

## Caractérisation acoustique de nuages de microbulles Lilian d'Hondt

#### ▶ To cite this version:

Lilian d'Hondt. Caractérisation acoustique de nuages de microbulles : En vue d'une application aux réacteurs nucléaires de quatrième génération.. Acoustique [physics.class-ph]. Aix Marseille Université, 2018. Français. NNT : . tel-03337443

## HAL Id: tel-03337443 https://theses.hal.science/tel-03337443

Submitted on 8 Sep 2021

**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.

## THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE AIX-MARSEILLE

Ecole Doctorale 353:

Sciences pour l'Ingénieur : Mécanique, Physique, Micro et Nanoélectronique

Spécialité

Acoustique

## Lilian D'HONDT

# Caractérisation Acoustique de Nuages de Microbulles

En vue d'une application aux réacteurs nucléaires de quatrième génération.

Soutenue le 7 Novembre 2018

Jury :

**Olivier Bou Matar** Rapporteur Matthieu Cavaro Invité François Coulouvrat Président du jury Émilie Franceschini Examinatrice Paul A. Johnson Examinateur Valentin Leroy Rapporteur Serge Mensah **Co-Directeur Directeur de Thèse** Cédric Payan

« Lourd est le parpaing de la réalité sur la tartelette aux fraises de nos illusions. »

Boulet, 1999

## REMERCIEMENTS

Les pages qui suivent ne sauraient être sans les personnes qui ont contribués, de manière directe ou indirecte, à l'élaboration de cette thèse. Je tiens donc ici à les remercier.

Je pense tout d'abord à Matthieu, le Mr Bulles du CEA, avec qui j'ai travaillé dans la bonne humeur durant ces trois années. Merci à toi Matthieu pour m'avoir supporté depuis le début de mon stage.

Je tiens ensuite à remercier mes directeurs, Cédric et Serge, qui bien que plus distant ont su apporter leur rigueur et idées à cette thèse. Ne t'inquiète pas Serge, je ne t'en veux pas d'être en grand parti responsable des 14 versions différentes de la publication.

J'aimerai ensuite remercier tous les membres du (feu) LIET. C'était très agréable de travailler dans un labo où règne une telle bonne humeur. J'ai pu découvrir grâce à vous le monde magnifique de la recherche et du sodium liquide. Je pense notamment à Emma, notre « maman thésarde », qui a su nous guider à travers les méandres administratifs du CEA ; à Denis, les trois Freds, Manu, Sam et Tom, Fatima, Mélanie, Kévin... Merci d'avoir su rendre les pauses café agréables. J'ai sincèrement passé 3 belles années grâce à vous tous.

Bien sur un grand merci aux membres du jury d'avoir accepter d'examiner ces travaux, et notamment aux deux rapporteurs, Olivier Bou Matar et Valentin Leroy, d'avoir accepté de rapporter ce manuscrit.

J'aimerai ensuite remercier très chaleureusement toute la clique des minions pour tout ces bon moments mémorables passés ensemble. Merci donc à Céphise, Thomas, Thomatte, Chypster, Louis, Alan, Antoine, Coralie, Marie et Marie. Ce fut de très bonnes années passées sur Aix et je ne doute pas que nos aventures continueront à travers le monde.

J'aimerai enfin remercier ma famille pour la confiance qu'ils me portent et le soutiens de chaque instant qu'il ont su procurer.

Je voudrais enfin remercier Ondine pour partager ma vie sans sourciller devant mes nombreuses excentricités.

## **RESUME - ABSTRACT**

Dans le cadre de son implication dans le forum international GEN IV, la France a fait le choix de se focaliser sur les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium liquide. Un prototype, ASTRID, est en cours de développement. Ce dernier doit faire la démonstration de l'amélioration de sa sureté et de la surveillance en fonctionnement. Ceci passe, entre autre, par la caractérisation de l'engazement du sodium du circuit primaire.

En effet, du fait de la présence d'Argon en tant que gaz de couverture, un nuage de bulle existe de façon normale et continue dans le circuit primaire. L'opacité du sodium liquide, et les aptitudes spécifiques des méthodes ultrasonores justifient leur utilisation, privilégiée lors des inspections en opération. En effet, la présence de bulles pourrait altérer non seulement les échanges thermiques et neutroniques au sein du cœur, mais aussi les phénomènes d'ébullition et de cavitation ainsi que les propriétés acoustiques du caloporteur. La caractérisation de ce nuage répond donc à ces problématiques de contrôlabilité, elle permet aussi la validation de codes de calculs d'évolution de l'engazement tel que VIBUL.

Un travail bibliographique s'est attaché à déterminer les méthodes de caractérisation les plus adaptés pour répondre à ces problématiques en exploitant les forces et les faiblesses respectives. Ainsi, les méthodes d'inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité s'avèrent particulièrement robustes lorsqu'elles sont soutenues par des techniques de régularisation. Afin de limiter l'importance de l'arbitraire (*a priori*), l'intervalle des tailles des bulles du nuage est estimé préalablement à la distribution, durant la phase d'optimisation du paramètre de régularisation. Cette approche a montré sa capacité à caractériser des nuages dont les taux de vides sont compris entre  $10^{-6}$  et  $10^{-4}$ .

Pour des taux de vides inférieurs à  $10^{-6}$ , la faisabilité d'une inversion de mesures spectroscopiques du coefficient de non-linéarité a été étudiée et démontrée.

Les résultats laissent entrevoir de nombreuses perspectives quant à leurs applications industrielles.

France has chosen to focus on liquid sodium cooled fast neutron reactors as part of its involvement in the GEN IV international forum. A prototype, ASTRID, is under development. This prototype must demonstrate the improvement of its safety and monitoring in operation. This passes, among other things, by the characterization of the sodium engulfment of the primary circuit.

Indeed, due to the presence of Argon as a cover gas, a bubble cloud exists in a normal and continuous manner in the primary circuit. Due to the opacity of liquid sodium, ultrasonic testing methods are preferred for inspections in operation. However, the presence of bubbles greatly affects the acoustic properties of the medium. In addition, the presence of bubbles could also affects the heat and neutron exchanges within the core, as well as boiling and cavitation phenomena. The characterization of this cloud therefore responds to these controllability issues and allows the validation of evolution calculation codes of the engazement such as VIBUL.

A bibliographic work has sought to determine the most appropriate methods of characterization to answer these problems. The strengths and weaknesses of each method were studied. The inversion methods of spectroscopic attenuation and velocity measurements seem particularly suitable. In order to minimize the prior knowledge of the bubble cloud, a method for determining the range of radii has been developed. This method has shown its ability to characterize clouds with void fractions between 10<sup>-6</sup> and 10<sup>-4</sup>.

Then, in order to allow the characterization of clouds with void levels less than 10<sup>-6</sup>, the possibility of inverting spectroscopic measurements of the nonlinearity coefficient has been studied and demonstrated.

The results obtained offer numerous prospects for their industrial applications.

## TABLE DES MATIERES

REMERO	CIEMENTSI
RESUME	E - ABSTRACTV
NOTATI	ONSXI
ABREVI	ATIONSXV
INTROD	UCTION
CHAPIT	RE 1 PROBLEMATIQUE INDUSTRIELLE
1.1 Les	réacteurs nucléaires de 4ème génération refroidis au sodium
1.2 Les	origines de l'engazement du sodium5
1.2.1	La dissolution - nucléation5
1.2.2	Les effets d'entraînement5
1.2.3	Autres sources d'engazement7
1.3 Les	conséquences de cet engazement8
1.3.1	La modification des propriétés acoustiques du sodium8
1.3.2	La génération de poches de gaz8
1.3.3	La perturbation des mesures de l'activité du ciel de pile9
1.3.4	Perturbation des réactimètres9
1.3.5	Une conséquence positive : la prévention de l'ébullition explosive9
1.3.6	Influence sur les phénomènes de cavitation9
1.4 Equ	uilibre liquide/gaz et physique des bulles10
1.4.1	Saturation10
1.4.2	Tension superficielle et géométrie des bulles10
1.4.3	Nucléation de bulles12
1.4.4	Coalescence et fractionnement
1.5 Les	enjeux de la caractérisation de l'engazement du sodium14
1.5.1	La validation de codes de calcul du comportement des bulles en réacteurs
1.5.2	Une requête de l'autorité de sûreté nucléaire15
1.5.3	Détection des incidents

1.6	Ret	our d'expériences
1.6.	1	Rapsodie16
1.6.	2	Phénix16
1.6.	3	Superphénix16
1.6.	4	Réacteurs étrangers18
1.7	Dis	positif de génération de microbulles en eau et de mesures acoustiques et optiques 18
1.7.	.1	Génération de microbulles
1.7.	2	Chaine acoustique
1.7.	3	Mesures de référence par contrôle optique
1.7.	.4	Conclusion
1.8	Cor	nclusion du premier chapitre
CHA	PITI	RE 2 ACOUSTIQUE DES BULLES
	_	
2.1	Dyr	namique des bulles
2.1.	.1	Dynamique non linéaire des bulles
2.1.	.2	Linéarisation
2.1.	.3	Conclusion sur la dynamique des bulles43
2.2	Acc	oustique linéaire des milieux bulleux 44
2.2.	1	Modèle de Wood
2.2.	2	Section efficace acoustique
2.2.	3	Atténuation et célérité47
2.2.	.4	Conclusion sur l'acoustique linéaire des milieux bulleux53
2.3	Acc	sustique non linéaire-
2.3	1	Introduction à l'acoustique non linéaire
2.3	2	Non linéarité des milieux hulleux
2.3.	.3	Conclusion de l'acoustique non linéaire des milieux bulleux
	-	
2.4	Cor	nclusion du deuxième chapitre72
CHAPITRE 3 INVERSION DE MESURES D'ATTENUATION ET DE CELERITE		
3.1	Eta	t de l'art
3.1.	.1	Méthode Analytique73
3.1.	2	Méthode Numérique75

3.1.3	Autres méthodes	
3.1.4	Conclusion sur l'état de l'art82	
<u>,,,</u> ,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,	aractérication de milieu diphacique par récolution de l'équation du nombre d'ande	
équival	ent	
2 2 1	Equation de Fredholm du premier type et régularisation de Tikhonov 84	
2.2.1	Application à des liquides bullous : théorie et simulations	
5.2.2	Application a des inquides bulleux : theorie et simulations	
3.2.3	Application aux milieux bulleux : experimentations	
3.2.4	Conclusion sur la caracterisation via regularisation de Tikhonov	
3.3 A	justement de données108	
3.3.1	Principe	
3.3.2	Applications	
3.3.3	Conclusion sur la caractérisation via ajustement de données110	
3.4 A	applicabilité industrielle : Mesures avec des TUSHT110	
3.4.1	Le TUSHT	
3.4.2	Résultats	
3.4.3	Conclusion sur la caractérisation de nuages via l'utilisation de TUSHT	
3.5 0	onclusion du troisième chapitre116	
CHAPI	TRE 4 MESURES DU COEFFICIENT DE NON LINEARITE119	
4.1 I	ntroduction119	
4.2 N	Néthodes non linéaires de caractérisation de milieux diphasiques	
4.2.1	Recherche du second harmonique	
4.2.2	Mixage de fréquences	
4.2.3	Dérivations de la méthode de spectroscopie acoustique linéaire	
4.2.4	Conclusion des méthodes de caractérisation non linéaires	
4.3 I	nversion de mesures spectrales du coefficient de non linéarité131	
4.4 C	onclusion du quatrième chapitre142	
CONCI	USION GENERALE ET PERSPECTIVES143	
REFERENCES147		

## NOTATIONS

<u><i>C</i></u> <sub>m</sub>	Célérité complexe équivalente
$\underline{k}_m$	Nombre d'onde complexe équivalent
$\mu_{th}$	Viscosité « thermique »
$B_j$	j <sup>ieme</sup> B-spline linéaire
$C_p$	Chaleur spécifique à pression constante
Cs	Concentration d'équilibre
$C_{v}$	Chaleur spécifique à volume constant
$D_W$	Fonction de directivité
H <sup>diff</sup>	Coefficient de diffraction
H <sub>s</sub>	Coefficient de Henry
N <sub>a</sub>	Nombre de classe de rayon de l'histogramme N
$N_f$	Nombre de fréquences de mesures
$a_0$	Rayon le plus probable
a <sub>max</sub>	Rayon maximum d'intégration
C <sub>p</sub>	Capacité thermique massique a pression constante
$d_{choc}$	Distance de formation du choc
$d_m$	Diamètre stable maximal
$d_s$	Diffusivité du son
$f_M$	Fréquence de Minnaert
f <sub>res</sub>	Fréquence de résonance
$p_{lf}(t)$	Pression générée par le pot vibrant
$\vec{u}$	Vitesse particulaire
$\alpha_T$	Coefficient de dilatation thermique
$\mu_B$	Viscosité de volume cisaillement
$\mu_l$	Esperance
$\sigma_{LoG}$	Taille caractéristique du filtre Laplacien de gaussienne

#### Notations

$\sigma_e$	Section efficace d'extinction
$\sigma_l$	Ecart-type
$\sigma_{s}$	Section efficace de diffusion
Γ	Nombre de Goldberg
Ξ	Vecteur mesure
$\Phi(H)$	Mesure de la phase de H
Α	Atténuation due aux bulles
B/A	Paramètre non linéaire du premier ordre
С	Courbure
D	Diffusivité thermique
F	Flou relatif
Н	Coefficient de solubilité
Н	Différence d'enthalpie du liquide entre la paroi de la bulle et a l'infini
K	Conductivité thermique, matrice d'intégration
L	Matrice représentant l'opérateur dérivé ou dérivé seconde
N(a)	Nombre de bulles de rayons compris entre a et a+da par unite de volume
Q	Facteur de qualité
R	Rayon
S	Section de l'émetteur ; nombre de longueur de Rayleigh.
Т	Température
V	Volume d'une bulle
We <sub>c</sub>	Nombre de weber critique
С	Célérité du son
d	Distance entre les transducteurs
e(t)	Signal HF émis
p	Pression
$prof_v$	Profondeur de visibilité
S	Entropie massique

#### Notations

- s(t) Signal HF reçu
- *u* Coefficient de célérité adimensionné
- v Coefficient d'atténuation adimensionné
- β Coefficient de non-linéarité dit classique du premier ordre
- γ Coefficient isentropique
- $\delta$  Coefficient d'amortissement total
- $\kappa$  Coefficient polytropique du gaz
- $\lambda$  Paramètre de régularisation
- μ Viscosité de volume
- ho Masse volumique
- $\sigma$  Tension superficielle
- *τ* Taux de vide
- χ Compressibilité
- $\omega$  Pulsation
- $\epsilon$  Taux moyen de dissipation d'énergie par unité de volume
- $\phi$  Potentiel des vitesses

## Indices et exposants

$N_2$	Relatif à l'argon
0	Au repos, a l'équilibre
8	Infini
g,gaz	Relatif au gaz
liq	Relatif au liquide pur
т	Du nuage de bulle
rad	Radiatif
th	Thermique
v	Relatif à la vapeur
vis	Visqueux
+	Transposé

## **ABREVIATIONS**

ABS	Acoustic Bubble Spectrometer®
ACWABUL	Acoustical Characterization in Water of BUbbly Liquids
ARL	Alden Research Laboratory
ASN	Autorité de sureté nucléaire
ASTRID	Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration
AURN	Arrêt d'Urgence pour Réactivité Négative
B&K	Brüel & Kjær
BF	Basse Fréquence
CARMIN	Cavitating Aerated Microbubble INjector
CEA	Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives
DAET	Dynamic Acousto-Elastic Testing
EFR	European Fast Reactor
GFR	Réacteur à Neutrons Rapides à Caloporteur Gaz
HF	Haute Fréquence
JAEA	Japan Atomic Energy Agency
LFR	Réacteur à Neutrons Rapides à Caloporteur Plomb (Lead Fast Reactor)
LoG	Laplacien de Gaussienne
MSR	Réacteur Nucléaire à Sels Fondus (Molten Salt Reactor)
Na	Sodium
REP	Réacteur à Eau Présurisée
RNR	Réacteur à Neutrons Rapides
RNR-Na	Réacteur à Neutrons Rapides à Caloporteur Sodium
RPNNP	Rayleigh, Plesset, Noltingk, Neppiras et Poritsky
RSB	Rapport Signal sur Bruit
SCWR	Réacteur à Eau Supercritique (Super Critical Water Reactor)
SFR	Sodium Fast Reactor (= RNR-Na)
TOFM	Time Of Flight Modulation
TUSHT	Traducteur UltraSonore à Hautes Températures
US	UltraSons
VDR	Veine à Divergence Radiale

- VDR-V Veine à Divergence Radiale Ventilée
- VHTR Réacteur nucléaire à très haute température (Very High Temperature Reactor)
- VISUS VISualisation par UltraSons en sodium

### INTRODUCTION

A l'heure où le réchauffement climatique se fait de plus en plus ressentir, il est nécessaire de disposer d'une source d'énergie non carbonée, compétitive, durable, sûre et fiable. C'est dans cette optique que la France, à travers le forum Génération IV, s'est engagée dans le développement de réacteurs de quatrième génération. Plusieurs technologies de réacteurs sont envisageables, mais l'expérience acquise lors de l'exploitation des réacteurs Phénix et Superphénix a logiquement conduit les instances françaises à se concentrer sur l'étude des réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium (RNR-NA). Ces études devraient aboutir au démonstrateur ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration) à l'horizon 2030. ASTRID et les réacteurs qui suivront devront présenter un gain en matière de sureté par rapport aux réacteurs des générations précédentes. Contrairement aux 2ème ou 3ème générations actuellement en exploitation, les réacteurs à neutrons rapides consomment de l'uranium 235, qui constitue les 0,7% restants. On comprend alors l'intérêt de tels réacteurs dans une optique d'indépendance énergétique et de source durable d'énergie, puisque les réserves d'uranium accumulées en France pourraient garantir une production d'énergie pour les 2000 ans à venir. De plus, le stockage des déchets, principalement des actinides mineurs est plus simple.

Cependant, l'utilisation de sodium comme caloporteur amène de nouvelles problématiques. L'une d'elles, qui est la raison de cette thèse, est la présence de manière normale et continue de microbulles d'argon - en faible quantité - dans le circuit primaire, du fait de la présence d'argon en gaz de couverture. Bien que cet engazement n'ait qu'un impact limité sur les échanges thermiques et neutroniques au sein du cœur, il modifie profondément les propriétés acoustiques du sodium liquide. La mise en œuvre de méthodes d'inspection du circuit primaire reposant sur l'utilisation d'ultrasons devra donc prendre en compte la présence de ces bulles : toute télémétrie fondée sur la mesure de temps de vol devra prendre en compte les modifications de la célérité acoustique du sodium engazé. Cet engazement peut aussi conduire à la formation de larges poches de gaz qui peuvent ensuite être relâchées dans le cœur et impacter fortement son fonctionnement. L'autorité de sureté nucléaire, l'ASN, a par le passé demandé aux exploitants de Superphénix de proposer une stratégie de caractérisation de ces microbulles, c'est-à-dire obtenir a minima le taux de vide, et si possible la répartition en rayon des bulles. Cependant, l'arrêt soudain de l'exploitation de ce réacteur en 1997 a de fait empêché la mise en place d'une telle stratégie. Il apparait donc légitime de travailler au développement de méthode de caractérisation de nuages de microbulles dès le stade d'avant-projet d'ASTRID. Du fait de l'opacité du sodium, toute méthode optique est à proscrire. Le CEA s'intéresse donc principalement à des méthodes électromagnétiques et acoustiques pour répondre à cette problématique. Du fait de la forte affinité entre acoustique et bulles, détaillée au chapitre 2, c'est vers ces dernières que se concentrent les travaux présentés dans ce manuscrit.

Le premier chapitre de cette thèse porte sur la problématique industrielle liée à cette présence continue de bulles dans le circuit primaire des RNR-Na. Les causes de l'engazement ainsi que ses conséquences seront explicitées. Afin de mieux comprendre la vie d'une bulle dans le circuit primaire, un paragraphe est consacré à la physique des bulles, paragraphe qui ne recouvre évidemment pas l'entièreté de la physique des bulles, mais seulement les points impactant les caractéristiques du nuage. Ensuite, les enjeux de la caractérisation de ce nuage de microbulles sont abordés avant de donner un rapide retour

d'expérience issue des réacteurs passés et étrangers. Enfin, les dispositifs expérimentaux disponibles au CEA sont présentés.

Le chapitre 2 détaille les points essentiels à la compréhension de l'acoustique des bulles, c'est-à-dire les interactions entre ondes de pression et une ou plusieurs bulles. Ces interactions, complexes, furent étudiées pour la première fois en 1910 par Mallock, qui s'intéressa à l'atténuation due à la présence de bulles. En 1917, Lord Rayleigh proposa le premier modèle de la dynamique vibratoire d'une bulle soumise à des variations de pression. En 1930, Minnaert étudia la résonance des bulles et donna l'expression de la fréquence de résonance qui porte son nom. Depuis, de nombreux travaux ont enrichi notre connaissance de l'acoustique des bulles. Ce chapitre se compose de trois parties qui détaillent respectivement la réponse d'une bulle à des variations de pression, l'acoustique linéaire des milieux bulleux et l'acoustique non linéaire des tels milieux afin de mieux appréhender les méthodes de caractérisations détaillées dans les chapitres 3 et 4.

Parmi les méthodes de caractérisation des nuages de bulles basées sur l'acoustique linéaire étudiées jusqu'ici, une semble particulièrement adaptée à son utilisation en réacteur. Il s'agit de l'inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité. Cette méthode, originellement appliquée afin de caractériser le nuage de microbulles à la surface des océans, consiste à mesurer l'atténuation et la célérité acoustique sur une large plage de fréquences. Idéalement, cette plage spectrale doit contenir les fréquences des résonances des bulles du nuage à caractériser. Ces mesures sont ensuite inversées à travers une procédure de régularisation afin de déterminer la distribution des bulles. Cependant, il s'avère que les résultats présentés dans la littérature présentent des tailles de classes de rayons importantes et le taux de vide n'est pas mesuré. De plus, ces résultats sont rarement validés par des mesures obtenues par des méthodes différentes. C'est pourquoi une procédure d'optimisation de la procédure de régularisation a été mise au point et une campagne expérimentale en eau a été effectuée, les résultats étant validés par des mesures optiques. Une étude de la robustesse de cette inversion est aussi présentée. Une autre méthode se basant sur l'ajustement des courbes d'atténuation et de célérité en présupposant la loi de distribution des bulles est aussi présentée. Les résultats sont comparés à ceux issus de la régularisation. Enfin, des résultats préliminaires acquis en utilisant des capteurs ultrasonores compatibles avec le sodium liquide, les TUSHT, sont aussi présentés.

Les méthodes basées sur l'acoustique linéaire des bulles sont exploitables lorsque les effets des bulles sur les ondes sont perceptibles. Or pour des taux de vide très faibles, ce n'est plus le cas. Cependant, il s'avère que des effets non linéaires peuvent exister à de très petits taux de vide. Afin de couvrir la gamme de taux de vide la plus large possible, une méthode utilisant l'inversion de mesures spectrales du coefficient non linéaire est présentée au chapitre 4. De nombreuses méthodes de caractérisation utilisant les propriétés non linéaires des bulles ont été étudiées au fils des années. Cependant aucune n'est vraiment applicable industriellement et la plupart sont incapables d'estimer un taux de vide. La méthode présentée résout ces deux problèmes car elle n'est qu'une simple dérivation de l'inversion de mesures d'atténuation et de célérité. Cette méthode a été testée et validée expérimentalement, mais du fait des limitations du banc d'essais, les très faibles taux de vides n'ont pas pu être générés.

Ce manuscrit se termine sur une conclusion qui reprend les principaux résultats présentés ainsi que les perspectives industrielles et scientifiques de ces travaux.

## CHAPITRE 1 PROBLEMATIQUE INDUSTRIELLE

Ce chapitre présente le contexte industriel de cette thèse : la caractérisation de l'engazement continu du circuit primaire des RNR-Na. L'origine de cet engazement ainsi que ses conséquences y sont détaillées avant de s'attacher rapidement à la physique des bulles afin de comprendre leur origine et leur évolution. Enfin, les enjeux de la caractérisation seront explicités avant de donner une retour d'expérience de l'engazement des RNR-Na français existants.

### 1.1 <u>Les reacteurs nucleaires de 4eme generation refroidis au</u> <u>sodium</u>

Depuis 2000 le forum international « génération IV » [1], a instauré une coopération internationale pour le développement de la future génération de réacteurs nucléaires. Les objectifs de cette coopération sont multiples et portent principalement sur :

- l'optimisation des ressources,
- l'amélioration de la sureté nucléaire,
- la minimisation des déchets nucléaires,
- la diminution des couts de construction et d'exploitation des réacteurs,
- la diminution du risque de prolifération nucléaire en brulant les stocks de plutonium par exemple.

Pour répondre à ces objectifs, plusieurs technologies sont possibles :

- Réacteur nucléaire à très haute température (VHTR),
- Réacteur à eau supercritique (SCWR),
- Réacteur nucléaire à sels fondus (MSR),
- Réacteur à neutrons rapides à caloporteur gaz (GFR),
- Réacteur à neutrons rapides à caloporteur plomb (LFR),
- Réacteur à neutrons rapides à caloporteur sodium (SFR ou RNR-Na).

La France a choisi de s'investir dans l'étude des réacteurs à neutrons rapides à caloporteurs sodium (RNR-Na). En effet, plusieurs RNR-Na ont été exploités par le passé : les réacteurs Rapsodie, Phénix et Superphénix, ce qui nous confère de fortes compétences dans cette technologie. Dans ce cadre, le CEA, EDF et Framatome participent au développement d'ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration), en association avec les japonais de JAEA et Mitsubishi, pour répondre aux critères de la génération IV.

Contrairement aux réacteurs actuels de 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> génération, où le caloporteur est de l'eau, dans les RNR-Na il s'agit de sodium liquide. Dans les réacteurs type REP, l'eau agit aussi comme modérateur, c'est-à-dire qu'elle réduit la vitesse des neutrons émis par le cœur afin que la réaction de fission de l'uranium 235 soit améliorée. Dans les RNR-Na, du fait de la faible section de capture neutronique du sodium, les neutrons ne sont plus ralentis et sont alors dit « rapides ». L'utilisation de neutrons rapides présente plusieurs avantages. Premièrement, l'efficacité du réacteur est améliorée car ils peuvent

fissionner *a priori* tous les noyaux lourds et non pas seulement les matériaux fissiles. Ensuite, la probabilité de captures stériles, qui ne donnent pas suite à une nouvelle fission, est réduite. Enfin, l'utilisation de neutrons de fuites par des éléments fertiles mais non fissiles disposés autour du cœur permet la surgénération, c'est-à-dire rendre utilisable un matériau qui ne l'était pas. En pratique, l'utilisation des RNR permettrait d'utiliser les barres d'uranium usagées qui ne sont plus assez enrichies en <sup>235</sup>U et ainsi garantir une indépendance énergétique pour plusieurs millénaires. De plus, les actinides mineurs, dont les périodes de demi-vies sont extrêmes longues, peuvent y être transmutés en éléments beaucoup moins problématiques pour le stockage.

Le sodium est un métal alcalin présent en grande quantité sur terre. Pur et à température ambiante, il se présente sous la forme d'un métal argenté mou qui s'oxyde très rapidement à l'air et réagit très fortement avec l'eau. A pression atmosphérique, il est liquide entre 98°C et 883°C ce qui, combiné avec une excellente conductivité thermique, lui confère de très bonnes propriétés en tant que caloporteur. Cependant, outre sa capacité à réagir avec de nombreux éléments, dont l'air et l'eau, son opacité rend difficile l'inspection des RNR.



Figure 1: Schéma de principe d'ASTRID).

C'est dans cette problématique d'inspectabilité que s'inscrit le contexte industriel de cette thèse : la caractérisation des bulles de gaz libre présentes dans le sodium liquide du circuit primaire (c'est-à-dire celui où baigne le cœur (Figure 1)). Cette présence de bulles, dont l'origine et l'impact sont détaillés dans les paragraphes qui suivent, est qualifiée ici sous le terme d'*engazement*. Bien que ce terme ne soit pas à proprement parler français, il est employé au CEA pour qualifier la présence de gaz libre (et non dissous) dans un liquide. Sous le terme d'engazement est regroupé la notion de taux de vide  $\tau$ , c'est-à-dire le volume de gaz libre par unité de volume, ainsi que la distribution en taille des bulles N(a) = nombre de bulles de rayons compris entre a et a + da par unité de volume. Notons que l'engazement étudié ici est tout à fait normal et continu au sein d'un RNR-Na.

#### 1.2 LES ORIGINES DE L'ENGAZEMENT DU SODIUM

Les différentes sources d'engazement identifiées par le CEA sont détaillées dans cette section. Cellesci se séparent en trois catégories. Il s'agit en premier lieu des phénomènes conjoints de dissolution et de nucléation ; viennent ensuite les phénomènes d'entrainement ; et enfin toutes les autres sources potentielles.

Afin de comprendre l'origine de l'engazement du circuit primaire, il est nécessaire de se familiariser avec le fonctionnement dudit circuit primaire. Celui-ci est constitué de 2 grandes zones : le collecteur chaud et le collecteur froid (Figure 1). Le collecteur chaud recueille le sodium réchauffé à environ 550°C par le cœur, sodium qui libère ensuite son énergie thermique dans les échangeurs intermédiaires avant de retourner dans le collecteur froid à une température d'environ 400°C. De là les pompes primaires l'injectent de nouveau dans le cœur pour démarrer un nouveau cycle. Afin de permettre la dilatation du sodium en surface, le circuit primaire est recouvert d'un gaz de couverture : de l'argon.

#### 1.2.1 La dissolution - nucléation

Il existe entre le collecteur chaud et froid un fort gradient thermique. Du fait de la présence d'argon en gaz de couverture, celui-ci va se dissoudre dans le sodium du collecteur chaud jusqu'à une concentration d'équilibre  $C_s$  donnée par la loi de Henry :

$$C_{s,N_2} = H_s(T) \times p_{N_2},$$
 (1-1)

Avec  $H_s(T)$  le coefficient de solubilité (ou de Henry) en  $atm^{-1}$  qui dépend de la température, et  $p_{N_2}$  la pression partielle de l'argon en atm. Pour le sodium liquide, le coefficient de solubilité de l'argon est donné par : [2]

$$\log(H_s) = -2.59 - \frac{4221}{T},$$
(1-2)

Avec T la température en Kelvin.

Le coefficient de solubilité passe ainsi d'environ  $2 \times 10^{-8} atm^{-1}$  à  $1.3 \times 10^{-9} atm^{-1}$  entre le collecteur chaud et le collecteur froid. Si l'équilibre de saturation est atteint dans le collecteur chaud, le sodium refroidi par les échangeurs se retrouve sursaturé en argon. Apparait alors un phénomène de nucléation, c'est-à-dire la formation de bulles de gaz libre au sein du sodium. Le processus de nucléation sera plus amplement décrit dans le paragraphe 1.4.3 car selon des études, détaillées au paragraphe 1.6, ce phénomène serait responsable de 80% de l'engazement continu du sodium primaire. Notons que la diminution de la pression hydrostatique au sein des pompes peut aussi favoriser la cavitation et donc l'apparition de bulles stables d'argon en présence de sodium sursaturé en gaz dissous.

#### 1.2.2 Les effets d'entraînement

L'autre grande source d'engazement du circuit primaire est constituée par l'ensemble des phénomènes d'entrainement. Ceux-ci consistent en l'entrainement de gaz par le sodium lorsque celui-ci est en mouvement. Cependant, au contraire de la dissolution/nucléation, un design adapté des circuits permet de limiter leur apparition.

#### 1.2.2.1 Entrainement par le déversoir

Sur certains réacteurs, un déversoir est présent afin de permettre au sodium dérivé pour refroidir la cuve principale de retourner dans le collecteur froid (Figure 2). En cas d'un déversoir non noyé, comme pour Superphénix, cela crée une cascade de sodium qui peut entrainer du gaz. Et dans le cas où les forces d'Archimède ne seraient pas suffisantes pour permettre au gaz de remonter à la surface, des bulles peuvent apparaitre au sein du sodium du collecteur froid, bulles qui peuvent aussi agir en tant que germes de nucléation.



Figure 2 : Formation et entrainement de bulles au pied du déversoir de Superphénix [3].

#### 1.2.2.2 Entrainement par les pompes

La circulation du sodium dans le circuit primaire est assurée par des pompes qui forcent le passage du sodium à travers le cœur et les échangeurs primaires. Or cette aspiration peut générer des vortex en surfaces qui entraineront du gaz. Cette situation est susceptible d'apparaître lorsque les aspirations sont proches de la surface libre du sodium.



Figure 3 : Entrainement de gaz par les pompes par formation de vortex [4].

#### 1.2.2.3 Entrainement en surface libre

L'agitation au sein du circuit primaire crée des vortex à la surface libre du sodium ainsi que des vagues de plus ou moins fortes intensités, ce qui peut conduire à l'entrainement de bulles de gaz dans le cas de vortex 5 à 6 sur l'échelle ARL (Figure 4). La compacité croissante des SFR conduit à une circulation de plus en plus turbulente du sodium, ce qui favorise l'agitation des surfaces libres et donc

l'entrainement de gaz par ce biais. Le cas échéant, des dispositifs anti vortex peuvent être implantés afin de limiter ce phénomène.



Figure 4 : Classification ARL des vortex [5].

#### 1.2.3 Autres sources d'engazement

La nucléation/dissolution et l'entrainement représentent la très grande partie des sources de l'engazement du sodium primaire. Cependant, quelques autres sources plus marginales, détaillées ici, existent aussi.

#### 1.2.3.1 Les réactions neutroniques

Au sein du circuit primaire où baigne le cœur du réacteur, des réactions neutroniques sur le sodium, les impuretés de celui-ci ou encore les barres de commande, génèrent du gaz sous forme dissoute dans le circuit primaire. La formation de gaz libre est alors conditionnée à la saturation du sodium en ces gaz. Les principales réactions sont de type:

- 1) Sodium Néon :  ${}^{23}Na \rightarrow {}^{23}Ne$
- 2) Potassium (impureté) Argon :  ${}^{39}K \rightarrow {}^{39}Ar$  et  ${}^{41}K \rightarrow {}^{41}Ar$
- 3) Bore (barres de commande) Hélium :  ${}^{10}B \rightarrow {}^{4}He$

Le gaz le plus produit est le néon 23 car il est issu de la dégradation du sodium primaire. Cependant, étant donné que sa demi-vie est de 37 secondes et que ses descendants sont non gazeux, il est peu probable de le retrouver sous sa forme libre au sein du circuit primaire.

Ensuite, la transmutation des impuretés de potassium contenues dans le sodium génère de l'argon. Le sodium primaire étant *a priori* saturé en argon, ce gaz a de fortes chances de contribuer à l'engazement du circuit primaire. C'est d'ailleurs la mesure de la radioactivité de ce gaz en ciel de pile suite à l'arrêt

rapide du cœur (de Superphénix) qui a permis de donner l'estimation la plus fiable des caractéristiques de l'engazement au sein des SFR-Na (cf. paragraphe 1.6)

#### 1.2.3.2 Les circuits auxiliaires

Certains circuits auxiliaires - tels que des circuits de purification du sodium – peuvent contribuer à la présence de gaz dans le circuit primaire si ceux-ci comportent une source de gaz de quelque nature que ce soit. Leur impact devra alors être pris en compte.

#### 1.3 LES CONSEQUENCES DE CET ENGAZEMENT

Bien que la présence de cet engazement fût connue, les taux de vides pouvant impacter de façon critique les échanges thermiques et le bon fonctionnement neutronique du réacteur (quelques %) ne pouvant pas être atteint de façon normale, il fut choisi de ne pas instrumenter Phénix et Superphénix afin de surveiller cet engazement.

Cependant, si ces bulles n'impactent pas les échanges thermiques et neutroniques au sein du cœur et des échangeurs, d'autres conséquences de cet engazement sont à prendre en compte.

#### 1.3.1 La modification des propriétés acoustiques du sodium

Du fait de l'opacité du sodium, les méthodes de contrôle – qu'elles soient effectuées en continu ou lors de contrôles périodiques - sont principalement acoustiques. Par exemple, sur Phénix se trouvait le dispositif VISUS (pour VISualisation par UltraSons en sodium) qui permettait de détecter d'éventuels obstacles dans le sodium au-dessus du cœur.

Or la présence de bulles dans un liquide impacte grandement les propriétés acoustiques de ce dernier comme le chapitre 2 l'explicitera. Des taux de vides aussi faibles que  $10^{-5}$  impliquent une diminution de la célérité du son de  $2315 m. s^{-1}$  à  $1925 m. s^{-1}$ , soit une réduction de  $386 m. s^{-1}$  aux basses fréquences. Si les caractéristiques de l'engazement sont inconnues, il est notamment impossible de garantir la fiabilité des mesures US par temps de vol. De plus, la présence de bulles s'accompagne d'une forte atténuation, particulièrement importante autour des fréquences de résonances des bulles. Il est donc possible qu'au-delà de quelques centimètres de propagation, le signal soit complètement atténué par l'engazement du sodium. Pour reprendre le cas de VISUS, lorsque les 4 pompes fonctionnaient simultanément, il devenait impossible de détecter le moindre signal. 2 pompes devaient alors être arrêtées afin de diminuer cet engazement [6].

La thèse de Paumel [7] a aussi montré que des poches de gaz se formant aux interfaces composites solide-liquide-gaz étaient responsables des mauvaises transmissions acoustiques.

#### 1.3.2 La génération de poches de gaz

Les valeurs moyennes du taux de vide au sein du circuit primaire sont trop faibles pour impacter les échanges thermiques et neutroniques au sein du cœur. Cependant, il est possible que localement des bulles de gaz coalescent et génèrent des poches de gaz qui, si elles sont relâchées dans le cœur, peuvent dégrader son fonctionnement nominal.

Cette situation peut apparaitre dans certaines configurations géométriques, d'écoulement et de tailles des bulles.

Contrairement à un engazement constitué de petites bulles, le passage de larges poches de gaz dans le cœur peut être problématique. La connaissance des caractéristiques de l'engazement continu constitue une donnée d'entrée dans la modélisation de ces phénomènes d'accumulation/relargage.

#### 1.3.3 La perturbation des mesures de l'activité du ciel de pile.

Afin de détecter l'émission de gaz de fission consécutif à une rupture de gaine, le ciel de pile est instrumenté. Cependant, la présence de l'engazement continu peut venir perturber les mesures. En effet, comme présenté au paragraphe 1.2.3.1, une partie de l'engazement est dû à des réactions neutroniques. Or le relargage de ce gaz dans le ciel de piles peut venir aveugler ces capteurs. Par exemple, le taux de vide menant à l'aveuglement des chambres d'ionisations a été estimé à  $10^{-2}$  dans le cadre du projet RNR 1500 [8].

#### 1.3.4 Perturbation des réactimètres

La présence de bulles de gaz dans le cœur implique un vide partiel qui se traduit par une réactivité positive pendant le passage des bulles. L'engazement continu aura pour effet de fausser les bilans de réactivité. Des fluctuations de cette présence de gaz entraineront une fluctuation de réactivité qui aura un effet sur les réactimètres. Or des seuils d'arrêt d'urgence sont définis sur les signaux issus de ces instruments. Afin de ne pas déclencher d'arrêt d'urgence intempestif, il est donc important de contrôler que la présence de gaz ne présente pas de taux de vide provoquant une variation de réactivité correspondant au seuil d'arrêt d'urgence. Pour le réacteur RNR 1500 – resté au stade du projet – la variation de réactivité induite par la présence de gaz avait été évaluée à 2 pcm par  $10^{-3}$  d'argon en volume. Le seuil de taux de vide à ne pas dépasser avait été évalué à un taux de vide moyen de  $4.10^{-3}$  avec des fluctuations maximales de  $10^{-3}$  [8].

