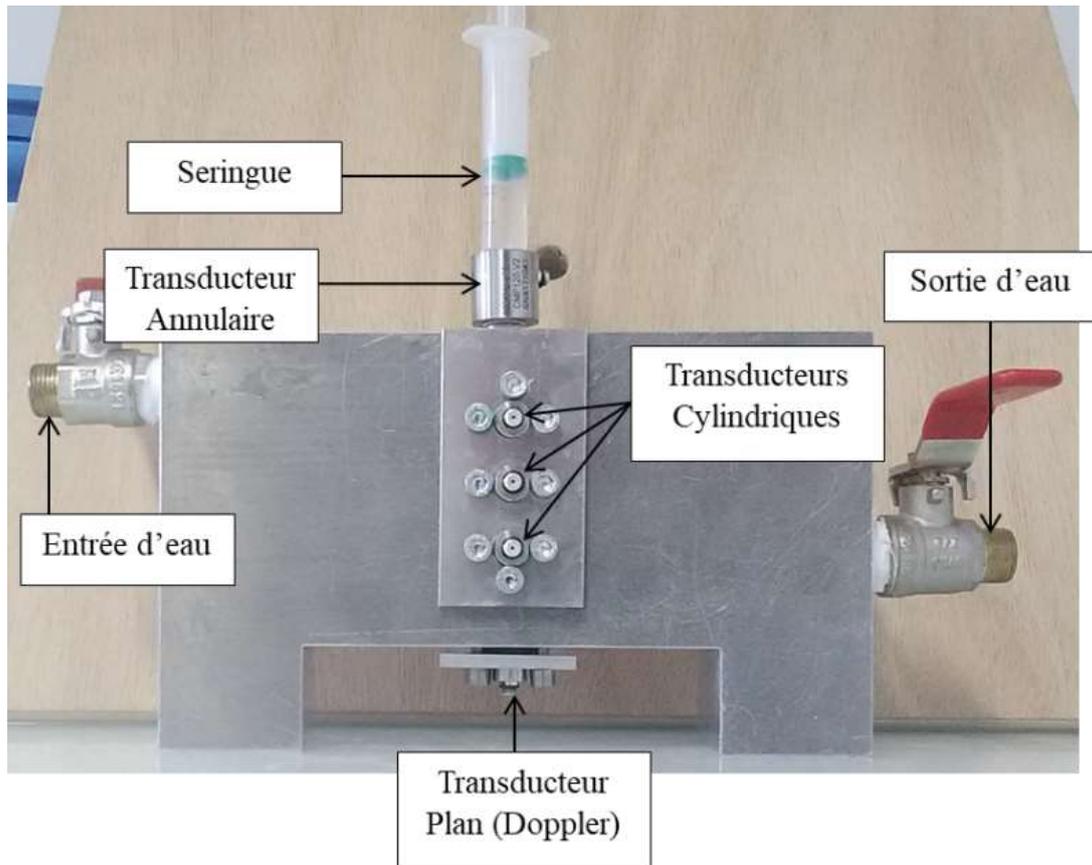


Figure IV.21. (b) Dispositif expérimental pour la régulation de température.

Références bibliographiques

- [BLUE-18] Rhodorsill Huiles 47. Informations techniques. Bluestar Silicones. 2018.
- [DISP-13] Disperse. Guided wave dispersion curve calculation. Imperial College London. 2018. M. Lowe et al.
- [DJIL-09] S. Djili, F. Boubenider, F. Boukazouha, A. Badidi Bouda. Propagation of L(0,2) extensional mode in hollow circular cylinder : application to non destructive testing. 3rd International Conference on Integrity, Reliability and Failure, Porto. Portugal, 20-24 July 2009.
- [GAZI-59] D. Gazis. Three dimensional investigation of the propagation of waves in hollow circular cylinders. The journal of the acoustical society of America. 31(5) (1959) 568- 578.
- [LAUX-14] D. Laux. Ultrasons et milieux complexes : de la mesure du module d'Young des céramiques nucléaires irradiées à l'évaluation de la viscosité des fluides biologiques. Mémoire d'HDR. 14 Octobre 2014.
- [LIEB-13] L. Liebart. Mise au point d'un viscosimètre à tube. Stage LPRO MMIC. Janvier-Mai 2013.
- [MA-07] J. Ma. et al. Measurement of the Properties of Fluids Inside Pipes Using Guided Longitudinal Waves. IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control. 54(3) (2007) 647-657.
- [NAGY-95] P.B. Nagy, R. M. Kent. Ultrasonic assessment of Poisson's ratio in thin rods. J. Acoust. Soc. Am. 98(5), November 1995.
- [NAGY-96] P. B. Nagy, A. H. Nayfeh. Viscosity-induced attenuation of longitudinal guided waves in fluid-loaded rods. J. Acoust. Soc. Am. 100 (3), September 1996.
- [PAVL-98] B. N. Pavlakovich. Leaky Guided ultrasonic waves in NDT. Thesis. University of London. Imperial College of Science, technology and medicine. 1998.
- [PRASA-08] V. S. K. Prasad et al. Viscosity measurements of melts at high temperatures using ultrasonic guided waves. Journal of materials processing technology. 20(7) (2008) 315-320.
- [ROSE-99] J. L. Rose. Ultrasonic waves in solid media. Cambridge University Press. 1999.
- [SEGU-00] L. E. Segura. Acoustic wave dispersion in a cylindrical elastic tube filled with a viscous liquid. Ultrasonics. 37 (2000) 537-547.
- [VOLL-97] D. J. Vollmman et J. Dual. High-resolution analysis of the complex wave spectrum in a cylindrical shell containing a viscoelastic medium. The journal of the acoustical society of America. 120 (1997) 896- 920.

