



HAL
open science

Caractérisation acoustique de matériaux viscoélastiques homogènes et hétérogènes pour la furtivité sous-marine

Quentin Baudis

► **To cite this version:**

Quentin Baudis. Caractérisation acoustique de matériaux viscoélastiques homogènes et hétérogènes pour la furtivité sous-marine. Acoustique [physics.class-ph]. Sorbonne Université, 2023. Français. NNT : 2023SORUS012 . tel-04051182

HAL Id: tel-04051182

<https://theses.hal.science/tel-04051182>

Submitted on 29 Mar 2023

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.



Sorbonne Université

ECOLE DOCTORALE 391 : SCIENCES MÉCANIQUES, ACOUSTIQUE, ELECTRONIQUE ET ROBOTIQUE

Thèse de Doctorat
Spécialité Acoustique Physique

**Caractérisation acoustique de matériaux
visco-élastiques homogènes et hétérogènes pour la
furtivité sous-marine**

Quentin Baudis

Sous la direction de :

Régis Wunenburger, *Professeur*

Tony Valier-Brasier, *Maître de conférence*

à l'Institut Jean le Rond d'Alembert, Sorbonne Université, CNRS, UMR 7190

Soutenue le 19 janvier 2023, devant le jury composé de :

M. Quentin Grimal	Professeur des Universités à Sorbonne Université	<i>Président du jury</i>
M. Thomas Brunet	Maître de conférences à Bordeaux INP	<i>Rapporteur</i>
M. Pierre Maréchal	Maître de conférences à l'Université Le Havre Normandie	<i>Rapporteur</i>
Mme. Marie Muller	Maîtresse de conférences à North Carolina State University	<i>Examinatrice</i>
M. Valentin Leroy	Directeur de recherche CNRS	<i>Examineur</i>
M. Jean-Marc Conoir	Directeur de recherche CNRS	<i>Examineur</i>
M. Ygaal Renou	Ingénieur de recherche, Naval Group Research	<i>Invité</i>
M. Bertrand Habert	Ingénieur de recherche, DGA	<i>Invité</i>
M. Régis Wunenburger	Professeur des Universités à Sorbonne Université	<i>Directeur</i>
M. Tony Valier-Brasier	Maître de conférences à Sorbonne Université	<i>Co-encadrant</i>

Résumé

Ce travail de thèse porte sur la caractérisation acoustique du comportement effectif de matériaux visco-élastiques hétérogènes pour des applications à la furtivité sous-marine. Le composite étudié est constitué d'un élastomère de polyuréthane, par définition souple et sensible aux variations de température, dans lequel est ajoutée une population de billes denses résonnantes réparties de manière aléatoire mais contrôlée. La première partie de la thèse consiste à réaliser des mesures précises et répétables de la rhéologie du polyuréthane en fonction de la fréquence dans la gamme 0,05 – 5,0 MHz, et de la température dans la gamme 5 – 40 °C. L'identification de modèles visco-élastiques à dérivées fractionnaires est rendue possible par l'application du principe d'équivalence temps-température sur la mesure des modules de cisaillement, longitudinal et d'incompressibilité du polyuréthane. L'originalité de cette première partie réside notamment dans la technique expérimentale employée pour mesurer le comportement des ondes de cisaillement dans des matériaux aussi dissipatifs. La seconde partie de la thèse présente d'une part le protocole de fabrication des échantillons de polyuréthane chargés en billes, et d'autre part la caractérisation du nombre d'onde effectif à différentes températures. L'accord satisfaisant entre la théorie de la diffusion multiple et les mesures acoustiques en transmission permet de valider la prédiction du modèle à différentes températures compte tenu de la rhéologie de la matrice. La modélisation choisie pour décrire le comportement de la densité effective est vérifiée à l'aide d'un code numérique développé au sein du laboratoire et validée par des mesures de réflectivité. En perspective, les performances anéchoïques de ce composite sont optimisées aux fréquences d'intérêt pour les applications.

Abstract

This thesis deals with the acoustic characterization of the effective behaviour of heterogeneous visco-elastic materials for underwater stealth applications. This composite consists of a polyurethane (PU) elastomer, by definition flexible and sensitive to temperature variations, in which a population of dense resonant beads is added in a random but controlled manner. The first part of the thesis consists in carrying out precise and repeatable measurements of the rheology of PU as a function of frequency in the range 0.05 – 5.0 MHz, and of temperature in the range 5 – 40 °C. Fractional derivative visco-elastic models are identified by applying the time-temperature superposition principle to the measurement of PU's shear, longitudinal and bulk moduli. The originality of this first part lies in the experimental technique used to measure the behaviour of shear waves in such dissipative materials. The second part presents on the one hand the fabrication protocol of the bead-filled PU samples, and on the other hand the characterization of the effective wave number at different temperatures. The satisfactory agreement between the multiple scattering theory and the transmission acoustic measurements allows to validate the prediction of the model at different temperatures taking into account the rheology of the matrix. The model chosen to describe the behaviour of the effective density is verified using a numerical code developed in the laboratory and validated by reflectivity measurements. In perspective, the anechoic performance of this composite is optimised at frequencies of interest for underwater applications.

Remerciements

Ces premiers mots sont à l'attention de mes deux encadrants Tony et Régis, sans qui le succès de cette thèse de doctorat ne serait évidemment pas le même. Le travail que j'ai réalisé au cours de ces trois années est le fruit de votre complémentarité scientifique, disponibilité et pragmatisme, qui n'ont fait qu'accroître ma curiosité et renforcer ma détermination à aller au bout des objectifs initialement fixés. Vous avez fait de moi un jeune chercheur confiant et passionné par son sujet, et pour cela je vous en suis profondément reconnaissant.

Je tiens ensuite à remercier les membres de mon jury, en commençant par Thomas Brunet et Pierre Maréchal qui ont pris le temps de lire minutieusement le manuscrit. Vos rapports et les discussions que nous avons eues ont été extrêmement enrichissantes et ont permis d'approfondir des notions intéressantes. Ensuite, je tiens à remercier Quentin Grimal d'avoir accepté de présider le jury. Je remercie chaleureusement Jean-Marc Conoir qui m'a apporté un grand soutien pendant ces trois années. J'exprime ensuite une profonde gratitude envers Valentin Leroy qui travaille sur des thématiques passionnantes, donnant lieu à des échanges extrêmement pertinents au cours de ma thèse. Je remercie gracieusement Marie Muller pour sa disponibilité malgré la distance et ses remarques très intéressantes sur les aspects théoriques et expérimentaux. Je remercie Ygaël Renou et Laëtitia Roux, ingénieurs chez Naval Group Research, qui ont montré beaucoup d'intérêts pour ces travaux de thèse. Enfin, je remercie Bertrand Habert, qui nous a accordé sa confiance ainsi que l'Agence de l'Innovation de Défense de la Direction Générale de l'Armement qui a financé la thèse.

Cher laboratoire d'accueil, merci pour ces trois belles années. Merci au directeur Pierre-Yves Lagrée, Simona pour ta bienveillance et à toute l'équipe du SAF, Evelyne, Célia, Olivier, Sandrine et Catherine de nous faciliter grandement la tâche. Merci aux ingénieurs et techniciens du laboratoire qui opèrent sur le campus de Saint-Cyr et celui de Jussieu, en particulier Jean-Marie Citerne et Jean-François Egea qui m'ont grandement aidé pour les réalisations expérimentales. Je souhaite particulièrement remercier les permanents enseignants de l'UFR d'ingénierie car depuis la première année de licence vous n'avez jamais cessés de transmettre votre passion.

Chers doctorants, merci pour tout, vous êtes le moteur de ce labo. Je me suis beaucoup épanoui grâce à vous et cela a une implication directe sur la réussite de cette thèse ; je vous en suis très reconnaissant. Merci à mon *senpai* Alverède qui s'est montré très disponible pour m'accueillir et me lancer dans la thèse. Merci à Raph' et Thomas qui sont acousticiens et fondateurs de "d'Alembière" (corrélation ?). Ne vous inquiétez pas, la relève est assurée. Merci à tous les autres qui m'ont accueilli chaleureusement à mon arrivée, en particulier Antoine M. avec qui j'ai partagé de bons moments dans le bureau 405. Je souhaite remercier les membres actuels du bureau, Rodolphe pour nos échanges sérieux et moins sérieux, Simon pour ta bonne humeur, Guanjing pour ton soutien le samedi, Damien pour nos moments musicaux et surtout Patricia, une personne formidable qui m'a beaucoup soutenu et à qui je souhaite le meilleur pour la fin de sa thèse car elle le mérite. Merci aux musiciens pour nos divers jam sessions organisées au labo ou ailleurs, Louis, Camille M., Yvan, Samy un chef d'orchestre qui a du groove et bien-sûr Matt' mon petit préféré. Je remercie Camille C. et Ludo qui font partie de la team diffusion multiple et avec qui j'ai adoré discuter physique des ondes et MuScat. Je remercie tous les doctorants pour nos divers échanges toujours appréciables au labo et/ou au bar. Évoluer à vos côtés a été d'une grande richesse et je souhaite aux nouveaux d'en profiter un maximum. Enfin, merci à Laureline, Yutao, Adrien et Serena pour tous les moments passés et à venir. Vous êtes devenus de véritables amis, et je vous dois beaucoup.

Pour finir, je souhaite remercier mes deux familles. D'abord ma famille acousticienne, collègues de promo, qui sont aujourd'hui tous en thèse ou déjà docteur mais surtout de très bons amis, Charau, Thibault, Chloë, Clément, Sarah. Évidemment mes parents qui m'ont toujours fait confiance et laissé une grande liberté, ainsi que ma grande sœur qui est la plus attentionnée. Enfin, Marie, qui partage ma vie et qui m'apporte au quotidien le meilleur des soutiens.

Table des matières

Introduction générale	11
1 Mesure d'onde longitudinale dans un polyuréthane	21
Introduction	22
1.1 Dispositif expérimental et protocole d'acquisition	24
1.1.1 Banc de mesure à température contrôlée	25
1.1.2 Fabrication et caractéristiques des échantillons	27
1.2 Propriétés acoustiques de l'eau	28
1.2.1 Vitesse du son c_0	28
1.2.2 Masse volumique ρ_0	30
1.3 Traitement des signaux	31
1.3.1 Méthode de la différence de phase	31
1.3.2 Fenêtrage des signaux	32
1.3.3 Domaine fréquentiel de validité	33
1.3.3.1 Limite supérieure f_{\max}	34
1.3.3.2 Limite inférieure f_{\min}	34
1.3.3.3 Bande passante	35
1.4 Mesure des propriétés acoustiques du polyuréthane	36
1.4.1 Choix de la méthode	36
1.4.2 Répétabilité	36
1.4.3 Dépendance en température	37
1.4.3.1 Mesures basses fréquences	37
1.4.3.2 Mesures hautes fréquences	38
Conclusion	39
2 Mesure d'onde transverse dans un polyuréthane	41
Introduction	42
2.1 Dispositif expérimental et protocole de mesure	46
2.1.1 Couplage des transducteurs aux lignes à retard	46
2.1.2 État de surface des lignes à retard	47
2.1.3 Couplage des lignes à retard aux échantillons	48
2.1.4 Acquisition des signaux	49
2.2 Traitement des signaux et modèle de propagation	50
2.2.1 Ouverture du faisceau et limites fréquentielles	50
2.2.2 Mesure des coefficients de réflexion et de transmission	51
2.2.3 Modèle de propagation	52
2.2.4 Effet de la température	53
2.3 Résolution du problème inverse	54