#### 1.3.5 Une conséquence positive : la prévention de l'ébullition explosive

Si lors de son passage dans le cœur le sodium surchauffe, il est possible qu'il atteigne un état métastable, c'est-à-dire qu'il reste liquide alors que sa température est supérieure à sa température d'ébullition théorique. Cette situation est problématique car elle peut mener au phénomène d'ébullition explosive : un brusque passage en phase vapeur.

Les bulles présentes dans le circuit agissent cependant comme sites de nucléation, ce qui prévient l'apparition de l'ébullition explosive dans un RNR [9].

#### 1.3.6 Influence sur les phénomènes de cavitation

De la même manière que les bulles agissent comme sites de nucléation dans le cas de l'ébullition, elles ont un fort impact sur les phénomènes de cavitation. Cette présence de germes permet par exemple d'éviter les retards à la cavitation et dans certains cas d'avancer l'apparition de la cavitation. Les conséquences de la cavitation, essentiellement l'érosion due à l'implosion des bulles, sont alors nettement réduites, car l'onde de choc est diminuée par l'existence d'un volume non nul en fin d'implosion et par le comportement « amortisseur » des bulles lors de la propagation de ces ondes de choc. L'étude fine – théorique et/ou expérimentale – des phénomènes de cavitation nécessite dès lors des connaissances sur le nombre et la taille de ces germes.

La présence de bulles dans le circuit primaire présente donc des enjeux bien plus conséquents que les échanges thermiques et neutroniques. Il a été montré ici que la connaissance fine de cet engazement est nécessaire pour la quantification précise de son influence sur le fonctionnement du RNR-Na.

#### 1.4 EQUILIBRE LIQUIDE/GAZ ET PHYSIQUE DES BULLES.

Dans ce paragraphe est détaillée la physique de base expliquant la formation et l'évolution des bulles dans le circuit primaire du réacteur.

Selon Rahmani [10] environ 80% de l'engazement du sodium primaire provient de la dissolution puis nucléation de l'argon. C'est donc ce processus qui sera étudié en premier.

#### 1.4.1 Saturation

A l'interface entre un gaz et un liquide, il s'installe un équilibre entre la pression partielle en gaz libre de la phase gazeuse et la tension en gaz dissous dans le liquide. La pression partielle d'un gaz correspond à la pression qu'il aurait s'il était le seul à occuper le volume donné, tandis que la tension d'un gaz correspond à la quantité de gaz dissous à l'équilibre dans le liquide pour une pression partielle donnée. Si la tension en gaz est inférieure à la pression partielle, il y a alors sous-saturation ; lorsque ces valeurs sont égales, nous sommes à l'équilibre. Et lorsque la pression partielle est inférieure à la tension en gaz, il y a sursaturation. Ce cas est possible lors de l'absence de sites de nucléation qui peut conduire à l'apparition d'un état métastable.

Dans le cas d'un équilibre liquide-vapeur, on parle plutôt de pression de vapeur saturante et de tension de vapeur.

A saturation, le sodium du collecteur chaud est capable de dissoudre 10 fois plus d'argon que dans le collecteur froid. En considérant un équilibre de saturation dans le collecteur chaud, le changement de température dû au passage dans les échangeurs induit une sursaturation en argon du sodium du collecteur froid, sursaturation qui conduit à la nucléation de bulles d'argon.

#### 1.4.2 Tension superficielle et géométrie des bulles

A l'interface entre une phase gazeuse et une phase liquide (ou entre 2 phases liquides) existe une tension de surface quantifiée par le coefficient de tension superficielle  $\sigma$ . Au sein d'un fluide, les forces de cohésion entre les molécules s'équilibrent. Cependant, à l'interface, ces forces donnent une résultante dirigée vers l'intérieur du fluide et la surface se comporte comme si elle était soumise à une pression extérieure. La tension superficielle est définie par l'énergie mécanique nécessaire pour accroitre la surface de l'interface d'une unité.

Cette tension superficielle induit une surpression  $\Delta P$  au sein d'une bulle de courbure *C* telle que :

$$\Delta P = \sigma. C$$

Dans le cas d'une bulle sphérique de rayon R, C = 2/R d'où :

$$\Delta P = \frac{2\sigma}{R}$$

Ainsi, plus une bulle est petite, plus la surpression interne – ou pression de Laplace – est importante, et plus elle tendra à être sphérique. La Figure 5 présente les géométries de bulles dans un écoulement libre en fonction du nombre de Reynolds et du nombre d'Eötvös. Ce dernier correspond au rapport de la poussée d'Archimède et de la tension superficielle. Dans le cas d'une bulle d'argon de 100  $\mu$ m de rayon dans du sodium liquide à 500°C, il vaut environ 2 × 10<sup>-3</sup>. Ainsi, même pour de fort Reynolds, les bulles au sein des réacteurs devraient être sphériques.



Figure 5 : Formes de bulles dans un écoulement liquide libre [11].

Considérons maintenant une bulle de gaz sphérique dans un liquide saturé en ce même gaz à une tension  $p_{gc}$ . Si on néglige la pression hydrostatique, l'équilibre des pressions donne alors à l'interface liquide/gaz (Figure 6) :

$$p_l = p_{gc} + p_{\nu}, \tag{1-3}$$

où  $p_l$  est la pression du liquide,  $p_{gc}$  la pression partielle du gaz de couverture et  $p_v$  la pression de vapeur saturante.



Figure 6 : Schéma d'une bulle dans un liquide.

La bulle étant sphérique de rayon R, l'équilibre des pressions à l'interface liquide/bulle est :

$$p_{gb} + p_v = p_l + \frac{2\sigma}{R},\tag{1-4}$$

où  $\sigma$  est le paramètre de tension superficielle.

D'où :

$$p_{gb} = p_{gc} + \frac{2\sigma}{R},\tag{1-5}$$

Du fait de la tension superficielle, la pression interne de la bulle est donc toujours supérieure à la tension en gaz du liquide. Celle-ci aura dont tendance à se dissoudre, et ce d'autant plus vite que son rayon est petit. Ce phénomène est évidemment accentué dans le cas où le liquide serait sous-saturé en gaz.

Si en revanche le liquide est sursaturé en gaz, celle-ci peut compenser la surpression due à la tension superficielle. Il y a alors un rayon critique en dessous duquel une bulle se dissout et au-dessus duquel elle grossit. Ce rayon est donné par [12] :

$$R_c = \frac{2\sigma}{p_l \left(\frac{C_g}{C_{s,g}} - 1\right)},\tag{1-6}$$

avec  $C_g$  la concentration en gaz dissous et  $C_{s,g}$  la concentration en gaz à l'équilibre de saturation définie par la loi de Henry.

#### 1.4.3 Nucléation de bulles

La nucléation est un terme générique désignant l'apparition spontanée de bulles dans un liquide. Il faut distinguer selon Jones [13] quatre types de nucléation différentes.

#### 1.4.3.1 Nucléation de type 1 : nucléation homogène classique

Ce type correspond à la nucléation au sein d'un liquide pur. Il n'y a aucun site de germination (ou nucleus) pour favoriser l'apparition de bulles. Le niveau de sursaturation requis pour observer l'apparition de bulles dans ce cas est très élevé : supérieur à 100 car il faut dépasser la barrière d'énergie de nucléation. Une fois formées, les bulles remontent à la surface. La formation de bulles au même endroit est improbable.

#### 1.4.3.2 <u>Nucléation de type 2 : nucléation hétérogène classique</u>

Ce type de nucléation est comparable au type 1 à la différence que des parois solides sont en présence. Les bulles se créent alors préférentiellement au niveau d'une aspérité de la surface ou autour d'une particule en suspension. Une fois crée, la bulle se détache de la paroi en laissant derrière elle une portion de gaz qui servira de site de nucléation de type 3 ou 4.

#### 1.4.3.3 <u>Nucléation de type 3 : nucléation pseudo-classique</u>

Pour ce type de nucléation, homogène ou hétérogène, les nucleus consistent en des bulles ou des poches de gaz de rayons inférieurs au rayon critique (éq. (1-6)). La sursaturation du milieu permet alors de franchir la barrière d'énergie de nucléation. Cependant, les niveaux de sursaturation requis dans ce

cas sont largement inférieurs à ceux des types 1 et 2. Les bulles ainsi alimentées en gaz peuvent servir de sites pour la nucléation de type 4.

#### 1.4.3.4 Nucléation de type 4 : nucléation non classique

Dans le cas où des bulles ou des poches de gaz présentent des rayons de courbure supérieurs au rayon critique, il n'y a plus de barrière d'énergie de nucléation à franchir. On parle alors, à l'inverse des cas précédents, de nucléation non classique.

#### 1.4.4 Coalescence et fractionnement

Une fois créées par nucléation ou par entrainement, les bulles peuvent se rencontrer et fusionner pour donner lieu à des bulles plus grosses, on dit alors qu'elles coalescent. Elles peuvent aussi sous l'effet de cisaillement se fractionner et donner alors lieu à des bulles plus petites.

#### 1.4.4.1 <u>Coalescence</u>

Lorsque deux bulles de rayon *R* se rencontrent, on observe l'aplatissement des surfaces en contact suivis du drainage de l'interface liquide jusqu'à sa rupture. Les deux bulles ont alors fusionné en une seule de rayon  $2^{3/2} \times R$ .

Il est généralement considéré qu'il y a coalescence dès qu'il y a contact entre les bulles. Il s'agit alors de calculer plutôt la probabilité que 2 bulles se rencontrent pour quantifier ce phénomène.

#### 1.4.4.2 Fractionnement

Une bulle dans un écoulement sera soumise à des forces de cisaillement d'autant plus importantes que cet écoulement est turbulent. Il existe alors un rayon maximum de stabilité de la bulle au-delà duquel ces forces de cisaillement fractionnent la bulle. De nombreux modèle existent pour déterminer ce rayon critique ainsi que la fréquence de fractionnement et la distribution fille [14].

Le fractionnement est caractérisé par le ratio entre les forces résistant à la déformation (tension superficielle, viscosité interne...) et les forces favorisant la déformation de la bulle. Ce ratio est connu comme étant le nombre de Weber. Une fois un nombre de Weber critique  $W_{e_c}$  atteint, la bulle se fractionne [15] :

$$W_{e_c} = \frac{\rho \overline{u^2} d_m}{\sigma}.$$

 $We_c$  : nombre de Weber critique

(1-7)

 $\rho$  : masse volumique du liquide

 $\overline{u^2}$  : valeur moyenne des carrés des différences de vitesses

#### $d_m$ : diamètre stable maximal

Si la bulle est large devant les plus petites échelles de la turbulence, mais faible devant les plus grosses, les tourbillons responsables du fractionnement sont isotropes et leurs énergies cinétiques suivent la loi de distribution d'énergie de Kolmogoroff :

$$\overline{u^2} \approx 2.0 \times \left(\frac{\epsilon d}{\rho}\right)^{2/3}.$$
 (1-8)

Le taux moyen de dissipation d'énergie par unité de volume  $\epsilon$  peut être déterminé en considérant ce qui arrive au gaz entrainé.

De manière générale, le nombre de Weber critique varie suivant les études et les cas, mais se situe entre 1 et 5.

#### 1.5 LES ENJEUX DE LA CARACTERISATION DE L'ENGAZEMENT DU SODIUM

La caractérisation de l'engazement du sodium primaire comporte plusieurs enjeux. La première étant évidemment la maitrise des causes et des conséquences de cet engazement ainsi que la détection des incidents.

Cependant, cette caractérisation permettrait aussi la validation de codes de calcul de l'engazement et répondrait à une requête de l'autorité de sureté nucléaire française (ASN) formulée pour Superphénix.

# 1.5.1 La validation de codes de calcul du comportement des bulles en réacteurs

Afin d'appréhender l'engazement d'un SFR, un code de calcul, VIBUL, a été développé dans les années 90 par le CEA [16], [17]. VIBUL modélise l'évolution d'une population de bulles en 9 points du circuit primaire du réacteur (Figure 7) en tenant compte de :

- La cinétique des échanges de gaz entre bulles et sodium ;
- La remontée des bulles sous l'effet de la force d'Archimède ;
- Leur fractionnement dans les turbulences.

Des développements ultérieurs, entre 1991 et le début des années 2000, ont permis la prise en compte de :

- La nucléation des bulles ;
- La production et le transport de l'41Ar ;
- L'influence des champs des vitesses en 3D dans le collecteur chaud sur les phénomènes de relargage en surface.

Les développements des japonais de JAEA ont quant à eux permis la prise en compte :

- Du gaz (hélium) généré par l'activation du B<sub>4</sub>C (matériau des barres de commande du cœur);
- Des phénomènes d'entrainement par vortex à proximité des surfaces libres
- De la présence d'éventuels dispositifs anti-vortex.

La population de bulles issues du déversoir constitue la donnée d'entrée de ce code système point. En chacun des 9 points est alors calculé de façon itérative un histogramme de distribution des rayons et les quantités de gaz libre et dissous.



Figure 7 : Visualisation des points de calculs de Superphénix par VIBUL.

La caractérisation directe de l'engazement du sodium primaire permettrait la qualification de ce type de code de calcul. Une telle qualification permettrait la prise en compte des effets de l'engazement dès le stade de la conception d'un RNR.

#### 1.5.2 Une requête de l'autorité de sûreté nucléaire

Durant l'exploitation de Superphénix, l'autorité de sureté nucléaire (ASN) a demandé à l'exploitant de ce réacteur « d'examiner (...) la possibilité d'apprécier de façon plus précise (...) la valeur du taux d'engazement, soit en améliorant les méthodes de mesures déjà utilisées, soit en définissant d'autres méthodes de mesures ». En effet, entre 1989 et 1990, plusieurs Arrêt d'Urgence pour Réactivité Négative (AURN) eurent lieu à Phénix. Le passage d'une large poche de gaz dans le cœur fut l'une des pistes étudiées pour expliquer ces arrêts. Phénix étant alors à l'arrêt, des essais préliminaires par mesure de la décroissance d'activité de l'argon 41 en ciel de couverture suite à un arrêt rapide furent alors menés sur Superphénix. Cependant, l'arrêt de ce réacteur en 1998 empêcha la mise en œuvre d'autres méthodes. La requête de l'ASN est donc à ce jour resté sans réponse définitive.

Bien qu'une telle demande n'ait à ce jour pas été expressément posée pour ASTRID, il semble quand même difficile de ne pas progresser sur la question alors que la génération IV impose une sureté accrue.

#### 1.5.3 Détection des incidents

L'apparition d'incidents sources d'engazement se traduirait par la modification des caractéristiques de l'engazement normal du réacteur. La caractérisation en continu de l'engazement permettrait alors de détecter et quantifier de tels incidents.

De plus, les méthodes acoustiques développées dans cette thèse sont facilement transposables aux canalisations des circuits secondaires et tertiaires du réacteur. La détection de la présence de gaz dans ces circuits, normalement exempts de bulles, permettrait la détection de fuites au niveau des échangeurs sodium (générateurs de vapeurs ou échangeur sodium-gaz) ou ailleurs dans le circuit.

#### 1.6 <u>RETOUR D'EXPERIENCES</u>

ASTRID ne devrait être que le dernier né d'une lignée de RNR-Na pour lequel l'impact de l'engazement a été de plus en plus pris en compte. Les paragraphes suivants présentent les retours d'expériences en matière d'engazement de ces différents réacteurs.

#### 1.6.1 Rapsodie

Rapsodie est le premier RNR-Na français à proprement parler. Construit sur le site du CEA de Cadarache, sa première divergence a eu lieu en 1967. Il a été arrêté en 1983.

Rapsodie ayant vocation à être un réacteur expérimental permettant d'étudier la validité des réacteurs à neutrons rapide à caloporteurs sodium, les études ont principalement portées sur la validation des procédés technologiques. De fait, peu de données relatives à la présence de gaz au sein du sodium liquide du réacteur sont disponibles et elles sont pour la plupart qualitatives.

#### 1.6.2 Phénix

Phénix est le second RNR-Na français. Construit sur le site du CEA de Marcoule, celui-ci a fonctionné entre 1973 et 2010. Considérablement plus puissant que Rapsodie, il était relié au réseau électrique. Cependant, peu d'études relatives à la caractérisation de la présence de gaz libre au sein du sodium liquide de Phénix ont été menées.

Le réacteur Phénix comportait un déversoir mais il était noyé, de sorte qu'il ne participait pas à l'entrainement de gaz libre au sein du sodium. Les principales sources de gaz de Phénix étaient alors la nucléation/dissolution et l'entrainement de gaz au niveau de la surverse de retour du circuit de purification. Nous ne disposons pas de valeur fiable du taux de vide continu de Phénix.

Le dispositif acoustique VISUS était censé fonctionner en continu durant l'exploitation de Phénix. Cependant, son opération en conditions nominales s'est avérée impossible du fait de l'aveuglement dû aux bulles. Des conditions particulières (diminution du débit de la surverse du circuit de purification en particulier et temps d'attente permettant un dégazage partiel) étaient alors requises pour permettre son fonctionnement.

#### 1.6.3 Superphénix

Superphénix, le troisième et plus puissant RNR-Na Français, est le réacteur pour lequel nous avons le plus d'informations quant à la présence de gaz libre au sein du sodium liquide. En effet, suite à un AURN de Phénix dont l'une des explications possibles était le passage d'une grosse poche de gaz dans le cœur, l'ASN demanda à l'exploitant de Superphénix de permettre la quantification de l'engazement. C'est pourquoi des essais dans ce but furent menés sur Superphénix.

#### 1.6.3.1 Origines de la présence de gaz

Les études de Rahmani [10] et Mignot [18] ont montré que l'essentiel des bulles présentes dans le sodium liquide primaire de Superphénix, quand il fonctionne à puissance nominale, provient d'une nucléation pseudo-classique au sein des échangeurs intermédiaires.

Ensuite, contrairement au réacteur Phénix, le déversoir du Superphénix était déversant. Les travaux de Rahmani [10] laissent penser que le déversoir contribue pour 20% seulement à la présence de gaz libre dans le sodium primaire de Superphénix.

#### 1.6.3.2 <u>Valeurs du taux de vide</u>

La seule technique de caractérisation du taux de vide effectivement mise en œuvre pour Superphénix fut la mesure de la décroissance de l'activité de l'<sup>41</sup>Ar dans le gaz de couverture suite à un arrêt rapide du réacteur.

En 1997, cette technique a ainsi permis de déterminer une valeur assez précise du taux de vide dans le collecteur froid [10], [19]:  $\tau = 2,56 \times 10^{-6}$  (avec un facteur d'incertitude de 2).

L'inconvénient majeur de la mesure de la présence de gaz à partir de la mesure de l'activité de l'argon 41 – outre le fait qu'elle soit indirecte – réside dans le fait qu'elle n'est applicable que suite à un arrêt d'urgence ou un arrêt rapide. Elle n'est donc pas envisageable pour une mesure permanente ou au moins assez fréquence comme le préconisait l'ASN.

A cette époque, la technique qui semblait la plus prometteuse – au moins pour la mesure du taux de vide en fonctionnement nominal – était la mesure de la célérité acoustique à basse fréquence. Au même moment fut décidé l'arrêt de Superphénix. Ceci marqua l'arrêt brutal de l'ensemble des études relatives à la présence de gaz au sein du sodium liquide alors en cours.

#### 1.6.3.3 <u>Taille des bulles</u>

L'essentiel des bulles de gaz de Superphénix provient de la nucléation des gaz dissous au niveau des parois froides des échangeurs. Les bulles ainsi créées ont un rayon dépendant de la taille des sites de nucléation (essentiellement les microfissures issues de la corrosion), des conditions thermo hydrauliques et de la teneur du sodium en gaz dissous. Selon les études menées pour Superphénix, les bulles nucléées présentaient un rayon compris entre 10 µm [10] et 40 à 50 µm [20].

Par ailleurs, une deuxième population de bulles issues de l'entraînement lié au déversoir aurait un rayon moyen de plusieurs dizaines de microns. Rahmani [10] donne comme rayon maximal de bulles entrainées par le déversoir environ 60 µm. Nous sommes ici en présence d'un écoulement à bulles dispersées (bulles qui, compte tenu de leurs tailles, peuvent être considérées sphériques).

#### 1.6.3.4 <u>Perturbations acoustiques</u>

Dès le démarrage de Superphénix, le dispositif acoustique VISUS a été fortement perturbé – voire inopérant dans certains cas – par la présence de microbulles d'argon au sein du sodium liquide. Ceci a conduit à définir des conditions particulières (au niveau des pompes primaires et de la purification essentiellement) et des phases de dégazage avant toute opération de manutention nécessitant le VISUS.

Une tentative d'application de la mesure de l'atténuation US due à la présence de gaz avec le VISUS de Superphénix fut faite [21], [22], mais sans succès.
# 1.6.4 Réacteurs étrangers

Rapsodie, Phénix et Superphénix ne sont évidemment pas les seuls RNR-Na à avoir été construits dans le monde. De nombreux pays comme la Russie, les Etats-Unis, le Japon, l'Inde et d'autres ont construit ou ont en projet des réacteurs rapides à caloporteur sodium. Cependant, à notre connaissance, l'engazement n'a pas été spécifiquement étudié dans ces pays. Il n'existe donc pas de retour d'expérience étranger. Le seul réacteur ayant eu des études sur l'engazement est l'European Fast Reactor (EFR). Pour ce réacteur, resté au stade du projet, la problématique de la présence de gaz libre au sein du sodium liquide primaire a été clairement prise en compte. L'approche consistait à chercher à diminuer voire supprimer les sources d'engazement – en particulier les sources d'entrainement – identifiées. Ainsi, le taux d'engazement continu, pour EFR, aurait vraisemblablement était plus faible que celui des réacteurs comme Phénix ou Superphénix.

# 1.7 DISPOSITIF DE GENERATION DE MICROBULLES EN EAU ET DE MESURES ACOUSTIQUES ET OPTIQUES

Afin de tester les différentes méthodes de caractérisations présentées dans ce manuscrit, le CEA s'est doté d'un banc de génération de microbulles d'air en eau. En effet, la manipulation de sodium liquide est complexe du fait de sa forte réactivité avec l'air et l'eau ainsi que des températures mises en jeu. Les essais réalisés ont donc tous été effectués avec des nuages de bulles d'air dans de l'eau car les propriétés acoustiques du couple sodium/argon sont semblables à celles du couple eau/air. A la sortie du cœur du réacteur, il règne une température d'environ 500°C et une pression d'environ 1 bar. La possibilité de la transposition des essais en eau repose principalement sur 2 points : les impédances acoustiques des milieux considérés et les fréquences de résonance en jeu. Comme le montre le Tableau 1, les propriétés régissant le comportement acoustique du couple eau/air à 20°C sous 1 atm et celles du couple sodium/argon à 550°C sont comparables. L'atténuation acoustique dans le sodium liquide est par ailleurs plus faible que celle rencontrée dans l'eau.

NOM	NOTATION	UNITE	EAU/AIR 20°C/1 BAR	SODIUM/ARGON 550°C / 1 BAR
CAPACITE THERMIQUE MASSIQUE DU GAZ	$C_{pg}$	J/(kg.K)	1.01x10 <sup>3</sup>	520,4
CELERITE DANS LE GAZ	Cgaz	m.s <sup>-1</sup>	340	535
CELERITE DANS LE LIQUIDE	C;Cliq	m.s <sup>-1</sup>	1481	2292
FACTEUR DE COMPRESSIBILITE DU GAZ	$\chi_{gaz}$	-	0.9996	1.00025
COMPRESSIBILITE DU LIQUIDE	χliq	Pa <sup>-1</sup>	4.4x10 <sup>-10</sup>	1.86x10 <sup>-10</sup>
CONDUCTIVITE THERMIQUE DU GAZ	$\lambda_{g}$	W/(m.K)	0.026	0.0381
IMPEDANCE ACOUSTIQUE DU GAZ	(pc) <sub>gaz</sub>	rayls	413	311
IMPEDANCE ACOUSTIQUE DU LIQUIDE	(pc) <sub>liq</sub>	rayls	1.5x10 <sup>6</sup>	<b>1.9x10</b> <sup>6</sup>
MASSE VOLUMIQUE DU GAZ	$ ho_{gaz}$	Kg.m <sup>-3</sup>	1.3	0.582
MASSE VOLUMIQUE DU LIQUIDE	$ ho_{liq}$	Kg.m <sup>-3</sup>	1000	816
PARAMETRE DE TENSION SUPERFICIELLE	σ	N.m <sup>-1</sup>	72.8x10 <sup>-3</sup>	151x10 <sup>-3</sup>
VISCOSITE DYNAMIQUE DU LIQUIDE	μ	Pa.s	10 <sup>-3</sup>	0.2268x10 <sup>-3</sup>
ATTENUATION ACOUSTIQUE*	$\alpha/f^2$	$10^{-15}$ nepers $m^{-1}$ . $Hz^{-2}$	25	12

Tableau 1 : Propriétés physique des couples eau/air et sodium/argon en condition de fonctionnement.

\* http://www.kayelaby.npl.co.uk/general\_physics/2\_4/2\_4\_1.html

Le CEA s'est donc doté d'un banc en eau permettant la génération de nuages de microbulles et la réalisation dans celui-ci de mesures acoustiques et optiques. Ce banc - ACWABUL\* (Figure 8) - consiste en une cuve d'environ 1 m<sup>3</sup> dans laquelle sont injectées les microbulles par le biais d'injecteurs spéciaux détaillés au paragraphe 1.7.1. Certains injecteurs sont alimentés en eau sursaturée en air dissous provenant du saturateur juxtaposé à la cuve. Les autres sont alimentés en eau et en air par des pompes annexes. La force de ce banc est la grande modularité qu'il permet. Des platines à translations linéaires micrométriques sont disponibles pour placer les capteurs le plus précisément possible.



Figure 8 : modèle 3D du banc ACWABUL.

# 1.7.1 Génération de microbulles

Trois techniques de génération de microbulles sont utilisables dans ACWABUL. Les 2 premières reposent sur la cavitation d'eau, soit sursaturée soit ventilée. La troisième est une technique plus classique de cisaillement microfluidique.

# 1.7.1.1 <u>Par cavitation sursaturée</u>

Deux injecteurs conçus pour le CEA par Ylec Consultants (La Tronche, France) : les Veines à Divergence Radiales (VDR) et les Minitubes (Figure 9), permettent la génération de microbulles dans ACWABUL. Celles-ci reposent sur la cavitation d'un liquide sursaturé.

<sup>\*</sup> Acoustical Characterization in Water of BUbbly Liquids



La géométrie de la chambre cavitante permet de créer une poche stable de cavitation, qui s'effondrera en ne laissant que des microbulles d'air. Pour les VDR, cette géométrie consiste en une simple divergence radiale, pour les Minitubes, ce sont des diaphragmes qui induisent la cavitation. Comme l'eau est sursaturée en air, les bulles ainsi crées seront alors relativement stables.



Figure 10 : Distribution issue d'un VDR et ajustement d'une loi log normale.

Mesurée optiquement, la distribution de bulles suit une loi proche d'une distribution log-normale (Figure 10) dont le rayon moyen est d'environ 35 µm et d'écart type de 20 µm.

La Figure 11 montre ACWABUL lorsque tous les VDR sont ouverts. Le nuage de bulle occupe alors quasiment entièrement la cuve, à l'exception de la zone située sous les VDR. Bien que le nuage soit totalement opaque, le taux de vide ne doit pas dépasser 10<sup>-2</sup>. Cela suffit néanmoins à rendre toute mesure acoustique absolument impossible. Les mesures utilisant les VDR se limitent de fait à un seul VDR ouvert.



Figure 11 : ACWABUL lorsque tous les VDR sont en fonctionnement.



Figure 12 : Trois Minitubes génèrent des bulles.

Les minitubes sont intéressants afin de générer moins de bulles. Cependant, comme le montre la Figure 12, ils génèrent un panache de bulles relativement turbulent. Les mesures acoustiques dans ce panache se révèlent fortement instables. On remarque cependant la présence d'une nappe de bulles en surface

où le nuage est beaucoup plus stable et dilué que dans le panache. Les mesures dans cette zone sont alors grandement facilitées. Néanmoins, la composition du nuage de surface est grandement affectée par le niveau de saturation de l'eau de la cuve. Il évolue de fait lentement au cours de la journée, et deux mesures ne sont pas répétables d'une journée sur l'autre.

# 1.7.1.2 Par cavitation ventilée

Un autre moyen d'obtenir des microbulles stables de gaz incondensables en aval de l'effondrement de poche de cavitation est d'injecter de l'air directement dans cette dernière. C'est le principe des Veines à Divergences Radiales Ventilées (VDR-V), elles aussi développées par YLEC Consultants pour le CEA sur la base d'une variante de leurs brevets [23].



Figure 13 : Géométrie d'un VDR-V.

Les VDR-V ont l'avantage de générer moins de bulles, et plus petites que les VDR ou minitubes (Figure 15). Ceci permet de travailler à plus hautes fréquences et avec un meilleur rapport signal à bruit. De plus une géométrie particulière des VDR-V - les injecteurs dits CARMIN<sup>\*</sup> -, permet de générer un rideau de microbulles réduisant de fait l'atténuation acoustique entre les capteurs (Figure 14).

Par rapport aux VDR, les VDR-V présentent d'autres avantages :

- Ils sont plus simples à mettre en œuvre car ne nécessitent pas de saturer préalablement de l'eau en gaz dissous.
- Ils permettent de choisir simplement la nature du gaz des microbulles créées.
- Ils permettent un meilleur contrôle du taux de vide généré via un contrôle de la pression du gaz ventilé et du débit d'injection d'eau (Figure 16).
- Ils sont transposables au sodium liquide.

<sup>\*</sup> Cavitating Aerated Microbubble INjector

1.7 - Dispositif de génération de microbulles en eau et de mesures acoustiques et optiques



Figure 14 : Injecteurs CARMIN.

La population générée suit une fois encore une distribution proche d'une loi log normale (Figure 15)



<u>Moyenne de 15 μm et écart-type de 38 μm.</u>

La Figure 16 montre l'impact de la pression d'injection de l'air et d'eau, contrôlé en variant la vitesse de rotation de la pompe principale et en y branchant une pompe de gavage en série. Augmenter la pression d'eau via l'ajout d'une pompe de gavage augmente le taux de vide et la dispersions des nuages générés. Augmenter la pression d'injection de l'air à globalement le même effet, mais dans une moindre mesure.



# 1.7.1.3 <u>Par injecteurs capillaires</u>

La particularité de la génération de bulles par cavitation est qu'elle génère des bulles de tailles diverses selon une loi de distribution de type log-normale. Pour générer des bulles micrométriques de tailles uniques il est nécessaire de procéder par cisaillement de flux dans des micro canaux (Figure 17).

#### 1.7 - Dispositif de génération de microbulles en eau et de mesures acoustiques et optiques



Un flux d'air est cisaillé par un flux d'eau dans une jonction en T. En modifiant les caractéristiques de pression d'air et d'eau ainsi que le diamètre des capillaires, il est possible de générer des bulles de mêmes rayons à intervalles réguliers. Globalement, lorsqu'on augmente la pression en air, les bulles générées sont plus petites et plus nombreuses (*Figure 18*).



Figure 18 : Mesures du rayon moyen et de l'écart type des bulles générées en fonction de la pression d'alimentation en air.

Ces injecteurs n'ont globalement pas été utilisés pour les mesures acoustiques car la taille relativement importante des bulles oblige à travailler à trop basse fréquence. Cependant, le fait de pourvoir générer des bulles de mêmes tailles a été utilisé dans la caractérisation du dispositif optique détaillé dans le paragraphe 1.7.3.

## 1.7.1.4 Conclusion

Nous disposons dans ACWABUL de 5 types d'injecteurs différents :

• VDR et Minitubes,

- VDR-V et CARMIN,
- Capillaires.

En faisant varier le type, le nombre et la position des injecteurs, ainsi que les paramètres de contrôle de ceux-ci, il est possible de générer de nombreux nuages différents, tant en taux de vide qu'en distributions. Les taux de vides possibles sont compris entre  $10^{-7}$  et  $10^{-3}$  environ, et les rayons vont de quelques micromètres à plusieurs dizaines. Cependant, ces méthodes de générations ne permettent pas de générer de façon répétable des nuages de microbulles et les caractéristiques de ceux-ci dépendent fortement de paramètres incontrôlables comme la température et la saturation en air de l'eau dans laquelle ils sont générés. Les mesures devront donc être validées à chaque fois par des méthodes annexes.

# 1.7.2 Chaine acoustique

Les mesures acoustiques sont effectuées en transmission sur une large plage de fréquence. Les transducteurs Imasonic (Voray-sur-l'Ognon, France) 250kHz permettent de travailler entre 50 kHz et 400 kHz. A chaque fréquence de mesure est émis un train d'onde d'une dizaine de cycles, une première fois en eau pure, puis une seconde fois à travers le nuage ou le rideau de bulles. Grace à l'automatisation des mesures, chaque balayage prend seulement quelques secondes. L'atténuation  $A_i$  et la célérité  $V_i$  du son à la fréquence  $f_i$  au sein du nuage de bulle sont ensuite calculées par :

$$A_{i} = \frac{1}{d} \times 20\log(\left|\widetilde{s_{bubble,i}}(f_{i})\right| / |\widetilde{s_{ref,i}}(f_{i})|, \tag{1-9}$$

$$\begin{cases} V_i = d / \left( \frac{d}{c_{liq}} + \Delta t_i \right), \\ \Delta t_i = \frac{\left[ \Phi \left( \widetilde{s_{ref,i}}(f_i) \right) - \Phi \left( s_{\widetilde{bubble},i}(f_i) \right) \right]}{2\pi f_i}, \end{cases}$$
(1-10)

où  $\tilde{s} = FFT(s)$  est la transformée de Fourrier rapide du signal *s*,  $f_i$  est la fréquence centrale du  $i^{eme}$  train d'onde et *d* est la distance entre les transducteurs. Cependant, le déphasage mesuré est compris dans l'intervalle  $[-\pi; \pi]$ . Or, suivant la distance entre les transducteurs, le déphasage effectif peut excéder plusieurs phases. Une correction de la phase est alors effectuée via la fonction *unwrap* de Matlab® en commençant par les hautes fréquences où le déphasage est minime.

La mesure de la célérité par comparaison de phases permet une mesure plus fiable que par intercorrélation entre signaux avec et sans bulles en cas de faibles rapports signal à bruit (Figure 19). En effet, en cas de signaux fortement bruités, le maximum de corrélation peut être ambiguë et mener à une détermination erronée du temps de vol. De plus, les transducteurs ne travaillant pas toujours à leurs fréquences de résonance, les signaux transmis comportent parfois des artefacts en début et fin de train d'onde qui peuvent fausser la mesure de temps de vol par corrélation.

#### 1.7 - Dispositif de génération de microbulles en eau et de mesures acoustiques et optiques



Figure 19 : Comparaison des mesures de vitesses de phase en eau engazée par corrélation et comparaison spectrale. Les sauts de vitesse observables sur la mesure par corrélation sont imputables à une mauvaise détermination du maximum de corrélation.

Les formes d'ondes sont générées à l'aide d'un générateur de fonctions Tektronix AFG 3022B et numérisées avec un Picoscope 4824 après filtrage par un Krohn-Hite Model 3945. Ces deux dispositifs sont pilotés par un script Matlab dédié pour permettre des mesures rapides (Figure 20).



#### Figure 20 : Chaine d'acquisition.

Afin de maximiser le rapport signal sur bruit, les capteurs sont placés à seulement quelques centimètres les uns des autres. Cela entraine des réflexions pouvant altérer les mesures, surtout à basse fréquence. Cependant ces altérations restent relativement minimes et sont acceptables devant la nécessité d'avoir des mesures à la résonance.

# **1.7.3** Mesures de référence par contrôle optique

Afin de pouvoir valider les résultats acoustiques, une méthode de contrôle est nécessaire. L'avantage de travailler en eau est de pouvoir réaliser des photos du nuage de bulles pour obtenir une distribution de référence, qui sera comparée aux résultats acoustiques. Cependant, un tel histogramme ne fournit pas de taux de vide. Une méthode d'analyse d'image permettant d'estimer un taux de vide a donc été mise au point.

Les photos du nuage sont effectuées par une caméra immergeable (Figure 21) BAUMER TXG50 de 5 Mégapixels (2448 × 2050 px) munie d'un objectif télécentrique VS Technology VS-TC1.5-70 présentant un grandissement de 1.5. La raison de l'utilisation d'objectifs télécentriques est que ceux-ci gardent leur échelle dans l'axe Z. C'est-à-dire que des bulles de mêmes rayons mais disposées à des distances différentes de l'objectif auront la même taille sur la photo finale. Cette particularité est évidemment particulièrement intéressante en métrologie. Cependant, de tels objectifs sont moins lumineux que des objectifs classiques cars ils ne captent que les rayons parallèles à l'axe de l'objectif. Un panneau LED Phlox® est donc disposé en face de la caméra (Figure 20). La profondeur de champ est aussi particulièrement limitée.



Figure 21 : Dispositif optique constitué de la caméra immergeable et du panneau LED.

Cependant, la faible profondeur de champ permet l'estimation de la position en 3D de la bulle en mesurant le flou relatif de la bulle. Une caractérisation du dispositif optique a été effectuée afin de déterminer le rayon d'une bulle et sa position sur l'axe Z en fonction de son rayon estimé par la réponse au filtre Laplacien de Gaussienne et de son flou :

$$r_a = \sigma_{LoG}\sqrt{2} \tag{1-11}$$

où  $\sigma_{LoG}$  est la taille caractéristique du filtre Laplacien de Gaussienne.

# 1.7.3.1 <u>Procédure de caractérisation</u>

Tout d'abord, des bulles de rayon constant ont été générées en utilisant les injecteurs capillaires. Ce rayon est mesuré très simplement sur les photos lorsque les bulles sont dans le plan focal. Ce rayon

est sélectionné en modifiant la pression d'injection d'air (Figure 22). Afin de déterminer la relation entre flou relatif et distance au plan focal, la caméra est fixée sur une platine à translation linéaire. La distance bulle-plan focal est alors sélectionnable. La Figure 23 montre 4 bulles à des distances respectives de 0 *mm*; 0,5 *mm*; 1*mm*; 1,5*mm* du plan focal. On remarque évidemment que plus la bulle est éloignée, plus elle est floue. Cependant, du fait de l'utilisation d'une optique télécentrique, son rayon apparent reste constant.



Figure 22 : schéma présentant l'étape de caractérisation de la caméra.

Le niveau de flou a été mesuré, pour différentes tailles de bulles, entre -1,5 mm et +1,5 mm autour du plan focal. Ces mesures sont ensuite interpolées pour construire la cartographie visible Figure 24.



Figure 23 : Photo de bulle pour différentes distance d au plan focal.

Ainsi, le rayon de chaque bulle détectée est corrigé en fonction du niveau de flou, et la position de celleci par rapport au plan focal est estimée. De plus, pour chaque taille de bulle, la profondeur de visibilité  $prof_v(r)$  est calculée. En effet les bulles les plus petites sont visibles sur une profondeur plus faible que les plus grosses.