[ROTH-53] W. Roth, S. R. Rich. A new method for continuous viscosity measurement. General theory if the ultra-viscoson. *Journal of Applied Physics*. 24(7) 1953. 940-95.

[YANN-06] S. Yanniotis, S. Skaltsi, S. Karaburnioti. Effect of moisture content on viscosity of honey at différent temperatures. *Journal of Food Engineering*, 72 (2006) 372-377).

CONCLUSION GENERALE

Perspectives

La naissance de la rhéologie, science qui s'intéresse à l'écoulement de la matière, remonte aux XVII^e et XIX^e siècles. Actuellement on parle plutôt de Rhéophysique : on décrit l'origine de l'écoulement par la physique et la physico-chimie de la matière à toutes les échelles. Une multitude d'appareils ont été imaginés et construits pour mesurer les modules viscoélastiques ou la viscosité. La plupart de ces appareils ont été décrits dans le chapitre 1 : viscosimètres rotatifs, capillaires, à chute de bille, à chute de cylindre, rhéomètres « Couette », viscosimètres ultrasonores hautes ou moyennes fréquences... C'est aussi dans ce chapitre que nous avons introduit les grandeurs physiques de base de la rhéologie.

Ce chapitre 1 a aussi permis de mettre en lumière une lacune : il est nécessaire de changer de banc de mesure pour chaque gamme de fréquence sondée. Les chercheurs et industriels sont donc très souvent limités dans les mesures accessibles car ils ne disposent pas de tous les bancs expérimentaux. Les mesures sont généralement longues, fastidieuses et le volume d'échantillon à utiliser peut devenir important. Par ailleurs pour suivre des cinétiques il faut répéter l'expérience sur les divers bancs. A notre connaissance, aucun industriel et aucun laboratoire de recherche ne propose de système permettant de passer au-delà de ces contraintes. C'est cette lacune qui a motivé la mise au point de notre banc de mesure dédié à de la spectroscopie ultrasonore ultra-large bande.

Au terme de ce travail un contenant familier dans le domaine du biomédical et de la chimie (un tube à essais) est maintenant totalement instrumenté avec des transducteurs piézoélectriques émettant des ondes longitudinales.

En basses fréquences ou pour des taux de cisaillement très faibles nous avons mis au point la viscosimétrie ultrasonore à chute de bille dans le chapitre 2. Notre approche est à première vue très simple puisqu'elle est basée sur la mesure de la vitesse de chute de la bille grâce à la perturbation du faisceau ultrasonore. Il a fallu cependant établir une relation théorique pour corriger les effets de bord, estimer de façon précise la taille du faisceau ultrasonore et surtout mettre au point des transducteurs cylindriques spécifiquement adaptés au tube à essai. On retrouve d'ailleurs ces transducteurs tout au long de ce travail de thèse. Grâce à des mesures systématiquement faites dans le tube à essais mais aussi avec un viscosimètre rotatif, l'approche expérimentale a été validée sur une gamme de viscosité très large : 40 mPa.s à 200 Pa.s avec une incertitude de 20 %. Par ailleurs le liquide analysé n'est pas nécessairement transparent ce qui est un avantage important par rapport aux méthodes qui suivent la chute de la bille de façon optique. Pour pouvoir analyser des liquides encore moins visqueux, comme du sang par exemple, plusieurs voies d'amélioration sont possibles et actuellement en cours de test : système d'acquisition plus rapide, utilisation de plusieurs transducteurs répartis sur le tube à essais, utilisation d'une méthode à roulement de bille...