2.3.1	Position du problème	55
2.3.2	Identification de la solution physiquement admissible	55
2.3.2.1	Discrimination par l'épaisseur	56
2.3.2.2	Discrimination par la réflexion	56
2.4	Tests de qualité des mesures	57
2.4.1	Répétabilité	57
2.4.2	Dépendance en température	58
2.4.3	Vérification d'un critère énergétique	59
2.4.4	Module d'incompressibilité K	60
2.5	Étude de la cinétique de réticulation	60
2.5.1	Suivi du signal temporel au cours du durcissement	61
2.5.2	Suivi du cisaillement au cours du durcissement	62
	Conclusion	64
3	Rhéologie du polyuréthane	65
	Introduction	66
3.1	Principe d'équivalence temps-température	68
3.1.1	Définition du principe de superposition	68
3.1.2	Changement d'échelle en fréquence	70
3.1.3	Changement d'échelle en amplitude	70
3.2	Courbes maîtresses du polyuréthane	71
3.2.1	Détermination de a_T	71
3.2.2	Détermination de b_T^M	73
3.2.3	Détermination de b_T^G	75
3.2.4	Détermination de b_T^K	77
3.2.5	Incertitudes et répétabilité de l'ETT	79
3.3	Rhéologie du polyuréthane	81
3.3.1	Visco-élasticité fractionnaire	81
3.3.1.1	Modèle de Zener fractionnaire	83
3.3.1.2	Modèle de Kelvin-Voigt fractionnaire	84
3.3.2	Caractérisation de la rhéologie du polyuréthane	85
3.3.3	Comparaison des valeurs de M avec des mesures basses fréquences	87
3.3.4	Comparaison des valeurs de G avec des mesures de DMA	88
3.3.5	Influence de la température de réticulation	89
	Conclusion	90
4	Mesure d'onde cohérente longitudinale dans un polyuréthane chargé	93
	Introduction	94
4.1	Modélisation de la diffusion d'ondes élastiques	95
4.1.1	Diffusion par une sphère élastique	95
4.1.2	Diffusion par une sphère rigide	97
4.1.3	Théorie de la diffusion multiple	99
4.1.3.1	Modélisation du nombre d'onde effectif	100
4.1.3.2	Modélisation de la densité effective	102
4.2	Conception et optimisation des échantillons	103
4.2.1	Protocole de fabrication	103
4.2.2	Contrôle de la répartition des billes au sein d'une couche	105

4.2.3	Isotropie des échantillons	107
4.2.4	Corrélations spatiales	109
4.3	Mesures du nombre d'onde effectif	110
4.3.1	Mesures des paramètres effectifs	111
4.3.2	Influence du nombre de plans	113
4.3.3	Influence de la température	114
4.4	Confrontation des résultats avec MuScat	115
4.4.1	Extraction des paramètres effectifs	116
4.4.2	Extraction de la densité effective	117
4.4.3	Importance des conversions d'ondes	118
4.4.4	Validation expérimentale	119
4.5	Dimensionnement du revêtement aux basses fréquences	120
	Conclusion	125
	Conclusion générale	127

Introduction générale

Furtivité et discrétion sous-marine

Ces dernières années, la concurrence entre les pays pour obtenir ou maintenir leur statut de puissance navale mondiale conduit à une accélération de l'exploitation maritime. La communauté scientifique est fortement sollicitée par les industriels pour le développement de nouvelles technologies sous-marines toujours plus performantes. En particulier, les questions de génération et de détection des ondes acoustiques dans l'eau sont essentielles, que ce soit pour des applications civiles ou militaires. Ces dernières décennies, la technologie SONAR (SOund NAvigation and Ranging) s'est imposée *via* le développement de systèmes de détection actifs et passifs. Ces appareils sont utilisés pour écouter la réflexion d'un signal émis sur une cible (figure 1a), ou détecter uniquement le bruit rayonné par la cible dans l'environnement (figure 1b). Les systèmes SONAR sont aujourd'hui sensibles à des événements acoustiques de contenu fréquentiel très bas, leur permettant de détecter des signaux qui se sont propagés sur de très grandes distances.

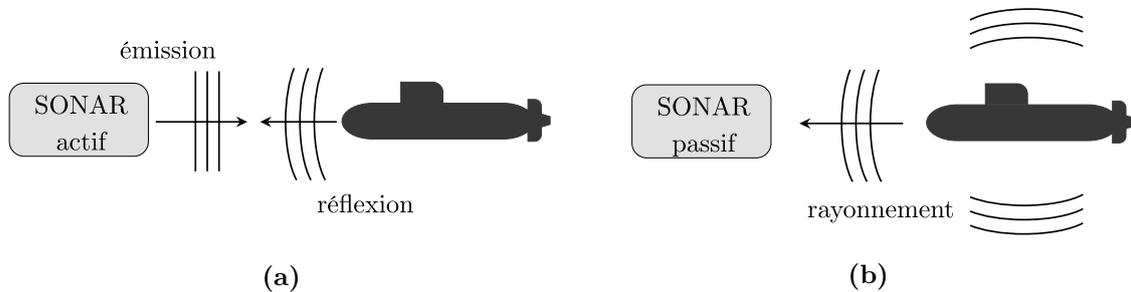


Figure 1 – Illustration du système de détection SONAR (a) actif et (b) passif.

Dans le contexte militaire, il est important qu'un navire de guerre soit le plus furtif et discret possible. Deux concepts de revêtements sont envisagés pour répondre à ces problématiques. Le *revêtement anéchoïque* permet de minimiser la réflectivité d'un sous-marin et donc d'accroître sa furtivité. Le sous-marin ne peut alors pas être détecté ni localisé par un SONAR actif adverse (figure 2a). Le *revêtement de masquage* a pour objectif de minimiser les émissions acoustiques rayonnées par la coque du sous-marin passif. En plus de développer une machinerie et des hélices silencieuses, ce type de revêtement favorise ainsi la discrétion du navire (figure 2b). Ces deux types de revêtement doivent respecter certaines contraintes quant à leur masse, épaisseur ou compressibilité. Les élastomères sont des matériaux intéressants pour ces applications puisqu'ils sont peu compressibles et possèdent une impédance acoustique similaire à celle de l'eau, favorisant par conséquent la transmission. Cependant, ce matériau homogène n'est pas suffisamment atténuant aux fréquences des systèmes SONAR pour revêtir à lui seul une coque de sous-marin.

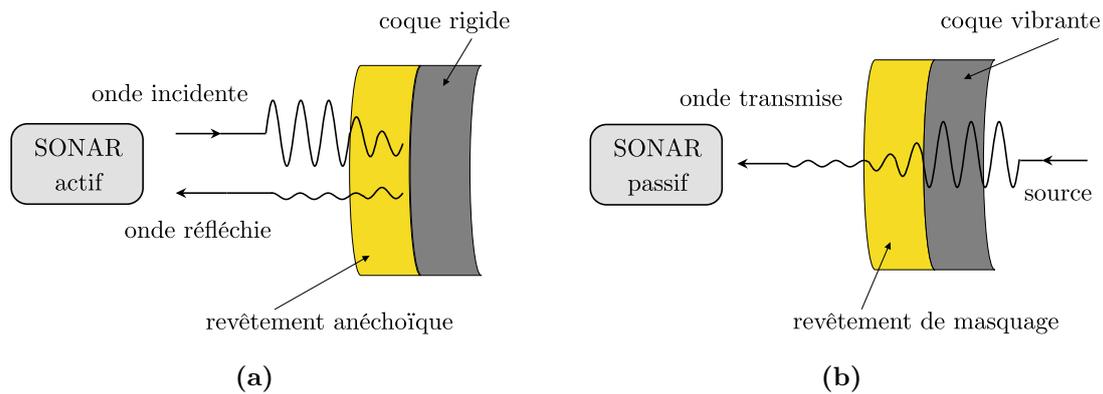


Figure 2 – Illustrations de revêtements utilisés pour (a) la furtivité et (b) la discrétion.

Matériaux pour l’acoustique sous-marine

Les revêtements de sous-marins sont historiquement développés et utilisés depuis la seconde guerre mondiale pour accroître leurs furtivité et discrétion. Le revêtement *Alberich* développé par Meyer *et al.* [1] a ainsi été retrouvé sur l’épave du sous-marin allemand U-480 coulé durant la seconde guerre mondiale, qui fait de celui-ci le premier sous-marin furtif. Ce matériau, présenté à la figure 3, est constitué d’une matrice en caoutchouc contenant un assemblage périodique d’inclusions d’air cylindriques reposant sur la coque du sous-marin. Les diamètres de ces cavités sont judicieusement choisis afin de maximiser l’absorption du revêtement sur la gamme de fréquences des systèmes SONAR de l’époque.

Des populations de micro-inclusions sphériques contenant de l’air (micro-cavités) ou du gaz (micro-ballons) réparties dans une matrice de polyuréthane sont aujourd’hui utilisées comme revêtement afin d’augmenter l’absorption et minimiser la réflexion des ondes. Pour ajuster la densité apparente du sous-marin, des inclusions plus denses peuvent être ajoutées. Ces populations de micro-inclusions étant particulièrement petites devant les longueurs d’ondes des systèmes SONAR, la diffusion des ondes par ces micro-inclusions a lieu dans le régime de Rayleigh, ce qui rend peu efficaces ces revêtements en terme d’absorption des ondes acoustiques. De plus, Beretti *et al.* [2] montrent que les performances acoustiques de ce matériau composite diminuent avec la profondeur d’immersion car ces inclusions ne tiennent pas la forte pression hydrostatique.

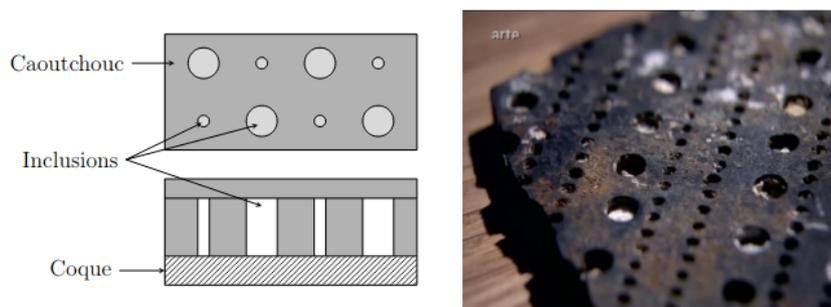


Figure 3 – Figure extraite de [3] : (gauche) coupe transversale et vue de dessus d’une couche du revêtement Alberich. (droite) Photographie d’un reste de celui-ci retrouvé sur l’épave du U-480.

Dans les années 2000, les métamatériaux ont ouvert la voie à de nombreuses stratégies pour contrôler la propagation des ondes [4–6]. Parmi celles-ci, les matériaux localement résonant présentent un intérêt particulier pour l’acoustique sous-marine [7,8]. Ces matériaux sont constitués de particules résonantes de taille inférieure à la longueur d’onde, enfouies aléatoirement ou non dans une matrice. L’utilisation des résonances locales influence fortement la propagation des ondes aux basses fréquences. En particulier, un fort contraste de compressibilité ou de densité entre la matrice et les inclusions conduit à exciter respectivement les modes monopolaire ou dipolaire de ces diffuseurs [9]. Dans leur travaux, Brunet *et al.* ont pu altérer considérablement la propagation des ondes dans une solution fortement concentrée de micro-billes poreuses en excitant à la fois leurs résonances monopolaire et dipolaire [10]. Deux types de résonateurs sont alors investigués : les résonateurs compressibles, très efficaces pour l’absorption acoustique, mais sensibles aux fortes pressions et les résonateurs denses, suffisamment rigides pour résister aux fortes pressions.

1) Résonateurs compressibles

Distribution périodique de cavités cylindriques - Suite aux travaux de Meyer *et al.* à la fin des années 1940 ainsi qu’à la découverte du revêtement *Alberich* dans les années 1990, de nombreuses études ont été menées pour mieux appréhender ses performances anéchoïques. En particulier, Gaunaud [11] et Lane [12] ont mis en évidence l’importance des modes monopolaire (dits de "respiration") et de paroi (dits "peau de tambour") des cavités cylindriques sur l’absorption de ce revêtement. En réalisant des mesures de transmission en immersion sur des panneaux de polyuréthane contenant une répartition périodique (ou aléatoire) de cavités cylindriques, Audoly [13] a discuté de la pertinence des modèles d’homogénéisation pour décrire le comportement effectif de tels composites. La modélisation analytique de ce système n’étant pas triviale, les études numériques suscitent un intérêt particulier. Le développement d’une méthode numérique basée sur les éléments finis ont permis à Hladky-Hennion *et al.* [14] de retrouver les performances anéchoïques du revêtement associées aux résonances des cavités. Il est nécessaire de préciser que l’arrangement périodique des cavités dans ce revêtement n’a pas d’influence sur la propagation, et en particulier sur l’amortissement des ondes aux fréquences des systèmes SONAR. On peut supposer que l’arrangement régulier de ces diffuseurs présente uniquement un avantage au niveau de la fabrication.

