

## Apport de l'acoustique non linéaire à la caractérisation de l'engazement du sodium liquide. Application aux réacteurs nucléaires de quatrième génération.

Matthieu Cavaro

#### ► To cite this version:

Matthieu Cavaro. Apport de l'acoustique non linéaire à la caractérisation de l'engazement du sodium liquide. Application aux réacteurs nucléaires de quatrième génération.. Acoustique [physics.class-ph]. Aix-Marseille Université, 2010. Français. NNT: . tel-03337459

### HAL Id: tel-03337459 https://theses.hal.science/tel-03337459v1

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 DE LA MEDITERRANEE AIX-MARSEILLE II

Ecole doctorale :

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

Spécialité :

Acoustique

### Matthieu CAVARO

Apport de l'acoustique non linéaire à la caractérisation de l'engazement du sodium liquide.

Application aux réacteurs nucléaires de quatrième génération.

Soutenue le 17 novembre 2010

Jury :

**François BAQUE** Invité **Gilles CORNELOUP Examinateur** Jean-Louis IZBICKI Rapporteur Paul A. JOHNSON Président du jury Alain LHEMERY **Rapporteur** Serge MENSAH Examinateur Directeur de thèse Joseph MOYSAN **Cédric PAYAN Co-directeur de thèse** 

Qui ne doute pas acquiert peu.

Jeonardo Da Vinci

À Coralie

## Remerciements

Être exhaustif ici serait une gageure. Je remercie donc sincèrement tous ceux qui, de façon directe ou indirecte, ont contribué à l'aboutissement de ces trois années de thèse.

Certains ne seront jamais assez remerciés : je pense à Cédric en premier lieu pour son aide, ses avis éclairés et ses idées et sans qui cette thèse n'aurait pas été la même. Je remercie aussi tout particulièrement Jean-Luc, Kevin et Christian pour leurs conseils et leur soutien. Je n'oublie pas non plus Joseph et François, qui m'ont encadré tout au long de ma thèse.

Merci aux chefs de laboratoires grâce à qui cette thèse a pu se dérouler dans de bonnes conditions : Olivier Gastaldi, Philippe Dardé et Gilles Corneloup. Merci aussi au chef du STPA : Jean-Claude Maguin et au responsable scientifique du DTN : Christian Latgé.

Que serait une thèse sans vie de labo? Que soient donc ici remerciés tous les permanents, thésards, stagiaires, post-docs, ATER, intérimaires... du LCND, de l'ex-LTTS et du LIET. Merci en particulier à Aroune, Vincent, Naïm, Cécile, Ivan, Jean-François, Jean-Philippe Z., Audrey, Pierre, Pascal, Jean-Philippe J., Sofia, Gilles G. Merci aussi à Michelle, Manue, Malkine et Nicole pour l'huile qu'elles mettent tous les jours dans les rouages.

Je tiens aussi à adresser mes remerciements à Joël pour la justesse de son jugement lors du recrutement de ses stagiaires ou tout du moins de l'une d'entres elles...

Merci à Laurent Vivet et Pierre Grivelet, de la société RMS dont les avis et conseils, en particulier pour le traitement d'images, m'ont été précieux.

Un grand merci à l'équipe propagation et imagerie du LMA à Marseille pour leur accueil chaleureux durant les quelques mois de manips que j'ai effectués dans leurs locaux à Marseille. Merci en particulier à Thomas, Serge et Philippe.

A tous ceux que j'ai pu solliciter durant ces trois ans (la liste est longue) et qui ont eu la gentillesse de me consacrer un peu de temps, un immense merci. Je pense en particulier ici à Eric Hervieu, Alexej Maksimov, Ayache Bouakaz, Peggy Palanchon, Anthony Novell...

Mes remerciements vont aussi à Salah Touati, stagiaire de Master, à qui je dois une partie des simulations présentes dans ce manuscrit et à Serge Mensah dont l'aide a été précieuse lors de ce stage.

Merci à l'ensemble du jury : Paul Johnson, Jean-Louis Izbicki, Alain Lhémery, Serge Mensah, Joseph Moysan, Gilles Corneloup, Cédric Payan et François Baqué d'avoir accepté d'en faire partie. Merci en particulier à Jean-Louis et Alain qui ont en plus rapporté ce manuscrit et à Paul qui a accepté de présider ce jury.

J'ai une pensée particulière pour Alain Durocher qui au travers de mon stage de fin d'étude en 2006 au DRFC à Cadarache, m'a donné goût à la recherche et sans qui vous ne seriez pas en train de lire ces lignes.

Merci à ma famille et mes proches pour leur soutien, leurs encouragements et les « à-côtés » de la thèse, essentiels au bon déroulement de ces trois années.

Enfin, mes remerciements les plus profonds vont à Coralie sans qui cette fin de thèse ne se serait probablement pas déroulée de façon si sereine. Pour m'avoir motivé et supporté, ce manuscrit (qu'elle a relu intégralement) lui est dédié...

# Table des matières

NOTATIONS	IX
ABREVIATIONSXII	
INTRODUCTION	1
CHAPITRE 1. L'ENGAZEMENT DU SODIUM LIQUIDE	3
1.1. Contexte industriel et généralités	3
1.1.1. Les réacteurs nucléaires de 4 <sup>ème</sup> génération refroidis au sodium liquide	
1.1.2. La présence de gaz dans le sodium des SFR	4
1.1.1. Les enjeux de la caractérisation de l'engazement continu du sodium liquide primaire	4
1.1.1.1. La validation de codes de calcul du comportement des bulles en réacteurs	5
1.1.1.2. Une requête de l'autorité de sûreté nucléaire	5
1.1.2. Les origines de l'engazement continu du sodium	6
1.1.2.1. La dissolution - nucléation	6
1.1.2.2. Les effets d'entraînement	6
1.1.2.3. Autres sources d'engazement	7
1.1.3. Les conséquences de cet engazement	7
1.1.3.1. La modification des propriétés acoustiques du sodium	8
1.1.3.2. La génération de poches de gaz	8
1.1.3.3. La maîtrise du non dépassement des seuils de perturbation du cœur et de la DRG	8
1.1.3.4. Une conséquence positive : la prévention de l'ébullition explosive	9
1.1.4. De la nucléation à la dissolution : vie et mort des bulles en réacteur	9
1.1.4.1. Phénomènes à l'interface liquide-gaz	9
1.1.4.2. La diffusion des gaz dissous	10
1.1.4.3. Nucleation de bulles	11
1.1.4.4. Tension superficielle et loi de Laplace	12
1.1.4.5. Stabilité d'une bulle de gaz dans un liquide	13
1.1.4.6. Loalescence	16
1.1.4./. Fractionnement	16
1.1.5. Retour a experiences	17
1.2. Etude de la potentialité des contrôles non destructifs à la caractérisation de l'engazem	ent18
1.2.1. Etat de l'art	18
1.2.1.1. Les méthodes présentant des verrous physiques ou technologiques	18
1.2.1.2. Les méthodes potentiellement applicables	19
1.2.2. Méthodes acoustiques linéaires appliquées aux bulles	19
1.2.2.1. L'acoustique des bulles	19
1.2.2.2. Les différentes techniques acoustiques linéaires	30
1.3. Conclusions sur le potentiel de l'acoustique linéaire	34
CHAPTIKE Z. ACOUSTIQUE NON LINEAIKE DES BULLES	35

2.1.1.	Historique de l'acoustique non linéaire	
2.1.2.	Principes généraux de l'acoustique non linéaire	
2.1.3.	Paramètres de non linéarités	
2.1.4.	Dynamique des bulles	
2.1.4.1	Les modes de résonance des bulles	40
2.1.4.2.	Non linéarité de la dynamique des bulles	
2.1.4.3.	Modèle de Rayleigh (1917)	
2.1.4.4	Modèle de Rayleigh-Plesset (1949)	
2.1.4.5.	Modèle de Rayleigh-Plesset modifié (RPNNP) (1950-1952)	45
2.1.4.6	Modèle de Keller-Miksis (1980)	
2.1.4.7	Autres modèles	
2.2. Mét bulles	hodes acoustiques non linéaires d'amplitude finie appliquée aux bulles et n	uages de 46
2.2.1.	Emission d'harmoniques	
2.2.1.1	Principe de la génération d'harmoniques	
2.2.1.2	Expression de l'amplitude des harmoniques générées	
2.2.1.3	Potentiel des techniques basées sur la détection d'harmoniques	
2.2.2.	Les techniques de mixage de fréquences	
2.2.2.1	Principes généraux et historique	
2.2.2.2.	Mixage non linéaire haute fréquence – basse fréquence (HF-BF)	
2.2.2.1	Mixage non linéaire haute fréquence – haute fréquence (HF-HF)	58
2.2.2.2.	Autres mixages de fréquences	
2.2.3.	Spectroscopie de résonance non linéaire	
2.2.3.1.	Principe de la méthode	
2.2.3.2.	Les acronymes anglophones de la spectroscopie de résonance non linéaire	64
2.2.3.3.	Applications dans les solides	
2.2.4.	La spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles	
2.2.4.1	Principe	
2.2.4.2	Etat de l'art	
2.2.4.3	La fréquence de résonance d'un nuage de bulles	
2.3. Con	clusion	71

#### 

3.1. (	Génération d'un nuage de microbulles	74
3.2. (	Contrôle optique des nuages de bulles	76
3.2.1.	Constitution du dispositif de mesures optiques et traitement d'images associé	76
3.2.2.	Application du contrôle optique au nuage de bulles issu de l'aéroflottateur	78
3.2.3.	Validation du dispositif optique par diffractométrie laser	81
3.3. N	Aise en œuvre de la technique du mixage de fréquences HF-BF	83
3.3.1.	Protocole de reconstruction de l'histogramme des rayons des bulles	83
3.3.2.	Composition du dispositif expérimental	84
3.3.3.	Résultats	87
3.3.	3.1. Contrôle optique du nuage de bulles généré	87
3.3.	3.2. Reconstruction acoustique de l'histogramme des rayons des bulles	88
3.3.	3.3. Autres observations acoustiques	
3.3.4.	Conclusion	93
3.4. N	Aise en œuvre de la technique du mixage de fréquences HF-HF	93
3.4.1.	Composition du dispositif expérimental	93

3.	.4.2.	Résultats	
3.	.4.3.	Interprétation du faible nombre de bulles détectées par la technique HF-HF	96
3.	.4.4.	Conclusion	97
3.5.	Reco	onstruction d'histogrammes grâce au mixage de fréquences : conclusions	97
3.6.	Tra	nsposition au cas industriel « sodium liquide des SFR »	98
3.	.6.1.	Transposition des techniques acoustique non linéaires d'un point de vue physique	98
	3.6.1.1	Rupture d'impédance acoustique	98
	3.6.1.2	Fréquences de résonance	100
	3.6.1.3	Paramètre de non linéarité	101
	3.6.1.4	Seuil de Blake	101
	3.6.1.5	Modes de distorsion surfacique des bulles	101
	3.6.1.6	Transposition aux conditions physiques rencontrées au sein d'un réacteur	102
3.	.6.2.	La technologie disponible à ce jour : le TUSHT	103
	3.6.2.1	Transposition de la technique HF-BF avec le TUSHT	105
	3.6.2.2	Transposition de la technique HF-HF avec le TUSHT	106
3.7.	Cond	lusion	

#### 

4.1. S	pectroscopie de résonance non linéaire avec un résonateur plaques	109
4.1.1.	Présentation du résonateur plaques	109
4.1.2.	Résultats obtenus avec le résonateur plaques	111
4.1.	2.1. Calcul de la fréquence de résonance théorique	112
4.1.	2.2. Conditions expérimentales	112
4.1.	2.3. Vérification de la linéarité sans bulles	113
4.1.	2.4. Résultats en présence de bulles	114
4.1.	2.5. Résonateur en configuration quasi-anéchoïque	117
4.2. S	pectroscopie de résonance non linéaire avec un résonateur de Helmholtz	121
4.2.1.	Définition du résonateur de Helmholtz	121
4.2.2.	Présentation du résonateur de Helmholtz développé	123
4.2.3.	Résultats obtenus avec le résonateur de Helmholtz	126
4.2.	3.1. Calcul de la fréquence de résonance théorique	126
4.2.	3.2. Dispositif expérimental	127
4.2.	3.3. Résultats	127
4.3. R	ésultats expérimentaux de la spectroscopie de résonance non linéaire : conclusions	132
4.4. S	imulations numériques et modélisation de la spectroscopie de résonance non liné	aire 132
4.4.1.	Simulations sur une bulle	132
4.4.2.	Modélisation du résonateur de Helmholtz diphasique	136
4.4.3.	Simulations numériques et modélisation de la spectroscopie de résonance non linéaire :	
conclu	sion	141
4.5. C	onclusion : transposition de la spectroscopie de résonance non linéaire au sodiun	ı liquide
des SFR		142
4.5.1.	Réflexions d'ordre général	142
4.5.2.	Transposition d'un résonateur plaques	142
4.5.3.	Transposition d'un résonateur de Helmholtz	142

CHAPITRE 5. MISE EN PERSPECTIVE DES TRAVAUX REALISES	145
5.1. Perspectives expérimentales	
5.1.1. Mixage de fréquences : conclusions	
5.1.2. Spectroscopie de résonance non linéaire : conclusions	
5.1.1. Perspectives relatives au mixage de fréquences.	
5.1.2. Perspectives relatives à la spectroscopie de résonance non linéaire	140 146
5.1.1. Perspectives relatives à la modélisation de la spectroscopie de résonance non li	inéaire 147
	140
5.2. Autres phenomenes acoustiques observes et leurs implications	
5.2.1. Phenomenes observes lors du mixage de frequences	
5.2.1.1. Apparition de la frequence subharmonique	
5.2.1.2. Apparition des multiples des fréquences somme et différence	
5.2.1.3. Apparition des fréquences sub-somme et sub-différence	151
5.2.1.4. Apparition des fréquences sub-sub-somme et sub-sub-différence	153
5.2.1.5. Autres observations	155
5.2.2. Phénomène de grappes de bulles	156
5.2.2.1. Photographies des grappes de bulles	156
5.2.2.2. Identification du phénomène	158
5.2.2.3. Implications industrielles du phénomène de grappes de bulles	160
5.3. Perspectives acoustiques	
5.3.1. Résonateur de Helmholtz et modèle de Wood	
5.3.2. Evaluation des paramètres de non linéarité	
5.3.3. Combinaison de techniques	
5.3.4. Transposition au cas industriel.	
5341 Validation en eau avec des canteurs industriels	163
5342 Validation en eau au sein d'un nuage de microbulles	163
5.3.5.1.2. Validation en cad da sent a un nadige de microballes initiations en sodium liquide	165
5.3.5. Experimentations en sourdin inquide	
5.5.5.1. Generation a un nuage de microballes	
5.3.5.2. Anages tostoles	
5.4. Elargissement de la problématique industrielle	
5.4.1. Définition précise du cahier des charges vis-à-vis de la mesure de l'engazement	
5.4.2. Elargissement à la mesure de l'engazement incidentel et dans le circuit seco	ndaire 167
5.4.2.1. L'engazement incidentel	167
5.4.2.2. L'engazement du circuit secondaire	167
CONCLUSION GENERALE	169
ANNEXES : TABLE DES MATIERES	173
ANNEXE 1 : LE BANC MESANGE	
ANNEXE 2 : ETALONNAGE DU DISPOSITIF OPTIQUE COUPLE AU TRAITEMENT D'IMAGE	S DEVELOPPE
ANNEXE 3 : PRINCIPALES CARACTERISTIQUES PHYSIQUES ET ACOUSTIQUE DU SODIU	M LIQUIDE
ANNEXE 4 : CARACTERISTIQUES ACOUSTIQUES D'UN TRADUCTEUR FOCALISE	
RÉFÉRENCES	205

## Notations

#### NOTATIONS LATINES

- A Section
- *C* Concentration OU courbure
- *C<sub>g</sub>* Concentration en gaz dissous
- *C*<sub>s</sub> Concentration à la saturation
- *C<sub>p</sub>* Capacité thermique à pression constante
- c Célérité
- *c<sub>g</sub>* Vitesse de groupe
- $c_{\varphi}$  Vitesse de phase
- D Diamètre
- *Def* Définition
- *D*<sub>th</sub> Diffusivité thermique
- e Epaisseur
- *E* Module d'élasticité
- *d*<sub>e</sub> Diamètre de la sphère équivalente en volume
- *f* Fréquence
- *f*<sup>0</sup> Fréquence de résonance
- F Force
- G Grandissement
- *g* Accélération gravitationnelle
- H Hauteur
- k Nombre d'onde
- L Longueur
- *m* Masse
- *n* Indice (de mode, d'ordre...) OU Indice optique
- *ng* Nombre de mole de gaz
- *n*(*r*) Nombre de bulles de rayon *r*
- *P*, *p* Pression
- $p_v$  Pression de vapeur saturante
- $p_{\sigma}$  Pression de Laplace
- $q_v$  Débit
- R Rayon
- *R* Dérivée première du rayon
- *R* Dérivée seconde du rayon
- Res Résolution
- r Distance
- *S* Surface OU Solubilité
- s Entropie
- *T* Température OU période
- t Temps

- *u* Vitesse
- V Volume
- W Energie
- *x* Position

#### **NOTATIONS GRECQUES**

- *α* Paramètre de non linéarité non classique OU rapport de saturation OU coefficient d'atténuation acoustique
- $\beta$  Paramètre de non linéarité classique d'ordre 1
- $\beta_g$  Coefficient de solubilité du gaz
- $\delta$  Constante d'amortissement OU paramètre de non linéarité classique d'ordre 2
- ε Déformation
- *γ* Coefficient polytropique du gaz
- *Λ* Coefficient de perte de charge linéique
- $\lambda$  Longueur d'onde
- $\lambda_{th}$  Conductivité thermique
- $\mu$  Viscosité dynamique
- v Viscosité cinématique
- $\rho$  Masse volumique
- $\Sigma$  Paramètre de sursaturation
- $\Sigma_d$  Section de diffusion
- $\Sigma_a$  Section d'absorption
- $\Sigma_e$  Section d'extinction
- $\sigma$  Tension superficielle OU contrainte
- $\tau$  Taux de vide (= fraction volumique de gaz)
- *χ* Compressibilité
- $\omega$  Fréquence angulaire
- $\varphi$  Potentiel des vitesses
- $\theta$  Angle
- *ξ* Déplacement
- $\dot{\xi}$  Dérivée première du déplacement
- $\xi$  Dérivée seconde du déplacement

#### INDICES

0	Etat initial ou statique
stat	Statique
g ou gaz	Gaz
l ou <i>liq</i>	Liquide
v	Vapeur
gc	Gaz de couverture
gb	Gaz de la bulle
int	Interne
С	Critique

res	Résonance
т	Milieu
vis	Visqueux
rad	Radiatif
th	Thermique
tot	Total
$\infty$	Infini
р	Pompage
i	Imagerie
а	Acoustique
eff	Effectif
арр	Apparent
obs	Observateur

# Abréviations

Ar	Symbole chimique de l'argon
ASN	Autorité de Sureté Nucléaire
ASTRID	Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration
BF	Basse(s) Fréquence(s)
CEA	Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives
CND	Contrôle Non Destructif
COBUST	Characterization Of Bubbles Using Simultaneous Techniques
DA	Détection Acoustique
DAET	Dynamic Acousto Elastic Technique
DAF	Dissolved Air Flotation
DEN	Direction de l'Energie Nucléaire
DFU	Dual Frequency Ultrasound
DRG	Détection de Rupture de Gaines
DRT	Direction de la Recherche Technologique
DTN	Département de Technologie Nucléaire
EI	Echangeurs Intermédiaires
EMAT	Electro Magnetic Acoustic Transducers
FFT	Fast Fourier Transform
HF	Haute(s) Fréquence(s)
INPI	Institut National de la Propriété Industrielle
К	Symbole chimique du potassium
LED	Light Emitting Diode
LCND	Laboratoire de Caractérisation Non Destructive
LIET	Laboratoire d'Instrumentation et d'Essais Technologiques
LMA	Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique
MESANGE	MEsure Acoustique de l'eNGazement en EAu
Na	Symbole chimique du sodium
NEWS	Nonlinear Elastic Waves Spectroscopy
NRUS	Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy
NWMS	Nonlinear Wave Modulation Spectroscopy
PFR	Prototype Fast Reactor
RAM	Relative Amplitude Modulation
REM	Relative Energy Modulation
RNR	Réacteurs nucléaires à Neutrons Rapides

RNR-Na	RNR refroidis au sodium (Na) liquide
RP	Rayleigh-Plesset (Equation de -)
RPNNP	Rayleigh-Plesset-Noltingk-Neppiras-Poritsky (Equation de -)
SFR	Sodium Fast Reactor
SIMONRAS	Single Mode Nonlinear Resonant Acoustic Spectroscopy
SIMONRUS	Single Mode Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy
SPX	Superphénix
STPA	Service de Technologies et de Procédés Avancés
THF	Très Haute Fréquence
TOFM	Time Of Flight Modulation
TUSHT	Traducteur UltraSonore Haute Température
UCA	Ultrasound Contrast Agent
UKAEA	United Kingdom Atomic Energy Authority
US	UltraSonore ou UltraSons
VISUS	VISualisation US sous Sodium

# Introduction

Disposer d'une énergie durable, compétitive, sûre et fiable constitue l'enjeu principal du développement de la quatrième génération de réacteurs nucléaires actuellement à l'étude. Parmi les différentes technologies envisageables, la France a fait le choix de commencer par le développement de la filière SFR (Sodium Fast Reactor : Réacteurs à neutrons rapides refroidis par du sodium liquide). Ce choix doit conduire, à l'horizon 2020, à la réalisation du prototype ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration). L'expérience de la France dans le domaine des SFR est importante puisque trois réacteurs nucléaires refroidis par du sodium liquide ont fonctionné avec succès par le passé : il s'agit de Rapsodie, Phénix et Superphénix. Le prototype ASTRID, puis la filière SFR qui suivra, s'inscrivent cependant en rupture vis-à-vis de ces réacteurs, en particulier du point de vue de l'amélioration de la démonstration de la sûreté et de la surveillance du fonctionnement. Ces améliorations passent, entre autres, par la caractérisation des microbulles de gaz au sein du sodium liquide (le terme usité au CEA, bien que non français, est celui d' « engazement »). Leur présence est continue et tout à fait normale : elle est principalement due au gaz de couverture situé au dessus du sodium. Si cet engazement n'a pas de conséquence directe sur le comportement thermique et neutronique du cœur, il entraîne cependant une profonde modification des propriétés acoustiques du sodium liquide, principalement en termes de célérité et d'atténuation des ondes. Or la mise en œuvre de techniques de mesures basées sur ces propriétés, telles que la télémétrie ou thermométrie ultrasonore, devront prendre en compte ces modifications. Cet engazement peut aussi, entre autres, conduire à la formation potentielle de poches de gaz à laquelle est associé un risque de relâchement brusque générateur de perturbations. La maîtrise de ces conséquences passera nécessairement par une caractérisation consistant à évaluer le taux de vide, c'est-à-dire la fraction volumique de gaz libre, et l'histogramme des rayons des bulles constituant le nuage.

La problématique industrielle que constitue cette présence de microbulles de gaz dans le sodium liquide primaire des SFR fait l'objet du premier chapitre de ce manuscrit. Ses causes, ses conséquences et les principaux enjeux associés à sa caractérisation sont développés ainsi que les bases de la physique des bulles. Le comportement d'une bulle de gaz dans un liquide est complexe. Ses conséquences acoustiques furent étudiées pour la première fois en 1910, il y a un siècle exactement, par A. Mallock qui s'intéressa à l'atténuation acoustique rencontrée dans les milieux bulleux. Suivirent les travaux de Lord Rayleigh qui proposa le premier modèle de la dynamique vibratoire d'une bulle puis ceux, tout aussi célèbres, de W. Bragg et M. Minnaert s'intéressant aux bruits émis par les bulles. Entre 1910 et 2010, la phénoménologie du comportement acoustique des bulles, riche et complexe, a été à l'origine d'innombrables travaux. Comme nous le verrons, les propriétés du sodium liquide, en particulier son opacité, font que les méthodes acoustiques sont les seules à même de détecter et caractériser une très faible densité de bulles micrométriques. C'est la raison pour laquelle l'acoustique des bulles et un état de l'art des techniques acoustiques linéaires est l'objet de la deuxième partie du premier chapitre.

Si l'acoustique linéaire des bulles concerne de très nombreuses applications, elle présente toutefois des limitations en termes d'ambiguïté en présence de bulles résonantes, ce qui est potentiellement le cas dans un réacteur nucléaire puisque la taille des bulles en présence n'est, *a priori*, pas connue. Le choix a donc été fait de se tourner vers le domaine de l'acoustique non linéaire, qui est l'objet du second chapitre de ce manuscrit. Les bases de l'acoustique non linéaire, les principaux modèles de la dynamique des bulles et un état de l'art des techniques acoustiques non linéaires appliquées aux bulles et nuages de bulles sont développés.

#### Introduction

Parmi les techniques acoustiques non linéaires, deux ont retenu notre attention : ce sont les techniques de mixage de fréquence et la spectroscopie de résonance non linéaire. Le mixage de fréquences est l'objet du troisième chapitre. Il consiste à exciter un milieu ou un système non linéaire avec deux ondes acoustiques émises à des fréquences différentes. Le comportement non linéaire du milieu ou du système conduit alors à l'émission d'ondes aux fréquences somme et différence. L'objectif de l'application de cette technique est ici de reconstruire les histogrammes des rayons des bulles de façon fiable et précise, à partir de ces fréquences émises. Préliminairement à l'expérimentation des techniques acoustiques retenues a été conçu et monté le banc expérimental MESANGE (MESure Acoustique de l'eNGazement en Eau). Ce banc, doté d'un dispositif de génération de nuage de microbulles et d'un dispositif de contrôle optique, est présenté en première partie du troisième chapitre. Les résultats de la mise en œuvre de deux techniques de mixage de fréquences, une haute et une basse fréquence d'une part et deux hautes fréquences d'autre part, sont ensuite exposés.

La deuxième technique acoustique que nous avons sélectionnée, la spectroscopie de résonance non linéaire, consiste à observer et exploiter les décalages de la fréquence de résonance d'un système non linéaire, en fonction de l'amplitude d'excitation qui lui est appliquée. Si cette technique est déjà utilisée dans les solides, elle est ici appliquée pour la première fois à un nuage de bulles à basse fréquence relativement aux fréquences de résonance des bulles en présence. Les résultats font l'objet du quatrième chapitre. Les résultats issus de l'exploitation de deux résonateurs acoustiques différents sont présentés : un résonateur constitué de deux plaques et un résonateur de Helmholtz. Une application du modèle linéaire de Wood, grâce au résonateur de Helmholtz, est par ailleurs menée ainsi qu'une première approche de la simulation et de la modélisation des phénomènes non linéaires.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre dresse le bilan des nombreuses perspectives, tant d'un point de vue scientifique qu'industriel que présentent les résultats obtenus. Nous nous penchons en particulier sur la question du transfert des méthodes expérimentées au cas du sodium liquide des réacteurs nucléaires de quatrième génération.

# Chapitre 1. L'engazement du sodium liquide

Ce chapitre présente le contexte industriel de cette étude : l'engazement du sodium liquide des réacteurs SFR. Ses origines, ses causes, ses conséquences et les enjeux de sa caractérisation ainsi que les bases de la physique des bulles seront présentées dans un premier temps. La potentialité à caractériser cet engazement par diverses méthodes de contrôle non destructif et en particulier des méthodes acoustiques linéaires sera étudiée dans un second temps.

### 1.1. Contexte industriel et généralités

# **1.1.1. Les réacteurs nucléaires de 4**<sup>ème</sup> génération refroidis au sodium liquide

Les réacteurs nucléaires à neutrons rapides refroidis au sodium liquide (RNR-Na), également dits SFR (Sodium Fast Reactor) font partie des réacteurs nucléaires envisageables pour la quatrième génération. Ils constituent l'une des six filières retenues par le Forum International Génération IV destiné à instaurer une coopération internationale dans le cadre du développement des systèmes nucléaires de nouvelle génération. C'est également la filière retenue pour le prototype français ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration) prévu horizon 2020 [CEA10]. Les réacteurs français Rapsodie, Phénix et Superphénix étaient par ailleurs des réacteurs de type SFR.

Un RNR est un réacteur dont l'énergie des neutrons au niveau du cœur n'est pas modérée. Le fonctionnement, dit en spectre rapide (du fait de la vitesse des neutrons), présente un certain nombre d'avantages tels que la possibilité de mettre en œuvre la surgénération (production de plus de matière fissile qu'il n'en a été consommée) ou la transmutation des actinides mineurs mais il nécessite l'utilisation d'un caloporteur à faible section de capture neutronique tel que le sodium liquide.

Le sodium liquide possède en effet les propriétés attendues d'un caloporteur à savoir de bonnes propriétés thermohydrauliques, une faible nocivité, un faible coût... Ses principaux inconvénients sont sa réactivité à l'air et surtout à l'eau et son opacité qui rend l'inspectabilité des réacteurs plus difficile que dans l'eau ou dans un gaz.





C'est dans ce contexte que s'inscrit la thématique industrielle de la thèse : la caractérisation de la présence de bulles de gaz libre dans le sodium liquide du circuit primaire (dont la cuve dans laquelle est immergé le cœur, *cf.* Figure 1).

Cette présence de bulles de gaz libre, que nous désignerons par le terme « engazement » sera décrite par la suite (attention à la confusion fréquente entre gaz libre et gaz dissous qui sont deux phases à distinguer). Le terme d'engazement n'est pas français *stricto sensu*. Il est cependant fréquemment rencontré, en particulier dans les notes techniques CEA s'y rapportant.

#### 1.1.2. La présence de gaz dans le sodium des SFR

Le gaz présent sous forme libre dans le sodium liquide des SFR peut avoir diverses origines et être de diverses natures qui seront détaillées par la suite. Il est possible de rencontrer des bulles de gaz dans le sodium du circuit primaire (notamment dans la cuve principale où se trouve le cœur) et dans celui du circuit secondaire (circuit des échangeurs thermiques).

Chacun de ces circuits possède des sources potentielles d'engazement bien répertoriées dans le cadre des études menées sur les réacteurs tels que Phénix et Superphénix. Ils ne seront pas tous les deux développés ici car les travaux menés s'intéressent uniquement à l'engazement du circuit primaire.

Deux situations sont à différencier pour le circuit primaire : le cas de l'engazement continu normal et le cas d'un engazement incidentel. Seul l'engazement continu normal sera présenté ici car c'est lui que nous cherchons à caractériser dans le cadre de l'exploitation d'un SFR, l'engazement incidentel faisant l'objet d'autre études.

Comme écrit précédemment, les réacteurs type SFR utilisent le sodium liquide comme caloporteur. Cette phase fluide, présente dans le circuit primaire du réacteur, circule à travers le cœur, les pompes et les échangeurs thermiques afin d'extraire la chaleur issue de la fission nucléaire. Dans la cuve principale, le sodium est surmonté d'un gaz de couverture, aussi nommé ciel de pile (généralement de l'argon).

Idéalement, ce sodium liquide est parfaitement pur et monophasique. Dans la réalité, ce n'est pas le cas : en plus de comporter quelques impuretés (du potassium et des oxydes de sodium principalement, voir annexe 3) et des gaz dissous, le sodium véhicule de façon continue des microbulles de gaz. C'est donc cet engazement dit continu qui est l'objet de notre étude.

La caractérisation de l'engazement du sodium liquide consiste *a minima* à déterminer son taux de vide et si possible l'histogramme des rayons des bulles. Le taux de vide, généralement noté  $\tau$ , est la fraction volumique du gaz libre dans le mélange diphasique ; il est compris entre 0 et 1. L'expression taux de bulles est parfois rencontrée. Il est à différentier du taux de gaz qui est la fraction volumique de gaz libre lorsque le milieu diphasique est ramené aux conditions normales de température et de pression (T = 0°C ; P = 1 atm).

# **1.1.1. Les enjeux de la caractérisation de l'engazement continu du sodium liquide primaire**

La caractérisation de l'engazement continu du sodium liquide primaire des SFR présente divers enjeux. Le premier est bien sûr de maîtriser en temps réel les causes et conséquences de cet engazement. Celles-ci sont présentées au §.1.1.2 et §.1.1.3.

Mais cette caractérisation présente deux autres enjeux de taille : la validation de codes de calcul du comportement d'une population de bulles dans le circuit primaire d'un réacteur d'une part et la réponse à une requête de l'autorité de sureté nucléaire (ASN) d'autre part.

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

La modélisation du comportement d'une population de bulles en différents point d'un réacteur a fait l'objet du développement du programme VIBUL par le CEA au début des années 90. VIBUL : « un modèle de calcul de la vie des bulles en réacteur » [Ber91]<sup>1</sup> est un code système point (c'està-dire à 0 dimension). Il modélise l'évolution des bulles dans le circuit de sodium primaire du réacteur, en tenant compte principalement de la cinétique des échanges de gaz entre bulles et sodium, de la remontée des bulles sous l'effet de la force d'Archimède et de leur brisure dans les turbulences. Dans la première version du programme, la donnée d'entrée est constituée par la population de bulles issue du déversoir. Le calcul de l'histogramme des rayons de bulles et de la quantité de gaz dissous est réalisé en 9 points du circuit primaire (voir Figure 2). Entre 1991 et le début des années 2000, plusieurs développements successifs ont permis entre autres de prendre en compte le phénomène de nucléation de bulles [Mig97 – Moi98] et des champs de vitesses tridimensionnels [Mig98].



Figure 2 : Un circuit sodium représenté en 9 points par VIBUL [d'après Ber91]

La validation complète de ce type de programme grâce à des mesures directes pourrait permettre de traiter la problématique (tant du point de vue des causes que des conséquences) de la présence de bulles de gaz au sein du sodium primaire des réacteurs dès le stade de l'avant projet.

#### 1.1.1.2. Une requête de l'autorité de sûreté nucléaire

Alors qu'il avait été négligé lors des phases de conception, l'engazement continu du sodium primaire a fait l'objet de demandes précises de la part de l'autorité de sûreté nucléaire en 1994 et 1995 à l'exploitant de Superphénix. Il a en particulier été demandé d' «examiner (...) la possibilité d'apprécier de façon plus précise (...) la valeur (du) taux d'engazement » [ASN94 - ASN95]. L'arrêt de Superphénix en 1998 empêcha de fait l'exploitant de répondre complètement à ces requêtes.

A la vue de cette requête, il semble donc à ce jour difficile de ne pas progresser sur la question de la caractérisation de l'engazement continu du sodium primaire dans le cadre de la conception du réacteur expérimental ASTRID.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Le caractère spécifique du contexte industriel de cette étude a rendu incontournable la référence à certaines notes techniques CEA inaccessibles au public.

#### 1.1.2. Les origines de l'engazement continu du sodium

L'engazement du sodium primaire, a fait l'objet d'études menées pour les réacteurs Phénix et Superphénix (correspondant tous deux au concept intégré, voir Figure 1) qui ont permis de faire le bilan des facteurs d'engazement [SYF92]. En ce qui concerne l'engazement normal et continu du sodium primaire, sept principaux facteurs sont identifiables.

#### 1.1.2.1. La dissolution - nucléation

La principale source de formation continue de gaz libre dans le sodium primaire réside dans le phénomène de dissolution de gaz dans certaines zones du réacteur avec atteinte d'un équilibre de saturation (en particulier à l'interface sodium/gaz de couverture) puis de nucléation (formation de bulles de gaz libre) dans les zones de sursaturation du sodium en gaz dissous. Cette situation se produit dans les zones de refroidissement du sodium (sortie des échangeurs en particulier) et/ou de diminution de la pression hydrostatique.

Des études [Rah96] suggèrent que 80% de l'engazement des SFR proviendrait de ce phénomène. Il sera donc étudié en détails au §.1.1.4.

#### 1.1.2.2. Les effets d'entraînement

Dans un SFR, trois sources dites d'entraînement de gaz ont été identifiées :

#### Entraînement par le déversoir :

En cas de présence d'un déversoir non noyé (cas de Superphénix), le passage du sodium dans ce dernier provoque un « effet de cascade » à l'origine de l'arrachement de bulles de gaz. Lorsque la poussée d'Archimède n'arrive pas à contrer la force d'entraînement liée à l'écoulement du sodium (cas des plus petites bulles), les bulles créées par le déversement sont entrainées au sein du sodium primaire.



Figure 3 : Le déversoir de Superphénix [Dep80]

#### Entraînement par effet vortex :

L'apparition de vortex à la surface libre du sodium, lorsque celle-ci est turbulente, peut provoquer l'entraînement de bulles de gaz créées par arrachement à la base des vortex créés. Les SFR allant vers plus de compacité, il est probable que les écoulements n'en seront que plus turbulents et donc les surfaces libres plus agitées en cas d'absence de dispositif anti-vortex.

#### Entraînement par rotation des arbres de pompes :

La rotation des arbres des pompes immergées peut être la cause d'entraînement de bulles comme l'illustrent les schémas de la Figure 4 (effet vortex et/ou diminution de la pression hydrostatique) :



Figure 4 : L'entraînement de gaz par les pompes [SYF92]

Il est à noter que lors de la conception des réacteurs de future génération, les sources d'entraînement de gaz seront autant que possible éliminées.

#### 1.1.2.3. Autres sources d'engazement

#### Les réactions neutroniques :

La présence d'impuretés dans le sodium et de sodium lui-même peuvent entraîner une production de gaz par réactions neutroniques (apparition de gaz actifs tels que l'argon 41 ou le néon 23 dû respectivement à la présence de potassium et de sodium).

#### Les circuits auxiliaires :

Le retour du sodium cyclé en circuits auxiliaires extérieurs, s'ils existent et s'ils contiennent des sources d'engazement continu, ou s'ils se terminent par une chute au-dessus du niveau libre de type déversoir est une autre source potentielle d'engazement.

#### Les incidents :

Enfin, dans certains cas, des incidents peuvent devenir des sources d'engazement continu. Ainsi, une légère fuite d'argon est apparue au niveau d'un échangeur thermique de Superphénix ; ne pouvant être totalement résorbée, elle participa par la suite à la présence continue de gaz dans le circuit primaire du réacteur.

#### 1.1.3. Les conséquences de cet engazement

Le sodium primaire de Phénix et Superphénix était engazé de façon continue. Pourtant, aucun de ces deux réacteurs ne possédait d'instrumentation capable de caractériser cet engazement (seules des estimations et des mesures ponctuelles sur Superphénix [Rah97] ont été effectuées à la suite des requêtes de l'ASN). Il avait en effet été estimé que les faibles taux de vide en jeu ne présentaient pas de problèmes en termes de possibles perturbations thermiques et

neutroniques dans le cœur et que, par conséquent, l'instrumentation correspondante n'était pas nécessaire.

Cet engazement continu présente pourtant plusieurs conséquences qui paraissent difficiles à éluder pour les réacteurs à venir.

#### 1.1.3.1. La modification des propriétés acoustiques du sodium

La présence de bulles de gaz dans un liquide modifie très fortement ses propriétés acoustiques (célérité, atténuation, diffusion, propriétés non linéaires...). Or, l'opacité du sodium rend indispensable la mise en place de méthodes de mesures acoustiques pour la surveillance continue, qui est effectuée à la puissance nominale (mesure de déplacement de têtes d'assemblages, thermométrie ultrasonore), ou pour les contrôles périodiques réalisés en régime d'arrêt (télémétrie et visualisation ultrasonores, contrôle volumique...).

Cela implique de connaître un ordre de grandeur des coefficients d'atténuation, pour prouver *a priori* que l'amplitude du signal sera suffisante, ainsi qu'un ordre de grandeur du défaut d'homogénéité de la répartition spatiale, pour prouver que les étalonnages de la vitesse du son, réalisés à quelque distance du point de mesure effective, restent valides. Cela passe nécessairement par des connaissances sur la valeur du taux de vide et sur certaines données concernant l'histogramme des rayons des bulles, à savoir au moins ses bornes.

Le chapitre 1.2.2 développe les propriétés acoustiques d'un nuage de bulles dans un liquide.

A titre d'exemple, le dispositif VISUS de Superphénix (VISualisation par UltraSons en Sodium, dispositif qui s'apparente à un sonar ayant pour but de détecter d'éventuels obstacles dans le sodium au dessus du cœur) n'était pas utilisable quand les quatre pompes fonctionnaient simultanément en raison du trop fort engazement qu'induisait le déversoir. Le signal était tellement atténué qu'il devenait indétectable. Deux pompes devaient donc être arrêtées afin de diminuer cet engazement pour rendre utilisable le VISUS [Ber93].

La thèse de Kevin Paumel [Pau08] a par ailleurs montré que les poches de gaz présentes aux interfaces composites solide-liquide-gaz étaient responsables des mauvaises transmissions acoustiques constatées.

#### 1.1.3.2. La génération de poches de gaz

Les valeurs de taux de vide en fonctionnement nominal, évaluées ou mesurées pour Phénix ou Superphénix, sont telles qu'à ces niveaux, l'engazement continu n'est pas directement dommageable vis-à-vis du fonctionnement du cœur. En revanche, il l'est indirectement s'il peut participer à la génération de poches de gaz en points hauts des structures immergées (structures de support du cœur par exemple). Le relâchement brusque de poches de gaz accumulées serait en effet potentiellement bien plus problématique vis-à-vis des échanges thermiques au niveau du cœur et du comportement neutronique de ce dernier. Ce scénario fut d'ailleurs envisagé pour l'explication de la série d'arrêts d'urgence sur réactivité négative (AURN) de Phénix [Ber89].

Les caractéristiques de l'engazement continu du sodium primaire dans un réacteur constituent une donnée d'entrée pour des essais ou des modélisations de la formation et, le cas échéant, du relâchement de ces poches de gaz potentielles.

# 1.1.3.3. La maîtrise du non dépassement des seuils de perturbation du cœur et de la DRG

Le suivi du taux d'engazement du sodium primaire permet par ailleurs la maîtrise du non dépassement de deux seuils :

• Le seuil de perturbation neutronique. Au-delà d'une certaine quantité de gaz dans le sodium, les échanges thermiques ne sont plus suffisamment efficaces, ce qui est potentiellement dommageable pour le fonctionnement du cœur. Ce seuil est *a priori* trop haut pour pouvoir

être atteint dans les conditions normales de fonctionnement du réacteur : le taux de vide critique étant de l'ordre de plusieurs pour-cent [Ber08].

Le seuil d'aveuglement des systèmes de mesure de l'activité dans le ciel de pile (type Détection en gaz de Ruptures de Gaines : système de mesure de l'activité permettant la détection de l'émission des gaz de fission consécutive à une rupture de gaines). En effet, la présence de bulles dans le sodium primaire implique le relargage d'une fraction de ces bulles dans le gaz de couverture. Or les bulles sont principalement constituées d'<sup>40</sup>Ar mais aussi d'<sup>41</sup>Ar provenant de l'activation de l'<sup>40</sup>Ar et surtout de l'activation du <sup>41</sup>K, principale impureté présente dans le sodium liquide. Au delà d'un certain seuil de relargage de bulles (*i.e.* au-delà d'un certain taux de vide), l'activité de cet <sup>41</sup>Ar peut provoquer l'aveuglement des systèmes de mesure par trop forte dégradation du rapport signal à bruit. Ce seuil de « taux de vide aveuglant » a été évalué à 10<sup>-4</sup> dans le cadre du projet RNR 1500 [Fre88].

#### **1.1.3.4. Une conséquence positive : la prévention de l'ébullition explosive**

L'ébullition du sodium liquide fait partie des scénarios accidentels à maîtriser. Le phénomène de l'ébullition comporte plusieurs régimes successifs décrits par le diagramme proposé en 1934 par Nukiyama [Cro06].

Certains fluides dont l'eau présentent la particularité de pouvoir atteindre un état métastable dit de surchauffe : le liquide dépassant alors la température d'ébullition sans se vaporiser. Cette situation est critique car elle peut conduire à une ébullition explosive (retour brutal vers la température de saturation).

La présence de sites de nucléation tels que des microbulles de gaz dans le sodium liquide permet de minimiser voire d'annuler l'apparition de ce phénomène dans un SFR [Jud69 - Ram85].

# **1.1.4.** De la nucléation à la dissolution : vie et mort des bulles en réacteur.

Quelques principes simples de la physique des bulles, néanmoins nécessaires à la compréhension globale de l'apparition et de l'évolution de l'engazement du sodium des SFR, vont ici être présentés.

Les origines de l'engazement du sodium primaire des SFR ont été présentées au §.1.1.1. Ce sont principalement la dissolution-nucléation du gaz de couverture dans le sodium et les phénomènes d'entraînement de gaz. Commençons par détailler le phénomène de dissolution-nucléation avant de nous intéresser à l'évolution d'une population de bulles dans le sodium liquide. L'ensemble des phénomènes présentés sont globalement mal quantifiés dans les SFR. C'est dans cette optique qu'avait été développé le logiciel VIBUL.

#### 1.1.4.1. Phénomènes à l'interface liquide-gaz

Commençons ici par les définitions des états de saturation, sous saturation et sursaturation ainsi que de la pression partielle et de la tension.

#### a. Saturation, sous-saturation, sursaturation et métastabilité

Comme décrit précédemment, l'état de saturation correspond à l'équilibre stable du phénomène de dissolution. Lorsque la tension en gaz dissous est inférieure à la pression partielle de gaz, on parle de sous-saturation. A l'inverse, on parle de sursaturation.

Dans certains cas, l'absence de nucleus (site de nucléation) dans le liquide peut conduire ce dernier à un état de métastabilité lors d'un faible niveau de sursaturation.

#### b. <u>Pression partielle et tension</u>

Selon la loi de Dalton, la pression partielle  $p_g$  d'un gaz dans un mélange gazeux est la pression qu'exercerait ce gaz s'il occupait seul le volume dévolu au mélange. La définition de la pression

partielle est conventionnelle : c'est simplement le produit de la fraction molaire du gaz par la pression totale du mélange.

$$p_g = \frac{n_g}{\sum n} p_{total} \tag{1.1}$$

#### $n_g$ = nombre de moles du gaz considéré $\Sigma n$ = nombre total de moles du mélange gazeux

Dans le cas des gaz dissous dans un liquide, on ne parle pas de pression partielle mais de tension. La tension de gaz définit la quantité de gaz dissous dans un liquide à l'équilibre avec la même pression partielle de ce gaz. Ainsi, une tension de 2 bars d'argon dissous dans du sodium correspond à la quantité d'argon dissous lorsque le sodium est à l'équilibre avec un gaz présentant une pression partielle d'argon de 2 bars.

A l'équilibre de saturation entre la phase liquide et la phase gazeuse d'un même corps, on parle de pression de vapeur saturante ou de tension de vapeur.

Toute interface liquide-gaz voit coexister deux phénomènes : la dissolution du gaz dans le liquide et le dégazage des gaz dissous. L'état de saturation correspond à l'équilibre entre ces phénomènes. Pour un gaz donné, à saturation, la pression de ce gaz (ou sa pression partielle s'il s'agit d'un mélange de gaz) est égale à la tension en gaz dissous dans le liquide. Ce dernier a alors atteint sa limite en termes de stockage stable de gaz dissous.

Cet équilibre est décrit par la loi de Henry :

« A saturation, la concentration du gaz dissous dans un liquide,  $C_{g}$ , est proportionnelle à la pression partielle dudit gaz,  $P_{g}$ , au dessus du liquide »

$$C_g = \beta_g. P_g \tag{1.2}$$

Avec  $\beta_g$  le coefficient de solubilité du gaz dans le liquide, aussi appelé coefficient de Henry, dépend de la température.

Ainsi, pour Superphénix la concentration à saturation de l'argon dans le sodium est de 2,64.10<sup>-8</sup> mol.mol<sup>-1</sup>.bar<sup>-1</sup> à 550°C (température du collecteur chaud) et de 1,74.10<sup>-9</sup> mol.mol<sup>-1</sup>.bar<sup>-1</sup> à 400°C (température du collecteur froid) [Hon78]. La pression à l'interface sodium-argon du ciel de pile est de 1,10 bar et elle est de 1,62 bar à la sortie des échangeurs intermédiaires. A saturation, le sodium du collecteur chaud est donc capable de dissoudre plus de 10 fois plus d'argon que le sodium du collecteur froid. En considérant un équilibre à l'interface sodium-gaz de couverture dans le collecteur chaud, le rapport 10 entre ces deux états d'équilibre conduit à un état de sursaturation dans le collecteur froid à l'origine de la nucléation de microbulles. Ce phénomène est décrit ci-après, §.1.1.4.2.

#### 1.1.4.2. La diffusion des gaz dissous

Il existe deux types de diffusion de la matière. Lorsque la diffusion est régie uniquement par le mouvement d'une espèce sous le seul effet de l'agitation thermique (mouvement brownien), elle est appelée autodiffusion. La migration peut aussi avoir lieu sous l'effet d'une force, par exemple électrostatique dans le cas d'espèces chargées, ou bien chimique, ou encore sous l'effet d'un gradient de température et/ou de concentration. Dans ce cas, ce mouvement se superpose et se combine à l'autodiffusion et, est appelé simplement diffusion.

Phénoménologiquement, la diffusion est régie par les lois de Fick. La première loi de Fick énonce que le flux de diffusion est proportionnel au gradient de concentration.

Soit C<sub>i</sub> (x, y, z) la concentration de l'espèce *i* en un point donné. Définissons  $\vec{J_i}$  [mol.s<sup>-1</sup>.m<sup>-2</sup>] : le vecteur densité de flux de particules *i*. Dans le cas d'une diffusion isotrope, ce vecteur s'exprime :

$$\vec{j_i} = -D_{ij} \times \overline{grad} \ C_i \tag{1.3}$$

Avec  $D_{ij}$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] le coefficient de diffusion de i dans j. Il dépend de i, de j et de la température

À partir de la première loi de Fick et en appliquant la loi de la conservation des espèces (la variation de la quantité d'espèces dans un volume donné est égal au bilan des flux entrant et sortant), en absence de termes sources, la deuxième loi de Fick est déduite :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + div\,\vec{j_i} = 0 \tag{1.4}$$

#### 1.1.4.3. Nucléation de bulles

La nucléation est un terme générique employé pour désigner tout processus menant de manière autogène à la formation d'une bulle. Il faut, selon [Jon99], distinguer quatre types de nucléation : la nucléation homogène classique, la nucléation hétérogène classique, la nucléation pseudo classique et la nucléation non classique.

#### a. Nucléation de Type I : la nucléation homogène classique

Il s'agit de la nucléation au cœur d'un liquide pur. Aucun nucleus (ou site de nucléation) n'est présent avant que le liquide n'atteigne un état sursaturé. Le niveau de sursaturation (voir équation (1.17)) requis pour mener à l'apparition de bulles est très élevé : supérieur à 100 (voire plus selon certains auteurs) car il est nécessaire de « rompre » le liquide pour que la phase gazeuse soit formée, ce qui implique de dépasser la limite à la rupture du fluide. Pour l'eau, il est avancé une limite théorique à la rupture supérieure à 100 MPa [Lei94].

#### b. Nucléation de type II : la nucléation hétérogène classique

Ce type de nucléation est proche du type I et nécessite des niveaux comparables de sursaturation. Initialement, le système ne contient pas de cavité de gaz, ni dans le volume, ni sur les parois solides. En cas de sursaturation, des bulles peuvent alors se former au niveau d'une crevasse d'une surface solide, d'une surface ou sur une particule présente au sein du liquide.





Figure 5 : Nucléation classique de type II avant et après sursaturation [Jon99]

#### c. Nucléation de type III : la nucléation pseudo-classique

Ce type de nucléation peut être homogène ou hétérogène. Les bulles se forment à partir de cavités de gaz (préexistantes sur les parois solides et à la surface de particules présentes au sein du liquide telles que des oxydes de sodium) et des microbulles métastables présentes dans le liquide. Avant l'atteinte d'un état de sursaturation, le rayon de courbure des bulles ou poches de gaz est inférieur ou égal au rayon critique de stabilité vis-à-vis de la dissolution (les calculs de rayons critiques sont présentés au §.1.1.4.5). Ainsi, pour chaque nucleus, il existe une barrière finie d'énergie de nucléation qui doit être franchie. La sursaturation mène au franchissement de ces barrières d'énergie et les sites de nucléation produisent alors des bulles. La nucléation de type III peut être obtenue à des niveaux faibles de sursaturation.



Figure 6 : Nucléation de type III et IV avant et après sursaturation [Jon99]

#### d. Nucléation de type IV : la nucléation non classique

Cette nucléation est considérée comme non classique car il n'y a pas de barrière d'énergie de nucléation à franchir. Elle est possible lorsque des cavités de gaz préexistantes aux surfaces solides ou ailleurs dans le liquide présentent des rayons de courbures supérieures à la valeur critique de nucléation. Elle fait suite aux évènements de nucléation de type II ou III.

#### 1.1.4.4. Tension superficielle et loi de Laplace

Un milieu diphasique tel que peut l'être une bulle de gaz dans un liquide implique la présence d'une interface. La tension superficielle (N.m<sup>-1</sup>), ou énergie de surface (J.m<sup>-2</sup>), est la tension qui existe à la surface de séparation de deux milieux fluides tels que deux liquides ou un liquide et un gaz.

Au sein du liquide, l'ensemble des forces de cohésions internes qui s'exercent entre les molécules d'un fluide s'équilibre (forces de van der Walls, liaisons hydrogène, liaisons ioniques, liaisons métalliques). Mais en cas de présence d'une interface, les forces de cohésions agissant sur les molécules constituant cette surface de séparation ont une résultante dirigée vers l'intérieur et la surface se comporte comme si elle était soumise à une pression extérieure.

La tension superficielle est définie par l'énergie mécanique W à fournir au système pour accroître une surface S telle que :

$$\delta W = \sigma. \, dS \tag{1.5}$$

 $\sigma$  est appelé coefficient de tension superficielle et traduit donc la valeur des forces de liaison. Il est dépendant de la température et est propre au couple constitué par les deux phases en présence. Il correspond à une énergie par unité de surface de l'interface, son unité est donc le J.m<sup>-2</sup> (mais les N.m<sup>-1</sup> sont plus fréquemment utilisés).

La tension superficielle induit une surpression à l'intérieur des gouttes et des bulles et donc un saut de pression à la traversée d'une interface courbe. Ce saut de pression aussi appelé pression de Laplace vaut :

$$\Delta p = \sigma \left(\frac{1}{R} + \frac{1}{R'}\right) = \sigma. C \tag{1.6}$$

Avec  $\sigma$  la tension superficielle, R et R' les deux rayons de courbure principaux de la surface au point considéré et C la courbure de la surface. Pour une sphère, R = R' et donc C = 2/R, la pression de Laplace d'une bulle devient alors :

$$\Delta p = 2.\frac{\sigma}{R} \tag{1.7}$$

Un système tend toujours vers l'état le plus favorable énergétiquement or la sphère est la configuration géométrique présentant le plus faible ratio interface/volume. La tension superficielle tend donc à rendre sphériques les bulles et gouttes. Plus le rayon d'une bulle est faible et plus sa tension superficielle augmente. Ainsi, à conditions hydrodynamiques constantes, plus une bulle est petite et plus et elle tend à être sphérique.

Lorsque la tension superficielle est très largement prépondérante vis-à-vis des autres contraintes en présence il est possible de considérer les bulles comme parfaitement sphériques.

La Figure 7 donne les différentes géométries de bulles en fonction du nombre de Reynolds et de celui d'Eötvös.



**Figure 7 : Les régimes de formes des bulles et gouttes dans un écoulement liquide libre [Cli78]** Avec le nombre d'Eötvös :

$$E_0 = \frac{g \cdot \Delta \rho \cdot d_e^2}{\sigma} \tag{1.8}$$

g = accélération gravitationnelle  $\Delta \rho$  = différence entre la masse volumique du liquide et celle du gaz  $d_e$  = diamètre de la sphère équivalente en volume  $\sigma$  = tension superficielle

Dans le cas d'une bulle d'argon de 100  $\mu m$  de rayon dans du sodium liquide à 500°C, le nombre d'Eötvös vaut :

$$E_0 \approx 2.10^{-3}$$

D'après la Figure 7, cette valeur est en dehors du domaine défini mais en extrapolant, cette valeur se situe vraisemblablement dans le domaine des bulles sphériques et ce même pour de forts nombres de Reynolds (ce qui est le cas des SFR).

#### 1.1.4.5. Stabilité d'une bulle de gaz dans un liquide

La question de la stabilité d'un bulle de gaz dans un liquide se traite de différentes manières selon la nature du gaz (vapeur du liquide ou non) et l'état de saturation du liquide vis-à-vis du gaz considéré dans le cas des gaz dits incondensables.

#### a. Stabilité d'une bulle de vapeur

Ce cas est particulier puisqu'il ne fait pas intervenir de phénomène de dissolution à proprement parler mais des phénomènes de transfert de masse (vaporisation ou liquéfaction).

La stabilité mécanique d'une petite bulle de vapeur dans un liquide pur, nécessite qu'elle vérifie la loi de Laplace décrite au paragraphe précédent :

$$p_v = p_{int} = p_l + \frac{2\sigma}{R} \tag{1.9}$$

R le rayon de la bulle  $\sigma$  la tension superficielle du liquide  $p_{int}$  la pression interne de la bulle  $p_v$  la pression de vapeur saturante  $p_l$  la pression du liquide au niveau de la bulle.

Ainsi, le rayon de la bulle augmente si :

$$p_{\nu} > p_l + \frac{2\sigma}{R} \tag{1.10}$$

Et inversement pour une diminution de la taille de la bulle.  $p_v$  étant dépendant de la pression et de la température, la stabilité des bulles de vapeur dépendra de ces paramètres.

#### b. Stabilité d'une bulle de gaz « incondensable » dans un liquide saturé

Considérons une bulle sphérique de rayon *R* libre dans un liquide uniformément saturé par le gaz de couverture (de pression partielle  $p_{gc}$  dans la couverture). A l'interface liquide-gaz, l'équilibre des pressions donne :

$$p_{gc} + p_{v} = p_{l} \tag{1.11}$$

La pression interne  $p_i$  dans la bulle est la somme de la pression partielle du gaz dans la bulle  $p_{gb}$  et de la tension de vapeur du liquide  $p_v$ :

$$p_{int} = p_{gb} + p_v \tag{1.12}$$



#### Figure 8 : Equilibre d'une bulle dans un liquide saturé : pressions en jeu

L'équilibre des contraintes normales s'exerçant sur l'interface de la bulle s'exprime grâce à l'équation de Laplace (par simplicité, la pression hydrostatique n'est pas prise en compte ici) :

$$p_{int} = p_l + p_\sigma \tag{1.13}$$

 $p_{\sigma}$  la pression de Laplace telle que :  $p_{\sigma} = \sigma C$  $\sigma$  la tension superficielle [N.m<sup>-1</sup>]

#### *C* la courbure (= 2/*R* pour une sphère de rayon *R*)

Nous avons donc :

$$p_{int} = p_{gb} + p_v = p_l + \sigma C \tag{1.14}$$

Or la courbure *C* est considérée positive quand le rayon de courbure est tel que l'interface est convexe du point de vue du liquide, ce qui est toujours le cas pour une bulle sphérique.  $\sigma C$  est donc positif, ce qui implique :

$$p_{gb} > p_l - p_v \tag{1.15}$$

Et par conséquent :

$$p_{gb} > p_{gc} \tag{1.16}$$

La pression partielle de gaz dans la bulle au repos est donc supérieure à la tension en gaz dissous dans le liquide immédiatement hors de la bulle. Par conséquent, la recherche de l'équilibre décrit par la loi de Henry va faire se dissoudre le gaz de la bulle dans le liquide. La concentration en gaz dissous au voisinage de l'interface liquide-gaz de la bulle va donc excéder la concentration en gaz dissous dans le liquide considéré éloigné de la bulle. Un gradient de concentration va donc s'établir dans le système, ce qui conduit à la diffusion du gaz (loi de Fick) et donc à la dissolution de la bulle.

En conséquence, la taille de la bulle se réduit,  $p_{\sigma}$  augmente et donc l'excès de pression partielle du gaz dans la bulle devient plus grand. Ainsi une bulle de gaz dans un liquide saturé tendra à se dissoudre (et ce de plus en plus rapidement à mesure qu'elle diminue de volume) jusqu'à sa complète disparition. La variation de  $p_{\nu}$  avec le changement de taille de la bulle est ici négligée car il est souvent supposé que le transfert de masse est assez rapide pour que  $p_{\nu}$  reste constante quels que soient les changements du rayon de la bulle.

#### c. Stabilité d'une bulle de gaz dans un liquide sous-saturé

Dans un liquide sous-saturé la situation est identique à celle décrite ci-dessus : une bulle de gaz présente dans le liquide tend à se dissoudre. La dissolution de la bulle se fera de façon plus rapide car le gradient de concentration en gaz dissous, entre le voisinage de l'interface gazliquide de la bulle et le liquide, est plus fort.

#### d. Stabilité d'une bulle de gaz dans un liquide sursaturé

La concentration c en gaz dissous dans un liquide peut être caractérisée par le rapport de saturation  $\alpha$  ( $c_s$  étant la concentration en gaz dissous à l'équilibre de saturation) :

$$\alpha = \frac{c}{c_s} \tag{1.17}$$

Il est aussi défini le paramètre dit de sursaturation :

$$\Sigma = \alpha - 1 \tag{1.18}$$

De ce qui a été exposé précédemment (cas d'une bulle dans un milieu saturé) il peut être déduit que pour qu'une bulle de gaz soit stable dans un liquide, il est nécessaire que le liquide présente un état de sursaturation capable d'équilibrer la surpression due à la pression de Laplace.

Un rayon critique, fonction de cette sursaturation, est alors défini par le rayon en dessous duquel une bulle se dissout et au dessus duquel elle grossit.

La mise en équation de cet équilibre passe par le calcul de l'énergie libre à apporter au système pour créer une bulle de gaz et par la définition du rayon critique – correspondant à l'annulation

de la dérivée de cette énergie - ainsi que l'égalité des potentiels chimiques dans chacune des deux phases, pour chaque constituant [Lig06]. En négligeant la pression de vapeur saturante, le rayon critique est alors défini par :

$$R_c = \frac{2\sigma}{\Sigma . p_l} \tag{1.19}$$

#### **1.1.4.6.** Coalescence

La coalescence est la fusion de deux bulles en contact en une seule, tendant ainsi vers un niveau d'énergie de surface global plus bas.