En ce qui concerne le domaine des hautes fréquences (MHz) deux approches ont été proposées.

Ainsi, dans le chapitre 3 nous avons mis au point un protocole expérimental permettant de déduire la viscosité de cisaillement grâce à la mesure de la viscosité longitudinale. Cette dernière a été calculée via la mesure de la vitesse et de l'atténuation des ondes longitudinales. Ici encore l'approche a été validée grâce à une méthode de référence disponible au laboratoire. Actuellement la gamme de viscosité couverte est de 50 mPa.s à 30 Pa.s avec une incertitude de 25 %. Par rapport à d'autres approches de la littérature, notre méthode ne nécessite aucun étalonnage complexe préalable ce qui rend le dispositif démontable. Grâce à l'utilisation de 3 couples de transducteurs (2, 5 et 10 MHz) il a été possible de construire les premières courbes « viscosité-fréquence » de quelques Hz (méthode de la chute de bille) à plusieurs MHz. Ainsi la détermination du comportement rhéologique du liquide analysé devient possible. Par exemple le comportement newtonien de la glycérine a pu être confirmé alors que le caractère rhéofluidifiant d'huiles silicone a été clairement établi. Actuellement la méthode trouve encore ses limites pour les très faibles viscosités car l'atténuation ultrasonore est trop faible. Un moyen simple de résoudre le problème consiste simplement à se doter de transducteurs cylindriques plus haute fréquence (>20 MHz) ce qui, en soi, ne pose aucun problème mais n'a pas pu être réalisé durant cette thèse faute de temps. Enfin, l'incertitude de 25% sur la viscosité tient essentiellement au fait que la viscosité de cisaillement est déduite à partir de la viscosité longitudinale. Le coefficient de proportionnalité entre les deux viscosités a été fixé à 0.3 avec une incertitude de 0.1. Pour contourner ce problème et obtenir directement la viscosité de cisaillement en hautes fréquences, toujours en utilisant des transducteurs longitudinaux, nous avons proposé l'utilisation d'ondes guidées dans le chapitre 4.

Ainsi au chapitre 4, nous nous sommes intéressés à la génération d'ondes à caractère partiellement longitudinal dans les parois du tube à essais. Ce mode de propagation nommé L(0,2) est sensible à la viscosité du liquide remplissant le tube car l'onde générée dans le liquide est partiellement une onde de cisaillement. Grâce à des hypothèses simplificatrices et à l'utilisation d'un logiciel de simulation acquis spécifiquement pour cette thèse (Disperse) nous avons proposé une relation entre la vitesse du mode L(0,2) et la viscosité du liquide remplissant le tube. Nous avons ensuite mesuré la viscosité de cisaillement pour des fréquences voisine du MHz. La gamme de la viscosité est actuellement de 1 Pa.s à 20 Pa.s avec une incertitude de 25 %. La gamme est plus faible que pour les autres approches mais l'avantage majeur réside dans le fait que cette fois la mesure fournit directement la viscosité de cisaillement. D'ailleurs dans la gamme du MHz comme les deux viscosités sont mesurées il devient envisageable de déduire une troisième viscosité, la viscosité de volume. Cette approche par ondes guidées est actuellement moins aboutie que les autres approches présentées dans cette thèse. En particulier le traitement du signal devra être amélioré en utilisant par exemple la phase de la transformée de Fourier des signaux. Enfin nous avons montré par le calcul que théoriquement la fréquence de résonance du tube qui est voisine de quelques dizaines de kHz est influencée par la viscosité du liquide. Nous avons proposé une première relation « viscosité-fréquence de résonance », qu'il faudra à l'avenir valider expérimentalement. Ceci permettrait alors d'avoir aussi la viscosité dans une autre gamme de fréquences. Ainsi en ayant des valeurs dans la gamme du Hz, du kHz et du MHz on peut envisager de calculer le module de perte G'' puisqu'il est directement lié à

la viscosité. Ensuite comme cela a été démontré dans une thèse réalisée au laboratoire, l'application des relations de Kramers-Kronig devrait conduire à l'estimation de G' .

Ainsi, à terme le viscosimètre ultrasonore mis au point pourrait devenir un rhéomètre ultrasonore ultra large bande donnant accès au couple (G', G'') du Hz au MHz grâce à des mesures réalisées sur un seul banc de mesure au voisinage de la température ambiante.