Distribution périodique de bulles - Les cavités à géométrie sphérique, et en particulier les bulles enfouies dans des liquides ou des solides visco-élastiques, ont également fait l’objet de nombreux travaux pour mieux comprendre les mécanismes d’absorption des ondes. Bien que ces diffuseurs soient des résonateurs communs et dont la physique est aujourd’hui bien connue, peu de travaux expérimentaux sont réalisés sur ces cavités puisqu’elles ne peuvent pas être maintenues immobiles. Dans leur travaux, Leroy *et al.* ont développé une technique permettant d’emprisonner une population de bulles monodisperse dans un fluide à seuil et ainsi réaliser des mesures ultrasonores autour de leur fréquence de résonance [15]. L’émergence d’une technique de photo-lithographie douce a permis à la même équipe de réaliser des mesures de transmission à travers un plan de cavités cylindriques réparties périodiquement dans une matrice visco-élastique [16]. En exploitant la résonance de Minnaert et les effets liés aux interférences dues à la périodicité des réseaux des écrans bulleux, les auteurs ont observé que l’absorption des ondes est renforcée. Dans la continuité de ces travaux, la modélisation de la réflectivité d’un tel système [17] a conduit l’équipe à optimiser les paramètres rhéolo-

riques de la matrice de manière à obtenir une absorption totale des ondes dans un unique plan de bulles [18]. Dans ce contexte, Thieury *et al.* [19] ont cherché à optimiser la géométrie de cylindres de sorte à accroître les performances anéchoïques de plan bulleux à très basses fréquences. De cette façon, ils ont montré que des cavités cylindriques plates sont des candidats plus pertinents que les bulles sphériques, en exploitant notamment la génération d'ondes de cisaillement amorties dans la matrice visco-élastique (figure 4). Sharma *et al.* [20] ont également modélisé la transmission et la réflexion d'un réseau de bulles aplaties compte tenu de la rhéologie complexe de la matrice.

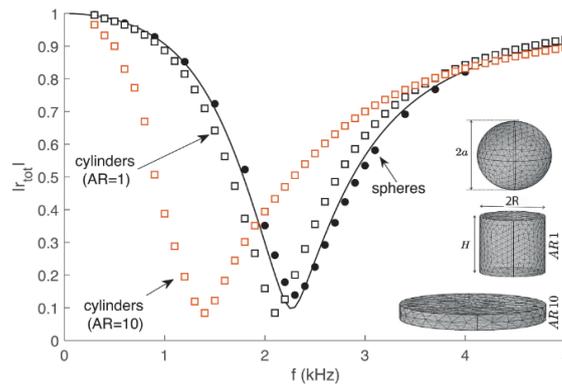


Figure 4 – Figure extraite de [19]. Effet du rapport d'aspect sur la réflectivité de cavités cylindriques enfouies dans une matrice visco-élastique reposant sur une paroi rigide.

Distribution aléatoire de billes poreuses - Des diffuseurs poreux sont également des candidats intéressants pour les applications sous-marines. Dans leur travaux, Poupart *et al.* ont réalisé des mesures ultrasonores dans des matériaux à matrice polyuréthane contenant des populations de micro-billes poreuses d'élastomère réparties aléatoirement, mais fabriqués suivant différentes techniques [21]. Ils ont montré que l'amortissement des ondes est très fort à la résonance monopolaire de ces diffuseurs, notamment lorsque la distribution est monodisperse et les tailles de porosités contrôlées. Une technique innovante et moins coûteuse leur ont permis de générer une distribution polydisperse (par conséquent moins efficace), mais présentant des performances anéchoïques plus intéressantes que celles des micro-ballons actuellement utilisés pour les applications sous-marines (figure 5).

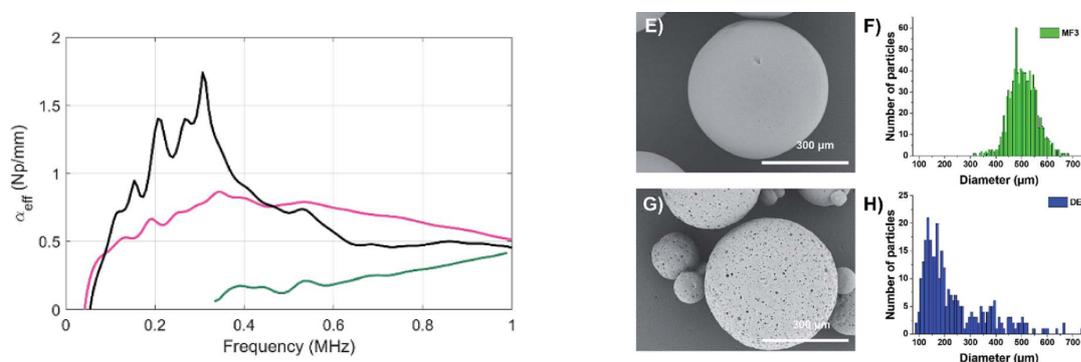


Figure 5 – Figures extraites de [21]. Gauche : atténuation effective d'échantillons contenant une distribution de billes poreuses monodisperse (courbe noire) polydisperse (courbe rose) et pour un échantillon contenant des micro-ballons (courbe verte). Droite : (E) et (F) : billes poreuses monodisperses par technique de micro-fluidique. (G) et (H) : billes poreuses polydisperses par double-émulsion.

2) Résonateurs denses

Contrairement aux cavités, les inclusions denses présentent l'avantage de ne pas être compressibles et de supporter les fortes pressions en basse profondeur [22]. Ce type de résonateur est comparativement moins étudié dans la littérature, mais présente une résonance dipolaire importante dès lors que le contraste de densité entre la particule et la matrice élastomère est important. Les mécanismes d'absorption sont corrélés à deux effets : la dissipation visco-élastique de la matrice et les conversions d'ondes longitudinales en ondes transverses, ces dernières étant très atténuées dans les élastomères. L'importance de la résonance dipolaire sur les conversions d'ondes est détaillée ultérieurement.

Distribution périodique de cylindres - Dans ses travaux de thèse, Pierre Méresse [3] étudie numériquement plusieurs couches d'inclusions cylindriques en acier disposées périodiquement au sein d'une matrice visco-élastique de polyuréthane (figure 6). L'intérêt est de combiner la résonance des inclusions avec les effets d'interférences liés à la périodicité du système afin d'augmenter les performances anéchoïques et de masquage du revêtement à très basses fréquences. L'échantillon fabriqué pour les expériences est présenté sur la figure 6. Afin de limiter la réflectivité, Méresse propose de revêtir les cylindres d'une gaine visco-élastique, ayant pour but d'amortir l'onde longitudinale [5]. Cependant, cela rend le composite plus compressible, ce qui diminue ses performances. Plus récemment, Sharma *et al.* [23] ont mis en lumière l'importance des conversions d'ondes sur l'absorption du même système.

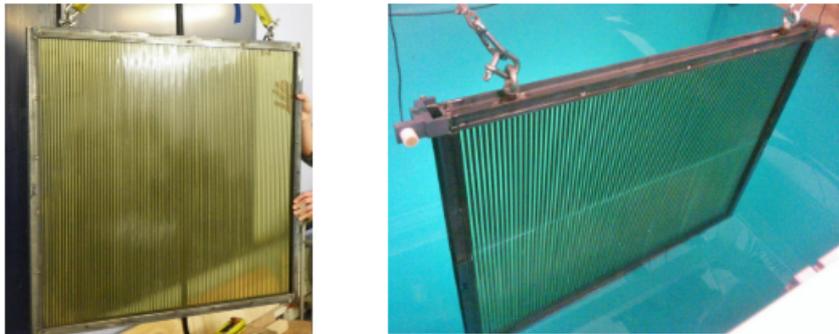


Figure 6 – Figure extraite de [3] : Photographies des échantillons de polyuréthane contenant un arrangement périodique de tiges d'acier de 6 mm de diamètre.

Distribution aléatoire de sphères - La conception et la fabrication d'échantillons à bases de particules denses sont des tâches compliquées, du fait de la difficulté à insérer ce type de particules dans la matrice. Les techniques mentionnées précédemment pour réaliser des distributions aléatoires de particules poreuses ou de bulles dans une matrice ne sont ainsi pas applicables. Toutefois, Kinra *et al.* [24] ont proposé un protocole de fabrication par dépôts de couches successives de résine contenant des distributions aléatoires ou périodiques de sphères. Ces auteurs se sont notamment intéressés à l'influence de la résonance d'une bille en translation, prédite par Moon et Mow en 1970 sur les ondes longitudinales cohérentes [25]. En mesurant des temps de vol, ils ont pu accéder à la vitesse de phase de l'onde longitudinale cohérente, qui présente une forte dispersion au voisinage de la résonance, mais pas à l'atténuation.

Cette résonance a été appliquée plus tard au contexte des revêtements de sous-marin. Des sphères de plomb enfouies dans une matrice polyuréthane ont ainsi été étudiées dans le cadre des travaux de thèse de Guillaume Lepert [26]. Les échantillons, créés également par dépôt de couches successifs, contenaient une répartition homogène isotrope de particules, vérifiée par traitement d'image. Des résultats extraits de la thèse de Lepert sont présentés sur la figure 7. Sur celle de gauche, des mesures en immersion du coefficient de transmission de panneaux homogène et hétérogène chargé en billes de plomb à 10 % sont confrontées au modèle de diffusion multiple de Waterman et Truell [27]. Les propriétés visco-élastiques de la matrice implémentées dans le modèle sont celles mesurées par DMA (de l'anglais *Dynamic Mechanical Analysis*). Le modèle représenté sur la figure de droite a été calculé avec les paramètres visco-élastiques de la matrice mesurés par des méthodes ultrasonores. Bien que la mesure d'ondes transverses par temps de vol employée présente des limites puisque le milieu hôte est très atténuant, l'accord entre le modèle et les mesures de transmission dans l'échantillon hétérogène est plus satisfaisant. La connaissance précise des ondes longitudinales et en particulier des ondes transverses dans la matrice visco-élastique apparaît comme un enjeu fondamental pour prédire précisément la fréquence de résonance et le comportement effectif du matériau composite.

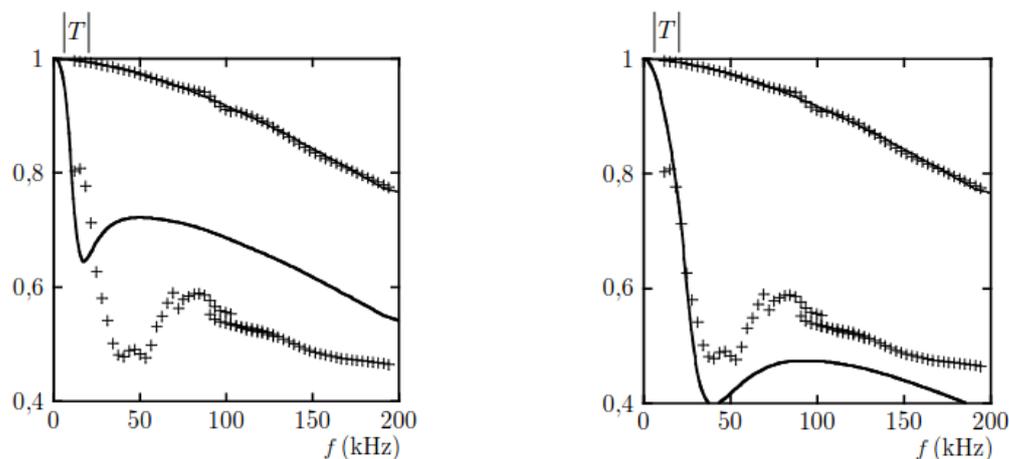


Figure 7 – Figures extraites de [26]. Comparaison entre un modèle de diffusion multiple et des mesures en immersion du coefficient de transmission d'une onde longitudinale ayant traversé un échantillon de polyuréthane homogène et hétérogène. Les propriétés visco-élastiques de la matrice implémentées dans le modèle sont celles : (gauche) mesurées par DMA, (droite) par ultrasons.