Figure 24 : Détermination du rayon estimé en fonction du rayon apparent et du flou mesuré.

# 1.7.3.2 Caractérisation du nuage par moyens optiques.

La caméra est plongée dans le nuage, au plus proche des capteurs acoustiques. La fréquence de prise de vue est telle que d'une photo à l'autre, les bulles visibles aient été entièrement renouvelées par des nouvelles. Chaque histogramme est construit en utilisant entre 100 et 300 photos comme celle de la Figure 25.



Figure 25 : Macrographie du nuage.

Chaque image est filtrée successivement par des filtre Laplacien de Gaussienne de taille caractéristiques croissantes  $\sigma_{LoG}$  différentes, afin de construire une représentation 3D espace-échelle  $(x, y, \sigma_{Log})$  où les maximas locaux sont assimilables à la présence d'une bulle de rayon  $r_a = \sigma_{LoG}\sqrt{2}$ .

Pour chaque bulle présentant une réponse au filtrage suffisamment importante – c'est-à-dire les bulles les plus nettes – une analyse locale de la luminosité permet la détermination du flou relatif

$$F = \frac{d_{flou}}{r_a} \tag{1-12}$$

où  $d_{flou}$  est la distance entre les deux traits rouges de la Figure 26. Ces derniers sont déterminés par seuillage de la luminosité.



<u>Figure 26 : Analyse locale de la luminosité autour d'une bulle. La barre verte indique le rayon  $r_a$  estimé de la bulle.</u> <u>Les barres rouge positionnent le début et la fin de la zone de transition et permettent de quantifier le flou.</u>

En utilisant la caractérisation précédemment effectuée, cette mesure brute du rayon est affinée afin de prendre en compte l'impact du flou. Le vecteur des rayons est alors complété de cette nouvelle mesure.

Une fois toutes les bulles de toutes les images mesurées, le taux de vide optique est calculé :

$$\tau_{optique} = \frac{4}{3}\pi \sum_{bulles} \frac{r^3}{S(r). prof_v(r)'}$$
(1-13)

où  $S(r) = (L - r) \cdot (H - r)$  est la surface de détection possible d'une bulle de rayon r dans une image de taille  $L \times H$ .  $prof_v(r)$  est une fonction issue de la calibration de la caméra qui donne la profondeur de visibilité d'une bulle de rayon r.

### 1.7.3.3 Validation

Afin de valider les valeurs de taux de vide obtenues optiquement, nous avons mené en parallèle des mesures de la célérité acoustique à basse fréquence afin de remonter à une valeur de taux de vide grâce au modèle de Wood (cf. Chapitre 2 § 2.2.1).

Comme nous le montre la Figure 27, cet algorithme permet d'estimer un taux de vide très proche de ce que le modèle de Wood donne. En début d'expérience, les injecteurs CARMIN sont alimentés par deux pompes en séries ce qui permet la génération d'un nuage présentant un taux de vide relativement stable et important. On note cependant que d'une photo à une autre, le taux de vide calculé évolue grandement du fait du faible nombre de bulles présentes sur chaque photo. Cependant, on obtient une valeur moyenne cohérente avec les mesures acoustiques au bout de quelques photos. Ensuite, au bout d'une minute, une des pompes est arrêtée ce qui entraine une diminution rapide de la pression d'injection en eau et donc entraine une diminution du taux de vide. Encore une fois, les valeurs acoustiques et optiques sont cohérentes. Enfin, au bout d'une minute encore, la première pompe est rallumée ce qui rétabli le taux de vide à son niveau d'origine.

#### Chapitre 1 - Problématique industrielle



Figure 27 : Comparaison de la mesure de taux de vide "acoustique" et "optique" ;

Ceci donne confiance dans la capacité de cet algorithme optique à donner une estimation du taux de vide, même lorsque celui-ci est aussi faible que  $10^{-6}$ .

Pour ce qui est de l'histogramme obtenu, la méthode présentée ici a été confrontée à une autre utilisant la détection de contours (Figure 28).



Figure 28 : Comparaison des distributions obtenues en utilisant des filtres Laplacien de Gaussienne et des détections de contours.

Les deux histogrammes sont très proches. Cependant, la possibilité de prise en compte des bulles floues par les filtres LoG permet de détecter un nombre bien plus important de bulles pour un même nombre de photos. Ici, 1363 bulles contre 548 pour la détection de contours.

# 1.7.4 Conclusion

Le banc expérimental permet donc la création de nuages de bulles ajustables ainsi que leurs caractérisations simultanées par mesures optiques et acoustiques. 3 technologies permettent la génération de microbulles. Les 2 premières créent des bulles dont les rayons suivent globalement une loi log normale alors que la troisième permet la génération de bulles de taille unique et ajustable en modifiant la pression d'air injectée.

Le dispositif de contrôle optique permet la détermination de la distribution des rayons des bulles ete du taux de vide du nuage. Ces données seront confrontées aux résultats de l'inversion des mesures d'atténuation et de célérité présentés aux chapitres 3 et 4.

# 1.8 CONCLUSION DU PREMIER CHAPITRE

L'engazement du sodium primaire des RNR-Na constitue une large problématique « ouverte » du fait de la complexité des phénomènes mis en jeu et de la sous-évaluation pendant de nombreuses années de l'impact des bulles sur le fonctionnement et en particulier la contrôlabilité d'un réacteur.

A ce jour, les études effectuées sur Superphénix [10], [19] ont montré que la dissolution d'argon dans le collecteur chaud (Sodium à  $\approx 550^{\circ}C$ ) puis la nucléation de bulles dans le collecteur froid (Sodium à  $\approx 400^{\circ}C$ ) serait responsable à 80% de l'engazement. Les 20% restants étant dus aux effets d'entrainement et dans une moindre mesure aux réactions neutroniques. Bien qu'il soit possible de réduire le volume de gaz entrainé en adaptant la géométrie du circuit primaire, il sera impossible d'empêcher la dissolution de gaz dans le collecteur chaud. En effet, la présence de l'argon en couverture étant indispensable permet la dilation du sodium entre les phases d'arrêt et de fonctionnement du réacteur. Il est donc impossible de supprimer totalement la présence de bulles dans le circuit primaire.

Ces bulles ont de nombreuses incidences sur le fonctionnement du cœur, et notamment sa contrôlabilité. En effet, comme il sera détaillé au Chapitre 2, les bulles ont un fort impact sur les propriétés acoustiques du milieu qu'elles occupent. Or, le sodium étant un métal opaque, les méthodes de contrôle ultrasonores, telles que le VISUS, sont privilégiées. On comprend alors aisément pourquoi la présence de ces bulles, si elle n'est pas caractérisée, peut être problématique. La modification de l'acoustique du milieu n'est cependant pas le seul effet des bulles sur la physique du réacteur. Celles-ci ont de plus une forte influence sur la naissance et l'intensité des phénomènes de cavitation et d'ébullition. De plus, en cas d'engazement accidentel important, les bulles peuvent altérer les transferts thermiques et neutroniques au sein du cœur. Enfin, des perturbations mécaniques au niveau des échangeurs et des pompes sont possibles.

En conséquence, la modélisation de l'engazement dès la phase de conception d'un SFR semble indispensable, surtout dans le cas d'ASTRID. En effet, ce réacteur de la 4<sup>ème</sup> génération doit répondre aux questions de suretés accrues parmi lesquelles celle de l'engazement ne saurait être absente. A ce jour, seul le code VIBUL et les retours d'expériences des précédents réacteurs permettraient d'estimer quel sera l'engazement d'ASTRID. Or, VIBUL n'a jamais pu être validé par des mesures directes ; les seules estimations expérimentales ont été effectuées à partir de mesures indirectes pour lesquelles les modèles utilisés conditionnent les résultats de l'estimation. La caractérisation de l'engazement permettra donc, d'une part, de valider ces codes et modèles et d'autre part, d'assurer la fiabilité des

mesures ultrasonores effectuées lors des contrôles en fonctionnement, ainsi que la détection d'éventuels incidents affectant l'engazement.

# CHAPITRE 2 ACOUSTIQUE DES BULLES

Ainsi, pour des raisons de rendement, de contrôle et de surveillance, il est nécessaire de caractériser le nuage de bulles présent de manière normale et continu dans le circuit primaire des RNR-Na. Du fait de l'opacité du sodium et de l'incidence des bulles sur les propriétés acoustiques du milieu, les méthodes de caractérisations acoustiques semblent particulièrement adaptées. Dans ce but, il est tout d'abord utile de comprendre l'interaction entre les bulles et les ondes de pression.

En raison de la forte rupture d'impédance entre le liquide et le gaz, une bulle interagit fortement au passage d'une onde de pression. Les interactions entre ondes de pressions et bulles donnent lieu à des phénomènes complexes et importants (diffusion multiple, atténuation, résonance, changement de phases, etc.), ce qui fait de l'étude de l'acoustique des bulles un sujet particulier de la thermodynamique en général.

L'étude de l'acoustique des bulles n'est pas nouvelle (Mallock 1910 [24], Rayleigh 1917 [25]). En 1930 Wood [26] donne les fondements de cette discipline, utilisée dans de nombreuses applications :

- Océanographie : étude de l'impact de l'engazement des couches supérieures de l'océan sur l'acoustique sous-marine et les échanges océans-atmosphère, détection de navires...
- Médecine : Utilisation d'agents de contrastes pour échographies ; détection d'embolies gazeuses ; administrations intracellulaires de drogues ...
- Industrie : Cavitation, Sono chimie, nettoyage industriel, stérilisation, soudage, pétrochimie...

Dans ce chapitre les équations qui régissent la dynamique d'une bulle sont tout d'abord détaillées. Dans un second temps, l'acoustique linéaire des milieux bulleux est précisée avant d'introduire l'acoustique non linéaire de tels milieux.

# 2.1 DYNAMIQUE DES BULLES

Afin de mieux appréhender l'impact d'un nuage de bulle sur la propagation d'une onde acoustique, il est nécessaire de comprendre en premier lieu comment réagit une bulle à une variation de pression.

Dans un second temps, lorsque la variation de pression est de faible amplitude, nous extrairons un modèle de dynamique linéarisé.

# 2.1.1 Dynamique non linéaire des bulles

# 2.1.1.1 Modes de résonances

En raison de la différence de compressibilité entre le gaz et le liquide, une bulle soumise à un champ acoustique se met à osciller en faisant apparaitre une infinité de modes à sa surface, dont les premiers sont représentés sur la figure ci-dessous:



Figure 29 : Déplacement de la surface de la bulle suivant les premiers modes de résonance [27].

Le mode fondamental n=0, qui correspond à une oscillation sphérique de la bulle, est le mode dominant (Figure 30) résultant des variations volumiques de la bulle. En effet, les modes d'ordres supérieurs qui oscillent à des fréquences bien supérieures émettent, en champ lointain, des ondes d'amplitudes extrêmement réduites en comparaison du fondamental aussi nommé « mode respirant ». En pratique, les modes d'ordres supérieurs sont très difficiles à mesurer et sont légitimement négligés en première approximation. En conséquence, de nombreux modèles de dynamique de bulle admettent l'hypothèse d'oscillations purement sphériques.



Le mode n=0 est largement prédominant.

Les modèles usuels d'évolution du rayon d'une bulle soumise à une variation de pression sont détaillés ci-après. Ils permettent sous l'hypothèse d'une symétrie sphérique d'atteindre différents degrés de réalisme.

#### 2.1.1.2 <u>Modèle non-linéaire de la dynamique des bulles</u>

Les oscillations des bulles soumises à une onde de pression d'intensité suffisante sont fortement non linéaires. La modélisation de l'évolution du rayon de cette bulle a été effectuée avec plusieurs degrés de précision. Les modèles les plus communément employés sont détaillés ci-après. La bulle est considérée comme conservant sa symétrie sphérique, n'ayant de fait que le rayon comme degré de liberté.

Soit une bulle de rayon au repos  $R_0$  dans un fluide incompressible soumis à un champ acoustique incident P(t). Compte tenu de la pression hydrostatique  $p_0$ , la pression mesurée loin de la bulle équivaut à  $p_{\infty} = p_0 + P(t)$ .

Le premier modèle proposé par **Rayleigh** en 1917 [25] identifie, sous l'hypothèse d'un fluide incompressible, le potentiel des vitesses  $\phi$  (et la vitesse particulaire  $u = \frac{\partial \phi}{\partial r}$ ) à une solution monopolaire de l'équation de Laplace :

$$\phi = -\frac{R^2 \dot{R}}{r}; \quad u = \frac{R^2 \dot{R}}{r^2}.$$
 (2-1)

Le théorème de Bernoulli stipule que :

$$\frac{p}{\rho} + \frac{u^2}{2} + \frac{\partial \phi}{\partial t} = cste.$$
(2-2)

En se plaçant en  $u \to 0, p \to p_{\infty}, r = R(t)$ , il vient :

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho}(p_{int} - p_{\infty}), \qquad (2-3)$$

où  $p_{int}$  est la pression à l'intérieur de la bulle. Cette valeur dépend de plusieurs phénomènes qui sont détaillés ci-après.

Une amélioration de cette équation, donnée par **Plesset** en 1949 [29], permet de prendre en compte le comportement polytropique du gaz ainsi que la pression de vapeur  $p_v$  à l'intérieur de la bulle. La température est supposée constante et uniforme, le liquide est toujours incompressible, et les pertes dues au rayonnement acoustiques sont négligées. On a alors :

$$p_{int} = (p_0 - p_v) \left(\frac{R_0}{R}\right)^{3\kappa} + p_v,$$
(2-4)

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^{2} = \frac{1}{\rho} \left( (p_{0} - p_{\nu}) \left(\frac{R_{0}}{R}\right)^{3\kappa} + p_{\nu} - p_{\infty}(t) \right),$$
(2-5)

avec:  $\kappa = coefficient \ polytropique \ du \ gaz = \begin{cases} 1 \ si \ isotherme \\ \gamma \ si \ adiabatique \end{cases}$ 

Noltingk, Neppiras et Poritsky ont tour à tour affiné le modèle en considérant respectivement les effets de la tension superficielle  $\sigma$  et de la viscosité  $\mu$ . On aboutit alors au modèle **RPNNP** [30] :

$$\rho R\ddot{R} + \frac{3}{2}\rho \dot{R}^2 = \left(p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} - p_v\right) \left(\frac{R_0}{R}\right)^{3\kappa} - \frac{2\sigma}{R_0} - \frac{4\mu}{R}\dot{R} + p_v - p_{\infty}(t).$$
(2-6)

Jusqu'ici, le rayonnement acoustique de la bulle n'était pas pris en compte, le fluide étant considéré comme incompressible ( $c \rightarrow \infty$ ). Cette approximation est acceptable tant que la vitesse de la paroi de la bulle est faible devant la célérité du son dans le liquide. Le potentiel de vitesse  $\Phi$  est alors le même qu'en l'absence de bulles. Cependant, lorsque cette hypothèse n'est plus valable, il faut adjoindre un terme correctif [31] :

$$\begin{cases} \Phi = \Phi_{\infty}(t) - \frac{1}{r}F\left(t - \frac{r}{c}\right) \approx \Phi_{\infty}(t) - \frac{1}{r}F(t) + \frac{\dot{F}(t)}{c}. \\ F(t) = R^{2}\dot{R} \end{cases}$$
(2-7)

Le terme de radiation est du même ordre que  $|\dot{R}/c|$ . Si  $|\dot{R}/c| \ll 1$ , on retrouve l'équation de Rayleigh-Plesset. Cependant, dans le cas de grandes oscillations ( $R_{maximun}/R_0 > 2$ ,  $\dot{R} > 0.01 * c$ ), il est nécessaire de prendre en compte la radiation acoustique.

On obtient alors une équation de la forme :

$$\rho\left(R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^{2}\right) = (p_{B}(t) - p_{0}) + \rho c_{l}\frac{d^{2}}{dt^{2}}(R^{2}\dot{R}), \qquad (2-8)$$

$$p_B(t) = \left(p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} - p_v\right) \left(\frac{R_0}{R}\right)^{3\kappa} - \frac{2\sigma}{R_0} - \frac{4\mu}{R}\dot{R} + p_v - p_{\infty}(t),$$
(2-9)

 $p_B(t)$  étant la pression qu'il règnerait à la position du centre de la bulle, si la bulle était absente.

Avec la prise en compte de la radiation, l'ordre de l'équation de Rayleigh-Plesset passe à 3 [32]. Or, on n'impose comme conditions initiales que  $R(t = 0) = R_0$  et une condition sur  $\dot{R}$ , mais pas sur  $\ddot{R}$ . Cependant, l'équation (2-8) a une solution instable qui croît exponentiellement, ce qui est physiquement impossible. Il est donc nécessaire de choisir  $\ddot{R}(t = 0)$  de manière à éviter cette solution. Un moyen de corriger ce défaut est de calculer le terme  $\frac{d^2}{dt^2}(R^2\dot{R})$  en utilisant l'équation de Rayleigh-Plesset. On obtient alors par exemple l'équation de **Keller-Miksis** [33] :

$$\begin{cases} \left(1 - \frac{\dot{R}}{c}\right)R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^{2}\left(1 - \frac{\dot{R}}{3c}\right) = \left(1 + \frac{\dot{R}}{c}\right)\frac{p_{B}(t)}{\rho} + \frac{R}{\rho c}\dot{p}_{B}(t) \\ p_{B}(t) = \left(p_{0} + \frac{2\sigma}{R_{0}} - p_{v}\right)\left(\frac{R_{0}}{R}\right)^{3\kappa} - \frac{2\sigma}{R_{0}} - \frac{4\mu}{R}\dot{R} + p_{v} - p_{\infty}(t) \end{cases}$$
(2-10)

Un autre modèle, couramment cité, est celui de **Gilmore** [34] qui utilise la différence d'enthalpie à la paroi à la place de la pression :

$$\begin{cases} \left(1 - \frac{\dot{R}}{c}\right)R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^{2}\left(1 - \frac{\dot{R}}{3c}\right) = \left(1 + \frac{\dot{R}}{c}\right)H(t) + \frac{R}{c}\dot{H}(t)\left(1 - \frac{\dot{R}}{c}\right) \\ H(t) = \frac{n}{n-1}\frac{(B+1)^{\frac{1}{n}}}{\rho_{l}}\left[\left(p_{B}(t) + B\right)^{\frac{n-1}{n}} - \left(p_{\infty} + B\right)^{\frac{n-1}{n}}\right] , \qquad (2-11) \\ c^{2} = c_{l}^{2} + (n-1)H \end{cases}$$

où :

- H est la différence d'enthalpie du liquide entre la paroi de la bulle et à l'infini.
- *B* et *n* sont des paramètres issus du modèle de Tait [32] :

$$\frac{p+B}{p_0+B} = \left(\frac{\rho}{\rho_l}\right)^n.$$
(2-12)

Pour l'eau, dans les conditions normales :  $n \approx 7,15$ ;  $B \approx 3049,13$  bars.

Il est à noter que la célérité du son *c* n'est plus considérée comme constante, mais dépend de l'enthalpie.

Prosperetti et Lezzi [32] montrent que l'utilisation de l'enthalpie comme variable plutôt que la pression permet de supprimer une source d'erreur près des points où le rayon est minimum. Ils ont donc retrouvés les équations de Keller-Miksis et celles de Gilmore, mais en utilisant l'enthalpie.

Popinet et Zaleski [35] ont comparé la décroissance libre d'une bulle, étirée à 2 fois son rayon initial, simulée par un modèle type Rayleigh-Plesset et par la résolution numérique des équations de Navier-Stokes. Ils ont trouvé un écart de seulement 1%. Cela montre la grande précision de ces modèles. Théoriquement, ces modèles sont valables jusqu'à l'ordre 1, où le paramètre du développement est le nombre de Mach de la paroi de la bulle.

Ces modèles ne sont plus valables dans les cas les plus extrêmes, comme en sonoluminescence<sup>\*</sup> par exemple. Dans ces cas précis, une définition plus précise de la pression interne de la bulle est nécessaire. Celle-ci nécessite la prise en compte des effets thermiques via l'ajout de deux nouvelles équations [36], qu'il faudra résoudre en même temps que l'équation d'évolution du rayon. Cela a pour conséquence d'augmenter la complexité et le temps des calculs. Cependant, nos applications n'entrent pas dans ce cadre.

Une manière de prendre en compte l'impact des effets thermiques de manière plus précise est d'ajouter une « viscosité thermique » purement artificielle [36]:

$$\mu_{th} = \left(\frac{p_0}{4\omega_0}\right) \operatorname{Im}\left(\Phi(\omega_0)\right) \tag{2-13}$$

$$\Phi(\omega) = \frac{3\gamma}{1 - 3(\gamma - 1)i\chi\left(\left(\frac{i}{\chi}\right)^{\frac{1}{2}} \coth\left(\left(\frac{i}{\chi}\right)^{\frac{1}{2}}\right) - 1\right)},$$
(2-14)

avec  $\chi = \frac{D}{\omega R^2}$ , D étant la diffusivité thermique.

Ces équations révèlent le comportement fortement non linéaire de la réponse d'une bulle, et donc de l'incidence induite sur la (non-)linéarité des milieux diphasiques.

Si on développe l'équation RPNNP pour l'exprimer en termes de volume et non de rayon, on obtient une équation de la forme :

<sup>\*</sup> La sonoluminescence est le phénomène par lequel des photons sont émis lors de l'effondrement violent d'une bulle de gaz soumise à des ultrasons de forte amplitude.

$$\ddot{V} + \delta\omega\dot{V} + \omega_0^2 V + \frac{4\pi R_0}{\rho_0} P(t)$$

$$= \frac{(\gamma + 1)\omega_0^2}{2V_0} V^2 + \frac{1}{6V_0} \Big( 2V\ddot{V} + (\dot{V})^2 + 2\delta\omega V\dot{V} \Big),$$
(2-15)

où  $\delta = \delta_{rad} + \delta_{th} + \delta_{vis}$  est la constante d'amortissement ( cf. § 2.1.2.2).

Cette équation permet de mettre en évidence la contribution non linéaire de la loi d'état du gaz d'une part, et de la réponse dynamique de la bulle d'autre part. La prise en compte des effets de rayonnements implique l'ajout du terme  $-R_0 \ddot{V}/c_0$ .

### 2.1.1.3 Signature de la non linéarité.

La non linéarité des bulles associée aux dissipations visqueuses fait émerger des phénomènes intéressants tels que l'apparition d'hystérésis et de chaos.

Si on trace l'amplitude du fondamental en fonction de la fréquence réduite  $\omega/\omega_{res}$  (notée  $\omega/\Omega$  sur la Figure 31), on observe un phénomène de saut illustré par la Figure 31. Pour une excitation à fréquence croissante, l'amplitude de la réponse suivra le chemin 5 – 4 – 3' – 2 - 1 ; alors qu'a fréquence décroissante, elle suivra le chemin 1 – 2 – 3 – 4 – 5 ; Ceci illustre le caractère non linéaire hystérétique d'une bulle résonnante.



et illustration des phénomènes de saut [37].

De plus on observe un décalage de la fréquence de résonance lorsqu'on augmente la pression d'insonnification (Figure 32).

Pour expliquer ces phénomènes, Parlitz et Lauterborn [38] [39] notamment ont appliqué des méthodes issues de la théorie du chaos aux bulles afin de mieux comprendre leurs comportement dynamique et l'influence des différents paramètres : rayon au repos, pression et fréquence d'insonnification. Ils ont mis en évidence le comportement chaotique des oscillations des bulles, notamment à l'approche de la fréquence de résonance. Ces oscillations montrent alors une forte dépendance aux conditions initiales.



et à différentes pressions d'insonnification. [38]

# 2.1.2 Linéarisation

Dans certains cas, l'amplitude de l'onde de pression peut être considérée comme modérée. On peut alors linéariser les équations régissant la dynamique des bulles en posant  $R(t) = R_0(1 + x(t)), x \ll 1$ .

### 2.1.2.1 <u>Fréquence de résonance</u>

La linéarisation de l'équation de Rayleigh-Plesset (2-4(2-5) conduit à l'équation harmonique :

$$\ddot{x} + \omega_0^2 x = -\frac{p(t)}{\rho_{liq} R_0^2},$$
(2-16)

où  $f_M = 2\pi\omega_0$  est appelée fréquence de Minnaert :

$$f_M = \frac{1}{2\pi R} \sqrt{\frac{3\gamma p_0}{\rho_{liq}}}.$$
(2-17)

Cette expression fut donnée par Minnaert en 1933 [40] en supposant que la bulle oscille de manière radiale et adiabatique autour de son rayon d'équilibre  $R_0$  et en égalant l'énergie potentielle du gaz comprimé avec l'énergie cinétique du liquide qui l'entoure.

Cette valeur fut validée expérimentalement en mesurant la tonalité émise par une bulle se détachant du tube d'injection et en mesurant son volume a postériori.

Cette fréquence correspond à la fréquence naturelle d'une bulle dont la tension superficielle est négligeable, c'est-à-dire des bulles dont le rayon est au moins de quelques dizaines de microns. Dans ce cas, la fréquence de Minnaert est une bonne approximation de la fréquence de résonance des bulles.

On remarque notamment qu'à pression et température fixées, celle-ci est inversement proportionnelle au rayon de la bulle et :

 Dans le cas de bulles d'argon en sodium à 500°C et 1 bar (condition à l'interface sodium-argon d'un SFR):

$$f_M \times R_0 = 3.76 [kHz.mm]$$

 Dans le cas de bulles d'argon en sodium à 450°C et 5 bars (condition à l'entrée du cœur d'un SFR):

$$f_M \times R_0 = 8.38 \ [kHz.mm]$$

Dans le cas de bulles d'air en eau à 20°C et 1 bar (conditions expérimentales):

$$f_M \times R_0 = 3.26 \ [kHz.mm]$$

En linéarisant l'équation RPNNP (2-6) on obtient une équation harmonique amortie dont la fréquence de résonance est :

$$f_{res} = \frac{1}{2\pi R_0 \sqrt{\rho}} \left( 3\gamma \left( p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} - p_v \right) - \frac{2\sigma}{R_0} - \frac{4\mu^2}{\rho R_0^2} \right)^{\frac{1}{2}}.$$
 (2-18)

Cette équation ne considère l'amortissement comme provenant que de la viscosité du liquide. Or, comme nous le verrons ensuite, il est nécessaire de prendre aussi en compte les effets thermiques et radiatifs pour étudier les oscillations d'une bulle.

Commander et Prosperetti [41] proposent une expression de la pulsation propre d'une bulle en linéarisant l'équation de Keller-Miksis (2-10) :

$$\omega_0^2 = \frac{P_0}{\rho_{liq} R_0^2} \left( Re(\Phi) - \frac{2\sigma}{R_0} \right),$$

$$\Phi = \frac{3\gamma}{1 - 3(\gamma - 1)iX \left[ \left(\frac{i}{X}\right)^{\frac{1}{2}} \coth\left(\frac{i}{X}\right)^{\frac{1}{2}} - 1 \right]},$$

$$X = \frac{D}{\omega R_0^{2}},$$
(2-19)

où *D* est la diffusivité thermique du gaz et  $i^2 = -1$ .  $\Phi$  est un terme qui quantifie la transition entre une réponse isotherme et une réponse adiabatique.

L'équation obtenue par Commander et Prosperetti n'est pas à proprement parler une équation harmonique puisque les termes normalement constants dépendent de la fréquence d'excitation. Pour retrouver la fréquence réelle de résonance, il est alors nécessaire de travailler par itération.

Notons que contrairement à de nombreux systèmes mécaniques, la longueur d'onde à la résonance est bien plus grande que la taille de la bulle concernée. Par exemple, pour une bulle d'argon dans du sodium à 450°C et 5 bars, il existe un facteur 300 entre la longueur d'onde et le rayon de la bulle.

### 2.1.2.2 <u>Amortissement</u>

Supposons que le rayon d'une bulle oscillante soit régit par l'équation harmonique suivante :

$$\ddot{x} + 2\beta \dot{x} + \omega_0^2 x = F e^{i\omega t}.$$
(2-20)

C'est à Devin [42] qu'on doit la première étude sur l'amortissement des bulles à la résonance. Il définit coefficient d'amortissement total  $\delta = 2\beta/\omega = 1/Q$ , où Q est le facteur de qualité, comme étant la somme des coefficients d'amortissement thermique, radiatif et visqueux (Figure 33) :

$$\delta = \delta_{th} + \delta_{rad} + \delta_{vis}.$$
 (2-21)

L'étude de Devin se limitait au cas de bulles résonnantes, Medwin [43] étendit la portée des résultats [44] :

$$\delta = \frac{4\mu}{\rho_{liq}R_0^2\omega} + \frac{3(\gamma - 1)}{\chi} \cdot \zeta(\chi) \cdot \frac{K}{\omega^2} + \frac{\omega R_0}{c_{liq}},$$
(2-22)

où  $\chi = R_0 (2\omega/D)^{1/2}$  est le rapport entre la taille de la bulle et la longueur caractéristique de diffusion thermique et :

$$\zeta(\chi) = \frac{\sinh(\chi) + \sin(\chi) - \frac{2(\cosh(\chi) - \cos(\chi))}{\chi}}{\cosh(\chi) - \cos(\chi) + 3(\gamma - 1)(\sinh(\chi) - \sin(\chi))}.$$
(2-23)



Figure 33 : Composantes de la constante d'amortissement  $\delta$ à la résonance pour différentes fréquences.

### 2.1.3 Conclusion sur la dynamique des bulles

La dynamique des bulles fait intervenir des phénomènes complexes, mais qui sont néanmoins relativement bien modélisés aujourd'hui, tant que l'on se limite à l'étude du mode respirant. La linéarisation des équations régissant l'évolution du rayon en fonction de la pression met en évidence la

fréquence de résonance des bulles. Cette fréquence est en première approximation inversement proportionnelle au rayon de la bulle, ce qui est intéressant dans une optique de caractérisation. Ensuite, c'est à cette fréquence que les effets de l'acoustique sur les bulles se font le plus ressentir. C'est donc à cette fréquence que les effets des bulles sur la propagation d'une onde devraient être les plus importants.

# 2.2 ACOUSTIQUE LINEAIRE DES MILIEUX BULLEUX

Nous avons vu pour le moment l'effet de variations de pressions sur une bulle isolée. Mais quel est l'impact d'un nuage de bulles sur la propagation d'une onde ?

# 2.2.1 Modèle de Wood

Afin de déterminer les caractéristiques acoustiques d'un nuage de bulle, une des premières possibilités est de considérer le milieu liquide + bulles comme un milieu homogène dont la masse volumique  $\rho_m$  et la compressibilité  $\chi_m$  sont fonctions du taux de vide  $\tau$  et des masses volumiques et compressibilités du liquide et du gaz :

$$\rho_m = (1 - \tau)\rho_{liq} + \tau. \rho_{gaz},$$

$$\chi_m = (1 - \tau)\chi_{liq} + \tau. \chi_{gaz}.$$
(2-24)

Comme dans un liquide la célérité du son c est donnée par :

$$c = \frac{1}{\sqrt{\rho\chi}},\tag{2-25}$$

et en considérant que dans le cas de bulles de gaz dans un liquide :

$$\rho_{liq} \gg \rho_{gaz} \text{ et } \chi_{gaz} \gg \chi_{liq}, \qquad (2-26)$$

on obtient une relation directe entre la célérité du son  $c_m$  du milieu équivalent et le taux de vide de ce milieu :

$$\frac{1}{c_m^2} = \frac{\tau^2 \gamma}{c_{gaz}^2} + \frac{(1-\tau)^2}{c_{liq}^2} + \tau (1-\tau) \left(\frac{\rho_{liq}}{p_0} + \rho_{gaz} \chi_{liq}\right),$$
(2-27)

où  $\gamma$  est le coefficient isentropique du gaz. Cette relation, appelée modèle de Wood [26] permet de tracer la célérité du son en fonction du taux de vide (Figure 34) :



Figure 34 : Célérité du son en fonction du taux de vide pour des bulles d'argon en sodium à 500°C sous 1 bar et des bulles d'air en eau à 20°C sous 1 bar.

Pour un taux de vide de 10<sup>-6</sup>, c'est-à-dire 0.0001% de volume de gaz par volume de liquide, la célérité du sodium passe de 2316 m/s à 2265 m/s, soit une réduction d'environ 3%, tandis que la célérité de l'eau passe de 1482 m/s à 1467 m/s, ce qui correspond à une variation de 1% de la célérité du milieu. La célérité du milieu équivalent atteint un minimum pour un taux de vide de 0.5, ce qui est très largement supérieurs aux taux de vides attendus en réacteur.

Ainsi, en mesurant la célérité du son, il est possible d'estimer le taux de vide du milieu sondé. Par ailleurs, ces variations de célérité rendent impossible l'utilisation de méthodes ultrasonores basées sur des mesures de temps de vol en milieux bulleux lorsque le taux de vide est inconnu. Et même si une caractérisation est effectuée au préalable, de faibles variations de taux de vide induisent de fortes variations de vitesse de propagation ce qui fausse ces mesures de temps de vol.

Cependant, la mesure de la célérité basse fréquence nécessite de connaitre *a priori* la taille des plus grosses bulles du nuage afin de faire en sorte que la fréquence de mesure soit largement inférieure à la fréquence de résonance des plus grosses bulles. Ensuite, en environnement confiné, comme en réacteur, des réflexions sur les parois proches peuvent altérer la mesure. Enfin, des transducteurs basses fréquences sont bien souvent plus gros et leur dimension peuvent être incompatible avec une application nucléaire. Par exemple, l'un des rares transducteurs piézoélectriques fonctionnant à 6kHz, le YC 1037 de Teledyne RESON, pèse 6 kg pour 20cm de longueur. Des capteurs électrodynamiques seraient plus appropriés, mais l'adaptation au sodium liquide est encore à faire.

## 2.2.2 Section efficace acoustique

Afin de quantifier l'interaction entre une particule et un champ acoustique incident, on définit les sections efficaces de diffusion ( $\sigma_s$ ) et d'extinction ( $\sigma_e$ ) comme étant le rapport entre la puissance diffusée ou perdue par l'intensité incidente d'une onde plane [45] :

$$\sigma_{s} = \frac{P_{d}}{I_{s}} = \frac{4\pi}{9} k^{4} R^{6} \left[ \left( \frac{\chi_{d} - \chi}{\chi} \right)^{2} + \frac{1}{3} \left( \frac{3(\rho_{d} - \rho)}{2\rho_{d} + \rho} \right)^{2} \right],$$
(2-28)

où *k* est le nombre d'onde, *R* est le rayon de la particule,  $\chi_d$  et  $\chi$  sont respectivement la compressibilité de la particule et du milieu, et  $\rho_d$  et  $\rho$  sont respectivement la densité de la particule et du milieu.

Dans le cas des bulles :

$$\sigma_s = \frac{4\pi R_0^2}{\left(\frac{\omega_{res}^2}{\omega^2} - 1\right)^2 + \delta^2},\tag{2-29}$$

$$\sigma_e = \sigma_s + \sigma_a = \frac{4\pi R_0^2}{\left(\frac{\omega_{res}^2}{\omega^2} - 1\right)^2 + \delta^2} \times \frac{\delta}{\frac{\omega R_0}{c_{liq}}},$$
(2-30)

où  $\sigma_a$  est la section efficace d'absorption qui quantifie la portion d'énergie transformée en chaleur. La somme des sections de diffusion et d'absorption constitue la section d'extinction.

La Figure 35 montre l'effet de la résonance sur  $\sigma_e$ . A une fréquence d'insonnification de 300 kHz, une bulle de 11 µm de rayon a la même section efficace d'extinction qu'une bulle de 741 µm. En cas d'exploitation de cette section efficace pour tenter de déterminer la taille d'une bulle, ceci amène une ambiguïté qui peut être levée avec une connaissance *a priori* de la gamme de rayon des bulles. Mais deux bulles de rayons différents présentant la même section efficace d'extinction ne seront pas différenciées acoustiquement.



Figure 35 Section efficace d'extinction  $\sigma_e$  et section géométrique S pour une fréquence de 300 kHz.

A la résonance, la section efficace de diffusion est  $4/\delta^2$  fois plus importante que la section géométrique de la bulle, ce qui explique l'intérêt de méthodes acoustiques pour caractériser des microbulles. Par exemple, une bulle de 30 µm de rayon à sa fréquence de résonance aura une section de diffusion 400 fois plus importante que sa section géométrique [46].

### 2.2.3 Atténuation et célérité

# 2.2.3.1 Équations générales

En posant N(a) = nombre de bulles de rayons compris entre a et a + da par unité de volume, la section efficace d'extinction permet de déterminer l'atténuation par [47] :

$$A = 10\log(e) \int_0^\infty \sigma_e N(a) da.$$
 (2-31)

Il est aussi possible de déterminer une expression de l'atténuation et de la célérité du milieu diphasique en déterminant le nombre d'onde complexe  $\underline{k}_m$  associé. Commander et Prosperetti [41] déterminent son expression en linéarisant l'équation de Keller-Miksis (eq. (2-10)). Ils obtiennent alors une expression pour le nombre d'onde complexe :

$$\underline{k}_{m}^{2} = \frac{\omega^{2}}{c_{liq}} + 4\pi\omega^{2} \int_{0}^{\infty} \frac{aN(a)}{\omega_{res}^{2} - \omega^{2} + 2i\beta\omega} da, i^{2} = -1.$$
(2-32)

Alors, en posant :

$$\underline{c}_m = \frac{\omega}{\underline{k}_m},$$

et

$$\frac{c_{liq}}{\underline{c}_m} = u - iv$$

et en remarquant que :

$$e^{i(\omega t - \underline{k}_m x)} = e^{-\frac{\omega v}{c_{liq}}x} e^{i\omega \left(t - \frac{u}{c_{liq}}x\right)},$$

on en déduit l'atténuation :

$$A = 20\log(e)\left(\frac{\omega v}{c_{liq}}\right),\tag{2-33}$$

et la célérité dans le milieu :

$$V = \frac{c_{liq}}{u}.$$
 (2-34)

L'atténuation et la célérité au sein d'un nuage de bulles dépendent de la granulométrie des bulles en présence. En inversant ces équations, la distribution des bulles pourra être obtenue à partir de mesures d'atténuation et de célérité.

Dans les calculs précédents, l'influence du nuage global sur la réponse de la bulle a été négligée. En suivant l'hypothèse de Foldy [48], la bulle est considérée isolée. En pratique, dans le cas de nuages polydisperses aux taux de vides considérés, il est peu probable que deux bulles de rayons voisins soient suffisamment proches pour interagir entre elles. En effet, l'interaction est beaucoup moins conséquente entre deux bulles de tailles différentes. Ainsi, dans les modèles développés ultérieurement, le nuage de

bulles étant *a priori* polydisperse et les taux de vides faibles, la multidiffusion ne sera pas prise en compte.

# 2.2.3.2 <u>Illustration de l'impact du taux de vide et des rayons des</u> bulles sur les courbes de dispersions.

L'impact du taux de vide et de la distribution sur les courbes de dispersions est effectué en utilisant les équations (2-33) et (2-34).

## 2.2.3.2.1 Populations monodisperses

Dans ce paragraphe, la réponse d'un nuage monodisperse, c'est-à-dire que les bulles ont toutes la même taille, à un champ acoustique est présentée.

Les courbes de la Figure 36 et de la Figure 37 ont été tracées avec un taux de vide constant de 10<sup>-5</sup>.