Figure 9 : Coalescence de bulles

La coalescence de deux bulles de même rayon conduit à :

Volume total: 
$$V = 2 \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi R_1^3 = \frac{4}{3} \cdot \pi R_2^3$$
 (1.20)

Somme des surfaces des 2 bulles initiales : 
$$S_1 = 2 \cdot 4\pi R_1^2$$
 (1.21)

Surface après coalescence : 
$$S_2 = 4\pi R_2^2 = 4\pi \sqrt[3]{2} R_1^2$$
 (1.22)

$$\Rightarrow S_2 \sim 0,63.S_1$$

La coalescence de deux bulles de même rayon conduit effectivement à une diminution de surface. Ceci est vrai quels que soient les rayons initiaux des bulles.

Expérimentalement, les étapes suivantes sont observées : l'aplatissement des surfaces de bulles adjacentes avant le contact, le drainage du film liquide interposé jusqu'à une épaisseur critique, la rupture du film liquide et la formation d'une seule bulle. Il a été observé un intervalle de temps de l'aplatissement à la coalescence de moins d'une microseconde pour des microbulles dans une gamme de diamètre de quelques micromètres.

Il est donc généralement considéré qu'il y a coalescence dès qu'il y a contact, sans tenir compte d'un éventuel choc élastique ou d'une durée de drainage du liquide à l'interface. Le problème est généralement traité de façon statistique en calculant un noyau de probabilité de collision à partir d'une section de collision.

#### 1.1.4.7. Fractionnement

Une bulle de gaz dans un liquide en écoulement subit des forces de cisaillement dont l'intensité est reliée à la nature de l'écoulement (turbulence, viscosité...). Il existe ainsi un rayon maximum de stabilité de la bulle au delà duquel ces forces fractionnent la bulle.

Il existe de nombreux modèles de fractionnement des bulles dans un écoulement. Le modèle de Lewis [Lew82] donne en conduite :

$$d_m = 1,67.\,\sigma^{0,6} \left(\Lambda.\frac{1}{D}.\,\rho.\frac{v^3}{2}\right)^{-0,4}.\,\rho^{-0,2}$$
(1.23)

 $d_m = plus grand diamètre stable [m]$   $\sigma = tension superficielle du liquide [N.m<sup>-1</sup>]$  $<math>\rho = masse volumique du liquide [kg.m<sup>-3</sup>]$  D = diamètre du tronçon [m]  $v = vitesse débitante : v = q_v / (\pi D^2/4) [m.s<sup>-1</sup>]$  $\Lambda = coefficient de perte de charge linéique [s.u.]$ 

Avec  $\Lambda$  calculé grâce aux formules tirées des expériences de Nikuradze, en fonction du nombre de Reynolds *Re* et du rapport *D/k* entre le diamètre de la tuyauterie et sa rugosité de surface.

#### **1.1.5. Retour d'expériences**

L'exploitation des réacteurs Phénix et Superphénix permet d'établir un certain nombre d'éléments de retour d'expériences pour les réacteurs du futur :

#### <u>Nucléation</u>

Une étude a montré que l'essentiel des bulles présentes dans un réacteur à neutrons rapides quand il fonctionne à puissance nominale provient d'une nucléation de type III et est constitué des bulles nucléées au niveau des parois froides (sortie) des échangeurs intermédiaires [Rah96].

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

Des mesures de la décroissance de l'activité de l'<sup>41</sup>Ar dans le ciel de pile de Superphénix suite à un arrêt rapide, associées à l'étude du transport de l'argon dans le sodium, ont permis de déterminer une valeur assez précise du taux de vide dans le collecteur froid [Rah96 - Rah97] :

#### $\tau$ = 2,56.10<sup>-6</sup> (avec un facteur d'incertitude de 2)

Les facteurs d'engazement présentés précédemment sont les facteurs répertoriés pour les réacteurs SFR ayant fonctionné par le passé (en particulier Superphénix). Pour les réacteurs SFR du futur, l'approche consiste à chercher à diminuer voire supprimer ces sources d'engazement [SYF92]. Partant de cette considération, le taux d'engazement continu, pour le sodium des réacteurs du futur, sera vraisemblablement plus faible que celui des réacteurs comme Phénix ou Superphénix.

Pour autant, comme cela a déjà été précisé, la principale source d'engazement continu est associée au phénomène de dissolution - nucléation du gaz de couverture dans le sodium et, la suppression du ciel de pile n'étant pas envisagée, il n'est pas certain que l'engazement continu du sodium primaire des SFR présentera des taux de vide significativement inférieurs à ceux de Superphénix. Il est cependant difficile d'être catégorique étant donné la difficulté à évaluer le rôle des grosses bulles dans le taux de saturation du sodium. Il convient toutefois de bien faire la différence entre sources d'entraînement de gaz (déversoir, pompes...) et sources d'engazement (sources d'entraînement + autres sources telles que la nucléation). Ainsi, s'il est envisageable de supprimer totalement les sources d'entraînement, il n'en va pas de même pour les sources d'engazement qui semblent intrinsèques au système.

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

L'essentiel de l'engazement des SFR 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 dans les SFR). Ils sont ainsi compris entre 10  $\mu$ m [Rah96] et 40 à 50  $\mu$ m [Moi98]. Par ailleurs, les bulles issues de l'entraînement lié au déversoir auraient un rayon moyen de l'ordre de la centaine de micromètres [Rah96].

#### Rayon stable vis-à-vis du fractionnement hydrodynamique

Au vu des différents paramètres géométriques et thermohydrauliques, [Rah96] indique que le rayon stable dans les pompes primaires est de 1,3 mm à puissance nominale. Au sein des assemblages combustibles du cœur, ce rayon stable tombe à 279  $\mu$ m.

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

Pour un taux de vide de 10<sup>-5</sup>, la distance moyenne entre bulles voisines, entrainées à la même vitesse, est de l'ordre de 100 rayons [Rah96]. La probabilité de chocs entre bulles est donc suffisamment faible pour être négligée.

#### <u>Bruit de fond</u>

Une analyse du retour d'expérience du bruit de fond acoustique d'un SFR a été menée récemment au CEA [Pau10]. Il apparaît que les niveaux de bruit mesurés au dessus du cœur de Superphénix ne dépassaient pas la centaine de pascals. Le spectre du bruit de fond du réacteur Phénix est présenté Figure 10. Au dessus de 10 kHz, le signal est fortement atténué.



Figure 10 : Spectre du bruit de fond de Phénix [Gar89]

# 1.2. Etude de la potentialité des contrôles non destructifs à la caractérisation de l'engazement

#### 1.2.1. Etat de l'art

[Ber08] a dressé un état de l'art des techniques de mesures du taux de vide. Le caractère opaque du sodium et les faibles valeurs de taux de vide attendues de l'engazement continu des SFR éliminent directement un grand nombre de techniques :

#### 1.2.1.1. Les méthodes présentant des verrous physiques ou technologiques

- a. Les méthodes optiques non intrusives sont évidemment inutilisables en sodium de par son opacité.
- b. L'utilisation de fibres optiques intrusives est envisageable dans certains métaux liquides. Elles permettent une caractérisation locale de l'engazement d'un écoulement grâce à une détection bulle à bulle. La limitation essentielle de cette technique réside dans le rapport existant entre la taille des fibres et celle des bulles à mesurer : la fibre doit présenter un diamètre environ 10 fois inférieur au diamètre de la bulle. Caractériser des bulles dont le rayon fait quelques micromètres est donc techniquement inenvisageable car quand bien même il serait possible de mettre en œuvre des fibres optiques de diamètre inférieur au micromètre, leur tenue « physico-chimique » en sodium liquide à haute température serait très problématique.
- c. Les méthodes électriques en général (mesures volumiques de résistivité, d'impédance...) sont inutilisables car le sodium est un excellent conducteur électrique et que les

variations relatives des propriétés électriques du milieu lorsqu'il est « micro-engazé » ne sont pas techniquement mesurables à ce jour.

- d. La résonance magnétique nucléaire nécessite un environnement parfaitement amagnétique, ce qui est inenvisageable en réacteur, qui plus est lorsque le fluide caloporteur est paramagnétique, ce qui est le cas du sodium.
- e. Les méthodes basées sur les rayonnements ionisants (X, γ, neutrons) n'offrent pas, à ce jour, une résolution suffisante pour pouvoir envisager de caractériser de si faibles taux de vide et surtout de mesurer des histogrammes des rayons de microbulles.
- f. L'injection d'un gaz traceur radioactif peut être intéressante dans certains cas. Il ne permet cependant pas de bien « tracer » les phénomènes de dissolution-nucléation s'il présente, et c'est généralement le cas, une différence de solubilité avec le gaz de couverture.

#### **1.2.1.2. Les méthodes potentiellement applicables**

- a. La mesure de la décroissance de l'activité de l'<sup>41</sup>Ar dans le ciel de pile suite à un arrêt rapide. Dans un SFR, de l'<sup>41</sup>Ar est formé à partir de l'activation de l'<sup>40</sup>Ar et surtout de la principale impureté présente dans le sodium : le <sup>41</sup>K. Cette mesure de la décroissance de l'activité permet de remonter à la constante de dégazage et ainsi à une valeur du taux de vide dans le collecteur chaud avant l'arrêt rapide. Nécessitant un régime transitoire brutal tel qu'un arrêt rapide du réacteur, cette méthode n'est envisageable que dans une situation relativement peu fréquente dans le cadre du fonctionnement normal d'un SFR.
- b. Les débitmètres à distorsion de flux électromagnétiques installés sur les réacteurs tels que Superphénix semblaient être sensibles aux passages de gaz. Les taux de vide détectables semblent *a priori* important ([Ber08] parle de 10<sup>-2</sup>) mais il serait intéressant de se pencher à nouveau sur cette méthode car les méthodes actuelles de traitement des signaux pourraient apporter un gain en sensibilité.
- c. Les méthodes les plus intéressantes et abouties à ce jour restent incontestablement les méthodes acoustiques. Le contraste d'impédance acoustique entre une bulle de gaz et un liquide est si fort que les propriétés acoustiques d'un milieu sont fortement modifiées à partir de valeurs très faibles du taux de vide. Or, d'après le retour d'expérience, l'engazement continu des SFR présente des valeurs de taux de vide tout aussi faibles.

Ce sont donc les méthodes acoustiques qui ont retenu notre attention. Elles font donc l'objet de la suite de cette étude.

#### 1.2.2. Méthodes acoustiques linéaires appliquées aux bulles

Le terme d'acoustique regroupe la génération et l'évolution spatio-temporelle de petites perturbations mécaniques au sein d'un fluide compressible (ondes sonores : 20 Hz < f < 20 kHz, infrasonores : f < 20 Hz ou ultrasonores f > 20 kHz) ou d'un solide élastique (ondes élastiques). Le phénomène de base est la propagation d'onde qui caractérise l'évolution spatio-temporelle de la perturbation en milieu homogène ou quasi-homogène.

Avant de détailler les différentes méthodes acoustiques envisageables en milieux diphasiques, intéressons nous tout d'abord aux bases de l'acoustique des milieux bulleux.

#### 1.2.2.1. L'acoustique des bulles

Si les méthodes acoustiques sont si souvent citées dans le cadre de la caractérisation des milieux diphasiques, c'est parce qu'une bulle (ou un nuage de bulles) interagit fortement avec une onde
acoustique et que la mesure de la conséquence de cette interaction (modification de célérité, d'atténuation..) peut dans certains cas permettre de remonter aux caractéristiques de la (ou des) bulle(s). La simple considération des impédances acoustiques en jeu dans le cas eau-air montre qu'il faut s'attendre à des phénomènes acoustiques marqués :

$$(\rho c)_{eau} = 1,5.10^{6}$$
 rayls

$$(\rho c)_{air} \sim 400 \text{ rayls}$$

Sont par la suite présentés les principes fondamentaux de l'acoustique linéaire des bulles. L'approche non linéaire sera abordée au §.2.

Comme tout système mécanique, une bulle présente une fréquence de résonance. Cette fréquence est importante à déterminer pour évaluer la propagation d'une onde acoustique dans un milieu bulleux car, comme nous le verrons par la suite, les phénomènes sont souvent très différents selon la fréquence de l'onde, *i.e.* si elle se situe en dessous, au dessus ou à la fréquence de résonance des bulles.

#### a. La fréquence de résonance des bulles

Considérons une bulle de gaz sphérique dans un volume de liquide. Ce système possède, de par les compressibilités respectives du gaz et du liquide, une infinité de degrés de liberté et donc une infinité de modes propres d'oscillation.

Le mode 0 correspondant à la résonance radiale, aussi appelé mode respirant, est cependant le seul à présenter des variations volumiques de la bulle. Ce mode possède une fréquence de résonance dont la longueur d'onde dans le gaz et le liquide ( $\lambda$ ) est très grande devant le rayon R de la bulle.

Il est ici intéressant de souligner la grande différence entre la longueur d'onde de la fréquence de résonance d'une bulle et le rayon de la bulle considérée (contrairement à beaucoup de systèmes mécaniques). Pour une bulle de gaz de rayon 10  $\mu$ m dans du sodium liquide à 450°C et 5 bars, nous avons :

#### fres = 799 kHz

#### $\lambda = 2,9 \text{ mm} \approx 300 \text{ Rayons}$

Il est possible de n'envisager que les pulsations de volume à symétrie sphérique des bulles (mode 0) lorsque  $k.R \ll 1$  ( $\lambda \gg R$ ). Les autres modes de vibration des bulles sont présentés au §.2.1.4.1.

Le modèle le plus simple décrivant la fréquence correspondant au mode fondamental de résonance d'une bulle porte le nom de fréquence de Minnaert, du nom de son découvreur. Comme expliqué précédemment, la résonance de Minnaert met en jeu des longueurs d'ondes acoustiques grandes devant le rayon des bulles. Le phénomène vibratoire des bulles dans un fluide peut alors être considéré comme un modèle d'oscillateur harmonique (système masse-ressort dont la masse est constituée par le fluide environnant la bulle et le ressort par le gaz compressible de la bulle).

Le modèle de Minnaert [Min33], le plus ancien décrivant la fréquence de résonance d'une bulle de rayon *R* (dans bien des cas, ce modèle linéaire simple suffit), donne :

$$f_{res} = \frac{1}{2\pi R} \sqrt{\frac{3\gamma p_0}{\rho_l}}$$
(1.24)

 $\gamma$  = exposant isentropique du gaz [s.u.]

 $p_0$  = pression statique [Pa]

 $\rho_l$  = masse volumique du liquide [kg.m<sup>-3</sup>]



Figure 11 : Modèles de Minnaert pour les bulles d'air dans l'eau et d'argon dans le sodium

Les données utilisées ci-dessus pour le couple sodium-argon : 5 bars et 450°C, correspondent aux conditions de température et de pression à l'entrée du cœur [Ber08].

En considérant le cas du sodium à l'interface sodium-argon (1 bar, 550°C), la fréquence de résonance devient :

$$f_{res} . R \sim 3,63 \ [Hz.m]$$
 (1.25)

Le comportement est ici très proche de celui du couple eau-air à 20°C sous 1 bar.

La validité du modèle de Minnaert est vérifiée si :

- 1. La tension superficielle de la bulle n'est pas significative, ce qui est le cas pour des bulles de rayon supérieur à une dizaine de micromètres.
- 2. Les pressions acoustiques en jeu sont suffisamment faibles pour considérer que la résonance des bulles est un phénomène linéaire (typiquement lorsque la pression est inférieure au kPa). Le cas des pressions acoustiques plus importantes sera étudié au chapitre 2.

D'autres modèles plus complets existent. Citons par exemple le modèle de Smith [Smi35] qui prend en compte la tension superficielle, celui de Medwin [Med77] qui prend en compte l'influence des échanges de chaleur en plus d'effets de tension superficielle ou encore les modèles découlant de la linéarisation des modèles de dynamique des bulles. [Pau09] a montré que l'erreur commise en utilisant la fréquence de Minnaert au lieu de celle issue de la linéarisation du modèle dynamique de RPNNP (voir §.2.1.4.5) est inférieure à 1% pour des bulles de rayons supérieurs à 100  $\mu$ m. Pour une bulle de 10  $\mu$ m, l'erreur commise est inférieure à 5%.

#### b. <u>Chemin thermodynamique d'une excitation acoustique</u>

La propagation acoustique en milieu diphasique peut correspondre à un phénomène adiabatique ou isotherme, suivant la fréquence d'excitation des bulles. La propagation acoustique entraîne des transferts de chaleur entre phases. Si la période de l'onde excitatrice est inférieure aux durées nécessaires aux transferts thermiques, les variations volumiques dues au passage de l'onde pourront être considérées comme adiabatiques. Le comportement du gaz est alors régi par le coefficient polytropique  $\gamma = 1,4$  pour l'air et l'azote et 1,66 pour l'argon. Dans le cas contraire, le comportement du gaz peut être considéré comme isotherme avec  $\gamma = 1$ .

Les effets de conductivité thermique deviennent donc significatifs lorsque le temps caractéristique de refroidissement thermique des bulles t est inférieur à la période de l'onde incidente, avec :

$$t = 0.2 \frac{R^2}{D_{th}}$$
(1.26)

Avec  $D_{th}$ , la diffusivité thermique de la phase gazeuse =  $\lambda_{th} / (\rho.C_p)$  $\lambda_{th}$ , la conductivité thermique

L'équation (1.26) permet ainsi de remonter aux fréquences caractéristiques  $f_c = 1/t$ :

 Pour l'air (27°C) D= 2,22x10<sup>-5</sup> m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup> pour R = 10µm  $f_c = 1,1MHz$ pour R = 100µm  $f_c = 1,1MHz$  Pour l'argon (552°C) D= 1,26x10<sup>-4</sup> m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup> [Hon78] pour R = 10µm  $f_c = 6,3 MHz$ pour R = 100µm  $f_c = 6,3 MHz$ 

Vu les fréquences obtenues pour cette gamme de rayons, ce critère sera à prendre en compte afin de confirmer le caractère isotherme ou non des phénomènes considérés.

#### c. <u>Célérité acoustique en milieu diphasique (à basse fréquence)</u>

Dans un mélange diphasique liquide - bulles de gaz, introduisons :

- $\tau$  le taux de vide,
- $\chi_{gaz}$  la compressibilité du gaz et  $\chi_{liq}$  la compressibilité du liquide,
- $\rho_{gaz}$  la masse volumique du gaz et  $\rho_{liq}$  la masse volumique du liquide.

Dans l'hypothèse d'une fréquence très inférieure à la fréquence de résonance des bulles présentes, nous avons :

$$\rho_{equivalente} = (1 - \tau)\rho_{liq} + \tau.\rho_{gaz}$$
(1.27)

$$\chi_{equivalente} = (1 - \tau)\chi_{liq} + \tau \chi_{gaz}$$
(1.28)

Dans le cas de bulles de gaz dans un liquide, même pour de faibles taux de vide, nous avons :

 $\rho_{liq} >> \rho_{gaz} \text{ et } \chi_{gaz} >> \chi_{liq}$ 

Ceci entraîne que le milieu diphasique est alors caractérisé par la masse volumique du fluide et la compressibilité du gaz, ce qui explique de profondes modifications de célérité. Le modèle de Wood [Woo41] relie célérité acoustique et taux de vide d'un milieu diphasique. En partant de la célérité dans un fluide,

$$c = \frac{1}{\sqrt{\rho\chi}} \tag{1.29}$$

En utilisant  $\rho_{équivalente}$  et  $\chi_{équivalente}$  définis précédemment et après simplification, il vient :

$$\frac{1}{c_m^2} = \frac{\tau^2 \gamma}{c_{gaz}^2} + \frac{(1-\tau)^2}{c_{liq}^2} + \tau (1-\tau) \left(\frac{\rho_{liq}}{p} + \rho_{gaz} \chi_{liq}\right)$$
(1.30)

Avec :

 $\tau$  = taux de vide

 $\gamma$  = coefficient isentropique du gaz

c = célérité du milieu diphasique (m), du liquide (liq) ou du gaz

- $\rho$  = masse volumique du liquide (liq) ou du gaz
- $\chi$  = compressibilité du liquide (liq) ou du gaz

*p* = *pression dans le liquide* 

Cette variation de célérité induite par un nuage de bulles est responsable de l'effet dit « chocolat chaud ». Lorsqu'une tasse de chocolat ou de café soluble est remplie de liquide bouillant, la note émise lorsqu'on frappe la tasse avec la petite cuillère change de tonalité au cours du temps. Le son émis devient en fait de plus en plus aigu à mesure que les microbulles remontent à la surface [Cra82].

Pour le cas des bulles d'argon dans le sodium, l'application du modèle de Wood donne :

- Pression = 1013 hPa
- Température = 775 K (502°C)
- Célérité dans le sodium = 2317 m.s<sup>-1</sup>
- Célérité dans l'argon = 519 m.s<sup>-1</sup>
- Masse volumique ρ du sodium = 829,4 kg.m-<sup>3</sup>
- Masse volumique ρ de l'argon = 0,62 kg.m<sup>-3</sup>
- Coefficient polytropique γ de l'argon = 1 (cas basse fréquence isotherme)





La Figure 12 montre que la célérité est fortement modifiée à partir de valeurs très faibles du taux de vide. Cette propriété présente un intérêt vis-à-vis de la caractérisation du taux de vide des nuages de bulles. Pour le cas sodium liquide – argon ( $500^{\circ}$ C – 1 bar), nous avons :

- 0,1 % de variation pour un taux de vide de 5.10<sup>-8</sup> - 1% pour 5.10<sup>-7</sup> - 10% pour 5.10<sup>-6</sup>

Si le taux de vide n'est pas connu, ces variations de taux de vide peuvent *a contrario* être très problématique et rendre impossible toutes technique basée sur une mesure de temps de vol.

Le minimum de célérité correspond à un taux de vide de 0,5 (célérité de 22,1 m.s<sup>-1</sup> pour le cas des bulles d'argon dans le sodium). Une valeur de célérité inférieure à celle du gaz peut donc correspondre à deux valeurs distinctes de taux de vide. Cependant, étant donnés les très faibles taux de vide en jeu dans le cas de l'engazement des SFR, nous ne considérerons pas l'éventualité de cette ambiguïté.

#### Définition du domaine de validité du modèle de Wood

La courbe de la Figure 13 présente la célérité acoustique dans un milieu diphasique air-eau en fonction de la fréquence [Che95]. La forte discontinuité correspond à la fréquence de résonance (ici environ 2,95 kHz) de la population de bulles (rayon de 1,11 mm) en présence. La première partie de la courbe fait apparaître une zone de célérité constante indépendamment de la fréquence. C'est cette plage qui est dite « basse fréquence » (relativement à la fréquence de résonance) et qui correspond au domaine d'application du modèle de Wood.



Figure 13 : Célérité en fonction de la fréquence d'un milieu diphasique air-eau. Théorie (trait plein) et point de mesures acoustique et optique (LDV) concordent théorie (bulles de 1,1 mm et taux de vide de 10<sup>-2</sup>) [Che95]

Pour une population de bulles présentant une répartition des rayons, la mesure de célérité basse fréquence devra être réalisée à une fréquence inférieure à la plus faible fréquence de résonance des bulles en présence, c'est-à-dire inférieure à la fréquence de résonance de la plus grosse bulle.

En cas de non-connaissance de la taille des bulles et donc des bornes du domaine, il sera possible de chercher une constance de la célérité en faisant plusieurs mesures successives à différentes fréquences.

#### Influence des gaz dissous sur la célérité

Contrairement au gaz libre, les gaz dissous dans un liquide ont une influence négligeable sur la propagation des ondes. En effet, la vitesse de propagation d'une onde dans un fluide est donnée par l'équation (1.29) : elle est fonction de la masse volumique et de la compressibilité du milieu.

Selon la formulation de Veleckis [Vel71] la solubilité de l'argon dans le sodium est donnée par :

$$\log S = -2,59 - \frac{4221}{T} \tag{1.31}$$

A 530°C et à saturation, la fraction massique d'argon dissous dans le sodium vaut donc 2,48.10<sup>-8</sup>. La variation de masse volumique induite par l'argon dissous est donc très largement négligeable.

De plus, phénoménologiquement, les atomes ou molécules d'un gaz en solution adoptent la structure d'un liquide. La mise en solution d'un gaz dans un liquide peut-être ainsi considérée comme une liquéfaction de ce gaz suivie d'un simple mélange entre deux liquides. Un bon accord est d'ailleurs constaté entre les températures de liquéfaction des gaz et leur solubilité. La compressibilité d'un mélange de fluide est complexe à définir [Rei87] et dépasse largement le cadre de notre étude, mais étant considérée la quasi-incompressibilité d'un liquide et la très faible fraction volumique du gaz dissous à saturation, la variation de compressibilité sera considérée comme quasiment nulle.

Les gaz dissous dans un liquide n'ont donc aucune influence pratique sur la célérité acoustique dans le liquide.

#### <u>Vitesse de groupe – vitesse de phase</u>

Deux vitesses caractérisent la propagation des ondes : la vitesse de groupe et la vitesse de phase, qui sont généralement différentes. La vitesse de phase concerne la vitesse de propagation de la porteuse du signal alors que la vitesse de groupe concerne la vitesse de propagation de l'enveloppe du signal.

La relation entre vitesse de phase  $c_{\varphi}$  et vitesse de groupe  $c_g$  est donnée par :

$$c_{g} = \frac{c_{\varphi}}{1 - \frac{f}{c_{\varphi}} \cdot \frac{dc_{\varphi}}{df}}$$
(1.32)

Dans le cas de la mesure de célérité à basse fréquence par rapport à la fréquence de résonance, vitesse de groupe et vitesse de phase sont équivalentes (la vitesse de propagation des ondes étant justement considérée indépendante de la fréquence) donc cette distinction n'a pas lieu d'être.

#### *d. <u>Célérité acoustique en milieu diphasique (autour et au dessus de la fréquence</u> <u>de résonance des bulles)</u>*

La Figure 13 illustre l'évolution de la célérité autour de la fréquence de résonance. Elle passe par un minimum avant la fréquence de résonance et un maximum ensuite. Ceci est dû au léger déphasage qui apparaît autour de la résonance et qui provoque un « ralentissement » en dessous de cette dernière et une « accélération » au dessus. [Com89] a montré que la célérité autour de la fréquence de résonance n'est pas bien décrite par les modèles existants.

Au dessus de la fréquence de résonance des bulles, la célérité du mélange diphasique est la célérité du liquide pur.

#### e. <u>Diffusion</u>

Lorsqu'une particule est insonifiée par une onde acoustique, une partie de l'énergie incidente est diffusée ou réfléchie par la particule. Les oscillations de la bulle (décrites par les modèles dynamique présentés au §.2) entrainent un rayonnement acoustique à la base de la diffusion dite active.

La diffusion dite passive est, quant à elle, principalement due à la différence de caractéristiques acoustiques entre le milieu environnant et le diffuseur. La section efficace de diffusion caractérise l'efficacité de l'interaction entre l'onde et le diffuseur. Cette section peut être définie comme étant la section géométrique équivalente d'une cible réfléchissante ou absorbante.

Lorsque  $\lambda >> R$ , l'approximation de Born permet de définir la section efficace de diffusion d'une particule [Mor87] :

$$\sum_{d} = \frac{4\pi}{9} k^{4} R^{6} \left[ \left( \frac{\chi_{p} - \chi_{m}}{\chi_{m}} \right)^{2} + \frac{1}{3} \left[ \frac{3(\rho_{p} - \rho_{m})}{2\rho_{p} + \rho_{m}} \right]^{2} \right]$$
(1.33)

k : le nombre d'onde (=  $\omega/c$ ,  $\omega$  étant la pulsation de l'onde excitatrice) R : le rayon de la particule  $\chi$  : la compressibilité (<sub>m</sub> du milieu, <sub>p</sub> de la particule)  $\rho$  : la masse volumique (<sub>m</sub> du milieu, <sub>p</sub> de la particule)

[Bou07] donne à titre d'exemple les sections efficaces de diffusion d'une particule de fer et d'une microbulle de gaz de rayon identique (1,5  $\mu$ m) excitées par une onde ultrasonore à 3 MHz (donc proche de la fréquence de résonance de la bulle). Pour la bulle de gaz, S = 113  $\mu$ m<sup>2</sup> et pour la particule de fer, S = 6.10<sup>-7</sup>  $\mu$ m<sup>2</sup>, soit un facteur de l'ordre du milliard.

#### Cas de la multidiffusion

Dans un milieu comportant de nombreux diffuseurs, des phénomènes de diffusion multiple peuvent apparaître (voir Figure 14).



Figure 14 : Le phénomène de diffusion multiple

Les modèles de base de la diffusion multiple les plus souvent rencontrés sont ceux de Foldy [Fol45] ainsi que celui de Waterman et Truel [Wat61]. Dans le cadre de l'engazement continu, ce phénomène ne sera pas considéré car selon [Com89] et [Ye95], il n'apparaît pas de diffusion multiple significative pour des taux de vide inférieurs à 10-<sup>2</sup>.

#### f. Amortissement

La vibration mécanique des bulles est soumise à un amortissement. Celui-ci contribue au coefficient d'atténuation de l'onde acoustique incidente, et dans une moindre mesure, à la fréquence de résonance et à la variation de la vitesse de phase. La théorie de Devin [Dev59] considère cet amortissement comme la somme de trois contributions : du rayonnement acoustique, de l'amortissement thermique et de l'amortissement visqueux.

$$\delta = \delta_{rad} + \delta_{vis} + \delta_{th} \tag{1.34}$$

Ce coefficient apparaît dans l'équation du mouvement d'une bulle sous la forme :

$$m\ddot{x} + \delta\dot{x} + kx + p_a e^{j\omega t} \tag{1.35}$$

[Ell70], en développant les travaux de Devin [Dev59], a proposé les expressions de ces trois coefficients.

En posant :

$$d = \frac{\omega\delta}{k} \tag{1.36}$$

Avec =  $d_{rad} + d_{vis} + d_{th}$ , nous avons :

Chapitre 1 : L'engazement du sodium liquide

$$d_{rad} = \frac{\rho R_0^3 \omega^3}{3P_0 c.B}$$
(1.37)

$$d_{vis} = \frac{4\omega\mu}{3P_0.B} \tag{1.38}$$

$$d_{th} = A \tag{1.39}$$

vec: 
$$A = 3(\gamma - 1) \left[ \frac{X(\sinh X + \sin X) - 2(\cosh X - \cos X)}{X^2(\cosh X - \cos X) + 3(\gamma - 1)X(\sinh X - \sin X)} \right]$$
(1.40)

$$B = \gamma (1 + A^2)^{-1} \left[ 1 + 3 \frac{\gamma - 1}{X} \left( \frac{\sinh X - \sin X}{\cosh X - \cos X} \right) \right]^{-1}$$
(1.41)

$$k = \frac{3P_0.B}{4\pi R_0^3} \tag{1.42}$$

$$X = R_0 \left(\frac{2\omega\rho_g C_{pg}}{\lambda_{thg}}\right)^{1/2}$$
(1.43)

Avec R<sub>0</sub> le rayon de résonance de la bulle *P*<sub>0</sub> la pression hydrostatique P la masse volumique du liquide c la célérité dans le liquide μ la viscosité dynamique du liquide  $\gamma$  le coefficient adiabatique du gaz  $\rho_g$  la masse volumique du gaz  $C_{pg}$  la capacité thermique du gaz à pression constante  $\lambda_{thg}$  la conductivité thermique du gaz

Le tracé de répartition des différentes composantes de cet amortissement à la résonance est présenté Figure 15.



Figure 15 : Les différentes composantes de la constante d'amortissement à la résonance en fonction du rayon de la bulle (air-eau) [Ler04]

Il apparaît une très forte augmentation de la composante visqueuse pour les bulles les plus petites, ce qui correspond à l'augmentation de la tension superficielle.

Il est possible de déterminer expérimentalement l'amortissement  $\delta$  d'une bulle oscillant librement. En effet, le facteur de qualité Q d'un système oscillant de façon libre et amortie, définit

A

par  $1/\delta$ , est égal à la période propre des oscillations que divise le nombre de périodes que nécessite l'atteinte du régime asymptotique.

#### g. <u>Sections efficaces</u>

Comme vu précédemment, la section efficace de diffusion d'une microbulle de gaz décrit l'efficacité de l'interaction entre la bulle et l'onde acoustique. Elle a été calculée par [Wil46] :

$$\Sigma_{d} = \frac{4\pi R^{2}}{(\frac{f_{0}^{2}}{f^{2}} - 1)^{2} + \delta^{2}}$$
(1.44)

#### Avec f<sub>0</sub> la fréquence de résonance de la bulle

La section efficace d'absorption définit la portion d'énergie du faisceau acoustique transformée en chaleur :

$$\Sigma_a = \Sigma_d \left(\frac{\delta}{\delta_{rad}} - 1\right) \tag{1.45}$$

Enfin, la section efficace d'extinction définit la perte totale d'énergie acoustique par le faisceau. Elle est la somme de la section efficace d'absorption et de celle de diffusion :

$$\Sigma_e = \Sigma_d + \Sigma_a \tag{1.46}$$

#### h. Atténuation

L'atténuation d'un milieu constitue l'une de ses propriétés acoustiques fondamentales. Commander et Prosperetti ont simulé l'atténuation d'un nuage de bulles mono et poly-dispersés en se basant sur le modèle de Keller-Miksis [Com89] :



Figure 16 : Coefficient d'atténuation en eau en fonction de la fréquence (bulles de rayon 2.07 mm, taux de vide de 5.3x10<sup>-3</sup>) [d'après Com89]

Le coefficient d'atténuation passe par un maximum de l'ordre de 20 dB.cm<sup>-1</sup> à la fréquence de résonance des bulles : 1,57 kHz.

Au dessus de la fréquence de résonance des bulles, l'atténuation diminue mais reste très importante : de l'ordre de 0,3 dB.cm<sup>-1</sup> à 100 kHz. Ceci est important à prendre en compte lors de

la mise en place des mesures acoustiques basées sur des mesures de temps de vol (donc liées à la célérité dans le milieu) telles que la télémétrie ou la thermométrie ultrasonore. Pour s'affranchir des effets des bulles sur la célérité, il est tentant de proposer de travailler au dessus de la fréquence de résonance des bulles ; pourtant, dans ce domaine, l'atténuation sera souvent bien trop importante pour permettre la propagation d'un signal acoustique sur les distances envisagées en réacteur.

Dans le cas d'une population de bulles, un histogramme de rayons de bulles est défini et, par sommation des effets individuels, nous obtenons :



Figure 17 : Coefficient d'atténuation (droite) pour une population de bulle dont l'histogramme des rayons (gauche) est centré sur 30 μm (taux de vide = 10<sup>-4</sup>) [Com89]

Malgré le faible taux de vide, un très fort coefficient d'atténuation est à nouveau observé autour des fréquences de résonances des bulles en présence : supérieur à 20 dB.cm<sup>-1</sup> entre 50 et 500 kHz. Remarquons ici que la population de bulles étudiée présente des caractéristiques proches de celles des nuages de bulles rencontrée *a priori* dans les SFR.

Les expérimentations de Silberman [Sil57] relative à la célérité et l'atténuation dans les milieux bulleux font toujours autorité malgré leur ancienneté. Elles montrent une bonne corrélation avec la théorie.

#### i. Cas du domaine très haute fréquence

Lorsque la fréquence d'excitation possède une longueur d'onde très inférieure aux dimensions des bulles, la modélisation la plus simple consiste à considérer une bulle comme un simple obstacle opaque. Cette condition est rarement vérifiée dans le cadre de l'acoustique des microbulles car une longueur d'onde de 10  $\mu$ m dans le sodium liquide (550°C) correspond à une fréquence d'environ 230 MHz.

#### j. La diffusion rectifiée

Une bulle soumise à un champ acoustique peut être le lieu d'un phénomène particulier : la diffusion rectifiée.

Comme nous l'avons vu, dans un liquide sous-saturé ou à saturation, une bulle de gaz a tendance à se dissoudre, car la tension superficielle implique une pression dans la bulle supérieure à la pression dans le liquide. Lorsque, soumise à un champ acoustique, la bulle oscille, la pression dans la bulle varie autour de la pression d'équilibre. Il en est de même du flux de gaz à l'interface : pendant la phase d'expansion, la bulle absorbe du gaz, pendant la phase de compression, du gaz diffuse hors de la bulle.

La diffusion rectifiée consiste en deux effets [Mei04]. Le premier effet est un effet de "surface". Comme la surface d'échange est plus grande pendant l'expansion (lorsque R>R<sub>0</sub>), la quantité de gaz qui entre dans la bulle durant son expansion est plus grande que celle qui quitte la bulle durant sa compression. Le deuxième effet est un effet "d'enveloppe". La diffusion de gaz est contrôlée par l'épaisseur d'une couche de diffusion ou enveloppe qui est formée dans le liquide entourant la bulle. Quand la bulle est dilatée, l'enveloppe devient plus fine et le gradient de concentration augmente. Quand la bulle est comprimée, l'enveloppe devient plus épaisse et le gradient de concentration diminue. Or, d'après la loi de Fick, la cinétique de diffusion est proportionnelle au gradient de concentration. La combinaison de "l'effet de surface" et de "l'effet d'enveloppe" entraîne donc une augmentation du volume de gaz contenu dans la bulle à chaque cycle acoustique.

Ce comportement entre en compétition avec la tension superficielle, et pour une pression acoustique suffisante, il conduit à augmenter la masse de gaz et donc le rayon ambiant de la bulle. Ce seuil de pression acoustique s'appelle seuil de diffusion rectifiée : juste en ce point, la bulle ni ne grossit, ni ne se dissout. Ce seuil est instable par définition, ce qui signifie qu'une bulle ne peut osciller indéfiniment en conservant toujours la même masse de gaz : selon le niveau de pression acoustique par rapport au seuil de diffusion rectifiée, la bulle verra son volume augmenter ou diminuer au cours du temps comme le montre la Figure 18.

Une formulation du seuil de diffusion rectifiée est donnée par [Cru80]. [Fyr94] présente une étude théorique très complète de la diffusion rectifiée et propose un taux de croissance d'une bulle même loin du seuil de diffusion rectifiée.



Figure 18 : Dissolution de bulles et croissance par diffusion rectifiée [Cru80]

#### **1.2.2.2. Les différentes techniques acoustiques linéaires**

Les différentes propriétés acoustiques des milieux bulleux décrites précédemment permettent d'envisager différentes méthodes de mesure pour tenter de remonter aux valeurs de taux de vide et aux histogrammes des rayons des bulles. Voici pour les principales, leur principe, leur potentiel et leurs limitations.

#### a. Mesure passive du bruit des bulles

Une bulle soumise à une perturbation mécanique tend à revenir à son rayon d'équilibre via un régime de vibrations amorties et, ceci, à sa fréquence de résonance. Cette propriété est intéressante puisque des modèles comme celui de Minnaert [Min33] permettent de relier la fréquence de résonance d'une bulle à son rayon.

Cette méthode d'écoute passive du « chant des bulles » est potentiellement intéressante pour une ou même plusieurs bulles mais elle semble difficile à appliquer pour un nuage dense de

bulles et *a fortiori* en dehors des conditions de laboratoire en raison de la très faible intensité des signaux émis (de l'ordre du pascal : voir la Figure 19).



Figure 19 : Réponse temporelle et spectrale de l'écoute passive des oscillations d'une bulle [Dur09]

L'intensité du bruit de fond acoustique régnant dans un SFR rend donc inenvisageable l'application industrielle d'une telle méthode.

Un signal était détecté par la DA de Superphénix (Détection Acoustique passive), au moment où le VISUS obtenait des échos des bulles. Ce signal de la DA a été attribué soit aux résonances spontanées des bulles (ce qui, comme nous venons de le voir est physiquement peu probable), soit à leurs impacts sur la structure présente au dessus du cœur (Bouchon Couvercle Cœur) [Ber08].

Cette technique ainsi que la suivante ne sont pas vraiment des techniques d'acoustique linéaire puisqu'elles sont basées sur le comportement dynamique résonnant des bulles (comportement non linéaire comme cela sera présenté par la suite). Elles sont néanmoins citées ici car elles font intervenir les oscillations libres des bulles qui génèrent de très faibles amplitudes de pressions acoustiques et peuvent donc être considérées linéaires.

#### b. Excitation de Bernoulli

Cette technique est une variation de l'écoute passive du chant des bulles. Elle revient à exciter les bulles dans un premier temps pour écouter leurs oscillations libres dans un second temps. [Tel01] utilise l'excitation de Bernoulli pour détecter et caractériser des bulles dans un écoulement diphasique. Il s'agit ici de générer une modification de la pression hydrodynamique dans un fluide en écoulement grâce à un rétrécissement de section, ce qui aura pour conséquence de faire osciller la bulle à sa fréquence de résonance. L'onde acoustique émise par cette oscillation est mesurée afin d'en déduire le rayon de la bulle. Cette méthode s'applique principalement aux bulles mono-dispersées ou aux nuages suffisamment peu denses pour pouvoir considérer l'excitation d'une bulle unique.

Tout comme l'écoute passive, une telle méthode n'est pas applicable en réacteur au vu des amplitudes de pression acoustique de l'ordre de quelques pascals émises par les bulles.



Figure 20 : Excitation de Bernoulli: dispositif expérimental [Tel01]

#### c. Mesure passive de l'atténuation du bruit de fond

Une bulle de gaz, *a fortiori* un nuage de bulles, dans un liquide atténue fortement une onde acoustique qui s'y propage. Or une installation industrielle telle qu'un réacteur nucléaire émet un bruit de fond acoustique continu. Un récepteur acoustique placé sur une conduite par exemple perçoit nettement ce bruit de fond.

Le principe de la méthode est de détecter une brusque diminution du bruit de fond acoustique, due à l'absorption consécutive au passage d'un nuage de bulles dans une conduite. Cette méthode ne constitue qu'une approche qualitative permettant néanmoins de détecter la présence de bulles.

Le principal obstacle à la mise en œuvre d'une telle technique en réacteur est la variation du bruit de fond au cours du temps et ce, même en régime nominal (des expérimentations sur le réacteur écossais PFR ont montré des variations très importantes.) Il reste à démontrer, le cas échéant, que les variations du bruit de fond dues au passage de bulles sont nettement différenciables des variations « normales » ou de cause non identifiée du bruit de fond.

#### d. Mesure de l'atténuation du signal

Les méthodes acoustiques actives sont variées mais celles qui furent le plus fréquemment citées et développées au CEA (et ailleurs) durant des années sont les méthodes basées sur la mesure de l'atténuation d'un signal acoustique. En effet, comme nous l'avons vu, un signal transmis à travers un écoulement diphasique est très fortement atténué, en comparaison du même signal transmis à travers un écoulement monophasique et ce même pour de faibles taux de vide. La démarche consiste alors à tenter de relier la valeur de l'atténuation à une valeur de taux de vide. Mais, à l'instar d'autres techniques acoustiques linéaires et comme cela sera expliqué par la suite, cette méthode ne permet pas, *a priori,* d'analyse quantitative du taux de vide sans connaissances sur les rayons des bulles (et donc sur les fréquences de résonance de ces dernières).

Il est éventuellement possible de s'affranchir des phénomènes de résonances des bulles en émettant un signal de fréquence nettement supérieure à la fréquence de résonance des plus petites bulles en présence. Ceci implique de connaître ce rayon minimum et/ou d'utiliser des très hautes fréquences (pour rappel, la fréquence de résonance de bulles de rayons de l'ordre du micromètre est de plusieurs MHz) ainsi que de ne pas être ne présence de coefficients d'atténuation trop forts.

Une mesure « très haute fréquence » peut aussi être menée si la longueur d'onde est très petite devant le rayon de la bulle car dans ce cas, celle-ci se comporte pour les ondes acoustiques comme un écran présentant une surface égale à celle de son maître couple (= section projetée). Il est évident que cette méthode ne fournit pas à elle seule le taux de vide, puisque la surface du maître couple varie en  $r^2$  alors que le taux de vide varie en  $r^3$ . Par exemple, pour 10% de signal transmis, le taux de vide varie de 2% pour des bulles de rayon 0,3 mm à 20% pour des bulles de rayon 2,8 mm. Pour obtenir le taux de vide, il faut donc connaître le rayon des bulles. L'application d'une telle méthode en réacteur implique d'être certain de l'inexistence de bulles de rayon inférieur à la longueur d'onde, ce qui semble être une condition difficile à établir *a fortiori* lorsque les bulles sont en phase de dissolution *i.e.* leurs rayons passent par toutes les valeurs jusqu'à zéro.

#### e. Mesure de la réflexion du signal

Le principe est le même que lors de la mesure de l'atténuation du signal mais c'est le signal réfléchi et non transmis qui est mesuré. Les contraintes et les limitations sont les mêmes.

[Ber08] présente une application de ce principe tout en émettant de sérieux doutes quant à son applicabilité. Il s'agit ici d'obtenir une imagerie de réflexion de type tomographie en plaçant plusieurs capteurs autour d'une conduite, ceci n'étant valable que pour de faibles taux de vide afin d'éviter tous phénomènes de zones d'ombre et de réflexions multiples.

#### f. <u>Mesure de vitesse de propagation du signal à basse fréquence</u>

Il s'agit ici d'exploiter le modèle de Wood décrit au §.1.2.2.1, c'est-à-dire de lier célérité acoustique et taux de vide. La principale difficulté de cette méthode réside dans la vérification de l'hypothèse « basse fréquence ». Il faut connaître avec certitude le plus grand rayon de bulle en présence ou vérifier la constance de la célérité en faisant varier la fréquence dans la plage supposée basse. Deux autres contraintes à prendre en compte sont d'une part la distance de mesure qui doit être supérieure à une longueur d'onde et d'autre part le coefficient d'atténuation qui ne doit pas rendre impossible toute mesure de vitesse.

[Ber90] recommande comme valeur maximale de fréquence pour se considérer dans le domaine basse fréquence : 0,6 fois la plus basse fréquence de résonance (*i.e.* la fréquence de résonance de la plus grosse bulle présente).

Si les plus grosses bulles en présence ont un rayon de 100  $\mu$ m, la fréquence de résonance équivalente en sodium est de 76 kHz ce qui donnerait une fréquence de travail maximale d'environ 45 kHz (longueur d'onde dans le sodium pur  $\lambda \sim 5$ cm à 550°C).

La limitation majeure à l'utilisation de cette technique est la dépendance de la vitesse du son dans le sodium avec d'autres paramètres que le taux de vide. Le principal de ces paramètres à considérer est la température. [Rod97] donne pour la célérité du son dans le sodium pur :

$$V = 2578 - 0.52.t \tag{1.47}$$

#### Avec t la température telle que $t_{fusion} \le t \le 800^{\circ}C$

Selon les conditions réacteur et les taux de vide à caractériser, cette influence devra être prise en compte ou pas. La célérité est cependant bien plus fortement perturbée par une variation de taux de vide que par une variation de température.

Une mesure de la température fine de la température du sodium liquide par mesure de temps de vol ultrasonore nécessitera donc une évaluation très fine des éventuelles variations du taux de vide en cas de présence de bulles dans le sodium. Pour un taux de vide de l'ordre de 10<sup>-5</sup>, une variation de température de 50°C est équivalente à une variation de taux de vide de 9.10<sup>-7</sup> seulement.

### 1.3. Conclusions sur le potentiel de l'acoustique linéaire

La plupart des méthodes acoustiques linéaires sont fondées sur l'idée - erronée - que, lors d'une excitation à une fréquence *f*, seules les bulles résonantes « à cette fréquence ou à son voisinage » diffusent le signal significativement. Pour connaître l'histogramme des rayons, donc le taux de vide, il suffirait donc de faire un balayage en fréquence et de mesurer l'atténuation du signal transmis, sa réflexion ou encore sa diffusion...

En fait, cette approche est fausse et sous-estime les valeurs des taux de vide. En effet, pour une fréquence d'excitation *f* donnée, une grosse bulle présente la même section de diffusion qu'une petite qui serait résonante à la fréquence *f*. La courbe de la section de diffusion en fonction du rayon, à fréquence *f*, illustre ce comportement :



Figure 21 : Illustration de la limite des techniques linéaires [d'après Bou07]

Sans connaissance *a priori* sur l'histogramme des rayons des bulles en présence, il subsistera donc toujours une ambiguïté impossible à lever.

Dans le cadre des réacteurs nucléaires, nous sommes en présence de bulles poly-dispersées et il est préférable de considérer un cas enveloppe en faisant le moins d'hypothèses possibles sur la taille des bulles en présence, voire aucune si possible. C'est principalement pour cette raison que nous nous sommes intéressés au caractère non linéaire de la résonance des bulles afin d'y associer des techniques qui permettent de s'affranchir de cette ambiguïté problématique.

Le chapitre 2 sera consacré à un état de l'art de l'acoustique non linéaire des bulles puis les chapitres 3 et 4 présenteront les résultats expérimentaux de la mise en œuvre de deux techniques acoustiques non linéaires : le mixage de fréquences et la spectroscopie de résonance non linéaire.

## Chapitre 2. Acoustique non linéaire des bulles

Nous présentons ici dans un premier temps les bases du domaine de l'acoustique non linéaire puis la dynamique non linéaire d'une bulle sera décrite. Enfin, l'état de l'art des méthodes acoustiques non linéaires de caractérisation des milieux diphasiques sera dressé.

### 2.1. Généralités

L'acoustique met en jeu des phénomènes souvent bien décrits par les approches linéaires. En effet, en règle générale, les perturbations du milieu engendrées par le passage d'une onde acoustique sont extrêmement faibles : un cri de 70 dB (milieu de la gamme seuil d'audition – seuil de la douleur pour l'être humain) correspond à une fluctuation relative de pression par rapport à la pression normale de 6.10<sup>-7</sup> et une fluctuation relative de température de 1,2.10<sup>-5</sup>. Si ce cri est émis à 5 kHz, alors le déplacement acoustique au passage de l'onde sera de 4,7.10<sup>-9</sup> m [Lef94]. Ces ordres de grandeurs montrent que les conditions de la linéarisation sont ici largement satisfaites.

Pourtant, dans certains cas, des effets non linéaires, plus ou moins importants, peuvent apparaître. C'est le cas des milieux bulleux dans lesquels la rupture d'impédance acoustique à l'interface liquide-gaz des bulles est très forte. Rappelons que :

Impédance de l'eau ~  $1,5.10^{6}$  rayls  $\gg$  impédance de l'air ~ 400 rayls.

La réponse acoustique des bulles se traduit ainsi par un comportement qui varie non linéairement avec l'amplitude de l'onde incidente et ce, d'autant plus que la pression acoustique est élevée et que la fréquence d'excitation est proche de la fréquence de résonance de la bulle. La désignation « propagation d'ondes d'amplitude finie » est souvent rencontrée [Ham98 – Nau98], en opposition au cas linéaire où les amplitudes sont considérées comme infiniment faibles.

Du fait de l'impossibilité de linéariser un certain nombre de modèles valables en acoustique linéaire, l'acoustique non linéaire est un domaine complexe, aujourd'hui au cœur de nombreuses recherches et expérimentations dans des domaines tels que le médical, l'acoustique sous marine, le contrôle non destructif, la géologie, l'acoustique sismique et bien sûr l'acoustique fondamentale.

Après un bref retour historique, les bases dont domaines de l'acoustique non linéaire seront présentées avant de nous intéresser à la dynamique non linéaire des bulles.

#### 2.1.1. Historique de l'acoustique non linéaire

La description théorique de l'acoustique d'amplitude finie a pour origine les équations d'Euler (1755). Auparavant, en 1686, Newton propose la première équation de vitesse de propagation acoustique :

$$c = \sqrt{\frac{P_0}{\rho_0}} \tag{2.1}$$

Un écart d'environ 16% est constaté entre les valeurs expérimentales et les valeurs obtenues par cette équation. Il constituera un mystère pendant plus d'un siècle et sera à l'origine de nombreuses recherches sur les ondes d'amplitudes finies : certains physiciens suspectant la validité de l'hypothèse des faibles signaux (et donc de la linéarité) d'être la cause de cet écart.

Laplace apportera une solution en 1816 en introduisant le ratio des chaleurs spécifiques dans l'équation de Newton, ne réussissant cependant pas à convaincre certains chercheurs qui continuèrent, à raison, à suspecter les effets d'amplitude finie et à investiguer dans cette voie.

De nombreuses contributions au développement de l'acoustique non linéaire voient le jour aux 18<sup>ème</sup> et 19<sup>ème</sup> siècles.



Figure 22 : La première schématisation de la distorsion d'une onde proposée par Stokes en 1848 [Ham98]

A partir de 1848 et des travaux de Stokes, c'est essentiellement le phénomène d'ondes de chocs qui motive la recherche dans le domaine. Au 20<sup>ème</sup> siècle se profile l'ère moderne de l'acoustique non linéaire, avec en particulier les travaux de Fay (1931), Fubini (1935), Thuras, Jenkins et O'Neil (1935), Langevin (1936)...

#### 2.1.2. Principes généraux de l'acoustique non linéaire

La loi de propagation des ondes en une dimension est donnée par l'équation bien connue :

$$\frac{\partial^2 u(x,t)}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 u(x,t)}{\partial t^2} = 0$$
(2.2)

Avec u une grandeur scalaire ou vectorielle dépendant de la position et du temps c la célérité

Par ailleurs, le principe fondamental de la dynamique basé sur la deuxième loi de Newton donne :

$$m\frac{\partial^2 r(x,t)}{\partial t^2} - dF(x,t) = 0$$
(2.3)

Avec dF(x,t), l'ensemble des forces s'appliquant sur un volume infinitésimal à la position r dépendant de x et de t et m la masse de cette particule de longueur dx, de surface S et de masse volumique  $\rho$ . Il vient donc :

$$m = S.\,\rho.\,dx\tag{2.4}$$

En combinant les équations (2.2), (2.3) et (2.4), nous obtenons :

$$\frac{\partial^2 r(x,t)}{\partial x^2} = \frac{1}{c^2 \rho} \frac{\partial \sigma(x,t)}{\partial x}$$
(2.5)

Avec  $\sigma$ , l'ensemble des contraintes s'appliquant au volume considéré. Dans le cas général, et en introduisant la déformation  $\varepsilon$ , cette équation devient :

$$c^2 \rho \frac{\partial^2 r}{\partial x^2} = \frac{\partial \sigma}{\partial x}$$
(2.6)

$$\frac{\partial\sigma}{\partial x} \left(\frac{\partial^2 r}{\partial x^2}\right)^{-1} = c^2 \rho \tag{2.7}$$

$$\frac{\partial\sigma}{\partial x} \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial x}\right)^{-1} = c^2 \rho \tag{2.8}$$

$$\frac{\partial \sigma}{\partial \varepsilon} = c^2 \rho = M \tag{2.9}$$

La mécanique linéaire (et donc l'acoustique linéaire) considère la constance du module alors dit d'élasticité *M*. Ce principe constitue la loi de Hooke :

$$\sigma = E.\varepsilon \tag{2.10}$$

Dans le cas de l'acoustique non linéaire, *M* sera une fonction de  $\varepsilon$  (non linéarité classique) et éventuellement de  $\frac{\partial \varepsilon}{\partial t}$  (non linéarité non classique).

En plus des phénomènes dits de dynamique rapide, la non linéarité non classique induit des phénomènes que nous ne détaillerons pas ici, tels que l'hystérésis, la mémoire discrète et la dynamique lente [Del06 – Guy09].

#### 2.1.3. Paramètres de non linéarités

Selon le type de non linéarité, classique ou non classique, plusieurs paramètres dits de non linéarité sont identifiables : le ratio B/A,  $\beta$ ,  $\delta$  et  $\alpha$  pour les plus courants. Nous rappelons l'origine de ces paramètres dans cette partie.

Le ratio *B/A* est une dénomination fréquemment rencontrée lorsqu'il s'agit de caractériser la non linéarité d'un milieu. Il résulte du développement en séries de Taylor des variations de pression dans le milieu non linéaire en fonction des variations de densité [Bey60].

En partant de l'équation d'état :

$$P = P(\rho, s) \tag{2.11}$$

Avec P la pression, ρ, la masse volumique s, l'entropie.

Le développement en séries de Taylor, pour le cas isentropique ( $s = s_0$ ), donne :

$$P - P_0 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_{s_0} (\rho - \rho_0) + \frac{1}{2!} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2}\right)_{s_0} (\rho - \rho_0)^2 + \dots$$
(2.12)

L'équation (2.12) peut être mise sous la forme :

$$p = A\left(\frac{\rho'}{\rho_0}\right) + \frac{B}{2!}\left(\frac{\rho'}{\rho_0}\right)^2 + \frac{C}{3!}\left(\frac{\rho'}{\rho_0}\right)^3 + \dots$$
(2.13)

Avec  $p = P - P_0$ , la pression acoustique,  $\rho'$  la variation de masse volumique.

Avec :

$$A = \rho_0 \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_{s_0} \equiv \rho_0 c_0^2 \tag{2.14}$$

$$B = \rho_0^2 \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2}\right)_{s_0} \tag{2.15}$$

$$C = \rho_0^3 \left(\frac{\partial^3 P}{\partial \rho^3}\right)_{s_0} \tag{2.16}$$

D'où :

$$\frac{B}{A} = \frac{\rho_0}{c_0^2} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2}\right)_{s_0}$$
(2.17)

Soit en termes de variation de célérité :

$$\frac{B}{A} = 2\rho_0 c_0 \left(\frac{\partial c}{\partial P}\right)_{s_0} \tag{2.18}$$

Pour un gaz parfait et dans le cas isentropique, nous avons :

$$\frac{P}{P_0} = \left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)^{\gamma} \tag{2.19}$$

#### Avec y le rapport des capacités thermiques

En introduisant  $c_0^2 = \frac{\gamma P_0}{\rho_0}$  et en développant de la même façon en séries de Taylor, nous obtenons :

$$\frac{B}{A} = \gamma - 1 \tag{2.20}$$

Le ratio *B/A* présente une implication physique concernant la célérité. Dans les liquides, en introduisant la relation  $c^2 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_s$ , à partir de l'équation (2.13), il est montré que :

$$\frac{c^2}{c_0^2} = 1 + \frac{B}{A} \left(\frac{\rho'}{\rho_0}\right) + \frac{C}{2A} \left(\frac{\rho'}{\rho_0}\right)^2 + \dots$$
(2.21)

En développant et en introduisant  $\frac{\rho}{\rho_0} = \frac{u}{c_0}$  avec *u* la vitesse particulaire, il vient :

$$c = c_0 + \frac{B}{2A}u\tag{2.22}$$

Il est possible de définir la vitesse de propagation d'onde plane dans un milieu non linéaire classique du premier ordre par l'expression d'Earnshaw [Ear60] :

$$\left. \frac{dx}{dt} \right|_{u} = c_0 + \beta u \tag{2.23}$$

Le paramètre de non linéarité classique du premier ordre  $\beta$  aussi appelé paramètre d'acoustoélasticité vaut donc dans les liquides :

$$\beta = 1 + \frac{B}{2A} \tag{2.24}$$

Pour un gaz, ce paramètre vaut :

$$\beta = \frac{\gamma + 1}{2} \tag{2.25}$$

Le paramètre  $\beta$  a été mesuré pour de nombreux milieux. Ainsi, [Nau98] donne :

	β
Eau (20°C)	3,48
Gaz monoatomique (20°C)	1,34
Gaz diatomique (20°C)	1,20

Les valeurs de  $\beta$  dans les solides non linéaires tels que les roches ou les bétons sont beaucoup plus importantes : de l'ordre de 10<sup>2</sup> à 10<sup>3</sup> [Pay07].

Avec les milieux à bulles, des valeurs encore supérieures sont obtenues : jusqu'à  $10^5$  [Bjo82 – Mor09 – Zai09]. Pour certains auteurs, le simple caractère hors normes du paramètre classique  $\beta$  rend la non-linéarité des bulles non classique.

La non linéarité classique d'un milieu peut aussi se définir à des ordres supérieurs :

$$\left. \frac{dx}{dt} \right|_{u} = c_0 + \beta u + \delta u^2 + \cdots$$
(2.26)

Le paramètre  $\delta$  correspond alors au paramètre de non linéarité dit classique du second ordre et ainsi de suite.

Il faut aussi définir la non linéarité non classique. Selon la définition la plus communément admise de cette dernière, la célérité présente une dépendance en  $\frac{\partial u}{\partial t}$ :

$$\frac{dx}{dt}\Big|_{u} = c_0 + \beta u + \delta u^2 + \dots + \alpha \left(u, \frac{\partial u}{\partial t}\right)$$
(2.27)

Le paramètre de non linéarité non classique  $\alpha$  traduit le caractère hystérétique du comportement non linéaire du milieu. C'est pourquoi il est aussi appelé paramètre de non linéarité hystérétique.

La Figure 23 présente les différences fondamentales entre équations d'état linéaire, équations d'état non linéaire classique du premier (paramètre  $\beta$ ) et deuxième ordre (paramètre  $\delta$ ) et équations d'état non linéaire non classique (paramètre  $\alpha$ ).

La dépendance du module d'élasticité avec l'état de contrainte implique une distorsion de l'onde harmonique génératrice d'harmoniques. Les différents comportements linéaires ne présentent pas les mêmes conséquences et peuvent par exemple ne générer que des harmoniques impaires.

#### Chapitre 2 : Acoustique non linéaire des bulles



#### Linear Versus Nonlinear Equation of State

Figure 23 : Comparaison entre équations d'états linéaires et non linéaires [Abe00]

Si ces principes de bases s'appliquent de façon générale à la propagation des ondes dans un milieu non linéaire tel qu'un milieu diphasique, un autre type de non linéarité importante est à prendre en compte dans le cas des bulles : le comportement dynamique individuel d'une bulle soumise à un champ acoustique qui est, très fortement non linéaire. Nous nous intéressons à ce comportement dans le paragraphe suivant.

#### 2.1.4. Dynamique des bulles

La dynamique d'une bulle placée dans un champ acoustique constitue un vaste sujet. Nous en présentons ici les bases permettant la compréhension des techniques mises en œuvre par la suite.

#### 2.1.4.1. Les modes de résonance des bulles

Le phénomène de résonance des bulles a été présenté au §.1.2.2.1. avec une approche linéaire et en se focalisant uniquement sur le mode volumique fondamental de la bulle : l'oscillation radiale dite mode respirant.

Une bulle de gaz sphérique dans un volume de liquide possède, de par la différence de compressibilité entre le gaz et le liquide, une infinité de degrés de liberté et donc une infinité de modes propres d'oscillation. Les quatre premiers modes de résonance sont représentés sur la Figure 24.



Figure 24 : Les modes de vibration 0, 1, 2, 3 des bulles sphériques [Dur09]

Les fréquences des modes supérieurs au mode respirant (n>0) sont nettement plus élevées que celle de ce dernier (voir Tableau 1). Ces modes multipôles sont parfois désignés sous l'appellation « modes d'Überall ».