Ces dernières années, les travaux de l'équipe de recherche dans laquelle cette thèse a été effectuée ont conduit à une compréhension fine des résonances dipolaires d'une bille dense enfouie dans une matrice élastique. Durant *et al.* ont ainsi déterminé une expression analytique de la fréquence de résonance en translation de ce système ainsi que son facteur de qualité, tous deux dépendant du contraste de densité entre la particule et la matrice environnante [28]. Ces auteurs ont également montré que lorsqu'une onde incidente longitudinale interagit avec une particule dense enfouie dans une matrice élastique (ou visco-élastique), celle-ci est perturbée autour de sa position d'équilibre et mise en mouvement de translation polarisé suivant la direction de propagation. La présence de la matrice élastique induit une force de rappel impliquant la génération d'un cisaillement. A la résonance du système, ce

phénomène de translation est amplifié, ainsi que la force de rappel et donc le cisaillement. Si le matériau qui constitue la matrice est souple, la particule a plus de facilité à se mettre en mouvement de translation, et l'énergie est d'autant plus dissipée. L'interaction de l'onde plane longitudinale incidente avec la particule donne ainsi naissance à deux ondes diffusées : une onde longitudinale et une onde transverse par conversion se propageant orthogonalement à la direction de l'onde incidente dans la matrice visco-élastique (figure 8a). Du fait de la forte dissipation des ondes de cisaillement par la matrice, celles-ci ne peuvent quasiment pas se propager. Le phénomène de conversion est amplifié à la résonance donc l'onde cohérente résultante est d'autant plus amortie (figure 8b).

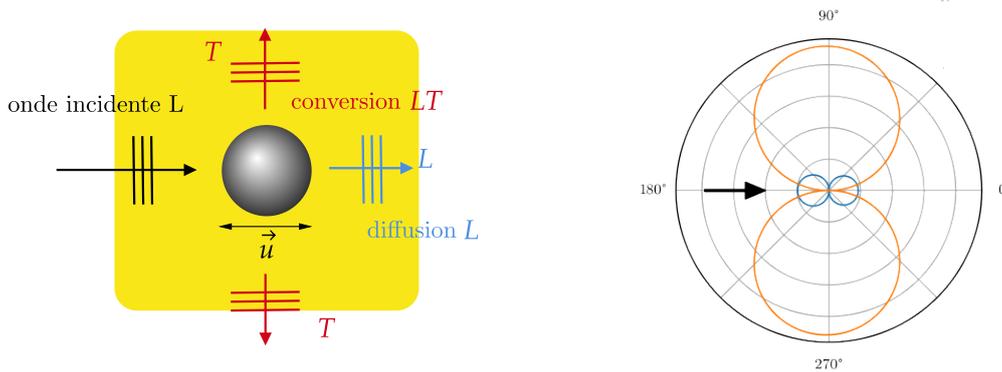


Figure 8 – (a) Mise en translation d'une sphère autour de sa position d'équilibre par l'interaction d'une onde plane incidente L donnant naissance à deux ondes diffusées. (b) Amplitudes des ondes diffusées à la résonance dipolaire en translation.

Dans la continuité de ces travaux, Alverède Simon a effectué sa thèse à l'Institut d'Alembert sur la modélisation et la caractérisation d'ondes transverses cohérentes dans des échantillons d'époxy contenant des particules de carbure de tungstène [29]. Il a notamment mis au point un protocole de conception d'échantillons avec un contrôle de la répartition des particules. Ce protocole est utilisé dans cette thèse et est adapté au cas de matrice en polyuréthane. Les mesures d'ondes cohérentes ont été effectuées à l'aide de la technique Sandwich, développé au laboratoire. Cette technique s'est montrée très efficace pour mesurer la réflexion et la transmission d'ondes transverses par des échantillons hétérogènes. Elle apparaît alors comme un outil très intéressant pour caractériser la réflectivité d'échantillons hétérogènes à matrice polyuréthane.

Matrice polyuréthane

Le polyuréthane équipe déjà de nombreux véhicules sous-marins pour plusieurs raisons. Il possède des propriétés acoustiques similaires à celles de l'eau (impédance $Z_L \sim 1,5 \text{ MRayl}$), impliquant une adaptation d'impédance quasi-parfaite, et par conséquent une transmission (resp. réflexion) quasi-totale (resp. quasi-nulle) d'une onde incidente dans l'eau. Il est peu compressible donc présente une bonne résistance aux fortes pressions hydrostatiques en basse profondeur. Il est également utilisé pour sa bonne tenue au vieillissement et à la salinité de l'eau de mer. Les élastomères sont des matériaux visco-élastiques qui possèdent, par définition, la capacité à dissiper de l'énergie si certaines contraintes ou déformations lui sont appliquées. En particulier, son module de cisaillement présente une composante dissipative

comparativement importante, ce qui est avantageux pour des problématiques d'absorption.

Ces dernières années, de nombreuses études ont été menées afin de caractériser les performances acoustiques de revêtement hétérogènes pour les applications à la furtivité ou au masquage des sous-marins à base de polyuréthane. Il apparaît clairement que pour mieux appréhender ces phénomènes de diffusion à la résonance dipolaire de particules, il est impératif de connaître précisément la rhéologie de ce matériau. Au delà des applications sous-marines, la caractérisation des propriétés visco-élastiques des polymères est importante pour de nombreux secteurs industriels, comme par exemples la tenue de collages dans l'industrie aéronautique, la rhéologie de denrées dans l'industrie agroalimentaire ou encore la caractérisation de milieux biologiques pour l'acoustique médicale. Si plusieurs techniques ultrasonores sont efficaces pour accéder au module longitudinal de matériaux souples, le module de cisaillement est beaucoup plus compliqué à mesurer. La méthode de l'incidence oblique en immersion est généralement appliquée à des matériaux visco-élastiques peu dissipatifs [30]. La technique de l'incidence rasante s'avère être bon compromis pour les matériaux souples mais n'est pas évidente à mettre en place [31]. Une technique développée par l'équipe a permis de réaliser des mesures d'ondes de cisaillement dans des liquides visco-élastiques [32]. Celle-ci est basée sur l'analyse des interférences constructives et destructives dans un milieu multi-couches et semble être la solution adéquate pour accéder au module de cisaillement des élastomères qui sont fortement dissipatifs aux fréquences ultrasonores [33]. Le polyuréthane appartient à la famille des élastomères thermodurcissables signifiant que ses propriétés visco-élastiques sont sensibles aux variations de température, et impose de réaliser des mesures en environnement contrôlé.

Objectifs et plan de la thèse

Ce projet de thèse est financé par l'Agence de l'Innovation de Défense de la Direction Générale l'Armement et s'inscrit dans un contexte de furtivité des sous-marins de nouvelle génération. L'objectif principal de la thèse est de modéliser, concevoir et dimensionner un revêtement anéchoïque à matrice polyuréthane chargés en particules denses. La stratégie choisie repose sur l'exploitation de la résonance dipolaire en translation de ce type de particules pour amortir les ondes acoustiques, sans augmenter la réflectivité du matériau. Le travail réalisé se divise en deux parties : la caractérisation précise des modules visco-élastiques du polyuréthane sur une large gamme de fréquences ultrasonores en utilisant le principe d'équivalence Temps-Température et la fabrication et la caractérisation d'échantillons hétérogènes aux fréquences ultrasonores.

Ce manuscrit de thèse est structuré en quatre chapitres. La caractérisation du module longitudinal d'échantillons de polyuréthane est menée dans le chapitre 1. Les mesures reposent sur la détermination expérimentale de la transmission d'ondes longitudinales se propageant en incidence normale au travers d'échantillons épais immergés dans un bain contrôlé en température. Le chapitre 2 décrit la procédure expérimentale mise en place pour caractériser précisément le comportement des ondes transverses se propageant dans des échantillons de polyuréthane fins. La technique "Sandwich", récemment développée dans le cadre des travaux de l'équipe, est adaptée à la mesure du module de cisaillement dans des échantillons fins de polyuréthane. Des tests de répétabilité sont menés et le suivi de la cinétique de polymérisation est rendu possible. L'application du principe d'équivalence temps-température aux

mesures des modules visco-élastiques réalisés aux précédents chapitres est présentée dans le chapitre 3. Cet outil conduit à évaluer le comportement de chacun de ces modules sur une gamme de fréquences bien plus grande que la gamme initialement investiguée par des opérations d'homothéties par rapport à une température de référence commune. Des modèles rhéologiques à dérivées fractionnaires sont ensuite appliqués et décrivent avec précision le comportement dynamique de ces modules. Le dernier chapitre s'intéresse à la caractérisation par onde longitudinale d'échantillons de polyuréthane contenant une distribution aléatoire de sphères d'acier. Les échantillons sont fabriqués selon un protocole destiné à contrôler rigoureusement la répartition des billes. Des mesures en réflexion et en transmission sont réalisées et confrontées, d'une part à des modèles basés sur la théorie de la diffusion multiple et d'autre part au code de calcul MuScat qui permet de simuler de manière exacte l'interaction d'onde acoustique avec une distribution de billes. Les modèles sont ensuite utilisés pour transposer les résultats aux fréquences d'intérêt pour la furtivité sous-marine.

Chapitre 1

Mesure d'onde longitudinale dans un polyuréthane

Sommaire

Introduction	22
1.1 Dispositif expérimental et protocole d'acquisition	24
1.1.1 Banc de mesure à température contrôlée	25
1.1.2 Fabrication et caractéristiques des échantillons	27
1.2 Propriétés acoustiques de l'eau	28
1.2.1 Vitesse du son c_0	28
1.2.2 Masse volumique ρ_0	30
1.3 Traitement des signaux	31
1.3.1 Méthode de la différence de phase	31
1.3.2 Fenêtrage des signaux	32
1.3.3 Domaine fréquentiel de validité	33
1.4 Mesure des propriétés acoustiques du polyuréthane	36
1.4.1 Choix de la méthode	36
1.4.2 Répétabilité	36
1.4.3 Dépendance en température	37
Conclusion	39

Introduction

En élasticité linéaire, un solide homogène isotrope est défini par sa masse volumique ρ et par deux paramètres élastiques caractérisés couramment par le module d'Young E et le coefficient de Poisson ν , ou bien ses coefficients de Lamé λ et μ . Les modules d'incompressibilité K et de cisaillement G sont également utilisés et représentent respectivement la résistance du matériau au changement de volume sous l'effet d'une compression hydrostatique et sa résistance au changement de forme. Ils sont donnés par :

$$K = \lambda + \frac{2}{3}\mu = \frac{E}{3(1-2\nu)}, \quad \text{et} \quad G = \mu = \frac{E}{2(1+\nu)}. \quad (1.1)$$

L'équation vectorielle de Lamé-Navier régissant le comportement dynamique d'un solide isotrope peut se découpler en deux équations de Helmholtz gouvernant respectivement la propagation des ondes élastiques longitudinale (L) et transverse (T) [34]. Ainsi, les nombres d'ondes longitudinale k_L et transverse k_T sont reliés aux paramètres élastiques tels que :

$$k_L = \omega \sqrt{\frac{\rho}{M}}, \quad \text{et} \quad k_T = \omega \sqrt{\frac{\rho}{G}}. \quad (1.2)$$

avec $M = K + 4/3G$ le module acoustique longitudinal, et $\omega = 2\pi f$ la fréquence angulaire de l'onde.

Dans le domaine des fréquences ultrasonores, de nombreux matériaux comme les polymères ou les résines ne peuvent plus être considérés comme purement élastique et les pertes par dissipation visco-élastique doivent être prises en compte. Par conséquent, les paramètres élastiques réels définis ci-dessus sont des quantités complexes, ainsi que les nombres d'ondes longitudinal et transverse qui se mettent sous la forme

$$k_I = \frac{\omega}{c_I} - i\alpha_I, \quad \text{avec} \quad I = L \text{ ou } T, \quad (1.3)$$

où c_I est la vitesse de phase et α_I est l'atténuation de l'onde de nature I .