Le pic d'atténuation a lieu autour de la fréquence de résonance de la bulle. A très hautes fréquences, la célérité du milieu diphasique est celle de l'eau, ici fixée à 1481 m/s. A très basses fréquences, on retrouve les valeurs prédites par le modèle de Wood (2-27) soit environ 1342 m/s. Cependant, le modèle de Wood ne prend pas en compte les effets de la tension superficielle ce qui peut induire des écarts entre les célérités basse fréquences prédites par les équations (2-27) et (2-34) dans le cas- non représenté ici - de petites bulles ( $R_0 < 10 \mu m$ ).



<u>Figure 36 : Influence du rayon sur l'atténuation, pour des</u> <u>rayons allant de 10 μm à 100 μm.</u>

Figure 37 : Influence du rayon sur la célérité.

Etudions maintenant l'influence du taux de vide sur l'atténuation et la célérité. Nous prendrons ici une population de bulles de 10 $\mu$ m de rayon, qui résonnent à  $\approx$ 300 kHz.



Figure 38 : Influence du taux de vide sur l'atténuation



Le pic d'atténuation se situe bien à la fréquence de résonance et il a tendance à s'affiner au fur et à mesure que le taux de vide diminue (Figure 38). De plus, comme on pouvait s'y attendre, l'atténuation augmente avec le taux de vide. Pour ce qui est de la célérité (Figure 39), plus le taux de vide est faible, moins les bulles se font ressentir. Et plus le taux de vide est grand, plus la zone de transition entre les domaines hautes et basses fréquences est étendue. De plus, ces courbes confirment que le taux de vide vide n'a pas d'influence sur la célérité en haute fréquence. La vitesse du son dans l'eau, 1481 m/s, est bien retrouvée.

En basse fréquence, la zone de validité du domaine de Wood est clairement délimitée ( $f < 10^5 Hz$  à  $\tau = 10^{-4}$ ), mais celle-ci varie avec le taux de vide. On comprend ici une des limites de la célérimétrie basse fréquence [49] pour la mesure de taux de vides : sans caractérisation *a priori* du nuage, et en cas de mesure à une seule fréquence, il est impossible de garantir la validité de la mesure *i.e.* de savoir si celle-ci a été effectuée à des fréquences suffisamment basses vis-à-vis de la résonance des bulles présentes.

#### 2.2.3.2.2 Populations polydisperses

Dans la pratique, il est peu probable qu'une population de bulles soit purement monodisperse. Il est donc nécessaire de représenter cette population par une fonction de densité afin de modéliser un nuage de bulles réel :

#### N(a)da = nombre de bulles de rayons compris entre a et a + da par unité de volume.

Avec une population multidisperse, la contribution au taux de vide n'est évidemment pas la même pour chaque classe de rayons. En effet, le taux de vide d'une population représentée par la densité N(a) se calcule grâce à :

$$\tau = \frac{4}{3}\pi \int_0^\infty a^3 N(a) da.$$
 (2-35)

Les bulles les plus grosses contribuent donc largement plus que les plus petites bulles, comme le montre la Figure 40 :





Pour cette population constituée de deux gaussiennes, bien que les petites bulles soient largement plus nombreuses que les grosses, leur contribution au taux de vide est négligeable devant en comparaison des plus grosses bulles. Ceci est intéressant, car ce sont les bulles contribuant le plus au taux de vide qui influent le plus fortement l'atténuation et la célérité comme le montre la figure de droite. Les pics d'atténuations, sont situés aux fréquences de résonances des bulles à 200 µm et 30 µm. C'est bien la population contribuant le plus au taux de vide qui a le plus d'impact.

Une population test de bulles a été simulée en utilisant une distribution log-normale (Figure 41). La loi log-normale est une loi de probabilité où le logarithme de la variable aléatoire suit une loi normale. Elle est caractérisée par 3 paramètres : l'espérance  $\mu_l$ , sa variance  $\sigma_l^2$  et un facteur *C* :

$$N(a) = \frac{C}{a\sigma_l \sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left[-\frac{(ln(a-\mu_l))^2}{2\sigma^2}\right].$$
(2-36)

En déterminant le rayon le plus probable  $a_0$  et l'écart-type  $\sigma_l$  du logarithme de la variable,  $\mu_l$  se calcule selon :

$$u_l = \ln(a_0) + \sigma_l^2.$$

Ceci permet de caller facilement la courbe à un histogramme donné. De plus, il apparait empiriquement que  $\sigma_l = 0.5$  est une bonne valeur pour représenter l'histogramme d'un nuage de bulles réel (Figure 41).

#### 2.2 - Acoustique linéaire des milieux bulleux



Figure 41 : Ajustement d'une loi log-normale à un histogramme [50].

Si l'ont fait varier la variance de la distribution en conservant le rayon moyen (Figure 42), on obtient les courbes de dispersions de la Figure 43:



Figure 42 : distributions log-normale avec différentes variances.



On remarque que l'écart-type du rayon des bulles à une grande influence sur la forme des courbes d'atténuation et de célérité.

Ensuite, comme nous le montre la Figure 44 et la Figure 45, le taux de vide à une influence sur l'amplitude des modifications acoustiques.





La population utilisé est une population log normale,  $\mu$ =20 $\mu$ m,  $\sigma$  =0.5

# 2.2.4 Conclusion sur l'acoustique linéaire des milieux bulleux

Les courbes d'atténuation et de célérité sont donc entièrement dépendantes de la répartition des tailles des bulles et du taux de vide. Les tailles influencent la gamme de fréquences impliquées alors que le taux de vide détermine l'amplitude des modifications de l'atténuation et de la célérité. Les grosses bulles ont un impact basse fréquence alors que les bulles les plus petites « agissent » aux hautes fréquences. Il faut aussi noter que dans ce paragraphe, les processus de diffusions à boucles ne sont pas pris en compte. Cependant, Leroy [51] a montré la viabilité de ce modèle pour des taux de vides allant jusqu'à 1%.

# 2.3 ACOUSTIQUE NON LINEAIRE-

Nous avons vu au paragraphe 2.1.1 que, soumise à des variations de pression d'amplitudes finies, les bulles réagissent de manière fortement non linéaire. Dans ce paragraphe, afin de pouvoir considérer le cas d'onde de pressions d'amplitudes finies, nous nous intéresserons à l'acoustique non linéaire, générale dans un premier temps, puis appliquée aux nuages de bulles.

# 2.3.1 Introduction à l'acoustique non linéaire

De nombreux phénomènes acoustiques peuvent être décrits en utilisant une approche linéaire. En effet, très souvent les amplitudes mises en jeux sont très faibles. Un bruit de 140 dB, seuil de douleur de l'oreille humaine, correspond à une fluctuation de pression relativement à la pression atmosphérique de  $2.10^{-3}$  et un déplacement des particules fluides de  $8.10^{-5}$  *m* à 1kHz. Il est donc légitime de considérer dans la plupart des cas l'acoustique linéaire.

De nos jours, l'acoustique linéaire est très bien décrite et comprise. Cependant, certains phénomènes ne peuvent être expliqués au travers des seules considérations linéaires.

Newton donne en 1686 une première expression de la célérité du son dans un fluide :
$$c = \sqrt{\frac{P_0}{\rho_1}}.$$
(2-37)

Cette formule prédit des valeurs inférieures de 16% aux valeurs mesurées. Certains arguèrent que cette différence était due à l'hypothèse d'une faible amplitude de vibration. Ce fut là une des premières motivations pour étudier les phénomènes d'amplitudes finie, élargissant ainsi le domaine des « petites variations ».

Une explication de ces différences sera finalement donnée en 1816 par Laplace qui montra qu'il faut prendre en compte les effets thermiques résultants de la propagation de l'onde acoustique à l'opposé de la conception isotherme de la propagation du son défendue par Newton. Laplace considère que la température locale évolue en accord avec les phases de compression et dilatation de l'air. De fait, la formule « isotherme » de Newton doit être corrigée d'un facteur  $\sqrt{\gamma}$  pour aboutir à la formule communément admise aujourd'hui de la célérité du son, dite « adiabatique » :

$$c = \sqrt{\frac{\gamma \cdot P_0}{\rho_1}}.$$
(2-38)

Cependant, cette explication ne convainc pas tous les physiciens de l'époque qui continuèrent, à raison, à suspecter des phénomènes d'amplitude finie comme étant la raison de ces écarts. En effet, la célérité « adiabatique » donnée par Laplace ne dépend pas de l'amplitude de l'onde. Comment expliquer alors que le bruit d'un coup de canon ordonné par un officier arrive aux oreilles de l'observateur situé sur la colline d'en face avant l'ordre de cet officier ? Il apparait clair que la célérité d'une onde acoustique dépend de l'amplitude de celle-ci.

### 2.3.1.1 Origines physiques de la non linéarité

### 2.3.1.1.1 Obtention de l'équation d'onde linéaire

Faisons les hypothèses suivantes :

- Fluide parfait.
- Aucun apport volumique de masse.
- Pas de forces volumiques externes.

Les équations du fluide se simplifient alors sous la forme, avec les notations usuelles :

Convertion de la masse: 
$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla . (\rho \vec{u}) = 0$$
, (2-39)

Quantité de mouvement : 
$$\rho\left(\frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{u}.\nabla \vec{u}\right) + \nabla P = \vec{0}$$
, (2-40)

Conservation de l'énergie : 
$$\frac{\partial s}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla s = 0$$
, (2-41)

Equation d'état : 
$$P = P(\rho, s)$$
. (2-42)

Comme le milieu est isentropique, la pression n'est dépendante que de la masse volumique :

$$P = P(\rho, s_0)$$

On considère ensuite de petites perturbations autour d'un état d'équilibre (noté par l'indice 0) et au repos  $(\vec{u_0} = 0)$ :

$$P = P_0 + p', \qquad \rho = \rho_0 + \rho', \qquad \vec{u} = \vec{0} + \vec{u'}, \qquad p' \ll p_0, \qquad \rho' \ll \rho_0$$

Les équations peuvent alors être linéarisées sous la forme :

Conservation de la masse: 
$$\frac{\partial \rho'}{\partial t} + \rho_0 \nabla . \left( \overrightarrow{u'} \right) = 0$$
 (2-43)

Quantité de mouvement : 
$$\rho_0 \frac{\partial \vec{u'}}{\partial t} + \nabla p' = \vec{0}$$
 (2-44)

Ensuite, au premier ordre de l'équation d'état :

$$\begin{cases} p' = c_0^2 \rho' \\ c_0^2 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_0 \end{cases}$$
(2-45)

De là, en effectuant :  $\nabla$ . (2-44)  $-\frac{\partial}{\partial t}$  (2-43) , on obtient **l'équation d'onde** :

$$\nabla^2 p' - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 p'}{\partial t^2} = 0 \tag{2-46}$$

Cette équation montre que les variations de pressions se meuvent à la célérité  $c_0$  sans considérations de fréquence ou d'amplitude, contrairement au cas non linéaire.

### 2.3.1.1.2 Equations d'Euler et non-linéarité convective

Dans le cas de l'acoustique non linéaire, on ne considère plus que  $p' \ll p_0$ ,  $\rho' \ll \rho_0$ . On dit que les ondes sont d'amplitude finie. Les linéarisations et simplifications effectuées précédemment ne sont donc plus applicables.

Repartons des équations d'Euler :

Conservation de la masse : 
$$\frac{D\rho}{Dt} + \rho \nabla . \vec{u} = 0,$$
 (2-47)

Quantité de mouvement : 
$$\rho \frac{D\vec{u}}{Dt} + \nabla P = \vec{0}$$
, (2-48)

où  $\rho$  est la densité ; P est la pression totale ;  $\vec{u}$  est la vitesse particulaire. Si on considère maintenant pour plus de clarté une onde plane à une dimension, ces équations deviennent :

Conservation de la masse: 
$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(\rho u) = 0,$$
 (2-49)

Quantité de mouvement : 
$$\rho \left(\frac{\partial u}{\partial t}\right) + \rho u \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial p}{\partial x} = 0.$$
 (2-50)

On observe l'apparition du terme de convection :  $\rho u \frac{\partial u}{\partial x}$ , terme qui est négligé dans le cas de l'acoustique linéaire. Comme le montre la Figure 46, la pression et la vitesse particulaire sont souvent en phases, et donc les parties à haute pression se déplacent à une célérité  $c_0 + |\vec{u}|$ , et celles en dépression à une célérité  $c_0 - |\vec{u}|$ . La célérité n'est donc plus seulement fonction du milieu, mais aussi des caractéristiques de l'onde qui s'y propage. Il s'agit de la **non-linéarité convective** :



Figure 46 : Pour une onde plane, la pression acoustique est en déphasage par rapport au déplacement particulaire  $\xi_a$ . mais en phase avec la vitesse particulaire, la température et la densité [52].

### 2.3.1.1.3 Equation d'état du fluide et non-linéarité matérielle

L'utilisation d'une célérité indépendante de l'amplitude l'onde est équivalente à la linéarisation de l'équation d'état  $P = P(\rho, s)$ . En pratique, cette équation est non linéaire : quand le fluide est compressé, sa rigidité augmente et comme dans le cas convectif précédent la vitesse du son est supérieure dans les zones compressées, mais ici le mécanisme est différent (élastique).

Si on développe en série de Taylor l'équation d'état  $P = P(\rho, s)$  autour de l'état d'équilibre noté par l'indice «  $_0$  » :

$$P - P_0 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_{s_0, \rho_0} (\rho - \rho_0) + \frac{1}{2!} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2}\right)^2_{s_0, \rho_0} (\rho - \rho_0)^2 + \cdots$$
(2-52)

Cette équation peut être mise sous la forme :

$$p_a = A\left(\frac{\rho_a}{\rho_0}\right) + \frac{B}{2!}\left(\frac{\rho_a}{\rho_0}\right)^2 + \frac{C}{3!}\left(\frac{\rho_a}{\rho_0}\right)^3 + \cdots,$$
 (2-53)

où :

- $p_a = P P_0$  la pression acoustique.
- $\rho_a = \rho \rho_0$  la variation de masse volumique.

On a :

$$A = \rho_0 \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_{s_{0,\rho_0}} \equiv \rho_0 c_0^2, \qquad (2-54)$$

2.3 - Acoustique non linéaire-

$$B = \rho_0^2 \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2}\right)_{s_0, \rho_0},\tag{2-55}$$

$$C = \rho_0^3 \left(\frac{\partial^3 P}{\partial \rho^3}\right)_{s_0, \rho_0}.$$
 (2-56)

Ainsi :

$$\frac{B}{A} = 2\rho_0 c_0 \left(\frac{\partial c}{\partial P}\right)_{s_0,\rho_0},\tag{2-57}$$

est un paramètre qui quantifie la non-linéarité d'un milieu.

De fait, en acoustique non linéaire, l'équation d'état du fluide ne se synthétise non plus sous la forme :

$$\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_{s_0,\rho_0} = \frac{p_a}{\rho_a} = c_0^2 \tag{2-58}$$

mais sous la forme :

$$c^{2} = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_{s} = A\frac{1}{\rho_{0}} + B\frac{\rho_{a}}{\rho_{0}^{2}} + \dots = c_{0}^{2} + B\frac{\rho_{a}}{\rho_{0}^{2}} + \dots = c_{0}^{2}\left(1 + \frac{B}{A}\frac{\rho_{a}}{\rho_{0}} + \dots\right).$$
 (2-59)

Or  $u = \frac{\rho_a}{\rho_0} c_0$  d'où:

$$c^{2} = c_{0}^{2} \left( 1 + \frac{B}{A} \frac{u}{c_{0}} + \cdots \right).$$
(2-60)

D'où:

$$c = c_0 \sqrt{1 + \frac{B}{A} \frac{u}{c_0} + \dots} \approx c_0 + \frac{B}{2A} u + \dots$$
 (2-61)

Il s'agit alors de la **non-linéarité matérielle**. Pour l'eau, ce paramètre B/A est environ égal à 5 et autour de 2.7 pour le sodium liquide [53], [54].

### 2.3.1.1.4 Non-linéarité totale

Si on combine non-linéarités convective et matérielle, on obtient :

$$c \approx c_0 + u + \left(\frac{B}{2A}\right)u,\tag{2-62}$$

$$c \approx c_0 + \beta u, \tag{2-63}$$

$$\beta \equiv 1 + \frac{B}{2A} \approx 3.5 \text{ pour l'eau.}$$
 (2-64)

 $\beta$  est le coefficient de non-linéarité dit classique du premier ordre. Même si le milieu est linéaire (B = 0),  $\beta$  n'est pas égal à 0 à cause du terme de convection  $\rho u \frac{\partial u}{\partial x}$ . Il est aussi possible, en développant aux ordres supérieurs, de définir les paramètres de non-linéarité d'ordre deux, trois...

Il est aussi parfois nécessaire de définir la non-linéarité non classique, représentée par le paramètre  $\alpha$  :

$$c = c_0 + \beta u + \delta u^2 + \dots + \alpha \left( u, \frac{\partial u}{\partial t} \right).$$
(2-65)

Ce coefficient traduit le comportement hystérétique du milieu. La Figure 47 illustre les effets représentés par chacun de ces paramètres.

La plupart du temps,  $\beta$  est de l'ordre de quelques dizaines maximum. Cependant, avec les milieux à bulles, cette valeur peut monter jusqu'à 10<sup>5</sup>.



Figure 47 : Récapitulatif schématisé des contributions non linéaires [55].

## 2.3.1.2 <u>Propagation non linéaire</u>

Comme les non-linéarités ont tendance à augmenter la célérité dans les phases de compression, et à la réduire à la décompression, chaque crête de surpression finira par rattraper la crête de dépression et former une onde de choc (Figure 48).

Une fois l'onde de choc crée, comme une solution multivaluée n'est physiquement pas possible, une solution en dents de scie se forme, solution qui s'atténue lors de sa propagation.

Au second ordre, la propagation d'une onde plane est décrite par l'équation de Westervelt [56] :

$$\Box^2 p + \frac{d_s}{c_0^2} \cdot \frac{\partial^3 p}{\partial t^3} = -\frac{\beta}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2},$$
(2-66)

considérant l'opérateur d'Alembertien :

$$\Box^2 = \nabla^2 - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^{2'}}$$

et la diffusivité du son

$$d_{s} = \frac{1}{\rho_{0}} \left( \frac{4}{3} \mu + \mu_{B} \right) + \frac{K}{\rho_{0}} \left( \frac{1}{C_{v}} - \frac{1}{C_{p}} \right),$$

où  $\mu$  et  $\mu_B$  sont respectivement les viscosités de volume et de cisaillement, *K* est la conductivité thermique et  $C_v$  et  $C_p$  sont les chaleurs spécifiques à volume et pression constante.



Figure 48 : Evolution de l'onde. Initialement sinusoïdale, elle commence à se distordre, ce qui entraine la génération d'harmoniques, puis finit par créer une onde de choc, qui se dissipera.

Seule la phase sans onde de choc sera considérée ici. En effet, dans notre domaine d'étude, la distance de formation du choc  $d_{choc} = \frac{\rho_0 c_0^3}{\omega \beta p_0}$  est de quelques dizaines à plusieurs centaines de mètres, c'est-àdire bien au-delà de la position de nos capteurs. Pour une onde de 100 Pa à 1Mhz dans de l'eau :

$$d_{choc} \approx \frac{1000 \ [kg. m^{-3}] * (1500 \ [m. s^{-1}])^3}{\left(1 + \frac{5}{2}\right) * 2\pi * 10^6 [s^{-1}] * 100 \ [kg. m^{-1} s^{-2}]} \approx 1500 \ [m]$$

Cependant, dans le cas de milieux bulleux, cette distance est drastiquement réduite du fait notamment de la forte non-linéarité du milieu équivalent. Elle reste cependant largement supérieure à la distance de travail (environ 5 mètres pour  $\beta \approx 1000$ , 50 cm pour  $\beta = 10^4$  et 5cm pour  $\beta = 10^5$ ).

# 2.3.1.3 <u>Méthodes expérimentales de détermination du paramètre de</u> non linéarité

Différentes propriétés du paramètre de non linéarité peuvent être utilisées afin de le mesurer. Les principales sont présentées dans ce paragraphe.

## 2.3.1.3.1 Méthode thermodynamique

Il s'agit d'une des méthodes les plus communes et l'une des plus précises [53], qui repose sur l'équation :

$$\frac{B}{A} = 2\rho_0 c_0 \left(\frac{\partial c}{\partial P}\right)_{T,0} + \frac{2\alpha_T c_0 T_0}{c_p} \left(\frac{\partial c}{\partial T}\right)_{P,0} = 2\rho_0 c_0 \left(\frac{\partial c}{\partial P}\right)_{s_0}, \tag{2-67}$$

où  $\alpha_T$  est le coefficient de dilatation volumique,  $c_p$  la capacité thermique massique à pression constante, *T* la température et *s* l'entropie massique.

Il est possible de remonter à la valeur du paramètre en mesurant les variations de la célérité acoustique en faisant varier la pression.

On peut faire varier la pression de manière statique (en mesurant sous divers chargements statiques) ou de manière dynamique. Dans le deuxième cas, on parle de « Dynamic Acousto-Elastic Testing », ou DAET [57]. Cette méthode consiste à mesurer les variations de célérité sous l'influence d'une basse fréquence (Figure 49 et Figure 55).



Figure 49 Schéma de principe de la méthode DAET.

Dans le cas d'un milieu diphasique, le coefficient de non-linéarité dépend fortement de la fréquence de travail et des caractéristiques du nuage de bulles en présence.

Afin de pouvoir considérer la pression comme quasi-statique lors de l'application de la méthode DAET, il faut que le temps de propagation de l'onde à haute fréquence soit très inférieur (rapport 10 minimum) à la période de l'onde basse fréquence.

C'est cette méthode que nous avons mise en œuvre expérimentalement (Chapitre 4).

### 2.3.1.3.2 Méthode d'amplitude finie

Cette méthode consiste à mesurer le rapport de l'amplitude du second harmonique généré lors de la propagation de l'onde dans le milieu sur l'amplitude de la fondamentale. En effet, comme on l'a vu, la non-linéarité d'un milieu amène à la création d'harmoniques. Le rapport entre l'amplitude de la deuxième harmonique sur la première est donné par [58] :

$$\left|\frac{p_2}{p_1}\right| = \frac{1}{4} \Gamma e^{-\alpha x} (1 - e^{-2\alpha x}), \tag{2-68}$$

où  $\Gamma = M\beta / \frac{\alpha}{k}$  est le nombre de Goldberg qui quantifie l'importance des effets non linéaires sur l'atténuation.  $\alpha$  et *k* sont l'atténuation et le nombre d'onde du fondamental.

L'une des principales difficultés de cette technique, en particulier dans les milieux bulleux, est la nécessité de connaitre le coefficient d'atténuation. Soit ce coefficient est issu de mesures *a priori*, soit l'atténuation est déduite pendant la mesure de non-linéarité en faisant varier la distance de mesure [59].

### 2.3.1.3.3 Interaction paramétrique

Lorsque deux ondes de fréquences différentes  $\omega_1$  et  $\omega_2$  se propagent dans un milieu non linéaire, elles interagissent entre elles et font apparaitre des composantes aux fréquences somme et différence ainsi que des harmoniques supérieures.

Westervelt [60] a étudié l'interaction de deux ondes progressives et introduit le concept « d'antennes paramétriques ». Celles-ci consistent en l'interaction de 2 ondes hautes fréquences de pulsations  $\omega_1$  et  $\omega_2$  et d'amplitudes  $P_1$  et  $P_2$  qui interagissent pour générer une onde basse fréquence  $\omega_- = \omega_2 - \omega_1$  très directionnelle.

L'expression de l'amplitude de la composante différence  $p_{-}(R, \theta)$  en champ lointain est donné par Berktay [61]:

$$p_{-}(R,\theta) = \frac{\omega_{-}^{2} P_{1} P_{2} \beta S}{4\pi \rho_{0} c_{0}^{4} \alpha_{T} R} D_{W}(\theta) e^{(ik_{-}R - i\omega_{t})} e^{-\alpha_{-}R},$$
(2-69)

où la fonction de directivité du faisceau es fonction de l'angle  $\theta$  s'écrit :

$$D_W(\theta) = 1/\left(1 + i\left(\frac{k_-}{2\alpha_T}\right)\tan^2\theta\right).$$
(2-70)

Dans ces expressions :  $\beta$  est le coefficient non linéaire du milieu, *S* est la section de l'émetteur,  $\alpha_T = \alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_-$  permet la prise en compte respectivement des atténuations des ondes aux pulsations  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et de la composante différence.

De fait, en mesurant les caractéristiques de l'onde démodulée, il est possible de remonter au coefficient non linéaire du milieu.

## 2.3.2 Non linéarité des milieux bulleux

La présence de bulles influe grandement sur la non-linéarité d'un milieu diphasique. Cette non-linéarité résulte principalement de trois phénomènes :

- a) La non-linéarité de l'équation d'état du liquide ;
- b) La non-linéarité de l'équation d'état du gaz ;
- c) La dynamique non linéaire des bulles.

Il faut aussi noter l'effet, quoique la plupart du temps négligeable, de la convection.

De plus, pour les mesures, il faut prendre aussi en compte les conditions expérimentales (trains d'ondes trop courts qui ne permettent pas d'exciter la bulle au maximum, ondes jamais parfaitement monochromatiques, non-linéarité des capteurs et des électroniques mises en œuvre...).

Intéressons-nous maintenant à l'impact d'un nuage – caractérisé par un taux de vide  $\tau$  et une distribution  $N(R_0)$  – sur les paramètres de non-linéarité du milieu ambiant, que l'on considèrera comme homogène.

## 2.3.2.1 Equation de propagation

En prenant en compte le taux de vide  $\tau$ , van Wijngaarden [62] réécrit l'équation de continuité (2-47) sous la forme :

$$\frac{1}{\rho_l c_l^2} \frac{\partial p}{\partial t} + \vec{\nabla} . \vec{u} = \frac{\partial \tau}{\partial t}$$
(2-71)

Cette équation est correcte sous l'hypothèse de faibles taux de vides et de faibles nombres de Mach, notamment sur la paroi des bulles.

En associant cette relation avec l'expression de conservation de la quantité de mouvement (2-48), on obtient une équation de propagation similaire à celle utilisée en acoustique classique :

$$\frac{1}{c_l^2}\frac{\partial^2 p}{\partial t^2} - \nabla^2 p = \rho_l \frac{\partial^2 \tau}{\partial t^2}$$
(2-72)

Le taux de vide utilisé est instantané et prend en compte les variations volumiques des bulles. Afin de résoudre cette équation, il est donc nécessaire d'utiliser un modèle du type RPNNP ou Keller-Miksis.

Afin de faire apparaitre l'impact du milieu et des bulles sur la non-linéarité totale, il faut considérer l'équation de Westervelt (éq. (2-66)). Pour l'obtenir, partons de la loi de mélange qui traduit la conservation de la masse :

$$\rho = \rho_{liq}(1-\tau) + \rho_{gaz}\tau \tag{2-73}$$

En supposant  $\tau \ll 1$  et *n* bulles de volume  $V = V_0 + V'$ , la variation de densité effective s'écrit alors

$$\rho' = \rho'_{liq} - \rho n V'. \tag{2-74}$$

La variation de densité du liquide est reliée à la variation de pression par :

#### 2.3 - Acoustique non linéaire-

$$\rho' = \frac{p'}{c_0^2} - \frac{\frac{B}{A}}{2\rho_0 c_0^4} p'^2 - \rho n V'.$$
(2-75)

En considérant alors les équations de l'hydrodynamique (2-47) et (2-48) et en effectuant un développement par rapport à la position d'équilibre, on obtient à l'ordre 2 l'équation de Westervelt si on néglige les effets non linéaires « locaux » devant les effets non linéaires cumulatifs :

$$\Delta p - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} + \rho_0 n \frac{\partial^2 V}{\partial t^2} = -\frac{\beta_{liq}}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2}.$$
 (2-76)

Le terme  $\frac{\beta}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2}$  traduit les effets non linéaires dus au fluide, et le terme  $\rho_0 n \frac{\partial^2 V}{\partial t^2}$  ceux dus à la dynamique des bulles. Ces effets sont prédominants pour une large gamme de fréquences.

Afin de prendre en compte une répartition de bulles de tailles différentes, il suffit d'intégrer sur les rayons les termes contenant *n*, le taux de vide étant remplacé par  $\tau = \int_0^\infty N(R_0) \cdot V(R_0, t) dR_0$ :

$$n\frac{\partial^2 V}{\partial t^2} = \frac{\partial^2 \tau}{\partial t^2} = \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left[ \int_0^\infty N(R_0) \cdot V(R_0, t) dR_0 \right]$$
  
= 
$$\int_0^\infty N(R_0) \cdot \frac{\partial^2 V}{\partial t^2}(R_0, t) dR_0.$$
 (2-77)

### 2.3.2.2 Paramètre non linéaire équivalent

En partant de l'équation de Westervelt pour les milieux diphasique (2-76), Bjørnø [63] déduit une expression du coefficient de non-linéarité du milieu équivalent :

$$\beta_{eff} = \frac{\beta_{liq}}{\rho_{liq}^2 c_{liq}^4} (\rho_m^2 c_m^4) * 8.677 * 10^7 * \tau * \frac{R_r}{L} \left[ \frac{1}{(1 - \Omega^2)^2 + \delta_{tot}^2 \Omega^2} \right] \left[ 0.287 + \left( 1 - \frac{\Omega^2}{2.4} \right) \right],$$
(2-78)

où :

- $\beta_{liq}$  est le paramètre de non-linéarité de l'eau pure ;
- l'indice « m » décrit les propriétés du milieu bulleux équivalent ;
- $R_r$  est la distance de Rayleigh du traducteur ultrasonore opérant à  $\omega$ ;
- Ω = ω/ω<sub>res</sub> est la fréquence adimensionnée, *i.e.* le rapport entre la pulsation et la pulsation de résonance ;
- $\delta_{tot}$  est la constante d'amortissement adimensionnée ;
- L est la distance, à travers le liquide, entre le traducteur et le milieu.

Il est donc possible d'étudier l'impact des paramètres du nuage sur la non-linéarité du milieu ambiant, comme nous le montre le Tableau 2 :

Amortissement	A la résonance : $oldsymbol{\Omega} = oldsymbol{1}$	Hors résonance : $oldsymbol{arOmega} = oldsymbol{0}.$ 1
$\delta = 0.01$	$\beta_{eff} = 1.35 * 10^7$	$\beta_{eff} = 190$
$\delta = 0.062$	$\beta_{eff} = 3.5 * 10^5$	$\beta_{eff} = 190$
$\boldsymbol{\delta}=0.1$	$\beta_{eff}=1.35*10^5$	$\beta_{eff} = 190$

Tableau 2 : Valeurs de  $\beta_{eff}$  obtenues par Bjørnø pour un taux de vide de  $10^{-5}$ 

Bjørnø considère que l'amortissement est le même à la résonance et hors résonance, ce qui est faux. A rayon fixé, l'amortissement due aux effets radiatifs  $\delta_{rad} = k.R$  est proportionnel à la fréquence et prend donc rapidement le dessus sur les autres effets dissipatifs, qui varient plutôt de manière inversement proportionnelles à la fréquence. En prenant de plus en compte la célérité globale du milieu ambient, calculée grâce au modèle (linéaire) de Commander et Prosperetti [41], on obtient les courbes de la Figure 50 :



Les valeurs obtenues sont comparables à celles présentées par Bjørnø. On remarque immédiatement que le taux de vide et la résonance augmentent le caractère non linéaire du nuage. De plus, de larges variations de  $\beta_{eff}$  apparaissent pour des fractions volumiques très faibles (pour  $\tau = 10^{-8}$ ,  $\beta \approx 6$  et pour  $\tau = 10^{-7}$ ,  $\beta \approx 32$ )(Figure 51). Comme le dit Welsby [64], les effets non linéaires « peuvent apparaitre à des concentrations en gaz qui sont encore trop faibles pour avoir un impact notable sur les propriétés élastiques du premier ordre, lesquelles contrôles la vitesse de propagation d'une onde ». Cela peut donc être intéressant pour caractériser de très faibles taux de vides. De plus, les variations de non-linéarité sont beaucoup plus importantes que les variations de célérités, méthode régulièrement utilisée pour mesurer de faibles taux de vide (Figure 51).

### 2.3 - Acoustique non linéaire-



Figure 51 : Evolution de la célérité (en haut, échelle linéaire) et de la non-linéarité (en bas, échelle logarithmique) à basse fréquence en fonction du taux de vide.

Cependant, bien que la mesure de la non-linéarité à basse fréquence semble plus apte à mesurer de faible taux de vide, la faisabilité expérimentale d'une telle méthode reste à démontrer.

Il est aussi possible d'obtenir une valeur du paramètre de non-linéarité par la mesure de l'amplitude du second harmonique généré lors de la propagation de l'onde dans le milieu non linéaire. Cependant, cette approche nécessite la connaissance *a priori* de l'atténuation de cet harmonique.

Jian Ma [65] a développé un modèle pour des bulles encapsulées, adaptable aux bulles libres, se basant sur cette méthode d'amplitudes finies. Il détermine l'expression des coefficients  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  à partir de l'équation RPNNP développée à l'ordre 2 et en y appliquant une méthode de perturbation.

Type de bulle	Rayon (μm)	Fréquence de résonance [MHz]	Taux de vide	α <sub>1</sub> calculé (mesuré) [Np/m]	(B/A) <sub>eff</sub> Calculé [mesuré]
Bulle libre	3.3	0.98	8*10 <sup>-3</sup>	7.4*10 <sup>4</sup> (7*10 <sup>4</sup> )	4.88*10 <sup>5</sup> (2*10 <sup>5</sup> )
Bulle encapsulée	3.3	2.6	8*10 <sup>-3</sup>	3.94*10 <sup>4</sup>	3.92*10 <sup>4</sup>

<u>Tableau 3 : Comparaison du coefficient d'atténuation α<sub>1</sub> et du paramètre non linéaire effectif entre bulles libres et</u> <u>encapsulées. Comparaison avec les valeurs expérimentales obtenues par Wu et Zhu [66].</u>

Le Tableau 3 résume les résultats calculés par Jian Ma pour des bulles libres et encapsulées. Il les a comparés aux valeurs obtenues expérimentalement par Wu et Zhu qui sont très proches de la théorie. Les valeurs données ici ont été calculées et mesurées à des fréquences voisines de la fréquence de résonance. Ils concluent en disant qu'une relation quasi-linéaire existe entre la concentration et la valeur de B/A. Cependant les auteurs expliquent que leur approche surestime les valeurs d'atténuation et de non-linéarité. Cela viendrait du taux de vide relativement grand. En effet, pour des taux de vides

supérieurs à 10<sup>-4</sup>, négliger la multidiffusion est discutable, surtout pour des populations monodisperses [67].

Labat [56] donne elle aussi une expression du coefficient de non-linéarité en présence de bulles :

$$\beta_{bulles}(\omega) = \beta_{liq} + (4\pi)^2 c_l^4 \frac{NR_0^2(a - 3\beta'\omega^2 + 2i\delta\beta'\omega^2)}{(\omega_0^2 - 4\omega^2 + 2i\delta\omega^2)(\omega_0^2 - \omega^2 + i\delta\omega^2)^2},$$
(2-79)

- β<sub>liq</sub> est le coefficient non linéaire du liquide pur,
- N est le nombre de bulles de rayon  $R_0$ ,
- $a = 3\beta'(\gamma+1)\omega_0^2$ ,
- $\beta' = \frac{1}{8\pi R_0^3}.$

Celle-ci est issue de l'application d'une méthode d'approximation successives et du couplage de l'équation de propagation (2-76) et de l'équation de Rayleigh linéarisée au deuxième ordre décrite en volume (2-15).

Si on souhaite prendre en compte un nuage multidisperse, il faut remplacer  $\tau$  par  $\frac{4}{3}\pi N(R)R^3$  et intégrer l'équation (2-79) sur l'ensemble des rayons considérés (Figure 52).



Figure 52 : Variation de la valeur absolue du coefficient de non-linéarité β en présencede bulles en fonction de la fréquence pour des populations gaussiennes centréessur  $R_0$ =50 µm d'écarts types différents.

Remarquons tout d'abord qu'à basse fréquence, le coefficient de non-linéarité est déjà largement supérieur à celui de l'eau, alors qu'aux hautes fréquences, la non-linéarité due aux bulles devient négligeable et on retrouve le  $\beta$  de l'eau pure. On observe la présence de deux pics de forte non-linéarité. Ceux-ci se trouvent à la résonance et au premier subharmonique  $f = f_{res}/2$ . Lorsque  $f/f_{res} = \sqrt{\gamma + 1}$ , on observe la présence d'une « antirésonance ». Ce phénomène apparait lorsque la non-linéarité issue de l'équation de Rayleigh-Plesset compense celle due à la loi d'état du gaz [53].

Si on s'intéresse à l'évolution de  $\beta$  aux basses fréquences en fonction du taux de vide, il est utile d'utiliser une autre expression. En effet, l'expression précédente suppose un faible taux de vide, et n'est donc valable qu'en première approximation. Tant que le taux de vide est faible ( $\approx < 10^{-5}$ ), il y a une relation quasi linéaire entre ce dernier et  $\beta$  (Figure 53). Pour des taux de vides plus importants, Hamilton [53] donne pour le paramètre B/A :

$$\begin{cases} \frac{B}{A} = \frac{(\gamma+1)\tau C^2 + (1-\tau)\left(2 + \left(\frac{B}{A}\right)_{liq}\right)}{1+\tau(C-1)^2} - 2. \\ C = \rho_l c_l^2/(\gamma P_0) \end{cases}$$
(2-80)

La grande majorité des études expérimentales ont été réalisées sur des agents de contraste, c'est-àdire des solutions de microbulles encapsulées. Cependant, les résultats obtenus sur de telles bulles présentent de fortes similitudes avec les bulles libres.



Figure 53 : Evolution de la non-linéarité aux basses fréquences en fonction du taux de vide.

Pour des taux de vides inférieurs à 10<sup>-8</sup> la non-linéarité due à l'eau devient prépondérante.

Renaud [57] s'est notamment intéressé à mesurer le paramètre B/A sur des microbulles à capsules lipidiques, afin de mettre en évidence un flambement de la coque, via la méthode DAET (§ 2.3.1.3.1). Un des aspects intéressants des milieux bulleux est l'apparition d'un phénomène d'hystérésis lorsque l'on mesure la variation du temps de vol en fonction de la pression appliquée (Figures 54 et 55).



Figure 54 : Variation relative de célérité en fonction de la pression appliquée [57].

Afin d'expliquer cette hystérésis sur les bulles encapsulées, il est nécessaire de prendre en compte les effets visqueux non linéaires [68]. Ceux-ci induisent un déphasage et une distorsion des variations du temps de vol en fonction de la pression appliquée. Il est donc nécessaire d'utiliser un module d'élasticité longitudinal complexe afin de modéliser ce comportement. Le milieu est donc toujours caractérisé par les paramètres B/A, C/A, D/A ... suivant l'ordre auquel on se place, mais aussi par des coefficients  $\frac{\omega \cdot \eta_i}{A}$ ; i = B, C, D ... caractéristiques des effets viscoélastiques. Afin de modéliser fidèlement un milieu diphasique, il semble nécessaire de développer jusqu'à l'ordre 4, c'est-à-dire calculer les coefficients jusqu'à D/A *et*  $(\omega. \eta_D)/A$ .