Tableau 1 : Fréquence de résonance des fréquences réduites *k.r* de la fondamentale (l=1) et des harmoniques (l=2, 3...) des premières résonances multipôles (n=0...6) d'une bulle d'air dans l'eau [Ube79 – Sag79]

Multipôle	n 1 1		2	3	3 4		6	
Monopôle	0	0,01391	1,0161	1,7469	2,4657	3,1808	3,8941	
Dipôle	1	0,4712	1,3433	2,0817	2,805	3,5229	4,2382	
Quadripôle	2	0,7551	1,6485	2,4001	3,131	3,8539	4,5727	
Hexapôle	3	1,0214	1,9411	2,7074	3,4472	4,1762	4,8994	
	4	1,2776	2,2225	3,0066	3,7559	4,4914	5,2197	
	5	1,5284	2,5034	3,2994	4,0584	4,8009	5,5344	
	6	1,7756	2,7769	3,5872	4,3559	5,1056	5,8445	

Le tracé de la section de diffusion d'une bulle en fonction du rayon, en faisant apparaître les différents modes de résonance, montre clairement un pic d'amplitude et de largeur bien plus importantes pour le mode 0 (voir Figure 25). C'est la raison pour laquelle en général, seul ce mode de résonance de la bulle est considéré.



Figure 25 : Section de diffusion  $\sigma_a$  d'une bulle d'air dans l'eau, en fonction de la fréquence réduite [Sag79]

Expérimentalement, les fréquences des modes de résonances supérieurs au mode respirant (n=0) sont très difficiles à détecter car l'onde émise par la bulle est de faible amplitude et s'atténue très rapidement.

Le Tableau 2 présente les fréquences de résonance des 6 premiers modes pour une bulle d'air de 10  $\mu$ m de rayon dans l'eau. Ainsi, une bulle de cette taille « respire » à 330 kHz alors que le mode 1 apparaît à 11,1 MHz.

Tableau 2 : Fréquences de résonances (MHz) des six premiers modes d'une bulle de 10  $\mu$ m dans l'eau (c = 1480 m.s<sup>-1</sup>)

<b>Rayon = 10 μm</b> n =	0	1	2	3	4	5	6
Fréquence (MHz) =	0,33	11,10	17,79	24,06	30,09	36,00	41,82

Bien que la fréquence de résonance acoustique fondamentale d'une bulle soit souvent décrite par des modèles linéaires (tels que le modèle de Minnaert) ou linéarisés, le comportement vibratoire d'une bulle placée dans un champ acoustique est un phénomène hautement non linéaire pour des pressions acoustiques parfois faibles. Ce comportement non linéaire est décrit par de nombreux modèles : les principaux sont présentés par la suite, après une présentation du caractère non linéaire de la dynamique des bulles.

Selon [Pau09], pour le cas des bulles d'air dans l'eau, en dessous de pressions acoustiques de 10 kPa, la viscosité de l'eau gomme le caractère non linéaire du système et un modèle d'oscillateur linéaire amorti suffit alors pour décrire le comportement d'une bulle de gaz dans l'eau.

#### 2.1.4.2. Non linéarité de la dynamique des bulles

L'asymétrie naturelle qui existe entre la phase d'expansion d'une bulle et la phase de compression (cette dernière étant nécessairement limitée par un rayon minimum) couplée à un fort contraste d'impédance acoustique entre liquide et gaz rend le phénomène de résonance des bulles de gaz dans un liquide fortement non linéaire.

Ce comportement non linéaire, signifie que la réponse vibratoire de la bulle ne varie pas linéairement avec l'amplitude de l'onde excitatrice. Une illustration de ce comportement est présentée sur les Figure 26 et Figure 27 : à une excitation sinusoïdale ne correspond pas une variation sinusoïdale proportionnelle du rayon.

La simulation de la Figure 26 concerne une excitation à une fréquence différente de la fréquence de résonance  $\omega_0$  de la bulle :  $\omega/\omega_0 = 0,37$ . Un comportement fortement non linéaire en dehors de la résonance maximale de la bulle est donc observé.



Figure 26 : Simulation de l'évolution du rayon d'une bulle de 10 µm au cours du temps soumise à une excitation de pression acoustique de 70 kPa, de fréquence  $\omega/\omega_0 = 0.37$ ; milieu considéré incompressible (a) et compressible (b) [Kel80]

	•	•	0	0	0	0	0	$\odot$	$\bigcirc$	$\mathbf{O}$
$\odot$	$( \cdot )$	( <b>0</b> )	igl(	$\odot$	0	0	0	0	0	0
0	0	$\odot$	0	0	0	0		•	0	0
0	Ο	$\odot$	0	$\odot$	0	0	0	0	0	0
0	$oldsymbol{\circ}$	•	•	•	٠		•	0	•	•
•	•	•	0	•	•	•	•	•	•	•
0	0	•	•	•	•	•	•	•	0	•

Expérimentalement, le même comportement non linéaire :

Figure 27 : Séquence de photographie des oscillations non linéaires d'une bulle [Lau99]

Les oscillations d'une bulle sont souvent analysées au travers des théories se rapportant aux systèmes chaotiques [Par90 – Lau02]. La Figure 28 illustre ainsi les différents chemins que peut prendre le rayon de la bulle en termes de bifurcations chaotiques.



Figure 28: Simulation basée sur le modèle de Keller-Miksis des bifurcations d'une bulle de 10 μm excitée à 272 kPa [Par90]

Il existe un seuil de pression au-delà duquel l'expansion d'une bulle est qualifiée d'explosive. Ce seuil dit de Blake est défini, pour le cas isotherme, par [Lau76] :

$$p_{Blake} = p_{stat} - p_v + \frac{4\sigma}{3\sqrt{3}R_0} \left[ 1 + (p_{stat} - p_v) \frac{R_0}{2\sigma} \right]^{-1/2}$$
(2.28)

Pour une bulle d'air de 10  $\mu$ m dans l'eau à 20°C, 1 bar,  $p_{Blake}$  vaut 99,7 kPa.

Les premières observations concernant la dynamique des bulles de gaz dans un liquide remontent au début du 20<sup>ème</sup> siècle. Plusieurs modèles ont ainsi été développés afin de décrire les oscillations radiales (mode 0) au cours du temps d'une bulle soumise à une perturbation acoustique. Le modèle de Rayleigh constitue la base de plusieurs de ces modèles, même les plus récents.

#### 2.1.4.3. Modèle de Rayleigh (1917)

Premier modèle décrivant l'oscillation radiale d'une bulle soumise à une onde de pression, le modèle de Rayleigh a été proposé en 1917 [Ray17].

La compressibilité des gaz est supérieure de plusieurs ordres de grandeur à la compressibilité du fluide. En effet, dans les conditions normales de température et de pression, pour l'air et l'eau, la compressibilité vaut :

$$\chi_{eau} = 4,5.10^{-10} \text{ Pa}^{-1}$$
  
 $\chi_{air} = 7,14.10^{-6} \text{ Pa}^{-1}$ 

Le liquide entourant une bulle de gaz pourra donc être considéré incompressible. Le potentiel des vitesses  $\varphi$  et la vélocité  $u = \frac{\partial \varphi}{\partial r}$  du déplacement radial du fluide sont alors décrits par une solution monopolaire de l'équation de Laplace [Nau98] :

$$\varphi = -\frac{R^2 \dot{R}}{r} \qquad \qquad u = \frac{R^2 \dot{R}}{r^2} \tag{2.29}$$

Avec *r* la distance à la bulle et R(t) le rayon de la bulle. L'intégrale de Bernoulli donne par ailleurs :

$$\frac{p}{\rho} + \frac{u^2}{2} + \frac{\partial \varphi}{\partial t} = const.$$
(2.30)

Avec  $\rho$  la masse volumique du liquide.

En se plaçant à l'infini,  $(u \rightarrow 0, p \rightarrow p_{\infty})$ , il vient :

$$p - p_{\infty} = \rho \frac{R^2 \ddot{R} + 2\dot{R}^2 R}{r} - \rho \frac{\dot{R}^2 R^4}{2r^4}$$
(2.31)

En prenant r = R(t), nous avons alors la pression à la surface de la bulle qui est égale à la pression de gaz à l'intérieur de cette dernière. L'équation dite de Rayleigh est ainsi obtenue :

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho}(p_{int} - p_{\infty})$$
(2.32)

 $p_{int}$ , la pression interne de la bulle,  $p_{\infty}$ , la pression externe loin de la bulle.

#### 2.1.4.4. Modèle de Rayleigh-Plesset (1949)

Une amélioration notable du modèle de Rayleigh est proposée en 1949 par Plesset [Ple49]. Ce dernier proposa les expressions des pressions internes et externes en prenant en compte le comportement polytropique du gaz et la pression de vapeur à l'intérieur de la bulle. La température est supposée constante et uniforme, le liquide incompressible et les pertes dues au rayonnement acoustique sont négligées. Ce modèle est valide pour de faibles amplitudes d'oscillations.

$$P_{int} = (p_0 - p_v) \left(\frac{R_0}{R}\right)^{3\gamma} + p_v$$
(2.33)

$$P_{ext} = p_0 + P(t)$$
 (2.34)

avec  $p_v$  pression de vapeur,  $p_0$  la pression statique, P(t) la pression acoustique excitatrice,  $\gamma$ , le coefficient polytropique du gaz.

Le modèle de Rayleigh-Plesset s'écrit alors :

Chapitre 2 : Acoustique non linéaire des bulles

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^{2} = \frac{1}{\rho} \left[ (p_{0} - p_{\nu}) \left( \frac{R_{0}}{R} \right)^{3\gamma} + p_{\nu} - p_{0} - P(t) \right]$$
(2.35)

En posant  $R(t) = R_0 (1+x)$ , et en appliquant un développement limité à l'ordre 1, l'équation (2.35) peut se mettre sous la forme :

$$\ddot{x} + \omega_0^2 x = \frac{P(t)}{\rho R_0^2}$$
(2.36)

L'équation du mouvement d'un oscillateur harmonique est ainsi obtenue avec :

$$f_{res} = \frac{\omega_0}{2\pi} = \frac{1}{2\pi R_0} \sqrt{\frac{3\gamma p_0}{\rho}}$$
(2.37)

La fréquence de résonance d'un bulle dite de Minnaert qui est le modèle de résonance de base en approche linéaire (équation (1.24)) est retrouvée.

#### 2.1.4.5. Modèle de Rayleigh-Plesset modifié (RPNNP) (1950-1952)

De nombreuses contributions ont par la suite été apportées au modèle de Rayleigh-Plesset. Les plus importantes sont celles de Noltingk, Neppiras et Poritsky au début des années 50 [Nol50 - Por52] qui incluent les effets de surface et de viscosité du milieu environnant.

L'équation de Rayleigh-Plesset-Noltingk-Neppiras-Poritsky, dite aussi RPNNP ou équation de Rayleigh-Plesset modifiée se présente sous la forme :

$$\rho R\ddot{R} + \frac{3}{2}\rho \dot{R}^{2} = \left(p_{0} + \frac{2\sigma}{R_{0}} - p_{\nu}\right) \left(\frac{R_{0}}{R}\right)^{3\gamma} - \frac{2\sigma}{R_{0}} - \frac{4\mu}{R}\dot{R} + p_{\nu} - p_{0} - P(t)$$
(2.38)

Avec  $\sigma$ , la tension superficielle,  $\mu$ , la viscosité dynamique.

La linéarisation de cette équation avec l'hypothèse des petites amplitudes conduit à l'obtention d'une fréquence de résonance plus complète que celle obtenue par Minnaert :

$$f_{res} = \frac{1}{2\pi R_0 \sqrt{\rho}} \left( 3\gamma \left( P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} - p_v \right) - \frac{2\sigma}{R_0} - \frac{4\mu^2}{\rho R_0^2} \right)^{1/2}$$
(2.39)

Cette fréquence de résonance, reste valide pour des bulles de très petites tailles, contrairement à la fréquence de Minnaert. Pour une bulle de 10  $\mu$ m de rayon, l'écart entre ces deux fréquences est d'environ 5%.

Les travaux de Pauzin ont permis, à partir de l'équation RPNNP et d'une mise sous forme quadratique, d'obtenir des courbes amplitude-fréquence complètes (Figure 29). Les résultats présentés dans cette figure ont été obtenus pour une bulle d'air de 2  $\mu$ m de rayon dans de l'eau, pour une pression statique de 1,013.10<sup>5</sup> Pa.

Ces résultats confirment le caractère non-linéaire hystérétique (donc non classique) d'une bulle résonante. Pour une excitation à fréquence croissante (chemin rouge sur la Figure 29), l'amplitude de la réponse de la bulle prendra le chemin 5-3'-2-1, avec un saut (« Jump-up ») de 3' à 2. Pour une excitation à fréquence décroissante (chemin vert sur la Figure 29), l'amplitude de la réponse de la bulle prendra le chemin 1-3-4-5, avec un saut (« Jump-down ») de 3 à 4.



Figure 29 : Réponse forcée de la bulle à différentes amplitudes P et illustration des phénomènes de sauts [d'après Pau09]

#### 2.1.4.6.Modèle de Keller-Miksis (1980)

Le modèle de Keller-Miksis [Kel80] est particulièrement approprié pour les oscillations importantes des bulles car il incorpore les effets de radiation acoustique. Reformulé par Parlitz *et al.* [Par90] en utilisant l'approximation linéaire du coefficient polytropique  $\gamma$ , le modèle de Keller-Miksis se formule ainsi :

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{c}\right)R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^{2}\left(1 - \frac{\dot{R}}{3c}\right) = \left(1 + \frac{\dot{R}}{c}\right)\frac{P(t)}{\rho} + \frac{R}{\rho c}\dot{P}(t)$$
(2.40)

$$P(t) = \left(p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} - p_\nu\right) \left(\frac{R_0}{R}\right)^{3\gamma} - \frac{2\sigma}{R_0} - \frac{4\mu}{R}\dot{R} + p_\nu - p_0 - P_i \sin(\omega t)$$
(2.41)

Si la compressibilité est considérée nulle, c'est-à-dire que  $\rightarrow \infty$ , l'équation RPNNP est retrouvée.

Prosperetti *et al.* ont revisité le modèle de Keller-Miksis [Pro88] en prenant en compte une formulation plus précise de la pression interne du gaz au détriment d'une expression plus compliquée.

#### 2.1.4.7. Autres modèles

Les modèles de Keller-Miksis et de RPNNP sont les modèles de dynamique des bulles les plus fréquemment rencontrés. Il en existe cependant de nombreux autres. Parmi ceux qui sont parfois utilisés, citons par exemple le modèle de Herring (1941) ou celui de Gilmore (1952) qui prennent eux aussi en compte la compressibilité du milieu.

Il faut remarquer que tous les modèles cités ici s'appliquent à des bulles de gaz nues dans un liquide. Le cas des bulles encapsulées utilisées comme agents de contraste ultrasonore pour l'imagerie médicale est différent puisque la capsule possède des caractéristiques mécaniques à prendre en compte dans les modèles.

# 2.2. Méthodes acoustiques non linéaires d'amplitude finie appliquée aux bulles et nuages de bulles

De très nombreuses exploitations de l'acoustique non linéaire sont possibles et abondamment traitées dans la littérature scientifique. Ne seront ici présentées que les méthodes dites d'amplitude finies, basées sur la mesure de la distorsion des ondes se propageant dans le milieu. Parmi celles-ci, seront écartées celles qui ne sont pas envisageables sur les nuages de bulles telles que la modulation de phase [Gou07] ou les méthodes faisant intervenir la technique du retournement temporel [Fin97], une des conditions de base pour l'application de cette technique étant la stationnarité du milieu, c'est-à-dire que la phase de réémission doit pouvoir se dérouler dans les mêmes conditions que la phase d'enregistrement, ce qui n'est pas réalisable au sein d'un écoulement diphasique.

Seront donc ici présentées les méthodes basées sur l'émission d'harmoniques et sur les interactions d'ondes.

#### 2.2.1. Emission d'harmoniques

L'équation (2.22) décrit la célérité acoustique dans un milieu de propagation non linéaire sous la forme :

$$c = c_0 + \beta u \tag{2.42}$$

Un milieu de propagation non linéaire (classique ou non) fera donc apparaître une distorsion temporelle des ondes monochromatiques le traversant. Cette distorsion implique l'apparition dans son spectre fréquentiel d'harmoniques : des fréquences multiples de la fréquence fondamentale. Ce phénomène, introduit Figure 23, est détaillé Figure 30 pour le cas non linéaire classique.



Figure 30 : Apparition des harmoniques sur le spectre d'une onde distordue

Les principes généraux de cette apparition et le potentiel de la mise en œuvre d'une technique basée sur cette apparition sont ici présentés.

#### 2.2.1.1. Principe de la génération d'harmoniques

La réponse globale d'une bulle (et de tout système non linéaire) Y(t) à une excitation f peut se décomposer en séries entière telle que :

$$Y(t) = s_0 + s_1 f(t) + s_2 f^2(t) + s_3 f^3(t) + s_4 f^4(t) + \cdots$$
(2.43)

Considérons maintenant le champ acoustique définit par :

$$f \equiv P(t) = P_A \cos \omega t \tag{2.44}$$

En utilisant la relation :

$$\cos^2\omega t = \frac{1}{2}(1 + \cos^2\omega t) \tag{2.45}$$

le terme quadratique de la réponse de la bulle se traduit donc par l'apparition d'une harmonique à la fréquence double de la fondamentale :  $2\omega$ .

De la même façon, la considération d'ordres de non-linéarité supérieurs verra l'apparition d'harmoniques supplémentaires à  $3\omega$ ,  $4\omega$ ...

La Figure 31 illustre la réponse fréquentielle d'une bulle insonifiée à  $\omega_p = 2 \text{ kHz}$ : sa fréquence de résonance. Apparaissent plusieurs harmoniques  $2\omega_p$ ,  $3\omega_p$ ... ainsi que deux ultraharmoniques :  $\frac{3}{2}\omega_p$  et  $\frac{5}{2}\omega_p$  et la subharmonique du premier ordre :  $\frac{1}{2}\omega_p$ .



Figure 31 : Spectre des harmoniques, ultraharmoniques et subharmonique d'une bulle résonnante à 2 kHz [Lei94]

Une décomposition en séries entières ne conduit pas à l'apparition de subharmoniques et d'ultraharmoniques. Ces dernières sont toutefois prédites par une décomposition de la réponse du système non linéaire en séries de Fourier [Jor07]. De même, l'assimilation de la bulle à un oscillateur non-linéaire de type oscillateur de Duffing conduit à l'apparition de la subharmonique et des ultraharmoniques [Pro76]. L'oscillateur de Duffing présente une équation de mouvement de la forme :

$$\ddot{x} + 2\varepsilon\beta\dot{x} + \omega_0^2 x = P\cos\omega t + \varepsilon x^3 \tag{2.46}$$

#### 2.2.1.2. Expression de l'amplitude des harmoniques générées

Les travaux théoriques et expérimentaux de Miller [Mil81] sont basés sur l'équation de la dynamique des bulles de Rayleigh-Plesset modifiée (RPNNP, voir §.2.1.4.5).

En linéarisant l'équation au second ordre et en considérant la solution :

$$x = A_0 + A_1 \cos(\omega t + \varphi_1) + A_2 \cos(2\omega t + \varphi_2)$$
(2.47)

L'auteur aboutit à l'amplitude diffusée à la fréquence fondamentale :

En notant  $\Omega = \omega/\omega_0$ , la fréquence d'excitation sur la fréquence propre de la bulle,  $p_1 = l'amplitude de la pression acoustique d'excitation,$   $R_0 = le rayon d'équilibre de la bulle,$ r = la distance entre la bulle et le point de mesure.

$$p_{d1} = p_1 \Omega^2 \chi_1 R_0 / r \tag{2.48}$$

Et celle diffusée par la première harmonique :

$$p_{d2} = \frac{p_1^2}{\rho \omega_0^2 R_0^2} \Omega^2 \chi_1^2 Y \chi_2 R_0 / r$$
(2.49)

Avec :

$$\chi_1 = \left[ (1 - \Omega^2)^2 + \Omega^2 \delta^2 \right]^{-1/2}$$
(2.50)

$$\chi_2 = \left[ (1 - 4\Omega^2)^2 + 4\Omega^2 \delta^2 \right]^{-1/2}$$
(2.51)

$$Y = \left[ \left( \frac{5}{2} \Omega^2 + \frac{3\gamma \left( p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) (3\gamma + 1) - \frac{4\sigma}{R_0}}{2\rho \omega_0^2 R_0^2} \right)^2 + \Omega^2 \delta^2 \right]^{1/2}$$
(2.52)

En traçant l'amplitude de la fondamentale et de la première harmonique (Figure 32), l'avantage majeur des techniques non linéaires sur les techniques linéaires apparaît clairement : la seconde harmonique n'est présente qu'autour de la fréquence de résonance de la bulle (contrairement à la fondamentale) et ne peut ainsi conduire à une ambiguïté entre bulle résonante et large bulle. Un autre type d'ambiguïté présentée dans le paragraphe qui suit apparaît cependant.



Figure 32 : Amplitude diffusée par la fréquence fondamentale (first harmonic) et la seconde harmonique en fonction du rayon pour une fréquence de 1,64 MHz et une amplitude de 20 kPa, à 6 mm de la bulle [Mil81]

#### 2.2.1.3. Potentiel des techniques basées sur la détection d'harmoniques

En plus de présenter une faible résolution spatiale [Lei96], les techniques de caractérisation d'un milieu bulleux basées sur la détection des harmoniques émises présentent deux inconvénients majeurs.

Le premier est propre à la dynamique des bulles. En effet, et comme l'illustre la Figure 33, l'harmonique  $2\omega$  est générée en premier lieu par les bulles résonantes à  $\omega$  mais aussi par celles résonantes à  $\omega/2$ . Ceci apparaît dans la modélisation de [Mil81] au niveau du petit décrochement à 1 µm visible sur la Figure 32.

Cette méthode présente donc une ambiguïté sur la taille de la bulle émettant la fréquence harmonique détectée non pas entre bulle résonante et large bulle mais entre bulle résonante de rayon  $r_n$  et bulle résonante de rayon  $2r_n$  avec  $r_n$  le rayon de résonance correspondant à la fréquence d'excitation  $\omega$ .



#### Figure 33 : Simulation de la génération de l'harmonique à 2ω par des bulles de 10 μm (en bleu) et 5 μm (en rouge) en fonction de la fréquence d'excitation basée sur le modèle de [Zab73] (issue de [Bie05])

De plus, dans un nuage de bulles présentant une dispersion des rayons, la fréquence  $2\omega$  peut tout à fait correspondre à la fréquence de résonance d'une partie de la population de bulles. Elle serait alors fortement voire totalement atténuée et donc inexploitable.

Remonter à une taille (*via* la fréquence) et à une densité (*via* l'amplitude) de bulle en se basant sur la détection des harmoniques se révèle donc être très problématique dans un nuage de bulles.

Le deuxième inconvénient de cette technique ne provient pas du comportement du nuage de bulles mais de l'environnement du nuage : le milieu de propagation et les appareils électroniques nécessairement présents. En effet, l'eau présente une non linéarité acoustique (à  $20^{\circ}$ C,  $\beta \sim 5$  [Ham98]) et peut donc être à l'origine de l'apparition d'harmoniques si la pression acoustique atteint les centaines de kPa. De même, la plupart des appareils électroniques peuvent potentiellement générer des harmoniques.

Pour ces deux raisons, une technique basée sur les harmoniques ne semble pas permettre la reconstruction d'un histogramme des rayons des bulles d'un nuage.

Ceci est confirmé par le fait que contrairement à la détection de bulles individuelles [Mil81], la littérature ne fait pas état de tentatives de reconstruction d'histogramme des rayons d'un nuage de bulles. A la lumière de ce qui vient d'être présenté, cette absence est compréhensible. Nous présentons ici une autre solution pour caractériser un nuage de bulles.

#### 2.2.2. Les techniques de mixage de fréquences

#### 2.2.2.1. Principes généraux et historique

Lorsqu'un système est acoustiquement non linéaire et qu'il est excité par deux ondes de fréquences  $f_1$  et  $f_2$ , un phénomène particulier se produit : l'interaction d'ondes. La terminologie « mixage de fréquences » est aussi utilisée. Cela se traduit par l'émission par le système (ou ses non linéarités) d'ondes indépendantes des ondes initiales aux fréquences dites « sommes » et « différences » :  $\omega_1 + \omega_2$  et  $\omega_2 - \omega_1$  [Wes63].

De la même façon que pour les harmoniques, ces fréquences apparaissent dès lors qu'est considérée une décomposition en séries entière de la réponse non linéaire de la bulle à une excitation du type :

$$f \equiv P(t) = P_1 \cdot \cos\omega_1 t + P_2 \cdot \cos\omega_2 t \tag{2.53}$$

Le terme quadratique de la décomposition devenant alors :

$$P_1 \cdot P_2 \cdot \cos\omega_1 t \cdot \cos\omega_2 t = \frac{P_1 \cdot P_2}{2} \left[ \cos \left( \omega_1 + \omega_2 \right) t + \cos \left( \omega_1 - \omega_2 \right) t \right]$$
(2.54)

Cette méthode est intéressante dans le cas des bulles car une bulle résonante est très fortement non linéaire. L'apparition du phénomène d'interaction d'ondes pourra donc être reliée à la présence de bulles résonantes dans le nuage de bulles excité. Or comme nous l'avons vu, la fréquence de résonance d'une bulle est liée à son rayon, il est ainsi possible de remonter à sa taille. Un balayage de l'ensemble des fréquences de résonance des bulles présentes et une détection des fréquences somme et différence permet ainsi la reconstruction de l'histogramme des rayons des bulles.

Dès le début du XXème siècle, Lamb théorisa l'émission des fréquences somme et différence dans le cas général de la propagation non linéaire [Lam31]. Si ce dernier précise que les fréquences différence avaient déjà été observées en 1745 par Sorge et en 1754 par Tartini, les premières véritables expérimentations ont été menées en 1934 par Thuras *et al.* [Thu34]. Elles concernaient les ondes acoustiques de forte intensité se propageant dans l'air et les amplitudes mesurées pour les signaux aux fréquences somme et différence présentaient une différence d'environ –3dB avec la théorie de Lamb.

[Zab73] fut le premier à s'intéresser de façon théorique aux interactions d'ondes produites par les bulles. Il faudra attendre le début des années 80 pour voir apparaître les premières expérimentations des techniques de mixages de fréquences sur des bulles et nuages de bulles.

Avec un nuage de bulles, deux principales mises en œuvre du principe de l'interaction d'ondes sont possibles :

- La première consiste à mixer une haute et une basse fréquence. L'onde dite basse fréquence correspond aux fréquences de résonance des bulles présentes dans le nuage et une haute fréquence très supérieure est choisie.
- La deuxième utilise deux hautes fréquences, l'objectif étant alors de faire correspondre la différence entre ces fréquences avec la fréquence de résonance des bulles présentes dans le nuage.

Nous allons maintenant dresser l'état de l'art de ces deux techniques appliquées aux nuages de bulles.

#### 2.2.2.2. Mixage non linéaire haute fréquence – basse fréquence (HF-BF)

## 2.2.2.2.1. Principe de la reconstruction d'histogramme par une technique de mixage HF-BF

Une haute fréquence  $\omega_i$  dite d'imagerie est choisie largement supérieure à la fréquence de résonance de la plus petite bulle en présence.

La basse fréquence  $\omega_p$  dite de pompage est choisie dans la plage des fréquences de résonance des bulles en présence.

Lorsque la fréquence de pompage coïncide avec la fréquence de résonance d'une (ou plusieurs) bulle(s) dans le nuage, cette dernière entre en résonance et provoque l'apparition des fréquences somme  $\omega_i + \omega_p$  et différence  $\omega_i - \omega_p$ .

Outre ces fréquences différence, les fréquences décrites au §.2.2.1 apparaissent, à savoir : des harmoniques de la basse fréquence  $n.\omega_p$  (avec n entier) ainsi que, dans certains cas, la subharmonique  $\frac{\omega_p}{2}$  et des ultraharmoniques :  $\frac{2n+1}{2}$ .  $\omega_p$ .

Enfin les sub-sommes et les sub-différences sont parfois observées à  $\omega_i + \frac{\omega_p}{2}$  et  $\omega_i - \frac{\omega_p}{2}$  (voir Figure 34). Les mécanismes conduisant à l'apparition de ces différentes fréquences seront abordés par la suite au §.5.2.1.



Figure 34 : Schématisation du principe de l'interaction HF-BF : apparition des harmoniques, ultraharmoniques et subharmonique de la basse fréquence ainsi que des fréquences somme, différence, sub-somme et sub-différence.

La reconstruction de l'histogramme des rayons des bulles formant le nuage peut alors s'effectuer en réalisant un balayage avec la basse fréquence  $\omega_p$  sur l'ensemble des fréquences de résonance de la population de bulles. L'apparition des fréquences somme et différence traduisant la présence de bulles résonante à  $\omega_p$ , il est ainsi possible de remonter aux rayons des bulles.

Du fait que  $\omega_i$  est élevée, le faisceau des traducteurs « d'imagerie » est étroit, ce qui permet d'isoler un volume de contrôle restreint, bien localisé (d'autant plus si les traducteurs utilisés sont focalisés). Le résultat est un histogramme des rayons des bulles présentes dans ce volume, moyenné sur la durée d'auscultation. Si ce volume est connu, il est possible d'en déduire le taux de vide dans ce volume, moyenné lui aussi dans le temps. Comme nous le verrons par la suite, il existe deux approches pour reconstruire l'histogramme des rayons des bulles à partir de l'apparition des fréquences somme et/ou différences :

- La première approche consiste à tenter de relier l'amplitude (ou une moyenne des amplitudes) de la fréquence somme ou différence générée avec la densité de bulles résonantes à cette fréquence. Cette technique permet potentiellement de remonter à des valeurs absolues de densité de bulles.
- La seconde approche consiste à relier l'apparition d'une fréquence somme ou différence à la présence d'une seule bulle résonant dans le volume de contrôle à cette fréquence. L'histogramme est alors reconstruit par incrémentation au fur et à mesure de la détection de bulles. En première approche, cette technique ne permet de remonter qu'à un histogramme de densités relatives sans connaissances sur la valeur du volume de contrôle. Elle réclame de plus une durée de scrutation suffisante afin de détecter un nombre de bulles statistiquement représentatif.

Il faut noter que dans la littérature plusieurs dénominations pour le mixage de fréquences HF-BF sont rencontrées :

- Mixage de fréquences [New84] (dénomination que nous employons)
- Excitation double fréquence [Phe96]
- Combinaison de fréquences [Phe97]
- Interaction d'ondes [Khi01]
- Modulation de fréquences [Har95]
- DFU, pour Dual Frequency Ultrasound, surtout rencontrée dans le milieu médical [Bol09]
- NWMS, pour Nonlinear Wave Modulation Spectroscopy, utilisée pour la transposition de cette technique dans les solides [Abe00-1]

#### 2.2.2.2.2. Expression de l'amplitude de la fréquence somme HF+BF générée

La première démonstration analytique et expérimentale d'une technique de mixage HF-BF sur des bulles fut conduite par Newhouse et Shankar [New84]. En se basant sur le modèle de Rayleigh-Plesset modifié (RPNNP), ils exprimèrent l'amplitude de la fréquence somme à une distance r de la bulle,  $P_+(r)$ :

$$P_{+}(r) = \frac{\rho p_{p} p_{i}}{(\rho f_{0} R_{0})^{2}} X\left(\delta, \frac{f_{p}}{f_{0}}\right) \frac{R_{0}}{r}$$
(2.55)

Avec :

$$X = \left[ \left( 1 - \left(\frac{\omega_p}{\omega_0}\right)^2 \right)^2 + \delta^2 \left(\frac{\omega_p}{\omega_0}\right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}}$$
(2.56)

Avec  $\delta$ , la constante d'amortissement =  $\frac{4\mu}{\rho\omega_0R_0^2}$ 

avec  $\rho$  la masse volumique du liquide,  $R_0$  le rayon de la bulle,  $p_p$  et  $p_i$  les pressions acoustiques des fréquences de pompage et d'imagerie,  $f_0$  et  $\omega_0$  la fréquence et la pulsation de résonance de la bulle,  $f_p$  et  $\omega_p$  la fréquence de pompage et sa pulsation,  $\mu$  la viscosité dynamique du liquide.

Les tracés de l'amplitude de cette fréquence somme et de la fréquence de pompage diffusée par la bulle (Figure 35), un résultat similaire à ceux présentés Figure 32 concernant l'émission d'harmoniques : l'absence d'ambiguïté entre bulle résonante et grosse bulle :



Figure 35 : Comparaison de la dépendance de l'amplitude à la fréquence somme P<sub>+</sub> (courbe a) et de l'amplitude du signal diffusé à la fréquence de pompage (courbe b) avec le rayon de la bulle [New84]

## 2.2.2.2.3. Etat de l'art de la reconstruction d'histogrammes des rayons des bulles d'un nuage par mixage HF-BF

Le mixage HF-BF est historiquement la première technique de mixage de fréquences à avoir été expérimentée sur un nuage de bulles avec l'objectif de remonter à leur taille [New84]. Ce dernier a montré l'apparition des fréquences somme pour trois tailles de bulles avec un bon accord avec les amplitudes théoriques présentées au paragraphe précédent sans chercher à reconstruire un histogramme complet. Les ratios mesurés de l'amplitude de la fréquence différence par rapport à la fréquence d'imagerie étaient de -62 à -63 dB.

[Cha85] a cherché à aller plus loin en tentant de reconstruire un histogramme des rayons des bulles et en validant les résultats avec une mesure optique.



Figure 36 : Dispositif expérimental HF-BF de [New84] et [Cha85]

L'auteur effectue les moyennes des amplitudes de la pression acoustique des fréquences somme mesurées sur 8 tirs, le tout à 20 fréquences comprises entre 20 et 250 kHz puis reconstruit l'histogramme en corrigeant les données pour prendre en compte les caractéristiques du traducteur de réception. Les résultats obtenus, certes entachés d'incertitudes, ont néanmoins permis de valider la potentialité de la méthode. Le coefficient de corrélation entre histogrammes optiques et acoustiques obtenus a été évalué à 0,8.

Plus récemment [Kol92] obtint un histogramme des rayons en appliquant la technique sur un nuage de bulles millimétriques. Une technique optique de validation confirma la relative justesse des résultats obtenus, malgré une transition directe entre amplitudes du spectre fréquentiel à la réception et histogramme des rayons, approche qui paraît pour le moins approximative.



Figure 37 : Histogrammes optique et acoustique des rayons des bulles obtenus par [Kol92]

Selon les travaux de Leighton, Phelps *et al.* [Lei91, Lei93, Phe96 entre nombreux autres], l'exploitation de l'apparition des fréquences sub-somme et sub-différence  $\omega_i + \frac{\omega_p}{2}$  et  $\omega_i - \frac{\omega_p}{2}$  permet d'obtenir une meilleure précision sur la détermination de la taille des bulles car ces fréquences apparaissent pour une plage de fréquences de pompage autour de la fréquence de résonance plus réduite que dans le cas de l'apparition des fréquences somme et différence. Les résultats sont cependant basés sur un étalonnage obtenu en insonifiant une bulle fixée à un fil, ce qui modifie de façon non négligeable son comportement acoustique.

Leurs travaux suivants [Phe97-1, Phe97-2, Phe98 entre autres] se sont d'ailleurs à nouveau focalisés sur les « simples » fréquences somme et différence. La principale originalité de ces travaux consistait à exploiter les décalages Doppler induits par les déplacements des bulles afin d'être capable de différencier les fréquences émises par les bulles des fréquences résultant de la turbulence du milieu. Les résultats obtenus en situation réelle (en mer) ne concernaient cependant que quatre points de l'histogramme des rayons des bulles attendus, ce qui limite leur intérêt.

Leighton *et al.* ont aussi développé le système COBUST : *Characterization Of Bubbles Using Simultaneous Techniques* [Lei96, Lei98]. L'idée était d'appliquer sur un même écoulement de bulles quatre techniques acoustiques linéaires (a et b) et non linéaires (c et d) :

- Une écoute passive de l'oscillation de la bulle à sa fréquence propre au moment de son émission (a)
- Un scanner acoustique haute fréquence pour tenter d'obtenir une image de la bulle (b)
- Une détection des harmoniques de la basse fréquence (c)
- Un mixage de fréquence HF-BF (d)


Figure 38 : Schématisation du principe COBUST de [Lei96]



Figure 39 : Le dispositif COBUST de [Lei96]

L'idée était attrayante car elle permettait potentiellement de palier les limites de chacune de ces techniques tout en comparant les résultats obtenus. Les résultats (même sur une seule taille de bulle) n'ont cependant pas été à la hauteur des espérances des auteurs qui n'ont pas poursuivi leurs études sur ce dispositif.

Plus récemment, [Buc05] a lui aussi tenté de reconstruire un histogramme complet des rayons des bulles avec une technique HF-BF.

Les expérimentations ont été menées *in vivo* (sur un cochon) après injection de microbulles ainsi qu'après décompression dans un caisson hyperbare. En utilisant une basse fréquence entre 30 et 180 kHz et une haute fréquence à 2,25 MHz, l'histogramme suivant a pu être reconstruit :



Figure 40 : Histogramme des rayons des bulles reconstruit grâce au mixage non linéaire de deux fréquences [Buc05]

Le caractère *in vivo* (donc difficilement vérifiable) de cette expérimentation, l'histogramme obtenu ainsi que les erreurs contenues dans la publication correspondante rendent ces résultats peu novateurs de notre point de vue. L'intérêt de ces travaux réside en fait dans la façon de reconstruire l'histogramme par comptage de bulles.

[Bie05] a exploité une technique HF-BF sur un nuage de bulles généré par électrolyse mais les histogrammes obtenus ont été considérés par l'auteur lui-même comme invalides.

En 2008, Leighton a de nouveau expérimenté la technique HF-BF avec un nouveau dispositif afin de tenter de transposer la technique à la mesure des populations de bulles de méthane dans les sédiments marins [Lei08]. L'intérêt de ces travaux est double :

- L'auteur a effectué une étape d'inversion afin de prendre en compte la contribution des bulles non résonantes à l'émission des fréquences somme et différence.
- Les expérimentations préliminaires en eau ont permis de remonter à un histogramme des bulles.



Figure 41 : Montage des traducteurs HF et BF et histogramme obtenu par [Lei08]

L'absence de validation des résultats obtenus par une technique référence (telle qu'un contrôle optique) n'a pas permis de vérifier l'histogramme obtenu. Signalons que contrairement aux travaux qu'il avait mené en 1997-1998, Leighton n'exploite plus ici l'effet Doppler et ne semble pas gêné par la turbulence de l'écoulement. Ceci est probablement dû au positionnement des traducteurs (ici perpendiculairement à l'écoulement contrairement aux travaux précédents).

Plus récemment [Bol09] a exploité une technique HF-BF pour détecter les microbulles stationnaires dans les tissus biologiques sans toutefois remonter à des histogrammes.

# 2.2.2.2.4. Conclusions concernant la technique HF-BF

Avantages principaux de la technique HF-BF :

- Technique présentant une bonne résolution spatiale.
- Contrairement à d'autres techniques non linéaires, les fréquences somme et différence ne peuvent être générées que pas les bulles (et éventuellement la non linéarité de l'eau en cas de fortes pressions acoustiques). Seule exception : si la chaine électronique de réception « voit » les fréquences haute et basse, elle peut aussi conduire à un mixage mais cette situation est évitable.
- Les fréquences somme et différence apparaissent pour des basses fréquences de faibles amplitudes acoustiques.

# Inconvénients principaux de la technique HF-BF :

- Dispositif acoustique plus complexe que pour certaines techniques acoustiques simples telles que les mesures de temps de vol ou les mesures en transmission par exemple.
- Peut être sensible à la turbulence et à l'effet Doppler dans certains cas.
- La déduction du taux de vide à partir de l'histogramme peut être ardue.
- Dans un nuage de bulles dense, la propagation de la HF et des fréquences somme et différence peut être problématique en termes d'atténuation mais aussi d'interprétation.
- Couvrir une large plage de fréquences de résonances avec un seul capteur BF peut se révéler impossible technologiquement. L'utilisation de plusieurs capteurs BF est une solution envisageable dans ce cas là mais elle est complexifie le dispositif.

Il est à noter que les techniques de mixage HF-BF sont utilisées dans les solides non linéaires tels que les roches [Guy99], le plexiglas fissuré [Abe00-1] ou les bétons [Pay07; Zar10] afin de remonter à des caractéristiques de ses solides (microfissurations, fissure, porosité...).

# 2.2.2.1. Mixage non linéaire haute fréquence – haute fréquence (HF-HF)

# 2.2.2.1.1. Principe de la reconstruction d'histogramme par une technique de mixage HF-HF

La deuxième mise en œuvre possible des techniques de mixage de fréquence consiste à utiliser deux hautes fréquences. Haute fréquence signifiant ici fréquence très supérieure à la plus haute fréquence de résonance des bulles présentes dans le nuage à exciter.

- La première haute fréquence  $\omega_1$  est fixe.
- Un balayage est effectué avec la deuxième haute fréquence  $\omega_2$  autour de  $\omega_1$ .
- Si la fréquence différence,  $\omega_2 \cdot \omega_1$  correspond à la fréquence de résonance d'une bulle ou plusieurs bulles présentes dans le nuage, une onde sera alors émise à cette fréquence différence (voir Figure 42).
- De la même façon qu'avec la technique HF-BF, un balayage est effectué avec  $\omega_2$  afin de couvrir la plage des fréquences de résonance des bulles constituant le nuage avec les fréquences différence  $\omega_2 \cdot \omega_1$ .



Figure 42 : Schématisation du principe de l'interaction de deux ondes hautes fréquences.

La reconstruction de l'histogramme se fait de la même façon qu'avec la technique HF-BF (cf. §.2.2.2.2.1), c'est-à-dire de façon incrémentale et en ne considérant la présence que d'une seule bulle résonante.

Remarquons que les antennes paramétriques utilisées en particulier en acoustique sous marine sont basées sur ce principe d'interaction de deux ondes HF en exploitant la non linéarité de l'eau [Wes63]. Un avantage important de cette technique réside dans le fait que la basse fréquence ainsi générée conserve la directivité des hautes fréquences.

[Kob80] a expérimenté le principe de l'antenne paramétrique sur un nuage de bulles en l'excitant avec deux fréquences proches des fréquences de résonance des bulles présentes et en détectant la fréquence différence émise. Il fut ainsi le premier à expérimenter une technique de mixage de fréquences sur un nuage de bulles.

# 2.2.2.1.2. Expression de l'amplitude de la pression acoustique de la fréquence différence $HF_1 - HF_2$ générée

[Sut98] fit une analyse théorique de la génération d'une basse fréquence par deux hautes fréquences et aboutit à une expression de l'amplitude de la pression acoustique associée à la fréquence différence émise par une population de bulles excitée aux fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$ :

$$P_{\Omega}^{2} = \frac{\pi n(R_{\Omega})}{8\rho_{0}^{2}\delta\omega_{1}^{4}R_{\Omega}r^{2}} \int_{\Delta\nu} P_{1}^{2}P_{2}^{2}d\nu$$
(2.57)

avec  $R_{\Omega}$ , le rayon des bulles résonantes à la fréquence  $\Omega$ ,  $n(R_{\Omega})$ , le nombre de bulles résonantes à la fréquence  $\Omega$ ,  $\rho_0$ , la masse volumique du liquide,  $\delta$ , la constante d'amortissement de la bulle,  $\omega_1$ , la pulsation de la haute fréquence 1, r, la distance entre le volume d'interaction et le point de mesure,  $P_1$  et  $P_2$  les pressions acoustiques associées aux deux hautes fréquences,  $\Delta v$ , le volume d'interaction des deux hautes fréquences.

En formulant un certain nombre d'hypothèses, les auteurs vont même plus loin en proposant une formulation de la densité de bulles en fonction de mesures directes.

Un critère de validité de la méthode est par ailleurs donné :

$$n(r)\delta R\lambda^3 \ll 1 \tag{2.58}$$

C'est-à-dire que la probabilité de présence d'une bulle résonante dans un cube de côté  $\lambda$  ( $\lambda$  étant la longueur d'onde des hautes fréquences) doit être faible afin d'exclure statistiquement la possibilité de présence de deux bulles résonantes dans ce même cube.

# 2.2.2.1.3. Etat de l'art de la reconstruction d'histogrammes des rayons des bulles d'un nuage par mixage HF-HF

La technique de mixage de deux hautes fréquences sur un nuage de bulles a fait l'objet de peu de travaux comparativement à la technique de mixage HF-BF.

Outre ceux de [Kob80] (voir §.2.2.2.1), les premiers travaux présentant les résultats expérimentaux d'une technique de mixage de deux hautes fréquences sont ceux de [San82] et [Gim84] qui ont alors simplement étudié la détection de bulles avec deux hautes fréquences fixes et une seule taille de bulle. Les auteurs valident tous les deux la démarche mais [Gim84] conclut à une meilleure efficacité des méthodes basées sur l'émission du second harmonique de la fréquence de résonance de la bulle.

Les travaux de Sutin publiés en 1998 sont à notre connaissance les premiers concernant une reconstruction complète d'un histogramme des rayons d'un nuage de bulles grâce à cette technique. Sutin a appliqué la technique de l'interaction d'ondes HF sur deux nuages de bulles : un nuage généré par électrolyse et un nuage généré à travers une plaque microporeuse.

Deux traducteurs hautes fréquences centrés sur 2,25 MHz ont été utilisés : l'un en émission à fréquence fixe de 2,25 MHz et l'autre à fréquence variable entre 1,93 MHz et 2,22 MHz. Cette configuration permet ainsi de balayer la plage de basses fréquences comprises entre 30 kHz et 320 kHz, ce qui correspond aux fréquences de résonance des bulles dont les rayons sont compris entre 10  $\mu$ m et 109  $\mu$ m.

Les deux capteurs sont focalisés à environ 101 mm avec une tache focale calculée de 6,4 mm de diamètre. Les basses fréquences émises par les bulles sont mesurées avec un hydrophone basses fréquences (cf. Figure 43).



Figure 43 : Schéma du montage expérimental de Sutin [Sut98]

Pour les deux types de nuages de bulles, Sutin a abouti à la reconstruction d'un histogramme des rayons (voir Figure 44) après avoir effectué un balayage fréquentiel et une mesure des amplitudes de la pression acoustique associée aux basses fréquences différence émises par le nuage de bulles (amplitudes que Sutin relie à une densité de bulles résonantes).



Figure 44 : Histogrammes des rayons reconstruits à partir des fréquences différence mesurées et de leur intensité par [Sut98]

La conclusion de Sutin suite à ces expérimentations est que les histogrammes reconstruits semblent cohérents vis-à-vis de la technique de génération de bulles utilisée. Ceci constitue à nos yeux la principale limite de ces travaux : aucune validation plus approfondie de l'histogramme reconstruit (*via* une technique optique par exemple) n'a été mise en œuvre.

[Bie05] a tenté au cours de sa thèse de mettre en œuvre une technique de mixage HF-HF sur un nuage de bulles en se basant sur [Sut98]. Son dispositif présentait l'originalité de mettre en œuvre un confinement du nuage de bulles grâce à un bâti en plexiglas et un film plastique alimentaire considéré comme acoustiquement transparent afin de maîtriser le volume engazé de façon homogène (cf. Figure 45).



Figure 45 : Dispositif permettant la mise en œuvre d'une technique de mixage HF-HF de [Bie05]

Il n'a cependant jamais réussi à détecter des basses fréquences générées par les bulles excitées par deux hautes fréquences (traducteurs focalisés de fréquence centrale 3,5 MHz générant une pression acoustique dans la zone d'interaction de l'ordre d'une centaine de kPa). Aucune explication probante à cet échec n'a été donnée.

Signalons enfin les travaux originaux de [Che06] qui se sont intéressés non pas à la fréquence différence  $HF_1 - HF_2$  mais à l'harmonique de cette fréquence de résonance :  $2(HF_1 - HF_2)$ . Il a montré que les grosses bulles nues n'émettaient pas cette harmonique contrairement aux agents de contrastes (bulles encapsulées). Quelle qu'en soit la raison, l'apparition de cette harmonique ne nous concerne donc *a priori* pas. L'explication qui peut être avancée, bien que l'auteur n'en parle pas, est l'apparition de modes de surfaces facilitée par la présence de la coque.

Une application originale de la technique de mixage HF-HF concerne la détection de la fréquence de résonance globale d'un nuage de bulles. Cette approche est décrite au §.2.2.4.3.

# 2.2.2.1.4. Réflexions concernant la technique HF-HF

Avantages principaux de la technique HF-HF :

- Tout comme la technique de mixage HF-BF, le mixage HF-HF permet une bonne résolution spatiale et permet de conclure sans ambiguïté quant à la présence de bulles résonantes (à condition de prendre certaines dispositions en particulier vis-à-vis de la disposition des capteurs).
- Le principal avantage de la technique de mixage HF-HF sur la technique HF-BF est qu'avec la technique HF-BF, couvrir la plage des fréquences de résonance des bulles avec un traducteur peut se révéler problématique voire impossible à mettre en œuvre. Ici, le balayage avec un des traducteurs HF va permettre un balayage des fréquences de résonance entre 0 (en théorie) et plusieurs centaines de kHz, et ce, tout en restant dans sa bande passante.

# Inconvénients principaux de la technique HF-HF :

- Le mixage HF-HF présente un certain nombre d'inconvénients communs avec la technique de mixage HF-BF : complexité de mise en œuvre, sensibilité à l'effet Doppler et aux turbulences dans certains cas, difficulté à remonter aux taux de vide et nécessité de nuages peu denses.
- Le principal inconvénient propre à cette technique réside en fait dans la difficulté à faire apparaître les basses fréquences différence. Contrairement à la technique de mixage HF-BF où les phénomènes attendus apparaissent pour de faibles pressions acoustiques de fréquence de pompage, il faut s'attendre ici à devoir générer des fréquences de pompage (les deux HF) à des pressions acoustiques bien plus importantes étant donné que ces fréquences ne correspondent pas directement à la fréquence de résonance des bulles.

# 2.2.2.2. Autres mixages de fréquences

[Bun83], en s'inspirant du comportement des ondes optiques et en particulier de l'effet Raman, va plus loin et propose d'exciter la bulle avec trois fréquences  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  telles que :

$$\omega_2 - \omega_1 = \omega_0 \tag{2.59}$$

Avec  $\omega_0$  la fréquence de résonance de la bulle

Il y a alors apparition de :

$$\omega_4 = \omega_3 \pm \omega_0 \tag{2.60}$$

Et l'auteur de conclure qu'il serait envisageable d'exciter la bulle dans de nombreuses autres configurations fréquentielles ce qui aurait pour effet, par exemple, de renforcer la résonance fondamentale de la bulle ou de faire apparaître de nouvelles fréquences mixées.

[Yan98] simule quant à lui le comportement d'un oscillateur de Duffing excité par trois fréquences dans différentes configurations telles que  $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega_0$  ou  $\omega_3 - \omega_2 - \omega_1 = \omega_0$  et conclut à l'apparition franche de la fréquence de résonance  $\omega_0$ . Une bulle possède un comportement similaire à celui de l'oscillateur de Duffing [Pau09].

[Zab84] proposa même une formulation théorique de l'interaction de quatre ondes dans un liquide contenant des bulles.

A notre connaissance, ce type d'application de la technique de mixage de fréquences n'a jamais été expérimenté sur une bulle ou un nuage de bulles.

Nous allons maintenant continuer l'état de l'art en nous intéressant à la deuxième technique acoustique non linéaire mise en œuvre dans cette étude : la spectroscopie de résonance non linéaire.

# 2.2.3. Spectroscopie de résonance non linéaire

La spectroscopie de résonance non linéaire est une technique qui connaît un regain d'intérêt depuis plusieurs années dans le domaine de la caractérisation de solides non linéaires tels que les roches, le béton ou encore les os [Mul05 - Pay07 – Guy09 – Zar10].

# 2.2.3.1. Principe de la méthode

Un système mécanique possède des modes de résonances, tous associés à une fréquence de résonance propre. En règle générale, ces fréquences de résonance dépendent des caractéristiques géométriques du système et de la célérité des ondes dans le milieu constituant ce dernier.

Dans un milieu de propagation non linéaire, la célérité varie en fonction de la contrainte d'excitation (équation (2.22)). Une modification de la contrainte (via l'amplitude de l'excitation acoustique par exemple) dans un milieu non linéaire et qui implique donc une variation de la célérité conduira donc à une variation de la fréquence de résonance du système constitué de ce milieu.

La spectroscopie de résonance non linéaire consiste à observer ce phénomène en excitant le système mécanique à différentes amplitudes de pression acoustique tout en effectuant un balayage fréquentiel. Un décalage sur le spectre entre les pics de résonance aux différentes amplitudes apparaît alors. L'objectif est de relier ce décalage à une caractéristique du système non linéaire.

[Abe97] a proposé un modèle du module d'élasticité non linéaire non classique pour les solides.

$$K\left(\varepsilon, \frac{\partial\varepsilon}{\partial t}\right) = K_0 \left[1 + \beta\varepsilon + \alpha \left(\Delta\varepsilon + sign\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial t}\right)\varepsilon\right)\right]$$
(2.61)

Avec  $\beta$  le paramètre non linéaire classique,  $\alpha$  le paramètre non linéaire non classique,  $\varepsilon$  la déformation et  $\Delta \varepsilon$  l'amplitude de la déformation maximale. Le comportement des bulles étant lui aussi non classique (cf. §.2.1.4.5 et §.2.2.4.2), il est cohérent d'envisager une analogie de comportement.

Si  $f_0$  est la fréquence de résonance linéaire d'un système mécanique (mesurée à de faibles amplitudes de pression) et f la fréquence de résonance mesurée pour des ondes de plus grande amplitude et en considérant le paramètre  $\alpha$  comme largement prédominant sur le paramètre  $\beta$ , ce qui semble confirmé par les expérimentations [Abe00], [Abe01] dans les milieux solides hétérogènes (nettement moins non linéaires que les milieux à bulles), nous avons la relation :

$$\frac{f_0 - f}{f_0} \approx \alpha \Delta \varepsilon \tag{2.62}$$

Le décalage fréquentiel observé s'avère donc être proportionnel au paramètre non linéaire non classique.

Il faut noter que dans le domaine de l'acoustique non linéaire non classique, les phénomènes rencontrés sont classifiés en différentes « familles » : dynamique rapide, dynamique lente, effet mémoire... Le décalage fréquentiel observable lors de la mise en œuvre d'une technique de spectroscopie de résonance non linéaire est à classer parmi les phénomènes de dynamique rapide.

# 2.2.3.2. Les acronymes anglophones de la spectroscopie de résonance non linéaire

La spectroscopie de résonance non linéaire est rencontrée dans la littérature sous diverses appellations, en générale sous forme d'acronymes.

# <u>NEWS</u> [Abe00-2 – Del06]

Acronyme de Nonlinear Elastic Wave Spectroscopy (= spectroscopie d'ondes élastiques non linéaires). Sous cette désignation se regroupent plusieurs techniques développées ces dernières années dans le domaine de la caractérisation des solides. Les techniques de spectroscopie de résonance non linéaire sont classées dans cette famille.

# <u>NRUS</u> [Joh01 – Del06 - Pay07 – Zar10]

L'acronyme NRUS, fréquemment rencontré dans la littérature, signifie Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy, c'est-à-dire spectroscopie de résonance ultrasonore non linéaire. L'acronyme équivalent RNUS est parfois rencontré.

# <u>SIMONRUS – SIMONRAS [</u>Abe00-2]

Respectivement : SIngle MOde Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy et SIngle MOde Nonlinear Resonant Acoustic Spectroscopy. Ces acronymes désignent la spectroscopie de résonance non linéaire appliquée à un seul mode de résonance du système étudié (généralement le mode fondamental) respectivement dans le domaine ultrasonore (>20 kHz) et acoustique (<20 kHz).

# 2.2.3.3. Applications dans les solides

Le domaine de l'élasticité non linéaire des matériaux tels que les roches n'est pas nouveau mais c'est assez récemment, au milieu des années 1990, que la technique communément désignée sous l'acronyme NRUS a commencé à être approfondie et exploitée pour la caractérisation des milieux grâce, entre autres, aux travaux de Johnson *et al.* [Joh96 – Joh01] et de Van Den Abeele *et al.* [Abe97 – Abe00]...

Ainsi, [Joh96] présente des résultats d'expérimentations dans le calcaire, le grès (Figure 46), le marbre et la craie où le décalage de la fréquence de résonance avec l'amplitude et le comportement hystérétique sont mis en évidence.



Figure 46 : Application d'une technique NRUS sur du grès de Lavoux avec le trajet des fréquences descendantes (traits pleins) et celui des fréquences montantes (pointillés) [Joh96]

En 2001, fut déposé aux USA un brevet [Joh01] protégeant la méthode NRUS pour la caractérisation de l'endommagement des matériaux. Il s'agit dans ce brevet d'appliquer la méthode NRUS et de déduire du décalage fréquentiel un endommagement du matériau testé.



Figure 47 : Dispositif et résultats types présentés dans le brevet NRUS déposé par Johnson *et al.* [Joh01]

Une autre application originale de la technique NRUS a été présentée par [Mul05]. Il s'agit de la détection de microfissures dans les os en vue du diagnostic précoce de l'ostéoporose. La spectroscopie d'un os sain présentant en effet une constance de la fréquence de résonance contrairement à un os fissuré qui présente un décalage fréquentiel. Plus récemment, [Pay07] a appliqué la méthode NRUS sur du béton endommagé thermiquement.

Aujourd'hui les recherches se concentrent sur la quantification du décalage fréquentiel et son exploitation pour la caractérisation des matériaux (fissuration, porosité, teneur en eau...). Dans les matériaux hétérogènes comme le béton par exemple, la pente du décalage fréquentiel semble en effet proportionnelle à la densité de non linéarités telles que les microfissures [Pay07].

Ceci constitue un bref aperçu de la bibliographie concernant la technique et son application dans les solides. Il est cependant suffisant pour comprendre l'origine de cette méthode.

Notre application diffère en un point essentiel de ce qui est présenté précédemment : c'est en effet sur un nuage de bulles de gaz présent au sein d'un liquide que nous voulons tester la spectroscopie de résonance non linéaire type-NRUS.

# 2.2.4. La spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles

### 2.2.4.1. Principe

Comme nous l'avons vu, la spectroscopie de résonance non linéaire a été mise en œuvre de multiples fois sur des solides. Nous nous intéressons ici à son application sur un nuage de bulles.

L'idée de départ est de considérer que la présence d'une bulle de gaz au sein d'un liquide induit de fortes non linéarités vis-à-vis d'une excitation acoustique (voir §.2.1.4). Or les micro hétérogénéités non linaires sont *a priori* responsables des phénomènes non linéarises non classiques tels que le décalage fréquentiel observés dans les solides [Guy09]. Un nuage de bulles ne peut-il donc pas présenter un comportement similaire ?

La principale difficulté et différence avec les solides réside dans l'observation d'une résonance du milieu diphasique. Les solutions apportées à ce problème et les résultats expérimentaux associés seront présentés au §.4. Un bref état de l'art est dressé ici.

### 2.2.4.2. Etat de l'art

Si la littérature concernant les méthodes type NRUS appliquée à un solide est abondante, elle est bien plus réduite en ce qui concerne son application à un nuage de bulles. Elle concerne essentiellement des simulations numériques du comportement d'une seule bulle faisant apparaître un décalage fréquentiel de la résonance en fonction de l'amplitude et à notre connaissance une seule expérimentation « fortuite ».

### 2.2.4.2.1. Simulations numériques du comportement d'une seule bulle

En 1976, Lauterborn a simulé le modèle RPNNP sur une seule bulle soumise à une excitation sinusoïdale et ce, à différentes amplitudes [Lau76].



Figure 48 : Courbes de résonances d'une bulle insonifiée à 20 kHz, pour des amplitudes de pression acoustique de 10, 30, 50 et 70 kPa [Lau99]

La Figure 49 est intéressante : une bulle de 10  $\mu$ m de rayon soumise à des pressions acoustiques comprises entre 10 et 70 kPa présente un fort décalage de sa fréquence de résonance, décalage similaire à ce qui est recherché lors de la mise en œuvre d'une technique NRUS. L'apparition d'harmoniques, de la subharmonique et d'ultraharmoniques est observée. Enfin, le front vertical traduit la présence de phénomènes de « jump-up – jump-down » propres aux systèmes hystérétiques.

Les travaux de [Pau09] présentés au §.2.1.4.5 confirment par ailleurs la présence d'un décalage fréquentiel et d'un comportement hystérétique de la dynamique d'une bulle. Les simulations de [Mee07] confirment elles-aussi la présence d'un décalage fréquentiel.



Figure 49 : Simulation de la résonance d'une bulle de 3 µm pour différentes amplitudes de pression acoustique [Mee07]

Ces simulations numériques, même si elles ont été effectuées sur une seule bulle, nous laissent espérer qu'un nuage de bulles, constitué de non linéarités discrètes, aura un comportement global non linéaire qui fera lui aussi apparaître des décalages de sa fréquence de résonance de la même façon qu'un solide présentant des micro-hétérogénéités non linéaires et qu'il sera possible de mettre en œuvre avec succès une technique de spectroscopie de résonance non linéaire.

Une question se pose cependant à ce stade : si le comportement d'une bulle est fortement nonlinéaire à sa fréquence de résonance, quel est son comportement à des fréquences éloignées de celle-ci ? Des travaux théoriques permettent de répondre à cette question.

Les travaux de [Kel80] présentés Figure 26 montrent qu'à  $\omega = 0,37.\omega_0$ , le comportement de la bulle est clairement non linéaire. [Bjo82] s'est quant à lui intéressé à la formulation théorique du paramètre de non-linéarité effectif  $\beta_{eff}$  d'un nuage de bulles à la résonance de ces dernières ( $\omega = \omega_0$ ) et loin de cette résonance ( $\omega = 0,1.\omega_0$ ). Ainsi, à 20°C et 10<sup>5</sup> Pa, pour un taux de vide de 10<sup>-5</sup> et des bulles de 50 µm, l'auteur donne :

Pour  $\omega = \omega_0$ :  $\beta_{eff} = 3,5.10^5$ Pour  $\omega = 0,1.\omega_0$ :  $\beta_{eff} = 190$ 

Ces valeurs sont par ailleurs en bon accord avec les formulations d'autres auteurs [Zab76]. Ainsi, à 0,1.  $\omega_{\theta}$  la non linéarité du nuage reste forte et très largement supérieure à l'eau ou l'air monophasiques (dont les  $\beta$  valent respectivement 3,48 et 1,2 à 20°C et 10<sup>5</sup> Pa).