L'équivalence entre les relations (1.2) et (1.3) montre l'intérêt de réaliser des mesures d'ondes acoustiques pour caractériser la dynamique des modules visco-élastiques de matériaux dissipatifs à hautes fréquences ultrasonore [35]. Dans ce chapitre, nous nous intéressons uniquement à caractériser les propriétés acoustiques longitudinales d'un matériau qui est fortement dissipatif aux fréquences ultrasonores.

Pour mesurer les propriétés longitudinales de tels matériaux, il existe des méthodes temporelles ou spectrales rassemblant chacune un grand nombre de différentes techniques. Cependant, si le matériau sondé est trop atténuant et dispersif, les signaux sont excessivement atténués et déformés. Ainsi, il faut extraire de l'information large en fréquences et les méthodes chronométriques ne peuvent pas s'appliquer. C'est pourquoi seuls les méthodes de mesure spectrales sont retenues ici car elles présentent l'avantage d'accéder à une information fréquentielle sur l'ensemble de la bande passante des transducteurs utilisés. Celles-ci reposent sur la comparaison entre un spectre d'un écho ou d'une succession d'échos transmis et réfléchis aux interfaces de l'échantillon au spectre d'un signal de référence. Suivant que les échos soient séparables ou non, différentes méthodes spectrales détaillées ci-après sont appliquées.

La vitesse de phase et l'atténuation des ondes L sont couramment mesurées dans de tels matériaux en immergeant un échantillon à faces parallèles dans l'eau, et en analysant un signal acoustique qui a traversé ou qui a été réfléchi par celui-ci. Du point de vue expérimental, l'échantillon doit être positionné de manière orthogonale à une onde plane incidente dans l'eau afin d'éviter la génération d'ondes T dans le matériau, et par conséquent maximiser l'amplitude de l'onde L . De plus, une attention particulière est portée à l'épaisseur de l'échantillon sondé. En effet, comme illustré sur la figure 1.1, des méthodes spectrales différentes sont appliquées selon l'épaisseur du matériau sondé en comparaison aux longueurs d'ondes employées. Si l'échantillon est suffisamment épais devant ces longueurs d'ondes, alors il est possible de fenêtrer les différents échos se propageant au sein de celui-ci et la technique de la différence de phase [36–38] est applicable. Cette méthode est adaptée à toutes sortes de matériaux qu'ils soient dispersifs et atténuants, homogènes ou hétérogènes [39–41]. Au contraire, si l'échantillon possède une épaisseur comparable ou inférieure aux longueurs d'ondes λ , le signal reçu consiste en un recouvrement des échos. De cette façon, il convient d'utiliser une méthode basée sur la prise en compte de tous les échos se propageant dans le matériau, afin d'extraire ses propriétés acoustiques en tenant compte des interférences constructives et destructives pouvant apparaître [42, 43].

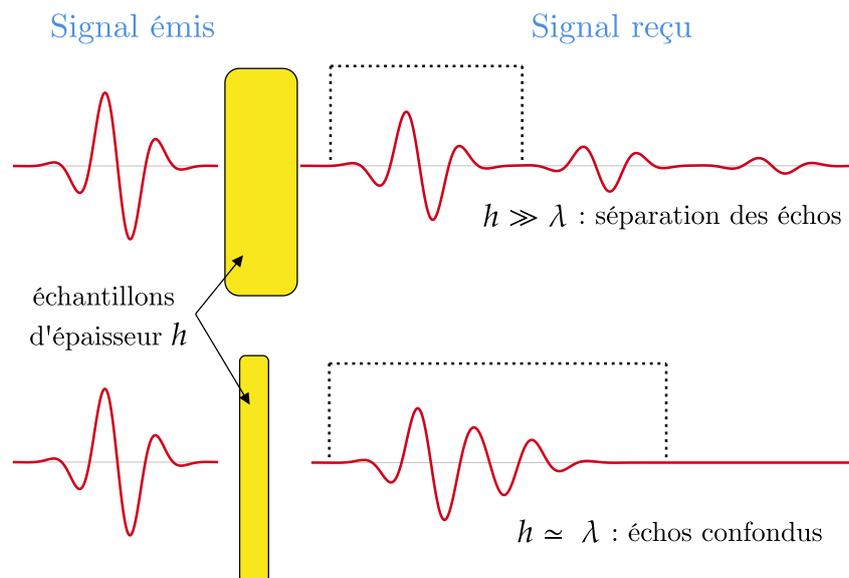


Figure 1.1 – Illustration du comportement des différents échos lorsque une onde incidente est transmise au travers d'un échantillon d'épaisseur comparable à la longueur d'onde, ou suffisamment grande devant celle-ci.

La caractérisation acoustique longitudinale de matériaux atténuants a fait l'objet de nombreuses études expérimentales et théoriques depuis des décennies. Dans ses travaux, Wu [30] mesure la vitesse de phase et l'atténuation des ondes longitudinales et transverses transmises au travers des échantillons de polyéthylène et de plexiglass à des fréquences ultrasonores comprises entre 1 – 10 MHz en utilisant la différence de phase. Plus tard, Szabo [44] modélise le mécanisme d'absorption des ondes L et T par des lois de puissance non entières en fréquence et vérifie cette prédiction en reprenant les données expérimentales de Wu. Par ailleurs, Mott

et al [45] appliquent la même méthode de mesure spectrale pour extraire la vitesse de phase d'ondes L dans un milieu souple, mais à des fréquences en dessous de 100 kHz. A basses fréquences ultrasonores, la vitesse de phase ne semble pas correctement mesurée à cause des effets de diffraction importants et l'atténuation est trop faible pour être correctement évaluée. Par conséquent, les auteurs utilisent les relations de Kramers-Kronig [46] afin d'obtenir l'atténuation des ondes en fonction de la vitesse mesurée par différence de phase [47]. Cependant, cette méthode nécessite de fixer des bornes d'intégration de manière arbitraire, ce qui est une limitation. Certains auteurs étendent la technique de la différence de phase à l'analyse de la réflexion en plus de la transmission afin d'extraire la masse volumique de matériaux [48, 49]. Néanmoins, la mesure de la réflexion est encore plus critique que celle de la transmission vis-à-vis de la reproductibilité du positionnement et de l'orientation de l'échantillon par rapport aux transducteurs, ce qui peut devenir rédhibitoire à hautes fréquences ultrasonores. De manière générale, mesurer la réflexion d'une onde sur un matériau immergé ou celle d'un signal de référence n'est pas aisé. Récemment, les travaux de l'équipe ont conduit à élaborer un dispositif de mesure reproductible qui s'avère être une alternative originale à ces questions de positionnement [32, 50].

Dans le contexte de la thèse, nous cherchons à caractériser les propriétés acoustiques longitudinales d'un élastomère de polyuréthane (PU) sur une plage de fréquences comprises entre 500 kHz et 5 MHz, ainsi que des températures allant de 5 °C à 40 °C. Sur ces gammes de fréquences et de températures, le PU possède une impédance acoustique longitudinale similaire à celle de l'eau ($\rho c_L \sim 1,5 \text{ MRayl}$) à 5 % près, et est peu atténuant ($\alpha_L \lambda \sim 0,01$). C'est pourquoi les réflexions aux interfaces eau-PU et PU-eau, ainsi que les multiples allers-retours des ondes longitudinales se propageant au sein des échantillons étudiés peuvent être négligés sans risques. Ainsi, les échos transmis sont séparables et la méthode de la différence de phase est privilégiée.

Ce chapitre présente le banc expérimental qui a été développé dans le but d'extraire la vitesse de phase c_L et l'atténuation α_L des ondes longitudinales du PU en utilisant la technique de la différence de phase. Cette méthode étant sensible à la mesure des paramètres acoustiques du milieu hôte (ρ_0, k_0) et au parallélisme de l'échantillon, une attention particulière est portée au contrôle de ces paramètres. De plus, un circuit de régulation de température est ajouté au banc afin de mesurer les propriétés acoustiques du matériau en fonction de la température. Ces mesures permettront d'accéder au comportement dynamique du module longitudinale M du PU pour appliquer le principe d'équivalence temps-température dans le chapitre 3.

1.1 Dispositif expérimental et protocole d'acquisition

Le dispositif présenté ici est principalement développé dans le but de réaliser des mesures précises de transmission d'ondes planes longitudinales se propageant en incidence normale au travers des échantillons visco-élastique immergés dans l'eau à différentes températures. La température peut influencer de manière notable sur la plupart des grandeurs physiques entrant en jeu dans la technique de la différence de phase. C'est pourquoi il est nécessaire de prendre de nombreuses précautions expérimentales en amont de la mesure.

1.1.1 Banc de mesure à température contrôlée

Une photo du dispositif de mesure est présentée sur la figure 1.2. Deux transducteurs identiques, de surface émettrice de diamètre $2a$, et de fréquence centrale f_c sont placés parallèlement à un échantillon de PU. Celui-ci est fixé dans un support en plexiglas et immergé dans une cuve de dimensions $900 \times 400 \times 360$ mm. Ces dimensions ont été choisies suffisamment grandes devant les longueurs d'ondes de travail de façon à ce que les réflexions sur les parois n'interfèrent pas avec les mesures directes en transmission ou réflexion.

Comme la technique de mesure choisie ici repose sur un modèle d'onde plane en incidence normale, le réglage de la position des transducteurs dans l'espace devient déterminant. De cette façon, deux transducteurs piézoélectriques à immersion identiques sont montés sur des goniomètres et des platines de translation manuelles. Ceci permet de les aligner face à face avec précision le long de l'axe de propagation en utilisant un niveau à bulle dans un premier temps puis un oscilloscope permettant de maximiser l'amplitude de l'onde reçue. Une fois que l'amplitude et le temps d'arrivée de l'onde sont suffisamment stabilisés, le porte-échantillon est placé entre les deux transducteurs. Afin d'orienter correctement l'échantillon de sorte que ses faces soient bien parallèles à celles des transducteurs, le protocole d'alignement est répété en réglant uniquement les mécanismes angulaires et de translation montés sur le porte-échantillon. Ces précautions permettent d'éclairer l'échantillon strictement en incidence normale.

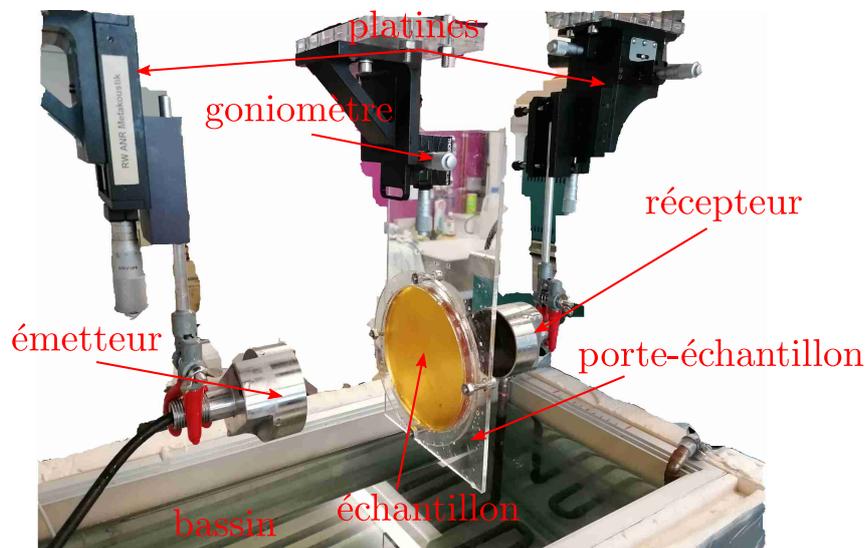


Figure 1.2 – Photo du dispositif expérimental pour mesurer la transmission en incidence normale à température contrôlée. La paire de transducteur montés ici a une fréquence centrale de 0,25 MHz.