<u>Figure 55 : Paramètre de non-linéarité, obtenue via la méthode DAET,</u> <u>en fonction de la fréquence pour un agent de contraste [57].</u>

Liu [69] a quant à lui utilisé une méthode d'amplitude finie pour mesurer la non-linéarité d'un agent de contraste (Figure 56). Pour ce faire, une détermination *a priori* de l'atténuation des deux premiers harmoniques a été effectuée.



On remarque une nouvelle fois que la non-linéarité dépend fortement de la concentration en microbulles.

Afin d'éviter les mesures d'atténuation, il est possible d'effectuer plusieurs mesures à des distances x différentes, et de faire tendre x vers 0 :

$$\frac{B}{A} = \frac{2\rho_l c_l^3}{\pi f} \cdot \lim_{x \to 0} \left( \frac{P_2(x)}{x P_1^2(x)} \right) - 2.$$
(2-81)

## 2.3.2.3 <u>Atténuation non linéaire</u>

En acoustique linéaire, le coefficient d'atténuation peut se mettre sous la forme :

$$\alpha = \frac{10}{x} \log \left( \frac{|P(x)|^2}{|P_0|^2} \right) \, dB/m,$$
(2-82)

où P(x) est l'amplitude de l'onde à la distance x et  $P_0$  l'amplitude de l'onde initiale.

L'atténuation est alors indépendante de l'amplitude de l'onde excitatrice, et il y a indépendance entre les différentes fréquences.

Cependant, en acoustique non linéaire, l'atténuation est dépendante de l'amplitude de l'onde excitatrice. De plus, il y a des transferts d'énergie entre les harmoniques. Il y est donc nécessaire de trouver un modèle plus précis.

Leighton [70], Louisnard [71] et Jamshidi [72] déterminent numériquement l'atténuation due aux bulles en calculant sur une période l'énergie dissipé par les effets thermiques, visqueux et radiatifs.



Figure 57 : Evolution du coefficient d'atténuation (traits pleins) et de la partie réelle du nombre d'onde (pointillés), selon un modèle linéaire (traits fin) ou non linéaire (traits épais), en fonction de l'amplitude d'insonnification. La barre verticale situe le seuil de Blake [71].

On remarque grâce à la Figure 57 que l'atténuation non linéaire est fortement dépendante de la pression d'insonnification, notamment à l'approche du seuil de Blake<sup>\*</sup>, contrairement au cas linéaire.

Expérimentalement, Tang [73] se base sur le modèle suivant, où l'atténuation est divisée entre une partie indépendante de la pression et une partie dépendante de la pression :

$$\alpha(x, P(x)) = (\alpha_0 + \alpha_1 P(x))\tau(x), \qquad (2-83)$$

où  $\tau(x)$  est la concentration locale en microbulles.

L'amplitude du signal à une distance x est alors modélisée par :

$$P(x) = \frac{P_0 \exp\left(-\alpha_0 \int_{x_0}^x \tau(\nu) d\nu\right)}{1 + P_0 \alpha_1 \int_{x_0}^x \tau(u) \exp\left(-\alpha_0 \int_{x_0}^x \tau(\nu) d\nu\right) du}.$$
 (2-84)

Il obtient alors la valeur de  $\alpha_0$  et  $\alpha_1$  en fonction de la fréquence (Figure 58).

<sup>\*</sup> Le seuil de Blake est la frontière au-delà de laquelle les effets de la tension superficielle ne peuvent plus contrôler l'expansion d'une bulle de cavitation. La bulle rentre alors dans une phase explosive.

### 2.3 - Acoustique non linéaire-



pour l'agent de contraste SonoVue [73].

On remarque que le coefficient indépendant de la pression  $\alpha_0$  est croissant sur les basses fréquences puis atteint un plateau. Le pic du coefficient d'atténuation dépendant de la pression  $\alpha_1$  montre que l'atténuation est plus importante et très sensible à la pression d'insonification à la résonance des bulles (1.5 MHz).



Figure 59 : Atténuation pour l'agent de contraste SonoVue concentré à 225µL/L à différentes pressions [73].

La Figure 59 montre à quel point à la résonance de la bulle l'atténuation est sensible à la pression.

On a vu au paragraphe 2.3.1.3.2 que pour mesurer le paramètre B/A via la méthode d'amplitude finie, c'est-à-dire en comparant l'amplitude des 2 premiers harmoniques, la connaissance de l'atténuation de celles-ci était nécessaire. C'est notamment la méconnaissance relative de cette atténuation qui explique la relative imprécision liée aux résultats de cette méthode.

## 2.3.3 Conclusion de l'acoustique non linéaire des milieux bulleux

Généralement, le cadre de l'acoustique linéaire suffit à étudier les processus physiques activés lors de l'interaction onde-matière. Cependant, lorsque les variations de pression acoustique sont du même ordre de grandeur que la pression statique du milieu, ou lorsque ce dernier fait apparaître un comportement non-linéaire, le cadre de l'étude doit être nécessairement élargit à un ordre de non-

linéarité suffisant pour pouvoir modéliser les phénomènes d'intérêt. Notamment, l'interaction nonlinéaire se traduit par l'apparition d'harmoniques lors de la propagation de l'onde et une atténuation dépendante de l'amplitude des perturbations.

Dans le cadre d'une approximation au second ordre, le paramètre B/A permet de quantifier ces effets non linéaires, et plusieurs méthodes de mesure de ce paramètre existent.

Le cas des milieux bulleux est particulièrement intéressant en acoustique non linéaire. En effet, la dynamique intrinsèquement non linéaire, voire chaotique, des bulles se traduit par des coefficients B/A très largement supérieurs à ce qu'on peut rencontrer en général. Cette non-linéarité est non seulement dépendante de la quantité de bulles, mais aussi de la proximité entre la fréquence de l'onde et la fréquence de résonance des bulles excitées par cette onde.

Ainsi, comme nous le verrons, la mesure du paramètre de non linéarité permet d'apporter de nombreuses informations sur le nuage de bulles en présence. Par exemple, la connaissance de ce paramètre à basse fréquence semble être plus judicieuse pour détecter et mesurer de très faibles taux de vides ( $< 10^{-7}$ ) comparé à la célérimétrie basse fréquence. La méthode de mesure DAET semble être adaptée au milieu industriel car elle permet des mesures spectroscopiques et ne nécessite pas la connaissance *a priori* du coefficient d'atténuation.

## 2.4 CONCLUSION DU DEUXIEME CHAPITRE

Nous avons vu dans ce chapitre l'impact des bulles sur l'acoustique du milieu et inversement. Dans l'optique de la caractérisation du nuage de bulles par des méthodes ultrasonores, il est intéressant de remarquer que les fréquences de résonances des bulles, où les effets acoustiques sont les plus importants, sont inversement proportionnel aux rayons des bulles. De plus, à la résonance, la section efficace d'extinction d'une bulle est largement supérieure à sa section géométrique. Ceci permet de discriminer les bulles des particules solides.

Ensuite, nous avons vu tout au long de ce chapitre que les dépendances de l'atténuation, de la célérité et du coefficient non linéaire à la fréquence de mesure étaient entièrement déterminées par la distribution en taille de bulles N(a) via des équations de Fredholm du premier type (équations (2-32) et (2-79)). L'inversion de ces équations permettrait alors de remonter à la distribution en taille de bulles en mesurant atténuation, célérité et/ou coefficient non linéaire à différentes fréquences. C'est l'objet des chapitres suivants.

# CHAPITRE 3 INVERSION DE MESURES D'ATTENUATION ET DE CELERITE.

Dans ce chapitre, détaillons certaines méthodes permettant de déduire les caractéristiques du nuage entièrement contenues dans sa distribution N(a) - en fonction de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité.

# 3.1 ETAT DE L'ART

La volonté de caractériser des nuages de microbulles est principalement venue des océanographes. En effet, la caractérisation du nuage de bulles et microbulles rencontré dans les couches supérieures des océans est nécessaire pour une compréhension plus fine des échanges gazeux océan/atmosphère ou encore de l'acoustique sous-marine. L'utilisation de méthodes acoustiques présente l'intérêt d'une grande sensibilité à la résonance des bulles, et permet de fait de discriminer les différentes particules présentes en mer qui, en comparaison avec les bulles, ne participent que très peu aux modifications acoustiques observées.

Depuis l'intérêt s'est propagé à la médecine avec par exemple la détection d'embolies gazeuses ou l'amélioration des échographies grâce à l'utilisation d'agents de contraste, à l'industrie avec l'étude de la cavitation ou en chimie, et bien sûr au nucléaire avec notre application.

Différentes approches ont été développées afin de déduire de mesures acoustiques les caractéristiques d'un milieu diphasique.

## 3.1.1 Méthode Analytique

Les premières tentatives pour relier l'atténuation à la distribution de bulles reposent sur un modèle analytique. Medwin [74], [75], sur la base des travaux de Wildt [76], pose les premières équations permettant de caractériser un nuage de bulles, modélisé par une fonction de distribution N. En supposant que :

- 1. Le facteur d'amortissement  $\delta = 0,1$  est constant pour tous les rayons.
- 2. Seules les bulles résonnantes, de rayon  $a_R$ , à la fréquence d'insonnification f contribuent à l'atténuation.
- 3. La distribution des bulles évolue lentement en fonction du rayon.
- 4. La tension de surface est négligeable.

Medwin obtient une relation reliant directement la population de bulles N(a) aux mesures d'atténuation  $\alpha$  et de diffusion en comparant l'amplitude d'échos successifs:

$$N(a_R) = \frac{\alpha f_R}{4,34\pi c_l a_R^2} \tag{3-1}$$

Où :

- α est l'atténuation en dB/m,
- c<sub>l</sub> est la célérité du son dans l'eau en m/s,
- $f_R$  est la fréquence de résonance d'une bulle de rayon  $a_R$ .

Les résultats expérimentaux obtenus par Medwin sont présentés Figure 60.



Figure 60 : Résultats obtenus par Medwin pour 4 sessions d'expérimentations [74].

Cependant, ces équations ne convergent que pour des distributions polynomiales d'ordre compris entre 2 et 6. Face à ces limites, Commander et Moritz [47] explorent la contribution des bulles non résonantes sur le coefficient d'amortissement et l'impact sur les résultats obtenus.

Leurs simulations sur des distributions réalistes (gaussiennes, exponentielles) montrent une surestimation du nombre de bulles pour des rayons inférieurs à 50 µm. Or la seule distribution ne divergeant pas aux faibles rayons n'étant pas possible physiquement, ils en déduisent qu'il n'est pas cohérent de seulement considérer les bulles à la résonance. Ils proposent alors une méthode d'inversion numérique de l'atténuation, ce qui constitue le deuxième axe de cet état de l'art.

Entre 1999 et 2003, Caruthers et Elmore [77],[78] ont proposé d'améliorer la méthode de Medwin en effectuant des itérations sur l'histogramme ; réduisant de fait les erreurs commises et en permettant l'application à des histogrammes plus complexes (Figure 61).

En augmentant le nombre d'itérations, on arrive à réduire la zone de divergence aux petits rayons (Figure 61).



Figure 61 : Illustration des améliorations obtenues grâce aux itérations sur deux distributions différentes. La courbe « RBA » correspond aux résultats qu'aurait obtenus Medwin [77], [78].

Ces méthodes analytiques présentent l'intérêt d'un faible cout en calcul et d'une relative faible sensibilité aux erreurs de mesures. Cependant, elles supposent de nombreuses approximations ce qui entraine des erreurs, notamment aux faibles rayons. C'est pour cela qu'une méthode numérique basée sur l'inversion de l'équation intégrale (3-2) a été développée à l'initiative de Commander et Moritz [79].

## 3.1.2 Méthode Numérique

Face à la nécessité de prendre en compte la contribution des bulles non résonnantes, Commander et Moritz [79] ont décidé de résoudre directement l'équation intégrale de l'atténuation  $\alpha$ :

$$\alpha(f) = 4.34 \int_0^\infty \sigma_e(f, a) N(a) da, \qquad (3-2)$$

avec  $\sigma_e$  la section efficace d'extinction.

Pour cela, ils limitent l'intégration aux rayons  $a_{min} < a < a_{max}$  et développent l'histogramme en série de Fourier :

$$N(a) = \sum_{k=0}^{n-1} A_k \cos(\frac{k\pi a}{\Delta a}),$$
(3-3)

où *n* est le nombre de points d'intégration et  $\Delta a = \frac{a_{max} - a_{min}}{n-1}$ .

On obtient alors le système d'équations :

$$\alpha(f_i) = 4.34 \sum_{j=0}^{n-1} w_j \sigma_e(f_i, a_j) N(a_j),$$
(3-4)

où  $w_i$  est le facteur d'intégration issu de la discrétisation de l'intégrale.

En résolvant ce système afin d'obtenir les coefficients  $A_k$ , on obtient l'histogramme des rayons des bulles. Commander et Moritz précisent qu'il faut absolument effectuer les mesures aux fréquences qui correspondent à la résonance des rayons  $a_i$  choisis afin d'obtenir une solution stable.



Figure 62 : Résultats obtenus par Commander et Moritz en utilisant 10, 20 ou 40 points dans le schéma d'intégration comparativement à la solution exacte (trait large) [79].

Il réside un écart relativement grand entre l'entrée et la solution (Figure 62). De plus, des oscillations parasites viennent détériorer les résultats du fait de la décomposition en cosinus.

Au vu de la faible qualité des résultats précédents, une autre technique a été étudiée par Commander et McDonald [80]. Il s'agit toujours de l'inversion de l'équation intégrale (3-2), mais en utilisant une technique de régularisation.

Après discrétisation, l'équation (3-2) devient alors, avec des notations évidentes :

$$\alpha = KN, \tag{3-5}$$

où K est la matrice d'intégration obtenue par un schéma de Gauss-Legendre. Cependant cette matrice est mal conditionnée, ce qui amplifie drastiquement la moindre erreur de mesure du fait de très petites valeurs singulières, et il est alors nécessaire de passer par une étape de régularisation (ici de Tikhonov, voir détails au §.3.2) pour résoudre ce problème. L'équation (3-5) est alors transformée en :

$$(K^T K + \lambda L^T L)N = K^T \alpha, \qquad (3-6)$$

où :

- *K* est la matrice d'intégration ;
- λ le paramètre de régularisation, très petit devant les termes de K ;
- *L* la matrice représentant l'opérateur dérivé seconde afin d'imposer une minimisation de la courbure du résultat et ainsi limiter les oscillations parasites.



Figure 63 : Résultat obtenus par Commander et McDonald [80].

La méthode proposée par Commander est intéressante et donne de très bons résultats (Figure 63), mais elle ne prend pas en compte la célérité qui pourrait apporter elle aussi de l'information.

Duraiswami, du laboratoire DYNAFLOW [81]–[85] situé aux Etats-Unis, améliore à partir de 1993 la technique précédente en utilisant d'autres équations intégrales issues de la séparation en parties réelle et imaginaire de l'équation du nombre d'onde :

$$\alpha_1 = u^2 - v^2 - 1 = \int_0^{a_{max}} k_1(f, a) N(a) da , \qquad (3-7)$$

$$\alpha_{2} = uv = \int_{0}^{a_{max}} k_{2}(f, a) N(a) da, \qquad (3-8)$$

où *u* est fonction de la célérité et *v* est fonction de l'atténuation.  $k_1$  et  $k_2$  sont issus de la séparation en parties réelle et imaginaire de  $\sigma_e$ . Ici,  $\alpha$  ne représente plus l'atténuation, mais est une fonction de l'atténuation et de la célérité.



Ceci lui permet de prendre en compte – en plus de l'atténuation - la célérité dans l'inversion, ce qui améliore les résultats. La même technique de régularisation (Figure 64) est appliquée mais avec la suppression de la composante courbure dans l'équation de régularisation. De plus, afin d'améliorer les résultats, des contraintes sur la solution sont imposées, comme la positivité et un taux de vide fini. L'équation est alors résolue via une minimisation sous contraintes.

La mesure de la célérité étant relativement peu précise, une itération sur celle-ci est effectuée en prenant la célérité de l'eau comme valeur initiale (Figure 65).



Figure 65 : Amélioration de l'histogramme obtenue via une itération sur la célérité [84].

L'Acoustic Bubble Spectrometer® : Le laboratoire Dynaflow a développé et commercialise un appareil permettant la caractérisation de nuages de bulles en se basant sur cette théorie. Il s'agit de l'Acoustic Bubble Spectrometer<sup>®</sup> (ABS) (Figure 66).



Figure 66 : Dispositif ABS®.

### 3.1 - Etat de l'art

L'ABS<sup>®</sup> est configurable selon la disposition voulue. Il permet la caractérisation d'un nuage de bulles quasiment en temps réel. Cependant, les taux de vides ne sont pas donnés et les tailles de classes sont particulièrement larges.





Pour des taux de vides supérieurs à 10<sup>-6</sup>, il n'est plus raisonnable selon Choi et Yoon [87] de considérer le milieu comme non-dispersif. Or, jusqu'ici, la célérité de l'eau pure était utilisée dans l'expression de la section efficace d'extinction:

$$\sigma_e = \frac{4\pi a \,\delta}{\left(\frac{\omega_R^2}{\omega^2} - 1\right)^2 + \delta^2} \cdot \frac{c}{\omega} \tag{3-9}$$

Ils proposent d'améliorer ce point par itérations. Un premier histogramme est obtenu en considérant la célérité de l'eau pure. Cet histogramme sert de base à un calcul de célérité, et la section efficace d'extinction est alors corrigée. Le résultat converge au bout d'une vingtaine d'itérations (Figure 68). Cependant cette technique est très gourmande en temps de calculs.



(la mauvaise résolution de l'image est due à la publication originale) [87].

Contrairement à leurs prédécesseurs, Leighton, Meers and White [70] détaillent dans leur article une méthode permettant de déterminer de manière systématique le paramètre de régularisation. Il s'agit de tracer la norme de la solution régularisée ||N|| versus la norme de l'erreur  $||KN - \alpha||$ . Cela forme une

courbe en forme de « L », d'où le nom de cette courbe : la « L-curve » (Figure 69). Le paramètre de régularisation optimal se situe au maximum de courbure de cette courbe [88].



Figure 69 : Courbe en L typique. Ici, β est le paramètre de régularisation [88].

## 3.1.3 Autres méthodes

### 3.1.3.1 Utilisation de 6 points de mesures: Vagle and Farmer (1992)

Vagle et Farmer [89] se sont penchés sur les populations de bulles à la surface de l'océan, et notamment les variations qu'elles présentent en fonction de la profondeur. Du fait des conditions expérimentales difficiles, ils n'ont pu réaliser que 6 mesures de section efficace de diffusion totale à 6 fréquences différentes, entre 2kHz et 400 kHz.



Après l'étude de différentes techniques, dont une utilisant l'interpolation des données entre les fréquences de mesures afin d'avoir un système bien défini, ils ont retenu une simplification des équations en remarquant que les pics des sections de diffusions sont relativement symétriques autour

de la fréquence de résonance (Figure 70). Ils obtiennent alors une équation analytique reliant N(a) aux mesures de rétrodiffusion.

La courbe en pointillés de la Figure 71 représente les résultats obtenus par une méthode itérative. Cette technique n'a pas été retenue par Vagle et Farmer car elle est très gourmande en temps et ressources et n'améliore pas les résultats issus des équations (3-7) et (3-8).



<u>Figure 71 : Distribution de trois populations de bulles à trois différentes profondeurs obtenues par deux méthodes:</u> <u>en trait plein, par la méthode présentée ici et en pointillés, par une méthode itérative. [89]</u>

L'intérêt des méthodes de Vagle et Farmer réside surtout dans le faible nombre de points de mesures nécessaires et dans le compromis entre simplification et réduction du temps de calcul. Ils estiment cependant qu'un point supplémentaire de mesure serait appréciable.

## 3.1.3.2 Résonateur 1D de Breitz and Medwin (1989)

Au lieu d'utiliser deux capteurs en transmission comme c'est couramment le cas, Breitz [90] propose d'utiliser les propriétés d'un résonateur 1D afin de caractériser le milieu (Figure 72). Un résultat est présenté Figure 73.

L'auteur donne une expression de la distribution aux rayons correspondant aux modes du résonateur :

$$N(a_n) = \frac{2\pi\Delta f_n^b}{c_l \sigma_e^R 10^6 \delta_R a_n},$$
(3-10)

où :

- $a_n$  est le rayon correspondant à la fréquence du n<sup>ième</sup> mode ;
- $\Delta f_n^b$  est la différence de bande passante du n<sup>ieme</sup> mode avec et en l'absence de bulles ;
- $\sigma_e^R$  est la section efficace d'extinction à la résonance correspondant à un facteur d'amortissement  $\delta_R$ .



Figure 72 : Résonateur utilisé par Breitz [90].



Figure 73 : Histogramme expérimental obtenu en mer. Les points carrés pleins représentent la valeur moyenne des points obtenus sur 2.5 minutes.

En condition réelles, les auteurs procèdent par itérations afin de corriger l'erreur due à la non prise en compte de la contribution des bulles non résonnantes :

Notons que Farmer [91] [92] a aussi utilisé des résonateurs plans, ainsi que la même technique acoustique que Breitz. Il en conclut que « l'approche directe de Commander & McDonald présentée au §.3.1.2 est plus performante ».

## 3.1.4 Conclusion sur l'état de l'art

De nombreux auteurs se sont intéressés à la caractérisation de nuages de bulles à partir de mesures d'atténuation et de célérité. Là où au début une méthode analytique était employée, nécessitant des hypothèses qui se sont révélées être fausses, la méthode s'est améliorée au fil des études jusqu'à aboutir à une commercialisation par le laboratoire Dynaflow de l'ABS.

Cependant, les populations présentées dans ces études ont généralement des tailles de classe importantes ( $\approx 10 \ \mu m$ ) et ne présentent qu'un seul mode. Elles ne sont par ailleurs pas toujours validées par des mesures de référence telles que des mesures optiques. De plus, les taux de vide sont rarement précisés et quand ils le sont, ne sont pas validés par d'autres méthodes.

En conséquence, afin d'être en accord avec les recommandations de l'ASN, nous admettons comme contraintes que, d'une part, le minimum de supposition *a priori* sur le nuage doit être fait. D'autre part, les tailles de classes exhibées dans la littérature sont trop importantes pour être clairement représentatives du nuage ; l'estimation de la distribution doit être affinée.

L'objectif de la suite de ce chapitre est donc de mettre en œuvre l'inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité et d'obtenir des résultats présentant une taille de classe raisonnablement fine, des valeurs de taux de vide et surtout des valeurs validées par des mesures optiques fiables.

# 3.2 <u>CARACTERISATION DE MILIEU DIPHASIQUE PAR RESOLUTION DE</u> L'EQUATION DU NOMBRE D'ONDE EQUIVALENT

Comme nous l'avons vu précédemment, la caractérisation de nuages de bulles passe par l'inversion de l'équation du nombre d'onde complexe :

$$\underline{k}_m^2 = \frac{\omega^2}{c_{liq}^2} + 4\pi\omega^2 \int_0^\infty \frac{aN(a)}{\omega_{res}^2 - \omega^2 + 2i\beta\omega} da.$$
(3-11)

Pour ce faire, cette équation est discrétisée sous la forme :

$$\alpha = KN, \tag{3-12}$$

où  $\alpha$  est un vecteur dépendant des mesures d'atténuation et de célérité, *N* est l'histogramme de répartition des bulles et *K* est la matrice d'intégration. Cependant, cette matrice est mal conditionnée, c'est-à-dire que ses valeurs singulières sont extrêmement faibles et le rapport entre la plus grande valeur singulière et la plus petite est important. De fait, la moindre erreur de mesure dans le vecteur  $\alpha$  conduira à une solution sans aucune commune mesure avec la solution réelle. Il est alors nécessaire de régulariser cette équation. Plusieurs méthodes sont possibles [93] :

 La régularisation de Tikhonov : la plus connue et utilisée qui consiste à introduire un paramètre de régularisation λ et à résoudre :

$$\min\{\|KN - \alpha\|_2^2 + \lambda^2 \|L(N - N_0)\|_2^2\}$$

où L est la matrice de l'opérateur dérivé ou dérivé seconde et  $N_0$  une itération initiale.

Minimisations des moindres carrés avec contraintes quadratiques :

$$\min \left| |KN - \alpha| \right|_2 \text{ soumis à } \left| |L(N - N^*)| \right|_2 \le \alpha,$$

Ou bien :

$$\min \left| |L(N - N^*)| \right|_2 \text{ soumis à } \left| |KN - \alpha| \right|_2 \le \delta.$$

 $\alpha$  et  $\delta$  sont les équivalents du paramètre de régularisation. Ces méthodes donnent des solutions identique à la régularisation de Tikhonov pour certaines valeurs de  $\lambda$  qui dépendent de manière non linéaire de  $\alpha$  et  $\delta$ . Ces méthodes sont dans l'essentiel relativement proches de la régularisation de Tikhonov.

Méthodes de troncature de la décomposition en valeurs singulières (TSVD)

 $\min ||N||_2$  soumis à  $\min ||K_kN - \alpha||_2$ ,

où  $K_k = \sum_{i=1}^{k \le n} u_i \sigma_i v_i^T$  est la troncature au rang *k* de la matrice *K*. On cherche à supprimer les valeurs singulières non pertinentes et problématiques.

C'est la régularisation de Tikhonov qui est la plus documentée et utilisée pour résoudre ce genre de problèmes, notamment dans le cadre de la caractérisation de nuages de bulles (cf § 3.1.2). En effet, même si elle ne fournit pas toujours les meilleurs résultats, c'est la méthode la plus robuste [88]. C'est donc cette méthode que nous avons choisie.

La théorie de la régularisation de Tikhonov est détaillée ci-après avant de l'appliquer aux mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité.

### 3.2.1 Equation de Fredholm du premier type et régularisation de Tikhonov.

Hansen [88], [93] a largement décrit et vulgarisé le principe de la régularisation de Tikhonov. Les grands axes de cette procédure sont repris ici.

### 3.2.1.1 Régularisation de Tikhonov

Soit le problème suivant :

$$\min_{x} \|Ax - b\|_2, \tag{3-13}$$

où *A* est une matrice  $m * n; m \ge n, x$  un vecteur inconnu de dimension 1 \* n et *b* un vecteur de dimension 1 \* m. Cependant, la solution *x* peut être très sensible si la matrice *A* est mal conditionnée. Dans ce cas, on approche la solution « vraie » *x* par  $x_{\lambda}$  où :

$$x_{\lambda} = \arg\min\{\|Ax - b\|_{2}^{2} + \lambda^{2}\|L(x - x_{0})\|_{2}^{2}\},$$
(3-14)

avec  $\lambda$  un paramètre de régularisation bien choisi,  $x_0$  une estimation de la solution (qui peut être nulle), et *L* une matrice de régularisation, qui peut être choisie comme égale à la matrice identité *I* ou alors comme étant la matrice de l'opérateur dérivé ou dérivé seconde afin de minimiser la courbure de la solution. La résolution de ce problème s'appelle la régularisation de Tikhonov.

La solution de (3-14) est donnée par :

$$(A^{T}A + \lambda^{2}L^{T}L)x_{\lambda} = K^{T}b + \lambda^{2}L^{T}Lx_{0}.$$
(3-15)

La régularisation permet de s'affranchir des valeurs singulières les plus faibles. Il est cependant nécessaire de choisir correctement le paramètre de régularisation  $\lambda$ .

### 3.2.1.2 <u>L-curve</u>

Afin de déterminer la valeur du paramètre de régularisation, l'idée est de tracer  $||Ax - b||_2$  versus  $||L(x - x_0)||_2$  en fonction du paramètre  $\lambda$ . En effet, si trop de régularisation est effectuée ( $\lambda$  trop grand), la solution  $x_{\lambda}$  sera dominée par le terme  $\lambda^2 ||L(x - x_0)||_2^2$  et l'erreur  $||Ax - b||_2$  sera importante. A l'inverse, si la régularisation est trop faible, l'erreur  $||Ax - b||_2$  sera faible, mais la norme de la solution  $||L(x - x_0)||_2$  sera importante du fait de la contribution des erreurs de mesures dans *b*. Il semble donc

naturel de tracer  $||Ax - b||_2$  versus  $||L(x - x_0)||_2$  en fonction du paramètre  $\lambda$ . C'est cette courbe que l'on nomme la L-Curve (Figure 74).



Afin de mieux comprendre la théorie derrière cette régularisation, décomposons A en valeurs singulières :

$$A = \sum_{i=1}^{n} u_i \sigma_i v_i^T, \qquad (3-16)$$

où les vecteurs singuliers gauche et droit sont orthonormaux, les valeurs singulières  $\sigma_i$  sont positives et rangées en ordre décroissant :

$$\sigma_1 \ge \sigma_2 \ge \dots \ge \sigma_n \ge 0. \tag{3-17}$$

La solution  $x_{\lambda}$  est alors donnée par :

$$x_{\lambda} = \sum_{i=1}^{n} \frac{f_i u_i^T b}{\sigma_i} v_i, \qquad (3-18)$$

avec les coefficients du filtre de Tikhonov :

$$f_i = \frac{\sigma_i^2}{\sigma_i^2 + \lambda^2} \tag{3-19}$$

On remarque que  $f_i \approx 1$  lorsque  $\lambda \ll \sigma_i$ .  $x_\lambda$  est alors très proche de x. Cependant, pour les valeurs singlulières extrêmement petites, celles qui font que la matrice A est mal conditionnée, ce filtre tend vers 0. La régularisation permet de supprimer l'impact chaotique des valeurs singulières extrêmement petites.

Les normes de la solution et de l'erreur commise sont alors données par :

$$\|x_{\lambda}\|_{2}^{2} = \sum_{i=1}^{n} \left( \frac{f_{i} u_{i}^{T} b}{\sigma_{i}} v_{i} \right)^{2}, \qquad (3-20)$$

$$\|Ax_{\lambda} - b\|_{2}^{2} = \sum_{i=1}^{n} \left( (1 - f_{i})u_{i}^{T}b \right)^{2}.$$
 (3-21)

En posant  $b = \overline{b} + e$ , *e* étant l'erreur de mesure, Hansen donne une condition pour qu'il existe une solution régularisée au problème donné. Il faut que les coefficients  $|u_i^T \overline{b}|$  de la décomposition en valeurs singulières de la solution exacte décroissent plus vite que les  $\sigma_i$ . Cette condition s'appelle la Condition de Picard Discrète (DPC). Lorsque cette condition est réalisée, Hansen montre que la L-Curve ressemble effectivement à un L dont la section horizontale est d'ordonnée  $\approx ||\overline{x}||_2 = ||A^{\dagger}\overline{b}||_2$ , et la partie verticale d'abscisse  $\approx ||e||_2$ .

Le paramètre de régularisation optimal se situe quant à lui au maximum de courbure de la L-Curve, c'est-à-dire au coin du L. En effet, ce point sépare la partie horizontale de la courbe, où la solution est dominée par les erreurs de régularisation, de la partie verticale, où la solution est dominée par les erreurs de mesures. Il s'agit donc d'un compromis entre ces deux domaines.

Cependant, Hansen montre que lorsque la solution est trop lisse, c'est-à-dire que la solution est dominée par les premières valeurs singulières, le  $\lambda$  optimal ne se situe pas toujours au coin du L. Hansen explique que ce comportement est dû au fait que la solution optimale  $x_{\lambda_{opt}}$ se situera au coin de la courbe si la norme  $||x_{\lambda}||_2$  commence à augmenter dès que  $\lambda$  devient plus petit que  $\lambda_{opt}$ . Or dans le cas d'une solution pas trop lisse, la diminution de  $\lambda$  se traduit très rapidement par la prise en compte de valeurs singulières significatives, qui augmentent donc la norme de la solution  $||x_{\lambda}||_2$ . Ce n'est plus le cas pour des solutions très lisses. En effet, une augmentation de  $||x_{\lambda}||_2$  nécessite alors la prise en compte d'un grand nombre de valeurs singulières, c'est-à-dire une réduction drastique de  $\lambda$ .

En pratique, il s'avère que la L-Curve n'est pas toujours parfaitement en forme de L lorsque les données sont trop bruitées. La L-Curve peut alors présenter plusieurs coins ou à l'inverse aucun. Cependant, dans ce cas, l'utilisation de cette méthode est avantageuse puisque la représentation graphique permet à un opérateur d'ajuster lui-même le paramètre de régularisation en fonction de la courbe qui lui est présentée.

### 3.2.2 Application à des liquides bulleux : théorie et simulations

Appliquons cette procédure de régularisation à l'inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité.

### 3.2.2.1 Mise en équations

Nous avons vu que dans le cas de milieux bulleux, l'équation à inverser est :

$$\underline{k}_m^2 = \frac{\omega^2}{c_{liq}} + 4\pi\omega^2 \int_0^\infty \frac{aN(a)}{\omega_{res}^2 - \omega^2 + 2i\beta\omega} da.$$
(3-22)

En séparant cette équation en parties réelle et imaginaire, on obtient deux équations de Fredholm du premier type [83] :

$$\begin{cases} u^{2} - v^{2} - 1 = \int_{0}^{\infty} k_{1}(f, a) N(a) da, \\ uv = \int_{0}^{\infty} k_{2}(f, a) N(a) da, \end{cases}$$
(3-23)

avec u et v les coefficients de célérité et d'atténuation adimensionnés présentés au Chapitre 2.

 $k_1$  et  $k_2$  sont des noyaux définis par :

$$\begin{cases} k_1(f,a) = \frac{(\omega_0^2 - \omega^2)a}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\beta^2 \omega^2}, \\ k_2(f,a) = \frac{\beta \omega a}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\beta^2 \omega^2}. \end{cases}$$
(3-24)

Selon Duraiswami [83], l'expression utilisant le second noyaux donne de meilleurs résultats dans le cas de mesures bruitées, vraisemblablement en raison de sa plus grande régularité (à l'opposé de l'antirésonance révélée par  $|k_1|$ .

 $|k_1|$  et  $k_2$  présentent un maximum local lorsque la fréquence d'insonification correspond à la fréquence de résonance de la bulle (Figure 75).



Figure 75 : Courbes des noyaux k<sub>1</sub> et k<sub>2</sub> pour différentes fréquences d'insonnification. k<sub>1</sub> comporte une partie positive et une partie négative dont la valeur absolue est tracée en pointillée [83].

Si pour une raison ou une autre, par exemple dans le cas d'une atténuation trop importante, il n'est pas possible de remonter à la célérité dans le milieu, il est encore possible, en utilisant la même procédure, d'inverser l'équation de l'atténuation :

$$\alpha(f) = 10\log(e) \int_0^\infty \sigma_e(f, a) N(a) da, \qquad (3-25)$$

où  $\sigma_e$  est la section efficace d'extinction.

L'inversion de l'équation (3-23) est privilégiée sauf dans le cas où la mesure de la célérité n'a pas pu être effectuée correctement. Dans ce cas, on utilisera l'équation (3-25).

Dans tous les cas, il est nécessaire d'inverser une équation de la forme :

$$\xi(f) = \int_{0}^{a_{max}} k(f, a) N(a) da.$$
 (3-26)

 $a_{max}$  étant idéalement légèrement plus grand que le rayon de la plus grosse bulle du nuage. La détermination de  $a_{max}$  sera présentée au § 3.2.2.3.

Cela donne en discrétisant :

$$N_{\lambda} = \arg\min_{N} ||KN - \Xi||_2, \qquad (3-27)$$

où *K* est la matrice d'intégration de taille  $N_f \times N_a$  avec  $N_f$  (resp.  $N_a$ ) le nombre de fréquences différentes de mesures (resp. le nombre de classes de rayon de l'histogramme *N*) ;  $\Xi$  est le vecteur mesure, de taille  $N_f \times 1$ , qui dépend des mesures d'atténuation et de célérité. En pratique, on choisira  $N_a = N_f$ .

Les  $K_{ij}$  sont alors définis par :

$$K_{ij} = \int_{a_{j-1}}^{a_{j+1}} k(\omega_i, a) B_j(a) da,$$
(3-28)

avec  $B_j$  la j<sup>ième</sup> B-Spline linéaire. Ces intégrales sont calculées en utilisant un schéma de Gauss-Legendre à 12 points afin de décrire au mieux les pics de résonance du noyau (Figure 75).

### 3.2.2.2 Optimisation sous contraintes

En pratique, la solution donnée par la L-curve  $N_{\lambda}$  n'est pas calculée directement en utilisant l'équation (3-15). En effet cette solution peut être négative ce qui est physiquement impossible. On préfère utiliser une méthode d'optimisation afin de pouvoir forcer la solution à être positive et d'intégrale finie (taux de vide contraint).  $N_{\lambda}$  est alors calculé comme étant la solution au problème :

$$N_{\lambda} = \arg \min \left\| \binom{KN}{\lambda L} - \binom{\Xi}{\lambda L N_0} \right\|_2, \qquad (3-29)$$

avec

3.2 - Caractérisation de milieu diphasique par résolution de l'équation du nombre d'onde équivalent

$$\begin{cases} \forall i \ N_i \geq 0, \\ \tau = \frac{4}{3}\pi \sum_i a_i^3 N_i < Cste, \end{cases}$$

où  $\Xi$  est issu de la discrétisation de  $\xi(f)$ .

Ce problème est résolu en utilisant un algorithme de minimisation des moindres carrés.



Figure 76 : Comparaison de la solution non contrainte calculée en utilisant (3-15) avec la solution contrainte calculée en utilisant (3-29).

On voit sur la Figure 76 l'apport de ces contraintes sur la qualité de la solution régularisée. Celle-ci correspond beaucoup plus à la solution « vraie » tracée en noir. Pour réaliser ces courbes, les courbes de dispersions sont calculées à partir d'une distribution donnée. Ces valeurs d'atténuation et de célérité sont ensuite légèrement bruitées afin de simuler une expérience mais surtout afin de rendre mathématiquement cohérente l'utilisation de la régularisation de Tikhonov.




Figure 77: Impact du paramètre de régularisation sur la solution.

La Figure 77 montre l'impact de la valeur du paramètre de régularisation sur la solution. Si aucune régularisation ni contrainte n'est appliquée, on obtient une solution de la forme présentée sur la Figure 78. On remarque que celle-ci n'est sans aucune commune mesure avec la solution réelle qui est ici une distribution de type log normale. Ensuite, au fur et à mesure que le paramètre de régularisation tend vers le paramètre optimal, la solution se rapproche de la solution vraie. À la régularisation optimale, il reste cependant certaines oscillations parasites dues à une sur-interprétation : l'inversion cherche à expliquer des erreurs de mesures par ajustements locaux de la densité de bulles. Cependant, on remarque qu'une régularisation plus importante n'est pas forcément le moyen adapté pour les faire disparaitre puisque dès que l'on augmente la valeur du paramètre de régularisation, la courbe devient certes plus lisse, mais elle s'éloigne significativement de la solution recherchée.

#### 3.2 - Caractérisation de milieu diphasique par résolution de l'équation du nombre d'onde équivalent



## 3.2.2.3 <u>Détermination de la borne d'intégration : introduction de la L</u>surface

Afin de procéder à la discrétisation de l'équation (3-23), il est nécessaire de limiter l'intervalle d'intégration par un rayon maximum  $a_{max}$  au-delà duquel on supposera le nombre de bulles négligeable. Dans la littérature, ce paramètre est fixé arbitrairement. Or, si on choisit  $a_{max}$  trop grand, la résolution de l'histogramme pour un nombre de mesures fixées sera insuffisante et la caractérisation de l'histogramme non fiable. A l'inverse, si  $a_{max}$  est trop faible, la Condition de Picard Discrète n'est plus respectée car l'histogramme solution ne sera pas en mesure d'expliquer toute l'étendue spectrale des dispersions. Nous n'avons de plus *a priori* aucune information sur la valeur de  $a_{max}$ .