[Com89-2] a confirmé par la suite que ne pas prendre en compte les contributions des bulles non résonantes lors de la mise en œuvre de techniques basées sur la diffusion par les bulles conduisait à des erreurs importantes, ce qui confirme le caractère résonant des bulles même lorsqu'elles sont excitées à une fréquence différente de leurs fréquences de résonance.

La mise en œuvre expérimentale d'une technique de spectroscopie de résonance non linéaire par Coste [Cos91 – Cos92], à notre connaissance la seule, confirme le comportement non linéaire hystérétique d'un nuage de bulles en dessous des fréquences de résonance individuelles des bulles. Nous allons la détailler maintenant.

# 2.2.4.2.2. Expérimentations sur le comportement d'un nuage de bulles

Au début des années 90, dans le cadre de sa thèse, Coste [Cos91] a développé un résonateur de Helmholtz (voir §.4.2.1 pour une présentation du résonateur de Helmholtz) pour tenter d'observer via des techniques acoustiques le transfert de masse vapeur-liquide. Des fils chauffants placés dans une colonne de diéthyléther thermalisée permettaient de générer un nuage de bulles de vapeur. Un émetteur (pot vibrant) et un récepteur (hydrophone) placés de part et d'autre de la colonne permettaient de générer des ondes acoustiques basses fréquences et d'observer la réponse de la colonne diphasique. Une cavité complétait le dispositif afin de correspondre à la configuration d'un résonateur de Helmholtz (Figure 50).

Au cours des travaux visant à caractériser acoustiquement les transferts de masse liquidevapeur, l'observation d'un phénomène de décalage de fréquence attribué à la non linéarité du mélange liquide-vapeur (voir Figure 51) a été rapporté mais non exploité [Cos91 – Cos92]. La taille des bulles et le taux de vide ne sont pas définis précisément mais des ordres de grandeur de 10<sup>-3</sup>-10<sup>-4</sup> pour des bulles de l'ordre de 1 mm sont avancés.



Figure 50 : Le dispositif expérimental basé sur un résonateur de Helmholtz de Coste [Cos91]



Figure 51 : Le décalage fréquentiel observé expérimentalement par Coste sur un nuage de bulles [Cos91].

L'excitation correspond ici à un balayage en fréquence (appelé sweep ou encore chirp) de 12 à 17 Hz alors qu'une bulle de 1 mm résonne à environ 3,3 kHz. Les amplitudes de pression acoustique générées sont, selon l'auteur, comprises entre environ 4 et 14 kPa. Les différentes courbes correspondent à différentes amplitudes d'excitation et les deux amplitudes les plus fortes sont représentées dans le sens des fréquences croissantes et décroissantes.



Figure 52 : Le phénomène d'hystérésis observé par Coste [Cos91]

Le décalage fréquentiel observé, l'apparition d'une forte dissymétrie (Figure 51) ainsi que d'un phénomène d'hystérésis (Figure 52) (c'est-à-dire une réponse fréquentielle différente selon le

sens de variation de la fréquence du sweep : croissant ou décroissant), confirment l'observation d'un comportement non linéaire non classique d'un nuage de bulles excité à basse fréquence relativement aux fréquences de résonances individuelles des bulles qui le forme (ici,  $\omega \sim 0.05.\omega_0$ ).

Ces résultats sont à relier avec ceux de [Pau09] présentés Figure 29. La courbe 1 de la Figure 52 présente ici un « jump down » et correspond au sweep décroissant. La courbe 2 de la même figure présente à l'inverse un « jump-up » et correspond au sweep croissant. Ce phénomène de saut fait apparaître le comportement hystérétique du nuage de bulles : le pic de résonance apparaît en effet à ~ 12,3 Hz dans un sens et à ~ 12,9 Hz dans l'autre.

Coste évoque dans sa thèse le comportement acoustique non linéaire d'un nuage de bulles pour expliquer les phénomènes observés (en particulier le décalage fréquentiel).

Mais étonnamment, il donne parallèlement une autre explication à l'origine de ce décalage fréquentiel : le ralentissement de la remontée des bulles dans la colonne sous l'effet des ondes (qu'il assimile à un effet de lévitation acoustique). Ce ralentissement provoquerait selon lui une augmentation du taux de vide, ce qui diminuerait la célérité basse fréquence du milieu (modèle de Wood) et provoquerait donc le décalage de la fréquence de résonance.

Coste rajoute par ailleurs que la mesure du taux de vide et l'application du modèle de Wood semblent concorder de façon quantitative avec cette hypothèse. Nous sommes donc en présence d'une « interprétation redondante » de Coste qui justifie le décalage fréquentiel de deux façons.

En revanche, la simple modification du taux de vide ne peut pas être à l'origine de l'apparition de phénomènes de dissymétrie et d'hystérésis, propres à la réponse non linéaire du milieu mais l'auteur ne considère pas ce problème.

Cette contradiction se justifie probablement par le fait que les phénomènes observés ne permettant pas à l'auteur de caractériser les transferts de masse en jeu, il n'a pas approfondi la question. Pour la même raison, il n'a pas du tout cherché à exploiter le comportement non linéaire de la colonne diphasique pour chercher à caractériser le nuage de bulles.

Cette expérimentation conforte cependant l'idée de pouvoir appliquer la spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles afin de caractériser ce dernier.

Avant de clore ce chapitre bibliographique, nous allons nous intéresser au comportement de résonance d'un nuage de bulles dans un milieu monophasique.

# 2.2.4.3. La fréquence de résonance d'un nuage de bulles

La mise en œuvre d'une technique de spectroscopie de résonance non linéaire de type NRUS implique de pouvoir observer une ou plusieurs résonances du système à caractériser. Ceci est relativement simple dans les solides mais bien plus complexe quand le système mécanique considéré est un nuage de bulles.

Un nuage de bulles confiné dans un liquide monophasique présente toutefois une fréquence de résonance à basse fréquence due à la rupture d'impédance à l'interface liquide monophasique/nuage de bulles considéré comme un milieu homogène équivalent.

Ostrovsky et ses collaborateurs se sont intéressés à cette fréquence [Dru96], [Ost98], [Kar03] et [Ost03], tant d'un point de vue théorique qu'expérimental.

Ce qui est intéressant ici, c'est que la mesure de la fréquence de résonance d'un nuage de bulles s'est faite grâce à l'application d'une technique de mixage de deux hautes fréquences.



Figure 53 : Mise en œuvre d'une technique de mixage HF-HF en mer par [Ost03]

Ce comportement à basse fréquence d'un nuage de bulle permettrait certainement l'expérimentation d'une spectroscopie de résonance non linéaire. Il implique cependant un nuage de bulles « confiné » dans un milieu monophasique, ce qui n'est pas le cas dans le sodium liquide d'un SFR. Cette approche n'a donc pas été approfondie.

# **2.3. Conclusion**

Les méthodes acoustiques basées sur le comportement non linéaire des milieux bulleux présentent une forte potentialité pour la problématique de la caractérisation de l'engazement du sodium liquide. Par rapport aux techniques acoustiques linéaires, elles permettent en effet de caractériser une bulle ou un nuage de bulles sans ambiguïtés.

Le troisième chapitre sera donc consacré à la mise en œuvre expérimentale des techniques de mixage non linéaire de fréquences sur un nuage de microbulles. L'objectif sera de remonter aux histogrammes des rayons des bulles (mesurés par ailleurs optiquement) et aux valeurs de taux de vide.

Le quatrième chapitre présentera ensuite les résultats de la mise en œuvre d'une technique de spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles afin, là-aussi, de tenter de remonter aux caractéristiques de ce dernier.

Chapitre 2 : Acoustique non linéaire des bulles

# Chapitre 3. Construction par mixage de fréquences de l'histogramme des rayons d'un nuage de bulles

La présence continue d'un nuage de microbulles d'argon dans le sodium liquide des réacteurs nucléaires de quatrième génération impose de développer des techniques permettant de mesurer le taux de vide de cet engazement et de reconstruire l'histogramme des rayons des bulles de ce nuage.

A cette fin, nous avons choisi de mettre en œuvre deux techniques de mixage non linéaires de fréquences : le mixage d'une haute et d'une basse fréquence (voir §.3.3) et le mixage de deux hautes fréquences (voir §.3.4).

Le développement expérimental de telles techniques ne peut se faire directement en sodium pour deux raisons principales :

- Le sodium liquide est opaque, ce qui rend impossible une mesure optique de référence permettant de valider les histogrammes reconstruits acoustiquement.
- Le sodium liquide est inflammable au contact de l'air et hautement réactif en présence d'eau. Sa mise en œuvre dans le cadre d'expérimentation est donc très contraignante.

Or comme nous pouvons le voir dans le Tableau 3, les propriétés acoustiques du sodium liquide et de l'eau sont proches.

	EAU	SODIUM LIQUIDE	SODIUM LIQUIDE		
	(20°C - 1 bar)	(550°C)	(100°C)		
Masse volumique	<b>998</b> kg.m <sup>-3</sup>	<b>820</b> kg.m <sup>-3</sup>	<b>927</b> kg.m <sup>-3</sup>		
Célérité acoustique	<b>1482</b> m.s <sup>-1</sup>	<b>2289</b> m.s <sup>-1</sup>	<b>2525</b> m.s <sup>-1</sup>		
Impédance acoustique <i>(=ρc)</i>	<b>1,5 . 10</b> 6 rayls	1,9 . 10 <sup>6</sup> rayls	<b>2,3 . 10</b> <sup>6</sup> rayls		
Tension superficielle	<b>0,073</b> N.m <sup>-1</sup>	<b>0,1517</b> N.m <sup>-1</sup>	<b>0,1967</b> N.m <sup>-1</sup>		
Atténuation acoustique (1 MHz)	<b>0,025</b> Np.m <sup>-1</sup>	<b>0,029</b> Np.m <sup>-1</sup>	<b>0,011</b> Np.m <sup>-1</sup>		
Atténuation acoustique (20 kHz)	<b>1,0 . 10</b> -5 Np.m <sup>-1</sup>	<b>1,1 . 10-</b> <sup>5</sup> Np.m <sup>-1</sup>	<b>4,6 . 10</b> -6 Np.m <sup>-1</sup>		

# Tableau 3 : Comparaison de quelques propriétés physiques acoustiques de l'eau et du sodium liquide

 $1 N é per (Np) \equiv 20/ln(10) dB \approx 8,686 dB.$ 

L'impédance acoustique et l'atténuation dans l'eau à 20°C (1 bar) et le sodium liquide à 550°C sont très proches. Seule diffère un peu la tension superficielle qui joue un rôle important dans la rigidité des bulles : à taille et gaz équivalent, une bulle sera plus rigide dans le sodium liquide que dans l'eau.

Pour le choix du gaz, nous pouvons considérer en première approche (cas des gaz parfaits) que tous les gaz ont une même compressibilité donc, si la différence de masse volumique entre l'air et l'argon (dont la masse volumique est négligeable devant celle du liquide) est négligée, la nature du gaz n'influera pas les expérimentations acoustiques lorsque le liquide faiblement engazé est considéré comme un milieu homogène équivalent. A conditions équivalentes, lorsque le modèle de Wood est appliqué au cas de l'air et de l'argon, une erreur de moins de 0,1% pour des taux de vide jusqu'à 77% est constatée.

Par ailleurs, les modèles décrivant le comportement acoustique des bulles (modèle de Minnaert et de la dynamique de la bulle par exemple) ne font pas intervenir de propriétés du gaz de la bulle autres que le coefficient polytropique  $\gamma$ . Et comme nous pouvons le constater grâce aux valeurs présentées dans le Tableau 4, les propriétés de l'air et de l'argon sont relativement proches, les effets de la pression étant largement plus déterminants que la nature du gaz.

	AIR	AIR	ARGON	ARGON (550°C – 1 bar)	
	(20°C - 1 bar)	(20°C - 5 bars)	(550°C - 5 bars)		
Masse volumique	<b>1,204</b> kg.m <sup>-3</sup>	<b>6,017</b> kg.m <sup>-3</sup>	<b>2,908</b> kg.m <sup>-3</sup>	<b>0,582</b> kg.m <sup>-3</sup>	
Célérité acoustique	<b>343</b> m.s <sup>-1</sup>	<b>348</b> m.s <sup>-1</sup>	<b>536</b> m.s <sup>-1</sup>	<b>535</b> m.s <sup>-1</sup>	
Impédance acoustique (=pc)	<b>413</b> rayls	<b>2094</b> rayls	<b>1559</b> rayls	<b>311</b> rayls	
Viscosité dynamique	<b>18,23 . 10</b> -6 Pa.s	<b>18,29 . 10</b> <sup>-6</sup> Pa.s	<b>46,93 . 10</b> <sup>-6</sup> Pa.s	<b>46,90 . 10</b> <sup>-6</sup> Pa.s	
Viscosité cinématique	<b>15,17 . 10</b> -6 m <sup>2</sup> .s-1	<b>3,04 . 10</b> <sup>-6</sup> m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>	<b>16,14 . 10</b> -6 m <sup>2</sup> .s-1	<b>80,58.10</b> -6 m <sup>2</sup> .s-1	

Tableau 4 : Comparaison de quelques propriétés physiques et acoustiques de l'air et de l'argon

Pour réaliser la partie expérimentale de l'étude, nous avons donc adopté le système [eau/air à 20°C, 1 bar] en lieu et place du système [sodium/argon aux conditions du réacteur], tout en gardant à l'esprit que la pression à l'entrée du cœur d'un SFR (~5 bars) aura des conséquences significatives sur le comportement acoustique des bulles.

La première phase expérimentale concerne donc la caractérisation acoustique d'un nuage de bulles d'air dans l'eau. Préliminairement aux expérimentations acoustiques, deux dispositifs ont dû être mis au point :

- Un dispositif de génération de nuages de microbulles d'air permettant d'obtenir un engazement dont les caractéristiques se rapprochent de l'engazement continu du primaire d'un SFR.
- Un dispositif de caractérisation optique du nuage généré afin de disposer de valeurs considérées comme références pour la validation des techniques acoustiques.

Ces deux dispositifs sont détaillés en annexe 1. Leurs principales caractéristiques sont ici présentées dans un premier temps avant de développer la mise en œuvre du mixage acoustique non linéaire de fréquences et ses résultats dans un second temps.

Le banc expérimental fut baptisé MESANGE, acronyme de MESure Acoustique de l'eNGazement en Eau. Son développement a fait l'objet d'une subvention spécifique de l'université de la Méditerranée (Bonus Qualité Recherche) en partenariat avec le Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique de Marseille (UPR CNRS 7051).

Le banc MESANGE a par ailleurs fait l'objet de plusieurs présentations en conférence internationale [Cav08], [Cav09] et [Cav09-2].

# 3.1. Génération d'un nuage de microbulles

La génération d'un nuage de bulles ayant des caractéristiques proches du cas réel de l'engazement continu n'est pas triviale, étant données les faibles valeurs visées pour le taux de vide et la taille des bulles rencontrées dans un SFR.

D'après les données issues du retour d'expérience, le dispositif de génération de bulles doit pouvoir produire des nuages présentant :

- Une répartition réaliste des rayons de bulles, c'est-à-dire un histogramme poly dispersé.
- Des taux de vide dans la gamme 10<sup>-5</sup> 10<sup>-6</sup> voire si possible 10<sup>-7</sup>.

- Des rayons de bulles compris entre 10 et 100  $\mu$ m *a minima*, en deçà et au-delà si possible.
- Une possibilité de réglage du taux de vide généré et si possible de l'histogramme des rayons.

Il est apparu que peu de techniques permettent de remplir de telles conditions. Plusieurs approches permettent de générer des microbulles de gaz mais, pour la plupart, elles ne conduisent qu'à l'obtention de chapelets de bulles mono dispersées (micro-injecteurs, systèmes microfluidique...). Les méthodes qui permettent de générer des nuages de bulles poly dispersées (céramiques poreuses, électrolyse...) produisent en général des bulles de tailles bien plus importantes que celles souhaitées.

La seule technique que nous avons identifiée comme nous permettant de respecter au mieux le cahier des charges est la technique de l'aéroflottation. Elle est régulièrement désignée par l'acronyme DAF (Dissolved Air Flotation).

L'aéroflottation est une technique exploitée depuis de nombreuses décennies par l'industrie du traitement de l'eau [Edz95]. Le principe est le suivant : de l'eau est enrichie en air dissous dans une enceinte sous haute pression. Conformément à la loi de Henry, un équilibre s'établit alors, avec, à saturation, une quantité de gaz dissous dans l'eau proportionnelle à la pression dans l'enceinte. Cette eau fortement enrichie en air dissous est détendue : à la pression ambiante, elle se retrouve alors en état de forte sursaturation. Tout comme dans un SFR, cet état de sursaturation provoque un phénomène de nucléation de bulles. Ainsi générées, ces bulles sont de tailles très fines et variables selon la pression de dissolution.

Selon [Edz95], un nuage de bulles généré par technique DAF à environ 5 bars présente des bulles dont le rayon est compris entre 5 et 50  $\mu$ m avec un rayon moyen à 20  $\mu$ m. Toujours selon le même auteur, des pressions supérieures à 5 bars ne permettent pas de générer des bulles significativement plus petites.

Une description de l'aéroflottateur utilisé est disponible en annexe 1.

L'inconvénient majeur de ce dispositif est de fonctionner en circuit ouvert, ce qui limite la durée de génération d'un nuage de microbulles de quelques minutes à quelques dizaines de minutes selon le débit de sortie. En revanche, outre son adéquation avec le cahier des charges, cette technique de génération de bulles présente un avantage intéressant : le nuage de bulles est ici généré suivant le même principe physique que celui conduisant à la nucléation de bulles en sortie des échangeurs thermiques d'un SFR. Pour des tailles de bulles similaires, il est donc raisonnable de s'attendre à des populations de bulles présentant une dispersion proche.

La connaissance *a priori* des taux de vide et de l'histogramme des rayons de bulles générées par cette technique est très difficile. En effet la nucléation de bulles issue d'un état de sursaturation est quantitativement fortement liée à :

- L'état de saturation initial du liquide.
- L'état de saturation de l'eau dans laquelle l'eau enrichie en gaz dissous est détendue (par exemple, de l'eau fraîchement tirée du réseau d'eau est généralement sursaturée).
- La pureté de l'eau introduite dans le réacteur car les impuretés seront autant de site de nucléation qui faciliteront la nucléation.
- Le cas échéant, la nature et la forme de ces impuretés qui joueront en particulier sur la taille des bulles nucléées.

Or, tous ces paramètres sont difficiles voire impossibles à évaluer de façon à la fois suffisamment simple et précise pour quantifier le nombre et la taille des bulles nucléées.

Une mesure *a posteriori* est donc indispensable. C'est pour remplir cet objectif que nous avons développé un dispositif optique et le traitement d'images associé. Ce dispositif permet de caractériser le nuage de bulles généré par l'aéroflottateur et ainsi de pouvoir conclure quant à la similarité du nuage avec le cas industriel.

# 3.2. Contrôle optique des nuages de bulles

Les méthodes optiques sont généralement celles qui sont employées pour la caractérisation des nuages de bulles dans un liquide transparent [Arz81], [Hep04], [Lig07]. C'est donc vers elles que nous nous sommes tournés.

La faible densité volumique de bulles ainsi que la taille de ces dernières rendent notre problématique complexe et atypique.

A titre illustratif, une population de bulles monodispersées de 50  $\mu$ m de rayon présentera, pour un taux de vide de 10<sup>-6</sup>, une densité d'environ 2 bulles.cm<sup>-3</sup> seulement.

L'idée développée est de photographier le nuage de bulles perpendiculairement à son sens d'écoulement, avec une faible profondeur de champ (limite de la zone perçue comme nette), afin de pouvoir exécuter dans un second temps un traitement d'image dans le but de reconstruire l'histogramme des rayons des bulles et de déterminer le taux de vide.

L'objectif est d'obtenir des images successives d'une tranche du nuage. Les bulles présentes dans la zone focale de l'objectif y apparaitront nettes et pourront être analysées par un traitement d'images approprié. La zone de transition entre les bulles nettes et les bulles floues sera d'autant plus réduite que la profondeur de champ sera faible. Il sera ainsi plus aisé de déterminer le volume scruté optiquement, ce qui présente un intérêt pour la détermination de la valeur du taux de vide du nuage.

A cette fin, le dispositif devait être constitué :

- D'une caméra suffisamment résolue vis-à-vis de la taille du champ et de la définition attendue.
- D'une optique adaptée avec une faible profondeur de champ.
- D'un éclairage permettant des temps de pose suffisamment courts vis-à-vis du déplacement des bulles.
- Des dispositifs d'acquisition associés.
- D'une solution pour rendre le tout immergeable afin de pouvoir effectuer des mesures au sein du nuage de bulles.

# 3.2.1. Constitution du dispositif de mesures optiques et traitement d'images associé

Une présentation complète du dispositif optique et du traitement d'images associé est présente en annexe 1. Les caractéristiques essentielles de cet ensemble sont présentées ici.

Le dispositif développé est constitué d'une caméra présentant une définition de cinq mégapixels et d'une optique télécentrique.



Figure 54 : Principe des optiques télécentriques (droite). Illustration des avantages de telles optiques (gauche)

Le principe d'une optique télécentrique est de ne capter que les rayons parallèles. L'avantage est triple : visualiser le rayon réel des bulles, s'affranchir des changements d'indices aux interfaces et éviter les phénomènes de distorsion de l'image.

L'ensemble caméra-optique présente une résolution de 2,29  $\mu$ m par côté de pixel. Le Tableau 5 traduit en pixels la surface de bulles dont le rayon est compris entre 1 et 10  $\mu$ m.

Rayon [µm]	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Surface [ µm²]	3,14	12,57	28,27	50,27	78,54	113,10	153,94	201,06	254,47	314,16
Surface [pixel]	0,60	2,40	5,39	9,59	14,98	21,57	29,35	38,34	48,52	59,91

Tableau 5 : Equivalences rayon des bulles - nombres de pixels définissant la bulle

Pour des bulles de rayon inférieur à 5  $\mu m$ , le nombre de pixels risque donc d'être insuffisant pour fournir un contour suffisamment net des bulles.

Le couple optique – caméra est complété d'un éclairage LED et de solutions d'immersions. Le tout est présenté la Figure 55.



Figure 55 : Vue générale du dispositif optique

Le traitement d'image développé est basé sur un seuillage sur les niveaux de gris des images obtenues. Les différentes étapes du traitement (détaillées en annexe 1) sont :

- L'étirement de l'histogramme des niveaux de gris des photos pour en augmenter la dynamique.
- La définition d'un seuil de niveau de gris.
- La binarisation des images.
- Le comblement des trous présents au centre des bulles.
- La labellisation des objets détectés.
- L'élimination des artefacts induits par le traitement.
- L'extraction du paramètre « rayon » des objets détectés.
- La reconstruction de l'histogramme des rayons.

Une tentative d'étalonnage du dispositif optique et de son traitement d'images associés est présentée en annexe 2. L'objectif de cet étalonnage est double :

- Améliorer les histogrammes obtenus en annulant si possible les erreurs engendrées par les bulles floues non éliminées par le traitement d'images.
- Etalonner le volume sondé afin de remonter aux valeurs de taux de vide.

Bien qu'il semble intéressant et réalisable, cet étalonnage n'a pu aboutir dans le cadre des travaux de thèse ici présentés.

# 3.2.2. Application du contrôle optique au nuage de bulles issu de l'aéroflottateur

Appliquons maintenant le traitement d'image présenté au paragraphe précédent à une série de photos issues d'un film de notre nuage de bulles.

Nous avons pour cela généré un nuage de bulles, grâce à l'aéroflottateur présenté §.3.1, dans un bac de type aquarium (voir Figure 61). Un film d'environ 3000 photos (~7 minutes) a été réalisé avec notre dispositif optique placé de part et d'autre de l'aquarium. Le temps de pose avait été réglé sur 1/10000<sup>ème</sup> de seconde.

Le nuage n'étant pas parfaitement homogène à l'échelle du champ optique de la caméra, les photos obtenues comportent un nombre variable de bulles nettes.



Figure 56 : Exemples de photographies types obtenues lors d'une séquence vidéo

Afin de ne pas risquer de traiter plusieurs fois des bulles présentes sur des photos consécutives, compte tenu de la vitesse des bulles, une photo sur quatre seulement a été traitée.

L'optimisation du traitement d'images passe par la définition de quatre critères :

- Le seuil de luminance (= niveau de gris) qui fixera la limite entre bulle nette sélectionnée et bulle floue éliminée,
- Le seuil de sphéricité qui permettra d'éliminer les objets présents sur la photo qui ne sont pas des bulles (impuretés, vignetage...) et la plupart des bulles floues qui n'auraient pas été éliminées sur le critère de luminance,
- Le seuil de bruit, c'est-à-dire la limite de taille de bulles détectable par le dispositif optique et en dessous de laquelle les éventuels objets détectés ne seront pas pris en compte,
- Le nombre de photos nécessaires à une reconstruction d'un histogramme statistiquement représentatif de la population de bulles.

Une telle phase expérimentale ne nous impose pas de contraintes particulières en termes de temps de traitement informatique réalisable *a posteriori*. Nous avons donc choisi des seuils sévères pour la luminance et la sphéricité et utilisé un grand nombre de photos à traiter :

- Seuil de luminance = 0.05
- Seuil de sphéricité = 0,3
- Nombre de photo traitées = 520

Nous avons vérifié la validité de ces critères en les faisant varier mais une étude plus poussée de l'impact de chacun d'entre eux serait utile pour une optimisation du temps de calcul.

Le résultat de l'application de ces critères est présenté Figure 58.



Figure 57 : Résultat du traitement sur une photo avec les paramètres retenus : bulles détectées et histogramme reconstruit



Figure 58 : Résultat du traitement sur une photo avec les paramètres retenus : zone de la photo rejetée (les zones blanches correspondant aux pixels des bulles détectées et extraites par le traitement)

L'observation de la Figure 58 permet de constater que les bulles nettes et isolées (*a*) sont correctement extraites mais qu'il en est de même pour les centres de quelques bulles floues (*b*). Notre traitement sous estime donc la taille de certaines bulles.

Pour le seuil de bruit, nous avons réalisé nos histogrammes sans le fixer et ce dernier apparaît clairement très en dessous de la partie en cloche de l'histogramme (en admettant que

l'histogramme réel ne présente qu'un seul pic). L'histogramme présenté Figure 59 l'illustre bien. Y sont représentées 3139 bulles de 7  $\mu$ m et plus et 515346 de moins de 7  $\mu$ m.



Figure 59 : Histogramme des rayons des bulles issu du dispositif optique

Le seuil sur le bruit a donc été fixé à 30 pixels (surface correspondant à des bulles de 7  $\mu$ m de rayon). Nous obtenons finalement l'histogramme suivant :



Figure 60 : Histogramme tronqué des rayons des bulles issu du dispositif optique

En considérant les données constructeurs de la caméra et de l'optique, tentons ici une approche de la valeur du taux de vide :

$$S = Surface \ du \ champ \ optique = \frac{Surface \ du \ capteur \ de \ la \ caméra}{Grandissement \ de \ l'optique^2} = 26,55 \ mm^2$$

**P** = Profondeur de champ de l'optique = **0,66 mm** (donnée constructeur)

N = Nombre de photos traitées = 520

**V** = Volume des bulles détectées = 
$$\frac{4}{3}\pi \int_{0}^{\infty} r^{3}.n(r).dr$$
 = **1,08 mm**<sup>3</sup>

Taux de vide = 
$$\frac{V}{N.P.S} = 1, 2.10^{-4}$$

Il est difficile de conclure quant à la sous-estimation ou à la surestimation de ce calcul. En effet, les bulles présentant un certain flou et qui ne sont pas éliminées par le traitement d'images voient leur taille sous-estimée, ce qui conduit à la sous-estimation du taux de vide. En même temps, il est probable que ces bulles floues ne soient en réalité pas situées dans les 660  $\mu$ m du champ optique pris en compte dans le calcul. Leur non élimination partielle conduit alors à une surestimation du taux de vide.

# 3.2.3. Validation du dispositif optique par diffractométrie laser

En collaboration avec le LMA (Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique – CNRS UPR 7051 – Marseille), une caractérisation du même nuage de bulles a été effectuée grâce à un diffractomètre laser. L'appareil utilisé se base sur la théorie de la diffraction des rayons de Mie pour remonter à l'histogramme des rayons des bulles. Il s'agissait d'un appareil Spraytech de la marque Malvern.



Figure 61 : Association du dispositif de diffraction laser à notre caméra

Ne pouvant matériellement pas effectuer de mesures laser et vidéos simultanées (la diffraction laser devant s'effectuer dans l'obscurité), nous avons procédé à une mesure laser, puis à une mesure vidéo et enfin à une deuxième mesure laser afin de vérifier que les caractéristiques du nuage de bulles n'avaient pas trop dévié entre temps.

Le diffractomètre laser est un dispositif industriel, et en tant que tel, il constitue une « boîte noire ». Les résultats qui en découlent restent cependant dignes de confiance vu le caractère éprouvé de la technique et la notoriété de la marque dans le domaine de la granulométrie par diffractométrie.

Les histogrammes générés par le diffractomètre laser pour les mesures effectuées avant et après la mesure vidéo ont été moyennés. La Figure 62 présente cet histogramme moyenné en superposition avec l'histogramme reconstruit grâce à la caméra afin de comparer les résultats obtenus.



Figure 62 : Superposition des histogrammes obtenus par technique laser et vidéo

La concordance entre les deux histogrammes est très bonne pour ce qui est de la borne supérieure, un peu moins pour ce qui est du rayon moyen et de la borne inférieure. Ceci s'explique probablement par la remarque faite à la suite de l'observation de la Figure 58 : la taille de quelques bulles floues non écartées par le traitement d'images tend à une sousestimation des rayons d'une petite partie des bulles (et non à une dérive globale de l'histogramme).

La diffractométrie laser nous a en outre permis d'appréhender qualitativement certaines caractéristiques de la génération de bulles par aéroflottation :

 En accord avec l'affirmation du constructeur de l'aéroflottateur, le débit de sortie influe beaucoup sur la taille des bulles générées et sur l'étalement de l'histogramme. La Figure 63 présente les histogrammes de deux nuages de débit qualitativement différents : « moyen » et « très faible ». En plus d'un étalement des rayons, nous constatons que la valeur du rayon central est plus que doublée pour un débit plus important.



Figure 63 : Comparatif des histogrammes des rayons de bulles mesurés par diffractométrie laser pour deux débits différents

- En revanche, nous avons constaté que la pression de saturation de l'aéroflottateur n'influait que très peu sur l'histogramme des rayons des bulles généré. Ainsi, pour une pression passant de 7 bars à 3 bars, une légère augmentation de la taille des bulles est constatée. Cette variation étant très faible vis-à-vis de celle due à un changement de débit, il ne nous a pas été possible de la quantifier.
- Une estimation de la dérive de l'histogramme au cours du temps, à pression de saturation et débit de sortie constants a été effectuée en comparant deux histogrammes reconstruits à 30 minutes d'intervalle au cours d'une génération continue de bulles. Une dérive quasiment nulle et un léger étalement de l'histogramme sont constatés sur la Figure 64.



Figure 64 : Comparatif des histogrammes des rayons de bulles mesurés par diffractométrie laser à 30 minutes d'intervalle

Pour ce qui est du taux de vide, l'approche présentée au §.3.2.2 basée sur les données constructeurs permettra dans un premier temps de déterminer un ordre de grandeur de sa valeur.

L'objectif est désormais de comparer ces histogrammes des rayons des bulles mesurés optiquement à ceux fournis par des techniques acoustiques.

# 3.3. Mise en œuvre de la technique du mixage de fréquences HF-BF

Les résultats de la mise en œuvre de la technique acoustique non linéaire présentée au §.2.2.2.2, à savoir le mixage d'une haute et d'une basse fréquence est ici présentée.

# 3.3.1. Protocole de reconstruction de l'histogramme des rayons des bulles

Le nuage de bulles est ici insonifié avec une haute fréquence à 2,25 MHz et une basse fréquence comprise entre 10 kHz et 500 kHz. L'apparition de pics à 2,25 MHz  $\pm$  la valeur de la basse fréquence permettra de conclure à la présence d'une bulle dont la fréquence de résonance correspond à cette basse fréquence.



# Figure 65 : Protocole de reconstruction de l'histogramme des rayons a partir des trequences somme et différence détectées

Un balayage entre 10 kHz et 500 kHz permet ainsi de couvrir les fréquences de résonances des bulles dont le rayon est compris entre 7  $\mu$ m et 330  $\mu$ m (d'après le modèle de Minnaert).

Pour la reconstruction de l'histogramme, il a été choisi de ne pas exploiter la valeur de l'amplitude des fréquences somme et différence générées mais de considérer l'apparition de ces fréquences comme l'indicateur de la présence d'une seule bulle. L'histogramme est alors reconstruit de façon incrémentale sur un temps suffisamment long pour être statistiquement représentatif de l'histogramme des rayons des bulles présentes dans le nuage.

Cette approche, qui est aussi celle de [Buc05] est possible si la probabilité de la présence de deux bulles résonantes au niveau de l'intersection des taches focales des traducteurs hautes fréquences est négligeable. Cette hypothèse sera ici considérée, *a priori,* comme vérifiée (ce qui sera confirmé par la suite).

Cette approche permet de s'affranchir des inconvénients majeurs des méthodes basées sur les amplitudes des fréquences somme et différence :

- Travailler sur les amplitudes est toujours problématique dans les nuages de bulles car les ondes acoustiques émises à ces fréquences somme et différence en un point du nuage peuvent être plus ou moins fortement atténuées par le reste du nuage avant d'atteindre le point de mesure.
- Relier l'amplitude des ondes acoustiques émises à la fréquence somme (ou différence) à une densité de bulles résonantes implique une modélisation fine et validée des phénomènes. Si de tels modèles existent [New84], leur validité reste sujette aux hypothèses qui ont été émises pour leur élaboration.
- Pouvoir exploiter la valeur des amplitudes impliquerait ici de prendre en compte le comportement en émission et en réception des différents traducteurs acoustiques aux différentes fréquences en jeu. S'affranchir de cette étape permet une simplification du traitement des signaux obtenus.

# 3.3.2. Composition du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental mis en place repose sur les éléments constitutifs suivants :

- Une paire de traducteurs Panametrics V304 (diamètre 1 pouce ~ 2,54 cm) de fréquence centrale 2,25 MHz et focalisés à environ 3 cm.
- Un générateur de signaux HP 3314A pour la génération de la haute fréquence
- Un traducteur basses fréquences et large bande passante IMASONIC de fréquence centrale 250 kHz (diamètre 44 mm, réalisation sur mesure)

- Un générateur de signaux Agilent 3250A pour la génération de la basse fréquence
- Un PicoScope 4424 relié à un PC pour la réception des signaux (12 bits)

Les trois traducteurs ainsi que les dispositifs de génération de bulles et de contrôle optique ont été immergés dans une cuve d'environ 1,5 m x 1,5 m x 0,6 m. Cette cuve est constituée d'une matière plastique présentant la particularité d'être très peu réfléchissante aux fréquences acoustiques expérimentées. Il est donc possible de se considérer en milieu quasi-anéchoïque.



Figure 66 : Schéma du dispositif HF-BF mis en place

Quelques caractéristiques du traducteur 250 kHz

#### 1- Bande passante en émission

Le spectre d'émission du traducteur basses fréquences a été réalisé par le LMA en limite de champ proche (valeur théorique = 8,2 cm) avec un hydrophone RESON TC 4035. Le traducteur est ici directement alimenté par le générateur de fonctions (10V) sans amplificateur de puissance.



Figure 67 : Spectre d'émission du traducteur 250 kHz

Le spectre présente ici une fréquence centrale légèrement inférieure à 250 kHz et une bande passante à -6dB comprise entre 160 kHz et 320 kHz environ.

### 2- Pression acoustique maximale

D'après les mesures effectuées par le LMA ayant abouti au spectre présenté Figure 67, la pression acoustique maximale atteinte sans amplificateur de puissance est d'environ 18 kPa. Dans la gamme 100 kHz – 400 kHz, la pression acoustique reste supérieure à 3 kPa.

### *3-* Diamètre du faisceau à -6dB

L'application des formulations théoriques classiques conduit ici à une largeur de faisceau acoustique de 11,3 mm.

### Quelques caractéristiques des traducteurs 2,25 MHz

1- Bande passante

La technique de mixage HF-BF impose une utilisation des traducteurs d'imagerie à leur fréquence centrale à la fois pour le côté émetteur et autour de la fréquence centrale pour le côté récepteur (la fréquence centrale plus ou moins les fréquences somme et différence). Considérant que la plage fréquences somme et différence est réduite devant la bande passante du traducteur, nous n'avons pas cherché à caractériser leurs bandes passantes en émission et en réception.

### 2- Pression acoustique

Ne disposant pas de l'équipement adapté (un hydrophone aiguille), nous n'avons pas été en mesure de déterminer la pression acoustique maximale générée au niveau de la tache focale acoustique.

*3- Taille de la tache focale à -6dB* 

Les formules théoriques (voir annexe 4) donnent ici, pour les capteurs 2,25 MHz focalisés à 30 mm et de diamètre 1 pouce (~25,4 mm), une zone focale dans l'eau (c = 1480 m.s<sup>-1</sup>) de dimension :

### *Diamètre à -6 dB = 0,79 mm*

#### Longueur à -6 dB = 4,55 mm

# Soit un volume à -6 dB d'environ 2,25 mm<sup>3</sup>

Il est à noter que la valeur de la célérité acoustique du milieu de propagation intervient dans les calculs. Or nous avons vu précédemment que la célérité dans un milieu diphasique pouvait être profondément modifiée par la présence des bulles. Sans connaissances *a priori* sur la taille et la densité des bulles présentes dans le nuage, ces calculs sont donc à considérer à titre indicatif uniquement.

### Expérimentations préliminaires

Les premières expérimentations menées mettaient en jeu une ligne électronique d'émission et de réception constituée d'éléments supplémentaires :

- Un amplificateur de puissance alimentant le traducteur BF
- Un amplificateur de puissance alimentant le traducteur HF émetteur
- Un amplificateur de mesure en aval du traducteur HF récepteur
- Un filtre passe-bande en aval du traducteur HF récepteur

Tous ces appareils induisaient des fortes non-linéarités électroniques dans le système (apparition d'harmoniques entre autres). En les retirant de nos chaines d'émission et de réception, nous avons pu obtenir un ensemble quasi-linéaire (voir Figure 69). En contrepartie,

ces retraits nous ont imposé de travailler avec des signaux acoustiques de plus faibles amplitudes et de faibles signaux en réception. L'utilisation d'un récepteur numérique de signaux codant sur 12 bits nous a cependant permis de parvenir à exploiter les signaux reçus.

Les premières expérimentions ont aussi permis de confirmer un phénomène déjà identifié par Chapelon : lorsque les traducteurs émetteurs s'éclairent mutuellement, un mixage des fréquences acoustiques apparaît [Cha85]. L'auteur avance l'hypothèse d'un mixage généré au niveau des faces avant des capteurs. Cette constatation impose un minimum de précautions quant à la disposition des capteurs. La configuration qui a été validée est celle de la Figure 66 : les deux traducteurs HF sont à 90° l'un par rapport à l'autre et le traducteur BF à 45° de chacun des traducteurs HF. Le tout est placé dans un plan horizontal afin d'être orthogonal à l'écoulement (vertical) du nuage de bulles.

# 3.3.3. Résultats

Un nuage de bulles de faible densité est généré. Il forme une colonne de microbulles qui s'élève au sein de la cuve.

# 3.3.3.1. Contrôle optique du nuage de bulles généré

Une mesure optique du nuage généré a donné l'histogramme suivant :



Figure 68 : Histogramme optique des rayons des bulles du nuage généré

Cet histogramme a été tronqué à 6  $\mu$ m pour les raisons évoquées précédemment : résolution du dispositif optique et « bruit » du traitement d'images. Cette troncature est ici plus problématique que dans la situation expérimentale décrite au §.3.2.2 car d'après l'allure de l'histogramme, des bulles de 6  $\mu$ m et moins sont probablement présentes dans le nuage de bulles.

Cet histogramme a été reconstruit à partir de 10779 bulles détectées.

En effectuant le même calcul qu'au §.3.2.2, une valeur approchée du taux de vide est obtenue :

- Volume optique = 17,52 mm<sup>3</sup>
- Nombre de photos traitées = 300
- Volume des bulles détectées sur l'ensemble des photos =  $\frac{4}{3}\pi \int_{0}^{\infty} r^{3}.n(r).dr = 41.10^{-2} \text{ mm}^{3}$

 $\Rightarrow$  Taux de vide = 7, 8. 10<sup>-5</sup>

Pour un débit de sortie de l'aéroflottateur beaucoup plus faible que dans le cas présenté au §.3.2.2, nous observons un taux de vide inférieur mais surtout un histogramme des rayons des bulles présentant une valeur moyenne diminuée de façon importante : 13  $\mu$ m au lieu d'une quarantaine de micromètres.

# 3.3.3.2. Reconstruction acoustique de l'histogramme des rayons des bulles

Sur ce nuage de bulles contrôlé optiquement, ont été menées des expérimentations de mixage acoustique non linéaire, à savoir l'excitation du nuage par une haute et une basse fréquence.

La haute fréquence est fixée à 2,25 MHz. Elle est émise de façon focalisée et continue. La tension d'alimentation aux bornes du traducteur est la tension maximale de sortie du générateur de signaux : 10V.

La basse fréquence est elle aussi émise de façon continue, non focalisée, en mode sweep, c'est-àdire que la fréquence varie continument entre 10 kHz et 500 kHz, avec une durée de rampe de 10 secondes. Le balayage fréquentiel permet d'une part de raccourcir le temps d'exécution par rapport à l'émission de trains d'ondes à fréquences fixes et incrémentées et d'autre part de faire apparaître le comportement hystérétique éventuel du nuage de bulles.

Le traducteur hautes fréquences de réception (2,25 MHz focalisé lui aussi) est positionné grâce à une bille de rubis de 1 mm de diamètre de façon à faire se coïncider les taches focales acoustiques des deux traducteurs hautes fréquences. Par la suite, lorsque nous parlerons de tache focale acoustique, il s'agira en réalité de l'intersection de ces deux taches focales. Vu la petite taille de ces dernières, l'étape consistant à les faire se superposer spatialement est possible mais très délicate à mener.

Lorsqu'à un temps *t* donné, la fréquence du sweep (473 kHz sur la Figure 69) ne correspond à aucune fréquence de résonance des bulles présentes dans la tache focale acoustique des traducteurs HF, l'absence totale de phénomènes non linéaires est observée : ni harmoniques, ni fréquences somme, différence ou autres.



Figure 69 : Spectre d'un signal sans présence de bulles

Ce type de spectre nous permet par ailleurs de valider la linéarité de l'ensemble émission – milieu de propagation – réception. La non linéarité du milieu de propagation, ici l'eau, est parfois observée dans certaines expérimentations mais ces dernières font intervenir des pressions acoustiques plus élevées que celles mises en œuvre ici (de l'ordre de la centaine de kPa).

Le protocole décrit au §.3.3.1 a été appliqué sur les signaux reçus par le traducteur récepteur HF. La Figure 70 présente un spectre typique en présence de bulles. D'autres fréquences que les fréquences somme et différence peuvent apparaître (voir §.5.2.1)

#### Chapitre 3 : Construction par mixage de fréquences de l'histogramme des rayons d'un nuage de bulles



rayons des bulles

Pour reconstruire l'histogramme des rayons de bulles présentes dans le nuage, nous nous sommes focalisés sur un seul type de fréquence caractéristique de la présence de bulles : les fréquences somme et différence :  $\omega_i \pm \omega_p$ .

La reconstruction présentée Figure 71 a été effectuée à partir du traitement des spectres fréquentiels de 1953 séquences de signal du type de celui de la Figure 70. Chaque séquence temporelle enregistrée dure 5 ms et est codée sur un million de points.

Comme décrit au §.3.3.1, chaque pic correspondant à une fréquence somme ou différence dépassant un seuil fixé juste au dessus du niveau de bruit est traduit en rayon de bulle résonante.

1083 bulles sont ainsi détectées et permettent de construire l'histogramme suivant :



Figure 71 : Histogramme des rayons des bulles reconstruit grâce à une technique de mixage HF-BF

La comparaison de cet histogramme avec l'histogramme obtenu via le dispositif optique (cf. §.3.2.2) sur le même nuage de bulle est excellente :



Figure 72 : Validation de l'histogramme reconstruit acoustiquement par une technique optique

Les deux histogrammes ont une forme très similaire et un rayon moyen très proche. Le coefficient de corrélation entre les deux histogrammes est ici de 0,94. Ce résultat valide *a posteriori* les hypothèses que nous avions formulées :

- Malgré l'utilisation d'un seul traducteur sur une large bande basse fréquence (10 kHz-500 kHz), la pression acoustique de pompage reste suffisante. Ceci est évidemment lié aux propriétés acoustiques du capteur utilisé mais aussi au fait qu'une faible pression acoustique de pompage (de l'ordre de quelques dizaines de Pa seulement) conduit à l'apparition des fréquences somme et différence. Le critère de la pression acoustique minimale à atteindre est donc largement vérifié vu l'histogramme des rayons des bulles présentes. Vu la Figure 67, il paraît raisonnable de penser qu'entre 10 et 100 kHz d'une part, et entre 400 et 500 kHz d'autre part, la pression acoustique émise reste supérieure à plusieurs dizaines de pascals. Des essais avec un traducteur de pompage de fréquence centrale 500 kHz ont par ailleurs donné des résultats en parfaite cohérence avec l'histogramme présenté.
- Une hypothèse qui semblait *a priori* plus délicate à vérifier consiste en l'unicité d'une bulle résonante et présente dans la zone d'intersection des taches focales acoustiques des traducteurs hautes fréquences. La justesse des résultats confirme *a posteriori* cette hypothèse et la validité de l'utilisation d'une méthode de comptage non basée sur l'amplitude des fréquences somme et différence.

D'autres points restent toutefois à confirmer. Le plus important d'entre eux concerne le fait que d'autres histogrammes ont été reconstruits de la même manière mais sans atteindre des résultats aussi bons, en particulier sur la forme de l'histogramme :



Figure 73 : Autre reconstruction d'histogrammes optique et acoustique par mixage HF-BF

La principale explication à l'écart observé ici concerne l'intersection du faisceau basse fréquence avec les taches focales des traducteurs hautes fréquences. Considérant qu'il n'était pas focalisé, nous n'avons pas apporté beaucoup de soin à son orientation lors de nos expérimentations. Or, le calcul effectué a posteriori au §.3.3.2 montre que le diamètre du faisceau BF à -6dB est de 11,3 mm seulement. Il est donc probable que son orientation approximative ait influencé de facon non négligeable les histogrammes obtenus. En effet, une mauvaise orientation du faisceau a pour conséquence directe une diminution des pressions acoustiques atteintes dans et au voisinage de l'intersection des taches focales des traducteurs HF. Les seuils BF d'apparition des fréquences somme et différence peuvent alors ne plus être franchis à l'intérieur de la tache focale HF que sur une gamme réduite de fréquence autour de la fréquence centrale du capteur BF. Plus le faisceau acoustique BF est éloigné des taches focales HF, plus les fréquences centrales de la bande passante du traducteur BF sont privilégiées. L'histogramme est alors faussé par la bande passante du traducteur BF. L'écart maximal observé sur les histogrammes présentés Figure 73 intervient aux alentours d'une quinzaine de micromètres (fréquence de résonance équivalente  $\sim$ 220 kHz), ce qui correspond à peu près la fréquence centrale du traducteur BF et conforte donc cette hypothèse.

Ces résultats restent néanmoins très bons relativement à ce qui était attendu et ce qui a été publié jusqu'alors dans ces gammes de rayons.

Un autre point important concerne le calcul du taux de vide à partir des résultats obtenus (optiquement, nous avions évalué le taux de vide à 7,8.10<sup>-5</sup>).

L'évaluation du taux de vide par méthode acoustique est ici très difficile. En considérant toutes les bulles détectées et leurs rayons, il est facile de remonter au volume total de gaz détecté. A partir de là, pour évaluer le taux de vide, il faut diviser ce volume par le volume total sondé acoustiquement. Ce dernier vaut :

$$\left[Volume \ focal + \left(Section \times \frac{Vitesse \ d'écoulement}{Durée \ d'une \ séquence}\right)\right] \times Nombre \ de \ séquences \tag{3.1}$$

Vu la forme et les dimensions de la tache focale des traducteurs HF (voir §.3.3.2), le volume de l'intersection des deux taches focales pourra être approximé en prenant le volume constitué par la sphère de diamètre égal au diamètre du faisceau acoustique HF (= 0,79 mm). La faible valeur de la vitesse d'écoulement (< 1 cm.s<sup>-1</sup>) relativement à la vitesse d'écoulement la rend négligeable.
La valeur de taux de vide ainsi obtenue devra être multipliée par  $\frac{\Delta f_{sweep}}{\Delta f}$  car chaque séquence n'interroge qu'une bande réduite  $\Delta f$  de fréquences de résonances potentielles sur l'ensemble  $\Delta f_{sweep}$  des fréquences balayées par le sweep.

Quand le calcul est effectué en considérant  $\Delta f = \Delta f_{sweep}$ , (ce qui sous estime fortement le taux de vide), le taux de vide vaut 1,7.10<sup>-4</sup>. Il est difficile de remonter à une valeur plus précise du taux de vide car il faudrait pour cela connaître  $\Delta f$ , c'est-à-dire la gamme des rayons de résonance détectés autour d'une fréquence de pompage donnée afin de pouvoir quantifier « l'échantillonnage » que constitue des tirs de 5 ms sur un sweep de 10 secondes. Bien que fortement sous-estimée, cette valeur est déjà supérieure au taux de vide attendu (voir §.3.3.3.1).

L'explication de cette erreur provient très certainement du calcul du volume focal. Il est en effet probable que les bulles résonantes spatialement proches (et non uniquement à l'intérieur) de l'intersection des taches focales des traducteurs HF soient détectées. Vu la très faible taille des taches focales acoustiques, cette erreur (entrainant une variation cubique) pourrait expliquer les forts écarts rencontrés. La difficulté à évaluer de façon fiable le volume à l'intérieur duquel une bulle résonante sera détectée par une technique de mixage HF-BF rend problématique l'évaluation précise du taux de vide du nuage de bulles. Virtuellement, la solution consisterait à effectuer un balayage 3D du volume situé entre les capteurs avec une bulle statique afin d'étalonner le dispositif et de remonter au volume effectivement sondé acoustiquement.

Le tracé de l'histogramme des fréquences de résonance des bulles à partir de l'histogramme des rayons des bulles obtenu Figure 71 et du spectre d'émission du capteur (Figure 67) donne :



Figure 74 : Histogramme des fréquences de résonance des bulles obtenu à partir de l'histogramme des rayons des bulles de la Figure 71 obtenu par la technique de mixage HF-BF (trait épais) et spectre d'émission du traducteur BF de pompage (trait fin)

En comparant ces deux courbes, un décalage de la fréquence centrale d'environ 100 kHz est observé, ce qui confirme que ce n'est pas la bande passante de l'émetteur BF qui a été reconstruite par mixage HF-BF. Ceci est confirmé par ailleurs par l'écart observé sur les rayons centraux des histogrammes présentés Figure 72 et Figure 73.

### 3.3.3.3. Autres observations acoustiques

Le §.5.2.1 présente les autres fréquences caractéristiques de la présence de bulles que nous avons observées. Ce sont en particulier :

- Des ultraharmoniques de la fréquence de pompage
- Une sub-harmonique de la fréquence de pompage
- Des multiples des fréquences somme et différence
- Les sub-somme et sub-différence
- Les sub-sub somme et sub-sub différence, qui sont des fréquences inédites à ce jour.

### 3.3.4. Conclusion

La mise en œuvre de la technique de mixage de fréquences HF-BF, telle qu'elle avait déjà été expérimentée au début des années 80 nous a permis d'obtenir des histogrammes des rayons des bulles relatifs validés par une technique optique avec une précision jamais obtenue jusqu'alors.

N'ayant pu mener de nouvelles expérimentations après analyse de nos résultats, il reste cependant quelques questions auxquelles une réponse sera nécessaire pour une validation complète de la technique et des critères à respecter (en particulier vis-à-vis de la focalisation acoustique), au moins pour l'obtention d'un histogramme des rayons des bulles relatif.

La détermination du taux de vide semble quant à elle difficile à atteindre à ce stade des recherches car elle implique la connaissance précise du volume acoustiquement sondé.

L'observation d'une fréquence à  $\omega_i \pm (\omega_p/4)$  est remarquable car non rapportée à ce jour dans la littérature. Elle mériterait à ce titre quelques approfondissements théoriques et expérimentaux.

### 3.4. Mise en œuvre de la technique du mixage de fréquences HF-HF

Le mixage non linéaire de deux hautes fréquences présente un certain nombre d'avantages (voir §.2.2.2.1). Le principal est de pouvoir balayer une plage de fréquences de résonances très vaste avec un seul capteur. Une mise en œuvre de cette technique est présentée ici.

Le principe général est le même que pour la technique HF-BF présentée précédemment, à ceci près qu'ici le nuage est excité par deux ondes dont on cherchera à faire coïncider la différence des fréquences (très supérieures aux fréquences de résonance des bulles, d'où le terme haute fréquence) avec la fréquence de résonance des bulles présentes dans le nuage.



### Figure 75 : Protocole de reconstruction de l'histogramme des rayons à partir des fréquences différence détectées

En effectuant un balayage avec une des deux hautes fréquences, il sera ainsi possible de remonter aux fréquences de résonances des bulles présentes dans le nuage. En fixant un des traducteurs à 2,5 MHz par exemple et en effectuant un balayage entre 2 et 2,5 MHz avec l'autre traducteur, la plage des basses fréquences 0 Hz – 500 kHz sera couverte tout en restant dans la bande passante des traducteurs 2,25 MHz.

La reconstruction de l'histogramme se fait ensuite de la même façon qu'avec la technique HF-BF, en se basant sur l'apparition de la fréquence différence  $HF_2 - HF_1$  uniquement (voir §.3.3.1).

### 3.4.1. Composition du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental mis en place pour reproduire les travaux de Sutin [Sut84] s'inspire largement de celui de ce dernier. Il est constitué de :

- Une paire de traducteurs Panametrics V304 (diamètre 1 pouce ~2,54 cm) de fréquence centrale 2,25 MHz et focalisés à environ 3 cm.
- Un hydrophone basse fréquence Bruel & Kjaer 8103.
- Un amplificateur de charge Bruel & Kjaer 2635 couplé à l'hydrophone.
- Un générateur de signaux HP 3314A pour la génération de la haute fréquence fixe.
- Un générateur de signaux Agilent 3250A pour la génération de la haute fréquence effectuant un balayage.
- Un PicoScope 4424 relié à un PC pour la réception des signaux (12 bits).

Le tout est placé dans la même cuve quasi-anéchoïque que précédemment.

La disposition de ces éléments est présentée sur la Figure 76 : les deux traducteurs hautes fréquences sont placés à 90°, l'hydrophone est placé à 45° des deux traducteurs HF et le tout est placé dans un plan horizontal perpendiculaire à l'écoulement du nuage de bulles.



Figure 76 : Schéma du dispositif HF-HF mis en place

### Bande passante de l'hydrophone

L'hydrophone utilisé, un B&K 8103 de sensibilité 0,103 pC/Pa (mais non étalonné récemment) présente une bande passante à  $^{+0,5}_{-3,5}$  dB entre 0,1 Hz et 100 kHz et à  $^{+2}_{-10}$  dB entre 0,1 Hz et 180 kHz.

Les traducteurs hautes fréquences sont les traducteurs utilisés lors de la mise en œuvre de la technique HF-BF.

### 3.4.2. Résultats

Un des traducteurs hautes fréquences émet ici en continu à 2,25 MHz. Pour les mêmes raisons que celles évoquées lors de la mise en œuvre de la technique HF-BF, le choix a été fait de ne pas utiliser d'amplificateurs de puissance. La tension d'alimentation de ce traducteur est donc de 10 V (la tension maximale en sortie des générateurs de fonctions).

Le deuxième traducteur hautes fréquences émet lui aussi en continu mais en mode sweep avec une variation continue de fréquence entre 1,85 kHz et 2,25 MHz et une durée de rampe de 10 secondes. Sa tension d'alimentation est aussi de 10 V. Ces deux traducteurs sont positionnés à 90° grâce à une bille de focalisation en rubis afin de faire coincider au mieux leurs taches focales.

L'hydrophone basses fréquences est quasi-omnidirectionnel et est donc placé de façon approximative à quelques centimètres du nuage de bulles.

La mise en œuvre de cette technique sur des nuages de bulles similaires à ceux générés précédemment ne nous a pas permis de détecter autant de bulles qu'avec un mixage HF-BF. La potentialité de la technique est cependant avérée au vu des résultats malgré tout encourageants.

Une des seules application de cette technique présente dans la littérature [Sut98] impliquait l'utilisation d'amplificateur de puissance. La validité de la technique sans amplificateur de puissance va ici être démontrée. Comme le montre la Figure 77, des bulles résonantes à la fréquence différence sont détectées et identifiables sur les signaux temporels et fréquentiels. Les hautes fréquences sont ici émises à 2,25 MHz et 2,19 MHz.



Figure 77 : Signal temporel et fréquentiel lors de l'apparition de la fréquence différence HF<sub>1</sub> – HF<sub>2</sub> au passage d'une bulle dans la tache focale

Le signal temporel présente des oscillations basses fréquences parasites qui proviennent des oscillations de la surface de l'eau de la cuve provoquées par les manipulations. Quelques périodes de 17  $\mu$ s environ sont toutefois nettement identifiables. Ces signaux correspondent à une fréquence de 60 kHz, qui est la différence des fréquences émises par les traducteurs HF à cet instant donné. Il est donc ici possible de conclure à la présence d'une bulle résonante de rayon 55  $\mu$ m environ.

La Figure 78 présente un spectre sur lequel apparaissent aussi les hautes fréquences. Le passage d'une bulle résonante à 235 kHz (de rayon 14  $\mu$ m environ) est incontestable.



Figure 78 : Spectre au passage d'une bulle : émission de la fréquence différence

La variation importante du niveau de bruit de fond est due à la bande passante de l'hydrophone utilisé. Les hautes fréquences restent néanmoins qualitativement identifiables.

Il est donc confirmé que la technique HF-HF sans amplificateur permet la détection et la caractérisation en taille de bulles d'air dans l'eau (déduites de leurs fréquences de résonance).

La principale différence avec la technique HF-BF réside dans le faible nombre de bulles détectées : nombre trop faible pour permettre de reconstruire un histogramme des rayons des bulles statistiquement représentatif. La Figure 79 est l'enveloppe spectrale d'environ 90 sweeps (soit une quinzaine de minutes). Seule une douzaine de pics caractéristiques de la présence de bulles sont identifiables.



Figure 79 : Enveloppe des spectres après 15 minutes de sweeps avec la technique de mixage HF-HF

Le générateur de bulles fonctionnant en circuit ouvert, il n'a donc pas été possible de générer un nuage pendant suffisamment de temps pour permettre la reconstruction d'un histogramme valide.

D'après le contrôle optique et les résultats du mixage HF-BF, les fréquences détectées sont tout à fait cohérentes avec les fréquences de résonances de bulles présentes dans le nuage. L'absence de pics au-delà de 300 kHz peut être reliée à la bande passante limitée de l'hydrophone.

### 3.4.3. Interprétation du faible nombre de bulles détectées par la technique HF-HF

Une douzaine de bulles ont été détectées en 15 minutes par mixage HF-HF alors que plus de 1000 bulles avaient été identifiées en moins d'une minute par mixage HF-BF (voir §.3.3.3.2). Deux pistes peuvent être envisagées pour expliquer cette différence :

Chapitre 3 : Construction par mixage de fréquences de l'histogramme des rayons d'un nuage de bulles

- 1- Le volume de la zone de pompage acoustique
- 2- L'amplitude des pressions acoustiques de pompage

Dans le cas de la technique HF-BF, le volume focal de pompage susceptible de faire résonner les bulles provient d'un capteur BF non focalisé. Ce volume est donc de plusieurs ordres de grandeur supérieur au volume focal de pompage de la technique HF-HF, ce dernier correspondant dans ce cas à l'intersection des taches focales acoustiques des traducteurs HF-HF. Il en découle naturellement un nombre de bulles résonantes bien plus faibles. Ainsi, même si le volume d'imagerie HF est le même dans les deux cas, cette différence de volume de pompage pourrait à elle seule expliquer le faible nombre de bulles détectées bien qu'il soit difficile de confirmer cela ici.

En ce qui concerne l'amplitude des pressions acoustiques de hautes fréquences, Leighton *et al.* [Lei91] ont montré que des pressions acoustiques de pompage de faibles amplitude (~35 Pa) suffisent pour générer des fréquences somme et différence dans le cas du mixage HF-BF. Dans le cas de la technique HF-HF, le pompage ne s'effectue pas directement à la fréquence de résonance des bulles, il est donc probable que les seuils de pression acoustique à générer soient plus importants.

Etant donnée la détection de quelques bulles, la première hypothèse (trop faible volume focal) semble être celle qui nous pénalise le plus.

[Sut98] a réussi à reconstruire des histogrammes avec cette technique. Dans ses travaux, il employait des traducteurs HF focalisés à plus grande distance et des amplificateurs de puissance. Il disposait donc à la fois d'un volume de pompage plus important et de pressions acoustiques d'amplitudes supérieures.

En s'inspirant lui aussi de [Sut98], [Bie05] a tenté de mettre en œuvre une technique de mixage de fréquences HF-HF mais sans parvenir au moindre résultat et sans y trouver d'explications. Les pressions acoustiques de pompage HF en jeu étaient pourtant élevées (~100 kPa). L'auteur confirme par cet échec la difficulté de la mise en œuvre de cette technique.

### 3.4.4. Conclusion

La faisabilité d'une mise en œuvre d'une technique de mixage non linéaire de deux hautes fréquences a été validée par la détection de bulles résonantes.