Les photos du banc de mesure et du système de régulation sont présentées sur la figure 1.3. La cuve est calfeutrée par un revêtement en polystyrène afin de limiter les échanges thermiques avec l'extérieur et un circuit de régulation thermique en cuivre est ajouté au fond de celle-ci pour réaliser des mesures à des températures contrôlées comprises entre 5°C et 45°C . Sauf pendant les courts intervalles des mesures acoustiques, l'eau est constamment agitée avec une pompe d'aquarium afin d'éviter une stratification de la densité de l'eau au dessus

de l'échangeur de chaleur du circuit de régulation thermique. La mesure de la température du bassin est réalisée à l'aide d'un thermomètre à résistance de platine. A l'échelle du temps nécessaire pour réaliser une série de mesures à une température donnée, les fluctuations de la résistance sont de l'ordre de quelques $m\Omega$ ce qui conduit à une incertitude de mesure de la température de l'ordre de $\delta T \simeq 0,05 \text{ }^\circ\text{C}$.



Figure 1.3 – (a) Photo du banc de mesure calfeutré par un revêtement de polystyrène et ajout d'un contrôle en température. (b) Zoom sur le circuit de régulation de la température ajouté au fond.

Le transducteur émetteur est alimenté en impulsions produites par un appareil générateur-récepteur d'impulsions de type Olympus PR5072, répétées périodiquement à une fréquence de 100 Hz. Les signaux de tension détectés par le transducteur récepteur sont acquis et numérisés avec une résolution de 14 bits à une fréquence d'échantillonnage $f_e = 400 \text{ MHz}$ et moyennés sur 1000 acquisitions de sorte à obtenir un rapport signal sur bruit suffisant. Par exemple, la détection d'un signal acoustique émis dans l'eau par un transducteur piézoélectrique de fréquence centrale $f_c = 2,25 \text{ MHz}$ est représenté sur la figure 1.4. Ce signal, noté $S_0(t)$, s'est propagé dans le bassin à une température de $15 \text{ }^\circ\text{C}$ en l'absence d'échantillon. Le rapport signal à bruit du spectre du signal est supérieur à 60 dB et met en évidence la qualité de la chaîne d'acquisition utilisée.

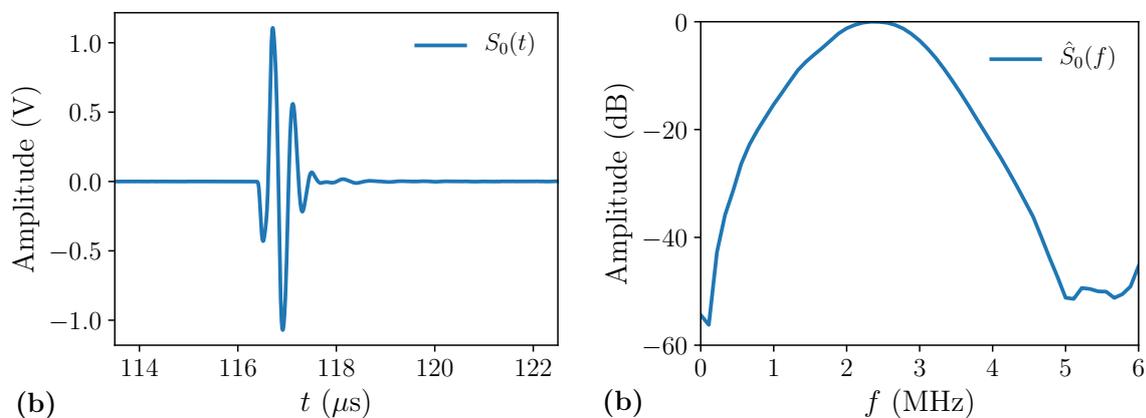


Figure 1.4 – (a) Acquisition du signal transmis dans l'eau en l'absence d'échantillon. (b) Spectre de ce signal.

1.1.2 Fabrication et caractéristiques des échantillons

Les échantillons de PU utilisés pour cette étude sont fabriqués en solidifiant un mélange de résine et de durcisseur qui sont respectivement du polyol et de l'isocyanate de la marque *Sika* et de type UR-3440. Les proportions de mélange de chacun des composants sont indiquées par le constructeur. Une fois que les deux polymères sont mélangés, la solution est immédiatement dégazée à température ambiante sous une cloche à l'aide d'une pompe à vide de façon à extraire les bulles d'air. La figure 1.5 présente les différentes étapes du mélange et montre la nécessité de le dégazer. Ensuite, celui-ci est coulé dans un moule à section circulaire à épaisseur variable et placé dans une étuve à température contrôlée. Selon la documentation fournie par le constructeur, la réticulation du PU conduisant à sa solidification, est réalisée en 4 heures à 80 °C, ou bien à environ 6 jours à température ambiante. La première option est retenue pour des raisons évidentes et est réalisée dans une étuve.

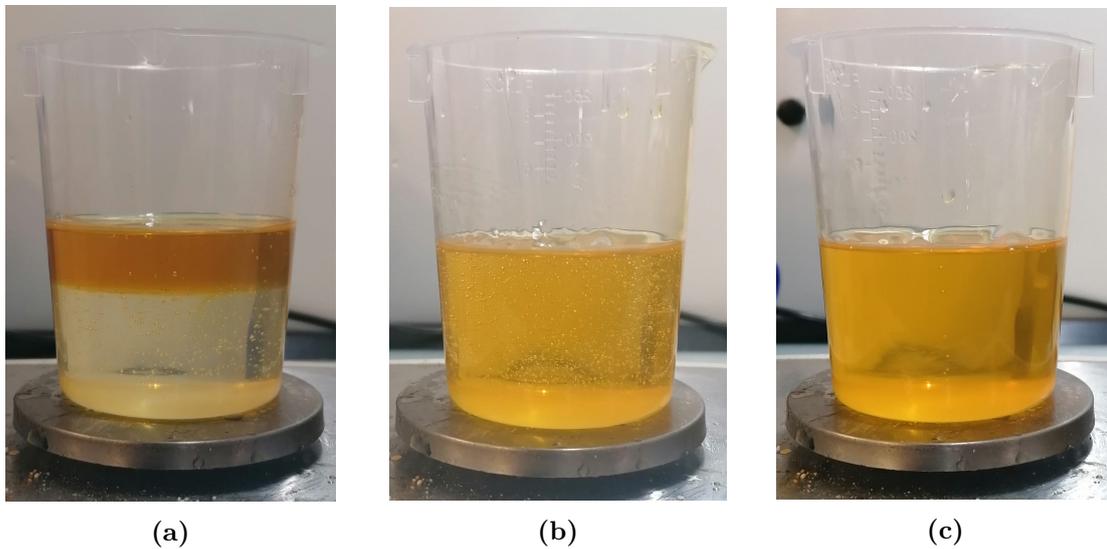


Figure 1.5 – (a) Le durcisseur puis la résine de couleur ambrée sont coulés dans le bécher dans les proportions indiquées par pesée. (b) Les deux polymères sont mélangés à l'aide d'une spatule mais beaucoup de bulles sont présentes. (c) Le mélange est dégazé dans le but d'extraire toutes les bulles.

Appliquer la méthode de la différence de phase pour extraire les propriétés acoustiques du PU nécessite de connaître certains paramètres physiques des échantillons en amont. En effet, les propriétés mécaniques des élastomères étant par définition sensibles aux variations de températures, l'épaisseur et la masse volumique des échantillons à sonder doivent être connues précisément à la température de mesure. Par exemple, pour un échantillon de PU solidifié de masse $m = (138,058 \pm 0,001)$ g mesurée à la balance électronique de résolution 1 mg, d'épaisseur moyenne $h(T_a) = (10,37 \pm 0,03)$ mm et de diamètre moyen $D(T_a) = (129,10 \pm 0,13)$ mm mesurés au pied à coulisse de résolution 0,02 mm à une température ambiante $T_a = (19,2 \pm 1,0)$ °C, la masse volumique moyenne est $\rho(T_a) = (1018 \pm 5)$ kg.m⁻³. Afin de tenir compte des dilatations que subit l'échantillon de PU lors des variations de température, la valeur du coefficient de dilatation thermique linéaire κ du PU est utilisé, défini comme

$$\kappa = \frac{1}{L} \frac{dL}{dT}, \quad \text{ou bien} \quad 3\kappa = -\frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dT} \quad (1.4)$$

où L est une longueur caractéristique du spécimen et ρ sa masse volumique.

La valeur donnée par le constructeur est $\kappa = 2,60 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$, *a priori* valide pour une gamme de température allant de $0 \text{ }^\circ\text{C}$ à $40 \text{ }^\circ\text{C}$, et mesuré avec la norme ISO 11359 spécifiant une méthode d'essai thermodilatométrique. Calculer les variations d'épaisseur et de masse volumique d'un échantillon en fonction de la température revient donc à utiliser les relations suivantes qui résultent des équations (1.4) :

$$\begin{cases} h(T) = h(T_a) [1 + \kappa (T - T_a)], \\ \rho(T) = \rho(T_a) [1 - 3\kappa (T - T_a)], \end{cases} \quad (1.5)$$

où T est la température à laquelle est réalisée la mesure. La propagation des incertitudes sur les mesures de T , T_a , $h(T_a)$ et $\rho(T_a)$ conduit à déterminer les incertitudes associées suivantes :

$$\begin{cases} \delta h(T) \simeq 0,04 \text{ mm}, \\ \delta \rho(T) \simeq 6 \text{ kg.m}^{-3}, \end{cases} \quad \forall T \in [5,0 - 40,0] \text{ }^\circ\text{C}. \quad (1.6)$$

Le constructeur fournit également une valeur de la masse volumique de $\rho_c = 1020 \text{ kg.m}^{-3}$ à $23 \text{ }^\circ\text{C}$, mesurée avec la norme ISO 2781 spécifiant une méthode de mesure par poussée d'Archimède. En corrigeant cette donnée compte tenu des dilatations à la température T_a et des incertitudes de mesure, la valeur donnée par le constructeur $\rho_c(T_a) = (1023 \pm 6) \text{ kg.m}^{-3}$ est en accord avec la mesure réalisée ici.

1.2 Propriétés acoustiques de l'eau

Puisque la méthode de la différence de phase est appliquée et que le signal de référence choisi est celui correspondant à l'onde qui s'est propagée uniquement dans l'eau, il est essentiel de connaître les propriétés acoustiques de l'eau. Pour cela, un moteur à translation de pas micrométrique a été ajouté au banc expérimental de sorte à translater précisément l'émetteur ou le récepteur suivant l'axe de propagation de l'onde longitudinale. La haute résolution fréquentielle de la carte d'acquisition combinée à la précision du moteur donne accès à une estimation précise de la vitesse des ondes longitudinale dans l'eau pour différentes températures.

1.2.1 Vitesse du son c_0

La vitesse de propagation de l'onde longitudinale dans l'eau c_0 est déterminée avec précision avant chaque mesure de transmission. Il s'agit de déplacer l'émetteur à l'aide d'une platine de translation motorisée et mesurer la pente de la variation linéaire du temps de vol τ de l'impulsion dans l'eau en fonction de la distance émetteur-récepteur z . L'eau est considérée comme un milieu non dispersif pour les ondes de compression. Cette approximation conduit à considérer que la vitesse de groupe est égale à la vitesse de phase. Ainsi, la mesure du temps de vol est réalisée en détectant les maxima d'amplitude de l'enveloppe du signal reçu à chaque position émetteur-récepteur. Les signaux détectés à la position initiale z_0 et une position arbitraire z_i , sont représentés sur la figure 1.6a pour une température de $15 \text{ }^\circ\text{C}$. L'enveloppe, c'est-à-dire le module de la transformée de Hilbert, de ces deux signaux et leur maximum sont également représentés. La figure 1.6b représente l'évolution de la distance $\Delta z = z_i - z_0$ en fonction du décalage des temps d'arrivés $\Delta \tau = \tau_i - \tau_0$. La distance Δz varie linéairement avec $\Delta \tau$. L'extraction de la pente, correspondant à la vitesse de propagation c_0 des ondes longitudinales dans l'eau, est réalisée numériquement.