L'idée est de calculer pour chaque valeur de  $a_{max}$  la L-curve correspondante ainsi que sa courbure. Pour cette étude, les courbes de dispersions ont été calculées à partir d'une distribution expérimentale mesurée optiquement (Figure 79). Un bruit gaussien a été ajouté aux données calculées. Cette distribution présente un nombre de bulles négligeable au-delà de  $a_M \approx 55 \ \mu m$ .



On construit ainsi une surface – que nous avons baptisée L-surface – présentant plusieurs domaines (Figure 80) :



Figure 80: L-Curve en fonction de amax.

Tant que  $a_{max} < a_M$ , les L-Curve ne présentent pas de coins bien définis car l'étendue spectrale de la solution ne permet pas d'expliquer les courbes de distributions expérimentales (synthétisées). Il n'y a pas de solutions physiquement acceptables. Par contre, dès que  $a_{max} \ge a_M$ , les L-Curve correspondent aux critères définis par Hansen, c'est-à-dire une zone plane horizontale et une zone plane verticale séparées par un coin marqué. Ceci est d'autant plus visible si on trace la courbure des L-Curve en fonction de  $a_{max}$  et  $\lambda$  (Figure 81). On notera qu'au-delà de 100 µm environ, le paramètre  $\lambda$  tend vers une valeur constante.



Il faut donc choisir  $a_{max} \ge 55 \ \mu m$ . Et afin d'avoir la meilleure résolution possible, c'est cette valeur de 55  $\mu m$  qu'il convient de sélectionner. En effectuant l'inversion sur les mesures simulées avec  $a_{max} = 55 \ \mu m$ , on obtient de bons résultats à l'image de la Figure 82.



Figure 82 : Résultat de l'inversion de la distribution avec  $a_{max} = 55 \ \mu m$ .

Tracer les L-curve en fonction de  $a_{max}$  permet d'estimer l'intervalle « optimal » d'intégration. Cependant, calculer un grand nombre de L-curve demande du temps. Il ne semble donc pas judicieux d'étendre cette méthode de sélection à d'autres paramètres tels que  $a_{min}$  ou le nombre de points de la solution. Ce dernier est donc choisi égal au nombre de mesures.

## 3.2.2.4 Evaluation de la robustesse de l'inversion

En pratique, les conditions expérimentales impliquent des limitations quant à la qualité des mesures. Les capteurs ont une bande passante finie, le bruit limite les mesures d'atténuation à un certain seuil, les capteurs présentent des phénomènes de diffraction... Quelques-uns de ces phénomènes pouvant altérer la qualité et la robustesse des mesures et de l'inversion sont discutés dans ce paragraphe.

## 3.2.2.4.1 Impact d'une bande passante finie

En pratique, les capteurs possèdent une bande passante finie qui limite la plage des fréquences mesurables. Comme il est en général plus complexe de travailler à basse fréquence, pour des raisons de réflexions parasites notamment, seule une variation de la partie inférieure de la bande passante est étudiée rapidement ici. Les simulations sont réalisées sur une population log normale de rayon moyen  $\approx 20 \mu m$  et présentant un taux de vide de  $10^{-5}$ . Il s'agit d'une population représentative de nos expériences. La courbe d'atténuation qui en découle est illustrée en Figure 83.



Figure 83 : Courbe d'atténuation de la distribution de bulles de la Figure 84.

L'inversion est réalisée sur des mesures comprises entre  $f_{min}$  et 700 kHz,  $f_{min}$  étant variable. Chaque inversion est réalisée sur 77 points de mesures.



Figure 84 : Impact de la bande passante sur les résultats.

Sur la Figure 84, on remarque que lorsque les mesures englobent la totalité des fréquences impactées par les bulles, le recouvrement de l'histogramme s'effectue de manière satisfaisante. Lorsque la bande passante balayée par les mesures se réduit, la caractérisation est encore possible tant que le maximum d'atténuation appartient à cette bande spectrale de mesures. Lorsque que le maximum d'atténuation est situé en dehors de la zone de mesure, on observe une forte disparité entre les différents résultats (Figure 85).

#### 3.2 - Caractérisation de milieu diphasique par résolution de l'équation du nombre d'onde équivalent



*Figure 85 : 4 inversions successives avec*  $f_{min} = 90 \ kHz$ . *La variation des erreurs de mesures implique des variations sur les résultats.* 

Il est donc prudent de couvrir une plage de fréquence suffisamment grande afin de garantir les résultats de l'inversion. Par contre, contrairement au modèle de Wood, il n'est pas nécessaire de réaliser des mesures très basses fréquences pour obtenir une estimation correcte du taux de vide.

#### 3.2.2.4.2 Impact du plafonnement des mesures d'atténuation

Du fait de la forte atténuation due à la présence bulles, il est courant que le signal transmis soit totalement atténué (non mesurable), notamment lorsque sa fréquence est proche des fréquences de résonance des bulles. La Figure 86 présente le maximum d'amplitude du spectre lors de mesures entre 10 kHz et 400 kHz. On voit clairement que le niveau de bruit est atteint entre 30 kHz et 190 kHz. Ceci se traduit par un plafonnement des mesures d'atténuation : l'amplitude du bruit est plus importante que l'amplitude du signal et limite les valeurs d'atténuation mesurables.



Figure 86 : Spectre d'une mesure large bande où l'atténuation devient trop importante.

Remarque : le nuage étant légèrement turbulent, les variations de composition empêchent de moyenner plusieurs signaux afin de réduire le niveau de bruit.



Figure 87 : impact de l'écrêtage de l'atténuation sur l'inversion.

La Figure 87 montre l'impact d'un écrêtage de l'atténuation sur les résultats de l'inversion. Le plafond a été progressivement abaissé de 50 dB en 50 dB. Pour cette distribution, le maximum d'atténuation est à 250dB (Figure 88). On remarque que jusqu'à 150 dB, l'inversion s'effectue relativement bien. Cependant, au-delà on observe une sous-estimation du nombre de bulles dont les fréquences de résonances correspondent aux fréquences où l'atténuation est limitée.



Par exemple, lorsque l'atténuation est limitée à 50 dB, l'étendue spectrale affectée par le seuillage s'étend de 28,16 kHz à 182,5 kHz (Figure 88), ce qui correspond à des bulles de rayons compris entre

18 µm et 117 µm. C'est effectivement cette plage de rayons qui se retrouvent sous-estimés lors de l'inversion.

Il est de fait conseillé de conserver un rapport signal à bruit suffisant pour limiter au maximum la troncature des mesures d'atténuation. Pour se faire, les capteurs sont la plupart du temps placés en vis-à-vis à quelques centimètres les uns des autres. Et dans le cas où une telle configuration s'avère impossible, il faut garder présent à l'esprit ce phénomène dans l'interprétation des résultats.

#### 3.2.2.4.3 Impact de la diffraction par les capteurs

Jusqu'à présent, les mesures étaient effectuées en considérant les ondes comme étant planes. Cependant, en pratique, ces ondes sont émises et reçues par des transducteurs de dimensions finies. Il y a donc un phénomène de diffraction de l'onde et l'hypothèse d'onde plane est discutable. Du fait de cet écart entre la théorie et la réalité, les résultats de mesures dépendent notamment de la distance *d* à laquelle ils sont effectués, et cette sensibilité du résultat de mesure est d'autant plus prononcée que la fréquence est basse [94]. Il est apparu important de vérifier que l'impact de la diffraction pouvait être négligé dans le cas de nos mesures précises d'atténuation et de célérité.



Figure 89 : effet de l'hypothèse d'onde plane sur les mesures [95].

Williams [96] expose le premier une théorie de la diffraction, théorie qui est notamment reprise par Khimunin [97]–[99] qui propose d'appliquer un coefficient correcteur  $H^{diff}$  afin de corriger les résultats. Ce coefficient est défini comme étant la pression moyenne sur le récepteur normalisé par la pression de l'onde plane qui règnerait au centre.

$$H^{diff} = \langle p \rangle / p_{plane}. \tag{3-30}$$

Supposons une onde générée par un transducteur de rayon *a* entouré d'un baffle infini et oscillant à la pulsation  $\omega$ . A une distance *z* de ce transducteur se trouve un « pseudo-récepteur » de rayon *b*. On parle de « pseudo-récepteur » car on suppose qu'il n'influe pas sur la pression qu'il reçoit.

Le fluide est caractérisé par sa célérité *c* et sa masse volumique  $\rho$ , et on suppose qu'il ne présente pas d'absorption. Dans le cas où b/a = 1, ce qui est notre cas expérimentalement, on utilise l'expression de Khimunin :

$$H^{diff}(ka,S) = 1 - \frac{4}{\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \exp\left[-i\frac{(ka)^2 S}{2\pi} \sqrt{1 + \left(\frac{4\pi}{Ska}\right)^2 \cos^2(\theta)}\right] \sin^2(\theta) d\theta,$$
(3-31)

où  $S = z\lambda/a^2$  est la distance à l'émetteur en nombre de longueurs de Rayleigh, avec  $\lambda$  la longueur d'onde et *z* l'axe de propagation.  $\theta$  est une variable d'intégration.

## <u>Effet sur la mesure de vitesse de Phase</u> La phase de $H^{diff}$ implique un décalage temporel égal à

$$t^{diff} = -\Phi(H^{diff})/\omega, \qquad (3-32)$$

où  $\Phi(H)$  est la mesure de la phase de H.

Le déphasage dû à la diffraction tend vers 90°, ce qui donne un déphasage de  $\lambda/4$ , comme présenté sur la Figure 89.

Ainsi, lorsque l'on souhaite mesurer la célérité d'un milieu, il est nécessaire de prendre en compte les effets de la diffraction, ou alors concevoir une expérience qui les annule.

Pour mesurer la célérité dans un milieu à bulles, on procède par substitution : on mesure le déphasage en une mesure de référence, dont la célérité  $c_{liq}$  est connue, et une mesure en eau bulleuse. Alors :

$$c_m = \frac{d}{\frac{d}{c_{lia}} + (t_{bulles} - t_{ref})}.$$
(3-33)

Ainsi, pourvu que la distance *d* entre les transducteurs soit suffisamment grand pour que  $\angle H^{diff} \approx 90^{\circ}$ , la diffraction n'a que peu d'effet sur la mesure. Cependant, si la distance de propagation est trop faible, comme la célérité du milieu n'est pas la même en présence et en absence de bulles,  $H^{diff}$  non plus, et un impact de la diffraction peut apparaitre.

La célérité réelle avec prise en compte de la diffraction est telle que :

$$\frac{1}{c} = \frac{1}{c^{plan}} + \frac{\delta t^{diff}}{d},\tag{3-34}$$

où c<sup>plan</sup> est la mesure non corrigée de la célérité et :

3.2 - Caractérisation de milieu diphasique par résolution de l'équation du nombre d'onde équivalent

$$\delta t^{diff} = t_{bulles}^{diff} - t_{ref}^{diff}$$

$$= -\frac{1}{\omega} \Big( \angle H_{bulles}^{diff}(\omega, d, \gamma) - \angle H_{ref}^{diff}(\omega, d, \gamma) \Big).$$
(3-35)

A titre d'exemple, pour un taux de vide de  $10^{-4}$ ,  $c^{plan} = 832.3 m. s^{-1}$ . Si la distance de propagation est de 30 cm, la fréquence de 10 kHz et b = a = 20 mm, alors  $\delta t^{diff} \approx 3.5 * 10^{-7} s$ , ce qui donne  $c = 831.2 m. s^{-1}$ , c'est à dire un taux de vide réel de  $\tau = 1.004 * 10^{-4}$ . A des taux de vides plus faibles, comme la différence de célérité est moindre, les effets de la diffraction se font moins sentir. A titre d'exemple, pour un taux de vide de  $10^{-6}$ , on a - à 30 cm - une erreur de  $-4.10^{-9} s$  due à la diffraction.

Les effets de diffraction sont donc négligeables dans le cadre de nos expériences.

#### Impact de la diffraction sur les mesures d'atténuation.

Si maintenant on prend en compte l'atténuation du milieu, le nombre d'onde est complexe et s'écrit :

$$k = k_0 - i\alpha, \tag{3-36}$$

où  $\alpha$  [ $m^{-1}$ ] est le coefficient d'atténuation du milieu.

Une onde plane se propageant dans ce milieu décroîtra alors de manière exponentielle :

$$P_{plane} = P_0 e^{i(\omega t - k_0 z) - \alpha z}.$$
(3-37)

L'onde diffractée aura quant à elle une amplitude moyenne sur la surface de réflexion égale à :

$$\langle p \rangle = P_0 e^{i(\omega t - k_0 z) - \alpha z} \times \left| H^{diff} \right|.$$
(3-38)

Avec la méthode de substitution, l'atténuation mesurée en  $db.m^{-1}$  est donnée par :

$$A_{Xp} = -\frac{20}{d} \log\left(\frac{|\langle p_{bulles} \rangle|}{|\langle p_{ref} \rangle|}\right).$$
(3-39)

Le signe "-" est là par convention pour avoir une atténuation positive.

Si on considère que l'atténuation intrinsèque de l'eau est négligeable devant celle due aux bulles, alors :

$$\frac{|\langle p_{bulles}\rangle|}{|\langle p_{ref}\rangle|} = \frac{|H_{bulles}^{diff}|}{|H_{ref}^{diff}|} \cdot e^{-\alpha.d},$$
(3-40)

et alors :

$$A_{xp} = 20 \log(e) \cdot \alpha - \frac{20}{d} \log\left(\frac{|H_{bulles}^{diff}|}{|H_{ref}^{diff}|}\right),$$
(3-41)

$$A_{Xp} = A_{theorique} - \frac{20}{d} \log \left( \frac{\left| H_{bulles}^{diff} \right|}{\left| H_{ref}^{diff} \right|} \right)$$

A<sub>theorique</sub> est l'atténuation donnée par Commander & Prosperetti [41].

If y a donc ajout d'un terme correctif  $\frac{20}{d} \log(|H_{bulles}^{diff}|/|H_{ref}^{diff}|)$ .

Lorsqu'on prend en compte ce terme, on remarque que son impact est largement négligeable, devant celui des bulles. En réutilisant l'application numérique précédente, à basse fréquences, le terme  $20 \log \left(\frac{|H_{bulles}^{diff}|}{|H_{ref}^{diff}|}\right) \approx 5$  qui est à comparer avec les milliers de dB/m théorique d'atténuation dues aux bulles à la récompare

à la résonance .

#### 3.2.2.4.4 Impact du temps de réponse des bulles

En 1986, Akulichev *et al.* [100] remarquent une dépendance des mesures de rétrodiffusion vis-à-vis de la longueur des trains d'ondes émis dans un nuage de bulles. L'intensité rétrodiffusée était d'autant plus faible que le train d'onde émis était court. Les auteurs expliquent que cet effet est dû au temps nécessaire à la bulle pour atteindre un état d'oscillation stationnaire.

Suiter [101] développe un modèle théorique pour expliquer ce phénomène. La section efficace d'extinction peut être considérée comme étant la somme des sections des bulles résonnantes et des bulles hors résonance :

$$\sigma_e(t) = \sigma_{nr} + \left(1 - e^{-\frac{2t}{t_0}}\right)\sigma_r,$$
(3-42)

où  $t_0$  est le temps nécessaire à la bulle pour effectuer  $Q/\pi$  oscillations, où  $Q = 1/\delta$  étant le facteur de qualité.

Alors, l'atténuation se développe sous la forme

$$\alpha(f,t) = 4.34 \int_0^\infty (\sigma_{nr} + \left(1 - e^{-\frac{2t}{t_0}}\right) \sigma_r) N(a) da.$$
(3-43)

L'atténuation serait donc dépendante du temps et de la durée de l'excitation sonore. Cependant, Suiter [101] et Pace [102] ont testé l'impact de la durée des trains d'ondes sur les mesures d'atténuation. L'un comme l'autre n'ont pu remarquer de différences fondamentales entre l'utilisation de courts ou longs trains d'ondes, contrairement aux mesures de rétrodiffusions effectuées par Akulichev.

#### 3.2 - Caractérisation de milieu diphasique par résolution de l'équation du nombre d'onde équivalent



Suiter propose 3 explications à ceci :

- 1. La théorie sous-estime la contribution des bulles non résonnantes. Or ces bulles atteignent plus rapidement l'état stationnaire que les bulles résonnantes.
- 2. Les trains d'ondes courts utilisés n'étaient peut-être pas assez courts.
- 3. La période transitoire est peut-être beaucoup plus courte que la simple dépendance exponentielle ne peut l'expliquer.

Pace avance non seulement l'argument de la contribution des bulles non résonnantes, mais aussi le fait que la diffusion multiple peut masquer les effets transitoires.

Dans le cas de mesures d'atténuations par émissions de trains d'ondes quasi-monochromatiques sur des nuages polydisperses, la correction due au temps nécessaires aux bulles pour atteindre l'état stationnaire ne semble donc pas nécessaire.

#### 3.2.3 Application aux milieux bulleux : expérimentations

Cette procédure une fois validée en théorie, des essais en eau ont été effectués dans ACWABUL. Les résultats obtenus ont été comparés à ceux obtenus optiquement.

#### 3.2.3.1 Application à une population monomodale

La distribution de bulle considérée est la même que celle présentée dans le paragraphe précédent (Figure 91).



Celle-ci est générée dans la cuve d'ACWABUL en utilisant des injecteurs CARMIN en rideaux.



Les courbes de dispersions sont présentées Figure 92. Les mesures ont été effectuées entre 10 kHz et 400 kHz. Les courbes de dispersions mesurées correspondent bien avec celles calculées à partir de la distribution obtenue grâce au dispositif optique. On remarque de légères oscillations dans les mesures à basse fréquences. Celles-ci sont dues aux réflexions entre les capteurs. En effet, afin de minimiser l'atténuation et maintenir un RSB suffisant à la résonance des bulles, les capteurs sont placés à quelques centimètres l'un de l'autre. Ceci permet d'avoir une mesure propre à la résonance, qui est la zone critique, au détriment d'une mesure à basses fréquences légèrement plus bruitée.

Ces mesures ont été utilisées pour générer la L-Surface présentée Figure 93. La valeur de  $a_{max}$  sélectionnée est de 98 µm. Cette valeur est supérieure aux 55 µm obtenus précédemment du fait justement du bruit à basse fréquence qui crée des populations fictives de grosses bulles lors de l'inversion.



Figure 93 : L-Surface correspondante à l'inversion de la population monomodale.

Les résultats de l'inversion sont présentés Figure 94. L'adéquation entre histogramme optique et distribution inversée est très importante avec un coefficient de corrélation de 0,81. Les taux de vides sont aussi très proches l'un de l'autre avec respectivement  $1,9 \times 10^{-5}$  pour la mesure optique et  $1,8 \times 10^{-5}$  calculé à partir de l'histogramme acoustique obtenu par inversion.



<u>Figure 94 : Résultat de l'inversion de la population monomodale. Les barres en bleu clair correspondent à la zone</u> <u>où la caméra sous-estime le nombre de bulles.</u>

Les écarts visibles aux faibles rayons sont imputables à la gamme de rayons correctement mesurables par la caméra. En effet, la densité des plus petites bulles est certainement sous-estimée pour plusieurs raisons. Tout d'abord, certaines d'entre elles peuvent être masquées par des bulles plus grosses. Ensuite, la profondeur de visibilité  $prof_v$  des plus petites bulles est réduite. Enfin et surtout, la résolution du couple caméra + optique n'est pas suffisante pour détecter et caractériser finement les bulles de rayons inférieurs à une douzaine de microns.

Si on se limite aux rayons  $\ge 12 \ \mu m$ , le coefficient de corrélation entre les histogrammes équivaut à 0,96.

#### 3.2.3.2 Application à une population bimodale

En utilisant des injecteurs capillaires produisant de plus grosses bulles, il est envisagé la création d'un un nuage présentant 2 populations distinctes. Cependant, plusieurs difficultés se sont présentées : tout d'abord, les capillaires génèrent chacun un chapelet de bulles. De fait, la valeur du taux de vide mesuré par la caméra ( $\tau = 1.2 * 10^{-4}$ ) correspond au taux de vide associé à ces chapelets, et non au taux de vide effectif entre les transducteurs. Afin de palier ce défaut, le taux de vide optique a été ajusté numériquement de manière à ce que les courbes de dispersion correspondent au mieux. Le taux de vide « de référence » est alors de 4 \* 10<sup>-5</sup>.



Ensuite, il s'est avéré que ce nuage présente des bulles trop grosses pour les gammes de fréquence mesurables par nos transducteurs (Figure 95). Afin de complètement caractériser le nuage, il aurait fallu pouvoir descendre à plus basses fréquences, typiquement autour de 1kHz, ce qui pose alors des problèmes de bande passante des traducteurs et de réflexions importantes.



Figure 96 : L-Surface de la population bimodale.

La L-Surface donne une valeur de  $a_{max} \approx 110 \mu m$  (Figure 96), ce qui est inférieur au rayon des plus grosses bulles mesurées. Cette valeur sous-estimée résulte ainsi de la bande passante trop étroite de nos capteurs.



Figure 97 : Inversion de la population bimodale.

Néanmoins, l'inversion permet de reconstruire relativement correctement la population de plus petits rayons dont les fréquences de résonance sont comprises dans la bande passante de nos capteurs. De plus, on remarque la présence d'un pic à  $\approx 66 \ \mu m$  qui correspond au début de la seconde population.

Ensuite, si on extrapole les données acoustiques avec l'atténuation et la célérité calculées à partir des données optiques, on remarque que les deux populations sont correctement estimées. Ceci montre que même si la bande passante s'avère être trop étroite pour englober la totalité des bulles du nuage, l'inversion fonctionnera quand même correctement pour retrouver des populations de bulles dont les fréquences de résonances correspondent aux fréquences scannées.

#### 3.2.3.3 Application au suivi de l'évolution d'un nuage

Une expérience a été menée pour tester la capacité de cette méthode à suivre l'évolution d'un nuage de bulles. La génération du nuage est modifiée entre chaque mesure en faisant varier la vitesse de rotation de la pompe d'injection. Un débit plus important en entrée d'injecteur se traduit par une augmentation du nombre de bulles générées et de fait par un taux de vide plus important.



Cette augmentation est confirmée à la fois par les mesures des taux de vides optiques et par celles issus de l'inversion. Ceux-ci sont fortement corrélés à la vitesse de rotation de la pompe comme le montre la Figure 98. De plus encore une fois, le taux de vides optiques et acoustiques sont très proches.

Il apparait d'ailleurs que le débit en entrée de la pompe d'affecte que peu le rayon moyen du nuage de bulles ainsi que son écart type (Figure 99).



Figure 99 : Suivi du rayon moyen et de l'écart type issu des histogrammes acoustiques.

Lorsqu'on observe les différents histogrammes, il s'avère que les inversions successives sont toutes pertinentes alors qu'aucune supervision particulière n'est appliquée (Figure 100). Les paramètres de régularisation ont tous été déterminés automatiquement. Seule la gamme d'inversion a été fixée au préalable en utilisant la L-Surface.



Figure 100: Histogrammes obtenus lors du monitoring.

## 3.2.4 Conclusion sur la caractérisation via régularisation de Tikhonov

L'inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité basée sur la régularisation de Tikhonov a montré sa capacité à caractériser des nuages de bulles sans hypothèses *a priori*, ni variables d'ajustement à fixer par l'expérimentateur. Cette méthode est capable de suivre l'évolution d'un nuage de bulles, et notamment son taux de vide. Ceci permet de s'affranchir des contraintes liées à l'utilisation de la célérimétrie basse fréquence (utilisation d'onde de fréquences largement inférieures à la fréquence de résonance des plus grosses bulles). De plus le dispositif est particulièrement simple et facilement transposable à des applications industrielles variées.

La gamme de rayons caractérisables est directement fonction de l'étendue des fréquences balayées. Cependant, la présence de bulles en dehors de cette gamme n'empêche pas d'estimer la distribution de bulles appartement à cette bande spectrale.

#### 3.3 AJUSTEMENT DE DONNEES

La régularisation de Tikhonov fonctionne, mais elle présente un nombre élevé de degrés de libertés. Or ceci peut être problématique car il peut induire une interprétation erronée des données. Il peut être préférable de limiter le nombre de degrés de liberté dans certains cas.

#### 3.3.1 Principe

Généralement, les nuages de bulles présentent des distributions relativement simples, similaires à des distributions log-normales ou gaussiennes. L'idée est donc ici de réduire le nombre de degrés de libertés en supposant *a priori* une distribution soit log normale soit constituée d'une somme de m = 5 gaussiennes dans le cas de populations plus complexes :

Description par un log normal : 
$$N(a) = \frac{c}{a\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\ln(a)-\mu)^2}{2\sigma^2}}$$
,  
(3-44)

Description par *m* gaussiennes : 
$$N(a) = \sum_{i=1}^{m} \frac{c_i}{a\sigma_i \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(a-\mu_i)}{2\sigma_i^2}}$$
,

où *C* est un facteur d'échelle permettant d'atteindre un taux de vide fixé.  $\mu$  et  $\sigma$  sont l'espérance et l'écarttype de la distribution.

Ensuite, une minimisation quadratique permet de déterminer les paramètres de cette distribution qui ajustent au mieux les courbes d'atténuation et de célérité calculées à celles mesurées :

$$\begin{aligned}
\min_{x} \left\| F(x,f) - \begin{bmatrix} \nu \\ u \end{bmatrix} \right\|, \\
avec \\
\begin{cases} \forall i \ N_i \ge 0 \\ \tau = \frac{4}{3}\pi \sum_{i} a_i^3 N_i < Cste, \end{cases}
\end{aligned}$$
(3-45)

où *u* et *v* sont les coefficients de célérité et d'atténuation adimensionnés mesurés. F(x, f) calcule *u* et *v* en fonction des paramètres *x* et de la fréquence :

$$F: (x, f) \to \begin{bmatrix} v_x(f) \\ u_x(f) \end{bmatrix}$$

avec u et v tels que:

$$\begin{cases} \alpha_{bulles} = \frac{\omega v}{c_l}, \\ c_{bulles} = \frac{c_{liq}}{u}. \end{cases}$$

(2 46)

lci,  $\alpha_{bulles}$  et  $c_{bulles}$  sont l'atténuation et la célérité équivalentes du nuage de bulle.

Dans le cas d'une population présentant une distribution log normale, 3 paramètres sont à déterminer -  $C, \mu, \sigma$  - et 3 \* m dans le cas de la somme de gaussiennes. Contrairement à la méthode numérique décrite et mise en œuvre précédemment, cette méthode ne constitue pas de l'inversion.

Cette méthode d'identification de paramètres ne procède pas à une inversion de données à proprement parler. Elle présente l'avantage de gommer toutes les oscillations parasites inhérentes aux approches par décomposition spectrales. Elle nécessite en outre moins de points de mesures pour être efficace. Toutefois, il est nécessaire de choisir correctement les valeurs initiales des paramètres lors de la minimisation, sinon l'ajustement peut échouer. Cela implique un minimum de connaissances *a priori* sur les caractéristiques du nuage de bulles en présence.

## 3.3.2 Applications

Les données issues des deux populations expérimentales sur lesquelles nous avons appliqué la technique d'inversion précédente ont été utilisées pour réaliser l'identification paramétrique. Les résultats sont présentés Figure 101 et Figure 102.



Figure 101 : Résultats de la caractérisation par ajustement de courbes pour une population monomodale

Sur la Figure 101, les deux types de populations ajustées sont présentés : log normale et somme de gaussiennes. Dans les deux cas, et comme pour la régularisation de Tikhonov, la distribution de bulles est correctement approchée et le taux de vide correctement estimée. Remarque, les bulles de rayons inférieurs à 12µm sont certainement sous estimées par la caméra.



Figure 102 : Résultat de l'ajustement de gaussiennes sur une population bimodale

Pour ce qui est de la population bimodale, la population de petites bulles est correctement estimée car c'est celle dont les fréquences de résonance se situent dans la plage des fréquences mesurées. De plus, comme pour la régularisation de Tikhonov, un pic à  $\approx$  70 µm traduit la présence d'une population de bulles de plus grosses tailles. Mais, leurs fréquences de résonance étant inférieures à la borne basse de la bande passante de nos capteurs, cette population n'a pas pu être entièrement retrouvée. Cependant, comme le montre les simulations (Figure 103), si toutes les fréquences de résonances des bulles du nuage étaient comprises dans la bande passante des capteurs, les deux populations auraient été correctement retrouvées par un ajustement exploitant des sommes de gaussiennes. A l'opposé, cette population n'aurait pas pu être retrouvée en admettant *a priori* une distribution log normale.



Figure 103 : Ajustement de données calculées à partir de la distribution optique. Chaque gaussienne est représentée.

## 3.3.3 Conclusion sur la caractérisation via ajustement de données

Contrairement à l'inversion directe de l'équation du nombre d'onde équivalent, le nombre de degrés de liberté est entièrement fixé par le choix de population à ajuster. Ceci limite la surinterprétation et donc les pics parasites présents lors de la régularisation de Tikhonov. Cependant, cela suppose une connaissance minimale du type de distribution attendue dans le milieu. Des populations plus exotiques pourraient ne pas être correctement estimées par cet ajustement, bien que 5 gaussiennes semblent convenir à la grande majorité des cas réels possibles. Idéalement il faudrait adapter le nombre de gaussiennes utilisées à chaque situation, en l'incrémentant jusqu'à ne plus observer d'évolution de la solution. Dans les faits cela requiert un temps de calcul important.

## 3.4 APPLICABILITE INDUSTRIELLE : MESURES AVEC DES TUSHT

Jusqu'à présent, toutes les expériences ont été menées avec des bulles d'air en eau, en utilisant des transducteurs du commerce. Cependant, ces transducteurs ne sont pas compatibles avec le sodium liquide, qui est extrêmement réducteur et dont la température se situe entre 450°C et 550°C dans le circuit primaire des RNR-Na. Le CEA a donc développé dans les années 80 un capteur adapté aux conditions d'un RNR-Na : le TUSHT pour Traducteur UltraSonore à Hautes Températures.

## 3.4.1 Le TUSHT

Le TUSHT est un transducteur compatible avec le sodium liquide à 550°C et pouvant fonctionner sous irradiations. Il est constitué d'un élément piézoélectrique en Niobate de Lithium LiNbO<sub>3</sub> dopé et brasé sur une lame d'acier inoxydable.

Du fait des fortes températures, aucun backing<sup>\*</sup> n'est adjoint à la pastille piezoélectrique du TUSHT. Aussi, contrairement aux transducteurs classiques, les TUSHT présentent des pics de résonance à différentes fréquences. Pour la version dite 4540 constituée d'une pastille piézoélectrique de 40mm de diamètre, ces pics se situent aux fréquences 0,69 MHz, 1,52 MHz, 2,25 MHz, 2,96 MHz et 4,5 MHz [103] (voir Figure 105). Du fait de ces résonances, l'utilisation de TUSHT non amortis sur une large plage fréquentielle implique donc de modifier la résolution en tension de l'oscilloscope en fonction de la fréquence afin d'être toujours le mieux résolu possible. De plus, un TUSHT excité à une de ses résonances oscillera encore longtemps après la fin du signal et atteindra son maximum d'excitation au bout d'une dizaine d'oscillations (Figure 106). Ceci a pour effet de réduire la résolution temporelle lors de la mesure de temps de vol. En conséquence, les mesures de célérité ne sont pas exploitées à ce stade.



Dans la gamme 10 kHz - 200 kHz, les sensibilités mesurées sont de l'ordre de 10<sup>-2</sup> à 10<sup>-3</sup> pC.Pa<sup>-1</sup> (Figure 104), c'est-à-dire du même ordre de grandeur qu'un hydrophone B&K 8103 d'utilisation courante en acoustique sous-marine.

<sup>\*</sup> Couche accolée à l'arrière de la pastille piézoélectrique afin de fournir un amortissement.

Chapitre 3 - Inversion de mesures d'atténuation et de célérité.



#### 3.4.2 Résultats

Deux TUSHT 4540, ont été utilisés pour estimer leur aptitude à caractériser un nuage de bulles via la mise en œuvre d'une inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité. Du fait d'un artefact électrique présent à t=0 sur le signal de l'oscilloscope (Figure 106) d'amplitude comparable aux signaux hors résonance, les TUSHT sont plus éloignés l'un de l'autre (d = 16 cm) relativement aux expériences précédentes (d = 5 cm). Ceci implique des signaux largement plus atténués et une adéquation entre le taux de vide optique et celui régnant entre les TUSHT moins bonne. En effet la caméra mesure le taux de vide au sein du rideau de bulles, d'une épaisseur de quelques centimètres, alors que les TUSHT sont soumis à un taux de vide moyen plus faible en étant placés de part et d'autre de ce rideau.



Figure 106 : Train d'onde de 10 oscillations à 660 kHz transmis entre 2 TUSHT avec et sans bulle. Les premiers moments du signal sont agrandis pour montrer l'artefact électrique.

Les différentes courbes d'atténuation obtenues sont présentées Figure 109. On remarque que l'atténuation mesurée correspond bien à celle calculée à partir de la distribution optique entre 50 et 150 kHz. Au-delà, l'atténuation reste élevée contrairement à celle déduite de la distribution optique. Cela explique la forme des résultats présentés Figure 111. Comme les TUSHT sont plus espacés que les capteurs précédents, les oscillations basses fréquences ont disparu. Par contre cela se traduit par un plafonement de l'atténuation lorsque le RSB devient trop faible : c'est l'amplitude du bruit qui est pris en compte en lieu et place du signal.

La Figure 107 illustre bien ce phénomène. Le signal émis à 300 kHz est entièrement atténué. Par contre, la résonance à 660 kHz du TUSHT est parfaitement visible et résiste bien à l'atténuation. Ceci illustre l'intérêt d'utiliser l'analyse spectrale afin de déterminer atténuation et célérité. Dans le cas d'analyse temporelle (RMS<sup>\*</sup> et inter corrélation), on aurait alors comparé un signal à 300 kHz avec un signal centré sur 660 kHz puisque la composante à 300 kHz à disparue (Figure 108).



Figure 107 : Spectre d'un train d'onde émis à 300 kHz en l'absence et en présence de bulles. Le signal est entièrement atténué en présence de bulles.

<sup>\*</sup> Root Mean Square



Ce plafonnement peut se traduire par une sous estimation des bulles dont les fréquences de résonance sont comprises dans cette zone (cf. § 3.2.2.4).



Figure 109 : Atténuation mesurée et estimée.

La L-Surface obtenue est présentée Figure 110. La valeur de  $a_{max}$  est de 52 µm. La L-curve sélectionnée présente un angle bien marqué entre deux sections rectilignes ce qui donne confiance dans la qualité du résultat.



Figure 110 : L-Surface obtenue avec les TUSHT

Les résultats issus de la régularisation ainsi que des ajustements sont présentés Figure 111. On remarque une forte disparité pour les bulles les plus petites.



Figure 111 : Résultats d'inversions en utilisant des TUSHT

#### 3.4.3 Conclusion sur la caractérisation de nuages via l'utilisation de TUSHT

La caractérisation de nuages de bulles en utilisant des TUSHT est prometteuse. Cependant, le caractère non amorti (et résonnant) des TUSHT impose des contraintes supplémentaires à l'utilisation

de transducteurs classiques. Cela impose en premier lieu de redéfinir à chaque fréquence la résolution en amplitude de l'oscilloscope (pour le Picoscope 4824, celle-ci est de 12 bits). Cela rallonge de fait le temps de mesure car les données ne peuvent pas être stockées dans la mémoire interne du Picoscope d'une fréquence à l'autre et doivent être transmise à chaque fois vers la mémoire de l'ordinateur. Il faudrait aussi dans l'idéal adapter l'amplitude des ondes générées afin de ne pas exciter trop fortement les bulles à la résonance des TUSHT et rester dans le domaine linéaire.

Ensuite, les résonances des TUSHT limitent la résolution temporelle des mesures de temps de vol car le moindre train d'onde résonant transmis fait vibrer le capteur sur une durée bien plus longue que celle du train d'onde (Figure 106).

Enfin, des parasites électriques présents au début des signaux empêchent de placer les capteurs en proximité car l'amplitude de ces parasites est parfois comparable à celle des signaux reçus et perturbent les mesures. Notons que lors de d'expériences en sodium, ces parasites n'ont pas été observés.

Les TUSHT présentent néanmoins l'avantage de pouvoir travailler correctement entre 10 kHz et plusieurs MHz, ce qui est très intéressant pour nos applications puisque l'intervalle mesurable est très étendu.

## 3.5 CONCLUSION DU TROISIEME CHAPITRE

Nous avons vu dans ce chapitre deux méthodes de caractérisation basées sur des mesures spectrales d'atténuation et de célérité. La première se fonde sur l'inversion de l'équation intégrale du nombre d'onde équivalent et utilise la technique de régularisation de Tikhonov. Le paramètre de régularisation est déterminé en utilisant une courbe paramétrique traçant la norme de la solution versus la norme de l'erreur : la L-Curve. La valeur optimale du paramètre est celle qui correspond à l'angle de la courbe en L. Afin de déterminer au mieux l'intervalle d'intégration, une méthode a été développée. Elle consiste à comparer les L-Curves correspondant à différentes valeurs de limite supérieure d'intégration. Le rayon sélectionné est alors le premier qui donne une courbe en L correspondantes aux caractéristiques décrites par Hansen. L'application de cette méthode à des données expérimentales est particulièrement concluante, tant sur la forme des distributions obtenues que sur les valeurs du taux de vides calculées. L'inversion de telles mesures permet notamment de mesurer le taux de vide en s'affranchissant en partie des contraintes inhérentes à la célérimétrie basse fréquence, c'est-à-dire travailler à basse fréquence. Par ailleurs, elle ne nécessite aucune connaissance a priori portant sur la distribution de bulles. La capacité de cette méthode à suivre l'évolution d'une population de bulle a aussi été démontrée expérimentalement.

L'autre méthode de caractérisation consiste à ajuster des distributions prédéfinies afin que les valeurs théoriques d'atténuation et de célérité correspondent au mieux aux mesures expérimentales. Cette approche présuppose une certaine connaissance de la forme des distributions possibles. Dans notre cas, celles-ci sont généralement de type log-normal. Cependant, afin d'augmenter le nombre de degrés de liberté, une population constituée d'une somme de 5 gaussiennes a aussi été étudiée. L'identification paramétrique réalisée a aussi montré une réelle capacité à caractériser des nuages de bulles. Le Tableau 4 détaille les avantages et inconvénients de chaque méthode.

L'ajustement de courbes est intéressant dans le cas où on a une idée *a priori* de la population de bulles en présence. De plus, comme il s'agit d'une identification paramétrique, elle est moins sensible aux bruits de mesures puisqu'elle trouve naturellement un compromis et lisse les données. A l'opposé, la régularisation de Tikhonov, du fait de son grand nombre de degrés de liberté, cherche à expliquer chaque écart de mesure, ce qui amène à des populations inexistantes en réalité. Cependant, lorsque l'on a aucune idée de la population initiale, la régularisation de Tikhonov semble plus adaptée en choisissant le  $a_{max}$  à partir de la méthode de la L-Surface précédemment décrite.