Elle n'a cependant pas permis de remonter à un histogramme des rayons de bulles en présence. La raison la plus probable pour expliquer cet échec relatif est la trop faible taille des taches focales acoustiques des traducteurs HF utilisés. Des essais complémentaires avec des traducteurs présentant une plus grande tache focale acoustique permettraient certainement d'obtenir de meilleurs résultats.

### 3.5. Reconstruction d'histogrammes grâce au mixage de fréquences : conclusions.

L'objectif était ici de remonter aux caractéristiques d'un nuage de bulles micrométriques.

La reconstruction des histogrammes des rayons des bulles a été parfaitement validée avec une technique de mixage de fréquence HF-BF en se basant sur les fréquences somme et différence émises. La concordance entre histogrammes optiques et acoustiques obtenue est excellente. Elle a pu être réalisée en utilisant un couple d'émetteur-récepteur HF centrés sur 2,25 MHz et un sweep basse fréquence entre 10 et 500 kHz émis en continu par un traducteur 250 KHz.

Ces résultats présentent deux originalités : l'absence de tout amplificateur tant à l'émission qu'à la réception d'une part et les résultats en eux-mêmes d'autre part puisqu'une telle concordance entre optique et acoustique n'avait jamais été observée pour cette gamme de tailles de bulles.

La valeur du taux de vide n'a cependant pas pu être évaluée de façon fiable. Nous tenterons de déterminer grâce à la spectroscopie de résonance présentée au chapitre 4. D'autres observations acoustiques originales ont été faites, en particulier l'observation de l'apparition de fréquences sub-sub-sommes et sub-sub-différences inédites. Leur intérêt est plus académique qu'industriel à court terme mais elles mériteraient quelques approfondissements.

La technique de mixage HF-HF sans l'utilisation d'amplificateurs n'a pas permis à ce jour de reconstruire des histogrammes des rayons des bulles. Elle n'est à nos yeux pas à écarter pour autant car elle présente tout de même des avantages sur la technique HF-BF, en particulier d'un point de vue mise en œuvre dans un SFR.

Les résultats obtenus avec les techniques de mixage de fréquence HF-BF et HF-HF ont fait l'objet d'une présentation en conférence internationale [Cav10-2] et d'une publication soumise [Cav10-3].

C'est à la question de la transposition de ces techniques au cas du sodium liquide des SFR que nous allons maintenant nous intéresser.

### 3.6. Transposition au cas industriel « sodium liquide des SFR »

La transposition des techniques de mixage non linéaire de fréquence au cas industriel dans le but de déterminer des histogrammes des rayons de bulles d'argon dans du sodium est tout à fait envisageable d'un point de vue physique mais pose bien plus de problèmes d'un point de vue technologique. Nous présentons ici les généralités dues au changement de milieu puis serons développées les conséquences sur les techniques de mixage.

### 3.6.1. Transposition des techniques acoustique non linéaires d'un point de vue physique

### 3.6.1.1. Rupture d'impédance acoustique

Ce qui rend ici efficaces les techniques acoustiques non linéaires dont font partie les techniques de mixages de fréquences, est en premier lieu la rupture d'impédance très forte entre le liquide et le gaz formant la bulle.

Pour l'air à 20°C sous 1 bar (cas expérimental), pour l'argon à 550°C sous 1 bar (ce qui représente le cas industriel le plus favorable en termes de faible impédance du gaz) et pour l'argon à 100°C sous 5 bars (ce qui représente le cas industriel le plus défavorable), nous avons respectivement :

- $\rho c_{air(20^{\circ}C-1bar)} = 413$  rayls
- $\rho c_{argon (550^{\circ}C-1bar)} = 311 \text{ rayls}$
- $\rho c_{argon (100^\circ C-5 bars)} = 2316$  rayls

Pour l'eau à 20°C, le sodium à 550°C et à 100°C l'impédance acoustique vaut :

- $\rho c_{eau} (20^{\circ}C) = 1,5.10^{6}$  rayls
- $\rho c_{sodium (550°C)} = 1,9.10^6$  rayls
- $\rho c_{sodium (100^{\circ}C)} = 2,3.10^{6}$  rayls

Malgré quelques différences, les contrastes d'impédance liquide-gaz restent du même ordre de grandeur. Ceci, du point de vue de la physique, valide la possibilité de transférer la technique développée au cas industriel du sodium liquide.

Les simulations numériques de la dynamique non linéaire d'une bulle présentées Figure 80 confirment le caractère non linéaire similaire entre une bulle d'air dans l'eau et une bulle d'argon dans le sodium.

Le modèle de Keller-Miksis a ici été simulé pour une bulle de 10  $\mu$ m de rayon et une excitation acoustique sous forme de train d'onde continu à 295 kHz dans quatre configurations :

- (a) Pour une bulle d'air dans l'eau à 20°C, 1 bar, P<sub>a</sub> = 10 kPa
- (b) Pour une bulle d'argon dans le sodium à  $450^{\circ}$ C, 1 bar, P<sub>a</sub> = 10 kPa
- (c) Pour une bulle d'argon dans le sodium à  $450^{\circ}$ C, 5 bar, P<sub>a</sub> = 10 kPa

Pour une bulle d'argon dans le sodium à  $450^{\circ}$ C, 5 bar, P<sub>a</sub> = 50 kPa

Les cinquante premières millisecondes de la réponse de la bulle sont représentées.



Figure 80 : Simulations numériques du modèle de Keller-Miksis appliqué à une bulle de 10 μm de rayon excitée à 295 kHz. (a) : bulle d'air dans l'eau, T=20°C, P=1 bar, P<sub>a</sub>=10 kPa ; (b) : bulle d'argon dans le sodium, T=450°C, P=1 bar, P<sub>a</sub>=10k Pa ; (c) : bulle d'argon dans le sodium, T=450°C, P=5 bar, P<sub>a</sub>=10 kPa ; (d) : bulle d'argon dans le sodium, T=450°C, P=5 bar, P<sub>a</sub>=50 kPa

A 1 bar et pression acoustique équivalente, la forme de la réponse d'une bulle d'air dans l'eau à 20°C (a) est la même que celle d'une bulle d'argon dans le sodium à 450°C (b). En revanche, l'amplitude de la réponse est plus forte dans le second cas.

Pour une pression statique de 5 bars, le caractère non linéaire du comportement de la bulle est moins prononcé mais toujours présent. A 10 kPa (c), l'amplitude d'oscillation est bien plus faible que pour le cas simulé à 1 bar. A 50 kPa (d), la réponse est la même qu'à 10 kPa, seule l'amplitude augmente, sans toutefois atteindre les niveaux du cas (b).

Chapitre 3 : Construction par mixage de fréquences de l'histogramme des rayons d'un nuage de bulles

#### 3.6.1.2. Fréquences de résonance

La principale différence vient en fait des fréquences de résonance des bulles en présence. L'application du modèle de Minnaert donne les produits fréquence-rayon suivants :

pour le système air-eau à 20°C sous 1 bar :

• pour le système sodium-argon à 550°C sous 1 bar (surface du collecteur froid) :

• pour le système sodium-argon à 450°C sous 5 bars (entrée du cœur) :

Cela aura une influence sur la correspondance entre fréquences somme (ou différences) détectées et rayons des bulles bien sûr mais aussi et surtout sur les plages fréquentielles à balayer avec les fréquences de pompage. Ces plages varieront par ailleurs selon le lieu de mesure dans le réacteur, le principal paramètre influant étant ici la pression ambiante.

Ainsi, un balayage des fréquences de résonance des bulles dont le rayon est compris entre 10 et 100  $\mu$ m devra être effectué entre 79,9 kHz et 799 kHz à l'entrée du cœur et entre 32,8 kHz et 328 kHz au niveau du collecteur froid. Ce facteur sera important à prendre en compte car les émissions de basses fréquences peuvent être techniquement problématiques. De ce point de vue, une augmentation de la fréquence de résonance pour une taille de bulle donnée est favorable d'un point de vue technologique.

Le modèle de Minnaert, qui ne prend pas en compte la tension superficielle des bulles et la viscosité dans le liquide reste valide à la condition suivante :

$$R_0 \gg \frac{2\sigma}{P_0} \tag{3.5}$$

Le calcul des rayons limites tels que  $R_l = \frac{2\sigma}{P_0}$  dans différentes configurations est présenté dans le Tableau 6.

	Eau	Eau	Sodium	Sodium	Sodium
Température	20°C	20°C	100°C	450°C	550°C
Pression [bars]	1	5	1	5	1
Tension superficielle [N.m <sup>-1</sup> ]	0,073	0,073	0,1967	0,1617	0,1517
Rayon limite [µm]	1,46	0,29	3,93	0,65	3,03
Limite de validité [µm]	10 [Bou07]	2	27	4	21

Tableau 6 : Validité du modèle de Minnaert : calcul des rayons lim	iites
--	-------

Pour le cas de l'eau à 20°C, 1 bar, le rayon limite est de 1,46 µm. Il est généralement considéré que le modèle de Minnaert dans ce cas est valide pour des bulles dont le rayon est supérieur à une dizaine de micromètres [Bou07]. Cela donne un ordre de grandeur de la limite de validité du modèle de Minnaert dans les autres cas. Pour le sodium à 5 bars, cette limite se situe au alentour de quelques micromètres. En revanche, pour le cas du sodium à un bar, cette limite est bien plus haute : autour de la vingtaine voire la trentaine de micromètres. La présence de bulles de rayons

Chapitre 3 : Construction par mixage de fréquences de l'histogramme des rayons d'un nuage de bulles

inférieurs impliquera donc l'utilisation des modèles linéaires de résonances prenant en compte la tension superficielle (par exemple le modèle issue de la linéarisation du modèle de RPNNP).

### 3.6.1.3. Paramètre de non linéarité

Le paramètre de non linéarité acoustique classique B/A intrinsèque au fluide implique parfois des conséquences à prendre en compte pour la mise en œuvre de techniques acoustiques non linéaries. La génération d'harmoniques issues de la non linéarité d'un liquide dépend de plusieurs paramètres : le rapport B/A bien sûr, la pression acoustique, la fréquence d'excitation, la distance de propagation et la forme de l'onde acoustique pour les principaux. L'augmentation de la pression acoustique, de la fréquence et de la distance de propagation conduit à l'augmentation de la génération d'harmoniques.

Ainsi, dans l'eau à 20°C et à la pression atmosphérique, *B/A* vaut 5 [Bey60]. A titre d'exemple, à 2,25 MHz, la pression acoustique à atteindre pour générer des harmoniques à 8 cm est de l'ordre de plusieurs centaines de kPa.

Le paramètre *B/A* du sodium est plus faible que celui de l'eau : 2,7 [Cop67]. Vues nos fréquences de travail, les pressions acoustiques en jeu et cette valeur, dans la plupart des situations, la non linéarité acoustique du sodium sera négligeable.

### 3.6.1.4. Seuil de Blake

Le franchissement du seuil de Blake peut s'avérer problématique puisqu'il conduit à l'expansion explosive des bulles. Ceci pourrait avoir pour conséquence de générer un bruit de fond acoustique similaire au bruit généré lors des premières phases de l'ébullition et induire en erreur les systèmes de détection acoustique de l'ébullition dans le cœur.

Le Tableau 7 présente les seuils de Blake pour des bulles de 1, 10 et 100  $\mu$ m de rayon, dans différentes situations, pour l'eau et le sodium.

	Eau	Eau	Sodium	Sodium	Sodium
Pression [bar]	1	5	1	5	1
Température [°C]	20	20	100	450	550
Pression de vapeur saturante [bar]	0,0233	0,0233	1,4304E-10	0,0017066	0,013778
Pression de Blake pour $r = 1 \ \mu m$ [kPa]	140,8	524,4	235,2	577,8	200,1
Pression de Blake pour $r = 10 \ \mu m$ [kPa]	99,7	498,6	108,0	502,9	104,3
Pression de Blake pour <i>r = 100 μm</i> [kPa]	97,7	497,7	100,3	499,9	98,8

#### Tableau 7 : Seuils de Blake dans l'eau et le sodium pour différentes tailles de bulles

Pour les cas présentés, les seuils de Blake sont élevés : supérieurs à  $\sim$  100 kPa. Il n'est à ce jour pas envisagé de générer de telles pressions acoustiques dans le sodium. Le seuil de Blake n'a donc aucune raison d'être franchi.

### **3.6.1.5. Modes de distorsion surfacique des bulles**

Il a été montré que les fréquences des modes de résonance d'une bulle supérieurs au mode zéro sont très supérieures à la fréquence de ce dernier. Très supérieur ne veux cependant pas dire impossible à atteindre. Ainsi, pour une fréquence de 2,25 MHz, les rayons de résonance suivants sont obtenus (si le problème est ici traité pour le cas air-eau, il est similaire pour le cas argon-sodium) :

Multipôle	nl	1	2	3	4	5	6
Monopôle	0	1,456	106,374	182,880	258,131	332,993	407,668
Dipôle	1	49,329	140,628	217,930	293,651	368,807	443,691
Quadripôle	2	79,050	172,579	251,263	327,780	403,459	478,709
Hexapôle	3	106,929	203,211	283,434	360,882	437,200	512,911
	4	133,750	232,670	314,757	393,200	470,198	546,443
	5	160,006	262,077	345,410	424,868	502,599	579,389
	6	185,885	290,710	375,539	456,013	534,498	611,852

Tableau 8 : Rayons de résonance [μm] pour *f* = 2,25 MHz de la fondamentale (l=1) et des harmoniques (l=2, 3...) des premières résonances multipôles (n=0...6) d'une bulle d'air dans l'eau d'après les fréquences réduites données par [Sag79]

Si 2,25 MHz correspond au mode 0 d'une bulle de 1,46  $\mu$ m environ, cette fréquence correspond aussi aux modes supérieurs de bulles dont le rayon reste dans la gamme de la centaine de micromètres. Or l'engazement du sodium liquide présente un étalement des rayons qui pourrait voir apparaître ces correspondances multiples.

Ce problème n'en est probablement pas un car l'absence de variation volumique pour les modes multipôles (n>0) rend ces derniers en général négligeables du point de vue énergétique.

En revanche, on peut se demander, dans le cas de l'exemple traité, si la présence d'une bulle de 79  $\mu$ m n'aurait pas un certain impact sur une technique de mixage de fréquence HF-BF. En effet, sans être des ondes de surface, les modes multipôles > 1 entrainent une déformation de la surface de la bulle (le mode 1 correspond lui à une simple translation de la bulle). Pourrait-on alors envisager une interaction paramétrique entre la haute fréquence (qui deviendrait ainsi fréquence de pompage) et la basse fréquence (qui deviendrait fréquence d'imagerie) grâce à ces « pseudos ondes de surface » ? Il est probable que non mais nous n'avons jamais rencontré dans la littérature des travaux se rapportant à cette question.

Que se passe t-il dans le cas où la BF correspondrait au mode 0 d'une bulle (43 kHz pour reprendre l'exemple de la bulle de 79  $\mu$ m) et la HF (2,25 MHz) au mode 2 de la même bulle ?

Ces questions ne sont peut-être que des vues de l'esprit mais elles mériteraient d'être approfondies.

### 3.6.1.6. Transposition aux conditions physiques rencontrées au sein d'un réacteur

Une différence majeure entre les expérimentations de laboratoire en eau et le cas industriel concerne le comportement hydrodynamique du milieu : statique dans le premier cas (avec un écoulement de faible vitesse du nuage de bulles), s'écoulant à grande vitesse et fort degré de turbulence dans le second.

La vitesse d'écoulement n'est pas un problème en soi (si les éventuels décalages Doppler sont pris en compte) à une seule condition : que la bulle ait le temps d'être mise en résonance par la fréquence de pompage. Il faut typiquement quelques dizaines de cycles pour faire résonner une bulle.

Ainsi, il sera facile d'évaluer la faisabilité de la technique vis-à-vis de cette question selon :

- La vitesse d'écoulement au point de mesure considéré (les vitesses étant très différentes en divers points d'un réacteur)
- La fréquence de pompage
- La taille de la zone focale de pompage

A ce stade de conception d'ASTRID et de la filière SFR en général, il est difficile de répondre à la question « Où implanter la mesure de caractérisation de l'engazement du sodium primaire ? », il est donc tout aussi difficile de conclure quant à la faisabilité vis-à-vis de la vitesse d'écoulement.

De plus, le nombre exact de cycles minimum nécessaires pour faire entrer en résonance une bulle ainsi que la taille effective de la zone de pompage sont des paramètres difficiles à évaluer *a priori* et qui nécessiteront peut être des essais en eau avec vitesses d'écoulements similaires au cas réacteur et les éventuels traducteurs industriels.

Autre problématique liée : la turbulence. Cette dernière peut en effet influer sur les résultats ici aussi *via* l'effet Doppler [Lei96]. Mais toujours d'après [Lei96], ces effets peuvent être pris en compte afin de corriger les résultats obtenus. De plus, dans une zone où l'écoulement est globalement unidirectionnel, un positionnement des capteurs perpendiculairement à l'écoulement semble limiter voire annuler l'effet Doppler.

Pourquoi même ne pas imaginer exploiter les éventuels effets Doppler liés à la vitesse et/ou à la turbulence pour remonter à des caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement du sodium engazé ?

Enfin, les expérimentations menées jusqu'ici ne concernent qu'un nuage de bulles s'écoulant entre les différents traducteurs situés à l'extérieur du nuage. Le cas industriel impose de travailler à l'intérieur du nuage de bulle. Ceci posera d'autres problèmes, en particulier en termes d'atténuation des ondes (tant émises que reçues) et de présence potentielle de bulles à la surface des capteurs. Des expérimentations complémentaires en eau avec un système de génération de bulles adapté (du type de celui de [Arz81]) permettraient de proposer des critères de validité de la technique vis-à-vis des ces problèmes.

A noter qu'il est observé un mouillage parfait des aciers inoxydables au delà d'un certain seuil de température [Pau08]. Dans ces conditions, il est probable que les microbulles provenant de l'engazement ne viennent pas se fixer sur la face avant des traducteurs (ce qui semblait être le cas pour les traducteurs TUSHT implantés au sein du sodium liquide primaire du réacteur Phénix).

Plus que l'aspect physique, c'est l'aspect technologique qui semble aujourd'hui être le frein majeur au transfert de ces techniques au système sodium liquide-argon. En effet, le type de traducteurs acoustiques utilisables au sein du sodium liquide à haute température est très limité. En ne considérant dans un premier temps que les capteurs utilisés et validés, il n'existe à ce jour que le TUSHT (Traducteur Ultra Sonore Haute Température) développé par le CEA. Le CEA et AREVA travaillent actuellement à la mise au point de nouveaux capteurs présentant des propriétés complémentaires au TUSHT.

### 3.6.2. La technologie disponible à ce jour : le TUSHT

Le TUSHT est un traducteur ultrasonore adapté aux conditions propres aux SFR : hautes températures (température nominale type : 550°C), contact avec le sodium liquide, contraintes thermiques, irradiations.

Il comporte un élément piézoélectrique en niobate de lithium LiNbO<sub>3</sub> brasé sur une lame de phase en acier inoxydable austénitique (nuance 304L).

Ce capteur est très faiblement amorti et présente différentes déclinaisons. Sa version la plus courante est la 4540, présentant une pastille de 40 mm de diamètre et 5 pics principaux de résonance à 0,69 MHz, 1,52 MHz, 2,25 MHz, 2,96 MHz et 4,5MHz [Lhu79]. Les figures qui suivent concernent cette déclinaison du TUSHT.

Il possède deux plages d'utilisation : le domaine actif aux fréquences élevées (1 à 10 MHz) et le domaine passif à des fréquences plus basses. [Lhu79] parle de plusieurs centaines de kHz. Le bon fonctionnement en mode passif nécessite cependant des amplificateurs de charges dédiés « AMPTUSHT » [Arg80] dont le CEA ne dispose plus à ce jour.

[Lhu84] présente toutefois les résultats d'étalonnage de TUSHT en réception dans la gamme 10-200 kHz (voir Figure 81 issue de [Lhu84-2] pour la gamme 10-100 kHz). Les sensibilités mesurées y sont de l'ordre de 10<sup>-2</sup> à 10<sup>-3</sup> pC.Pa<sup>-1</sup> ce qui est le même ordre de grandeur que l'hydrophone classiquement utilisé dans cette gamme de fréquence : le Bruel & Kjaer 8103. [Arg80] évoque par ailleurs la possibilité d'autres versions de l'amplificateur de charges utilisé (AMPTUSHT) qui pourraient porter la sensibilité globale du système à 50 V.pC<sup>-1</sup> dans la gamme quelques Hz à 100 kHz sans toutefois préciser avec quels niveaux de bruits.



Figure 81 : Sensibilité BF d'un TUSHT en charge en sodium à 545°C [Lhu84-2]

*Mq* est ici défini par la charge électrique que divise la pression acoustique.

Le TUSHT a été utilisé avec succès au sein des réacteurs nucléaires refroidis par du sodium Rapsodie et Phénix, principalement en mode actif à haute fréquence. Les Figure 82 et Figure 83 présentent les efficacités (en émission) et sensibilités (en réception) en tension d'un TUSHT à hautes fréquences avec Se = pression acoustique/tension électrique et Me = tensionélectrique/pression acoustique.



Figure 82 : Efficacité HF en tension d'un TUSHT à 1 m en eau à 20°C [Lhu84-2]



Figure 83 : Sensibilité HF en tension d'un TUSHT à 1 m en eau à 20°C [Lhu84-2]

L'utilisation d'un TUSHT en récepteur d'imagerie nécessiterait de vérifier la bande passante du traducteur autour de la résonance choisie (par exemple 4,5 MHz) afin d'être certain d'être en mesure de détecter les fréquences somme et différence émises par les bulles.

En plus de ses versions standards, d'autres types de TUSHT ont été développés dont des TUSHT focalisés [Lhu79]. Ces capteurs sont néanmoins restés à l'état de prototypes dont quelques-uns subsistent toujours.

Un capteur similaire avait été développé et utilisé par UKAEA (United Kingdom Atomic Energy Authority). Basé sur une technologie PZT, sa température maximale de fonctionnement ne dépasse cependant pas 200-250°C. Il serait intéressant le caractériser à basses fréquences afin de vérifier qu'il n'est pas plus avantageux dans cette gamme de fréquence (en émission et/ou en réception).

### 3.6.2.1. Transposition de la technique HF-BF avec le TUSHT

Outre les aspects physiques évoqués au §.3.6.1, l'application d'une technique HF-BF en réacteur repose essentiellement sur la problématique des capteurs. Des TUSHT (standards ou prototypes focalisés ou non) sont envisageables pour les hautes fréquences d'imagerie en émission et réception. Ce type de traducteur présente par ailleurs, dans la gamme du MHz, un faisceau acoustique étroit (prévu par la formule du piston plan) [Lhu79], ce qui est positif pour la mise en œuvre d'une technique de mixage de fréquences.

La question de la génération de la basse fréquence de pompage est plus problématique. Les TUSHT ont cependant été étalonnés en émission et réception pour des basses fréquences descendant jusqu'à 10 kHz [Lhu79-2 – Lhu82 – Lhu84 – Lhu84-2]. En réception à basse fréquence, le TUSHT couplé à un amplificateur de charge approprié présente de bons résultats. En dessous le 10 kHz, le rapport signal à bruit permis par l'électronique ne l'époque n'était pas suffisant. Il est raisonnable de penser qu'il serait possible aujourd'hui de descendre en dessous de cette fréquence.

La Figure 84 présente les efficacités en tension et en courant d'un TUSHT à basse fréquence en sodium à 550°C.



Figure 84 : Efficacité BF en tension en sodium à 545°C [Lhu82]

Le TUSHT est capable, dans une large plage de basses fréquences, de générer des pressions acoustiques de l'ordre de la dizaine à plusieurs dizaines de pascals pour 100 V. Cela semble peu mais pourrait suffire pour générer des fréquences mixées au vue des ordres de grandeur présentés au §.2.2.2. La faible marge disponible rend ici nécessaire la validation expérimentale de la technique avec des TUSHT.

De plus, l'utilisation d'un TUSHT en récepteur basses fréquences nécessitera très probablement l'utilisation d'un amplificateur de charge spécifique, développé par le passé [Arg80] mais indisponible à ce jour.

Il est enfin à noter que les TUSHT sont généralement utilisés en mode impulsionnel. Leur utilisation en mode continu ou quasi-continu pourrait se révéler difficile.

Les TUSHT présentent donc une potentialité certaine mais des tests en eau sont nécessaires avant toute poursuite de l'étude du transfert de cette technique au cas industriel.

Une autre solution envisageable pour la génération de la basse fréquence consisterait à utiliser des capteurs basses fréquences conventionnel couplés à des guides d'ondes. Ce sont ces guides d'ondes qui seraient immergés dans le sodium liquide.

### 3.6.2.2. Transposition de la technique HF-HF avec le TUSHT

L'application d'une technique HF-HF en réacteur semble difficile tant qu'elle n'aura pas donné de meilleurs résultats en eau.

Cette étape franchie, comme pour la technique HF-BF, il est envisageable d'utiliser des TUSHT (focalisés ou non) pour les hautes fréquences de pompages.

La problématique de la réception des fréquences différence est liée à la disponibilité d'un amplificateur de charges adéquate. L'AMPTUSHT serait peut être approprié mais il est difficile de conclure à court terme puisque ne disposant pas de cet éléments. Il n'est toutefois pas impossible qu'un TUSHT sans amplificateur de charges ou bien couplé à un amplificateur de charges standard puisse convenir.

Des capteurs récepteurs basses fréquences à base de tourmaline sont actuellement en phase de test au CEA. Ils pourraient être de bons candidats à la réception des fréquences différence. Si tel était le cas, des essais en eau directement avec les TUSHT pour les HF et ces capteurs pour la BF

pourraient, à relativement court terme, permettre de valider à la fois la technique et la possibilité de transfert technologique au cas du sodium liquide.

Il est à noter que d'autres traducteurs acoustiques compatibles avec le sodium liquide sont actuellement en cours de développement. Intercontrôle (AREVA) s'intéresse à la technologie piézoélectrique tandis que la DRT (CEA Saclay) concentre ses recherches sur la technologie EMAT. L'état actuel des développements ne permet pas de conclure quant à leur utilisation pour notre application.

### **3.7. Conclusion**

La détermination d'un histogramme des rayons des microbulles au sein du sodium liquide primaire d'un SFR semble physiquement réalisable grâce à une technique de mixage non linéaire de fréquence à condition de respecter certains critères vis-à-vis de la vitesse d'écoulement.

Le principal problème à ce jour reste les traducteurs acoustiques utilisables en sodium liquide. Une étude expérimentale de la potentialité des capteurs existants permettrait néanmoins de conclure quant à la nécessité éventuelle de développer de nouveaux types de capteurs utilisables au sein d'un bain de sodium liquide à haute température. Chapitre 3 : Construction par mixage de fréquences de l'histogramme des rayons d'un nuage de bulles

# Chapitre 4. Caractérisation du taux de vide par spectroscopie acoustique de résonance

Bien que les techniques de mixages non linéaires présentées au chapitre précédent nous aient permis de reconstruire des histogrammes des rayons des bulles, l'existence de plusieurs inconnues expérimentales, principalement la connaissance du volume réel de sondage acoustique, nous a empêchés d'évaluer de façon fiable les valeurs de taux de vide des nuages de bulles caractérisés.

La spectroscopie de résonance présentée au §.2.2.3 va ici être mise en œuvre avec pour objectif de remonter aux caractéristiques non linéaires du nuage de bulles et en premier lieu à son taux de vide.

La spectroscopie de résonance non linéaire implique la présence observable d'une fréquence de résonance du système à caractériser. Un nuage de bulles considéré dans sa globalité présente une fréquence de résonance fondamentale à la seule condition d'être contenu dans un milieu monophasique. La rupture d'impédance à l'interface milieu monophasique / milieu diphasique borne alors spatialement le nuage de bulles et constitue une frontière acoustique. Le cas industriel ne permet pas cette approche car le milieu est entièrement diphasique. La voie des résonateurs acoustiques a été explorée. L'idée est ici de réaliser une spectroscopie de résonance non linéaire non pas directement sur le nuage de bulles mais sur un résonateur contenant le nuage de bulles ou une partie de ce dernier.

Deux résonateurs acoustiques ont été expérimentés : un résonateur entre plaques et un résonateur de Helmholtz. Les résultats de la mise en œuvre de la technique de spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles avec chacun de ces deux résonateurs sont ici présentés. L'originalité de ces travaux réside dans le fait d'utiliser une basse fréquence, relativement aux fréquences de résonances des bulles constituant le nuage en exploitant des résonateurs acoustiques.

Compte tenu d'une part des fréquences acoustiques utilisées (de l'ordre de la centaine de Hertz pour le résonateur de Helmholtz et de la dizaine de kHz pour le résonateur entre plaques) et d'autre part du fait que nous nous intéressons à la fréquence fondamentale des résonateurs, la spectroscopie de résonance non linéaire mise en œuvre est de type SIMONRAS (SIngle MOde Nonlinear Acoustic Spectroscopy, voir §.2.2.3.2).

# 4.1. Spectroscopie de résonance non linéaire avec un résonateur plaques

Le premier des résonateurs expérimentés consiste en deux plaques considérées comme semiinfinies et placées perpendiculairement au faisceau acoustique (voir Figure 87).

### 4.1.1. Présentation du résonateur plaques

Un résonateur similaire a été expérimenté par [Bre89] (voir Figure 85) dans le but de caractériser une population de bulles selon un principe linéaire : l'amplitude et l'amortissement des pics de résonances des différents modes du résonateur correspondant à la fréquence de résonance de bulles présentes, devait permettre de remonter à la densité et à l'histogramme des bulles. Un des disques constituant le résonateur est ici en même temps traducteur acoustique capacitif.

Cette technique ne permet toutefois de ne remonter qu'à quelques points, correspondant aux fréquences des différents modes du résonateur, de l'histogramme des rayons de bulles et présente l'inconvénient majeur, reconnu par les auteurs, de ne pas lever, comme toutes les techniques linéaires, l'ambiguïté entre bulles résonantes et larges bulles.



Figure 85 : Le résonateur constitué de deux disques de [Bre89]

S'inspirant de [Bre89], Farmer *et al.* ont eux aussi mis en œuvre un résonateur entre deux disques [Far98 – Far05]. Ici, les plaques sont à la fois émettrices et réceptrices grâce à deux disques piézoélectriques de type PVDF (polyfluorure de vinylidène). La méthode acoustique est ensuite la même que [Bre89] et présente donc les mêmes limitations.



Figure 86 : Le résonateur amélioré de [Far98 - Far05]

Dans notre cas, l'émetteur et le récepteur acoustique sont situés de part et d'autre des plaques et nous nous intéresserons à un comportement non linéaire du résonateur constitué par le milieu inter-plaques.

L'idée est d'appliquer un balayage fréquentiel afin d'observer la résonance non linéaire de la lame diphasique située entre les plaques, et ce à différentes amplitudes, afin d'observer le décalage fréquentiel de la résonance caractéristique des milieux non linéaires.

Le schéma de notre dispositif est présenté sur la Figure 87.



Figure 87 : Schéma du dispositif de spectroscopie de résonance non linéaire

Pour obtenir la résonance du nuage de bulles, nous utilisons deux plaques d'aluminium de 30 cm par 40 cm, d'épaisseur 3 mm, espacées de 5 cm. Le nuage de bulles est généré entre ces deux plaques et les dispositifs d'émission et de réception sont disposés de part et d'autre des plaques, perpendiculairement à ces dernières (voir Figure 88).



Figure 88 : Vue rapprochée du résonateur et de l'émission-réception acoustique

### 4.1.2. Résultats obtenus avec le résonateur plaques

Plusieurs campagnes expérimentales ont été menées avec le résonateur plaques. Différents matériels et différentes configurations ont été testés avant de parvenir à des prémices de résultats.

La première configuration concluante fut celle décrite et présentée Figure 87 et Figure 88 : un résonateur constitué de 2 plaques d'aluminium espacées de 5 cm.

La démarche expérimentale consiste à générer un sweep, c'est-à-dire un train d'onde modulé en fréquence afin d'observer des résonances liées à la lame de fluide diphasique générée entre les plaques du résonateur. Dès qu'une ou plusieurs résonances sont identifiées, un décalage de la fréquence de résonance est recherché en faisant varier l'amplitude de la pression acoustique d'excitation.

### 4.1.2.1. Calcul de la fréquence de résonance théorique

L'épaisseur *e* de la lame d'eau (célérité  $c = 1480 \text{ m.s}^{-1}$ ) vaut 5 cm. Sa fréquence de résonance *f* est telle que :

$$e = \frac{\lambda}{2} \operatorname{avec} \lambda = \frac{c}{f}$$
(4.1)

*f* vaut donc :

$$f=14,80 \ kHz$$

14,8 kHz est ici la fréquence de résonance de la lame monophasique. Or d'après le modèle de Wood présenté au §.1.2.2.1, la célérité d'une lame d'eau diphasique est plus basse que dans le cas monophasique. La fréquence de résonance de la lame diphasique recherchée sera donc inférieure à cette valeur de 14,8 kHz.

Il est aisé de vérifier ici le critère de validité du modèle de Wood, à savoir de travailler très en dessous de la fréquence de résonance des plus grosses bulles présentes dans le nuage de bulles. En effet, l'histogramme le plus défavorable présenté Figure 73 ne contient que très peu de bulles de rayon supérieur à 30 µm dont la fréquence de résonance vaut environ 110 kHz.

L'application du modèle de Wood pour un taux de vide donné permet donc de calculer les fréquences de résonance de la lame diphasique.

### Tableau 9 : Fréquences de résonance d'une lame diphasique d'eau de 5 cm d'épaisseur en fonction du taux de vide, d'après le modèle de Wood

Taux de vide	1E-08	1E-07	1E-06	1E-05	1E-04	1E-03	1E-02
Célérité de Wood (m.s <sup>-1</sup> )	1479,84	1478,40	1464,26	1342,02	832,32	311,33	100,92
Fréquence de résonance (kHz)	14,80	14,78	14,64	13,42	8,32	3,11	1,01

Cette application montre que la sensibilité de la technique ne permettra pas la caractérisation des taux de vide très faibles.

Le traducteur acoustique émetteur utilisé ayant une fréquence centrale de 100 kHz et une bande passante relativement étroite, nous avons choisi de travailler à des fréquences proches de cette valeur afin d'obtenir des pressions acoustiques générées plus élevées et d'améliorer la sensibilité de la technique. Nous avons recherché un multiple du sweep 14 kHz - 15 kHz, tout en restant en dessous de 100 kHz afin de ne pas trop nous rapprocher des fréquences de résonance des bulles présentes. Nous ne sommes, en revanche, plus situés « très en dessous » des fréquences de résonance des bulles les plus basses.

Ainsi, par la suite, le sweep est généré de 84 kHz à 90 kHz (multiple 6).

### 4.1.2.2. Conditions expérimentales

- Les signaux sont issus d'une carte PCI ARB 1410.
- L'amplification de ces signaux est assurée par un amplificateur de puissance Bruel & Kjaer 2713 (puissance maximale ~100 W).
- L'émission est ici assurée par un traducteur Panametrics V.1011 (diamètre 1,5 pouce) de fréquence centrale 100 kHz.
- La réception est assurée par un hydrophone basses fréquences Bruel & Kjaer 8103 (sensibilité 0,103 pC/Pa).
- L'hydrophone est couplé à un amplificateur de charge Bruel & Kjaer 2713.
- La réception se fait sur un oscilloscope Lecroy Wavesurfer 424 par ailleurs synchronisé au générateur de signaux.
- L'ensemble émetteur-résonateur-récepteur est disposé dans une cuve en plexiglas d'environ 1 m<sup>3</sup> remplie d'eau.

### <u>Génération du sweep :</u>

Le sweep est généré de 84 kHz à 90 kHz durant 950 ms. Le signal est amplifié à l'émission au maximum admissible par l'amplificateur Bruel & Kjaer 2713, soit environ 68 dB lorsque la carte PC génère un signal à 2 V max.

### **Disposition des capteurs :**

Le traducteur d'émission est placé à une dizaine de centimètres du résonateur et l'hydrophone est placé en vis-à-vis à environ 5 cm. Ces distances sont approximatives et modifiables en cours d'expérience pour les raisons que nous verrons plus loin.

### 4.1.2.3. Vérification de la linéarité sans bulles

L'expérimentation a été menée dans un premier temps à différentes amplitudes de pression acoustique sans nuage de bulles en sein du résonateur afin de vérifier la linéarité de notre dispositif électronique ainsi que la linéarité acoustique (de l'eau en particulier) du dispositif global aux pressions acoustiques en jeu.

Dix signaux d'amplitudes différentes (tension de sortie de la carte de génération comprise entre 0,2 V et 2 V avec un pas de 0,2 V) ont donc été générés, amplifiés et émis. Les résultats sont présentés Figure 89.



Figure 89 : Spectroscopie de résonance sans bulles

La première observation importante est la présence de nombreuses interférences. Ceci est dû au fait qu'un sweep généré pendant 950 ms parcourt une distance dans l'eau d'environ 1406 mètres soit autant de trajets dans notre cuve de 1 mètre si abstraction est faite de l'atténuation dans l'eau et qu'une réflexion totale est considérée aux parois. Un régime pseudo-établi s'installe donc avec pour conséquence cette présence d'interférences dépendant de la géométrie de l'ensemble cuve – résonateur mais aussi de la hauteur d'eau dans la cuve et de la position des différents éléments immergés.

Les éventuels pics dus à la présence dans la cuve de résonances aux fréquences du sweep ne sont donc pas identifiables ici. Le signal temporel présenté sur la Figure 90 présente de la même façon ces nombreuses interférences.



Figure 90 : Signal temporel en l'absence de bulles

Ces résultats permettent néanmoins de confirmer la linéarité de l'ensemble de la chaîne de mesure et du milieu de propagation en l'absence de bulles : les pics fréquentiels observés, quelle que soit leur origine, ne présentent en effet aucun décalage fréquentiel lorsque la pression acoustique d'excitation varie. Afin d'être certains de l'absence de résonances non linéaires dans un des « trous fréquentiels » dus aux interférences, l'opération a été répétée à plusieurs reprises en modifiant la géométrie du système et par voie de conséquence, la position de ces « trous fréquentiels ».

La linéarité de notre dispositif sans bulles étant vérifiée, les mêmes mesures ont été faites après avoir généré un nuage de bulles entre les plaques du résonateur.

### 4.1.2.4. Résultats en présence de bulles

Un faible débit en sortie de l'aéroflottateur est choisi afin de générer de faibles taux de vide. Lors de la génération du nuage de bulles, la pression dans le réacteur de l'aéroflottateur est maintenue constante par la pompe à environ 7 bars.

Pour chacun des six niveaux d'amplitudes de pression acoustique, vingt sweeps sont générés afin d'être en mesure d'effectuer une moyenne des résultats. Cette moyenne est nécessaire car un nuage de bulles est un milieu fluctuant qui induit une grande variabilité des valeurs mesurées.

Une transformée de Fourier est ensuite effectuée en post-traitement afin de pouvoir mener une analyse fréquentielle. La moyenne est déterminée à partir des transformées de Fourier obtenues.

Afin de s'affranchir des effets d'une éventuelle variation du taux de vide au cours du temps, variation qui entrainerait un décalage de la fréquence de résonance de la lame d'eau diphasique, les tirs ont été effectués en deux temps dans le but de vérifier la réversibilité des décalages éventuellement présents :

- 1 Amplitude croissantes : 0,2 V ; 0,6 V ; 1 V ; 1,4 V ; 1,8 V ; 2 V
- 2 Amplitudes décroissantes : 2 V ; 1,6 V ; 1,2 V ; 0,8 V ; 0,4 V ; 0,2 V

Les résultats sont présentés sur deux figures distinctes (Figure 91 et Figure 92) pour plus de lisibilité. Les pics linéaires ne sont pas tout à fait de la même forme entre les deux séries, une moyenne sur 20 tirs ne semble donc pas suffisante.



Figure 91 : Spectroscopie de résonance avec bulles (amplitudes générées de façon croissante)



Figure 92 : Spectroscopie de résonance avec bulles (amplitudes générées de façon décroissante)

Un léger décalage fréquentiel (d'environ 85 Hz entre la plus haute et la plus basse amplitude) sur deux pics aux alentours de 86 kHz est observable dans les deux configurations. Cette variation de 0,1% reste faible.

Le fait de n'observer aucun décalage sur les autres pics laisse supposer que c'est bien un décalage propre à une résonance sur le trajet des ondes qui est observé. Or la seule modification apportée par rapport à la configuration précédente est l'injection de bulles entre les plaques du résonateur. Il est donc raisonnable de supposer que le décalage de fréquence observé provient bien d'une résonance liée au nuage de bulles.

86 kHz correspondrait à une fréquence de résonance de la lame diphasique de 14,3 kHz environ (= 86/6). D'après le modèle de Wood, cette variation de la fréquence de résonance est observable pour un taux de vide de 3.10<sup>-6</sup> environ (en considérant la valeur sans bulles de 14,8 kHz comme parfaitement fiable, ce qui n'est pas le cas en réalité).

Indépendamment du décalage fréquentiel, une approche linéaire nous permet donc ici d'évaluer le taux de vide. Cette évaluation n'est cependant possible que grâce à l'identification de la résonance de la lame diphasique, identification qui n'est possible ici que grâce à l'observation des décalages fréquentiels non linéaires.

Au vu des faibles variations fréquentielles observées, nous avons cherché à vérifier que la température n'était pas un facteur prédominant ici. La température constitue un paramètre influant sur la valeur de la célérité acoustique. Nous avons ici cherché à quantifier son influence sur d'éventuels décalages fréquentiels. Des mesures régulières de la température de l'eau ont donc été effectuées au cours de journées d'expérimentations qui présentaient des amplitudes thermiques extérieures fortes : supérieures à 15°C. Les variations de température mesurées restent faibles avec un maximum de 0,1°C/h.

L'équation de Marczak [Mar97] nous donne la valeur de la célérité dans l'eau en fonction de la température pour des températures comprises entre 0 et 95°C et à la pression atmosphérique (voir Figure 93) :

$$c = 1402,385 + 5,038813.T - 5,799136.10^{-2}.T^2 + 3,287156.10^{-4}.T^3 - 1,398845.10^{-6}.T^4 + 2,787860.10^{-9}.T^5$$
(4.2)



Avec la célérité c en m.s<sup>-1</sup> et la température T en degrés Celsius.

Figure 93 : L'équation de Marczak : la célérité dans l'eau en fonction de la température de 0°C à 100°C (et zoom entre 24°C et 30°C)

Dans la plage 24-30°C, qui correspond à la plage des températures mesurées dans la salle d'expérimentations, une variation quasi-linaire de la température est observée. Un écart de 0,1°C correspond dans cette plage à une variation de célérité d'environ 0,26 m.s<sup>-1</sup>.

Pour une distance de 5 cm, qui est l'écart entre les plaques du résonateur, une variation de la célérité de 0,26 m.s<sup>-1</sup> correspond à une variation de fréquence de résonance d'environ 2Hz seulement ce qui est nettement en dessous des variations fréquentielles attendues et mesurées ici : pas loin de 100 Hz pour des expérimentations dont la durée totale est inférieure à l'heure.

L'effet des variations de température sur la célérité est donc négligeable dans le cas présent.

Il paraît donc tout à fait raisonnable de considérer les comportements non linéaires du nuage de bulles comme étant responsable des décalages fréquentiels observés. Une mesure des pressions acoustiques en jeu ici nous permettra de confirmer ou non cette hypothèse en les comparants avec les pressions acoustiques rencontrées dans la littérature.

Une mesure des pressions acoustiques en jeu à amplitude d'émission maximale a été réalisée avec un hydrophone Bruel & Kjaer 8103.

L'hydrophone a été placé de façon à obtenir une distance émetteur-hydrophone identique à la distance émetteur-résonateur. Autour de la fréquence centrale de l'émetteur (100 kHz), un maximum de 600 mV crête à crête a été mesuré à la sortie de l'amplificateur de charge de l'hydrophone dont la sensibilité était réglée sur 2 pC/Pa et la tension de sortie sur 0,1 mV/Pa. La sensibilité réelle de l'hydrophone étant de 0,103 pC/Pa, la pression acoustique vaut ici :

$$P_{a} = \frac{Tension_{peak-peak}}{2} \times \frac{1}{Rapport_{sortie}} \times \frac{Sensibilit\acute{e}_{r\acute{e}elle}}{Sensibilit\acute{e}_{r\acute{e}gl\acute{e}e}}$$
(4.3)

Soit :

### Une pression acoustique d'environ 60 kPa

Nous considérons que cette valeur ne représente qu'un ordre de grandeur car l'hydrophone utilisé n'a pas été étalonné récemment. Il correspond cependant aux ordres de grandeur des pressions acoustiques rencontrées dans la littérature, dans le cadre des études où les bulles sont excitées dans le but de mesurer leur non linéarité. Ceci confirme donc la crédibilité de l'observation de décalages fréquentiels de la résonance liés aux propriétés non linéaires du nuage.

Ces résultats sont donc très encourageants dans la mesure où ils confirment qu'une spectroscopie de résonance non linéaire à basse fréquence sur un nuage de bulles est physiquement réalisable et mène à des décalages fréquentiels observables.

L'objectif étant cependant ici de relier décalages fréquentiels et caractéristiques du nuage, la présence de ces interférences acoustiques se révèle très problématique. En effet, il est impossible de savoir *a priori* si le pic de résonance de la lame diphasique ne va pas être « gommé » par une interférence liée à la géométrie du système.

Expérimentalement, en ayant une connaissance de la fréquence de résonance attendue, il était d'ailleurs nécessaire de faire varier la géométrie de l'ensemble (en déplaçant un ou plusieurs éléments dans la cuve) afin d'éviter la présence d'interférences destructrices dans la zone fréquentielle d'intérêt.

Cette situation est évidemment rédhibitoire pour le cas général où l'on cherche justement à caractériser le nuage de bulles et que, par définition, aucune connaissance sur la fréquence de résonance attendue n'est disponible.

La poursuite des expérimentations aurait consisté à observer des variations fréquentielles fonctions du taux de vide entre les plaques, taux de vide évalué par ailleurs par technique optique.

### 4.1.2.5. Résonateur en configuration quasi-anéchoïque

A la suite des résultats obtenus entre deux plaques et afin d'éviter la présence d'interférences, la solution des plaques anéchoïques a été étudiée dans un premier temps. En effet, il semble que celles disposées sur les coques des navires de guerre de surface correspondent à notre cahier des charges en termes de pression hydrostatique (contrairement aux plaques utilisées pour les sous marins) et de fréquences de travail. Devant la difficulté à obtenir ce type de plaques, une autre solution a été trouvée : une cuve plus grande et un mode d'excitation non plus en sweep continus mais en « step-sweep », c'est-à-dire avec des trains d'ondes successifs dont la fréquence

est incrémentée pas à pas, afin de ne pas être perturbé par l'éventuel retour d'un signal acoustique.

Les expérimentations présentées ci-après ont eu lieu dans les locaux du Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique à Marseille.



Figure 94 : Vue d'ensemble (gauche) et rapprochée (droite) du dispositif résonateur plaque immergé dans la cuve du LMA

La cuve du LMA dans laquelle nous avons effectué ces expérimentations est par ailleurs constituée d'un plastique réfléchissant très peu les ondes acoustiques dans la gamme de nos fréquences de travail (voir Figure 94).

Le résonateur plaques a lui aussi un peu évolué : les plaques d'aluminium ont été remplacées par des plaques d'acier afin de renforcer la rupture d'impédance acoustique avec l'eau.

Les deux plaques sont toujours écartées de 5 cm soit une fréquence de résonance sans bulles attendue à 14,8 kHz. Comme précédemment, pour se rapprocher de la bande passante du traducteur émetteur afin de gagner en pression acoustique, le multiple de cette fréquence de résonance le plus proche de 100 kHz a été recherché.

Multiple	1	2	3	4	5	6	7	8
Fréquence	14,8	29,6	44,4	59,2	74	88,8	103,6	118,4

Recherchant une fréquence de résonance sans bulles à 103,6 kHz, nous avons généré notre stepsweep de 96 kHz à 106 kHz. L'incrément fréquentiel est ici de 100 Hz et chaque tir de 100 périodes est répété 3 fois afin de pouvoir effectuer une moyenne des résultats.

Le tout est effectué pour 10 amplitudes acoustiques différentes afin de vérifier la linéarité du dispositif sans bulles. Un total de 3000 tirs de 100 périodes est donc réalisé. Les résultats sont présentés Figure 95.



Figure 95 : Courbes de résonances sans bulles

L'intérêt du step-sweep est ici immédiatement perceptible : nous n'observons plus de phénomènes d'interférences et une seule résonance est présente.

La résonance est ici détectée à 101,5 kHz, ce qui correspond à un multiple d'une résonance fondamentale à 14,5 kHz. Pour une célérité de 1480 m.s<sup>-1</sup> (eau à 20°C ici), cette résonance correspond à une distance entre plaques de 5,10 cm. Indépendamment de l'incertitude sur la célérité acoustique réelle, cet écart de 1 mm est cohérent avec l'incertitude sur l'écart réel entre les plaques (dû, entre autres, aux défauts de planéité et de parallélisme des plaques utilisées).

La résonance détectée est donc bien celle recherchée. Une parfaite linéarité de cette fréquence de résonance est par ailleurs observée.

La même démarche a été répétée en injectant des nuages de bulles. Très vite, nous avons été confrontés à un sérieux problème : le caractère fluctuant du nuage de bulles. Ceci impliqua d'effectuer des moyennes sur de très nombreux tirs.

Le générateur de bulles fonctionnant en circuit ouvert, le nombre de tirs acoustiques potentiellement réalisables est limité dans le temps. La Figure 96 présente les courbes de résonance de deux amplitudes seulement, ce qui est ici le maximum atteignable dans le temps imparti. L'allure des courbes présentées montre de surcroît que la moyenne n'a pas été effectuée sur suffisamment de tirs (20 tirs ici). D'autres essais ont montré que dans cette configuration, une moyenne sur 100 tirs ne suffisait toujours pas à obtenir des courbes sans fluctuations marquées. Ceci est probablement dû à la trop grande proximité entre la fréquence de travail et la fréquence de résonance des plus grosses bulles présentes. Acoustiquement, la présence de bulles résonantes perturberait en effet profondément la célérité globale au sein du nuage de bulles.

La configuration « step-sweep » ne nous a donc pas permis d'effectuer une spectroscopie de résonance non linéaire complète sur notre nuage de bulles, et ce, pour des raisons purement matérielles.

Les deux courbes de la Figure 96 semblent toutefois présenter un décalage qui confirmerait ce que nous avions observé précédemment mais devant la faible qualité de ces courbes, il ne parait pas raisonnable de conclure ici.



Figure 96 : Courbes de résonances en présence du nuage de bulles

La configuration « step-sweep » permet tout de même une observation intéressante : les réflexions multiples de la première configuration généraient certes des interférences rédhibitoires, mais elles présentaient l'avantage de conduire à une pseudo-moyenne sur autant de tirs que de trajets de l'onde à travers le résonateur. Ceci, couplé au fait d'utiliser des sweep continus, permettait de conduire les expérimentations beaucoup plus rapidement.

Au vu des quelques résultats obtenus, les expérimentations menées avec le résonateur plaques mériteraient d'être approfondies. Cela passerait par la modification du dispositif générateur de bulles afin de disposer d'un temps de génération de nuage plus important, et peut être aussi d'une meilleure homogénéité de nuage, ce qui permettrait de réduire le nombre de tirs nécessaire à la moyenne effectuée. Une optimisation de l'algorithme de génération du stepsweep afin de limiter la durée d'exécution de ce dernier pourrait aussi être envisagée.

Il parait par ailleurs essentiel de travailler à plus basse fréquence par rapport aux fréquences de résonance des bulles. Ne disposant pas d'émetteur acoustique permettant de travailler efficacement autour de la dizaine de kHz, il a été jugé plus intéressant, toujours avec l'objectif de réaliser une spectroscopie de résonance non linéaire à basse fréquence sur un nuage de bulles, d'expérimenter un type de résonateur acoustique très différent : le résonateur de Helmholtz. Les résultats de la mise en œuvre de ce résonateur font l'objet du §.4.2.3.

S'il n'a pas permis d'aller plus loin que de confirmer la potentialité de la démarche, le résonateur plaques a néanmoins permis l'observation d'un phénomène acoustique étonnant : le phénomène dit de grappes de bulles. Ces observations et leurs implications sont présentées §.5.2.2.



Figure 97 : Illustration du phénomène de grappes de bulles

# 4.2. Spectroscopie de résonance non linéaire avec un résonateur de Helmholtz

Contrairement au résonateur plaques, un résonateur de Helmholtz n'a, à notre connaissance, jamais été exploité dans le cadre de la caractérisation d'un milieu diphasique.

### 4.2.1. Définition du résonateur de Helmholtz

Hermann Ludwig von Helmholtz imagina le résonateur qui porte son nom dans le but d'extraire les harmoniques d'un son total afin d'étudier la complexité des sons et leur perception par l'oreille humaine [Hel85]. Il utilisa pour cela une série de cavités sphériques de dimensions graduellement décroissantes telles que leurs fréquences de résonance aillent en croissant régulièrement. En portant les différents résonateurs à l'oreille lors de l'écoute d'un son complexe, et en déterminant quels sont ceux qui donnent la sensation d'un renforcement acoustique, il fut ainsi possible à Helmholtz d'effectuer la décomposition spectrale d'un son à l'oreille.



Figure 98 : Le résonateur historique de Helmholtz

Le modèle théorique élémentaire du résonateur de Helmholtz est simple. Il est constitué d'une cavité de volume interne *V* terminée par un col de section *A* et de longueur *L* (Figure 99).



#### Figure 99 : Géométrie du modèle élémentaire du résonateur de Helmholtz.

Le modèle de Helmholtz s'établit sous les hypothèses suivantes :

- Les dimensions géométriques du résonateur sont petites devant la longueur des ondes acoustiques considérées. C'est-à-dire λ<sub>res</sub> ≫ L et λ<sub>res</sub> ≫ V<sup>1/3</sup>.
- L'enceinte est considérée parfaitement rigide et thermiquement isolée.
- Les effets dissipatifs sont ignorés.

L'approche la plus simple consiste à faire l'analogie avec un système masse ressort en considérant une oscillation en bloc de l'air situé dans le col et l'élasticité de l'air contenu dans la cavité.

Une variation de petite amplitude  $\xi$  de la position de l'air dans le col autour de sa position d'équilibre entraine une variation de volume dans le résonateur :

$$dv = A.\xi \tag{4.4}$$

La loi de Laplace conduit à la variation de pression *dp* dans le résonateur :

$$dp = -\frac{\gamma p_0}{V} dv \tag{4.5}$$

Une force de rappel est donc exercée sur la colonne d'air présente dans le col :

$$dF = -\gamma \frac{p_0 A^2}{V} \xi \tag{4.6}$$

Les compressions et détentes dues au mouvement du bouchon conduisent alors à l'équation du mouvement :

$$m\ddot{\xi} + \gamma \frac{p_0 A^2}{V} \xi = 0 \tag{4.7}$$

Cette équation est celle d'un oscillateur harmonique de type :

$$\ddot{\xi} + \omega_0^2 \xi = 0 \tag{4.8}$$

La célérité acoustique *c* se définissant par ailleurs :

$$c^{2} = \left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_{S} = \gamma \frac{p_{0}}{\rho}$$
(4.9)

Il est alors possible d'exprimer la fréquence de résonance de l'oscillateur linéaire à un degré de liberté défini par l'équation (4.7) de la façon suivante :

$$\omega_0 = c \sqrt{\frac{\rho \cdot A^2}{m \cdot V}} \tag{4.10}$$

La masse *m* de l'air contenue dans le col valant par ailleurs :

$$m = \rho. A. L \tag{4.11}$$

Il vient alors la résonance dite de Helmholtz :

$$\omega_0 = c \sqrt{\frac{A}{VL}} \tag{4.12}$$

Avec une approche ondulatoire, le même résultat est retrouvé [Ber02].

Les approximations qui conduisent au modèle de Helmholtz sont excessives. La principale erreur provient du fait que la longueur de l'air oscillant en bloc est considérée égale à la longueur du col. En réalité, les couches situées de part et d'autre des ouvertures du col sont entrainées dans le mouvement. Il est donc nécessaire de considérer une longueur effective du col telle que [Ber02] :

$$L_{eff} = L + \frac{8D}{3\pi} \tag{4.13}$$

Avec D le diamètre du col

D'autres correctifs peuvent être apportés au modèle de Helmholtz avec pour objectif, entre autres, d'exprimer l'amplification acoustique à la résonance [Roc71].

Du point de vue de la fréquence de résonance, la simple prise en compte de la longueur effective exprimée à l'équation (4.13) permet d'obtenir une très bonne correspondance entre modèle et expérimentations [Ber02].

Historiquement, le résonateur de Helmholtz (et le modèle associé) contenait du gaz. Son fonctionnement et sa modélisation reste toutefois valide en eau [Woo77]. Dans le cas d'un résonateur rempli d'eau, l'hypothèse de la rigidité parfaite de l'enceinte sera toutefois plus difficile à atteindre étant donnée la quasi-incompressibilité des liquides [Nor93].

### 4.2.2. Présentation du résonateur de Helmholtz développé

Dans le cadre de notre étude, trois résonateurs de Helmholtz ont été réalisés avant d'aboutir à une version expérimentalement adéquate.

La première version fut réalisée en PVC opaque. Elle permit de réaliser quelques essais préliminaires en air uniquement car il était impossible de vérifier visuellement l'absence de bulles ou de poches de gaz lors du remplissage avec de l'eau.

La deuxième version (Figure 100) fut réalisée en plexiglas afin de palier ce problème rédhibitoire. La cavité est ici constituée d'un cylindre de 19,4 cm de diamètre intérieur et de 30 cm de hauteur pour un volume de 8,87 litres. Cette cavité est surmontée d'un col de 7 cm de hauteur et 2,6 cm de diamètre intérieur.

D'après le modèle de Helmholtz, la fréquence de résonance en eau de cette version du résonateur est de 189,9 Hz (en prenant en compte la longueur effective du col donnée par l'équation (4.13)).

L'excitation acoustique se fait ici grâce à un pot vibrant Derritron (Modèle VP2MM) couplé à un piston. Ce dernier fonctionne dans la gamme 50 Hz – 20 KHz. Le pot vibrant est suspendu de façon rigide de sorte que le piston soit immergé dans le col (voir Figure 100).

Cette deuxième version de résonateur de Helmholtz a permis d'effectuer des expérimentations en eau (monophasique et diphasique), conduisant à la confirmation de la présence d'une basse fréquence de résonance.



Figure 100 : Deuxième version du résonateur de Helmholtz

Ce résonateur présentait toutefois deux inconvénients majeurs :

- La souplesse de son enveloppe.
- L'existence de zones d'accumulation de gaz.

En effet, un plexiglas de 3 mm d'épaisseur avait été utilisé. Cette épaisseur est trop faible car il est aisé d'observer les déformations du résonateur lors d'une légère surpression. Ceci a trois conséquences :

- La première est le non respect flagrant de l'hypothèse du modèle de Helmholtz relative à la rigidité de l'enceinte (qui implique donc une dérive par rapport à la fréquence de résonance attendue).
- La deuxième, plus problématique, est la variation de volume que cela induit. Cette variation de volume présentant une dépendance à l'amplitude d'excitation, des décalages fréquentiels de la résonance (voir le modèle de Helmholtz) seront observés. Il est dans ce cas très difficile voire impossible de distinguer un décalage fréquentiel dû à ce phénomène d'un décalage fréquentiel dû au comportement non linéaire du contenu du résonateur.
- Enfin la troisième conséquence provient des éventuelles non linéarités du comportement élastique du plexiglas qui conduiront potentiellement elles-aussi à des décalages fréquentiels.

Mais l'inconvénient rédhibitoire de ce résonateur n'est pas tant sa souplesse que sa zone d'accumulation de gaz. Etant constitué de deux tubes verticaux concentriques (voir Figure 101), le lieu du changement de section, horizontal, se révèle en effet une zone potentielle d'accumulation de bulles et de formation de poches de gaz.



Figure 101 : Le changement de section du résonateur : une zone d'accumulation de poches de gaz

Cette accumulation de gaz est problématique car elle modifie de façon très importante le taux de vide global au sein de la cavité du résonateur. Ce dernier n'est donc plus seulement celui du nuage de bulles à caractériser.

Pour toutes ces raisons, une troisième version de résonateur de Helmholtz a été développée. Par rapport à la deuxième version, celle-ci présente une cavité de volume réduit, une épaisseur de plexiglas plus importante et surtout une liaison hémisphérique entre le col et la cavité, afin de prévenir la formation de poches de gaz (voir Figure 102 et Figure 103).

Ce résonateur est constitué d'une cavité de 1,533 litres surmontée d'un col de 7 cm de hauteur et 2,6 cm de diamètre intérieur.



Figure 102 : Troisième version du résonateur de Helmholtz

Les résultats obtenus avec cette troisième version de résonateur de Helmholtz sont maintenant présentés.

### 4.2.3. Résultats obtenus avec le résonateur de Helmholtz

### 4.2.3.1. Calcul de la fréquence de résonance théorique

Le résonateur est donc ici constitué d'une cavité de 1,533 litres surmontée d'un col de 7 cm de hauteur et 2,6 cm de diamètre intérieur.

Contrairement au modèle de Helmholtz, l'excitation n'a pas lieu à l'extérieur mais dans le col (grâce au piston couplé au pot vibrant) et le fluide contenu dans le résonateur (de l'eau) n'est pas le même que le fluide environnant (de l'air). Ainsi, la hauteur de col à prendre en compte pour le calcul de la fréquence de Helmholtz n'est certainement pas  $H_3$  mais  $H_1$ ,  $H_2$  ou une valeur intermédiaire (voir Figure 103).



Figure 103 : Hauteurs caractéristiques H1, H2 et H3 dans le col du résonateur

 $H_1$ ,  $H_2$  et  $H_3$  valent ici respectivement 4,5 cm, 7 cm et 9 cm. Dans le cas idéal de Helmholtz, à la résonance, l'ensemble du fluide présent dans le col coulisse en bloc uni et incompressible. La longueur  $H_2$  devrait alors être prise en compte. En réalité, c'est probablement une longueur comprise entre  $H_1$  et  $H_2$  qu'il faudra considérer.

Ce fait est d'ailleurs confirmé expérimentalement. En faisant varier  $H_1$ ,  $H_2$  ou les deux à la fois, une variation de fréquence de résonance a été observée dans tous les cas. Avec un résonateur respectant par ailleurs les hypothèses du modèle de Helmholtz (ce qui n'est pas le cas ici comme nous le verrons plus tard), il aurait été intéressant d'établir expérimentalement la hauteur réelle à prendre en compte en fonction de  $H_1$  et  $H_2$ .