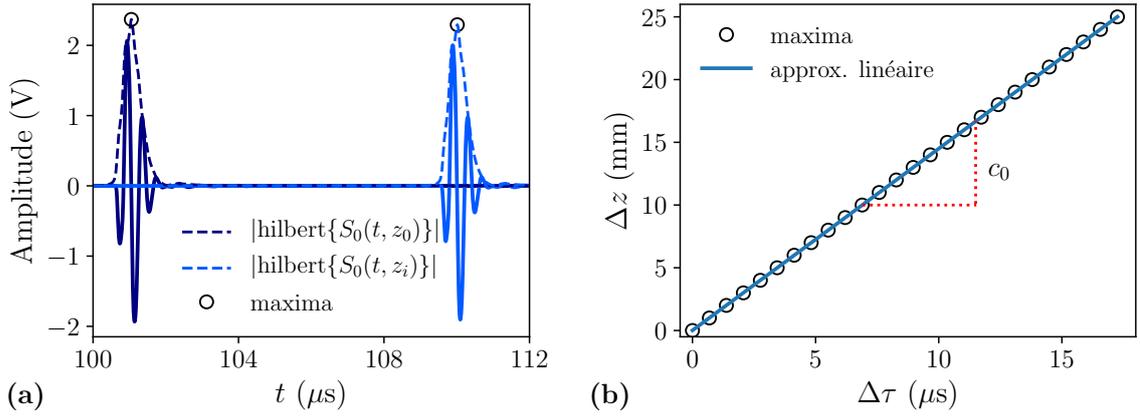


Figure 1.6 – (a) Signaux reçus s'étant propagés dans l'eau à deux distances différentes et extraction des temps d'arrivée du maxima d'amplitude de leur enveloppe. (b) Meilleure approximation linéaire de la variation de la distance émetteur-récepteur Δz en fonction de la variation du temps d'arrivée $\Delta\tau$ permettant d'extraire c_0 .

L'estimateur de l'incertitude δc_0 associée à la détermination de c_0 est :

$$\delta c_0 = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N [z_i - (c_0 \tau_i + z_0)]^2}{N \sum_{i=1}^N (\tau_i - \bar{\tau})^2}}, \quad \text{avec} \quad \bar{\tau} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \tau_i. \quad (1.7)$$

La valeur de δc_0 est de l'ordre de 1 % dans la gamme de température d'intérêt. Cette formule sera appliquée pour déterminer l'incertitude δa associée à n'importe quelle régression linéaire de type $y = ax + b$.

La dépendance en température de c_0 est tracée sur la figure 1.7 pour deux séries de mesures différentes réalisées à des instants différents. Précisons que l'eau du bassin n'a pas été changée entre ces deux séries. La comparaison entre celles-ci met en avant d'une part la répétabilité du protocole de mesure, et d'autre part un accord satisfaisant avec la loi empirique de Medwin décrivant la vitesse de propagation des ondes dans l'eau en tenant compte de la température T (en degrés Celsius), de la salinité S (en parties par million) et de la profondeur d'immersion P (en mètres) [51, 52] :

$$\begin{aligned} c_0(T, S, P) = & 1448,96 + 4,591T - 5,304 \times 10^{-2}T^2 + 2,374 \times 10^{-4}T^3 \\ & + 1,340(S - 35) + 1,630 \times 10^{-2}P + 1,675 \times 10^{-7}P^2 \\ & - 1,025 \times 10^{-2}T(S - 35) - 7,139 \times 10^{-13}TP^3. \end{aligned} \quad (1.8)$$

La salinité S de l'eau de la cuve étant inconnue, la méthode des moindres carrés conduit à déterminer numériquement la valeur optimale $S = 1,4$ ppm de ce paramètre. Le fait que la salinité ne soit pas nulle est un résultat attendu puisqu'elle provient du robinet et qu'une tablette de javel a été ajoutée dans le but d'empêcher la prolifération d'algues dans la cuve.

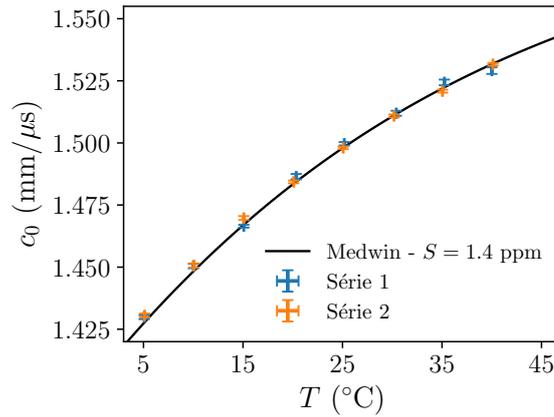


Figure 1.7 – Vitesses de l'onde longitudinale dans l'eau mesurées pour différentes températures et meilleur ajustement de la loi empirique (1.8) aux deux séries de mesures.

1.2.2 Masse volumique ρ_0

Les variations de la masse volumique de l'eau en fonction de la température sont également implémentées dans l'extraction de la vitesse de phase c_L et l'atténuation α_L du PU en utilisant une loi polynomiale empirique d'ordre cinq en température à pression atmosphérique donnée par la relation suivante [53] :

$$\rho_0(T) = (999,83952 + 16,945176T - 7,79870401 \times 10^{-3}T^2 - 46,170461 \times 10^{-6}T^3 + 105,56302 \times 10^{-9}T^4 - 280,54253 \times 10^{-12}T^5) / (1 + 16,897850 \times 10^{-3}T), \quad (1.9)$$

où T est la température en °C.

Ces variations sont tracées sur la figure 1.8. Contrairement à la loi empirique de Medwin utilisée pour décrire le comportement de c_0 , l'expression choisie ici ne dépend pas de la salinité. En effet, la prise en compte d'une salinité de $S = 1,4$ ppm conduit à des variations de masse volumique de l'ordre de 10^{-5} g.cm $^{-3}$, ce qui est trop faible pour agir significativement sur les variations de ρ_0 au même titre que la température.

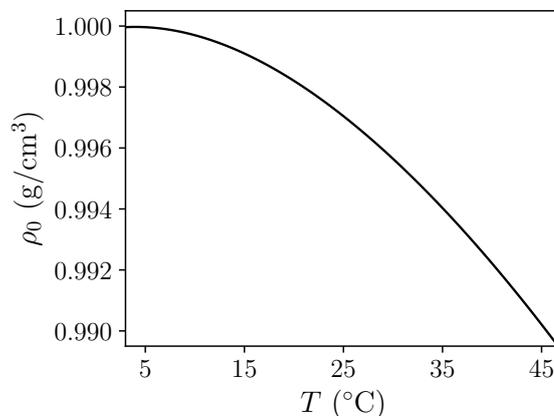


Figure 1.8 – Variations de la masse volumique de l'eau en fonction de la température selon (1.9).

1.3 Traitement des signaux

Une fois les propriétés acoustiques de l'eau identifiées précisément, la méthode de la différence de phase, détaillée ci-après, est appliquée pour extraire le comportement du nombre d'onde longitudinal du PU à plusieurs températures. Puisque cette technique se base sur la comparaison entre différents spectres, la qualité des mesures dépend également du fenêtrage temporel, c'est-à-dire du filtrage fréquentiel des signaux.

1.3.1 Méthode de la différence de phase

Le signal transmis représenté sur la figure 1.9 est considéré comme correspondant à un train d'onde plane ayant fait un aller simple à travers l'échantillon en incidence normale. Le spectre de ce signal s'exprime par

$$\hat{S}_h(\omega) = S(\omega)A_e(\omega)A_r(\omega)\mathcal{T}e^{-ik_0l_1}e^{-ik_Lh}e^{-ik_0l_2}, \quad (1.10)$$

où $S(\omega)$ est le spectre du signal électrique alimentant l'émetteur, $A_e(\omega)$ et $A_r(\omega)$ sont respectivement les coefficients de transduction électro-mécanique et mécano-électrique, $k_0 = \omega/c_0$ le nombre d'onde de l'eau supposé réel, l_1 et l_2 sont respectivement les distances émetteur-échantillon et échantillon-récepteur, h est l'épaisseur de l'échantillon, $k_L = \omega/c_L - i\alpha_L$ est le nombre d'onde longitudinal du PU inconnu et recherché. Le coefficient de transmission \mathcal{T} est le produit des coefficients de transmission en pression des interfaces eau-PU et PU-eau et a pour expression

$$\mathcal{T} = \frac{4\rho_0k_0\rho k_L}{(\rho_0k_L + \rho k_0)^2}, \quad (1.11)$$

où ρ est la masse volumique du PU connue, et où ρ_0 et $k_0 = \omega/c_0$ sont respectivement la masse volumique de l'eau et son nombre d'onde, considéré ici comme réel.

En l'absence d'échantillon, le spectre de référence de l'onde se propageant dans l'eau sur la même distance $d = l_1 + h + l_2$ est

$$\hat{S}_0(\omega) = S(\omega)A_e(\omega)A_r(\omega)e^{-ik_0d}. \quad (1.12)$$

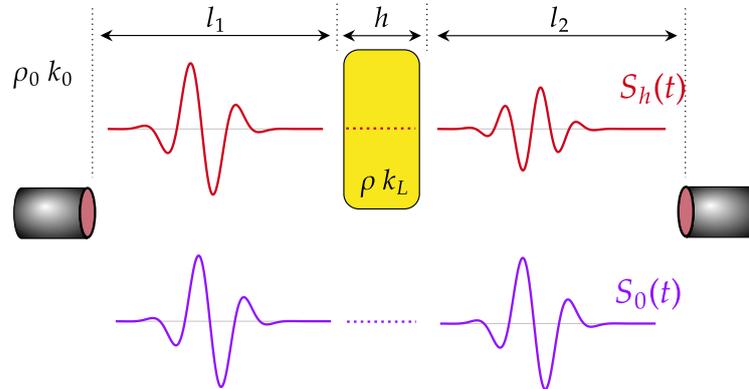


Figure 1.9 – Schématisation du signal transmis au travers d'un échantillon d'épaisseur h en incidence normale, et du signal reçu en absence de l'échantillon.

Le rapport de ces deux spectres s'écrit

$$\frac{\hat{S}_h(\omega)}{\hat{S}_0(\omega)} = \mathcal{T} e^{-i(k_L - k_0)h} = \mathcal{T} e^{-i(\omega/c_L - k_0)h} e^{-\alpha_L h}. \quad (1.13)$$

Ainsi, la vitesse de phase c_L et l'atténuation α_L des ondes longitudinales dans l'échantillon se déduisent respectivement du module du rapport des spectres $|\hat{S}_h/\hat{S}_0|$ et de sa phase $\arg(\hat{S}_h/\hat{S}_0) = \phi_0 - \phi_h$ tels que

$$\begin{cases} c_L = \frac{\omega h}{\phi_0 - \phi_h - \arg \mathcal{T} - k_0 h}, \\ \alpha_L = -\frac{1}{h} \left[\ln |\hat{S}_h/\hat{S}_0| - \ln |\mathcal{T}| \right], \end{cases} \quad (1.14)$$

avec la différence de phase définie à un multiple de 2π près :

$$\phi_0 - \phi_h = \arg(\hat{S}_0) - \arg(\hat{S}_h) \pm 2m\pi, \quad (1.15)$$

avec m un entier relatif sensible au fenêtrage choisi à ajuster en pratique qui vaut $m = 0$ lorsque le signal n'est pas bruité et $m = \pm 1$ sinon.

Remarque :

Il est important de noter que le problème est implicite puisque le coefficient de transmission \mathcal{T} dépend du nombre d'ondes $k_L(\omega)$ à déterminer. Ainsi, la vitesse de phase et l'atténuation sont calculées par un processus itératif. Le coefficient \mathcal{T} étant naturellement proche de l'unité, sa valeur est initialisée à 1, et le processus converge rapidement.

Une manière de s'affranchir de ce problème, est de mesurer des signaux en transmission à travers deux échantillons de PU d'épaisseurs différentes. Ainsi, la phase du rapport des spectres ne dépend plus des coefficients en transmission aux interfaces et la vitesse est directement reliée au déphasage dû à la différence d'épaisseur. L'équation (1.14) devient plus simple et s'écrit

$$\begin{cases} c_L = \frac{\omega(h - h_0)}{\phi_{h_0} - \phi_h - k_0(h - h_0)}, \\ \alpha_L = -\frac{1}{h - h_0} \left[\ln |\hat{S}_h/\hat{S}_{h_0}| \right], \end{cases} \quad (1.16)$$

où h_0 et ϕ_{h_0} sont respectivement l'épaisseur et la phase définie à $\pm 2m\pi$ près de l'échantillon utilisé comme référence. La comparaison entre les paramètres acoustiques extraits par le processus itératif, et ceux mesurés par la comparaison entre les spectres de deux échantillons de PU d'épaisseurs différentes, est traitée ultérieurement.