	Inversion et Régularisation de Tikhonov	Ajustement de distributions
Avantages	Souple, permet la reconstruction de populations complexes.	<ul> <li>Nombre de degrés de libertés réduit : calculs rapides, pas de populations parasites dues à une sur-interprétation.</li> <li>Faible dépendance au bruit de mesure.</li> <li>En cas d'étendue spectrale limité, permet de proposer une solution cohérente.</li> <li>Nombre réduit de points de mesures.</li> </ul>
Inconvénients	<ul> <li>Forte dépendance à la qualité des mesures.</li> <li>Paramètres d'ajustement optimaux parfois complexes à déterminer.</li> </ul>	<ul> <li>Connaissance approximative de la population recherchée nécessaire pour fixer la distribution de base.</li> <li>Peut être sensible à la population initiale proposée.</li> <li>Ne permet pas de retrouver les populations les plus complexes.</li> </ul>

Tableau 4 : avantages et inconvénients de l'inversion et de l'ajustement de courbes.

De nombreuses mesures expérimentales ont permis de valider ces méthodes de caractérisation. Les mesures réalisées sur le banc ACWABUL ont été automatisées via l'utilisation de scripts Matlab. Les mesures acoustiques ont été validées grâce à l'utilisation de dispositifs optiques couplés à des algorithmes originaux permettant d'estimer l'histogramme de distribution des rayons ainsi que le taux de vide du nuage en présence.

Ces travaux ont fait l'objet de présentations en conférences :

- 16th Anglo-French Physical Acoustics Conference, 23 Janvier 2017, Marseille [106]
- ESNII Conference, 2-5 Mai 2017, Mol (Belgique) [107]
- Acoustics '17, 25-29 Juin 2017, Boston (USA) [108]

ainsi qu'une publication soumise à Ultrasonics.

Bien que prometteurs, pour des taux de vides très faibles, les effets acoustiques linéaires peuvent s'avérer limités pour permettre l'application de telles méthodes [64]. Il est alors intéressant de se tourner vers des approches exploitant le caractère fortement non linéaire de l'acoustique des bulles. C'est l'objet du chapitre suivant.

# CHAPITRE 4 MESURES DU COEFFICIENT DE NON LINEARITE.

## 4.1 INTRODUCTION

Nous avons vu au chapitre précédent que les méthodes d'inversion de mesures linéaires étaient particulièrement efficaces. Cependant, comme le note Welsby [64] et est illustré par la Figure 112, les effets linéaires apparaissent pour des taux de vides supérieurs à  $10^{-7} / 10^{-6}$  alors que des effets non linéaires peuvent apparaitre à des taux de vides bien plus faibles, de l'ordre de  $10^{-9}$ .



Figure 112 : Célérité et coefficient non linéaire à basse fréquence en fonction du taux de vide.

De plus, la dynamique d'évolution en fonction du taux de vide des effets non linéaires est bien plus importante que pour celle liée aux effets linéaires. Par exemple, lorsque le taux de vide passe de  $10^{-6}$  à  $10^{-5}$ , la célérité basse fréquence est réduite d'environ 8% alors que le coefficient non linéaire augmente de 660% !

Aussi, il semble envisageable de pouvoir caractériser des nuages ayant des taux de vides extrêmement faibles alors qu'aucune variation de célérité ou d'atténuation ne soit notables, et de quantifier les évolutions de faibles taux de vide avec une dynamique accrue. De tels nuages ayant réellement un impact significatif sur la cavitation ou l'ébullition, il est intéressant de pouvoir permettre leurs caractérisations.

Ce chapitre débutera par un état de l'art des méthodes de caractérisation se basant sur l'utilisation de propriétés non linéaires de la dynamique des bulles. Dans une seconde partie seront présentés les résultats de l'inversion de mesures spectroscopiques du coefficient de non linéarité.

## 4.2 <u>METHODES NON LINEAIRES DE CARACTERISATION DE MILIEUX</u> <u>DIPHASIQUES</u>

Les méthodes de caractérisation utilisant les propriétés non linéaires des bulles sont apparues après le développement des méthodes linéaires présentées dans le chapitre précédent. Les avantages principaux de telles méthodes est qu'elles permettent d'une part de discriminer les bulles d'autres particules – en particulier solides – et d'autre part de lever l'ambiguïté entre bulles résonnantes et grosses bulles possédant la même section d'extinction.

Trois grands axes de caractérisation seront présentés: la recherche d'harmoniques et en particulier du 2<sup>nd</sup> harmonique, différentes techniques de mixages de fréquences et enfin des méthodes dérivées de la caractérisation par spectroscopie acoustique.

## 4.2.1 Recherche du second harmonique

Une des premières méthodes utilisant les propriétés non linéaires des bulles est proposée par Miller en 1981 [109]. L'idée est de lever l'ambiguïté entre bulles résonnantes et grosses bulles lors de la mesure du 1<sup>er</sup> harmonique, en mesurant le 2<sup>nd</sup> (Figure 113). En effet, seules les bulles résonnantes présentent un comportement non linéaire et il est donc ainsi possible de distinguer les grosses bulles des bulles résonnantes. Ce principe est à la base de nombreuses techniques de caractérisation non linéaire.



<u>Figure 113 : Pression émises aux 2 premiers harmoniques en fonction du rayon de la bulle.</u> <u>Le rayon à la résonance est de 2 µm.</u>

En émettant une onde d'amplitude finie dans un milieu bulleux, l'apparition de l'harmonique 2 traduit la présence de bulles résonnantes. La relation entre fréquence de résonance et rayon associé étant explicite, il est ainsi possible d'en déduire la valeur du rayon.

Cependant, quelques limitations à ce principe apparaissent. Premièrement, la présence d'harmoniques peut être due à la non-linéarité du milieu (faible s'il s'agit d'eau) ainsi qu'à la chaine électronique d'émission-réception. Il est donc nécessaire de quantifier préalablement ces effets afin de limiter le nombre de faux positifs. Ensuite, si on considère que les phénomènes non linéaires sont uniquement dus aux bulles, la présence de bulles résonnantes à f/2 conduit aussi à l'apparition d'harmoniques à f. Ceci se remarque par le petit décrochement à 1 µm sur la Figure 113. Il y a donc une ambiguïté entre les bulles résonnantes et les bulles deux fois plus grosses.

Par ailleurs, considérant un nuage polydisperse, la fréquence 2 \* f peut correspondre à la fréquence de résonance de bulles plus petites. Or, à la résonance , l'atténuation est maximale et peut donc conduire à la « disparition » de l'harmonique.

Cette technique est donc surtout efficace pour mesurer le rayon de bulles dans des nuages relativement monodisperses.

#### 4.2.2 Mixage de fréquences

#### 4.2.2.1 <u>Principe</u>

Lorsque deux ondes de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  se propagent dans un milieu non linéaire, l'interaction de ces ondes donne naissance aux composantes sommes et différences de ces fréquences  $\omega_{\pm} = \omega_1 \pm \omega_2$ .

L'apparition de ces deux composantes est due d'une part à la propagation dans un milieu non linéaire et d'autre part à la réponse non linéaire des bulles lorsqu'elles sont soumises à un champ acoustique.

Dans le cadre de petites oscillations, l'expression du rayon peut s'écrire sous la forme :  $R(t) = R_0(1 + x(t))$ ,  $x \ll 1$ . L'équation de Rayleigh Plesset se simplifie alors à l'ordre 2 et donne :

$$\rho_{l}R_{0}^{2}(1+x)\ddot{x} + \frac{3}{2}\rho_{l}R_{0}^{2}\dot{x}^{2}$$

$$= \left(p_{0} + \frac{2\sigma}{R_{0}}\right)\left(1 - 3\gamma x + \frac{3}{2}\gamma(3\gamma + 1)x^{2}\right) - p_{0}$$

$$+ \left(\frac{2\sigma}{R_{0}}\right)(1 - x + x^{2}) - 4\mu(\dot{x} - x\ddot{x}) + p_{1}\cos(\omega_{1}t)$$

$$+ p_{2}\cos(\omega_{2}t).$$
(4-1)

Une solution de cette équation peut s'écrire sous la forme :

$$x = A_0 + A_1 \cos(\omega_1 t + \Phi_1) + A_2 \cos(\omega_2 t + \Phi_2) + A_3 \cos(2\omega_1 t + \Phi_3) + A_4 \cos(2\omega_2 t + \Phi_4) + A_5 \cos(\omega_+ t + \Phi_5) + A_6 \cos(\omega_- t + \Phi_6).$$
(4-2)

Les coefficients  $A_i$  sont donnés par Newhouse et Shankar [110]. Les premiers travaux expérimentaux sur le mixage de deux fréquences ont été effectués par Kobelev [111] en se basant sur les travaux théoriques de Zabolotskaya [112]. Kobelev est l'un des premiers à s'intéresser à l'impact d'une distribution polydisperse des rayons, là où ses prédécesseurs se contentaient de nuages monodisperses.

Plusieurs méthodes de caractérisation utilisent le mixage de fréquences pour en déduire la taille et le nombre des bulles en présence. La plupart utilisent une onde d'imagerie, de haute fréquence  $f_2$  et une onde « pompe » proche de la fréquence de résonance des bulles  $f_1 \approx f_{res}$ . Le principal intérêt de ces techniques est que les mesures se font à des fréquences proches de la fréquence d'imagerie, c'est-àdire en dehors de la zone d'atténuation des bulles et dans la bande passante du capteur émetteur de l'onde d'imagerie.

On peut aussi faire interagir deux ondes hautes fréquences afin que la fréquence différence soit à la fréquence de résonance des bulles étudiées.

La pression émise à une distance r de la bulle, dans le cas où  $f_1 \approx f_{res}$  et  $f_2 \gg f_1$  (méthode HF-BF), est alors [110] [113] :

$$\begin{cases} P_{+}(r) = \frac{\rho_{l}p_{1}p_{2}}{(\rho_{l}f_{res}R_{0})^{2}} X \frac{R_{0}}{r}, \\ X = \left[ \left(1 - \left(\frac{f_{1}}{f_{res}}\right)^{2}\right)^{2} + \delta^{2} \left(\frac{f_{1}}{f_{res}}\right)^{2} \right]^{-\frac{1}{2}}. \end{cases}$$
(4-3)

Dans le cas où  $f_1 \approx f_2 \gg f_{res}$  (méthode HF-HF), c'est la fréquence différence qui va faire résonner les bulles en présences. Sutin [114] exprime la pression émise à la fréquence différence  $\omega_-$ :

$$P_{\omega_{-}}^{2} = \frac{\pi N(R_{\omega_{-}})}{8\rho_{l}^{2}\delta\omega_{1}^{4}R_{\omega_{-}}r^{2}} \int_{\Delta v} P_{1}^{2}P_{2}^{2}dv, \qquad (4-4)$$

où :

- R<sub>Ω</sub> le rayon des bulles résonnantes à la fréquence Ω;
- N(R<sub>Ω</sub>) le nombre de bulles résonnantes à la fréquence Ω;
- r la distance entre la zone d'interaction et le point de mesure ;
- *P*<sub>1</sub> et *P*<sub>2</sub> les pressions associées aux fréquences ω<sub>1</sub> et ω<sub>2</sub> ;
- $\Delta v$  le volume d'interaction des deux fréquences.

Plusieurs variantes de ces techniques ont été étudiées, des méthodes globales pour lesquelles le nuage est sondé sur un volume limité et des méthodes où chaque bulle est mesurée individuellement.

Pour ces dernières, afin de ne mesurer qu'une bulle à la fois, et d'augmenter la pression exercée sur la bulle, des capteurs focalisés sont utilisés. Si le taux de vide est assez faible, il est légitime de supposer qu'une seule bulle résonante se situe à l'intersection des taches focales. Les méthodes de caractérisation d'une bulle peuvent être étendues à la mesure de l'histogramme du nuage par itérations sous l'hypothèse d'ergodicité. Cependant, ces méthodes ne permettent *a priori* pas de remonter à une mesure du taux de vide. Si on souhaite connaitre le taux de vide, une mesure globale sur le nuage est nécessaire.

#### 4.2.2.2 <u>Mesures spectroscopiques globales</u>

#### 4.2.2.2.1 Mesures HF-BF

Il s'agit ici de faire interagir une onde haute fréquence - par rapport à la fréquence de résonance des plus petites bulles présentes - avec une onde de l'ordre de la fréquence de résonance des bulles.

Newhouse, Shankar et Chapelon [110] [113] ont été les premiers à utiliser le mixage de fréquence dans l'objectif de remonter à l'histogramme de répartition des rayons et au taux de vide en reliant directement la pression « somme » rayonnée au nombre de bulle résonantes.





Figure 114 : Répartition des bulles en fonction de la fréquence de pompage.

Figure 115 : Histogrammes optiques calculés à partir de 4 photos. a) sans champs ultrasonore externe ; b) avec champs ultrasonore externe.

On observe une corrélation correcte entre l'histogramme issu de mesures US et celui issu de photographies (Figure 114 et Figure 115). Les auteurs expliquent les différences par le fait que le nuage évolue au cours du temps.

Koller effectue en 1992 [115] d'autres tests dans le but d'améliorer la rapidité des mesures. Il balaye ainsi une plage de 2,5 à 6 kHz (soit  $R \in [0,55 mm; 1,30 mm]$ ). Le nombre de bulles résonnantes est relié directement à l'amplitude de la composante différence. Il compare ses résultats avec des mesures passives ainsi qu'avec des mesures optiques (Figure 116). Malgré l'hypothèse prise supposant que seules les bulles résonnantes contribuent au mixage, on observe une bonne corrélation entre les différents histogrammes.



Figure 116 : Histogrammes optiques et acoustiques des rayons des bulles.

4.2.2.2.2 Mesures HF-HF

Sutin [114] améliore la méthode développée par Newhouse, Shankar et Chapelon avec notamment la prise en compte de la composante en champ proche de la pression rayonnée par une bulle. Il montre que la diffusion non linéaire est proportionnelle à la densité de bulles résonnantes à la fréquence de pompage :

$$N(R_{\omega_{-}}) = \frac{8\rho_l^2 K^2 S^2 U^2 \delta \omega_1^4 R_{\omega_{-}} \lambda F e^{4\alpha l}}{\pi^2 a^5 \chi A_1^2 A_2^2},$$
(4-5)

où :

- K et S permettent de prendre en compte la réponse des traducteurs utilisés ;
- U est la tension mesurée à la fréquence différence ;
- $\lambda$  est la longueur d'onde ;
- F est la distance focale ;
- *α* est le coefficient d'atténuation ;
- *l* est la distance parcourue par l'onde primaire dans le nuage ;
- *a* est le diamètre du traducteur ;
- $\chi \approx 0.11$  permet la prise en compte de la géométrie de la zone d'interaction ;
- $A_i$  est la pression émise par le i<sup>eme</sup> traducteur.

Sutin réalise des mesures sur deux nuages différents. L'un est généré par électrolyse et présente donc de petites bulles et un taux de vide faible ; l'autre est généré par injection d'air dans une plaque microporeuse et présente donc des bulles plus grosses et un taux de vide plus important. Le dispositif est schématisé sur la Figure 117

#### 4.2 - Méthodes non linéaires de caractérisation de milieux diphasiques



Figure 117 : Dispositif expérimental mis en œuvre par Sutin



Bien que les histogrammes et taux de vides des Figure 118 et Figure 119 semblent cohérents au vu des méthodes de génération utilisées, aucune validation optique ou autre n'a été effectuée.

#### 4.2.2.3 Mesures spectroscopiques « bulle à bulle »

Il est souvent plus simple de caractériser une unique bulle plutôt que de s'intéresser à la globalité du nuage. C'est pourquoi de nombreuses méthodes de caractérisation de bulles « solitaires » ont été développées. Si on veut obtenir un histogramme de répartition des rayons du nuage entier, il suffit alors d'utiliser 2 transducteurs focalisés et, pourvu que le taux de vide soit assez faible, il est raisonnable de considérer qu'il n'y a qu'une seule bulle à l'intersection des champs acoustiques de ces transducteurs.

Lorsqu'une bulle est excitée à sa fréquence de résonance, l'interaction des deux ondes sera maximale. En détectant à quelle fréquence pompe se trouve ce maximum, on en déduit le rayon de la bulle. Cette technique a été étudiée dans de nombreuses publications, une des premières étant celle de Chapelon & *al.* [116] suivi de celle de Cathignol [117] quelques années plus tard. Ces auteurs mettent en place la théorie qui sera utilisée par Magari [118] afin d'obtenir les histogrammes suivants (Figure 120) lors de ses études sur les accidents de décompression. Les résultats sont comparés à des mesures optiques. Les résultats sont cohérents entre eux, mais loin d'être parfait.


Buckey [119] s'est aussi intéressé à la décompression. Ses travaux ont notamment l'originalité d'avoir été menée *in vivo* sur un cochon après décompression dans un caisson hyperbare. La théorie est la même que précédemment et l'histogramme de la Figure 121 a été obtenu :



Figure 121 : Histogramme des rayons des bulles obtenus in vivo sur un cochon.

Leighton [120] s'est intéressé aux bulles de méthanes piégées dans les sédiments marins. Il opère de plus une étape d'inversion afin de prendre en compte la contribution des bulles non résonnantes. Il simule au préalable la pression émise par toutes les classes de bulles possibles à chaque couple de fréquences d'insonnification, et il obtient une matrice représentée Figure 122 :



On remarque la présence d'autres pics en dehors des bulles résonnantes. Il semble donc nécessaire de devoir prendre en compte les bulles non-résonnantes. Il obtient en laboratoire l'histogramme cidessous :



Cependant, aucune mesure de référence ne vient valider de tels résultats.

Cavaro [121] obtient en 2010 de très bonnes corrélations entre des histogrammes optiques et acoustiques. Les bulles sont excitées par un balayage bas fréquence et la présence sur le spectre de pics correspondant aux composantes somme et différence traduit la présence d'une bulle résonnante à l'intersection des capteurs focalisés. L'histogramme (Figure 124) est alors reconstruit par incrémentation.



Figure 124 : Comparaison des histogrammes optiques et acoustiques obtenus par Cavaro.

Afin d'améliorer la précision de la mesure du rayon de la bulle, Leighton propose à partir de 1990 [122] [123] d'utiliser la composante à  $f_2 \pm \frac{f_1}{2}$  pour détecter le passage d'une bulle résonnante.

L'idée est que l'apparition de cette composante nécessite un plus grand degré de non-linéarité et est de fait plus concentrée autour de la résonance . Ceci est illustré par la figure ci-dessous :



<u>Figure 125 : Comparaison de l'amplitude de la composante différence  $\omega_i - \omega_p$  et de l'amplitude de la composante</u> <u>sub-différence  $\omega_i - \frac{\omega_p}{r}$  en présence et en l'absence de bulle.</u>

Bien que les deux tracés présentent un maximum pour la même fréquence de pompage, la composante subdifférence est clairement moins ambiguë que la composante différence. De plus, l'apparition de la composante subdifférence est cantonnée à la présence d'une bulle résonnante, là où des bulles non résonnantes peuvent quand même induire l'apparition de la composante différence.

Cependant, l'utilisation de cette technique nécessite un contrôle précis de la pression d'insonnification. Si celle-ci est trop faible, aucune subharmonique n'apparaitra, alors que si la pression est trop élevée, la composante subharmonique ne sera plus cantonnée aux bulles résonnantes.

Cavaro et Payan [124] se sont intéressés au potentiel d'une méthode HF-HF pour caractériser un nuage de microbulles. Le principe est le même que précédemment sauf que c'est l'onde différence résultant

de l'interaction des ondes HF qui viendra exciter la bulle située à l'intersection de transducteurs confocaux. Cependant cette méthode ne permet pas de détecter autant de bulles que la méthode HF-BF. C'est pourquoi l'histogramme obtenu (ci-dessous) est dégradé.



Figure 126 : Histogramme reconstruit via l'utilisation de la méthode HF-HF [124].

L'utilisation de méthodes HF-HF présente le principal avantage qu'elle permet de couvrir avec une seule paire de traducteurs une plage de fréquence beaucoup plus grande qu'en utilisant des transducteurs BF.

# 4.2.3 Dérivations de la méthode de spectroscopie acoustique linéaire

## 4.2.3.1 Section efficace non linéaire

Bien que les méthodes de mixage de fréquences soient les plus couramment utilisées, d'autres méthodes basées sur l'acoustique non linéaire ont été développées afin de caractériser un nuage de microbulles. Historiquement, les méthodes linéaires ont d'abord été développées pour être ensuite étendues à la prise en compte d'effets non linéaires.

Citons tout d'abord Leighton [70] qui propose de remplacer l'expression de la section efficace linéaire, par une section efficace non linéaire obtenue en simulant la réponse d'une bulle soumise à une onde de fréquence et amplitude variables.

Une fois la section efficace obtenue, la méthode d'inversion reste la même que celle présentée au chapitre 3.



<u>Figure 127 : Répartition des rayons pour différentes campagnes de mesures en utilisant la méthode linéaire (...)</u> <u>et la méthode non linéaire (\_\_).</u>

Malgré les affirmations de Leighton, ses résultats présentés diffèrent peu de ceux obtenus par les méthodes linéaires (Figure 127). De plus, encore une fois, aucune mesure optique ne permet de valider l'une ou l'autre approche.

### 4.2.3.2 <u>Ajustements par méthode des moindres carrés</u>

L'équipe de Verboven [125] [126] s'est intéressée à la caractérisation d'agents de contraste ultrasonore. La difficulté dans ce type d'objet est que les propriétés physiques de la coque influent grandement sur l'acoustique des microbulles et que ces propriétés sont souvent méconnues. Ils ont utilisé une méthode des moindres carrés pour identifier à partir des courbes d'atténuation, de célérité et du coefficient non linéaire, à la fois les paramètres caractéristiques des agents de contraste et ceux du nuage (Figure 128 et Figure 129).



<u>Figure 128 : Résultats de l'ajustement (bleu) sur les courbes de dispersion de la célérité, d'atténuation</u> <u>et du coefficient non linéaire, suivant le modèle de Church (vert).</u> <u>ou le modèle présenté par Verboven (Rouge).</u>

La population ajustée est constituée de 3 à 5 gaussiennes comprenant chacune 3 paramètres d'ajustement. Il y a donc au total une vingtaine de paramètres à déterminer : 10 paramètres de coques, et entre 9 et 15 paramètres de population.



Il y a une très forte corrélation entre leur modèle et les points expérimentaux, là où les modèles de coques précédents échouaient à expliquer la dispersion de la non-linéarité. Il est cependant nécessaire de choisir avec soin les paramètres initiaux lors de l'ajustement, sans quoi celui-ci peux échouer.

## 4.2.4 Conclusion des méthodes de caractérisation non linéaires

Nous avons dressé l'état de l'art des méthodes de caractérisation des nuages de microbulles utilisant leurs propriétés non linéaires. La plupart utilisent le fait que la propagation d'une onde dans un milieu non linéaire conduit à l'apparition d'harmoniques et que l'interaction de deux ondes conduit à l'apparition de composantes sommes et différences. Cependant, ces méthodes ne conduisent que rarement à une estimation du taux de vide, les mesures s'effectuant la plupart du temps sur une bulle à la fois, sans considération ni estimation du volume de liquide associé à la mesure. Seules les méthodes spectroscopiques permettent de remonter à un taux de vide, mais généralement ces mesures ne sont étayées par aucune autre méthode.

D'autre part, l'utilisation des paramètres non linéaires d'ordres supérieurs et non classiques n'est quasiment pas investiguée dans le cadre des microbulles. Il pourrait être intéressant d'étudier le potentiel de ces paramètres dans la caractérisation des nuages de microbulles.

Enfin, ces méthodes sont pour la plupart appliquées à des expériences en laboratoire et leur adaptation industrielle parait complexe.

Dans la continuité de l'inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité, nous présentons ici les résultats de mesures spectroscopiques du coefficient de non linéarité et de leur inversion.

## 4.3 INVERSION DE MESURES SPECTRALES DU COEFFICIENT DE NON LINEARITE

La méthode présentée ici consiste à résoudre l'équation du coefficient non linéaire (2-79) via une régularisation de Tikhonov. En effet, tout comme l'équation (3-27), cette équation est une équation de Fredholm du premier type. La procédure d'inversion est identique à celle présentée au chapitre 3.

Chapitre 4 - Mesures du coefficient de non linéarité.

$$\beta_{b}(\omega) = \beta_{liq} + (4\pi)^{2} c_{l}^{4} \int_{0}^{\infty} \frac{N(a)a^{2}(\alpha' - 3\beta'\omega^{2} + 2i\delta\beta'\omega^{2})}{(\omega_{0}^{2} - 4\omega^{2} + 2i\delta\omega^{2})(\omega_{0}^{2} - \omega^{2} + i\delta\omega^{2})^{2}} da,$$
(4-6)

où  $\beta_{liq}$  est le coefficient non linéaire du liquide pur, N(a) est le nombre de bulles de rayon compris entre a et a + da,  $\alpha' = 3\beta'(\gamma + 1)\omega_0^2$  et  $\beta' = \frac{1}{8\pi R_0^3}$  [56]. Des courbes présentant la valeur absolue de  $\beta_b$  pour différentes populations gaussiennes sont présentées Figure 130.



Figure 130 : Valeur absolue de β pour différentes distributions.

Il n'existe à notre connaissance aucune validation expérimentale de cette équation.

La première partie de cette section s'attachera donc à réaliser des mesures spectroscopiques expérimentales du coefficient de non linéarité sur des nuages de microbulles. Les résultats seront confrontés aux valeurs théoriques de ce même coefficient calculé à partir d'histogrammes optiques.

Dans une seconde partie, ces mesures seront inversées en utilisant une régularisation de Tikhonov et les distributions obtenues seront comparées aux histogrammes optiques.

#### 4.3.1.1 Mesures du coefficient de non linéarité

Nous avons vu au chapitre 2 que plusieurs méthodes existent pour mesurer la valeur du coefficient de non linéarité B/A. Cependant l'une d'elle, une méthode thermodynamique dénommée DAET, est particulièrement adaptée à notre dispositif expérimental. En effet, elle repose sur la mesure de temps de vols modulés par une pression très basse fréquence  $p_{lf}(t)$  [127]:

$$TOFM(t) = -Re(\beta_b) \frac{d}{2\rho c_0^3} p_{lf}(t)$$
(4-7)

TOFM(t), pour *Time Of Flight Modulation*, mesure la variation du temps de vol en fonction de la pression ambiante. *d* est la distance parcourue par l'onde haute fréquence,  $\rho$  est la masse volumique du liquide et  $c_0^3$  la célérité du son au repos. Dans le cas de nuages de bulles, il est nécessaire de mesurer  $c_0$  à chaque fréquence.

#### 4.3.1.1.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est globalement le même qu'au chapitre précédent mais surmonté d'un disque en aluminium et d'un pot vibrant (Figure 131).



Figure 131 : Schéma du dispositif expérimental.

L'onde de pression basse fréquence est générée par un pot vibrant Brüel & Kjær 4826 auquel est relié un disque en aluminium de 25 cm de diamètre et de 1.5 mm d'épaisseur. Ces valeurs ont été fixées pour que la résonance du premier mode du disque se situe autour de 90 Hz, qui est donc la fréquence de travail du pot vibrant. Travailler à la résonance permet de maximiser la pression rayonnée par le disque.

En amont des expérimentations, le champ généré par le disque a été caractérisé par un hydrophone B&K 8103 (Figure 132). Les pressions atteintes sont de l'ordre de quelques *kPa*. Cette caractérisation permet de prendre en compte lors des mesures la réalité de la pressions subie par le train d'onde HF en ajoutant à l'équation (4-7) un terme correctif  $F_{radial}(z) = \frac{2}{d} \int_{0}^{d/2} \frac{P(r,z)}{\max\{P(r,z)\}} dr$  [127]. Ce coefficient vaudrait 1 si l'amplitude de la pression était constante tout au long du trajet des ondes HF. II est en pratique positif et inférieur à 1. Durant les mesures, la pression au centre est mesurée par ce même hydrophone.



Figure 132 : Pression rayonnée par le disque.

Les signaux sont générés par un générateur de fonction Tektronix AFG 3022B piloté par un script Matlab dédié. La première sortie génère environ 2000 trains d'ondes de 10 cycles centrés sur une fréquence de mesure comprise entre 100 kHz et 400 kHz. Elle est à la fois reliée à un transducteur Imasonic 250 kHz et à une des voies de l'oscilloscope afin d'acquérir une référence e(t). La seconde sortie est reliée au pot vibrant et envoie un seul train d'onde centré à 90 Hz et constitué d'une trentaine d'oscillations.

A une distance *d* du premier transducteur se trouve un second transducteur identique qui est relié à l'oscilloscope : un PicoScope 4824 dont les signaux *s*(*t*) sont enregistrés via un script Matlab. Un hydrophone B&K 8103 enregistre la pression générée  $p_{lf}(t)$ sur l'axe du disque. Une illustration des différents signaux est présentée Figure 133 :

- e(t) signal HF émis par le Tektronix ;
- *s*(*t*) signal HF reçu par le transducteur ;
- $p_{lf}(t)$  pression générée par le pot vibrant et mesurée par l'hydrophone.



Figure 133 : Illustrations des différents signaux.

Sur la Figure 133, on remarque que  $p_{lf}(t)$  module le temps de vol de l'onde haute fréquence. Ces valeurs de ces modifications de temps de vol sont illustratives et sont donc amplifiées.

#### 4.3.1.1.2 Mesures des temps de vols

Chaque mesure est constituée de 3 signaux : e(t), s(t) et  $p_{lf}(t)$ . Les deux premiers sont filtrés autours de la fréquence de mesure f, alors que le dernier est filtré autours de  $f_{BF} = 90 Hz$  (Figure 134).

Afin de compenser toutes variations dans la fréquence d'envoi des trains d'ondes, le temps de vol de chaque train d'onde est mesuré en comparant e(t) à s(t). En effet, il est possible que le générateur de fonction n'envoie pas les trains d'onde exactement à la fréquence spécifiée. Une détermination de TOFM(t) qui se base sur la comparaison entre la phase du premier train d'onde et la phase du  $k^{ième}$  train d'onde ne serait pas suffisamment précise du fait de cette différence entre fréquence théorique et fréquence effective. Ensuite, comme les variations de temps de vols sont très faibles, la comparaison des phases de ces signaux est toute indiquée et supprime les biais de l'inter-corrélation détaillés au chapitre précédent.

Pour chaque acquisition, les signaux sont segmentés en autant de fenêtres que de trains d'ondes. Pour chaque fenêtre k, le déphasage  $TOFM_k$  est mesuré :

$$TOFM_{k} = \frac{\left[\Phi\left(\widetilde{e_{k}}(f)\right) - \Phi\left(\widetilde{s_{k}}(f)\right)\right]}{2\pi f}$$
(4-8)

Où  $\tilde{s} = FFT(s)$  est la transformée de Fourrier rapide du signal *s*, *f* est la fréquence de mesure et donc la fréquence centrale des trains d'ondes.

Chapitre 4 - Mesures du coefficient de non linéarité.



Figure 134 : Signaux expérimentaux.

La Figure 135 montre  $TOFM_k$  pour les signaux visibles Figure 134, c'est-à-dire des signaux centrés sur 400 kHz. On remarque que les variations sont de l'ordre de quelques dizaines de nanosecondes, d'où l'importance de limiter au maximum les erreurs extérieures. De plus, Renaud [127] conseille de mesurer *a minima* une dizaine de points par cycles HF afin de pouvoir exploiter de telles variations.



Enfin, la pression ambiante est moyennée sur la durée du temps de vol de l'onde et corrigée par le facteur  $F_{radial}(z)$ . La valeur de  $\beta_b$  est alors le coefficient directeur de la droite  $TOFM_k = \beta_b \times X_k$ , où  $X_k = -\frac{d}{2\rho c_k^3} p_{lf,k}$  (Figure 136).



Figure 136 : Modulation du temps de vol en fonction de la modulation en pression.

On remarque que les points décrivent une ellipse plutôt qu'une droite. Trarieux [128] propose d'utiliser une composante visqueuse (imaginaire) du coefficient non linéaire en plus de la simple composante élastique (réelle) pour décrire cette courbe. Cependant, dans l'optique de l'inversion de ces résultats, une telle considération ne semble pas nécessaire.

### 4.3.1.1.3 Résultats

Deux nuages de microbulles différents ont été générés dans ACWABUL, dont les distributions mesurées par la caméra sont visibles sur la Figure 137. La première a été générée en alimentant les injecteurs CARMIN avec seulement une pompe alors qu'une seconde pompe a été ajoutée en série de la première pour former le deuxième nuage. Ces nuages présentent des taux de vides respectifs de  $\tau_1 = 9.8 \times 10^{-7}$  et  $\tau_2 = 6 \times 10^{-6}$ .



Figure 137 : Histogrammes optiques des nuages générés pour le DAET.

En appliquant la procédure détaillée au paragraphe précédent, les valeurs de  $\beta_b$  ont été mesurées pour les deux nuages entre 100 kHz et 400 kHz. Les résultats sont présentés Figure 138.



Les courbes optiques et acoustiques correspondent bien entre elles. Cependant, les mesures acoustiques sont quand même très bruitées, surtout pour la distribution #2 et particulièrement autours de la résonance. En effet, afin de maximiser les effets non linéaires d'une part, et à cause de la présence du disque en aluminium d'autre part, les transducteurs sont plus éloignés que pour les mesures linéaires. Il n'y a donc quasiment aucun signal reçu entre 175 kHz et 225 kHz ce qui fausse évidemment les mesures (Figure 139).



Figure 139 : Signal reçu à 200 kHz. Les pics correspondant sont des artefacts dus à la résonance des transducteurs.

Le premier nuage présentant un taux de vide plus faible, l'atténuation est moins problématique et les résultats plus probants, comme le montre la Figure 140. Ceci donne bon espoir pour une possible inversion de ces résultats.



avec les valeurs théoriques calculées à partir des histogrammes optiques pour le nuage #1

Ces mesures sont à notre connaissance la première validation du modèle (2-79) pour des nuages de bulles nues polydisperses.

### 4.3.1.2 Inversion de mesures de $\beta_h$

Nous avons vu que les mesures expérimentales correspondent bien au modèle théorique présenté au chapitre 2. Nous avons donc tenté d'inverser ces données en suivant la procédure établie pour l'inversion de données linéaires (chapitre 3).

En effet, l'équation (2-79) est, tout comme l'équation du nombre d'onde équivalent, une équation de Fredholm du premier type dont le noyau  $k_{\beta}$  est présenté sur la Figure 141.



A la différence de  $k_1$  ou  $k_2$  du chapitre précédent,  $k_\beta$  présente 2 pics correspondants au rayons résonant et à la moitié de celui-ci. Ensuite, la valeur du noyau ne diverge pas à l'infini contrairement au cas linéaire. Afin de prendre en compte ces pics, un schéma d'intégration de Gauss-Legendre à 12 points est utilisé lors de la discrétisation et une régularisation de Tikhonov avec choix de paramètre de régularisation par la L-Curve est appliquée sur une gamme de rayons correspondants aux fréquences couvertes. Le résultat de l'inversion des mesures effectuées sur le premier nuage est visible Figure 142.



Figure 142 : Résultat de l'inversion des mesures de  $\beta_b$ .

Le résultat, bien que moins propre qu'au chapitre 3, est quand même concluant avec un coefficient de corrélation de 0,85. La distribution du nuage #1 est correctement estimée ainsi que son taux de vide. Du fait du caractère fortement bruité des mesures, l'inversion est réalisée seulement sur des rayons compris entre 7,5 µm et 30 µm ce qui correspond aux fréquences de mesures.

La Figure 143 montre la correspondance entre les valeurs théoriques, mesurées et calculées à partir de la solution optique. Celles-ci correspondent plutôt bien, sauf au-delà de 375 kHz, où des valeurs élevée de  $\beta_b$  sont mesurées alors que les valeurs théoriques tendent vers les valeurs de l'eau, surement du fait de petites bulles indétectables par la caméra.



Figure 143 :  $\beta_h$  optique, mesuré et calculé à partir de l'histogramme solution.

Ces valeurs élevées à hautes fréquences sont explicables lorsqu'on étend la plage des rayons en dessous de 7,5 µm. Cependant, on remarque rapidement que les solutions sont extrêmement sensibles aux plages des fréquences et des rayons utilisés (Figure 144).

Afin de garantir la fiabilité des résultats, il est donc important de réduire le niveau de bruit des mesures. Ceci passe par une augmentation des pressions basse fréquences générées au-delà des capacités de notre pot vibrant afin de générer des modulations de célérités plus importantes (et donc plus facilement mesurables). Il semble aussi important d'espacer les capteurs, ce qui nécessite une réduction de l'atténuation, et donc une utilisation de nuages moins denses. En effet, il est déconseillé d'utiliser des trains d'onde HF d'amplitudes trop importantes car, comme le souligne Renaud [127], cela pourrait conduire à des interactions non linéaires entre les ondes BF et HF qui fausseraient les mesures.





## 4.4 CONCLUSION DU QUATRIEME CHAPITRE

Le caractère fortement non linéaire des nuages de bulles est connu et exploité depuis longtemps. De nombreux auteurs ont proposé des méthodes utilisant la dynamique non linéaire des bulles afin de les caractériser. Cependant, soit ces méthodes sont difficilement applicables en dehors des laboratoires, soit elles ne permettent de déduire que la distribution en taille au dépend du taux de vide.

Une expression théorique du coefficient non linaire  $\beta_b$  a été proposée par Hamilton [53] puis enrichie par Labat [56]. Cependant, à notre connaissance, cette expression n'a jamais été confrontée aux expériences. En utilisant les moyens expérimentaux du CEA, une mesure de ce coefficient a été réalisée sur différents nuages de microbulles et à différentes fréquences. Il apparait que les mesures expérimentales sont cohérentes avec la théorie. Cependant, des limitations expérimentales ne nous ont pas permis d'effectuer des mesures fines de ce paramètre.

Une fois l'expression du coefficient non linéaire confirmé par les mesures, une étape d'inversion a été effectuée afin de valider la capacité des mesures spectrales du coefficient non linéaire à caractériser un nuage de microbulles. En effet, ces mesures permettraient de caractériser des nuages présentant de très faibles taux de vides, lorsque les effets linéaires sont encore imperceptibles. Cette inversion est réussie pour le nuage présentant le plus faible taux de vide. Les mesures sur le deuxième nuage étaient trop atténuées pour être utilisables. Il s'avère cependant que le succès de l'inversion est fortement dépendant des intervalles de fréquences et de rayons utilisés. Des mesures de meilleure qualité du coefficient devraient être en mesure de corriger ce point en réduisant l'influence du bruit sur l'inversion.

Ces travaux ont fait l'objet d'une présentation au 21<sup>ieme</sup> International Symposium On Nonlinear Acoustics en juillet 2018 à Santa Fe (NM, USA) [129].

# **CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES**

L'objectif de ces travaux de thèse est d'étudier le potentiel de méthodes de caractérisation de nuages de microbulles en vue de leur application au sodium primaire des réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium. Caractériser un tel nuage de microbulles signifie fournir sa distribution en taille ainsi que son taux de vide, en ayant le moins d'*a priori* possible sur la distribution de bulles.