En calculant la fréquence de résonance théorique du résonateur grâce à l'équation (4.12) et en prenant en compte une longueur de col effective telle que décrite par l'équation (4.13), nous avons :

Pour 
$$L = H_1 = 4,5 \text{ cm} \rightarrow f_{res} = 535 \text{ Hz}$$
  
Pour  $L = H_2 = 7 \text{ cm} \rightarrow f_{res} = 457 \text{ Hz}$ 

Pour un résonateur respectant par ailleurs les hypothèses du modèle de Helmholtz, il faudrait donc s'attendre à une fréquence de résonance comprise entre 457 Hz et 535 Hz.

### 4.2.3.2. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est ici constitué (voir Figure 104) :

- Du résonateur de Helmholtz précédemment décrit.
- D'un générateur de fonction Tektronix AFG 3102.
- D'une alimentation Derritron.
- D'un pot vibrant Derritron VP2MM.
- D'un hydrophone Bruel et Kjaer 8103.
- D'un amplificateur de charges Bruel & Kjaer 2635.
- D'un Picoscope 4425 couplé à un PC.

Le résonateur est rempli d'eau et l'aéroflottateur, générateur du nuage de bulles, est connecté au bas de ce dernier. Le tout forme donc un circuit ouvert (d'où la présence d'une évacuation en haut du col du résonateur).



Figure 104 : Schématisation du dispositif résonateur de Helmholtz complet

### 4.2.3.3.Résultats

La fréquence de résonance fondamentale du résonateur sans bulles a été recherchée dans un premier temps. Il est apparu qu'elle se situe en dessous de la gamme de fréquences attendue. La Figure 105 présente le résultat d'un sweep de 2 secondes dont la fréquence varie de 80 Hz à 250 Hz.
#### Chapitre 4 : Caractérisation du taux de vide par spectroscopie acoustique de résonance



Le signal temporel fait apparaître un comportement de résonance unique. Le spectre fréquentiel de ce signal temporel est présenté Figure 106.



Le spectre fréquentiel permet d'évaluer précisément la valeur de la fréquence de résonance de notre dispositif : 152,6 Hz. Cette valeur, bien que du même ordre de grandeur, est nettement inférieure à la plage de fréquences théoriques attendue (qui allait de 457 à 535 Hz).

La raison de cet écart réside probablement dans l'élasticité du résonateur. En effet, bien que cette troisième version de résonateur soit relativement rigide, la paroi est constituée de matière plastique et ne peut donc raisonnablement pas être considérée comme rigide vis-à-vis des ondes acoustiques dans l'eau. Le comportement des résonateurs de Helmholtz élastiques a été étudié par [Nor93]. Ces travaux démontrent que l'élasticité de l'enceinte entraîne une diminution de la fréquence de résonance du résonateur de Helmholtz. Un fort décalage entre théorie et pratique avait aussi été observé sur le résonateur de Coste : ~15 Hz au lieu des 40 Hz attendus [Cos91].

Le fait de ne pas retrouver la fréquence de Helmholtz théorique n'est pas problématique puisque la spectroscopie de résonance non linéaire s'attache à observer le décalage fréquentiel de la fréquence de résonance du système en fonction de l'amplitude d'excitation. C'est donc sur cette fréquence de résonance fondamentale de 152,6 Hz que nous travaillerons.

La Figure 107 présente une phase d'injection de bulles dans le résonateur.

#### Chapitre 4 : Caractérisation du taux de vide par spectroscopie acoustique de résonance



Figure 107 : Résonateur de Helmholtz (troisième version) durant l'injection de bulles

Après quelques minutes, un équilibre est atteint au sein du résonateur de telle sorte que la nouvelle fréquence de résonance reste constante. Le même sweep de 2 secondes est alors envoyé. Les réponses temporelles et fréquentielles du résonateur sont présentées Figure 108 et Figure 109.





La résonance est ici observée à 99,6 Hz.

Nous savons d'après l'équation (4.12) que la fréquence de Helmholtz est directement proportionnelle à la célérité au sein du résonateur. Dans notre cas, avec la seule connaissance de la géométrie de l'enceinte et étant donnée l'influence de l'élasticité de cette dernière, il n'est pas possible de relier directement fréquence de résonance et célérité. En revanche, en supposant les propriétés mécaniques de l'enveloppe indépendantes des caractéristiques du milieu au sein du résonateur, il reste possible de lier variation de fréquence de résonance et variation de célérité dans le fluide du résonateur.

Etant données la taille des bulles générées ici et la fréquence de travail, nous sommes certains de nous situer dans le domaine de validité du modèle de Wood. En considérant que la variation de fréquence de résonance est proportionnelle à la variation de célérité au sein du résonateur, il est alors possible d'évaluer la valeur du taux de vide grâce à ce modèle. Le modèle de Wood pour le système air-eau est présenté Figure 110.



Figure 110 : Le modèle de Wood pour le système air-eau

La fréquence de résonance est passée dans notre cas de 152,6 Hz à 99,6 Hz soit une variation de 34,7 %. D'après le modèle de Wood, cette variation correspond à un taux de vide de 6,2.10<sup>-5</sup>.

Des expérimentations similaires ont été menées pour différents débits de sortie de l'aéroflottateur, c'est-à-dire pour différents taux de vide. Les fréquences de résonance observées dans chaque cas étaient en parfaite cohérence qualitative avec le modèle de Wood : plus les nuages de bulles sont denses et plus les fréquences de résonance mesurées grâce au résonateur de Helmholtz présentent un décalage avec le cas monophasique.

Le résonateur de Helmholtz permet donc ici, par une approche linéaire, une évaluation précise du taux de vide au sein du volume du résonateur.

Ceci offre des perspectives industrielles originales pour la question de l'évaluation du taux de vide seulement. La principale difficulté étant alors d'être en mesure d'implanter sur l'installation un résonateur parcouru par un fluide présentant un engazement représentatif de l'engazement à caractériser. La question de l'application industrielle sera abordée plus en détails en §.4.5.

En première approche, une variation fréquentielle de 0,1 Hz est mesurable ici. Selon le modèle de Wood, cette valeur correspond, pour le système sodium-argon, à un taux de vide de 3.10<sup>-8</sup>.

L'idée initiale n'était pas d'utiliser un résonateur acoustique pour appliquer le modèle de Wood mais pour effectuer une spectroscopie de résonance non linéaire dans le but de remonter aux caractéristiques du nuage de bulles grâce à ses propriétés acoustiques non linéaires. Le taux de vide est ici le premier paramètre recherché mais nous espérons pouvoir aller plus loin et accéder à des informations relatives à l'histogramme des rayons des bulles.

Dix amplitudes d'excitation acoustique différentes ont donc été appliquées au nuage de bulles *via* le pot vibrant afin d'observer d'éventuelles évolutions de la fréquence de résonance. Les résultats sont présentés Figure 111.



Figure 111 : Spectroscopie de résonance avec bulles

Le verdict est sans appel : la résonance est ici parfaitement linéaire. Dans cette gamme de fréquences, la pression acoustique maximale générée par le pot vibrant ne dépasse pas 1 kPa. Il apparaît donc que contrairement à nos espérances, cette valeur est ici insuffisante.

Ceci est confirmé par quelques éléments bibliographiques relatifs à des expérimentations similaires qui mettent en jeu des pressions acoustiques supérieures. En effet, la spectroscopie de résonance non linéaire réalisée par Coste et conduisant à l'observation de phénomènes non linéaires faisait intervenir des pressions acoustiques supérieures comprises entre 4 et 14 kPa [Cos91]. Nous avons aussi trouvé une confirmation de ce fait dans la mise en œuvre de la technique DAET (Dynamic Acousto-Elastic Technique) développée par G. Renaud [Ren08]. [Mor09] l'a utilisée dans le but d'évaluer les propriétés non linéaires d'un nuage d'agents de contraste ultrasonores fait intervenir un pot vibrant avec un objectif comparable au nôtre : exciter le nuage à basse fréquence. Selon G. Renaud, l'utilisation, dans un premier temps, d'un pot vibrant similaire en taille au nôtre n'avait rien donné. L'utilisation d'un modèle plus puissant, capable de générer des basses fréquences avec une amplitude de pression acoustique atteignant 15 kPa, avait alors permis d'observer le comportement non linéaire des agents de contraste ultrasonores.

L'aboutissement de la spectroscopie de résonance non linéaire avec notre résonateur de Helmholtz passera donc par la mise en œuvre d'un moyen de génération de pressions acoustiques supérieures.

# 4.3. Résultats expérimentaux de la spectroscopie de résonance non linéaire : conclusions

Les résultats expérimentaux obtenus à ce jour ne permettent pas la validation de la spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles avec pour objectif de caractériser ce dernier.

Le résonateur plaques a cependant permis de visualiser le comportement non linéaire d'un nuage de bulles mais non de l'exploiter. La mise en œuvre d'un résonateur acoustique de Helmholtz n'a pas permis d'aller plus loin pour cause d'amplitude de pression acoustique insuffisante. Le résonateur de Helmholtz nous a néanmoins permis d'appliquer le modèle de Wood afin d'évaluer de façon fine le taux de vide du nuage de bulles, ce qui présente un intérêt industriel indéniable.

Etant donnés les quelques éléments bibliographiques théoriques et expérimentaux, et les premiers résultats obtenus avec le résonateur plaques, l'idée de la spectroscopie de résonance non linéaire appliquée à un nuage de bulles grâce à l'utilisation de résonateurs acoustiques a paru suffisamment prometteuse pour faire l'objet d'une demande de brevet.

Ce dernier, intitulé « *Procédé de détermination de taux de vide par spectroscopie de résonance acoustique non linéaire dans une milieu diphasique et application dans un réacteur nucléaire.* » a été soumis à l'INPI le 11 mai 2010 sous le numéro : 10.53653.

Est à noter aussi la visualisation lors de la mise en œuvre expérimentale de cette technique du phénomène dit « de grappes de bulles » qui pourrait avoir une incidence au sein d'un SFR.

# 4.4. Simulations numériques et modélisation de la spectroscopie de résonance non linéaire

La volonté de mieux connaître les phénomènes acoustiques rencontrés nous a conduit à nous intéresser à la simulation et la modélisation des décalages fréquentiels issus de la non-linéarité des bulles ou nuages de bulles. L'idée est ici de disposer à terme d'un modèle validé par les décalages fréquentiels observés expérimentalement.

Les simulations numériques du comportement dynamique d'une (ou plusieurs) bulle(s) soumise(s) à un champ acoustique présentes dans la littérature scientifique se basent en général sur les modèles classiques de la dynamique des bulles.

Les simulations de Lauterborn [Lau76], de Van der Meer [Mee07] et de Pauzin [Pau09] concernent par exemple la simulation du modèle de RPNNP appliqué à une bulle. Ces simulations ont montré l'apparition d'un décalage de la fréquence de résonance d'une bulle en fonction de l'amplitude de l'excitation appliquée (Figure 48, Figure 49 et Figure 29).

Commander et Prosperetti [Com89] ont quant à eux simulé le modèle linéarisé de Keller Miksis sur une population de bulles afin de remonter aux célérités et atténuations au sein de ces populations de bulles.

Dans le cadre de notre étude, nous avons cherché à simuler la réponse non linéaire d'une bulle soumise à un sweep autour de sa fréquence de résonance afin de chercher à faire apparaître des décalages de fréquence de résonance. Ces travaux ont été développés avec S. Touati à l'occasion de son mémoire de Master [Tou10]. Une modélisation du résonateur de Helmholtz diphasique a aussi été proposée.

### 4.4.1. Simulations sur une bulle

Le modèle de Keller-Miksis (équation (2.40)) a été simulé pour plusieurs tailles de bulles et plusieurs amplitudes de pression acoustiques. La résolution numérique des équations différentielles non linéaires du modèle a nécessité l'utilisation du solveur Matlab ODE113. L'excitation prend ici la forme d'un sweep dont la fréquence de départ vaut ~ 0,14  $f_0$  et la

fréquence d'arrivée ~ 2,3  $f_0$  avec  $f_0$  la fréquence de résonance linéaire de la bulle. D'après la linéarisation du modèle de RPNNP,  $f_0$  vaut ici 346 Hz. Le choix d'un balayage fréquentiel continu de type sweep a été fait afin correspondre aux conditions expérimentales d'excitation des bulles d'une part et de faire apparaître le comportement hystérétique de la dynamique des bulles d'autre part.

Les résultats obtenus pour un sweep de 10 ms généré entre 47,7 kHz et 795 kHz appliqué à une bulle de 10  $\mu$ m sont présentés Figure 112 à Figure 115. Quatre amplitudes acoustiques ont été étudiées ici : 1 kPa, 10 kPa, 50 kPa et 80 kPa.

Pour chacune de ces quatre amplitudes, l'évolution temporelle du rayon (normalisé par le rayon au repos) ainsi que le spectrogramme correspondant (analyse temps-fréquence grâce à une FFT à fenêtre glissante) sont présentés. Les spectrogrammes traduisent l'intensité grâce à un code couleur (relatif). Les intensités les plus faibles tendent vers le bleu tandis que les plus fortes tendent vers le rouge.



Figure 112 : Simulation du modèle de Keller-Miksis. Bulle de 10 μm de rayon, amplitude de 1 kPa. Evolution temporelle du rayon (à gauche) et spectrogramme (à droite).

Pour une amplitude de 1 kPa, l'évolution temporelle du rayon semble linéaire avec une résonance apparaissant à environ 4 ms. Il est cependant possible d'observer des harmoniques à la résonance sur le spectrogramme.



Figure 113 : Simulation du modèle de Keller-Miksis. Bulle de 10 µm de rayon, amplitude de 10 kPa. Evolution temporelle du rayon (à gauche) et spectrogramme (à droite).

A 10 kPa, la forme de la résonance présente, sur la réponse temporelle, une dissymétrie caractéristique des systèmes non linéaires. Un décalage temporel (donc fréquentiel) de la résonance est observé par rapport à l'excitation à 1 kPa d'amplitude :  $\sim$  324 kHz contre  $\sim$  345 kHz précédemment.

Une première résonance apparaît de plus sur la réponse temporelle à ~ 167 kHz (c'est-à-dire supérieure à  $f_{res}/2$  qui vaut ici 162 Hz). Il est possible d'avancer une explication au fait que ce phénomène n'apparaisse pas exactement à  $f_{res}/2$ : cette résonance secondaire est d'amplitude beaucoup plus faible que la résonance principale, elle est donc moins non-linéaire que cette dernière et subit en conséquence moins de décalage fréquentiel. Si cette résonance secondaire avait été linéaire, elle serait apparue à  $f_0/2$  (avec  $f_0$  la fréquence de résonance linéaire de la bulle), c'est-à-dire à 173 Hz.

Le spectrogramme fait, quant à lui, apparaître de très nombreuses harmoniques à la résonance et quelques-unes aux résonances secondaires.

Il est par ailleurs possible d'observer les harmoniques du signal d'excitation pendant toute la durée du sweep et non plus uniquement aux résonances de la bulle. A partir d'une certaine pression acoustique, la bulle est donc excitée quelle que soit la fréquence d'excitation et ce, de façon non linéaire.



Figure 114 : Simulation du modèle de Keller-Miksis. Bulle de 10 μm de rayon, amplitude de 50 kPa. Evolution temporelle du rayon (à gauche) et spectrogramme (à droite).

Pour une amplitude d'excitation de 50 kPa, les phénomènes sont beaucoup plus marqués. L'évolution temporelle du rayon fait clairement apparaître un phénomène de saut en amplitude à la résonance et plusieurs résonances secondaires apparaissent en dessous de  $f_{res}$ . Une autre de ces fréquences secondaires apparaît aussi à ~ 2. $f_{res}$ . Ces résonances secondaires sont répertoriées dans le Tableau 10.

n	5	4	3	2	$1 = f_{res}$	0,5
Fréquence d'apparition	68,6	85,1	111,2	158,3	279,4	682,9
f <sub>res</sub> /n	55,9	69,9	93,1	139,7	279,4	558,8
f <sub>0</sub> /n	69,2	86,5	115,3	173	346	692

Tableau 10 : Résonances secondaires observées sur la Figure 114

Ces résonances secondaires sont comprises entre  $f_{res}/n$  et  $f_0/n$ . Ceci confirme que ces résonances sont non linéaires mais pas autant que la résonance principale. Elles présentent par ailleurs un caractère dissymétrique. La fréquence de résonance s'est encore décalée par rapport au cas précédent. Un autre aspect de la dissymétrie de résonance apparaît : l'amplitude de la phase d'expansion de la bulle est plus importante que l'amplitude de sa phase de compression.

Le spectrogramme fait apparaître de très nombreuses harmoniques à la résonance (plus de quinze) ainsi qu'aux résonances secondaires. La résonance secondaire apparaissant à 8,6 ms fait apparaître une subharmonique (correspondant à  $\sim f_{res}$ ) et des ultraharmoniques.

Un phénomène de repliement provenant du traitement du signal (échantillonnage) apparaît pour les hautes fréquences à la résonance. Ces « échos » n'ont donc aucune signification physique.



Figure 115 : Simulation du modèle de Keller-Miksis. Bulle de 10 µm de rayon, amplitude de 80 kPa. Evolution temporelle du rayon (à gauche) et spectrogramme (à droite).

Les phénomènes sont encore renforcés à 80 kPa. Comme attendu, les résonances sont encore un peu plus décalées vers la gauche. Un phénomène intéressant apparaît sur le tracé de l'évolution temporelle du rayon : l'apparition d'une résonance à 2,2 ms (à une fréquence correspondant à  $\sim 2/3.f_{res}$ ).

Le spectrogramme devient difficilement exploitable au début du sweep. La résonance secondaire correspondant à ~  $f_{res}/2$  (à ~ 2,2 ms) possède une particularité intéressante : la présence de la subharmonique et des ultraharmoniques de la fréquence d'excitation. Il est étonnant de les voir apparaître à cette résonance et non à la résonance principale. Nous sommes ici en dessous du seuil d'apparition de la subharmonique du mode fondamental de 100 kPa proposé par [Pro77]. De ce point de vue, l'absence de la subharmonique à la résonance est cohérente. Nous n'expliquons cependant pas sa présence à cette résonance secondaire. Il serait intéressant de se pencher sur la provenance de cette apparition : réalité physique ou problème de calcul numérique ?

Au-delà de ces observations, ces simulations avaient pour but initial d'observer les décalages fréquentiels de la résonance non linéaire des bulles. La fréquence de résonance fondamentale observée pour une amplitude d'excitation de 80 kPa présente un décalage de plus de 10 % par rapport à la fréquence de résonance observée pour une amplitude de 10 kPa. A titre de comparaison, les décalages habituellement observés dans les solides fortement non linéaires sont de l'ordre du pour-cent pour un rapport 10 d'amplitude d'excitation [Joh96] (voir Figure 46).

Il est par ailleurs constaté que les décalages observés sur les fréquences de résonances secondaires sont moins importants que celui observé sur la résonance principale pour une amplitude d'excitation acoustique donnée. Ceci est tout à fait cohérent et confirme que le comportement « le plus non linéaire » d'une bulle apparaît à sa résonance fondamentale, le décalage de la fréquence de résonance d'un système dépendant de son degré de non linéarité.

La simulation de la réponse d'une bulle de 10  $\mu$ m à un sweep de fréquence décroissante à la pression acoustique de 50 kPa permet de faire clairement apparaître le comportement hystérétique de la bulle. La Figure 116 est une superposition de la réponse de la bulle à sweep de fréquence croissante (en bleu, identique à la réponse présentée Figure 114) et de la réponse de la bulle à un sweep de fréquence décroissante.



Figure 116 : Simulation de l'évolution temporelle du rayon d'une bulle de 10 μm soumise à un sweep. En rouge : sweep de fréquence décroissante ; en bleu : sweep de fréquence croissante.

Les phénomènes de saut en amplitudes apparaissent ici, de même que la boucle hystérétique : le saut en amplitude n'a en effet pas lieu à la même fréquence selon le sens fréquentiel du sweep. La superposition parfaite des réponses pour les plages fréquentielles présentant une unicité de la solution (entre environ 280 Hz et 530 Hz par exemple) prouve que la différence de fréquence de résonance observée n'est pas due à un simple déphasage. Les résonances secondaires basses fréquences ne présentent que peu voire pas d'hystérésis, ce qui rejoint le fait que ces résonances sont faiblement non linéaires.

La simulation des modèles dynamiques de bulles font donc clairement apparaître des décalages fréquentiels importants à la résonance de ces dernières. Dans le cas du résonateur de Helmholtz expérimenté, les fréquences de travail sont nettement inférieures aux fréquences de résonance des bulles présentes dans le résonateur. Dans ce cas, il ne parait pas cohérent de considérer le comportement non linéaire du nuage global avec la même approche. Les simulations montrent en effet que plus la fréquence de travail est éloignée de la fréquence de résonance de la bulle et moins le comportement individuel des bulles fait apparaître de décalage fréquentiel.

Une modélisation non linéaire d'un résonateur de Helmholtz diphasique est donc proposée ciaprès.

### 4.4.2. Modélisation du résonateur de Helmholtz diphasique

En collaboration avec S. Mensah (LMA – Marseille), une modélisation du résonateur de Helmholtz en configuration diphasique a été développée.

L'idée est ici de modéliser les expérimentations en espérant une adéquation entre décalage théorique et expérimental de la fréquence de résonance du résonateur de Helmholtz diphasique. La configuration considérée est présentée Figure 117.



Figure 117 : Géométrie et variables d'état du résonateur de Helmholtz diphasique

<u>Hypothèses</u>:

- 1. La longueur d'onde de l'onde excitatrice est très supérieure aux dimensions du résonateur.
- 2. La compressibilité du fluide est très inférieure à celle du gaz.

Considérons un petit déplacement  $\xi$  de la colonne d'air contenue dans le col du résonateur.

A l'état initial, la pression au repos  $P_0$  est égale à la pression atmosphérique  $P_{atm}$  et la somme du volume de gaz au repos  $V_{g0}$  et de liquide au repos  $V_{l0}$  constitue le volume total au repos  $V_0$ :

$$V_0 = V_{g0} + V_{l0} \tag{4.14}$$

Un petit déplacement  $\xi$  de la colonne d'air comprise dans le col du résonateur implique des variations de volume et de pression telles que :

$$V = V_g + V_l = V_0 - A\xi$$
 (4.15)

$$P = P_{atm} + p \tag{4.16}$$

La loi de comportement adiabatique des gaz donne alors :

$$PV_g^{\gamma} = P_0 V_{g0}^{\gamma} \tag{4.17}$$

Pour N bulles de rayon  $R_0$ , l'équation (4.17) devient :

$$P\left(N\frac{4}{3}\pi R_0^3 - A\xi\right)^{\gamma} = P_0\left(N\frac{4}{3}\pi R_0^3\right)^{\gamma}$$
(4.18)

D'où :

$$P = \frac{P_0}{\left(1 - \frac{3A\xi}{N4\pi R_0^3}\right)^{\gamma}}$$
(4.19)

D'où une force de rappel sur la colonne d'eau dans le col :

$$F = -A(P - P_0) = -AP_0 \left[ \frac{1}{\left(1 - \frac{3A\xi}{N4\pi R_0^3}\right)^{\gamma}} - 1 \right] = -AP_0 \left[ \frac{1}{\left(1 - \alpha\xi\right)^{\gamma}} - 1 \right]$$
(4.20)

Avec :

$$\alpha = \frac{3A}{N4\pi R_0^3} \tag{4.21}$$

Dans la colonne d'eau contenue dans le col de masse volumique  $\rho_l LS$  (on néglige ici la variation due à la présence de gaz en faisant l'hypothèse de taux de vide faible), le principe fondamental de la dynamique nous permet d'écrire l'équation du mouvement suivante :

$$\rho_{l}LA\dot{\xi} + \delta\dot{\xi} + AP_{0}\left[\frac{1}{(1-\alpha\xi)^{\gamma}} - 1\right] = 0$$
(4.22)

Avec  $\delta$  le coefficient d'amortissement qui intègre les pertes visqueuses, thermiques et de radiation acoustique.

L'équation (4.22) peut se mettre sous la forme générale d'un oscillateur non linéaire amorti :

$$\ddot{\xi} + \frac{\delta}{\rho_l L A} \dot{\xi} + \frac{A P_0}{\rho_l L A} \left[ \frac{1}{(1 - \alpha \xi)^{\gamma}} - 1 \right] = 0$$
(4.23)

La prise en compte de la tension superficielle se fait par l'ajout à la pression statique de la pression de Laplace :  $\frac{2\sigma}{R_0}$ .

$$\ddot{\xi} + \frac{\delta}{\rho_l L A} \dot{\xi} + \frac{A \left( P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right)}{\rho_l L A} \left[ \frac{1}{(1 - \alpha \xi)^{\gamma}} - 1 \right] = 0$$
(4.24)

Une population de bulle polydispersée verra par ailleurs son volume total de gaz libre s'exprimer de la façon suivante :

$$V_{g0} = \frac{4}{3}\pi \int R_0^{3}(a).n(a).da$$
 (4.25)

L'expression de  $\alpha$  devient alors :

$$\alpha = \left[\frac{3A}{4\pi \int R_0^{3}(a).n(a).da}\right]$$
(4.26)

L'équation (4.24) constitue donc un modèle non linéaire de la résonance d'un résonateur de Helmholtz diphasique. Le caractère non linéaire de cette équation du mouvement permet de s'attendre *a priori* à des décalages de la fréquence de résonance en fonction de l'amplitude appliquée.

Des simulations numériques préliminaires ont été effectuées grâce à Matlab. L'excitation acoustique est de la forme :

$$p.\sin\left(\omega t\right) \tag{4.27}$$

Par obtenir le comportement du résonateur, cette excitation prend la forme d'un sweep de durée  $t_s$  entre  $f_1$  et  $f_2$  de la forme :

$$p.\sin\left(2\pi t \left[\frac{(f_1 - f_2)t}{2.t_s} + f_1\right]\right)$$
(4.28)

Par souci de simplicité, l'équation du mouvement est résolue en mode « step-sweep », c'est-àdire que les courbes sont reconstruites point par point en incrémentant fréquence puis amplitude. Les résultats de la simulation correspondant à nos expérimentations présentée précédemment sont présentés Figure 118.

Le step-sweep est ici généré de 50 Hz à 800 Hz avec un pas de 1 Hz. Les amplitudes des pressions acoustiques d'excitation sont comprises entre 0,1 kPa et 55 kPa. Les dimensions sont celles de notre résonateur, le taux de vide est ici de 6,2.10<sup>-5</sup> pour un rayon de bulles de 15  $\mu$ m. La valeur de l'amortissement total nous est donnée par [Bjo82] :  $\delta$  = 0,062. La masse volumique de l'eau est de 998 kg.m<sup>-3</sup>, la tension superficielle est de 0,073 N.m<sup>-1</sup> et le coefficient polytropique  $\gamma$  est fixé à 1,4.



Figure 118 : Résultats de la simulation du modèle du résonateur de Helmholtz diphasique non linéaire

Les 33 pressions acoustiques simulées valent 0.1 kPa, 0.2 kPa, 0.3 kPa, 0.4 kPa, 0.5 kPa, 0.6 kPa, 0.7 kPa, 0.8 kPa, 0.9 kPa, 1 kPa, 1.2 kPa, 1.5 kPa, 2 kPa, 3 kPa, 4 kPa, 5 kPa, 6 kPa, 7 kPa, 8 kPa, 9 kPa, 10 kPa, 12 kPa, 14 kPa, 16 kPa, 18 kPa, 20 kPa, 25 kPa, 30 kPa, 35 kPa, 40 kPa, 45 kPa, 50 kPa et 55 kPa.

Les résultats de la simulation font clairement apparaître un phénomène de résonance principal et de multiples résonances secondaires. A partir d'un certain seuil de pression acoustique, ces résonances présentent des décalages fréquentiels.

La Figure 119 est un zoom sur la résonance principale. Le comportement de résonance est linéaire dans un premier temps avant de devenir fortement non linéaire. La frontière entre domaine linéaire et non linéaire se situe ici autour de 1 KPa, ce qui confirme nos observations expérimentales.

La fréquence de résonance linéaire du résonateur est ici d'environ 360 Hz, ce qui est cohérent avec la fréquence de résonance théorique attendue : entre 457 Hz et 535 Hz avec une diminution d'environ 35 % due à l'engazement (voir §.4.2.3)



Figure 119 : Zoom sur la résonance principale présentée Figure 118

Ce modèle pourrait être amené à être développé en prenant en compte une répartition des rayons de la population de bulles (équation (4.26)) et la compressibilité  $\chi_l$  du liquide avec les variations du volume de liquide et de gaz :

$$\partial V_l = (1 - \tau) A \xi \frac{\chi_l}{\chi_E}$$
(4.29)

$$\partial V_g = \tau A \xi \frac{\chi_g}{\chi_E} \tag{4.30}$$

Avec: 
$$\chi_E = -\left[(1-\tau)\chi_I + \tau\chi_g\right]$$
(4.31)

Des simulations préliminaires effectuées pour des engazements présentant divers taux de vide et diverses tailles de bulles montrent que ces deux paramètres sont influant sur le comportement de résonance d'un résonateur de Helmholtz diphasique, ce qui semble confirmer qu'il est possible d'obtenir plus que la valeur du taux de vide avec un tel dispositif s'il est exploité à la fois dans son domaine linéaire et non linéaire.

Un parallèle intéressant peut être fait entre les résultats obtenus ici et les résultats expérimentaux d'une technique NRUS expérimentale effectuée sur du grès [Ten98] (voir Figure 120).



Figure 120 : Courbes de résonances à différentes amplitudes obtenues numériquement sur un nuage de bulles à basse fréquence (à gauche) et expérimentalement sur du grès [Ten98] (à droite)

Le comportement non linéaire dans ces deux cas pourtant très différents est similaire : un domaine linéaire, un domaine non linaire présentant une évolution de forme quadratique et enfin un domaine non linéaire évoluant de façon linéaire.

Au vu de ces observations, il parait intéressant de tenter d'effectuer une transposition du modèle développé au cas des solides non linéaires présentant des microporosités. Une telle transposition, si elle était validée, permettrait potentiellement une meilleure compréhension de l'origine physique des phénomènes non linéaires hystérétiques observés dans certains solides.

Une autre approche de la non linéarité d'un nuage de bulles est possible. Elle consiste à déterminer un paramètre non linéaire du nuage de bulles :  $\beta$  effectif global du nuage. Cette approche est présentée en temps que perspective au §.5.1.1.

## 4.4.3. Simulations numériques et modélisation de la spectroscopie de résonance non linéaire : conclusion

Les bases de deux approches différentes quant à la modélisation de la spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles ont été posées :

- Décalage de la fréquence de résonance d'une bulle individuelle
- Résonateur de Helmholtz diphasique non linéaire

Ces deux approches nécessitent encore quelques approfondissements, en particulier en termes de quantification des décalages fréquentiels obtenus, avant de pouvoir procéder à une comparaison avec les résultats expérimentaux. A ce jour, l'absence de ces résultats n'a pas permis d'approfondir la question dans le cadre de notre étude.

Une fois des données expérimentales de spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles validées, il sera intéressant de comparer les décalages fréquentiels obtenus avec ceux obtenus par chacune de ces approches et de mener plus loin la modélisation.

## 4.5. Conclusion : transposition de la spectroscopie de résonance non linéaire au sodium liquide des SFR

Les expérimentations concernant la spectroscopie de résonance non linéaire n'ayant abouti qu'à peu de résultats exploitables, il est prématuré de considérer la transposition de cette technique au sodium liquide.

Les quelques résultats obtenus avec le résonateur plaques et l'évaluation du taux de vide qui a pu être faite grâce au résonateur de Helmholtz sont toutefois encourageants. La mise en place de résonateurs acoustiques dans les SFR reste donc envisageable à moyen terme. Une approche des conditions de transposition va donc être tentée ici.

### 4.5.1. Réflexions d'ordre général

Physiquement, les réflexions présentées au §.3.6, relatives au comportement non linéaire des bulles d'argon dans du sodium liquide, s'appliquent ici.

### 4.5.2. Transposition d'un résonateur plaques

Contrairement au résonateur de Helmholtz, il est envisageable d'implanter un résonateur plaques au sein d'un bain de sodium liquide. Il suffirait pour cela d'utiliser des plaques constituées d'un matériau compatible avec le sodium liquide (acier inoxydable par exemple).

Comme l'a montré la première série d'expérimentations avec ce type de résonateur, la présence d'un phénomène de réverbération en réacteur pourrait s'avérer problématique.

Une question importante qui pourrait être traitée en eau n'a pour l'instant pas de réponse : il s'agit de la faisabilité de la technique lorsque l'ensemble émetteur-résonateur-récepteur est immergé au sein d'un nuage de bulles (et non uniquement le résonateur).

Comme pour le cas de la transposition du mixage de fréquences, la question des traducteurs est problématique. L'émetteur basse fréquence doit ici générer des pressions acoustiques importantes que ne semble pas pouvoir fournir un TUSHT (voir §.3.6.2). En revanche, en réception, un TUSHT (éventuellement couplé à un amplificateur de charge type AMPTUSHT) conviendrait probablement.

La faisabilité de la technique en eau en configuration quasi-anéchoïque n'ayant pas été menée à terme, il est prématuré de considérer plus en détails la transposition du résonateur plaques.

Des expérimentations en eau concluantes couplées à une modélisation des décalages observés permettraient probablement de connaître les décalages attendus *a priori* en sodium pour un taux de vide donné.

### 4.5.3. Transposition d'un résonateur de Helmholtz

Contrairement au résonateur plaques, il est difficile d'envisager l'implantation d'un résonateur de Helmholtz au sein d'un bain de sodium liquide à moins de trouver une solution pour faire circuler le sodium dans le résonateur sans modifier l'engazement et de trouver une solution d'excitation (pot vibrant immergé ou excitation déportée par exemple).

Il est, en revanche, tout à fait envisageable d'utiliser un résonateur de Helmholtz en dérivation d'une conduite avec une injection - évacuation similaire à celle mise en œuvre lors de nos expérimentations.

La question de l'excitation est alors plus simple puisque la technologie type pot vibrant, couplée à un piston en acier inoxydable par exemple, pourrait être envisagée, moyennant une solution technologique pour assurer l'étanchéité au niveau du piston.

Quelles que soient les conditions de mise en œuvre du résonateur de Helmholtz, la réception acoustique pourrait ici aussi être envisagée grâce à un TUSHT (éventuellement couplé à un amplificateur de charge type AMPTUSHT).

Comme pour le cas du résonateur plaques, la validation expérimentale d'un modèle permettrait probablement de connaître les décalages attendus *a priori* en sodium pour un taux de vide donné.

L'utilisation du résonateur de Helmholtz pour l'application du modèle de Wood est quant à elle très facilement transposable de l'eau vers le sodium sans essais complémentaires. Le modèle de Wood s'appliquant à un couple liquide-gaz; une fois connue la fréquence fondamentale de résonance d'un résonateur donné, relier décalage de cette fréquence en présence de bulles et taux de vide est immédiat.

Chapitre 4 : Caractérisation du taux de vide par spectroscopie acoustique de résonance

### Chapitre 5. Mise en perspective des travaux réalisés

Les travaux menés durant cette étude ouvrent de nombreuses perspectives. Dans un premier temps, vont être développées les conclusions et perspectives relatives aux expérimentations menées. Des phénomènes acoustiques inattendus ont été observés lors de nos expérimentations : ils seront présentés et analysés. Dans un second temps, des perspectives expérimentales plus larges, et orientées vers l'application industrielle que constitue le cas sodium liquide, seront détaillées.

### **5.1. Perspectives expérimentales**

La variabilité importante des conditions expérimentales dans le temps rend les mesures sur les nuages de bulles très délicates. Obtenir un nuage de bulles polydispersé, parfaitement homogène, stable et contrôlé est quasiment impossible par aéroflottation et nécessiterait l'exploration d'autres voies de génération de bulles. Malgré ces difficultés, des résultats intéressants ont été obtenus avec les différentes techniques mises en œuvre.

### 5.1.1. Mixage de fréquences : conclusions

Deux techniques de mixage de fréquences ont été expérimentées : le mixage d'une haute fréquence et d'une basse fréquence (HF-BF) et le mixage de deux hautes fréquences (HF-HF).

La mise en œuvre expérimentale de la technique de mixage de fréquences HF-BF nous a permis d'obtenir des histogrammes relatifs des rayons des bulles, qui ont été validés par une technique optique avec une précision jamais obtenue jusqu'alors. Elle a pu être réalisée en utilisant un couple de traducteurs ultrasonores émetteur-récepteur hautes fréquences centrées sur 2,25 MHz et un sweep basse fréquence entre 10 et 500 kHz émis en continu par un traducteur 250 kHz. Cependant, les histogrammes reconstruits étant relatifs, ils ne permettent pas de remonter à la valeur du taux de vide.

La détermination du taux de vide semble difficile à atteindre à ce stade des recherches. Elle passera par la connaissance des volumes de contrôle acoustiques réels qui ne semblent pas coïncider avec les taches focales acoustiques des traducteurs utilisés (voir §.3.3.3.2 et §.3.4.3.).

La détection de bulles résonantes a par ailleurs permis de valider la faisabilité de la mise en œuvre d'une technique non linéaire de mixage de deux hautes fréquences sans amplificateurs, tant à l'émission qu'à la réception.

A ce jour, cette technique ne nous a pas permis de reconstruire un histogramme des rayons de bulles en présence. L'explication la plus probable à cela réside dans le trop faible volume des taches focales acoustiques des traducteurs hautes fréquences utilisés, ce qui n'a pas permis de détecter suffisamment de bulles. Des traducteurs présentant des taches focales acoustiques plus importantes, éventuellement couplés à des amplificateurs de puissance à l'émission (à condition qu'ils soient suffisamment linéaires), permettraient certainement d'obtenir de meilleurs résultats. Le mixage HF-HF présente suffisamment d'avantages d'un point de vue industriel pour justifier la poursuite des recherches en ce sens.

Le principal obstacle à ce jour à la transposition au sodium liquide des techniques de mixage reste la disponibilité de traducteurs acoustiques utilisables en sodium liquide. Une étude expérimentale du potentiel des capteurs existants permettrait néanmoins de conclure quant à la nécessité éventuelle de développer de nouveaux types de capteurs utilisables au sein d'un bain de sodium liquide à haute température.

### 5.1.2. Spectroscopie de résonance non linéaire : conclusions

La spectroscopie de résonance non linéaire a été expérimentée avec pour objectif principal de déterminer des grandeurs caractéristiques du nuage de bulles et en particulier son taux de vide.

Les résultats expérimentaux obtenus à ce jour avec un résonateur plaques ont permis la validation de la faisabilité de la technique. La mise en œuvre d'un résonateur acoustique de Helmholtz n'a pas permis d'aller plus loin car l'amplitude de la pression acoustique d'excitation était insuffisante. Le résonateur de Helmholtz nous a néanmoins permis d'appliquer le modèle de Wood afin d'évaluer le taux de vide du nuage de bulles, ce qui est très positif d'un point de vue industriel si ce seul paramètre est recherché.

Etant donnés les divers éléments bibliographiques théoriques et expérimentaux ainsi que les premiers résultats obtenus avec le résonateur plaques, le concept de spectroscopie de résonance non linéaire appliqué à un nuage de bulles grâce à l'utilisation de résonateurs acoustiques a paru suffisamment prometteur pour faire l'objet d'une demande de brevet [Cav10]. Les résultats préliminaires ont par ailleurs été présentés en conférence internationale [Cav10-2].

### 5.1.1. Perspectives relatives au mixage de fréquences

La technique de mixage HF-BF a donné d'excellents résultats en termes de reconstruction d'histogrammes des rayons des bulles. Une détermination expérimentale du volume effectif de la tache focale acoustique permettrait de remonter aux valeurs de taux de vide. Volume effectif signifie ici volume à l'intérieur duquel une bulle résonante émettra les fréquences somme et différence recherchées. L'application classique des formules théoriques ne semblent pas convenir ici d'où la nécessité d'une mesure in situ (voir §.3.3.3.2). Une autre solution consisterait à déterminer en parallèle le taux de vide de façon précise grâce à une autre technique (acoustique ou non) afin de recaler l'histogramme des rayons des bulles pour le faire correspondre avec ce taux de vide et ainsi aboutir à un histogramme absolu des densités de bulles en fonction de leurs rayons.

Une question soulevée dans la littérature mériterait des expérimentations en eau en vue de l'application industrielle future de cette technique. Il s'agit de l'influence de la turbulence et de la direction d'écoulement sur l'apparition d'un décalage fréquentiel dû à un effet Doppler. Il faudrait pouvoir quantifier cet effet s'il n'est pas évitable et valider le fait qu'il soit possible de le prendre en compte afin d'éviter qu'il ne fausse les histogrammes reconstruits.

Des mesures fines des pressions acoustiques de pompage et d'imagerie minimales à mettre en jeu au niveau de l'intersection des taches focales acoustiques permettraient par ailleurs de faciliter la transposition de la technique à d'autres chaînes d'émission-réception acoustiques.

La technique de mixage HF-HF n'a pas permis d'aller plus loin que la simple validation de la faisabilité de la méthode. La principale raison identifiée à ce jour réside dans le trop faible volume des taches focales acoustiques des traducteurs hautes fréquences. Une amélioration de la qualité de la superposition des taches focales (délicate à obtenir), l'utilisation de traducteurs présentant un volume focal acoustique plus important et éventuellement, s'ils sont suffisamment linéaires, la réintroduction dans la chaîne d'émission des amplificateurs de puissance permettraient probablement de détecter beaucoup plus de bulles.

La directivité et la taille du faisceau acoustique basse fréquence devront eux aussi faire l'objet d'une attention particulière afin de faire correspondre au mieux zone de pompage (intersection des faisceaux HF) et zone d'imagerie (faisceau BF).

## 5.1.2. Perspectives relatives à la spectroscopie de résonance non linéaire

La spectroscopie de résonance non linéaire ne nous a pas permis de remonter à une ou plusieurs caractéristiques du nuage de bulles. Atteindre ce but avec un résonateur plaques implique

d'utiliser des fréquences plus faibles par rapport à la fréquence de résonance des plus grosse bulles présentes, ce qui constitue une difficulté d'un point de vue technologique.

Le résonateur de Helmholtz semble bien plus prometteur. Dans le cadre de cette étude, la limitation a aussi été technologique mais elle est facile à lever puisqu'il existe des pots vibrants capables de générer des pressions acoustiques bien plus importantes dans les gammes de fréquence étudiées. Il est vraisemblable qu'avec un excitateur adéquat, le caractère non linéaire du nuage de bulles serait observé. L'exploitation linéaire du résonateur de Helmholtz *via* le modèle de Wood ne permet que de remonter à la valeur du taux de vide, il sera intéressant de chercher à évaluer d'autres caractéristiques du nuage de bulles grâce à ses paramètres non linéaires.

L'aboutissement d'une technique de spectroscopie de résonance non linéaire sur un nuage de bulles permettrait en outre des parallèles intéressants avec la mécanique non linéaire des solides.

## 5.1.1. Perspectives relatives à la modélisation de la spectroscopie de résonance non linéaire

La validation expérimentale d'une spectroscopie de résonance non linéaire permettrait une comparaison des résultats issus des simulations et modélisations présentées au §4.4. Une autre approche théorique pourrait être tentée : elle consiste à définir le paramètre de non linéarité  $\beta$  effectif global d'un nuage de bulles.

[Bjo82] propose une expression théorique de ce paramètre  $\beta_{eff}$ . En introduisant :

 $\beta_l$  le paramètre de non linéarité du liquide,  $\rho_l$  la masse volumique du liquide,  $c_l$  la célérité acoustique dans le fluide,  $\rho_m$  la masse volumique du nuage de bulles,  $c_m$  la célérité acoustique dans le nuage de bulles,  $\tau$  le taux de vide, R le rayon des bulles, L la distance entre l'émetteur et le nuage de bulles,  $\delta$  la constante d'amortissement des bulles,  $\omega_l$  la fréquence d'excitation,  $\omega_l$  la fréquence de résonance des bulles,

[Bjo82] exprime le paramètre de non linéarité effectif de la façon suivante :

$$\beta_{eff} = 8,677.10^{7}.\tau \,\beta_{l} \,\frac{\rho_{m}^{2} c_{m}^{4}}{\rho_{l}^{2} c_{l}^{4}} \,\frac{R}{L} \left[\frac{1}{(1-\Omega^{2})^{2}+\delta\Omega^{2}}\right] \left[0,287+\left(\frac{\Omega^{2}}{2,4}\right)\right]$$
(5.1)

Avec :

$$\Omega = \frac{\omega}{\omega_0} \tag{5.2}$$

Un des intérêts de cette approche réside dans la considération du rapport  $\Omega$  entre fréquence d'excitation et fréquence de résonance des bulles. En faisant l'hypothèse qu'il est possible de relier le paramètre de non linéarité et le décalage fréquentiel, cette approche combinerait les deux précédentes : décalages à et en dessous de la résonance des bulles.

Le lien entre  $\beta_{eff}$  et le décalage fréquentiel de la résonance n'est cependant peut-être pas si trivial et l'expression donnée ici ne tient pas compte d'une population polydisperse de bulles, mais seulement de bulles ayant toutes un seul et même rayon. Une évolution de l'expression proposée par [Bjo82] serait donc nécessaire dans l'optique de comparer prédictions du modèle et résultats expérimentaux.

### 5.2. Autres phénomènes acoustiques observés et leurs implications

Les expérimentations menées ont en outre permis l'observation de phénomènes acoustiques présentant des perspectives intéressantes. Il s'agit d'observations faites dans le cadre des expérimentations du mixage de fréquence et du phénomène dit de grappes de bulles.

### 5.2.1. Phénomènes observés lors du mixage de fréquences

Avant d'aboutir à la reconstruction d'un histogramme, l'excitation du nuage de bulles par une haute et une basse fréquence a conduit à l'observation de plusieurs phénomènes intéressants présentés ici.

Comme présenté sur la Figure 70, lorsque qu'une bulle résonante à la fréquence du sweep est présente dans la tache focale, un spectre présentant harmoniques et fréquences somme et différence est obtenu. Dans certains cas, de nombreuses autres fréquences peuvent apparaître. La Figure 121 l'illustre parfaitement.



Les valeurs des fréquences des différentes raies spectrales présentes sur le spectre du signal ont été regroupées dans le Tableau 11.

Fréquence de pompage		<b>u</b> 280	<b>ω<sub>p</sub></b> 280 kHz																	
Subharmonique	ω <sub>p</sub> 140	/ <b>2</b> ) Hz																		
Harmoniques				<b>2 ω<sub>ρ</sub></b> 560 Hz		<b>3 ω<sub>ρ</sub></b> 840 Hz		<b>4 ω<sub>p</sub></b> 1120 Hz		5 140	<b>5 ω<sub>p</sub></b> 1400 Hz		<b>6 ω<sub>ρ</sub></b> 1680 Hz		ω <sub>p</sub> D Hz	<b>8 ω</b> <sub>p</sub> 2240 Hz		<b>9 ω<sub>p</sub> ?</b> 2520 Hz		
Ultraharmoniques			<b>3/2 ω</b> <sub>p</sub> 420 Hz		<b>5/2 ω<sub>p</sub> 7/2</b> 700 Hz 98		<b>7/2</b> 980	ω <sub>p</sub> Hz	ω <sub>p</sub> <b>9/</b> 2 Hz 126		<b>11/2 ω</b> <sub>p</sub> 1540 Hz		<b>13/</b> 2	<b>′2 ω<sub>p</sub> 15/</b> 20 Hz 21(		<b>2 ω</b> <sub>p</sub> 0 Hz			,	
-				-							_									
Fréquence d'imagerie									<b>U</b> 2250	<b>)<sub>i</sub></b> ) kHz										
Fréquences somme et différences	<b>ω</b> i - 1690	<b>2 ω</b> <sub>p</sub> ) kHz	<b>ω</b> i- 1970	ω <sub>p</sub> kHz							_				<b>ω</b> i <b>+</b> 2530	· <b>ω</b> <sub>p</sub> ) kHz	<b>ω</b> i <b>+</b> 2810	<b>2 ω</b> <sub>p</sub> ) kHz	<b>ω</b> i + 3 3090	<b>3 ω</b> ρ kHz
Sub-sommes et sub-différences					<mark>ω</mark> i- ω 2110	pp <b>/2</b> kHz	ω <sub>i</sub> - α 2180	ο <sub>p</sub> /4 kHz			ω <sub>i</sub> + α 2320	ω <sub>p</sub> /2 KHz	ω <sub>i</sub> + 0 2390	ω <sub>p</sub> /4 kHz						

Tableau 11 : Fréquences identifiées sur la Figure 121

Ce spectre fait apparaître de nombreuses fréquences en plus des fréquences de pompage (280 kHz) et d'imagerie (2,25 MHz). Classifions tout d'abord ces fréquences avant de les analyser :

- La fréquence de pompage présente de nombreuses harmoniques. Les sept premiers multiples de la fréquence fondamentale sont aisément identifiables, le huitième  $(9.\omega_0)$  est à peine supérieur au bruit.
- Sept ultraharmoniques de la fréquence de pompage  $(\frac{2n+1}{2}, \omega_p)$  sont aussi présentes. Les ultraharmoniques se rencontrent rarement et sont symptomatiques des phénomènes très fortement non linéaires.
- La subharmonique de la fréquence de pompage semble être présente à 140 kHz bien que de faible intensité. (Les pics observables en dessous de 100 kHz sur le spectre ne sont pas des sous-multiples de 280 kHz). La Figure 123 présente le spectre d'un autre signal sur lequel apparaît une subharmonique de la fréquence de pompage.
- Les fréquences somme et différence recherchées :  $\omega_i \pm \omega_p$ . Les amplitudes acoustiques associées à ces fréquences différence sont inférieures à celle associée à la fréquence d'imagerie de 20 dB environ.
- Des multiples de ces fréquences somme et différence :  $\omega_i \pm n.\omega_p$ . Avec n = 2 pour la différence et n = [2, 3] pour les sommes.
- La sub-somme et la sub-différence :  $\omega_i \pm (\omega_p/2)$ .
- Les fréquences « sub-sub-sommes » et « sub-sub-différences » à  $\omega_i$  ± ( $\omega_p/4$ ), jamais citées à ce jour dans la littérature.

Des publications récentes concernant des expérimentations de mixage acoustique non linéaire HF-BF présentent quelques similitudes en termes de spectres obtenus. Parmi ces travaux, [Lei08] a observé comme nous de nombreuses harmoniques et des multiples des fréquences somme et différence mais aucune des autres fréquences caractéristiques mentionnées précédemment. Les fréquences de pompage (30 kHz) et d'imagerie (220 kHz) correspondent ici à une pression acoustique de 15 kPa.

Chapitre 5 : Mise en perspective des travaux réalisés



Figure 122 : Spectre obtenu par [Lei08] lors de la mise en œuvre d'une technique HF-BF avec les harmoniques (en bleu) de la fréquence de pompage  $\omega_p$  et les fréquences somme, différences et leurs multiples (en rouge)

### 5.2.1.1. Apparition de la fréquence subharmonique

Le spectre présenté Figure 121 fait apparaître la subharmonique de la fréquence de pompage. L'apparition de la subharmonique est assez rare mais est bien présente sur quelques signaux. Sa présence sur le spectre présenté Figure 123 le confirme.



Figure 123 : Extrait du spectre d'un signal en présence de bulle avec présence d'une subharmonique

Lors de nos observations, il est apparu que sa présence est liée à la proximité de la fréquence de pompage avec la fréquence centrale du capteur basses fréquences (environ 240 kHz d'après le spectre présenté Figure 67). Il est donc probable que cette subharmonique n'apparaisse qu'audessus d'un certain seuil de pression acoustique.

Toujours d'après le spectre d'émission (Figure 67), la pression acoustique générée à 292 kHz est d'environ 12 kPa. Or [Pro77] donne comme ordre de grandeur de pression acoustique nécessaire pour l'apparition de la subharmonique du mode fondamental de la résonance d'une bulle une valeur d'environ 100 kPa. Les avancées récentes dans le domaine du comportement acoustique non linéaire des agents de contraste ultrasonore (microbulles encapsulées) montrent qu'une subharmonique peut apparaître pour des pressions acoustiques bien plus faibles [Sij09] : de l'ordre de 5 kPa. Si la présence d'une coque autour de ces microbulles est certainement à l'origine de cet écart important, il n'est pas impossible de penser que les seuils d'apparition de la subharmonique mesurés il y a plus de trente ans soient erronés vu les performances du matériel utilisé. Des mesures fines des pressions acoustiques en jeu ainsi que l'étude de l'éventuelle influence de présence d'une haute fréquence seraient à mener afin de pouvoir conclure.

Une autre explication à l'apparition de cette subharmonique est présentée dans le paragraphe suivant : elle concerne l'apparition de modes de surfaces.

### 5.2.1.2. Apparition des multiples des fréquences somme et différence

Si l'apparition des ces multiples des fréquences somme et différence n'a jamais été exploitée avec l'objectif de caractériser la taille de bulles, elle est cependant régulièrement mentionnée dans la littérature [Lei94].

### 5.2.1.3. Apparition des fréquences sub-somme et sub-différence

Les fréquences sub-somme et sub-différence :  $\omega_i \pm (\omega_p/2)$ , ainsi que leurs multiples :  $\omega_i \pm [(n+2).\omega_p/2]$  (avec n entier  $\geq 1$ ), sont largement évoquées dans les travaux de Leighton, Phelps *et al.* [Lei91, Phe97-1, Phe97-2, Phe98...] mais curieusement quasiment absentes du reste de la littérature expérimentale.

Comme le montre la Figure 124, les travaux de Leighton *et al.* basés sur l'apparition des subsommes et sub-différences font aussi état de l'apparition de multiples de ces sub-sommes et subdifférences :  $\omega_i \pm [(n+2).\omega_p/2]$  (avec n entier  $\ge 1$ ). Aucune observation de ce type de fréquence n'a été faite sur nos signaux.



Figure 124 : Apparition chez [Lei94] des fréquences somme et leurs multiples ainsi que des sub-sommes, et leurs multiples pour une fréquence pompe de 1,65 à 2,45 kHz (58 Pa) et une fréquence d'imagerie de 1,1 MHz.

La présence des fréquences sub-somme et sub-différence est liée à un mixage paramétrique entre la fréquence d'imagerie et la subharmonique de la fréquence de pompage. La présence de cette subharmonique a été interprétée dans un premier temps par ces auteurs comme une conséquence de l'oscillation volumique non linéaire du mode respirant  $\omega_0$  de la bulle [Lei91].

Or, en 1995, Hardwick propose une autre explication : ce serait des ondes de surfaces qui, en résonance paramétrique avec le mode respirant de la bulle, seraient à l'origine de l'apparition de la subharmonique et donc des fréquences sub-sommes et sub-différences [Hard95]. Indépendamment de ces travaux, Maksimov a confirmé en 1997 cette hypothèse [Mak97] : partant du principe que la subharmonique du mode respirant n'apparaît qu'au delà d'un seuil de pression acoustique élevé (il se base sur les travaux de [Pro77] et considère donc un seuil de  $\sim$ 100 kPa) et que dans leurs expérimentations, Phelps *et al.* font état de pressions acoustiques de pompage bien plus faibles (de l'ordre de quelques dizaines de pascals seulement :  $\sim$  35Pa), il

a étudié l'hypothèse de l'apparition des modes de distorsion de la bulle à sa résonance, qui sont des ondes de surface de type ondes de Faraday.

Les fréquences des modes de distorsion d'une bulle sont données par Lamb [Lam95] :

$$\omega_n^2 = (n-1)(n+1)(n+2)\sigma/R_0^3$$
(5.3)

Avec n l'ordre du mode considéré  $\sigma$ , la tension de surface [N.m<sup>-1</sup>]  $R_0$ , le rayon d'équilibre de la bulle [cm]

L'idée de Maksimov était que la subharmonique apparaissait peut-être lorsque la fréquence de résonance de la bulle correspondait au double de la fréquence d'un des modes de distorsion surfacique de la bulle.



Figure 125 : Tracé de la fréquence de résonance fondamentale et du double des quatre premiers modes de distorsion de la bulle en fonction de son rayon

Le tracé du double de ces fréquences de distorsion mène en effet à l'observation de correspondances fréquentielles avec le mode respirant fondamental de la bulle. L'existence de ces modes pourrait donc expliquer l'apparition de la fréquence subharmonique  $\omega_0/2$ .

[Fra78] et [Mak97] ont par ailleurs donné l'expression théorique des seuils d'amplitudes d'oscillations de bulles à atteindre pour générer ces différents modes avec deux approches différentes. Leurs résultats concordent et coïncident avec les amplitudes des pressions acoustiques de l'ordre de 35 Pa mises en œuvre expérimentalement par Leighton *et al.* Ces derniers ont par ailleurs accepté cette explication à l'apparition de la subharmonique [Ram98].

Récemment, Maksimov a théorisé l'apparition des ondes de surfaces en décrivant la dynamique de la bulle dans un formalisme Hamiltonien [Mak08-1]. Les résultats numériques obtenus coïncident avec les expérimentations [Mak08-2] (voir Figure 126 et photo(a) de la Figure 127).



Figure 126 : Simulation numérique d'un mode de distorsion d'une bulle [Mak08-2]

Maksimov a ainsi retrouvé analytiquement une particularité qui avait été observée expérimentalement : à faible amplitude, les ondes de surfaces sont localisées à l'équateur de la bulle. On parle alors de vibrations azimutales. L'équation non-linéaire de Schrödinger a aussi été retrouvée, ce qui implique que les modes de surface sont gouvernés par la théorie des solitons [Mak08-2].



## Figure 127 : Photographies de l'excitation d'une bulle de 2,1 mm de rayon moyen à 1,506 kHz et des pressions acoustiques de 24 Pa (a), 44 Pa (b) et 139 Pa (c) [Mak08-2]

L'acception de cette explication à l'apparition de la subharmonique et à son mixage donnant lieu à l'apparition des sub-sommes et sub-différences entraîne une question : étant données les pressions acoustiques en jeu dans nos expérimentations (jusqu'à 18 kPa), pourquoi ne pas rencontrer la fréquence subharmonique et son mixage avec la fréquence d'imagerie plus souvent (elles ont été observées sur moins de 1% des enregistrements) ?

Les modes de distorsion pourraient par ailleurs être à l'origine de l'apparition sur quelques spectres des fréquences inédites que sont les sub-sub-sommes et sub-sub-différences.

### 5.2.1.4. Apparition des fréquences sub-sub-somme et sub-sub-différence

L'apparition des fréquences que nous qualifions de « sub-sub-somme » et « sub-subdifférence » :  $\omega_i \pm (\omega_p/4)$  sont visibles sur le spectre de la Figure 121 à 2180 Hz et 2320 Hz. Cette apparition n'a, à notre connaissance, jamais été mentionnée dans la littérature scientifique. Elles sont pourtant clairement présentes et d'amplitudes supérieures à celles des fréquences subsommes et sub-différences (ceci peut être un simple effet de la bande passante du traducteur récepteur).

A ce stade, plusieurs hypothèses pourraient expliquer la présence de  $\omega_p/4$  et donc de  $\omega_i\pm(\omega_p/4)$  :

1- Si l'amplitude de la fréquence de pompage  $\omega_p$  dépasse le seuil de génération de la première subharmonique du mode volumique respirant alors la résonance

paramétrique entre cette composante subharmonique et les modes de distorsion surfacique décrits précédemment entraînerait l'apparition de la fréquence  $\omega_p/4$ .

- 2- En considérant une non linéarité de la résonance d'ordre élevé, il est envisageable de considérer l'apparition du mode de distorsion de la bulle tel  $\omega_p = 4$ .  $\omega_n$  avec  $\omega_n$  la fréquence du mode de distorsion.
- 3- Toujours en considérant une non linéarité d'ordre élevé, une résonance paramétrique entre la fréquence  $\omega_p/2$  (elle-même issue d'une résonance paramétrique entre mode respirant et modes de surface) et le mode respirant conduirait à l'apparition de la fréquence  $\omega_p/4$ .

L'éventualité de l'apparition d'un mode multipolaire n'est pas réaliste ici car la fréquence du mode 1 d'une bulle respirant (mode 0) à 280 kHz (*i.e.*  $r \sim 12 \mu$ m) est de 9,25 MHz.

La première hypothèse ne semble pas envisageable dans notre cas car, bien que nos fréquences de pompage présentent des amplitudes de pressions acoustiques bien supérieures (10 à 20 kPa) à celles mises en œuvre par Leighton *et al.* (~35 Pa), nous restons en dessous du seuil d'apparition de la subharmonique donné par [Pro77] (~100 kPa).

En considérant valide ce seuil de 100 kPa, une des deux autres hypothèses semblent donc plus probable.

Le tracé du mode volumique respirant et du quadruple des fréquences des modes de distorsion donne :



### Figure 128 : Tracé de la fréquence de résonance fondamentale et du quadruple des deux premiers modes de distorsion de la bulle en fonction de son rayon

Une concordance entre fréquence de résonance fondamentale de la bulle et quadruple de la fréquence d'un mode de distorsion (ici les modes 2 et 3) est donc possible. La coïncidence entre mode 0 et quadruple du 2<sup>ème</sup> mode surfacique apparaît pour  $r \sim 32 \mu m$ . Or la bulle résonante à 280 kHz sur le spectre de la Figure 121 et conduisant à l'apparition de fréquence sub-sub-sommes et sub-sub-différences, correspond selon le modèle de Minnaert à une bulle d'environ 12 µm de rayon. Il est difficile à ce stade de savoir si cet écart est trop important. L'écart maximal admissible étant par ailleurs probablement lié aux amplitudes des pressions acoustiques en jeu.

A ce stade des expérimentations, il est difficile d'analyser la crédibilité de la troisième hypothèse.

Par ailleurs, ces deux fréquences sont associées à des amplitudes supérieures aux amplitudes des fréquences sub-somme et sub-différence, ce que nous n'expliquons pas, tout comme l'absence de  $\omega_p/4$  sur le spectre. Il est toutefois à noter l'apparition sur certains signaux des fréquences  $\omega_i \pm (\omega_p/2)$  sans observer la fréquence  $\omega_p/2$ . Rappelons en effet que le récepteur est ici un traducteur piézoélectrique centré sur 2,25 MHz, les subharmoniques recherchées sont

donc très éloignées de sa bande passante. L'absence d'observation de ces fréquences n'implique donc pas leur inexistence.