L'impact de l'engazement du sodium primaire a longtemps été sous-estimé. ASTRID est le premier RNR-Na à intégrer cette problématique dès le stade d'avant-projet. Jusqu'ici, seules des mesures indirectes reposant sur des modèles restant à valider permettent d'estimer les caractéristiques du nuage de bulles. Ces études ont montré que la dissolution d'argon dans le collecteur chaud puis la nucléation de bulles dans le collecteur froid serait responsable à 80% de l'engazement. Les 20% restant étant dus aux effets d'entrainement et, dans une moindre mesure, aux réactions neutroniques. Il est donc impossible de supprimer totalement la présence de bulles dans le circuit primaire et leur caractérisation demeure indispensable. En effet, la présence de gaz a des conséquences importantes, notamment sur la contrôlabilité du réacteur : modifications des propriétés acoustiques impactant les télémètres ultrasonores, perturbation du fonctionnement du cœur en cas de relargage de larges poches de gaz, apparition prématurée de la cavitation et de l'ébullition. Cette thèse répond donc à une double problématique : la maitrise des conséquences de l'engazement et la validation des codes de calcul existants qui ne sont toujours pas validés expérimentalement (prédiction de l'engazement, thermodynamique de cœur...).

Le deuxième chapitre s'est attaché à détailler l'acoustique des bulles, qu'elle soit linéaire ou non linéaire afin de comprendre et identifier les mécanismes permettant la caractérisation de nuages. Celle-ci s'avère complexe et met en jeu de nombreux phénomènes rendant l'acoustique des bulles fortement non linéaire. Cependant, les modèles existants décrivent assez bien la réalité de l'acoustique des bulles. Les valeurs de l'atténuation, de la célérité et du coefficient non linéaire à la fréquence de mesure sont entièrement déterminées par la distribution en taille de bulles N(a) via des équations de Fredholm du premier type (équations (2 32) et (2 78)). L'inversion de ces équations permet alors de remonter à la distribution en taille de bulles en exploitant les mesures spectroscopiques de ces grandeurs.

Une première méthode de caractérisation a été présentée au chapitre 3. Elle se base sur l'inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité. Un état de l'art a permis d'identifier les points forts et faibles de cette méthode ainsi que les lacunes de la littérature s'y rapportant. Elle est relativement simple à mettre œuvre mais elle nécessite une étape de régularisation qu'il convient d'effectuer convenablement. De plus il s'avère que les résultats présentés jusqu'alors dans la littérature présentent de larges tailles des classes, ne fournissent pas toujours un taux de vide et ne sont que rarement validés par une mesure annexe. C'est pourquoi nous avons mis au point la construction de la L-Surface, afin d'identifier la gamme optimale d'intégration, et les résultats ont été confrontés à des mesures issues d'un traitement optique donnant la distribution ainsi que le taux de vide. Ces résultats sont très prometteurs, et la démonstration de la possibilité d'un suivi de l'évolution d'un nuage a été effectuée. De plus, l'impact de limitations expérimentales telles qu'une bande passante réduite, ou la saturation de mesures d'atténuation du fait d'un rapport signal sur bruit trop faible a aussi été quantifié. Afin de pallier aux inconvénients de la régularisation, une méthode d'ajustement de courbes a été étudiée. Celle-ci repose sur une hypothèse de départ quant à la forme de la distribution. Deux types de distributions ont été testées : une loi log-normale et une somme de gaussiennes. Ces suppositions

permettent de limiter le nombre de degrés de liberté et ainsi éviter toute surinterprétation des mesures. Les mêmes nuages que pour la régularisation ont été utilisés expérimentalement et les résultats en sont très proches. Ainsi, si les mesures sont fortement bruitées et que la distribution n'a aucune raison de trop s'écarter des distributions gaussiennes ou log-normale, il peut être intéressant d'utiliser cette technique.

Cependant, pour des taux de vides très faibles ( $\leq 10^{-7}$ ) les effets acoustiques linéaires sont trop réduits pour permettre l'application de ces techniques. Il est alors intéressant de se tourner vers des méthodes utilisant le caractère fortement non linéaire de l'acoustique des bulles, qui présente des variations significatives pour des taux de vides de l'ordre de  $10^{-9}$ . De nombreux auteurs ont proposé des méthodes utilisant la dynamique non linéaire des bulles afin de les caractériser. Cependant, soit ces méthodes sont difficilement applicables hors des laboratoires, soit elles ne permettent de déduire que la distribution en taille au dépend du taux de vide.

Une expression du coefficient non linéaire en milieux bulleux existe mais n'a, à notre connaissance, jamais été testée expérimentalement. En utilisant les moyens expérimentaux du CEA, une mesure de ce coefficient a été réalisée sur différents nuages de microbulles et à différentes fréquences. Il s'avère que les mesures expérimentales sont conformes à la théorie. Cependant, des limitations expérimentales ne nous ont pas permis d'effectuer des mesures fines de ce paramètre, en particulier pour de très faibles taux de vide. La validation expérimentale de sa mesure ouvre la voie à son inversion afin de remonter aux caractéristiques du nuage de bulles. La méthode d'inversion et de régularisation est la même que pour les mesures linéaires. Sur les 2 nuages testés, un seul a pu être correctement inversé, l'autre ayant un taux de vide trop important pour réaliser des mesures proches de la résonance des bulles. Les résultats de l'inversion sont plutôt encourageants, mais les erreurs de mesures amènent à étudier l'origine de l'instabilité de l'inversion, liée par exemple à la définition de l'intervalle (rayons) d'intégration ou à l'étendue spectrale des mesures. Néanmoins, la faisabilité d'une caractérisation d'un nuage de bulles à partir de mesures spectroscopiques du coefficient non linéaire est démontrée. Par ailleurs, en raison du caractère hors norme des effets non-linéaires des bulles, il serait intéressant de se pencher sur l'exploitation des non-linéarités d'ordres supérieures.

Les méthodes présentées dans ce manuscrit répondent aux objectifs fixés par le CEA. Grâce à l'emploi de la L-Surface, la seule supposition sur le nuage se situe lors du choix des fréquences de mesures. Dans les gammes de rayons attendues en réacteurs, cela correspond à des fréquences allant de quelques kilohertz à quelques mégahertz, fréquences où les TUSHT sont opérationnels. Ensuite, la conjonction de mesures linéaires et non linéaires, avec un seul montage, permettrait de couvrir une gamme de taux de vide étendue.

Les distributions obtenues à partir de mesures acoustiques ont été comparées avec succès à des résultats issus de photographies. L'analyse de ces photographies par un algorithme original permet d'obtenir non seulement la distribution en taille de bulles, mais aussi une estimation du taux de vide. C'est à notre connaissance la première fois qu'une validation du taux de vide par de telles méthodes est effectuée. Les seules estimations du taux de vide étaient jusqu'à présent obtenues en connaissant le rapport entre les débits de gaz et d'eau injectés dans une conduite, ou alors via des mesures basses fréquences. Toutefois, la résolution des caméras disponibles ne permet pas encore de caractériser convenablement les plus petites bulles. D'autres méthodes, exploitant pas exemple la diffraction de la lumière, pourraient être employées pour augmenter la plage des rayons mesurables.

Un des grands avantages des méthodes détaillées dans ce manuscrit est leur capacité à être rapidement utilisables industriellement, sans évolutions majeures. Néanmoins, tous les résultats présentés ici ont été obtenus avec des bulles d'air en eau. Les caractéristiques acoustiques proches du sodium et de l'eau donne confiance en la possibilité d'utiliser ces techniques avec du sodium liquide. Cependant, l'utilisation de sodium liquide s'accompagne de contraintes techniques non négligeables. Tous d'abord seuls les transducteurs acoustiques « TUSHT » du CEA sont à ce jour capables d'opérer en sodium liquide. Le caractère multi-résonant de ces derniers présente des difficultés expérimentales qu'il convient de surmonter. La faisabilité d'utiliser des TUSHT a été étudiée en eau, mais de plus amples études seront nécessaires avant d'envisager des expérimentations en sodium. De plus, le sodium empêche toute validation optique des mesures. Enfin, la possibilité de générer des microbulles en sodium liquide n'est pas encore pleinement validée, même si la transposition du concept des VDR-V est en cours d'étude.

Un des inconvénients des méthodes actuelles est qu'elle nécessite de travailler à des fréquences proches des fréquences de résonance des bulles. Or on a vu que la présence de grosses bulles nécessite l'utilisation de basses fréquences. Or il est parfois complexe de générer de telles fréquences avec des capteurs piézoélectriques. Une des solutions envisagées serait de profiter du caractère fortement non linéaire des nuages de bulles et générer des ondes basses fréquences par mixage d'ondes hautes fréquences afin de réaliser des mesures à basse fréquences.

# REFERENCES

- [1] « GIF Portal Home Public ». [En ligne]. Disponible sur: https://www.gen-4.org/gif/jcms/c\_9260/public. [Consulté le: 16-mars-2018].
- [2] E. Veleckis, S. K. Dhar, F. A. Cafasso, et H. M. Feder, « Solubility of helium and argon in liquid sodium », *J. Phys. Chem.*, vol. 75, nº 18, p. 2832-2838, sept. 1971.
- [3] Y. Depierre, « Essais VERSOD Conditions de déversement SPX1 », Note Technique CEA DRNR/STRS/SDER 80.893, 1980.
- [4] J. C. Bouchter, « Bilan des facteurs d'engazement dans un réacteur rapide. », Note CEA SYFRA 91211, 1992.
- [5] G. E. Hecker, « Model-Prototype Comparision of Free Surface Vortices », J. Hydraul. Div., vol. 107, nº 10, p. 1243-1259, 1981.
- [6] J.-L. Berton, « Télémétries ultrasonores sous sodium. Effet des microbulles de gaz. », Note Technique CEA LSMI 93/0019, 1993.
- [7] K. Paumel, « Contribution à l'étude de la transmission des ultrasons à l'interface solide-liquide-gaz -Applicatioin au contrôle non destructif des réacteurs de quatrième génération refroidis par du sodium liquide », Thèse de Doctorat, Université de la Méditerranée, 2008.
- [8] R. de Fremont, P. Michaille, Y. Depierre, P. Courbiere, J. Guidez, et M. Vanier, « Proposition de définition d'une teneur maximale admissible en argon dans le sodium du RNR 1500 », Note Technique CEA DRNR/SPCI/LMIn NT BCT/R 88/247, 1988.
- [9] A. M. Judd, « Analysis of the transient boiling of liquid metals », J. Phys. Appl. Phys., vol. 2, nº 2, p. 261, 1969.
- [10] L. Rahmani, « Centrale de Creys-Malville Outil de dépouillement de l'essai de mesure du taux d'engazement du sodium primaire », Note Technique EDF/CLI E L REM/96.001, CRE1-FONC-RAA-RT-6001/A, 1996.
- [11] R. Clift, J. R. Grace, et M. E. Weber, *Bubbles, Drops, and Particles*. Courier Corporation, 2005.
- G. Liger-Belair, « Nucléation, ascension et éclatement d'une bulle de champagne », Ann. Phys., vol. 31, p. 1-133, mars 2006.
- [13] S. F. Jones, G. M. Evans, et K. P. Galvin, « Bubble nucleation from gas cavities a review », *Adv. Colloid Interface Sci.*, vol. 80, nº 1, p. 27-50, févr. 1999.
- [14] Y. Liao et D. Lucas, « A literature review of theoretical models for drop and bubble breakup in turbulent dispersions », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 64, nº 15, p. 3389-3406, août 2009.
- [15] G. M. Evans, G. J. Jameson, et B. W. Atkinson, « Prediction of the bubble size generated by a plunging liquid jet bubble column », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 47, nº 13, p. 3265-3272, sept. 1992.
- [16] J.-L. Berton, « VIBUL, un modèle de calcul de la vie des bulles en réacteur », Note Technique CEA SSAE/LSMI/91-0.23, 1991.
- [17] M. Cavaro, « VIBUL : 1991-2011, 20 ans de calcul de la vie des bulles en réacteur », Note Technique CEA DEN/CAD/DTN/STPA/LIET/2012-022, 2012.
- [18] G. Mignot, « Modèle de désorption nucléée (ou nucléation) dans les échangeurs intermédiaires d'un réacteur à neutrons rapides », Note Technique CEA DRN/DER/SERA/LETh/97-5033, 1997.
- [19] L. Rahmani, « Mesure du taux de vide du sodium primaire, dépouillement de l'essai du 24 décembre 1996 », Note Technique EDF/CLI E L REM/97.014 A, CRE1-FONC-RAA-RT-7014/A, 1997.
- [20] C. Moitrier et G. Mignot, « Influence de la désorption nucléée sur l'engazement du sodium primaire d'un RNR », Note Technique CEA DRN/DER/SERA/LETh/97-5033, 1998.
- [21] L. Rahmani, « Mesure de l'engazement dans le circuit primaire de Superphénix par visée ultrasonique », Note Technique EDF E L R SF/94 952 A, 1994.

- [22] M. Bergo, « Mesure d'engazement Na primaire », Note technique NNS CRE1 6700 855 Q T 2008, 1996.
- [23] Y. Lecoffre, G. Maj, et C. Rebattet, «Treating a chemical compound and/or microorganism transported by a liquid and/or a gas, comprises circulating a liquid in a flow space to produce cavitation bubbles/pockets, and injecting an incondensable gas inside the bubbles/pockets », FR2947187 (A1), 29-juin-2012.
- [24] A. Mallock, « The Damping of Sound by Frothy Liquids », *Proc. R. Soc. Lond. Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 84, nº 572, p. 391-395, déc. 1910.
- [25] Rayleigh, « VIII. On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity », *Lond. Edinb. Dublin Philos. Mag. J. Sci.*, vol. 34, nº 200, p. 94-98, août 1917.
- [26] A. . Wood, A Textbook of Sound. New York: Macmillian, 1930.
- [27] V. Duro, Caractérisation acoustique d'un sillage engendré par un navire de surface : propagation d'une onde acoustique dans un mélange eau/bulles d'air. Le Havre, 2009.
- [28] K. A. Sage, J. George, et H. Überall, « Multipole resonances in sound scattering from gas bubbles in a liquid », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 65, nº 6, p. 1413-1422, juin 1979.
- [29] M. S. Plesset, « The Dynamics of Cavitation Bubbles », *J. Appl. Mech.*, vol. 16, n° CaltechAUTHORS:20140808-114249321, p. 277-282, sept. 1949.
- B. E. Noltingk et E. A. Neppiras, « Cavitation produced by Ultrasonics », *Proc. Phys. Soc. Sect. B*, vol. 63, nº 9, p. 674, 1950.
- [31] M. P. Brenner, S. Hilgenfeldt, et D. Lohse, « Single-bubble sonoluminescence », *Rev. Mod. Phys.*, vol. 74, nº 2, p. 425-484, avr. 2002.
- [32] A. Prosperetti et A. Lezzi, « Bubble Dynamics in a Compressible Liquid .1. 1st-Order Theory », *J. Fluid Mech.*, vol. 168, p. 457-478, juill. 1986.
- [33] J. B. Keller et M. Miksis, « Bubble oscillations of large amplitude », J. Acoust. Soc. Am., vol. 68, nº 2, p. 628-633, août 1980.
- [34] F. R. Gilmore, « The growth or collapse of a spherical bubble in a viscous compressible liquid », 01-avr-1952. [En ligne]. Disponible sur: http://resolver.caltech.edu/CaltechAUTHORS:Gilmore\_fr\_26-4. [Consulté le: 24-févr-2016].
- [35] S. Popinet et S. Zaleski, « Bubble collapse near a solid boundary: a numerical study of the influence of viscosity », *J. Fluid Mech.*, vol. 464, p. 137–163, août 2002.
- [36] A. Prosperetti, L. Crum, et K. Commander, « Nonlinear Bubble Dynamics », J. Acoust. Soc. Am., vol. 83, nº 2, p. 502-514, févr. 1988.
- [37] M.-C. Pauzin, « Modélisation du comportement dynamique d'un agent de contraste ultrasonore », phdthesis, Université de Provence Aix-Marseille I, 2009.
- [38] W. Lauterborn et T. Kurz, « Physics of bubble oscillations », *Rep. Prog. Phys.*, vol. 73, nº 10, p. 106501, 2010.
- [39] U. Parlitz, V. Englisch, C. Scheffczyk, et W. Lauterborn, « Bifurcation structure of bubble oscillators », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 88, nº 2, p. 1061-1077, août 1990.
- [40] M. Minnaert, « On musical air-bubbles and the sounds of running water », Lond. Edinb. Dublin Philos. Mag. J. Sci., vol. 16, nº 104, p. 235-248, août 1933.
- [41] K. Commander et A. Prosperetti, « Linear Pressure Waves in Bubbly Liquids Comparison Between Theory and Experiments », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 85, nº 2, p. 732-746, févr. 1989.
- [42] C. Devin, « Survey of Thermal, Radiation, and Viscous Damping of Pulsating Air Bubbles in Water », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 31, nº 12, p. 1654-1667, déc. 1959.
- [43] H. Medwin, « Counting bubbles acoustically: a review », *Ultrasonics*, vol. 15, nº 1, p. 7-13, janv. 1977.

- [44] M. A. Ainslie et T. G. Leighton, « Review of scattering and extinction cross-sections, damping factors, and resonance frequencies of a spherical gas bubble », J. Acoust. Soc. Am., vol. 130, nº 5, p. 3184-3208, nov. 2011.
- [45] A. Bouakaz, P. Palanchon, et N. de Jong, « Dynamique de la microbulle », in *Échographie de contraste*, Springer Paris, 2007, p. 25-43.
- [46] H. Medwin et C. S. Clay, « Chapter 8 Bubbles », in *Fundamentals of Acoustical Oceanography*, H. M. S. Clay, Éd. San Diego: Academic Press, 1998, p. 287-347.
- [47] K. Commander et E. Moritz, « Off-resonance contributions to acoustical bubble spectra », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 85, nº 6, p. 2665-2669, juin 1989.
- [48] L. L. Foldy, « The Multiple Scattering of Waves. I. General Theory of Isotropic Scattering by Randomly Distributed Scatterers », *Phys. Rev.*, vol. 67, nº 3-4, p. 107-119, févr. 1945.
- [49] M. Cavaro, « A Void Fraction Characterisation by Low Frequency Acoustic Velocity Measurements in Microbubble Clouds », *Phys. Procedia*, vol. 70, p. 496-500, 2015.
- [50] M. Cavaro, Apport de l'accoustique non linéraire à la caractérisation de l'engagement du sodium liquide : application aux réacteurs nucléaires de quatrième génération. Aix Marseille 2, 2010.
- [51] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, et M. G. Scanlon, « Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 123, nº 4, p. 1931–1940, avr. 2008.
- [52] B. Cox, « Acoustics for Ultrasound Imaging ». janv-2013.
- [53] M. F. Hamilton, D. T. Blackstock, et others, *Nonlinear acoustics*, vol. 427. Academic press San Diego, 1998.
- [54] H. Li, X. Zhang, Y. Sun, et M. Li, « Nonlinearity acoustic parameters from equation of state of liquid sodium under pressure », *AIP Adv.*, vol. 7, nº 9, p. 095322, sept. 2017.
- [55] K. E.-A. V. D. Abeele, J. Carmeliet, J. A. T. Cate, et P. A. Johnson, « Nonlinear Elastic Wave Spectroscopy (NEWS) Techniques to Discern Material Damage, Part II: Single-Mode Nonlinear Resonance Acoustic Spectroscopy », *Res. Nondestruct. Eval.*, vol. 12, nº 1, p. 31-42, janv. 2000.
- [56] V. Labat, *Etude de la propagation non linéaire d'une onde acoustique dans les produits de contraste ultrasonore*. Tours, 2000.
- [57] G. Renaud, J. G. Bosch, A. F. W. van der Steen, et N. de Jong, « Dynamic acousto-elastic testing applied to a highly dispersive medium and evidence of shell buckling of lipid-coated gas microbubbles », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 138, nº 5, p. 2668-2677, nov. 2015.
- [58] L. E. Kinsler, A. R. Frey, A. B. Coppens, et J. V. Sanders, *Fundamentals of Acoustics*, 4th Edition. New York: Wiley Professional Software, 2000.
- [59] S. Saito, J.-H. Kim, et K. Nakamura, « Automatic measurement of the nonlinearity parameter B/A in liquid media », *Ultrasonics*, vol. 44, Supplement, p. e1429-e1433, déc. 2006.
- [60] P. J. Westervelt, « Parametric Acoustic Array », J. Acoust. Soc. Am., vol. 35, nº 4, p. 535, 1963.
- [61] H. O. Berktay et D. J. Leahy, « Farfield performance of parametric transmitters », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 55, nº 3, p. 539-546, mars 1974.
- [62] L. V. Wijngaarden, « On the equations of motion for mixtures of liquid and gas bubbles », *J. Fluid Mech.*, vol. 33, n° 03, p. 465, sept. 1968.
- [63] L. Bjørnø, « Acoustic nonlinearity of bubbly liquids », *Appl. Sci. Res.*, vol. 38, nº 1, p. 291-296, janv. 1982.
- [64] V. Welsby et M. Safar, « Acoustic Non-Linearity Due to Micro-Bubbles in Water », Acustica, vol. 22, n° 3, p. 177-, 1969.
- [65] J. Ma, J. Yu, Z. Fan, Z. Zhu, X. Gong, et G. Du, « Acoustic nonlinearity of liquid containing encapsulated microbubbles », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 116, nº 1, p. 186-93, juill. 2004.
- [66] J. Wu, « Measurements of the effective nonlinearity parameter B/A of water containing trapped cylindrical bubbles », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 89, nº 6, p. 2634, 1991.

- [67] V. Leroy, « Bulles d'air dans l'eau : couplage d'oscillateurs harmoniques et excitation paramétrique », phdthesis, Université Paris-Diderot Paris VII, 2004.
- [68] C. Trarieux, S. Callé, H. Moreschi, G. Renaud, et M. Defontaine, « Modeling nonlinear viscoelasticity in dynamic acoustoelasticity », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, nº 26, p. 264103, déc. 2014.
- [69] J. Liu *et al.*, « High Acoustic Nonlinearity of a Liquid Containing Microbubbles », *Chin. Phys. Lett.*, vol. 16, p. 737-739, oct. 1999.
- [70] T. G. Leighton, S. D. Meers, et P. R. White, « Propagation through nonlinear time-dependent bubble clouds and the estimation of bubble populations from measured acoustic characteristics », *Proc. R. Soc. Lond. Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 460, nº 2049, p. 2521-2550, sept. 2004.
- [71] O. Louisnard, « A simple model of ultrasound propagation in a cavitating liquid. Part I: Theory, nonlinear attenuation and traveling wave generation », *Ultrason. Sonochem.*, vol. 19, n° 1, p. 56-65, janv. 2012.
- [72] R. Jamshidi et G. Brenner, « Dissipation of ultrasonic wave propagation in bubbly liquids considering the effect of compressibility to the first order of acoustical Mach number », *Ultrasonics*, vol. 53, nº 4, p. 842-848, avr. 2013.
- [73] M.-X. Tang et R. J. Eckersley, « Frequency and pressure dependent attenuation and scattering by microbubbles », *Ultrasound Med. Biol.*, vol. 33, nº 1, p. 164-168, janv. 2007.
- [74] H. Medwin, « In situ acoustic measurements of bubble populations in coastal ocean waters », *J. Geophys. Res.*, vol. 75, n° 3, p. 599-611, janv. 1970.
- [75] H. Medwin, « Acoustical determinations of bubble-size spectra », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 62, nº 4, p. 1041-1044, oct. 1977.
- [76] R. Wildt, « Acoustic Theory of Bubbles », in *Physics of sound in the sea*, vol. 8, Washington: National Academies, 1946, p. 460-477.
- [77] J. W. Caruthers, P. A. Elmore, J. C. Novarini, et R. R. Goodman, « An iterative approach for approximating bubble distributions from attenuation measurements », J. Acoust. Soc. Am., vol. 106, nº 1, p. 185-189, juill. 1999.
- [78] P. A. Elmore et J. W. Caruthers, « Higher order corrections to an iterative approach for approximating bubble distributions from attenuation measurements », *IEEE J. Ocean. Eng.*, vol. 28, nº 1, p. 117-120, janv. 2003.
- [79] K. W. Commander et E. Moritz, «Inferring Bubble Populations in the Ocean from Acoustic Measurements », in *OCEANS '89. Proceedings*, 1989, vol. 4, p. 1181-1185.
- [80] K. W. Commander et R. J. McDonald, « Finite-element solution of the inverse problem in bubble swarm acoustics », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 89, nº 2, p. 592-597, févr. 1991.
- [81] R. Duraiswami, « Bubble Density Measurement using an Inverse Acoustic Scattering Technique », *ASME*, vol. 153, p. 67-73, 1993.
- [82] R. Duraiswami, S. Prabhukumar, et G. L. Chahine, « Acoustic measurement of bubble size distributions: Theory and experiments », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 100, nº 4, p. 2804, 1996.
- [83] R. Duraiswami, S. Prabhukumar, et G. L. Chahine, « Bubble counting using an inverse acoustic scattering method », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 104, nº 5, p. 2699-2717, nov. 1998.
- [84] X. Wu et G. L. Chahine, « Development of an acoustic instrument for bubble size distribution measurement », *J. Hydrodyn. Ser B*, vol. 22, nº 5, Supplement 1, p. 330-336, oct. 2010.
- [85] G. L. Chahine et K. M. Kalumuck, « Development of a Near Real-Time Instrument for Nuclei Measurement: The ABS Acoustic Bubble Spectrometer ® », p. 183-191, janv. 2003.
- [86] G. L. Chahine, K. M. Kalumuck, J.-Y. Cheng, et G. Frederick, « Validation of Bubble Distribution Measurements of the ABS Acoustic Bubble Spectrometer with High Speed Video Photography », présenté à CAV 2001: Fourth International Symposium on Cavitation, California Institute of Technology, Pasadena, CA USA, 01-janv-2001.

- [87] B. K. Choi et S. W. Yoon, « Acoustic bubble counting technique using sound speed extracted from sound attenuation », *IEEE J. Ocean. Eng.*, vol. 26, nº 1, p. 125-130, janv. 2001.
- [88] P. C. Hansen, « The L-Curve and its Use in the Numerical Treatment of Inverse Problems », in *Computational Inverse Problems in Electrocardiology, ed. P. Johnston, Advances in Computational Bioengineering*, 2000, p. 119–142.
- [89] S. Vagle et D. M. Farmer, « The Measurement of Bubble-Size Distributions by Acoustical Backscatter », *J. Atmospheric Ocean. Technol.*, vol. 9, nº 5, p. 630-644, oct. 1992.
- [90] N. Breitz et H. Medwin, « Instrumentation for insitu acoustical measurements of bubble spectra under breaking waves », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 86, nº 2, p. 739-743, août 1989.
- [91] D. M. Farmer, S. Vagle, et A. D. Booth, « A Free-Flooding Acoustical Resonator for Measurement of Bubble Size Distributions », *J. Atmospheric Ocean. Technol.*, vol. 15, nº 5, p. 1132-1146, oct. 1998.
- [92] D. M. Farmer, S. Vagle, et D. Booth, « Reverberation effects in acoustical resonators used for bubble measurements », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 118, nº 5, p. 2954-2960, nov. 2005.
- [93] P. C. Hansen, « REGULARIZATION TOOLS: A Matlab package for analysis and solution of discrete illposed problems », *Numer. Algorithms*, vol. 6, nº 1, p. 1-35, 1994.
- [94] C. D. Reid, « Notes on the Effect of Distance from the Source on the Velocity of Sound at Ultrasonic Frequencies », *Phys. Rev.*, vol. 37, nº 9, p. 1147-1148, mai 1931.
- [95] E. Storheim, P. Lunde, et M. Vestrheim, « Diffraction Correction in Ultrasonic Fields for Measurements of Sound Velocity in Gas. Conventional and Alternative Methods. », *34th Scandianavian Symposium on Physical Acoustics*, Geilo, Norway, 2011.
- [96] A. O. J. Williams, « The Piston Source at High Frequencies », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 23, nº 1, p. 1-6, janv. 1951.
- [97] A. S. Khimunin, « Numerical Calculation of the Diffraction Corrections for the Precise Measurement of Ultrasound Absorption », *Acta Acust. United Acust.*, vol. 27, nº 4, p. 173-181, oct. 1972.
- [98] A. S. Khimunin, « Numerical Calculation of the Diffraction Corrections for the Precise Measurement of Ultrasound Phase Velocity », *Acta Acust. United Acust.*, vol. 32, nº 3, p. 192-200, mars 1975.
- [99] A. S. Khimunin, « Ultrasonic Propagation Parameter Measurements Incorporating Exact Diffraction Corrections », *Acta Acust. United Acust.*, vol. 39, nº 2, p. 87-95, janv. 1978.
- [100] V. Akulichev et V. Bulanov, « Acoustic sensing of gas bubbles in the ocean medium », *Acoust. Phys.*, vol. 32, nº 3, p. 177-180, 1986.
- [101] H. R. Suiter, « Pulse length effects on the transmissivity of bubbly water », J. Acoust. Soc. Am., vol. 91, nº 3, p. 1383-1387, mars 1992.
- [102] N. G. Pace, A. Cowley, et A. M. Campbell, « Short pulse acoustic excitation of microbubbles », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 102, nº 3, p. 1474-1479, sept. 1997.
- [103] C. Lhuillier et P. Ducret, « Transducteur acoustiques fonctionnant à haute température (TUSHT au niobate de lithium) – Synthèse des travaux de recherche et développement: buts, moyens et résultats », Note Technique CEA DRNR-STRS-LEIS 79/13, 1979.
- [104] C. Lhuillier, P. Ducret, et J. Risbourg, « Caractéristiques électroacoustiques d'un transducteur ultrasonore haute température du type 4540 HP », Note Technique CEA DRNR-SPCILMIN 84/539, 1984.
- [105] C. Lhuillier, « Etalonnage de transducteurs acoustiques haute température, en sodium à 550°C, par la méthode de réciprocité. Confirmation de faisabilité – Résultats d'étalonnage », Note Technique CEA DRNR-STRS-LEIS 79/06, 1979.
- [106] « 16th Anglo-French Physical Acoustics Conference (AFPAC) », *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 1017, nº 1, p. 011001, 2018.
- [107] « SNETP | ESNII Conference »...

- [108] L. D'Hondt, C. Payan, S. Mensah, et M. Cavaro, « Acoustic characterization of microbubble clouds by attenuation and celerity spectroscopy », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 141, nº 5, p. 3506-3506, mai 2017.
- [109] D. L. Miller, « Ultrasonic detection of resonant cavitation bubbles in a flow tube by their second-harmonic emissions », *Ultrasonics*, vol. 19, nº 5, p. 217-224, sept. 1981.
- [110] V. L. Newhouse et P. M. Shankar, « Bubble size measurements using the nonlinear mixing of two frequencies », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 75, nº 5, p. 1473-1477, mai 1984.
- [111] Y. A. Kobelev, L. A. Ostrovsky, et A. M. Sutin, « Self-Induced Transparency and Frequency Conversion Effects for Acoustic Waves in Water Containing Gas Bubbles », in *Cavitation and Inhomogeneities in Underwater Acoustics*, P. D. W. Lauterborn, Éd. Springer Berlin Heidelberg, 1980, p. 151-156.
- [112] E. A. Zabolotskaya, « Emission of harmonic and combination-frequency waves by air bubbles », *Sov Phys Acoust*, vol. 18, p. 396-398, 1973.
- [113] J. Y. Chapelon, P. M. Shankar, et V. L. Newhouse, « Ultrasonic measurement of bubble cloud size profiles », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 78, nº 1, p. 196-201, juill. 1985.
- [114] A. M. Sutin, S. W. Yoon, E. J. Kim, et I. N. Didenkulov, « Nonlinear acoustic method for bubble density measurements in water », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 103, nº 5, p. 2377-2384, mai 1998.
- [115] D. Koller, Y. Li, P. M. Shankar, et V. L. Newhouse, « High-speed bubble sizing using the double frequency technique for oceanographic applications », *IEEE J. Ocean. Eng.*, vol. 17, nº 3, p. 288-291, juill. 1992.
- [116] J. Y. Chapelon, V. L. Newhouse, D. Cathignol, et P. M. Shankar, « Bubble detection and sizing with a double frequency Doppler system », *Ultrasonics*, vol. 26, nº 3, p. 148-154, mai 1988.
- [117] D. Cathignol, J. Y. Chapelon, V. L. Newhouse, et P. M. Shankar, « Bubble sizing with high spatial resolution », *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, vol. 37, nº 1, p. 30-37, janv. 1990.
- [118] P. J. Magari, R. J. Kline-Schoder, B. H. Stoedefalke, et B. D. Butler, « A non-invasive, in-vivo, bubble sizing instrument », in , 1997 IEEE Ultrasonics Symposium, 1997. Proceedings, 1997, vol. 2, p. 1205-1210 vol.2.
- [119] J. C. Buckey, D. A. Knaus, D. L. Alvarenga, M. A. Kenton, et P. J. Magari, « Dual-frequency ultrasound for detecting and sizing bubbles », *Acta Astronaut.*, vol. 56, nº 9–12, p. 1041-1047, mai 2005.
- [120] T. Leighton, A. Mantouka, P. White, et Z. Klusek, « Towards field measurement of populations of methane gas bubbles in marine sediment: an inversion method required for interpreting twofrequency insonification data from sediment containing gas bubbles », *Hydroacoustics*, nº Vol. 11, p. 203-224, 2008.
- [121] M. Cavaro, Apport de l'accoustique non linéraire à la caractérisation de l'engagement du sodium liquide : application aux réacteurs nucléaires de quatrième génération. Aix Marseille 2, 2010.
- [122] T. G. Leighton, R. J. Lingard, A. J. Walton, et J. E. Field, « Acoustic bubble sizing by combination of subharmonic emissions with imaging frequency », *Ultrasonics*, vol. 29, nº 4, p. 319-323, juill. 1991.
- [123] A. D. Phelps et T. G. Leighton, « Investigations into the use of two frequency excitation to accurately determine bubble sizes », in *Bubble Dynamics and Interface Phenomena*, P. J. R. Blake, D. J. M. Boulton-Stone, et D. N. H. Thomas, Éd. Springer Netherlands, 1994, p. 475-484.
- [124] M. Cavaro et C. Payan, « Microbubble histogram reconstruction by nonlinear frequency mixing », *Proc. Meet. Acoust.*, vol. 19, nº 1, p. 030111, juin 2013.
- [125] E. Verboven, E. D'Agostino, J. D'hooge, H. Pfeiffer, O. Bou Matar, et K. Van Den Abeele, « The Nonlinear Coefficient Dispersion of Ultrasound Contrast Agents and the Challenges of Current Microbubble Oscillation Models », présenté à 2013 International Congress on Ultrasonics (ICU 2013), Singapore, 2013.
- [126] E. Verboven, K. Van Den Abeele, E. D'Agostino, J. D'hooge, H. Pfeiffer, et O. Bou Matar, « Characterization of ultrasound contrast agent enriched media based on their linear and nonlinear dispersion behavior », juin 2013.

- [127] G. Renaud, Mesure de non-linéarités élastiques et dissipatives par interaction d'ondes acoustiques : application à la quatification du micro-endommagement de l'os trabéculaire. Tours, 2008.
- [128] C. Trarieux, S. Calle, H. Moreschi, A. Poulin, J.-F. Tranchant, et M. Defontaine, « An analytical model to describe nonlinear viscoelastic properties of fluids measured by Dynamic Acoustoelastic Testing », in *Ultrasonics Symposium (IUS), 2012 IEEE International,* 2012, p. 1-4.
- [129] « The 21st International Symposium on Nonlinear Acoustics », *Cvent*. [En ligne]. Disponible sur: http://www.cvent.com/events/the-21st-international-symposium-on-nonlinear-acoustics/event-summary-a66cffc890f04caeb96b4d71968c7e09.aspx?lang=en. [Consulté le: 04-sept-2018].

**Résumé :** Dans le cadre de son implication dans le forum international GEN IV, la France a fait le choix de se focaliser sur les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium liquide. Un prototype, ASTRID, est en cours de développement. Ce dernier doit faire la démonstration de l'amélioration de sa sureté et de la surveillance en fonctionnement. Ceci passe, entre autre, par la caractérisation de l'engazement du sodium du circuit primaire.

En effet, du fait de la présence d'Argon en tant que gaz de couverture, un nuage de bulle existe de façon normale et continue dans le circuit primaire. L'opacité du sodium liquide, et les aptitudes spécifiques des méthodes ultrasonores justifient leur utilisation, privilégiée lors des inspections en opération. En effet, la présence de bulles pourrait altérer non seulement les échanges thermiques et neutroniques au sein du cœur, mais aussi les phénomènes d'ébullition et de cavitation ainsi que els propriétés acoustiques du caloporteur. La caractérisation de ce nuage répond donc à ces problématiques de contrôlabilité, elle permet aussi la validation de codes de calculs d'évolution de l'engazement tel que VIBUL.

Un travail bibliographique s'est attaché à déterminer les méthodes de caractérisation les plus adaptés pour répondre à ces problématiques en exploitant les forces et les faiblesses respectives. Ainsi, les méthodes d'inversion de mesures spectroscopiques d'atténuation et de célérité s'avèrent particulièrement robustes lorsqu'elles sont soutenues par des techniques de régularisation. Afin de limiter l'importance de l'arbitraire (*a priori*), l'intervalle des tailles des bulles du nuage est estimé préalablement à la distribution, durant la phase d'optimisation du paramètre de régularisation. Cette approche a montré sa capacité à caractériser des nuages dont les taux de vides sont compris entre  $10^{-6}$  et  $10^{-4}$ .

Pour des taux de vides inférieurs à  $10^{-6}$ , la faisabilité d'une inversion de mesures spectroscopiques du coefficient de non-linéarité a été étudiée et démontrée.

Les résultats laissent entrevoir de nombreuses perspectives quant à leurs application industrielles.

**Abstract :** France has chosen to focus on liquid sodium cooled fast neutron reactors as part of its involvement in the GEN IV international forum. A prototype, ASTRID, is under development. This prototype must demonstrate the improvement of its safety and monitoring in operation. This passes, among other things, by the characterization of the sodium engulfment of the primary circuit.

Indeed, due to the presence of Argon as a cover gas, a bubble cloud exists in a normal and continuous manner in the primary circuit. Due to the opacity of liquid sodium, ultrasonic testing methods are preferred for inspections in operation. However, the presence of bubbles greatly affects the acoustic properties of the medium. In addition, the presence of bubbles could also affects the heat and neutron exchanges within the core, as well as boiling and cavitation phenomena. The characterization of this cloud therefore responds to these controllability issues and allows the validation of evolution calculation codes of the engazement such as VIBUL.

A bibliographic work has sought to determine the most appropriate methods of characterization to answer these problems. The strengths and weaknesses of each method were studied. The inversion methods of spectroscopic attenuation and velocity measurements seem particularly suitable. In order to minimize the prior knowledge of the bubble cloud, a method for determining the range of radii has been developed. This method has shown its ability to characterize clouds with void fractions between 10<sup>-6</sup> and 10<sup>-4</sup>.

Then, in order to allow the characterization of clouds with void levels less than 10<sup>-6</sup>, the possibility of inverting spectroscopic measurements of the nonlinearity coefficient has been studied and demonstrated.

The results obtained offer numerous prospects for their industrial applications.

Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique Aix Marseille Université UPR CNRS 7051 4 Impasse Nicolas Tesla 13000 Marseille, France Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives Centre de Cadarache DEN/CAD/DTN/STCP/LISM Bâtiment 202 13108 Saint Paul-Lez-Durance Cedex