Ayant découvert le côté inédit de ces fréquences après les campagnes d'essais menées, des expérimentations complémentaires et approfondies seraient à mener avant de pouvoir confirmer la provenance de ces dernières. Le comportement spectral des bulles résonantes pourrait en particulier être étudié plus en détails en étudiant une seule bulle (immobilisée par exemple grâce à un fil ou à la lévitation acoustique) et en associant les observations à des mesures fines des pressions acoustiques en jeu.

Il semblerait, d'après les travaux de Leighton *et al.* que les modes de disposition apparaissent plus facilement lorsque la longueur d'onde de la haute fréquence est proche de la taille des bulles en présence. Ce n'est pas le cas ici, ce qui expliquerait, entre autres, l'absence des multiples des fréquences sub-somme et sub-différence. Travailler avec une fréquence d'imagerie plus élevée entraînerait donc probablement l'observation plus fréquente de spectre présentant de nombreuses fréquences mixées telles que le spectre présenté Figure 121.

### 5.2.1.5. Autres observations

Le signal que nous présentons Figure 121 a été sélectionné car les phénomènes non linéaires y sont fortement marqués. Les spectres obtenus et traduisant la présence de bulles ne présentent pas tous la même physionomie : il arrive d'observer moins d'harmoniques, peu ou pas d'ultra harmoniques, pas de subharmonique, moins de fréquences somme et différence et pas de sub-sommes et sub-différences (voir par exemple Figure 70).

Une situation peut expliquer la présence de fréquences caractéristiques de fortes non linéarités sur certains spectres : la parfaite correspondance entre fréquence de résonance de la bulle et fréquence de pompage couplée à une parfaite correspondance spatiale entre bulle résonante et intersection des taches focales des traducteurs HF. Vu la faible taille des ces dernières, il est aisément compréhensible que cette situation puisse être statistiquement rare.

D'autres comportements intéressants ont été observés sur certains spectres. Un de ceux-ci concerne la parité des harmoniques présentes. En effet, les harmoniques paires sont parfois très faiblement présentes (voir Figure 129) voire quasiment absentes.



Figure 129 : Extrait du spectre d'un signal en présence de bulle avec présence des harmoniques impaires et quasi-absence des harmoniques paires

Ce phénomène est typique des comportements non-linéaires dits classiques du second ordre et de ceux dits non-classiques (= hystérétique) [Abe00-1] or nous avons vu que la résonance d'une bulle présentait un caractère hystérétique, ce qui est donc cohérent.

Il est cependant étonnant de ne pas retrouver ce phénomène sur tous les enregistrements. Il est donc probable que l'apparition d'harmoniques ne soit pas uniquement liée à la résonance des bulles, ce qui semble être confirmé à de nombreuses reprises dans la littérature [Lei96] et qui constitue d'ailleurs la principale limite à la mise en œuvre des techniques basées uniquement sur cette apparition dans les milieux bulleux.

Une autre situation, assez fréquente, concerne les spectres traduisant la résonance d'une bulle à  $\omega_p$  (harmoniques et ultraharmoniques de  $\omega_p$ ) mais ne présentant aucune fréquence somme et différence. Ce phénomène est illustré par le spectre suivant :



Figure 130 : Spectre d'un signal présentant des harmoniques ainsi qu'une ultraharmonique, mais sans apparition des fréquences somme et différence

Cette situation est interprétable de la façon suivante : une bulle est mise en résonance par la basse fréquence de pompage mais ne passe pas suffisamment près de la tache focale acoustique du traducteur HF émetteur pour pouvoir être excitée à la fréquence d'imagerie et ainsi faire apparaître les fréquences somme et différence. Ceci implique en revanche que le traducteur HF récepteur soit capable de détecter les fréquences de résonance de bulles situées en dehors de sa tache focale (mais proche de sa face avant par exemple), ce qui semble être le cas. Cette situation est rendue possible par le fait que le traducteur basses fréquences n'est pas focalisé et présente donc un diamètre de faisceau très largement supérieur aux dimensions de l'intersection des taches focales acoustiques des traducteurs HF.

Le comportement acoustique complexe d'une bulle excitée à plusieurs fréquences pourrait probablement être exploité à moyen terme. A court terme, c'est avant tout une démarche scientifique de compréhension des phénomènes en jeu qui motiverait les approfondissements dans ce domaine. Il semble cependant que certaines fréquences mixées apparaissent par une fréquence de pompage plus proche de la fréquence de résonance que les simples fréquences somme et différente. Ceci permettrait une amélioration de la précision des histogrammes des rayons obtenus.

### 5.2.2. Phénomène de grappes de bulles

Lors des expérimentations acoustiques menées avec le résonateur plaques, un phénomène particulier a été observé. Lors du passage de l'onde acoustique, les bulles ont tendance à se regrouper et à former des amas ponctuels ou linéaires. Ce phénomène est identifié dans la littérature sous l'appellation « grappes de bulles ».

### 5.2.2.1. Photographies des grappes de bulles

Le phénomène de grappes de bulles est visible à l'œil nu et les photographies issues de la caméra sont assez spectaculaires. Plusieurs configurations types sont présentées. Nous n'avons pas trouvé d'images similaires dans la littérature scientifique.

La Figure 131 présente une photo du nuage de bulles avant le passage du sweep acoustique. Les bulles sont réparties de façon globalement homogène au sein du liquide.

Chapitre 5 : Mise en perspective des travaux réalisés



Figure 131 : Photo du nuage de bulles au repos

Au début du passage du sweep, un phénomène de regroupement des bulles tendant à former des amas apparaît.



Figure 132 : Phase de regroupement ponctuel des bulles

Ces amas peuvent être plutôt ponctuels (Figure 132) ou plutôt linéaires (Figure 133).



Figure 133 : Phase de regroupement linéaire des bulles

Au bout d'un certain temps, les amas de bulles semblent atteindre un équilibre. Dans la continuité de la phase de regroupement, ces amas de bulles stabilisés peuvent être ponctuels (Figure 134) ou linéaires (Figure 135).

Chapitre 5 : Mise en perspective des travaux réalisés



Figure 134 : Grappes de bulles ponctuelles



Figure 135 : Grappes de bulles linéaires

Les photographies des Figure 134 et Figure 135 illustrent une des particularités des grappes de bulles : la quasi-absence du phénomène de coalescence. Les bulles sont très proches mais à quelques exceptions près, elles conservent la même taille que les bulles présentes dans le nuage au repos (Figure 131). A noter, vu leur taille, que les quelques grosses bulles qui ont coalescées ont vraisemblablement subi des coalescences successives.

Les photographies de la Figure 136 présentent quelques rares cas où des grappes de bulles ont fortement coalescées.



Figure 136 : Grappes de bulles avec phénomène marqué de coalescence

L'apparition de ce phénomène étant inattendue, des recherches bibliographiques ont été menées. Après une exploration de la piste de la force de radiation acoustique et des forces de Bjerknes (présentées plus loin), ce sont finalement les travaux de Doïnikov qui nous ont permis *a posteriori* d'identifier ce phénomène de façon précise.

### 5.2.2.2. Identification du phénomène

Le phénomène observé a été analysé et publié en 1996 par A. Doïnikov sous l'appellation « grappes de bulles » (bubble grapes en anglais) [Doi96]. Selon lui, le phénomène avait

précédemment été observé par P. Marston *et al.* en 1994 et probablement aussi par Kobelev *et al.* en 1995.

Suite à cette première présentation, Doïnikov a publié de nombreux travaux sur ce phénomène et plus globalement sur les interactions entre bulles excitées acoustiquement [Doi99 – Doi01-1 – Doi01-2 – Doi02-1 – Doi02-2].

L'interprétation donnée par Doïnikov est un élargissement de la théorie de Bjerknes. La théorie de Bjerknes date du début du XX<sup>ème</sup> siècle [Bje06] et introduit deux forces : les forces dites de Bjerknes primaires et secondaires.

### 5.2.2.2.1. Les forces de Bjerknes

Les forces de Bjerknes sont des forces d'Archimède généralisées, qui apparaissent lorsqu'une particule (pour nous une bulle) immergée dans un fluide (pour nous le liquide) est placée dans un champ acoustique. Elles résultent des différences de pression appliquées à la particule. Deux forces sont à distinguer : la force dite de Bjerknes primaire et celle dite de Bjerknes secondaire [Cru75].

### Force de Bjerknes primaire

Dans le cas d'un champ acoustique, une première contribution à ces forces est la pression acoustique engendrée par l'onde.

Il apparaît que pour une bulle dans un champ acoustique, cette force est le produit de deux termes oscillants : le volume de la bulle et le gradient de pression acoustique. La moyenne sur une période de cette force est donc en général non nulle, et liée au déphasage entre ces deux termes.

Dans l'approximation linéaire, la force moyenne subie par une bulle est dirigée vers les ventres de pression pour une bulle de taille inférieure au rayon de résonance, et vers les nœuds pour une bulle de taille supérieure au rayon de résonance [Lei90].

### Force de Bjerknes secondaire

En plus du champ d'accélération produit par l'onde acoustique, le champ d'accélération produit par une bulle voisine est ici pris en compte. Le produit de celui-ci par les variations de volume de la bulle étant ici encore à moyenne non nulle, il en résulte une force nette dirigée sur l'axe reliant les centres des deux bulles.

La théorie linéaire prédit alors, une attraction entre des bulles de rayons de repos situés du même côté (*i.e.* toutes les deux au dessus ou en dessous) du rayon de résonance, et une répulsion dans le cas contraire.

### 5.2.2.2.2. Interprétation du phénomène de grappes de bulles

Selon la théorie, la force de Bjerknes secondaire fait donc se rapprocher des bulles de taille proche soumises à une excitation acoustique jusqu'à la coalescence de ces dernières.

Doïnikov a apporté une légère modification à la théorie de Bkjernes en montrant théoriquement et expérimentalement que lorsque l'interaction de deux bulles conduit à leur rapprochement, ce dernier aura pour effet de modifier leurs fréquences de résonance et conduira, lorsqu'elles seront suffisamment proches, à un effet de répulsion mutuelle empêchant tout phénomène de coalescence. Une fois suffisamment éloignées l'une de l'autre, elles se rapprocheront à nouveau et ainsi de suite. Un équilibre attraction-répulsion empêchant toute coalescence se met donc en place et conduit à la formation de ces « grappes » tant que les bulles restent soumises à une excitation acoustique.

C'est ce que nous observons expérimentalement. Les rares coalescences peuvent s'expliquer grâce aux travaux de [Dui96] qui complètent l'analyse de Doïnikov en montrant que deux bulles

se rapprochent sans coalescer à condition que la vitesse de déplacement de leurs parois soit supérieure à un seuil donné.

### 5.2.2.3. Implications industrielles du phénomène de grappes de bulles

Le phénomène de grappes de bulles a ici été observé pour une excitation acoustique de quelques dizaines de kPa seulement.

Ceci présente potentiellement des conséquences importantes vis-à-vis des mesures acoustiques en réacteur. En effet, il est probable que le même phénomène ait lieu au sein du sodium liquide. Or, des mesures acoustiques provoquant ne serait-ce qu'un peu de coalescence et modifiant de façon radicale l'homogénéité spatiale du nuage de bulles pourraient se révéler problématiques, tant du point de vue de la modification des propriétés acoustiques du milieu que du point de vue de la formation de poches de gaz.

Ceci pourrait conduire à établir des seuils de pression acoustique à ne pas dépasser à certaines fréquences au sein du sodium primaire engazé des SFR. Ceci, d'autant plus que pour s'affranchir des fortes atténuations induites par le caractère diphasique du sodium, l'approche la plus simple consiste en général à augmenter la pression acoustique émise.

L'apparition de ce phénomène soulève donc les questions suivantes, aujourd'hui non résolues :

- Que ce passe t-il si la fréquence de résonance des bulles présentes est proche voire identique à la fréquence de travail ? Ce phénomène est-il amplifié ? Se traduit-il par une autre forme ?
- Quelles sont les valeurs seuils des pressions acoustiques conduisant à l'apparition du phénomène pour une fréquence donnée (et probablement pour un éloignement à la fréquence de résonance des bulles et une distance moyenne entre bulles donnés) ?
- Le nuage n'est clairement plus spatialement homogène : cela ne gênera-t-il pas la mise en œuvre, dans une zone touchée par ce phénomène, de contrôles acoustiques ou ultrasonores qui identifient le milieu diphasique comme un milieu homogène équivalent (mesures basées sur des temps de vol par exemple) ?
- Quelques évènements de coalescence ont été observés (voir Figure 135 et Figure 136), ce qui contredit les travaux de Doïnikov. Cette coalescence est-elle bien due à un seuil de vitesse non franchi comme le suggère [Dui96]? Est-il possible de l'éviter ? Si oui, de quelle manière ?
- Doit-on nécessairement éviter le phénomène de grappes de bulles dans un SFR ?

Le phénomène de grappes de bulles et les questions qu'il soulève pourraient probablement constituer un sujet de recherche à part entière.

### **5.3. Perspectives acoustiques**

Les perspectives à court terme liées au mixage de fréquence et à la spectroscopie de résonance non linéaire ont été présentées précédemment. Les différents travaux de recherche bibliographique et expérimentaux ouvrent cependant d'autres perspectives, plus larges.

Outre les observations qui viennent d'être développées et qui mériteraient des approfondissements théoriques et expérimentaux, d'autres idées permettraient potentiellement d'approfondir les techniques expérimentées et d'améliorer les résultats obtenus à ce jour.

### 5.3.1. Résonateur de Helmholtz et modèle de Wood

L'application du modèle de Wood grâce à l'exploitation du comportement linéaire du résonateur de Helmholtz a permis une évaluation fine de faibles taux de vide. Une validation complète de la

démarche reste néanmoins à réaliser grâce à une mesure de référence telle qu'une mesure optique.

### 5.3.2. Evaluation des paramètres de non linéarité

La spectroscopie de résonance non linéaire permettra probablement de remonter à un ou plusieurs indicateurs de la non linéarité d'un nuage de bulles. Cet objectif pourrait être atteint avec une autre technique : le DAET (Dynamic Acousto Elastic Technique) qui couple une modulation du temps de vol (dite TOFM pour Time Of Flight Modulation) et une modulation relative d'amplitude (dite RAM pour Relative Amplitude Modulation) ou d'énergie (dite REM pour Relative Energy Amplitude) [Ren08 – Mor09].



Figure 137 : Principe de la technique DAET [Ren08]

Cette technique est très attrayante car elle permet de remonter aux différents paramètres non linéaires ( $\beta$ ,  $\delta$  et  $\alpha$  par exemple) d'un milieu (en les identifiant indépendamment contrairement à de nombreuses autres techniques qui ne permettent de remonter qu'à un paramètre de non-linéarité global) et à la signature hystérétique, le cas échéant.

Le principe consiste à exciter à basse fréquence et forte amplitude le milieu ([Ren08] et [Mo09] utilisent un pot vibrant) et à venir le sonder avec des impulsions hautes fréquences. Ce sont les variations de temps de vol et d'amplitude (ou d'énergie) de ces impulsions qui permettent de remonter aux non-linéarités du milieu.

L'application d'une telle technique sur un nuage de bulles nues, en plus d'être originale, permettrait de mieux appréhender le comportement non linéaire à basse-fréquence d'un nuage

de bulles. Sa mise en œuvre pourrait être envisagée au sein d'un résonateur de Helmholtz par exemple.

### 5.3.3. Combinaison de techniques

Les caractéristiques d'un nuage de bulles telles que son taux de vide et son histogramme des rayons des bulles pourraient être évaluées grâce à la combinaison de plusieurs techniques. La première combinaison qui vient à l'esprit est bien sûr le couplage mixage de fréquences / résonateur de Helmholtz (avec application du modèle de Wood).

Le mixage de fréquence permettant de reconstruire l'histogramme des rayons des bulles relatif et le modèle de Wood appliqué grâce au résonateur de Helmholtz permettant d'évaluer le taux de vide. Il serait ainsi avantageux d'effectuer le mixage de fréquences au sein du résonateur.

Mais d'autres combinaisons sont envisageables. Dans le cas où une première technique ne permet d'obtenir qu'un histogramme relatif des rayons des bulles d'un nuage, il serait avantageux d'y coupler une technique linéaire de réflexion très haute fréquence. En effet, si la longueur d'onde est très supérieure au rayon des bulles, ces dernières se comportent comme de simples réflecteurs acoustiques. L'application de cette technique sur un nuage peu dense permet alors de remonter au maître couple total du nuage, c'est-à-dire la section projetée des bulles dans le sens de propagation acoustique [Cha84]. Cette valeur permettrait de recaler l'histogramme des rayons afin de le rendre absolu. En partant de l'histogramme relatif :

$$\int_{0}^{\infty} n(r) \, dr \tag{5.4}$$

La connaissance du maître couple total du nuage  $S_t$  grâce à une mesure THF et de l'histogramme relatif, il suffit alors de déterminer X tel que :

$$X.\pi \int_{0}^{\infty} r^{2}.n(r).\,dr = S_{t}$$
(5.5)

L'histogramme des rayons des bulles absolu est alors défini par :

$$X.\int_{0}^{\infty} n(r).\,dr\tag{5.6}$$

Si l'idée est attrayante, son application est très difficile dans notre cas puisque 10  $\mu$ m dans du sodium liquide à 550°C correspond à une longueur d'une onde émise à 229 MHz. Une longueur d'onde très inférieure signifie donc une fréquence très supérieure à cette dernière (en faisant de plus l'hypothèse de l'absence de bulles de rayon inférieur à 10  $\mu$ m). Au-delà de la difficulté technologique, se poserait ici la question de l'atténuation de telles fréquences par le milieu.

Toujours dans le cas où une première technique ne permet d'obtenir qu'un histogramme relatif des rayons des bulles d'un nuage, Van der Biest [Bie05] a exploité le modèle de dispersion d'une onde à travers une assemblée de diffuseurs de Foldy [Fol45]. Ainsi, à partir d'une mesure de l'atténuation en fonction de la fréquence et d'un histogramme des rayons des bulles relatif, le modèle de Foldy permet un recalage aboutissant à l'obtention de l'histogramme des rayons absolu et, par voie de conséquence, du taux de vide. Cette combinaison semble très intéressante et devant la simplicité d'une mise en œuvre de mesures d'atténuation, son application pourrait être envisagée à court terme.

### 5.3.4. Transposition au cas industriel

La validation en eau de techniques acoustiques de caractérisation d'un nuage de bulles ne constitue que la première étape de l'objectif industriel qui est la caractérisation de l'engazement du sodium liquide. Avant des expérimentations en sodium liquide, des étapes intermédiaires doivent être validées.

### 5.3.4.1. Validation en eau avec des capteurs industriels

Ce point a déjà été abordé au §.3.6.2. Il concerne la validation en eau des techniques sélectionnées avec des traducteurs acoustiques compatibles avec du sodium liquide. Les TUSHT sont ici les candidats naturels mais sont aussi envisageables les capteurs équivalents développés par le passé par UKAEA, les capteurs à base tourmaline ou encore les capteurs en cours de développement.

### 5.3.4.2. Validation en eau au sein d'un nuage de microbulles

La validation en eau (d'une technique de mixage de fréquences par exemple) ne sera totalement aboutie que lorsqu'elle donnera satisfaction avec des capteurs compatibles avec le sodium liquide au sein d'un milieu totalement engazé et non autour d'un nuage de bulles comme cela était le cas dans cette étude.

Cela implique d'être en mesure de générer des nuages de bulles d'un volume bien plus important, ce qui n'est pas envisageable avec notre dispositif actuel. Quelques pistes sont proposées.

### 5.3.4.2.1. Aéroflottation à plus grande échelle

Une première solution consisterait à utiliser une technique d'aéroflottation à bien plus grande échelle. [Arz81] utilisait un tel dispositif (voir Figure 138).



Figure 138 : Schéma du dispositif de génération de bulles par aéroflottation du LMA [Ger91]

Ce banc permettait de générer des bulles dont le rayon était compris entre quelques micromètres et 100  $\mu$ m, le rayon moyen se situant entre 30 et 50  $\mu$ m. La dissolution de l'air s'y effectuait sous 5 bars. Le volume du nuage obtenu était d'environ 0,5 m<sup>3</sup>.

L'aéroflottateur, fourni par la Société Générale pour les Techniques Nouvelles, était constitué d'une pompe multi-étages (800 L.h<sup>-1</sup>, 8 bars) alimentant en eau un ballon hydrocompresseur.
#### 5.3.4.2.2. Génération de microbulles par cisaillement

D'autres techniques de génération de microbulles seraient applicables dans le but de générer des micro-engazements de grands volumes, en particulier des techniques basées sur le cisaillement d'un écoulement eau-air.

Le LMA expérimente actuellement un dispositif basé sur ce principe. Comme dans le cas précédent, le générateur est un détournement de dispositif industriel puisqu'il s'agit ici d'un hydropulseur habituellement utilisé dans le cadre de l'hygiène dentaire (Braun Oxyjet). Il génère un jet à haute pression d'un mélange eau – microbulles d'air. Ce dispositif présente l'avantage de pouvoir fonctionner en système fermé. Il a par ailleurs été mis en œuvre par [Sha05] dans le but d'étudier l'influence des microbulles sur le décrochement bactérien.

Sans modifications, il génère un nuage de bulles dont les caractéristiques mesurées par un granulomètre laser Spraytech sont données Figure 139.



Figure 139 : Histogramme des rayons des bulles générées par hydropulseur

Deux populations de bulles sont ici détectées : une première entre 10 et 20  $\mu$ m de diamètre et une deuxième, bien plus importante, entre 30  $\mu$ m et 1 mm avec un diamètre central entre 100 et 200  $\mu$ m. L'hydropulseur dispose d'une petite turbine entrainée par l'écoulement qu'il est possible de bloquer. Lorsque c'est le cas, l'histogramme des rayons des bulles générées est différent (voir Figure 140). Son étalement est plus faible et il est centré sur une valeur de diamètre plus faible.



Figure 140 : Histogramme des rayons des bulles générées par hydropulseur turbine bloquée

Les bulles générées avec ce dispositif présentent donc des rayons assez nettement supérieurs à ce qu'il est possible d'obtenir avec un aéroflottateur. Signalons que les différentes positions de réglage du débit de l'hydropulseur n'ont pas d'influence notable sur l'histogramme des rayons.

La combinaison de plusieurs de ces hydropulseurs permettrait d'engazer des volumes bien plus importants que l'aéroflottateur utilisé jusqu'à présent.

Un autre détournement avantageux consisterait à exploiter les écumeurs utilisés par la filtration des aquariums récifaux. Basés sur différentes techniques (diffusion, venturi, dispergateur...). Ils permettent de générer des nuages très denses de bulles et relativement fines (de l'ordre de la centaine de micromètres de rayon).

#### 5.3.5. Expérimentations en sodium liquide

Une fois des techniques validées en eau avec des traducteurs acoustiques compatibles avec le sodium liquide, l'étape expérimentale finale pourra être envisagée.

#### 5.3.5.1. Génération d'un nuage de microbulles

Abstraction faite du problème des capteurs, supposé résolu par des essais en eau, la principale difficulté réside ici dans la génération d'un nuage de microbulles contrôlé. Si la génération en elle-même est envisageable par une technique inspirée de l'aéroflottation, le contrôle des caractéristiques de ce nuage ne pourra plus se faire de façon optique. Deux approches sont alors possibles :

- La génération d'un nuage de bulles en ayant la connaissance du volume de gaz injecté ou généré par le dispositif. Cette approche semble très difficilement envisageable avec une technique de génération de bulles inspirée de l'aéroflottation. Elle paraît plus réaliste avec les techniques basées sur l'injection et le cisaillement d'un flux d'air.
- La génération d'un nuage de bulles avec mesure de ses caractéristiques une fois les bulles générées. C'est avec cette approche qu'ont été menées nos expérimentations en eau. Mais, sans moyens optiques, elle semble très difficile à envisager ici. Elle mériterait cependant une réflexion plus approfondie.

La question de la génération et du contrôle d'un nuage de bulles dans du sodium liquide n'était pas l'objet de nos travaux mais il apparaît tout de même que ce point risque d'être difficile à résoudre.

#### 5.3.5.2. Alliages fusibles

Le sodium liquide présente l'inconvénient d'être réactif à l'air et surtout à l'eau. Ceci impose des contraintes lourdes lors de la mise en œuvre d'expérimentations mettant en jeu ce fluide. Une solution alternative si l'objectif est de valider une technique avec un métal liquide est de mettre en œuvre un alliage eutectique dit « fusible ». Ces alliages de métaux présentent la particularité d'avoir un point de fusion bien plus bas que les points de fusion des métaux le constituant.

Il existe plusieurs alliages eutectiques dits fusibles dont la particularité est un bas point de fusion (< 150°C). L'alliage de ce type le plus connu est le métal de Wood mais il en existe d'autres (voir Tableau 12).

	Bismuth	Cadmium	Etain	Galium	Indium	Plomb	Potassium	Sodium	Point de fusion
Métal de Wood	50 %	12,5 %	12,5 %			25 %			~ 70°C
Métal de Field	32,5 %		16,5 %		51%				62°C
Galinstan			10 %	68,5 %	21,5 %				-19°C
Métal de Rose	50 %		22-25 %			25-28 %			100°C
NaK							40-90 %	10-60 %	-12,6°C

Tableau 12 : Composition de quelques alliages fusibles présentant un point de fusion < 100°C

Le métal de Wood et celui de Rose présentent l'inconvénient de contenir du plomb, toxique. Quant au NaK, il présente le même comportement que le sodium en termes de réactivité.

#### 5.3.5.3. Implantation sur une boucle sodium

La complexité du développement d'un nouveau dispositif sodium complet imposerait probablement d'implanter dispositif de génération de bulles et dispositif(s) acoustique(s) sur une boucle existante. Une étude sera à mener sur les dispositifs disponibles au CEA de Cadarache (et éventuellement à l'étranger) afin de déterminer laquelle serait la plus à même de recevoir ces dispositifs.

#### 5.4. Elargissement de la problématique industrielle

Cette étude s'est centrée sur la problématique de l'engazement continu du sodium liquide primaire des SFR. Au-delà de la transposition au sodium liquide, l'implantation *in situ* au sein d'un SFR soulève dès à présent la question du cahier des charges de l'étape finale avec une question principale : où veut-on caractériser l'engazement et où est-il possible de le caractériser ?

La mesure de l'engazement du sodium liquide peut par ailleurs être requise dans d'autres circonstances dans un SFR : engazement incidentel et engazement du circuit secondaire principalement. Le choix et la définition d'une méthode acoustique pourra se faire avec pour critère de choix l'applicabilité de cette méthode à ces autres cas.

# 5.4.1. Définition précise du cahier des charges vis-à-vis de la mesure de l'engazement

La mesure de l'engazement continu pose une autre question : celle du choix du lieu de mesure. Quelques remarques à ce sujet :

Pour la modélisation des phénomènes d'accumulation de poches de gaz sous les structures immergées situées en amont du cœur, une mesure dans le collecteur froid serait la plus adéquate.

Pour un « recalage » des propriétés acoustiques, une mesure au plus proche du dispositif nécessitant ce recalage serait la plus appropriée (au niveau du collecteur chaud pour un dispositif type VISUS par exemple).

D'un point de vue phénoménologique, les taux de vide les plus élevés seront *a priori* mesurés dans le collecteur froid, d'une part car la température y est minimale et d'autre part car nous nous situons alors au plus près de la principale source d'engazement continue : la nucléation sur les parois froides en sortie des échangeurs de chaleur.

La question de l'exploitation de la mesure est aussi posée : elle passera probablement par la détermination de seuils d'engazement vis-à-vis du fonctionnement sûr.

## 5.4.2. Elargissement à la mesure de l'engazement incidentel et dans le circuit secondaire

Sont ici présentées les autres situations menant à la présence de bulles dans le sodium liquide d'un SFR et auxquelles pourrait éventuellement s'appliquer une technique de caractérisation acoustique de l'engazement.

#### 5.4.2.1. L'engazement incidentel

En plus de l'engazement continu, le sodium primaire peut aussi subir un engazement incidentel, pour des causes variées. Citons par exemple :

- Les cloches d'échangeur où du gaz sous pression est présent pour assurer l'étanchéité et qui peuvent être sources d'engazement en cas de dépressurisation ou de surpressurisation (cas de Superphénix)
- Des zones de piégeage du gaz en point haut des structures immergées (sommier, platelage...) qui conduisent à la formation de poches de gaz lors de la circulation de sodium engazé et qui, le cas échéant, peuvent être relâchées de façon brusque et discontinue, en particulier lors de régimes transitoires.
- Les aiguilles combustibles du cœur qui peuvent relâcher des gaz de fission (Xe, Kr) en cas de rupture complète ou de simple fissuration.
- Les phénomènes locaux de cavitation (au niveau des pompes sodium par exemple), à l'origine de bulles de vapeur de sodium.
- Les sources extérieures de refroidissement de certains circuits auxiliaires (purification, chambres de mesure...), généralement de l'azote sous pression qui conduisent à un relâchement gazeux en cas de rupture.
- Les réactions chimiques engendrées par la chute de corps étrangers dans le sodium : chute d'huile, d'hydrures, d'élastomère... et qui peuvent dégager des gaz.
- L'ébullition locale du sodium au niveau du cœur qui conduit à l'apparition de bulles de vapeur de sodium.
- L'emballement des sources d'engazement continu (survitesse des pompes primaires par exemple, ce qui conduirait à l'augmentation de l'entraînement de gaz).
- Les vagues consécutives à un séisme apparaissant à la surface du sodium (le réacteur serait alors arrêté).

Signalons que les poches de vapeur qui apparaissent lors de phénomènes de cavitation ou d'ébullition sont généralement de faible taille et très rapidement et très localement recondensées.

Ces situations d'engazement entraînent, pour la plupart, des bulles ou nuages de bulles aux caractéristiques très différentes de celles de l'engazement continu. Il est donc peu probable qu'une technique acoustique puisse être adaptée à toutes situations mais la question vaut la peine d'être posée.

Il est à noter que dans le cas de l'engazement incidentel, une « simple » détection et non une caractérisation pourra peut être suffire.

#### 5.4.2.2. L'engazement du circuit secondaire

#### 5.4.2.2.1. L'engazement continu du circuit secondaire

Dans le cas d'un circuit extérieur ou d'un circuit secondaire, l'engazement du sodium peut être continu, pour les mêmes raisons que le cas de l'engazement continu du sodium primaire.

Notons que les générateurs de vapeur conduisent à une diffusion de l'hydrogène à travers les parois métalliques, ce qui a pour conséquence la présence d'hydrogène dissous dans le sodium. Ce dernier faisant par ailleurs l'objet d'une purification, il ne peut, dans les conditions normales de fonctionnement, être à l'origine de phénomènes de nucléation de bulles d'hydrogène.

#### 5.4.2.2.2. L'engazement incidentel du circuit secondaire

Deux principales sources d'engazement incidentel ou accidentel du sodium sont à citer ici :

• En présence d'un générateur de vapeur sodium-eau, l'apparition d'une fuite dans un des tubes de ce dernier entraîne l'injection d'eau ou de vapeur dans le sodium et une réaction fortement exothermique se déroule :

$$Na + H_2O \Rightarrow NaOH + \frac{1}{2} H_2$$
(5.7)

Se produit alors l'apparition de bulles d'hydrogène dans le sodium. En règle générale, ces bulles se dissolvent très rapidement dans le sodium.

 En présence d'un échangeur sodium-gaz (solution à l'étude dans le cadre de la recherche concernant les réacteurs de quatrième génération), une fuite entraînerait l'engazement du sodium par le gaz caloporteur utilisé dans cet échangeur (CO<sub>2</sub> supercritique, hélium, azote, mélange hélium/azote...).

L'applicabilité des techniques étudiées à ces élargissements de la problématique industrielle est difficilement évaluable à ce stade des réflexions car elle passe par la connaissance, d'une part des limitations de ces techniques en termes de taux de vide et de tailles des bulles, et d'autre part des caractéristiques de ces autres types d'engazement, toujours en termes de taux de vide et de tailles des bulles. Or nous ne disposons pas, à ce jour, de ces informations.

## Conclusion générale

L'objectif de cette étude réside dans le développement de techniques de caractérisation de l'engazement du sodium liquide primaire des réacteurs nucléaires de quatrième génération de type SFR, c'est-à-dire de mesure du taux de vide et de l'histogramme des rayons des bulles. Cet engazement prend la forme de microbulles de gaz, essentiellement de l'argon, avec des rayons compris entre une dizaine et une centaine de micromètres et présentant de faibles taux de vide de l'ordre de 10<sup>-6</sup>.

Le premier chapitre fut consacré à l'étude des origines, causes et conséquences de cet engazement. Ainsi, la présence normale et continue de microbulles de gaz dans le sodium primaire est liée à la présence d'un gaz de couverture au dessus de ce sodium. Généralement constitué d'argon, ce gaz peut être entrainé dans le sodium liquide via la formation de vortex, le long des arbres de pompe ou encore via la chute de sodium d'un système de déversoir. Mais le principal phénomène conduisant à la formation de microbulles est la dissolution de ce gaz et l'atteinte d'un état de sursaturation conduisant à de la nucléation de bulles dans certaines zones du réacteur, principalement au niveau des parois froides de sortie des échangeurs de chaleur. Si cet engazement n'a pas de conséquence directe sur le comportement thermique et neutronique du cœur, il entraîne cependant une profonde modification des propriétés acoustiques du sodium liquide, principalement en termes de célérité et d'atténuation des ondes, et peut aussi conduire à la formation potentielle de poches de gaz auquel est associé un risque de relâchement brusque générateur de perturbations. En plus de la maîtrise de ces conséquences, la caractérisation de cet engazement a pour enjeu la validation de codes de calcul simulant l'évolution d'une population de bulles au sein d'un réacteur. Il ressort de cette étude que la caractérisation de l'engazement du sodium liquide primaire des SFR constitue un enjeu important dans l'optique de l'amélioration de la démonstration de la sûreté et de la surveillance du fonctionnement de ce type de réacteur. Suite à cette étude des conditions de la problématique industrielle, les bases de la physique des bulles de gaz dans un liquide ont été présentées.

Une étude bibliographique a, par la suite, montré que, parmi les différentes techniques envisageables, l'opacité du sodium liquide et ses excellentes propriétés électriques rendent inexploitable bon nombre d'entre elles. Finalement, seules les techniques acoustiques sont à même d'évaluer de si faibles taux de vide et de reconstruire l'histogramme des rayons des bulles caractéristiques de cet engazement. Le comportement acoustique des milieux diphasiques a donc été exploré avant de dresser l'état de l'art des différentes techniques acoustiques linéaires applicables aux bulles et nuages de bulles. Les techniques acoustiques linéaires présentent cependant une limitation majeure : lorsqu'aucune donnée n'est disponible *a priori* sur la taille des bulles en présence elles ne permettent pas de différencier une bulle résonante d'une large bulle.

Les exigences de sécurité nous imposent de disposer de méthodes ne nécessitant pas d'hypothèses initiales. Or, il est apparu que le comportement de résonance non linéaire d'une bulle ne présente pas cette ambiguïté entre bulle résonante et large bulle. Après une courte présentation introductive des bases de l'acoustique non linéaire, le second chapitre de cette étude s'est donc focalisé, dans un premier temps, sur le comportement dynamique non linéaire d'une bulle de gaz dans un liquide excitée par une onde acoustique et, dans un second temps, sur un état de l'art qui se veut exhaustif des différentes techniques acoustiques non linéaires applicables aux bulles et nuage de bulles. De cet état de l'art sont ressorties deux techniques qui nous ont semblé prometteuses : le mixage de fréquences et la spectroscopie de résonance non linéaire. Le mixage de fréquences consiste à exciter un système avec deux fréquences. La réponse non linéaire du système conduit alors à l'apparition des fréquences somme et différence des deux fréquences excitatrices. Une mise en œuvre de cette technique sur un nuage de bulles permet de détecter les bulles résonantes et, grâce à un balayage fréquentiel avec une des deux

fréquences excitatrices, de remonter à l'histogramme des rayons des bulles présentes. La spectroscopie de résonance non linéaire consiste pour sa part à observer et exploiter les décalages de la fréquence de résonance d'un système non linéaire excité à diverses amplitudes de pression acoustique.

Afin d'expérimenter ces deux techniques, le banc expérimental MESANGE a été conçu et mis en place. Il comprend un dispositif de génération de bulles d'air dans de l'eau et un dispositif de contrôle optique. Le nuage de microbulles généré présente des caractéristiques similaires au cas industriel. Il est basé sur le principe de l'aéroflottation : une phase d'enrichissement en air dissous puis une détente conduisant à la nucléation de microbulles consécutives à un état de sursaturation. Le dispositif de contrôle optique basé sur une caméra immergée permet par ailleurs d'obtenir les histogrammes des rayons des bulles générées, considérés par la suite comme références pour les expérimentations acoustiques.

Grâce au banc MESANGE, deux techniques de mixage de fréquences ont été expérimentées. La première consiste à mixer une haute et une basse fréquence (HF-BF). Le balayage est effectué avec la basse fréquence. Les fréquences somme et différence recherchées apparaissent lorsque cette basse fréquence coïncide avec la fréquence de résonance de bulles présentes dans le nuage. Cette technique nous a permis de reconstruire des histogrammes des rayons d'une population de microbulles. La concordance entre histogrammes optiques de référence et histogrammes reconstruit acoustiquement est excellente et va bien au-delà de ce qui avait été fait jusqu'à ce jour. Ces résultats ont, de plus, été obtenus sans l'utilisation d'amplificateurs électroniques, tant à l'émission qu'à la réception. Nous avons par ailleurs pu observer plusieurs phénomènes acoustiques remarquables découlant, *a priori*, de l'apparition des modes de distorsion surfacique des bulles avec en particulier l'apparition de fréquences sub-sub-différences inédites à ce jour.

La deuxième technique de mixage de fréquences expérimentée fut le mixage de deux hautes fréquences (HF-HF). L'objectif était ici de faire coïncider la différence entre ces deux fréquences avec la fréquence de résonance de bulles présentes afin de générer cette fréquence différence. La détection de bulles résonante, encore une fois sans amplificateurs, a prouvé la faisabilité de cette technique. Le trop faible nombre de bulles détectées n'a cependant pas permis de reconstruire un histogramme des rayons représentatif. Cette technique reste potentiellement intéressante pour l'application industrielle visée, compte tenu des capteurs acoustiques immergeables en sodium liquide actuellement disponibles. Mis à part ce problème des capteurs, la transposition au sodium liquide de techniques de mixages de fréquences ne semble, *a priori*, pas poser de difficultés d'un point de vue physique.

La mise en œuvre expérimentale originale de la spectroscopie de résonance non linéaire basse fréquence a, pour sa part, nécessité l'utilisation de résonateurs acoustiques afin d'être en mesure d'observer des fréquences de résonances liées aux nuages de bulles. Deux types de résonateurs acoustiques ont été expérimentés. Le premier, un résonateur constitué de deux plaques, a permis d'observer les décalages fréquentiels attendus. La présence d'interférences géométriques n'a toutefois pas permis l'exploitation de ces derniers. Le deuxième, un résonateur de Helmholtz, n'a malheureusement pas pu être utilisé avec des pressions acoustiques suffisantes pour permettre l'apparition du comportement acoustique non linéaire du nuage de bulles. Ce résonateur a cependant permis, grâce à sa très basse fréquence de résonance, d'appliquer le modèle acoustique linéaire de Wood liant célérité acoustique basse fréquence et taux de vide. Il a ainsi été possible d'évaluer de façon fine le taux de vide du nuage de bulles généré.

Les résultats préliminaires et les perspectives de la spectroscopie de résonance non linéaire appliquée à un nuage de nuage ont permis le dépôt d'un brevet intitulé *« Procédé de détermination de taux de vide par spectroscopie de résonance acoustique non linéaire dans une milieu diphasique et application dans un réacteur nucléaire »* en mai 2010.

Une première approche de la simulation et de la modélisation du comportement non linéaire d'une bulle à sa résonance et d'un nuage de bulles à basse fréquence a été tentée. Les résultats obtenus à ce jour pourront ainsi être comparés avec les résultats expérimentaux dès qu'un résonateur de Helmholtz pourra être couplé avec un dispositif d'excitation acoustique suffisamment puissant.

En conclusion, les perspectives qu'ouvrent les travaux menés tout au long de cette étude sont nombreuses. Parmi les principales, notons la technique de mixage HF-BF qui semble aujourd'hui suffisamment mûre pour être exploitée. Ce n'est pas encore le cas de la technique HF-HF mais des expérimentations en eau avec d'autres configurations d'excitations acoustiques permettraient probablement d'obtenir de biens meilleurs résultats.

Par ailleurs, le transfert des techniques de mixage de fréquence au sodium liquide passera essentiellement par la résolution de la question des capteurs. Des essais avec les capteurs compatibles avec le sodium actuellement disponibles, en particulier le TUSHT du CEA, sont prévus. S'ils sont concluants, une application industrielle pourrait alors être envisagée.

Conclusion générale

## Annexes : table des matières

ANNEXE 1 : LE BANC MESANGE	. 175
ANNEXE 2 : ETALONNAGE DU DISPOSITIF OPTIQUE COUPLE AU TRAITEMENT D'IMAGES DEVELOPPE	. 185
ANNEXE 3 : PRINCIPALES CARACTERISTIQUES PHYSIQUES ET ACOUSTIQUE DU SODIUM LIQUIDE	.201
ANNEXE 4 : CARACTERISTIQUES ACOUSTIQUES D'UN TRADUCTEUR FOCALISE	. 203

### ANNEXE 1 : Le banc Mésange

#### 1. Dispositif de génération de bulles

La technique retenue pour la génération de nuages de microbulles est l'aéroflottation. Cette technique est basée sur la loi de Henry selon laquelle, à l'équilibre de saturation, la concentration en gaz dissous dans le liquide, *C*, est proportionnelle à la pression partielle du gaz au dessus du liquide  $P_g$ :

$$C_q = \beta_q \cdot P_q \tag{A1.1}$$

Avec  $\beta_g$  le coefficient de solubilité du gaz dans le liquide, aussi appelé coefficient de Henry (unité variable, généralement en mol/unité molaire, de volume ou de masse par unité de pression). Cette loi reste empirique et ne modélise que les dissolutions idéales.

A 20°C et pour une pression de 1013 hPa, la solubilité des différents constituants de l'air correspond, à saturation, à une concentration en air dissous dans l'eau de 0,0187 L.L<sup>-1</sup>.

Dans le cadre du traitement des eaux usées, les microbulles ainsi générées jouent le rôle de « bouée » : en s'agglomérant aux floculations, elles permettent à ces dernières de remonter en surface pour former une mousse qui sera aisément éliminée. Une technique similaire est utilisée pour la filtration de l'eau des aquariums récifaux (eau de mer).

Dans notre cas, seule la partie génération de nuages de microbulles d'air nous intéresse. Certains concepteurs d'unité de traitements des eaux usées commercialisent des kits de test du principe de la filtration par l'aéroflottation. Ceux-ci permettent de tester le procédé sur un échantillon d'eau usée.

Par ce biais, nous avons donc pu nous procurer un petit aéroflottateur commercialisé par Sciential Solutions (USA). Ce dernier est constitué de :

- Une pompe à vide utilisée ici comme compresseur d'air (pression maximale = 7 bars) équipée de deux manomètres (afin de mesurer la pression d'admission et la pression de sortie).
- Une enceinte de dissolution équipée d'un manomètre



Figure 141 : Kit de test de l'aéroflottation commercialisé par Sciential Solutions

Le fonctionnement de ce dispositif est simple :

- Le réacteur est rempli d'eau au  $\sim 4/5^{\text{ème}}$ .
- La pression du réacteur est alors portée à ~7 bars grâce au compresseur.

- Une attente de quelques minutes permet d'atteindre l'état de saturation de l'eau en air dissous.
- La vanne de sortie du réacteur est alors ouverte afin de générer un flux d'eau sursaturée en aval, ce qui provoquera l'apparition de notre nuage de bulles.

Signalons que [Arz81] et [Ger91] ont utilisé au LMA (Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique – CNRS UPR 7051, Marseille) un dispositif industriel d'aéroflottation de fonctionnement similaire mais à plus grande échelle (voir Figure 138).

En ce qui concerne le taux de vide, en considérant un histogramme des rayons des bulles générées à peu près constant, un simple réglage du débit de sortie ou une dérivation à débit variable de la sortie permet de jouer directement sur sa valeur.

La photographie présentée Figure 142 correspond à un nuage de bulles généré avec notre dispositif dans une colonne de détente. L'aspect laiteux du mélange confirme qualitativement et en première approche la finesse des bulles générées.



Figure 142 : Nuage de microbulles généré dans une colonne de détente

#### 2. Dispositif de contrôle optique

Nous allons ici présenter brièvement chacun des éléments constitutifs du dispositif de mesures optiques développé.

#### <u>La caméra</u>

La caméra utilisée est une caméra de marque JAI (modèle BM-500 GE). Elle présente une définition de 2456 x 2058 pixels (~5 mégapixels) et possède un capteur monochrome CCD de 8,45 mm par 7,07 mm (ce qui correspond à un pixel de 3,45  $\mu$ m de côté). L'image de sortie peut être codée sur 8, 10 ou 12 bits à une fréquence de 15 images par seconde au maximum.

#### <u>L'optique</u>

Lorsqu'un capteur tel que l'œil humain ou une caméra observe une sphère, le contour apparent diffère du contour réel. Pour une mesure précise de la taille des bulles, cette différence est négligeable si la distance entre observateur et objet est largement supérieure au rayon de la

sphère. Dans le cas contraire, il est possible de déduire le rayon réel, *R*, fonction de la taille de la sphère et de la distance entre l'observateur et l'objet, grâce à la relation suivante :

$$R = \sqrt{\frac{D_{obs}(D_{obs} - \sqrt{D_{obs}^2 - 4.R_{app}^2})}{2}}$$
(A1.2)

avec R : le rayon réel de la sphère,  $D_{obs}$  : la distance entre le centre de la sphère et l'observateur,  $R_{app}$  : le rayon apparent de la sphère.

De plus, la présence d'interfaces avec changements d'indices optiques (hublot en plexiglas du caisson d'immersion) entraîne une déformation de l'image selon les lois de Snell-Descartes :

$$n_1.\sin\theta_1 = n_2.\sin\theta_2 \tag{A1.3}$$

avec  $n_1$ : l'indice optique du milieu 1,  $n_2$ : l'indice optique du milieu 2,  $\theta_1$ : l'angle formé par le rayon incident et la normale au point d'incidence,  $\theta_2$ : l'angle formé par le rayon réfracté et la normale au point d'incidence.

Cette déformation de l'image entraîne une erreur supplémentaire sur le rayon mesuré.

Une solution à ces deux problèmes consiste en l'utilisation d'optiques dites télécentriques qui par un jeu de lentilles successives permettent de ne capter que les rayons parallèles. Ces lentilles permettent de plus d'éviter les phénomènes de distorsion de l'image loin de son centre, ce qui rend possible l'exploitation de la totalité de l'image.

Les photographies à gauche de la Figure 54 présentent l'intérieur d'un cylindre crénelé et deux vis situées à différentes distances de l'objectif. Ne capter que les rayons parallèles permet d'obtenir une sorte de coupe réelle des objets.

Etant confrontés à des objets sphériques (les bulles) et des interfaces optiques, c'est donc tout naturellement que nous nous sommes tournés vers ce type d'optique.

Nous utilisons une optique télécentrique VS Technology VS-TC1.5-70 présentant un grandissement de 1.5, une distance de travail de 70 mm et une profondeur de champ de 660  $\mu$ m. Le capteur présentant une surface de 8,45 mm par 7,07 mm, la surface du champ optique est donc de 4,71 mm par 5,63 mm.

Calcul de la résolution du couple caméra-optique

$$Res = \left(\frac{S}{Def.\,G^2}\right)^{1/2} \tag{A1.4}$$

Avec Res : la résolution [μm.pixels<sup>-1/2</sup>= μm.longueur du côté d'un pixel<sup>-1</sup>] S : la surface du capteur [μm<sup>2</sup>] Def : la definition du capteurs [pixels] G : le grandissement de l'optique

$$Res = \left(\frac{8450.7070}{2456.2058 \cdot 1.5^2}\right)^{1/2} = 2,29 \ \mu m. \sqrt{pixel}^{-1}$$

Cette valeur correspond donc à la longueur du côté d'un pixel. Pour des bulles de rayon compris entre 1 et 10  $\mu$ m, cette résolution correspond en nombre de pixels par bulle aux valeurs données par le Tableau 5.

#### <u>L'éclairage</u>

Le type d'éclairage le plus approprié dans le cas du contrôle d'une population d'objets telle qu'un nuage de bulles est un éclairage par l'arrière dit « backlight ». Une puissance lumineuse suffisante est nécessaire afin de pouvoir utiliser des temps d'obturation de la caméra pour éviter les flous de bougé dus au déplacement des bulles. A cette fin, un spot LED classique (Lunartec) de 2 watts a été retenu.

#### <u>L'immergeabilité</u>

Afin de pouvoir immerger notre dispositif optique, un caisson immergeable conçu initialement pour les prises de vues vidéo amateur (Epic® Elite) a été modifié. Des éléments standards de tuyauterie PVC ont permis de réaliser l'étanchéité de l'éclairage LED.



Figure 143 : Schéma de principe et photo du dispositif optique

Une vue légendée plus générale est présentée Figure 55.

Le dispositif optique développé permet d'obtenir des photos du nuage de bulles du type de celle présentée Figure 56.

Des bulles plus ou moins nettes y apparaissent. Afin de pouvoir extraire de ces photos l'histogramme des rayons des bulles et le taux de vide, un traitement d'images est nécessaire.

# 3. Le traitement d'images associé au dispositif de mesures optiques

Pour les étapes qui vont suivre, les logiciels de paramétrage de la caméra, visualisation et acquisition sont : Jai® Control Tool 1.2.5 et Norpix® Streampix 3. Pour le traitement des photos, Matlab 7.7 couplé à l'Image Processing Toolbox 6.2 a été utilisé.

L'objectif premier du traitement d'images est de reconstruire l'histogramme des rayons des bulles à partir d'une série de photos issues de la caméra.

Le taux de vide étant défini comme le volume du gaz des bulles sur le volume total, il est relié à l'histogramme des rayons des bulles par la relation :

$$\tau = \frac{\frac{4}{3}\pi_{0}^{\infty}r^{3}.n(r).dr}{V}$$
(A1.5)

avec r : le rayon de bulle n(r) : le nombre de bulles de rayon r V : le volume scruté Pour remonter au taux de vide, il suffit donc d'avoir connaissance du volume interrogé optiquement, c'est-à-dire le volume à l'intérieur duquel le traitement d'images a permis une sélection des bulles en présence et une reconstruction de l'histogramme des rayons.

La difficulté du traitement d'images réside dans la détermination de la position d'une bulle : dans ou hors du champ net défini par la profondeur de champ de l'optique ? Plus une bulle sera éloignée de cette zone et plus elle sera floue. De plus, une bulle trop petite vis-à-vis de la résolution du dispositif optique sera elle aussi floue, quelle que soit sa position. L'objectif est de ne sélectionner que les bulles nettes et de déterminer leurs rayons le plus précisément possible.

Une bulle floue est identifiable de deux façons : par valeur de son niveau de gris ou par la quantification du flou du contour. De nombreuses méthodes existent pour détecter et caractériser un contour : rechercher les extrema d'une dérivée première, en général les maximums locaux de l'intensité du gradient ou encore rechercher les annulations d'une dérivée seconde, en général les annulations du laplacien ou d'une expression différentielle non-linéaire.

Les photos issues de la caméra sont monochromes, c'est-à-dire que chaque pixel de la photo est défini par un niveau de gris dont la valeur est comprise entre 0 pour un pixel parfaitement noir et 255 pour un pixel parfaitement blanc. Penchons-nous dans un premier temps sur l'information contenue dans les niveaux de gris des photos.



Figure 144 : Histogramme des niveaux de gris issue d'une photographie du nuage de bulles

L'observation de l'histogramme des niveaux de gris permet plusieurs constatations :

- La dynamique des niveaux de gris est bonne : les valeurs 0 (pixels noirs) et 255 (pixels blancs) sont approchées mais non atteintes.

- L'histogramme présente un pic principal entre les valeurs 70 et 210. Ces valeurs correspondent principalement aux pixels formant le fond gris clair de la photo.
- La partie remarquable de l'histogramme se situe sur l'exemple traité entre les valeurs 0 et 70. Ces pixels sombres sont ceux constituant les bulles. Pour une photo donnée, l'histogramme présente sur cette plage de valeurs plusieurs pics (voir la Figure 144). Il semble donc possible de seuiller l'image en ne gardant que les pixels de niveaux inférieurs au seuil fixé, pour ne garder que les bulles les plus sombres, ce qui revient à ne sélectionner que les bulles les plus nettes.
- Une valeur de seuil basse (c'est-à-dire sévère) tend à ne sélectionner que les bulles nettes mais risque d'engendrer une légère erreur sur le contour des bulles même les plus nettes. De plus, malgré un seuil bas, quelques pixels centraux de bulles moyennement floues peuvent être sélectionnés, qui, s'ils sont traités comme des bulles nettes, engendreront une erreur sur l'histogramme des rayons.
- Une valeur de seuil haute permet de sélectionner plus de bulles mais générera une erreur sur la taille des bulles floues dont le contour exact n'est pas discernable.
- Si la rapidité du traitement d'images est recherchée, un équilibre devra être trouvé entre nombres de bulles détectées par photos et justesse des rayons mesurés. Dans un premier temps, il vaut mieux utiliser un seuil bas et un traitement plus long (à condition qu'il soit possible d'éliminer les artefacts issus des pixels sombres appartenant à des bulles floues et dont la valeur du niveau de gris est inférieure au seuil fixé).

Un traitement basé sur les niveaux de gris étant plus simple et rapide à mettre en œuvre qu'un traitement basé sur la détection des contours, c'est vers ce type de traitement que nous nous sommes tournés dans un premier temps.

Le traitement est constitué de plusieurs étapes. Une étape préliminaire consiste à étirer l'histogramme afin d'augmenter la dynamique des niveaux en gris en faisant correspondre les bornes de l'histogramme des niveaux de gris avec les valeurs 0 et 255.

L'étape suivante consiste à définir, en fonction des critères fixés, un seuil de niveau de gris à partir de l'analyse des histogrammes d'une ou plusieurs photos.

A partir du seuil défini, la photo est convertie en image binaire. Il est à noter la présence d'un trou au milieu des bulles nettes, ce qui constitue un problème pour la suite du traitement. Cette tache blanche correspond au passage des rayons lumineux au centre de la bulle.



Figure 145 : Principe (simplifié) du passage de la lumière à travers une bulle

Les images des bulles présentes sur l'image binaire nécessitent donc un comblement. Une fois cette étape réalisée, les bulles sont labélisées, c'est-à-dire identifiées comme des objets indépendants. Une caractéristique particulièrement intéressante des objets détectés est, dans notre cas, l'excentricité. L'excentricité est définie par le rapport entre la distance interfoyers de l'ellipse et la longueur de son grand axe.

Un seuil sur l'excentricité des objets labélisés permet d'éliminer tout ce qui ne correspond pas à des bulles nettes : impuretés de l'eau, artefacts liés au seuillage (vignettage, zone centrale de bulles floues...).

L'étape finale consiste à remonter à l'histogramme des rayons des bulles présentes sur l'image ainsi traitée à partir de l'aire (en pixel) de chaque objet, de la résolution du dispositif optique ayant généré les photos et en considérant les bulles comme étant sphériques. Nous avons alors :

$$R = Res. \sqrt{\frac{S}{\pi}}$$
(A1.6)

avec R : le rayon [μm] Res : la résolution de la caméra [μm.pixel<sup>-1/2</sup>] S : l'aire de l'objet [pixel]

L'opération est ensuite répétée sur suffisamment de photos pour que l'histogramme cumulé reconstruit puisse être considéré statistiquement représentatif de la population de bulles. Ce nombre statistiquement représentatif dépend du nombre de rayons de bulles extraits par photo (ce nombre dépendant lui-même du taux de vide du nuage et de la sévérité des critères sur le seuil de niveau de gris et l'excentricité retenus pour le traitement d'images) et de l'étalement de l'histogramme des rayons des bulles du nuage.

Voici, par l'image, les différentes étapes du traitement appliquées à une photo du nuage de bulles :



IMAGE BMP ISSUE DE LA CAMERA

1500

1000

500





HISTOGRAMME DES NIVEAUX DE GRIS ETIRE

L'histogramme des niveaux de gris présenté ci-dessus à été tronqué à la valeur 254, la valeur 255 étant la valeur des pixels saturés constituant le fond de la photo (et dont le nombre est ici supérieur à 10<sup>6</sup>).

Une fois l'histogramme étiré, le seuil de niveau de gris est fixé à 50 et l'image est binarisée. Les bulles sont ensuite comblées.





**IMAGE BINARISEE COMBLEE** 

Les bulles sont ensuite labélisées. Chaque objet est considéré comme une entité (d'où en général une représentation par différentes couleurs) et ceux dont l'excentricité est inférieure au seuil fixé ici à 0,3 sont éliminés afin de produire une nouvelle image binaire « nettoyée ».



**IMAGE LABELISEE** 



L'image binaire est à nouveau labélisée et c'est à partir de cette image finale que l'histogramme des rayons pourra être construit.



L'histogramme a été tronqué à 2  $\mu$ m en raison du bruit important en dessous de cette valeur provenant des quelques pixels sélectionnés sur des bulles hors champ et étant donc considérées comme de petites bulles par le traitement. Cette troncature est justifiable quand nous savons *a priori* que de si petites bulles ne sont pas présentes dans le nuage de bulles, ce qui est le cas ici. Dans le cas contraire, il ne sera pas possible de distinguer clairement les petites bulles du bruit.

Une fois l'histogramme des rayons des bulles obtenu, l'obtention de la valeur du taux de vide passe par la connaissance du volume à l'intérieur duquel les bulles sont suffisamment nettes pour être traitées et contribuer ainsi à l'histogramme reconstruit.

#### ANNEXE 1 : Le banc Mésange

# ANNEXE 2 : Etalonnage du dispositif optique couplé au traitement d'images développé

Une tentative d'étalonnage du dispositif optique a été menée afin d'optimiser le traitement d'images en améliorant la précision sur les rayons de bulles mesurés d'une part et pour remonter à la valeur du volume d'interrogation d'autre part.

#### 1. Principe

Le principe retenu est d'utiliser un fil en nylon micrométrique (valeur standard du commerce de 65 µm de diamètre) sur lequel viennent se fixer les microbulles.



Figure 146 : Utilisation d'un fil de pêche comme "piège à bulles"

Un nuage de bulles linéaire et statique est ainsi obtenu. Des photos sont alors prises à différentes distances de ces bulles fixées avec un pas de 1/10<sup>ème</sup> de millimètre. Comme illustré par la Figure 147, les images obtenues présentent un flou d'autant plus important que le fil est éloigné de la distance de travail de l'optique (qui est pour rappel de 70mm).



Figure 147 : Photos des bulles piégées par le fil à trois distances de travail

L'idée est alors d'appliquer le traitement d'image sur ces photos afin de déterminer :

1- La profondeur de champ effective sur laquelle les bulles sont sélectionnées par le traitement. Le but est de vérifier si le traitement d'image est efficace, c'est-à-dire si les limites X<sub>1</sub> et X<sub>2</sub> définies sur la Figure 148 existent ou si la sélection des bulles se fait de façon plus progressive, plus floue. La connaissance des frontières X<sub>1</sub> et X<sub>2</sub>, si elles existent, nous permettra de remonter au volume V nécessaire au calcul du taux de vide.



Figure 148 : Principe de l'étalonnage du seuillage

2- L'erreur commise, le cas échéant, par le traitement sur le contour des bulles suffisamment nettes pour être sélectionnées mais éloignées de la distance de travail nominale et présentant de ce fait un contour flou. L'objectif est de déterminer ce qui sera qualifié par la suite de « fonctions de flous des bulles » c'est-à-dire le rayon extrait par le traitement en fonction de la taille de la bulle et de son éloignement à la distance de travail nominale. L'obtention de ces fonctions de flous nous permettrait d'améliorer la justesse des histogrammes reconstruits par le traitement d'images.

#### 2. Définition des fonctions de flous

Plus une bulle est éloignée de la distance de travail de l'optique, plus son contour devient flou et plus son niveau de gris moyen diminue. Le traitement d'images aura donc tendance à sousestimer le rayon de la bulle si elle reste malgré tout suffisamment proche de la distance de travail pour respecter le critère imposé par le traitement sur le niveau de gris. A partir d'une certaine distance, la bulle sera trop floue et, ne respectant plus les seuils du traitement, ne sera pas détectée. Ces sont ces frontières et cette sous-évaluation que traduit la fonction de flou.



Figure 149 : Fonction de flou d'une bulle

Idéalement, l'erreur minimale sur le rayon de la bulle est nulle et l'erreur maximale tend vers l'erreur minimale. De même la distance  $[X_1-X_2]$ , qui est la tranche de nuage interrogée est constante quelle que soit la taille de la bulle.

Expression de l'histogramme réel en fonction de l'histogramme observé et des fonctions de flou : Soit  $\theta$  l'histogramme des rayons des bulles défini par :

$$\theta = \{\theta_i\} \tag{A2.1}$$

Avec  $\theta_i$  la probabilité de chaque bulle de rayon  $r_i$  et  $r_1 \le r_i \le r_n$ :

$$\sum \theta_i = 1 \tag{A2.2}$$

Soit *Y* l'histogramme des rayons obtenu par le traitement d'images avec :

$$Y = \{Y_i\}_{i=1:N}$$
(A2.3)

Soit *C* la matrice formée par les colonnes  $\{C_i\}$  avec  $C_i$  la fonction de flou associée au rayon  $r_i$ . Cherchons alors  $\theta$  tel que :

$$C.\theta = \theta_1.\overrightarrow{C_1} + \theta_2.\overrightarrow{C_2} + \dots + \theta_n.\overrightarrow{C_n}$$
(A2.4)

soit aussi proche que possible de Y défini à l'équation (A2.3), ce qui revient à ce que :

$$J(\theta) = \|Y - C.\theta\|^2 \tag{A2.5}$$

soit minimum. C'est-à-dire :

$$\theta = (\mathcal{C} * \mathcal{C})^{-1} \mathcal{C} * Y$$
(A2.6)

#### 3. Détermination des fonctions de flous à partir de photos étalons

Nous allons maintenant tenter de déterminer les fonctions de flou des rayons de bulles présentes sur le fil de pêche. La photo prise à la distance nominale est présentée Figure 150.



Figure 150 : Photo initiale des bulles fixées sur le fil

Cette photo a été prise à la distance de travail de l'optique (70mm) et une exposition  $d'1/10000^{\text{ème}}$  de seconde. Une série de 22 photos a été prise en déplaçant la caméra autour de la distance de travail avec un pas  $d'1/10^{\text{ème}}$  de millimètre.

La présence du fil de pêche est problématique car les niveaux de gris au niveau de ses contours sont similaires aux niveaux de gris des bulles. Une élimination manuelle avec un logiciel de retouche est donc nécessaire.

Nous avons sélectionné sur la photo 6 bulles nettes et présentant des rayons différents compris entre 43 et 101  $\mu m.$ 



Figure 151 : Identification de 6 bulles nettes, de différents rayons

Ces rayons de bulles ne sont pas représentatifs de ceux des nuages de bulles générés avec l'aéroflottateur. Bien que générées par cette technique, ces bulles sont bien plus grosses que la majorité de celles générées par aéroflottation. Ceci s'explique probablement par la taille du fil utilisé avec les phénomènes de rayon de courbure et tension superficielle qui cela entraîne.

Afin de tracer les fonctions de floue de chacune de ces 6 bulles, il a été nécessaire d'extraire les 6 bulles de la série de 22 photos.



Figure 152 : Extraction de la bulle B5 de la série de photos

Le fil de pêche est ensuite effacé manuellement et un coup de pinceau étalon (ici de niveau de gris = 13 correspond au niveau de gris le plus sombre sur les photos nettes) est appliqué afin d'effectuer par la suite le même étirement de l'histogramme des niveaux de gris sur toutes les photos.



Figure 153 : Elimination du fil et ajout d'un étalon

Le traitement d'image est ensuite appliqué sur les 6 séries de 22 photos avec différents seuils de luminance et d'excentricité. La luminance est un niveau de gris ramené à une valeur comprise entre 0 et 1 (luminance x 256 = niveau de gris). En représentant en abscisse la série de 22 photos et en ordonnées le rayon mesuré quand la bulle est détectée. Les fonctions de flou suivantes sont alors obtenues :





Figure 154 : Résultats du traitement d'images pour les six bulles et pour différents couples de paramètres

L'analyse de ces résultats conduit à plusieurs constatations :

- Le seuil de luminance (niveau de gris) influe sur le rayon maximal déduit de la bulle : plus le niveau est bas (*i.e.* proche du noir) et plus la taille de la bulle est minimisée car, même pour une bulle nette, les pixels constituant le contour de la bulle ont un niveau de gris plus clair que le centre de cette dernière.
- Comme attendu, le deuxième impact du critère de seuil sur la luminance concerne le nombre de bulles extraites par série de photos : un seuil plus bas donc plus sévère implique la sélection de moins de photos.
- Le nombre de photos de la série sur laquelle la bulle est sélectionnée est aussi impacté par le critère de sphéricité. Plus ce critère est sévère (proche de zéro, c'est-à-dire du cercle parfait) et moins nombreuse sont les photos sur laquelle la bulle est sélectionnée.
- Des pics parasites latéraux apparaissent sur 7 photos. Il s'agit du cas où la bulle est floue et seuls ses pixels centraux sont sélectionnés. Si la forme de l'ensemble de ces pixels est suffisamment sphérique pour satisfaire le seuil de sphéricité, elle sera sélectionnée, dans le cas contraire, elle sera éliminée. Ces formes ne sont visiblement pas constantes et linéaires, ce qui explique l'apparition de ces artefacts.
- Hormis pour la bulle B7 qui est nettement plus grosse, on constate que pour une paire de critères fixés, le nombre de bulles sélectionnées est à peu près constant.
- La profondeur de champ de l'optique donnée par le constructeur est de 660  $\mu$ m, ce qui correspond, vu le pas de 1/10<sup>ème</sup> utilisé à 6-7 photos.

Les seuils retenus dans le traitement d'image appliqué aux nuages de bulles réels : luminance = 0,05 et excentricité = 0,3 sont utilisés ici, aucune bulle ne ressort du traitement. Cela est problématique car la conséquence immédiate de ceci qu'il ne sera pas possible d'utiliser cette technique ou tout du moins ces séries de photos pour étalonner le dispositif avec les critères optimaux de traitement qui lui ont été associés. Nous reviendrons sur ce point par la suite.

Nous avons toutefois cherché à déterminer les fonctions de flous pour les paramètres : luminance = 0,1 et excentricité = 0,7. A cette fin, nous n'avons pas considéré la présence de pics latéraux présents pour les bulles B1 et B4.

Nous avons déterminé les équations des fonctions de flou en calculant, pour chaque bulle, les courbes de tendance polynomiale d'ordre 2 des courbes issues du traitement d'images et constituées par le rayon de la bulle en fonction de sa position. Nous avons utilisé pour cela le tableur Excel. Pour la bulle 8, nous avons par exemple :



Figure 155 : Courbe de tendance des résultats du traitement d'images pour la bulle B8 (en bleu les résultats du traitement, en rouge la courbe de tendance polynomiale)

De la même façon, nous avons déterminé les équations des courbes de tendance polynomiales d'ordre 2 pour les 6 bulles :

Bulle B1 :	$y = -0,4199.x^2 + 0,2333.x + 43,355$
Bulle B3 :	$y = -0,4356.x^2 + 0,272.x + 49,667$
Bulle B4 :	$y = -0,4735.x^2 + 0,4371.x + 40,406$
Bulle B5 :	$y = -0,4114.x^2 + 0,3909.x + 52,205$
Bulle B7 :	$y = -0,2241.x^2 + 0,2433.x + 93,863$
Bulle B8 :	$y = -0,3537.x^2 + 0,2109.x + 62,802$

Le tracé de ces six courbes de tendance, que nous considérerons par la suite comme nos six fonctions de flou, donne :



Figure 156 : Tracé des fonctions de flous des 6 bulles étudiées

Les courbes ont été tracées en extrapolant jusqu'au rayon zéro. Cette extrapolation des courbes nous prive ici de l'information relative à la position des frontières au delà desquelles les bulles ne sont plus détectées. Cela n'est pas un problème dans la mesure où nous cherchons à déterminer dans un premier temps l'erreur commise sur le rayon en fonction de la position de la bulle.

A partir des équations des six fonctions de flou, nous avons cherché à déterminer « la fonction des fonctions de flou ».

Les courbes de tendance polynomiales d'ordre 2 déterminées précédemment sont des équations de paraboles. L'équation d'une parabole est de la forme :

$$y = a.x^2 + b.x + c \tag{A2.7}$$

Ce qui donne pour les 6 équations :

	R (rayon "vrai")	а	b	С	c-R / R
B4	43,6	-0,4735	0,4371	40,406	-7,3%
B1	49,1	-0,4199	0,2333	43,355	-11,7%
B3	54,6	-0,4356	0,272	49,667	-9,0%
B5	56,2	-0,4114	0,3909	52,205	-7,1%
B8	69,6	-0,3537	0,2109	62,802	-9,8%
B7	101,1	-0,2241	0,243	93,863	-7,2%

Le paramètre *a* est linéairement fonction du rayon :



La courbe de tendance - associée à la courbe du paramètre *a* - a pour équation :

$$y = 0,0042x - 0,6479 \tag{A2.8}$$

Le paramètre *b* semble lui indépendant du rayon. Quant au paramètre *c*, il est l'abscisse à l'origine, c'est-à-dire le rayon maximal de la bulle mesuré par le dispositif. Idéalement, *c* devrait donc être égal au rayon de la bulle mais on constate un écart relatif compris entre 7% et 12% :



Le paramètre *b* a ici pour moyenne : 0,2979. Quant à la moyenne de variation du paramètre c par rapport au rayon de la bulle, on obtient : -8,7%.

La fonction des fonctions de flou (n°1) est ainsi déduite :

$$y = (0,0042.R - 0,6479).x^2 + 0,3.x + R.(1 - 0,087)$$
(A2.9)

Si cette fonction est tracée pour les six rayons tracés Figure 156, nous obtenons :



Figure 157 : Comparaisons des fonctions de flou avec la "fonction des fonctions de flou" n°1

Un assez bon accord entre les fonctions de flou des 6 bulles et la fonction des fonctions de flou tracé pour chaque bulle en entrant pour rayon *R*, le « rayon vrai » donné Figure 151 est constaté.

Le tracé de la fonction des fonctions entre de 5 à 100  $\mu m$  par pas de 5  $\mu m$  (ce qui revient à une interpolation et une extrapolation) donne :



Figure 158 : Tracé de la fonction des fonctions de flous n°1 pour 5  $\mu$ m < R < 100  $\mu$ m

Nous avons vu que le nuage de bulles sur lequel seront appliquées des techniques acoustiques présente des rayons de bulles compris entre environ 5 et 40  $\mu$ m. Or l'extrapolation vers les rayons inférieurs à 40  $\mu$ m semble difficile à valider ici. En effet, pour les six fonctions de flous déterminés initialement pour des bulles de rayons compris entre 40 et 100  $\mu$ m, il est constaté que le passage à zéro du rayon mesuré correspond à environ 10 fois le diamètre de la bulle.

rayon "vrai"		10 diamètres	Passage à 0	Variation	
B4	43,6	872	880	-0,91%	
B1	49,1	982	990	-0,81%	
В3	54,6	1092	1040	5,00%	
B5	56,2	1124	1080	4,07%	
B8	69,6	1392	1300	7,08%	
B7	101,1	2022	1920	5,31%	
Extrapolation	5	100	250	-60,00%	
Extrapolation	10	200	360	-44,44%	
Extrapolation	20	400	540	-25,93%	
Extrapolation	30	600	700	-14,29%	
Extrapolation	40	800	840	-4,76%	

Le tableau ci-dessus nous permet de constater que le critère des 10 diamètres est respecté pour les 6 bulles avec une variation maximale de 7%. En revanche, l'extrapolation de l'équation à des rayons inférieurs à 40  $\mu$ m, permet de se rendre compte que ce paramètre n'est très vite plus respecté. Ainsi, en extrapolant à 5  $\mu$ m, il est obtenu un passage à zéro pour environ 25 diamètres. Une extrapolation vers les rayons inférieurs à 40  $\mu$ m – pourtant ceux qui nous intéressent le plus – ne semble pas réalisable ici. Nous allons maintenant tenter d'optimiser cette extrapolation.

Comme nous l'avons vu précédemment, les seuils optimaux déterminés lors du traitement d'images appliqué aux nuages de bulles réels (luminance = 0.05 et excentricité = 0.3) sont utilisés, aucune des bulles fixées au fil n'est sélectionnée par le traitement. La principale raison à ceci est la présence même du fil de pêche : malgré son élimination manuelle des photos, il provoque au niveau des bulles une dissymétrie plus ou moins importante des niveaux de gris et rend donc le critère sur l'excentricité trop sévère. Sur le graphique présenté Figure 159, l'histogramme des niveaux de gris de la ligne horizontale passant par le centre de la bulle est présenté en rouge tandis la courbe bleu représente le symétrique des niveaux de gris.



Figure 159 : Dissymétrie des histogrammes de niveaux de gris due à la présence du fil

La solution consiste ici à reconstruire les bulles par symétrie verticale grâce à un logiciel de retouche des photos, afin d'obtenir des bulles dont la partie située du côté du fil n'est plus déformée par ce dernier.



Figure 160 : Résultat de l'élimination du fil par symétrie

Cette solution nous a permis l'application sur nos photos du traitement d'images avec ses critères optimaux : luminance à 0,05 et excentricité à 0,3. Tout le cheminement présenté précédemment est à nouveau appliqué sur trois bulles seulement (le but étant de confirmer ou non une optimisation du traitement) et il vient :

Extrait des fonctions de flou :

Bulle B4 :	$y = -0,7667.x^2 + 0,5667.x + 32,2$
Bulle B7 :	<i>y</i> = -0,4206. <i>x</i> <sup>2</sup> + 0,6243. <i>x</i> + 87,139
Bulle B8 :	$y = -0,9048.x^2 + 0,8571.x + 56,19$

Fonction des fonctions de flou (n°2) :

$$y = (0,006.R - 1,0291).x^2 + 0,5955.x + R.[1 + (0,0021.x - 0,355)]$$
(A2.10)

Tracé de la fonction des fonctions :



Figure 161 : Tracé de la fonction des fonctions de flous n°2 pour 5 µm < R < 100 µm

Il est constaté qu'avec les paramètres optimaux, les rayons maximaux des bulles sont ici fortement sous estimés ( $\sim$ 70 µm pour une bulle de 100 µm) mais surtout que le même problème de déformation apparaît lors de l'extrapolation vers les petits rayons. Cette seconde solution n'est donc pas satisfaisante non plus.

Une autre piste d'optimisation a été envisagée : celle de ne considérer que les deux plus grosses bulles (B7 et B8) pour reconstruire la fonction des fonctions de flou car ce sont les bulles qui sont sélectionnées sur le plus grand nombre de photos. Les courbes de tendances extraites de ces deux bulles seront donc définies par plus de point, ce qui pourrait potentiellement améliorer la justesse de la fonction des fonctions.

La fonction des fonctions de flou (n°3) devient alors :

$$y = (0,0041.R - 0,6401).x^2 + 0,2270.x + R.(1 - 0,085)$$
(A2.11)

Lorsque cette fonction est tracée en superposition avec celle obtenue initialement grâce aux fonctions de flou des six bulles, nous obtenons :



Figure 162 : Comparaison de la fonction des fonctions issues des 6 bulles (en rouge) avec celle issue des 2 plus grosses bulles B7 et B8 (en bleu).

La conclusion est immédiate : les deux fonctions sont quasiment identiques : cette troisième solution n'est donc toujours pas satisfaisante.

La dernière piste d'amélioration envisagée se base sur la constatation de l'annulation des fonctions de flou des 6 bulles à environ 10 fois le diamètre de la bulle.

-

L'équation parabolique suivante (n°4) est obtenue :

$$y = -\frac{0.92}{4.R.x^2} + 0.92.R \tag{A2.12}$$

La comparaison de cette fonction avec la fonction des fonctions de flou n°1 défini initialement nous donne :



Figure 163 : Comparaison des fonctions de flou des 6 bulles (en couleurs à gauche) et de la fonction des fonctions de flou n°1 (en rouge à droite) avec celle définie sans courbes de tendance (n°4) (en noir sur les deux courbes)

L'accord entre les fonctions de flou et la fonction n°4, s'il n'est pas aussi bon qu'avec la fonction des fonctions n°1, n'en est pas moins acceptable en première approche. Pour les rayons inférieurs à 40  $\mu$ m, l'écart entre les fonctions n°1 et 4 devient en revanche très important.

#### 4. Conclusion

Les fonctions des fonctions n°1, 2 et 3 ont été construites par extrapolation de fonctions de flou de grosses bulles. La fonction des fonctions n°4 a été construite sur la base d'une hypothèse (passages par zéro de la fonction pour 10 diamètres de bulle) qui n'a pas été vérifiée pour les plus petits rayons. La réalité se situe donc probablement entre les deux approches mais, ne disposant pas d'une validation expérimentale sur des bulles de la taille considérée (entre 5 et 40  $\mu$ m de rayon), il nous est impossible de conclure pour le moment.

Comme nous l'avons vu au §.3, le dispositif optique et son traitement d'images associé nous permettent à ce stade de reconstruire des histogrammes des rayons des bulles en bon accord avec une technique de diffraction laser. L'optimisation du traitement via la prise en compte des fonctions de flou des bulles n'étant pas possible avec les séries de photos à notre disposition, nous ne mènerons pas plus loin les tentatives d'amélioration de notre traitement d'images.

Pour ce qui est du taux de vide, l'approche présentée au §.3.2.2 basée sur les données constructeurs permettra dans un premier temps de déterminer un ordre de grandeur de sa valeur.

#### <u>Piste d'amélioration du traitement d'images actuel : la réalisation de photos de nuage</u> <u>« statique » pour des gammes de rayons plus faibles</u>

Comme nous venons de le voir, il n'a pas été possible de déterminer les fonctions de flou des bulles constituant le nuage de bulles généré par l'aéroflottateur. La raison de cet échec réside dans l'écart entre les rayons des bulles disponibles pour la détermination de ces fonctions de flou (compris entre 40 et 100  $\mu$ m) et les rayons des bulles présentes dans le nuage de bulles : principalement entre 5 et 40  $\mu$ m.

La solution consisterait donc à obtenir des photos permettant un étalonnage avec des bulles dont les rayons seraient similaires à ceux du nuage. Quelques pistes :

- L'utilisation d'un fil beaucoup plus fin (fibre de carbone, fibre optique...), toujours dans l'idée de réaliser des photos de bulles statiques à différentes distances de travail. Ceci part de la constatation que les bulles dont le rayon est bien plus faible que le rayon du fil que nous avons utilisé ne se fixait pas sur ce dernier. Ceci s'explique peut-être par la grande différence de rayon de courbure entre le fil et la bulle.
- L'utilisation de deux vitres très rapprochées (~1/10<sup>ème</sup> de millimètre) entre lesquelles s'écoulerait le nuage de bulle. Les photos de ce nuage « 2D » seraient prises comme dans le cas précédent à différentes distances de travail. Cette technique, si elle s'avérait réalisable, permettrait de s'affranchir des problèmes liés à la présence d'un fil d'une part et permettrait de couvrir tous les rayons de bulles rencontrés dans le nuage. La principale difficulté réside en l'utilisation de vitres les plus lisses et surtout les plus hydrophiles possible afin de prévenir l'accroche des microbulles.

Il serait aussi envisageable de changer le dispositif afin de s'affranchir de la présence des bulles présentes en dehors de la zone nette définie par la profondeur de champ de l'optique. Ceci pourrait par exemple être effectué en utilisant un laser plan comme source d'éclairage. Ainsi, seule une tranche de nuage d'épaisseur connue est éclairée et visualisée par la caméra. Un tel dispositif a été utilisé avec succès par [Dur09].
# ANNEXE 3 : Principales caractéristiques physiques et acoustique du sodium liquide

[SYF80] traite des propriétés physiques du sodium liquide, [Ber90] de ses propriétés acoustiques et [Rod97] de sa physico-chimie. Ces documents constituent des références au CEA et permettent d'avoir accès à la plupart des caractéristiques du sodium.

### Composition du sodium dit « nucléaire »

Le sodium utilisé dans les centrales nucléaires est de très grande pureté : supérieure à 99.98% d'après le Tableau 13. La principale impureté est de loin le potassium mais nombre de ses propriétés restent proches de celles du sodium.

Flómonto	Grade S	Grade R
Elements	(stanuaru)	(Indication)
	ppm	ppm
Ag	< 0,5	< 0,5
AI	< 0,5 à 1	< 0,5 à 1
В	<1	< 1
Ba	< 0,2 à 0,5	< 0,2 à 0,5
Bi	< 0,1	< 0,1
С	2à10	2 à 10
Са	330 à 400	< 2
ĸ	147 à 178	147 à 178
CI + Br	2à4	2à4
Co	< 0,1	< 0,1
Cr	< 1	1
Cs	< 0,1	< 0,1
Cu	< 0,9	< 0,9
Fe	< 4	< 4
Hg	< 0,5	< 0,5

Li	< 0,1	< 0,1
Mg	< 1	< 1
Mn	< 0,1	< 0,1
Mo	< 0,2	< 0,1
Ni	< 0,2 à 0,6	< 0,2 à 0,6
Р	< 3	< 3
Pb	< 0,2	< 0,2
S	<4	< 4
Sb	< 0,5	< 0,5
Si	< 1	<1
Sn	< 0,2 à 0,3	< 0,2 à 0,3
Sr	2à5	< 1
Ti	< 0,5	< 0,5
V	< 0,5	< 0,5
Zn	< 0,5	< 0,5
Zr	<1	<1

## Principales propriétés physiques du sodium liquide

Avec T la température en °C

Nom : Sodium (métal alcalin argenté)

<u>Symbole :</u> Na, du latin natrium

Numéro atomique : 11

<u>Masse molaire :</u> 23,0 g/mol

Masse volumique (en kg. m<sup>-3</sup>) :

[Fru80]

 $\rho = 950.0483 - 0.2297537 T - 14.6045.10^{-6} T^2 + 5.6377.10^{-9} T^3$ 

(A3.1)

<u>Température de fusion à 1 atm :</u> 370,87 K (97,7°C)

Température de vaporisation à 1 atm : 1156 K (883°C)

Pression de vapeur saturante (en bars) :

[Fru80] 
$$log(p) = 6,487538 - \frac{10020,6}{1,8 T + 471,7} - 0,5. log(1,8 T + 491,7)$$
 (A3.2)

Viscosité dynamique (en Pa.s) :

$$\log(\mu) = -2,4892 + \frac{220,65}{T} - 0,4925.\log(T)$$
(A3.3)

Chaleur massique (en J.kg<sup>-1</sup>.°C<sup>-1</sup>) :

[Fru80] 
$$C_p = 1436,715 - 0,5805379 T + 4,627274.10^{-4} T^2$$
 (A3.4)

Conductivité thermique (en W.m<sup>-1</sup>.°C<sup>-1</sup>) :

[Fru80] 
$$\lambda_{th} = 92,951 - 5,8087.10^{-2}T + 11,7274.10^{-6}T^2$$
 (A3.5)

Tension superficielle :

[Fru80] 
$$\sigma = 0,2067 - 10^{-4} T$$
 (A3.6)

c = 2578 - 0,52.T

Susceptibilité magnétique à 110°C : 0.600.10<sup>-6</sup> cm<sup>3</sup>/g (le sodium est paramagnétique)

#### Principales propriétés acoustiques du sodium

<u>Célérité acoustique (en m.s<sup>-1</sup>) :</u>

[Rod97]

[Fru80]

Avec  $t_{fusion} \le t \le 800^{\circ}C$ 

Atténuation :

[Ber90]

$$\frac{A}{A_1} = \frac{r_1}{r} e^{-\alpha(r-r_1)}$$
(A3.8)

(A3.7)

avec A = amplitude de l'onde en pascals r = distance source-point d'observation en mètres r<sub>1</sub> = distance arbitraire (par exemple 1m) A<sub>1</sub> = amplitude à la distance r<sub>1</sub>  $\alpha$  = coefficient d'atténuation exponentielle en m<sup>-1</sup> (avec r et r<sub>1</sub> dans le champ lointain, c'est-à-dire > d<sup>2</sup>/4 $\lambda$  pour un piston plan bafflé)

Avec :

$$\alpha = (7,671 + 0,08 T) \cdot 10^{-15} \cdot f^2 \tag{A3.9}$$

avec T = température en °C (104°C < t < 315°C) f = fréquence en Hz

# ANNEXE 4 : Caractéristiques acoustiques d'un traducteur focalisé



Figure 164 : Géométrie du faisceau d'un traducteur ultrasonore focalisé [d'après OLY09]

D'après [Oly09], le diamètre BD du faisceau à -6dB est donné par :

$$BD_{-6dB} = 1,02 \quad \frac{F \cdot c}{f \cdot D}$$
 (A4.1)

Et la longueur *Fz* de la zone focale :

$$F_Z = N.S_F^2 \; \frac{2}{1+5S_F} \tag{A4.2}$$

Avec F, la distance focale c, la célérité dans le milieu de propagation f, la fréquence D, le diamètre du traducteur S<sub>F</sub>, la distance focale normalisée (=F/N) N, la longueur du champ proche

Avec la longueur du champ proche N :

$$N = \frac{D^2 f}{4c} \tag{A4.3}$$

ANNEXE 4 : Caractéristiques acoustiques d'un traducteur focalisé

[Abe97] K. Van Den Abeele, P.A. Johnson, R.A. Guyer and K.R. McCall - *On the quasi-analytic treatment of hysteretic nonlinear response in elastic wave propagation* - J. Acoust. Soc. Am. 101 (4), p.1885-1898, 1997

[Abe00-1] K. Van Den Abeele, P.A. Johnson and A. Sutin - *Nonlinear ElasticWave Spectroscopy* (*NEWS*) *Techniques to Discern Material Damage, Part I: Nonlinear Wave Modulation Spectroscopy* (*NWMS*) - Res Nondestr Eval (2000) 12: 17-30

[Abe00-2] K. Van Den Abeele, J. Carmeliet, J.A. Ten Cate, P.A. Johnson - *Nonlinear ElasticWave Spectroscopy (NEWS) Techniques to Discern Material Damage, Part II: Single Mode Nonlinear Resonance Acoustic Spectroscopy* - Res Nondestr Eval (2000) 12: 31-42

[Abe01] K. Van Den Abeele, A. Sutin, J. Carmeliet and P.A. Johnson - *Micro-damage diagnostics using nonlinear elastic wave spectroscopy (NEWS)* - NDT&E International 34, p.239-248, 2001

[Arg80] C. Argant - *Amplificateurs pour transducteurs ultrasonores AMPTUSHT*- Note technique CEA, STC-STEC-SEIn-7290, 1980

[Arz81] P. Arzelies – Acoustique des bulles. Contribution à l'étude de la propagation en milieu diphasique liquide – bulles de gaz. Problème inverse, identification de paramètres décrivant le milieu - Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille II, 1981

[ASN94] Lettre DSIN 764/94 du 22/12/94

[ASN95] Lettre DSIN 303/95 du 25/07/95

[Ber89] P. Bergeonneau, M. Vanier – *Phénix - Présentation d'un scénario plausible de passage de gaz dans le cœur pouvant expliquer les incidents survenus en août et septembre 1989 –* Note technique CEA, 1989

[Ber90] JL. Berton – *Propriétés acoustiques du sodium* – Note technique CEA, SSAE-LSMI-93/0058, 1990 (révisée en 1993)

[Ber91] J.L. Berton – *VIBUL, un modèle de calcul de la vie des bulles en réacteur* – Note technique CEA, SSAE-LSMI-91/023, 1991

[Ber93] J.L. Berton – *Télémétries ultrasonores sous sodium. Effet des microbulles de gaz* – Note Technique CEA SSAE LSMI 93/0019, 1993

[Ber02] F. Bernardot, J. Bruneaux et J. Matricon – *Un archétype d'oscillateur : le résonateur acoustique de Helmholtz* – Bulletin de l'union des physiciens, Vol.96, 2002

[Ber08] JL. Berton, M. Cavaro - *Mesures des taux de vide dans le sodium, étude bibliographique* - Note technique CEA - DEN/DTN/STPA/LTTS/08-038, 2008

[Bey60] R.T. Beyer – Parameter of nonlinearity in fluids - J. Acoust. Soc. Am. 32(6), p.719-721, 1960

[Bie05] F. Van Der Biest – *Diffusion multiple et renversement du temps ultrasonore dans les milieux périodiques et désordonnés* – Thèse de doctorat, Université Paris VI, 2005

[Bje06] V.F.K. Bjerknes – Fields of Force – Columbia University Press, 1906

[Bjo82] L. Bjorno – *Acoustic nonlinearity of bubbly liquids* – Applied Scientific Research, Vol.38, p.291-296, 1982

[Bol09] B.R. Bollinger, J.C Wilbur, T.G. Donoghue, S.D. Phillips, D.A. Knaus, P.J. Magari, D.L. Alvarenga and J.C. Buckey – *Dual-Frequency ultrasound detection of stationary bubbles in tissue* – Undersea and Hyperbaric Medical, Vol. 36(2), p. 127-136, 2009

[Bou07] A. Bouakaz, P. Palanchon, N. de Jong – *Dynamique de la microbulle* – Chapitre de *Echographie de contraste*, Springer, 2007

[Bra21] W. Bragg – *The world of Sound* – London G. Bell and Sons LTD., 1921

[Bre89] N. Breitz, H. Medwin – *Instrumentation for in situ acoustical measurements of bubble spectra under breaking waves* - J. Acoust. Soc. Am. 86(2), p.739-743, 1989

[Buc05] J.C. Buckey, D.A. Knaus, D.L. Alvarenga, M.A. Kenton and P.J. Magari – *Dual-frequency ultrasound for detecting and sizing bubbles* – Acta Astronautica, Vol. 56, p. 1041-1047, 2005

[Bun83] F.V. Bunkin, D.V. Vlasov, E.A. Zabolotskaya and Y.A. Kravtsov – *Active acoustic spectroscopy of bubbles* – Sov. Phys. Acoust. 29(2), p. 99-100, Mar.-Apr. 1983

[Cav08] M. Cavaro, J. Moysan, C. Gueudré, G. Corneloup and F. Baqué - *Towards Acoustic Characterization of the Gaseous Microbubbles Applied to Liquid Sodium* - 8th Anglo French Physical Acoustics Conference - ARCACHON, Décembre 2008

[Cav09] M. Cavaro, F. Baqué, J. Moysan, C. Gueudré, G. Corneloup, C. Payan, J. Sibilo et G. Prele -*Towards Acoustic Characterization of the Gaseous Microbubbles Applied to Liquid Sodium* -Advancements in Nuclear Instrumentation, Measurement Methods and their Applications -Marseille, Juin 2009

[Cav09-2] M. Cavaro, J. Moysan, C. Payan, C. Gueudré, G. Corneloup and F. Baqué - *Towards nonlinear ultrasonic characterization of air microbubbles in water* - XIV International Conference on Nonlinear Elasticity in Materials - LISBONNE (Portugal), Juin 2009 - Proceedings of Meetings on Acoustics, Vol. 7, 045005, 2009

[Cav10] M. Cavaro, C. Payan - *Procédé de détermination de taux de vide par spectroscopie de résonance acoustique non linéaire dans une milieu diphasique et application dans un réacteur nucléaire.* - Brevet soumis à l'INPI sous le numéro : 10.53653 le 11 mai 2010

[Cav10-2] M. Cavaro, J. Moysan, C. Payan, C. Gueudré, G. Corneloup and F. Baqué - *Nonlinear Acoustic Characterization of Microbubbles Cloud*- XV International Conference on Nonlinear Elasticity in Materials – OTRANTO (Italie), Juillet 2010

[Cav10-3] M. Cavaro, C. Payan, J. Moysan, F. Baqué - *Microbubbles cloud characterisation by nonlinear frequency mixing-* J. Acoust. Soc. Am., Express Letter, 2010 - *Publication soumise, manuscrit #EL-10-1279* 

[CEA10] Dossier de presse – Quatrième génération : vers un nucléaire durable – CEA, 2010

[Cha84] J.S. Chang, Y. Ichikawa, G.A. Irons, E.C. Morala and P.T. Wang – *Void fraction measurement by an ultrasonic transmission technique in bubbly gas-liquid two-phase flow* – Measuring techniques in gas-liquid two-phase flows, Edited by J.M. Delhaye & G. Cognet, Springer-Verlag, 1984

[Cha85] J.Y. Chapelon, P.M. Shankar, V.L. Newhouse – *Ultrasonic measurement of bubble cloud size profiles* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 78(1), p.196-201, 1985

[Che06] S. Chen, R. Kinnick, J.F. Greenleaf, M. Fatemi – *Difference frequency and its harmonic emitted by microbubbles under dual frequency excitation* – Ultrasonics, Vol. 44, p. e123-e126, 2006

[Che95] S. Cheyne, C.T. Stebbings and R.A. Roy - *Phase velocity measurements in bubbly liquids using a fiber optic laser interferometer* - J Acoust Soc Am, Vol. 97(3), p.1621 -1624, 1995

[Cli78] R. Clift, J.R. Grace and M.E. Weber – *Bubbles, Drops and Particles* – Academic Press, 1978

[Com89] K.W. Commander, A. Prosperetti – *Linear pressure waves in bubbly liquids: comparison between theory and experiments* – J. Acoust. Soc. Am., 85(2), p. 732-746, 1989

[Com89-2] K. Commander, E. Moritz - *Off-resonance contributions to acoustical bubble spectra* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 85(6), p.2665-2669, 1989

[Cop67] A.B. Coppens, R.T. Beyer, J. Balloc – *Parameter of Nonlinearity in Fluids. III. Values of sound velocity in Liquid Metals* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 41(6), p.1443-1448, 1967

[Cos91] C. Coste – *Propagation d'ondes acoustiques dans les mélanges diphasiques liquide/vapeur* – Thèse de doctorat, Université Claude Bernard - Lyon I, 1991

[Cos92] C. Coste, C. Laroche and S. Fauve – *Acoustic Resonances in a Liquid with Vapor Bubbles: Effect of Liquid-Vapor Transition on Sound Velocity and Attenuation* – Physical Review Letters, Vol 69 (5) Aug 1992, p.765-768

[Cra82] F.S. Crawford - The hot chocolate effect - Am. J. Phys. 50(5), p.398-404, 1982

[Cro06] C.T. Crowe – *Multiphase flow handbook* – CRC Press, 2006

[Cru75] L.A. Crum - *Bjerknes forces on bubbles in a stationary sound field* - J. Acoust. Soc. Am. 57 (6), p.1363-1370, 1975

[Cru80] L.A. Crum - *Measurements of the growth of air bubbles by rectified diffusion* – J Acoust Soc Am, Vol.68, p. 203-211, 1980

[Del06] P.P. Delsanto – *Universality of nonclassical nonlinearity – Applications to non-destructive evaluations and ultrasonics –* P.P. Delsanto ed., Springer, 2006

[Dep80] Y. Depierre – *Essais VERSOD – Conditions de déversement SPX1 –* Note Technique CEA DRNR/STRS/SDER 80.893, 1980

[Dev59] C. Devin – *Survey of thermal, radiation and viscous damping of pulsating air bubbles in water* – J Acoust Soc Am, Vol. 31(12), p.1654 -1667, 1959

[Doi96] A. Doinikov, S. Zavtrak – *On the "bubble grapes" induced by a sound field* - J. Acoust. Soc. Am. 99 (6), p.3849-3850, 1996

[Doi99] A. Doinikov - *Bjerknes forces between two bubbles in a viscous fluid* - J. Acoust. Soc. Am. 106 (6), p.3305-3312, 1999

[Doi01-1] A. Doinikov – *Acoustic radiation interparticle forces in a compressible fluid* – J. Fluid Mech. Vol.444, p.1-21, 2001

[Doi01-2] A. Doinikov – *Translational motion of two interacting bubbles in a strong acoustic field* – Physical Review E, Vol. 64, p.026301-1,6, 2001

[Doi02-1] A. Doinikov – *Viscous effects on the interaction force between two small gas bubbles in a weak acoustic field* - J. Acoust. Soc. Am. 111 (4), p.1602-1609, 2002

[Doi02-2] A. Doinikov - *Translational motion of a spherical bubble in an acoustic standing wave of high intensity* – Physics of Fluids, Vol.14(4), p.1420-1425, 2002

[Dru96] O. Druzhinin, L.A. Ostrovsky and A. Prosperetti – *Low-frequency acoustic wave generation in a resonant bubble layer* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 100(6), p.3570-3580, 1996

[Dui96] P.C. Duineveld – *The influence of an applied sound field on bubble coalescence* - J. Acoust. Soc. Am. 99(1), p.622-624, 1996

[Dur09] 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* – Thèse de doctorat, Université du Havre, 2009

[Ear60] S. Earnshaw – *On the mathematical theory of sound* – Phil. Trans. Royal Soc., 150, p.133-143, 1860

[Edz95] J.K. Edzwald – *Principles and applications of dissolved air flotation* – Water Sci. Tech., Vol. 31(3-4), p. 1-23, 1995

[Ell70] A.I. Eller – *Damping constants of pulsating bubbles* - J Acoust Soc Am, Vol. 47(5B), p.1469-1470, 1970

[Far98] D.M. Farmer, S. Vagle and A.D. Booth – *A Free-Flooding Acoustical Resonator for Measurement of Bubble Size Distributions* – Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, Vol.15, p.1132-1146, 1998

[Far05] D.M. Farmer, S. Vagle and A.D. Booth – *Reverberation effects in acoustical resonators used for bubble measurements -* J. Acoust. Soc. Am. 118(5), p.2954-2960, 2005

[Fin97] M. Fink - Time reversed Acoustics - Physics Today, Vol.20, p. 34-40, Mar. 1997

[Fol45] L. Foldy – The multiple scattering of waves - Phys. Rev. 67, p.107-119, 1945

[Fra78] A. Francescutto, R. Nabergoj – *Pulsation amplitude threshold for surface waves on oscillating bubbles* – Acustica Vol. 41, p. 215-220, 1978

[Fre88] R. de Fremont, P. Michaille, Y. Depierre, P. Courbiere, J. Guidez, M. Vanier – *Proposition de définition d'une teneur maximale admissible en argon dans le sodium du RNR 1500* – Note technique CEA, 1988

[Fyr94] M.M. Fyrillas, A.J. Szeri – *Dissolution or growth of soluble spherical oscillating bubbles* – J. Fluid Mech. Vol.277, p.381-407, 1994

[Gar89] P. Garnaud – M. Brunet - *La détection acoustique appliquée à la surveillance des réacteurs à neutrons rapides* – Note Technique CEA SSAE/LSMI 89/037, 1989

[Ger91] O. Gerard – Propagation acoustique dans un milieu diphasique eau-bulles d'air – Facteur de transmission et de réflexion d'un rideau de bulles – Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille II, 1991

[Gim84] G. Gimenez, M. Chamant, J.P. Farnaud – *Nonlinear response of a single bubble driven by a two-components exciting wave -* Proceedings of the 10<sup>th</sup> International Symposium on Nonlinear Acoustics, Kobe (Japan), 1984

[Gou07] T. Goursolle – *Propriétés acoustiques non linéaires classiques et non classiques : applications au contrôle de santé des matériaux de l'industrie aéronautique* - Thèse de doctorat, Université François Rabelais, Tours, 2007

[Guy99] R.A. Guyer and P.A. Johnson - *Nonlinear mesoscopic elasticity: Evidence for a new class of materials* - Phys. Today 52(4), 30–36, 1999

[Guy09] R.A. Guyer, P.A. Johnson – *Nonlinear Mesoscopic Nonlinearity: The Complex Behaviour of Rocks, Soil, Concrete* – Wiley-VCH, 2009

[Ham98] M.F. Hamilton, D.T. Blackstock – *Nonlinear Acoustics* – Published by the Acoustical Society of America, 1998

[Har95] A.J. Hardwick – *The mechanism of subharmonic ultrasound modulation by forcibly oscillating bubbles* - Ultrasonics, Vol. 33, p. 341-343, 1995

[Hel85] H. Von Helmholtz – On the sensations of tone – 1885 – Dover ed. 1954 ré-ed.

[Hep04] N.J. Hepworth – *Novel application of computer vision to determine bubble size distributions in beer* – Journal of Food Engineering, vol.61, p.119-124, 2004

[Hon78] E. Honnorat – *Propriétés physiques de l'argon à l'état gazeux* – Recommandations CEA N°13, 03/1978

[Joh96] P. A. Johnson, B. Zinszner and P.N.J. Rasolofosaon – *Resonance and elastic nonlinear phenomena in rock* – Journal of geophysical research, vol.101 (B5), May 1996, 11553-11564

[Jon99] S.F. Jones, G.M. Evans, K.P. Galvin – *Bubble nucleation from gaz cavities – A review* – Advances in Colloid and Interface Science, Vol.80, p.27-50, 1999

[Joh01] P. A. Johnson, J.A. TenCate, R.A. Guyer, K. Van Den Abeele – *Resonant Nonlinear Ultrasound Spectroscopy* – United States Patent, US 6,330,827 B1 (Dec. 18, 2001)

[Jor07] D.W Jordan, P. Smith – *Nonlinear Ordinary Differential Equations : An introduction for scientist and engineers* – 4<sup>th</sup> edition, Oxford University Press, 2007

[Jud69] A.M. Judd – *Analysis of the transient boiling of liquid metals* – Brit. J. Appl. Phys. Ser.2, Vol.2, p.261-274, 1969

[Kar03] S. Karpov, A. Prosperetti and L. Ostrovsky – *Nonlinear wave interactions in bubble layers* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 113(3), p.1304-1316, 2003

[Kel80] J. Keller, M. Miksis – Bubble oscillations of large amplitude – JASA, vol. 68, n°2: 628-33

[Khi01] D.B. Khismatullin, I.S. Akhatov – *Sound-Ultrasound interaction in bubbly fluids: Theory and possible applications* – Physics of Fluids, Vol.13(2), p.3582-3598, 2001

[Kob80] Y.A. Kobelev, L.A. Ostrovsky, M. Sutin – *Self induced transparency and frequency conversion effects for acoustic waves in underwater acoustics* – W. Lauterborn ed., Springer, p. 151-156, 1980

[Kol92] D. Koller, Y. Li, M. Shankar, V.L. Newhouse – *High-Speed Bubble Sizing Using the Double Frequency Technique for Oceanographic Applications* – IEEE Journal of Oceanic Engineering, Vol. 17(3), July 1992

[Lam31] H. Lamb – *The dynamical theory of sound* – Edward Arnold London, 3<sup>rd</sup> edition, 1931

[Lam95] H. Lamb – *Hydrodynamics* – Cambridge university Press, 1895

[Lau76] W. Lauterborn – *Numerical investigation of nonlinear oscillations of gas bubbles in liquids* - J. Acoust. Soc. Am. 59 (2), Feb 1976, 283-293

[Lau99] W. Lauterborn, T. Kurz, R. Mettin and C.D. Ohl – *Experimental and theoretical bubble dynamics* – Advances in Chemical Physics, Vol. 110, Chap.5, edited by I. Prigogine & Stuart A. Rice

[Lau02] W. Lauterborn – *Nonlinear acoustics and acoustic chaos* - Lecture Notes in Physics, Vol. 586, p.265-284, 2002

[Lef94] J.P. Lefebvre – *Bases physiques de l'acoustique* – Chapitre 1 de *Acoustique générale*, P.Filippi, D. Habault, J.P. Lefebvre and A. Bergassoli, éditions de physiques, 1994

[Lei90] T.G. Leighton, A.J. Walton and M.J.W. Pickworth– *Primary Bjerknes forces* – Eur. J. Phys. Vol.11, P.47-50, 1990

[Lei91] T.G. Leighton, R.J. Lingard, A.J. Walton and J.E. Field - *Acoustic bubble sizing by the combination of subharmonic emissions with an imaging frequency* - Ultrasonics, Vol. 29, p. 319-323, 1991

[Lei93] T.G. Leighton, R.J. Lingard, A.J. Walton and J.E. Field – *Bubble sizing by the nonlinear scattering of two acoustic frequencies* – Natural Physical Sources of Underwater Sound – B.R Kerman (ed.), p.453,466, 1993

[Lei94] T.G. Leighton – *Acoustic bubble detection – I: The detection of stable gas bodies –* Environmental engineering 7, p. 9-16, 1994

[Lei96] T.G. Leighton, A.D. Phelps, D.G. Ramble and D.A. Sharpe – *Comparison of the abilities of eight acoustic techniques to detect and size a single bubble* – Ultrasonics, Vol. 34, p. 661-667, 1996

[Lei98] T.G. Leighton, D.G. Ramble, A.D. Phelps, C.L. Morfey and P.P. Harris – *Acoustic Detection of Gas Bubbles in a Pipe* - Acustica – Acta acustica, Vol. 84, p. 801-814, 1998

[Lei08] T.G. Leighton, A. Mantouka, P. White, Z. Klusek – *Towards field measurements of population of methane gas bubbles in marine sediments: an inversion method required for interpreting two-frequency insonification data from sediment containing gas bubbles* – Hydroacoustics, Vol. 11, p. 203-224, 2008

[Ler04] V. Leroy – Bulles d'air dans l'eau : couplage d'oscillateurs harmoniques et excitation paramétrique – Thèse de doctorat, Univ. Paris 7, 2004

[Lew82] D. Lewis – *Bubble splitting in shear flow* – Trans. I ChemE, 60, p. 283-291, 1982

[Lhu79] C. Lhuillier – 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

[Lhu79-2] 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

[Lhu82] C. Lhuillier – *Etalonnage des détecteurs acoustiques Super Phénix 1* - Note Technique CEA, DRNR-STRS-LEIS 82/15, 1982

[Lhu84] C. Lhuillier, G. Girard – *Etalonnage en eau de quatre capteurs acoustiques au niabate de lithium du type « 4515 » dans le domaine de fréquence 10-200 kHz –* Note Technique CEA, DRNR-SPCI-LMIn 84/504, 1984

[Lhu84-2] C. Lhuillier, P. Ducret, J. Risbourg – *Caractéristiques électroacoustiques d'un transducteur ultrasonore haute température du type 4540 HP* - Note Technique CEA, DRNR-SPCI-LMIn 84/539, 1984

[Lig06] G. Liger-Belair – *Nucléation, ascension et éclatement d'une bulle de champagne* – Annales de physique Vol.31 – n.2, 2006

[Lig07] G. Liger-Belair – *Flow patterns of bubble nucleation sites (called fliers) freely floating in champagne glasses* – Langmuir, vol.23 (22), p.10976-10983, 2007

[Mak97] A.O. Maksimov – On the subharmonic emission of gas bubbles under two-frequency excitation – Ultrasonics, Vol. 35, p. 79-86, 1997

[Mak08-1] A.O. Maksimov – *Hamiltonian Description of Bubbles Dynamics* – Journal of Experimental and Theoretical Physics, Vol.106(2), p.355-370, 2008

[Mak08-2] A.O. Maksimov, T.G. Leighton, P.R. Birkin – *Self focusing of acoustically excited Frarday ripples on a bubble wall* – Physics Letters A, Vol.372, p.3210-3216, 2008

[Mal10] A. Mallock – *The damping of sound by frothy liquids* - Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Vol. 84(572), p. 391-395, 1910

[Mar97] W. Marczak - *Water as a standard in the measurements of speed of sound in liquids* - J. Acoust. Soc. Am. Vol.102(5) p.2776-2779, 1997

[Med77] H. Medwin – *Counting bubbles acoustically: a review* – Ultrasonics, n°1, p.7-13, 1977

[Mee07] S. Van Der Meer – *Ultrasound Contrast Agents. Resonances of coated bubbles* – Thesis, Physics of Fluids, University of Twente

[Mei04] A.R. Naji Meidani, M. Hasan - *Mathematical and physical modelling of bubble growth due to ultrasound* - Applied Mathematical Modelling, Vol. 28, p. 333–351, 2004

[Mig97] G. Mignot – Modèle de désorption nucléée (ou nucléation) dans les échangeurs intermédiaires d'un réacteur à neutrons rapides – Note Technique CEA, SERA/LETh/97/5016, 1997

[Mig98] G. Mignot – *Développements et améliorations des modèles de transport et de comportement de gaz dans le code VIBUL* – Note Technique CEA, SERA/LETh/98/5042, 1998

[Mil81] D.L. Miller – Ultrasonic detection of resonant cavitation bubbles in a flow tube by their second-harmonic emissions - Ultrasonics, Vol. 19(5), p. 217-224, Sep. 1981

[Min33] M. Minnaert – On musical air bubbles and the sound of running water - Phil. Mag., 16(7), p. 235-248, 1933

[Moi98] C. Moitrier, 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

[Mor09] H. Moreschi, A. Novell, S. Callé, M. Defontaine and A. Bouakaz – *Characterization of Nonlinear Viscoelastic Properties of Ultrasound Contrast Agents* – IEEE Int. Ultrasonics Symposium, p.251-254, 2009

[Mor87] P. Morse, K. Ingard - Theoretical acoustics - Hill M ed., New York, 1987

[Mul05] M. Muller, A. Sutin, R. Guyer, M. Talmant, P. Laugier and P.A. Johnson – *Nonlinear resonant ultrasound spectroscopy (NRUS) applied to damage assessment in bone* – J. Acous. Soc. Am., Vol. 118(6), p. 3946-3952, Dec. 2005

[Nau98] K. Naugolnykh, L. Ostrovsky – *Nonlinear Wave Processes in Acoustics* – Cambridge Texts in Applied Mathematics, 1998

[New84] V.L. Newhouse, P.M. Shankar – *Bubble sizing using the nonlinear mixing of two frequencies* – J. Acoust. Soc. Am., Vol. 75(5), p.1473-1477, 1984

[Nol50] B.E. Noltingk, E.A. Neppiras – *Cavitation produced by ultrasonics* – Proc Phys Soc, vol.63(B), p. 674-685, 1950

[Nor93] A.N. Norris, G. Wickham – *Elastic Helmholtz Resonators* - J. Acoust. Soc. Am. Vol.93 (2), p.283-293, 1993

[Oly09] Olympus – Ultrasonic Transducers Technical Notes – Pana\_UT\_EN\_200901, 2009

[Ost98] L.A. Ostrovsky, A.M. Sutin, I.A. Soustova, A.I. Matveyev and A.I. Potapov – *Nonlinear, low-frequency sound generation in a bubble layer: Theory and laboratory experiment -* J. Acoust. Soc. Am., Vol. 104(2), p.722-726, 1998

[Ost03] L.A. Ostrovsky, A.M. Sutin, I.A. Soustova, A.I. Matveyev, A.I. Potapov and Z. Klusek – *Nonlinear scattering of acoustic waves by natural and artificially generated subsurface bubble layers in sea* - J. Acous. Soc. Am., Vol. 113(2), p. 741-749, Feb. 2003

[Par90] U. Parlitz, V. Englisch, C. Scheffczyk and W. Lauterborn – *Bifurcation structure of bubble oscillators* – J. Acoust. Soc. Am., Vol. 88(2), p.1061-1077, 1990

[Pau08] K. Paumel – Contribution à l'étude de la transmission des ultrasons à l'interface solideliquide-gaz – Application au contrôle non destructif des réacteurs de quatrième génération refroidis par du sodium liquide – Thèse de doctorat – Université de la Méditerranée, 2008

[Pau09] M.C. Pauzin - *Modélisation du comportement dynamique d'un agent de contraste ultrasonore* – Thèse de doctorat – LMA, Université de la Méditerranée, Aix-Marseille 2, 2009

[Pau10] K. Paumel, Ch. Lhuillier – *Besoin en simulation du bruit de fond acoustique dans la cuve principale d'un RNR Sodium* - Note technique CEA - DEN/DTN/STPA/LIET, 2010

[Pay07] C. Payan – *Caractérisation non destructive du béton : étude du potentiel de l'acoustique non linéaire* – Thèse de doctorat, LCND Université de la Méditerranée, 2007

[Phe96] A.D. Phelps, T.G. Leighton – *High-resolution bubble sizing through detection of the subharmonic response with a two-frequency excitation technique* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 99(4), p. 1985-1992, 1996

[Phe97-1] A.D. Phelps, T.G. Leighton – *The Subharmonic Oscillations And Combination-Frequency Subharmonic Emissions From A Resonant Bubble : Their Properties and Generation Mechanisms* – Acustica – Acta acustica, Vol. 83, p. 59-66, 1997

[Phe97-2] A.D. Phelps, D.G. Ramble and T.G. Leighton – *The use of a combination frequency technique to measure the surf zone bubble population* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 101(4), p. 1981-1989, 1997

[Phe98] A.D. Phelps, T.G. Leighton – *Oceanic Bubble Population Measurements Using a Buoy-Deployed Combination Frequency Technique* – IEEE J. Oceanic Eng., Vol. 23(4), p. 400-410, 1998

[Ple49] M. Plesset – *The dynamics of cavitation bubbles* – Journal of Applied Mechanics, vol. 116: 277-82

[Por52] H. Porisky - *The collapse or growth of a spherical bubble or cavity in a viscous fluid* – First US National Congress on applied mechanics, NYC, p.813-821, 1952

[Pro76] A. Prosperetti – *Subharmonics and ultraharmonics in the forced oscillations of weakly nonlinear systems* - American Journal of Physics, Vol.44(6), p.548-554, 1976

[Pro77] A. Prosperetti – *Application of subharmonic threshold to measurement of damping of oscillating gas-bubbled* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 61(1), p.11-16, 1977

[Pro88] A. Prosperetti, A. Crum, K.W. Commander – *Nonlinear bubble dynamics* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 83(2), p. 502-514, 1988

[Rah96] L. Rahmani – *Centrale de Creys-Malville – Outil de dépouillement de mesure du taux d'engazement du sodium primaire –* Note technique EDF - E L R EM/96 001 A, 1996

[Rah97] L. Rahmani – *Mesure du taux de vide du sodium primaire, dépouillement de l'essai du 24/12/1996* – Note technique EDF - E L R EM/97 014 A, 1997

[Ram85] B. Rameau, J.M. Seiler – *Ecoulements et transferts de chaleur en sodium bouillant. Application aux problèmes de sureté de réacteurs à neutrons rapides* – Rapport CEA R 5311, 198

[Ram98] D.G. Ramble, A.D. Phelps, T.G. Leighton – *On the relation between surface waves on a bubble and the subharmonic combination frequency emission* - Acustica – Acta acustica, Vol. 84, p. 986-988, 1998

[Ray17] LSJV Rayleigh – On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical *cavity* – Philos Mag, vol.34: 94-8, 1917

[Rei87] R.C Reid, J.M. Prausnitz, B.E. Poling – *The properties of gases and liquids* - McGraw Hill Book Co, 1987

[Ren08] G. Renaud - *Mesure de non-linéarités élastiques et dissipatives par interaction d'ondes acoustiques : Application à la quantification du micro-endommagement de l'os trabéculaire –* Thèse de doctorat, Université François Rabelais - Tours, 2008

[Roc71] Y. Rocard – *Dynamique générale des vibrations* – Masson et C<sup>ie</sup>, 4<sup>ème</sup> ed, 1971

[Rod97] G. Rodriguez, J. Desreumaux – *Physico-chimie du sodium* – Note technique CEA, STML-LEPE-96/090, 1997

[Sag79] K.A. Sage, J. George, H. Uberall – *Multipole resonances in sound scattering from gas bubbles in a liquid* - J. Acous. Soc. Am., Vol. 65(6), p. 1413-1422, Jun. 1979

[San82] B.M. Sandler, D.A. Selivanovskii and A.Y. Sokolov – New data on the concentration of gas bubbles with radii from 6 to 20  $\mu$ m in the sea – Sov. Phys. Tech. Phys. Vol.27(8), p.1038-1039, 1982

[Sha05] P. K. Sharma, M.J. Gibcus, H.C. van der Mei, H.J. Busscher – *Influence of fluid shear and microbubbles on bacterial detachment from a surface* – Applied and environmental microbiology, Vol. 71(7), p.3668-3673, Jul. 2005

[Sij09] J. Sijl – Ultrasound Contrast Agents Optical and Acoustical Characterization – Thèse de doctorat, University of Twente, 2009

[Sil57] E. Silberman – Sound velocity and attenuation in bubbly mixtures measured in standing wave tubes - J Acoust Soc Am, Vol.29(8), p. 925-933, 1957

[Smi35] F.D. Smith - *On the destructive mechanical effects of the gas-bubbles liberated by the passage of intense sound through a liquid* - Philosophical Magazine, vol. 19, p. 1147-1151, 1935.

[Sut98] A.M. Sutin, S.W. Yoon, E.J. Kim and I.N. Dudenkulov - *Nonlinear acoustic method for bubble density measurements in water* – JASA 103(5), p.2377-2384, 1998

[SYF92] Note SYFRA 91211 – Bilan des facteurs d'engazement dans un réacteur rapide

[Tel01] R.H. Telling, A.J. Walton – *Bernoulli excitation and detection of gas bubbles* – Ultrasonics, 39, p. 455-459, 2001

[Ten98] J.A. TenCate and T.J. Shankland - *Slow Dynamics and Nonlinear Response at Low Strains in Berea Sandstone* – Proceedings of the 16<sup>th</sup> International Congress on Acoustics and 135<sup>th</sup> Meeting of the Acoustical Society of America, 3, P.A. Kuhl and L.A. Crum, Eds, AIP, New York, p.1565-1566, 1998

[Thu34] A. L. Thuras, R.T. Jenkins, H.T. O'Neil – *Extraneous Frequencies Generated in Air Carrying Intense Sound Waves* - J. Acous. Soc. Am., Vol. VI, p. 173-180, Jan. 1935

[Tou10] S. Touati – *Simulation de la résonance non linéaire des bulles dans un SFR* – Mémoire de Master 2, Université Paris VI Pierre et Marie Curie, 2010

[Ube79] H. Überall, J. George, A.R. Farhan, G. Mezzorani, A. Nagl, K.A. Sage and J.D. Murphy – *Dynamics of acoustic resonance scattering from spherical targets: Application to gas bubbles in fluids* - J. Acoust. Soc. Am., Vol. 66(4), p. 1161-1172, 1979

[Vel71] E. Veleckis, S.K. Dhar, A. Cafasso and H.M. Feder – *Solubilty of Helium and Argon in Liquid Sodium* – The Journal of Physical Chemistry, vol.76, n.18, p.2832-2838, 1971

[Wat61] P. C. Waterman, R. Truell – *Multiple Scattering of waves* – J. Math. Phys. 2, 512-537, 1961

[Wes63] P.J. Westervelt – *Parametric Acoustic Array* - J. Acous. Soc. Am., Vol. 35(4), p. 535-537, Apr. 1963

[Wil46] R. Wildt - Acoustic Theory of Bubbles - US Navy Technical Report, 1946

[Woo41] A.B. Wood – A textbook of sound – Macmillan, New York, 1941

[Woo75] R.S. Woollett – *Underwater Helmholtz-Resonator Transducers: General Design Principles* – Naval Underwater Systems Center (USA), Technical Report 5633, 1977

[Yan98] S. Yang, A.H. Nayfeh and D.T. Mook – *Combination resonances in the response of the Duffing oscillator to a three-frequency excitation* – Acta Mechanica, Vol. 131, p. 235-245, 1998

[Ye95] Z. Ye, L. Ding – *Acoustic dispersion and attenuation relations in bubbly mixtures* – J Acoust Soc. Am., Vol. 98(3), p.1629-1636, 1995

[Zab73] E.A. Zabolotskaya, S.I. Soluyan – *Emission of harmonic and combination frequency waves by air bubbles* – Soviets Physics – Acoustics, Vol. 18(3), p. 396-398, Jan.-Mar. 1973

[Zab76] E.A. Zabolotskaya – *Acoustic second harmonic generation in a liquid containing uniformly distributed air bubbles* – Soviets Physics - Acoustics, Vol. 21(6), p. 569-571, 1976

[Zab84] E.A. Zabolotskaya – *Phase conjugation of sound beams in connection with four-phonon interaction in a liquid containing gas bubbles* - Soviets Physics – Acoustics, Vol. 30(6), p. 462-463, Nov.-Dec. 1984

[Zai09] VY Zaitsev, A. Dyskin, E. Pasternak and L. Matveev – *Microstructure-induced giant elastic nonlinearity of threshold origin : Mechanism ans experimental demonstration* – EPL, Vol.86, 44005p(1-5), 2009

[Zar10] J.P. Zardan, C. Payan, V. Garnier and J. Salin - *Effect of the presence and size of a localized nonlinear source in concrete* - J. Acoust. Soc. Am. , Vol. 128 (1), Express Letter 38, July 2010

(182 références)

#### Résumé

Le choix de la filière SFR (Sodium Fast Reactor : Réacteurs à neutrons rapides refroidis par du sodium liquide), par la France conduit à la réalisation d'un prototype de quatrième génération nommé ASTRID. Le développement de ce type de réacteurs présente plusieurs défis, en particulier du point de vue de l'amélioration de la démonstration de la sûreté et de la surveillance du fonctionnement. Cette dernière passe, entre autres, par la caractérisation de l'engazement du sodium liquide (présence de microbulles de gaz).

La caractérisation de l'engazement est l'objet de cette étude, elle implique la détermination du taux de vide (fraction volumique de gaz) et de l'histogramme des rayons des microbulles.

Le travail bibliographique réalisé a montré que les techniques acoustiques linéaires de caractérisation des nuages de bulles ne permettaient pas de répondre pleinement à cette problématique, en revanche des pistes prometteuses ont été identifiées en étudiant les techniques acoustiques non linéaires. Cette dernière voie a par conséquent été explorée.

Un banc expérimental en eau permettant la génération et le contrôle optique de nuages de microbulles nous a permis de valider finement la reconstruction d'histogrammes des rayons grâce à une technique de mixage non linéaire d'une haute fréquence avec une basse fréquence. La potentialité du mixage de deux hautes fréquences, plus intéressante d'un point de vue industriel, a par ailleurs été démontrée. Enfin, les bases de la transposition originale d'une technique de spectroscopie de résonance non linéaire appliquée à un nuage de bulles ont été posées, grâce à la mise en place de résonateurs acoustiques.

Les résultats obtenus offrent de nombreuses perspectives, tant du point de vue des applications industrielles que du point de vue plus fondamental de la compréhension du comportement acoustique non linéaire d'une bulle excitée par plusieurs fréquences et d'un nuage de bulles excité à basse fréquence.

#### Mots-Clés

Bulles - Engazement - Acoustique non linéaire - Sodium - SFR - ASTRID

#### Contribution of nonlinear acoustic to the characterization of microbubbles clouds in liquid sodium Application to the Generation IV nuclear reactors

The SFR system chosen (Sodium Fast Reactor: fast neutron reactors cooled by liquid sodium) by France led to a fourth-generation prototype named ASTRID. The development of this kind of reactors presents several challenges, particularly in terms of improving the safety and monitoring operation. This involves, among other things, characterization of the bubbles presence in liquid sodium. The characterization of the bubbles presence is the subject of this thesis. It involves the determination of void fraction (gas volume fraction) and histogram of the radii of bubbles. The bibliographic work done has shown that linear acoustic techniques for the characterization of bubble clouds are inadequate to achieve this.

However promising leads have been identified by studying nonlinear acoustic techniques. This last idea has therefore been explored. An experimental water bench for the generation and optical control of microbubbles cloud allowed us to validate finely the reconstruction of histograms of radii through a technique of nonlinear mixing of a high frequency with a low frequency. The potential of the mixing of two high frequencies, more interesting for the industrial point of view has also been demonstrated. Finally, the bases of the transposition of an original technique of nonlinear resonance spectroscopy applied to a bubbles cloud were explored through the introduction of acoustic resonators. The results offer many interesting opportunities, both in terms of industrial applications and for more fundamental understanding of non-linear behavior of a bubble excited by multiple frequencies and of bubbles clouds excited at low frequency.

#### Keywords

Bubbles - Nonlinear acoustics - Sodium - SFR - ASTRID

Laboratoire de Caractérisation Non Destructive Université de la Méditerranée IUT Aix en Provence 413 avenue Gaston Berger 13625 Aix en Provence CEDEX 1 Commissariat à l'Energie Atomique Centre d'études Nucléaires de Cadarache DEN/DTN/STPA/LIET Bâtiment 202 13108 Saint Paul lez Durance CEDEX