1.3.2 Fenêtrage des signaux

Afin d'analyser le contenu spectral de l'onde qui s'est propagée une seule fois dans l'échantillon et d'exclure ses multiples allers-retours, il est nécessaire de découper le signal à l'aide d'une fonction d'observation, également appelée fenêtre de pondération ou d'apodisation. De cette façon, il faut déterminer les valeurs temporelles initiale t_i et finale t_f de ce fenêtrage. Le temps t_f doit être strictement inférieur au temps qu'a mis l'onde pour parcourir un aller-retour dans l'échantillon, et strictement supérieur à son trajet direct tel que

$$\frac{l_1 + l_2}{c_0} + \frac{h}{c_L^g} < t_f < \frac{l_1 + l_2}{c_0} + \frac{3h}{c_L^g}, \quad (1.17)$$

avec les distances l_1 et l_2 définies précédemment, et c_L^g la mesure de la vitesse de groupe qui permet de donner une bonne estimation, à la fréquence centrale f_c , de la vitesse de phase c_L des ondes longitudinales du PU qui est peu dispersif. Cette valeur est déterminée par temps d'arrivées telle que

$$c_L^g = \frac{hc_0}{h - c_0(t_h - t_0)}, \quad (1.18)$$

où t_0 et t_h sont respectivement les temps d'arrivées des maxima d'amplitude du signal de référence et du signal de l'onde qui s'est propagée au travers de l'échantillon.

Théoriquement, le temps t_i est choisi comme l'instant où l'événement acoustique d'intérêt est détecté. En pratique, ce temps est décalé de quelques périodes :

$$t_i < t_e - |t_h - t_0| \quad (1.19)$$

où t_e est l'instant où débute l'événement. Une fois les temps t_i et t_f connus, les signaux présentés sur la figure 1.10 sont fenêtrés par une fenêtre de Tukey asymétrique rectangulaire à gauche et apodisée légèrement à droite de façon à s'affranchir le plus possible des oscillations résultant des effets de bords [54].

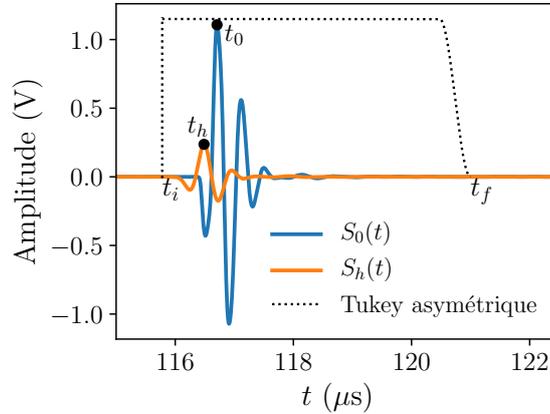


Figure 1.10 – Exemple de fenêtrage des signaux suivant la procédure décrite ci-dessus.

1.3.3 Domaine fréquentiel de validité

Il est nécessaire de déterminer le domaine fréquentiel de validité de la technique dans le but de connaître la bande de fréquence dans laquelle les hypothèses du modèle de propagation unidimensionnel restent valables. Ce domaine est déterminé selon plusieurs critères. Tout d'abord, la bande passante des transducteurs utilisés fixe un premier domaine de fréquences observables, mais ne donne pas de critère sur la modélisation d'une onde plane. Les limites fréquentielles inférieure et supérieure, notées respectivement f_{\min} et f_{\max} , peuvent être déterminées à partir de la géométrie du dispositif de mesure. Pour cela, la pastille piézoélectrique qui résonne à une fréquence centrale f_c , et dont la surface émettrice est de diamètre $2a$, est

modélisée comme un piston plan bafflé. La figure 1.11 présente un schéma de l'ouverture du faisceau acoustique au cours de sa propagation libre dans un milieu de référence. Notons que les caractéristiques des transducteurs utilisés pour l'ensemble des résultats présentés dans ce manuscrit sont répertoriés dans le tableau 1.1.

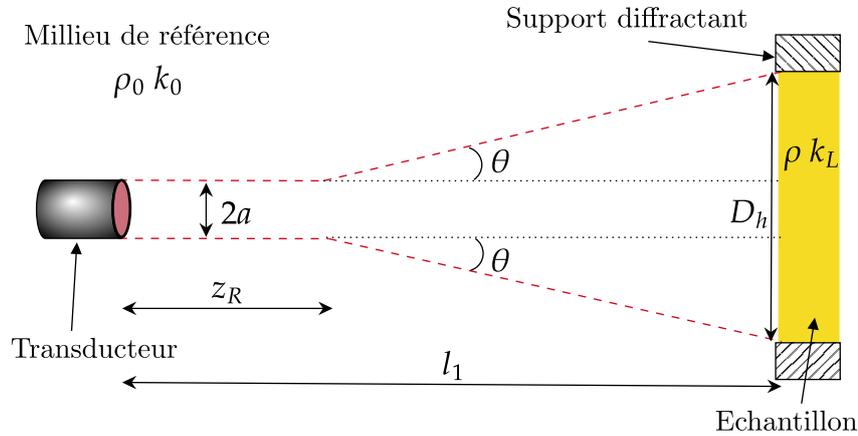


Figure 1.11 – Schématisation de l'ouverture du faisceau acoustique au cours de sa propagation libre dans un milieu de référence.

1.3.3.1 Limite supérieure f_{\max}

En supposant que les ondes qui se propagent au travers de l'échantillon soient des ondes planes, l'échantillon doit être situé dans le champ lointain de l'émetteur, c'est-à-dire situé à une distance l_1 telle que $l_1 \geq z_R$, où z_R est la distance de champ lointain défini comme [55] :

$$z_R = \frac{f_{\max} a^2}{c_0}, \quad (1.20)$$

où a est le rayon du transducteur.

Par exemple, pour une paire de transducteurs de fréquence centrale $f_c = 2,25$ MHz, de surface émettrice de diamètre $2a = 1,27$ cm et pour des mesures réalisées à des températures $T = 5^\circ\text{C}$ et $T = 40^\circ\text{C}$, les bornes fréquentielles supérieures sont respectivement $f_{\max} = 4,6$ MHz et $f_{\max} = 5,0$ MHz.

1.3.3.2 Limite inférieure f_{\min}

Dans le but d'éviter toute propagation en dehors de l'échantillon sondé, dans le porte échantillon par exemple, et que les ondes ne soient pas diffractées par ses bords, le diamètre du faisceau D doit être inférieur au diamètre de l'échantillon sondé D_h . En modélisant le rayonnement d'un transducteur par celui d'un piston plan bafflé, l'amplitude de l'onde émise dépend de l'angle de diffraction θ selon [52] :

$$D(\theta) = \frac{2J_1(k_0 a \sin \theta)}{k_0 a \sin \theta}, \quad (1.21)$$

où $J_1(x)$ est la fonction de Bessel de première espèce et d'ordre 1.

Si l'ouverture angulaire du faisceau est défini comme celle correspondant au premier zéro de la fonction de Bessel $J_1(x)$, c'est-à-dire à l'argument $x = 3,83$ où l'amplitude de l'onde s'annule entre le lobe principal et le premier lobe secondaire, la borne de fréquence inférieure correspond à f_{\min} telle que [9] :

$$\arcsin(3,83/(k_0 a)) = \arctan[(D_h/2 - a)/(l_1 - z_R)] \quad (1.22)$$

Par exemple, pour des mesures à des températures $T = 5^\circ\text{C}$ et $T = 40^\circ\text{C}$, les limites fréquentielles inférieures sont respectivement $f_{\min} = 0,44 \text{ MHz}$ et $f_{\min} = 0,47 \text{ MHz}$.

1.3.3.3 Bande passante

La précision du principe d'équivalence temps-température présenté dans le chapitre 3 est optimale sous réserve d'avoir un rapport minimum entre le signal et le bruit de mesure. C'est pourquoi il faut se limiter au domaine de fréquences dans lequel l'amplitude spectrale est supérieure à son amplitude maximum à -20 dB . Cela restreint donc finalement les critères supérieur et inférieur définis précédemment tels que : $f_{\min} = f'_{\min} = 0,8 \text{ MHz}$ et $f_{\max} = f'_{\max} = 3,7 \text{ MHz}$. Par commodité, nous prendrons les mêmes bornes pour toutes les mesures réalisées dans une gamme de températures comprise entre 5°C et 40°C . Par exemple, ces bornes sont affichées sur la figure 1.12 représentant les spectres des signaux fenêtrés à la figure 1.10 et mesurés à une température de 15°C .

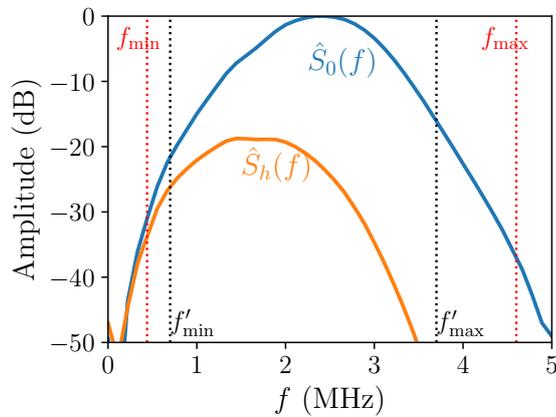


Figure 1.12 – Module des spectres des signaux fenêtrés sur la figure 1.10 et détermination du domaine de validité fréquentiel.

Marque	Olympus	Olympus	Airmar	Olympus	Olympus
Type	Immersion	Immersion	Immersion	Contact	Contact
Type d'onde (L ou T)	L	L	L	L	T
Diamètre (pouce)	0,5	1,0	3,0	3,0	0,5
Fréquence centrale (MHz)	2,25	0,50	0,25	0,25	2,25
f_{\min} (MHz)	0,80	0,25	0,18	0,11	1,20
f_{\max} (MHz)	3,70	0,75	0,35	0,39	3,70

Tableau 1.1 – Caractéristiques des transducteurs utilisés.

1.4 Mesure des propriétés acoustiques du polyuréthane

Puisque les quantités physiques qui entrent en jeu dans la technique de la différence de phase sont maintenant contrôlées et quantifiées, et que le protocole d'analyse des signaux est également bien défini, la vitesse de phase et l'atténuation des ondes longitudinales dans le PU peuvent être mesurées. Avant de réaliser une étude complète en température à hautes et basses fréquences ultrasonores, il convient de justifier le choix de la référence utilisée dans l'extraction du nombre d'onde longitudinal et d'étudier la répétabilité de la mesure.

1.4.1 Choix de la méthode

La méthode de la différence de phase définie à l'équation (1.14) est appliquée d'une part sur un échantillon d'épaisseur $h = (10,82 \pm 0,02)$ mm et d'autre part à un échantillon d'épaisseur $h_0 = (5,54 \pm 0,02)$ mm, en utilisant le même signal de référence qui s'est propagé uniquement dans l'eau. A des fins de comparaison, la méthode de la différence de phase définie à l'équation (1.16) est appliquée au signal transmis à travers l'échantillon d'épaisseur h et en utilisant comme référence le signal qui s'est transmis à travers l'échantillon d'épaisseur différente h_0 . Sur la figure 1.13 sont tracées la vitesse de phase c_L et l'atténuation α_L en utilisant ces différentes méthodes. L'écart entre ces déterminations est d'environ 0,6 % et 6,2 % pour respectivement c_L et α_L à la fréquence centrale $f_c = 500$ kHz et à la température de 25 °C. Ces faibles variations montrent bien que la méthode itérative utilisant comme référence le signal dans l'eau est tout à fait adaptée dans le cas du PU, compte tenu de la propagation des incertitudes liées au manque de répétabilité de l'expérience. Par conséquent, la méthode utilisant un seul échantillon est utilisée dans la suite.

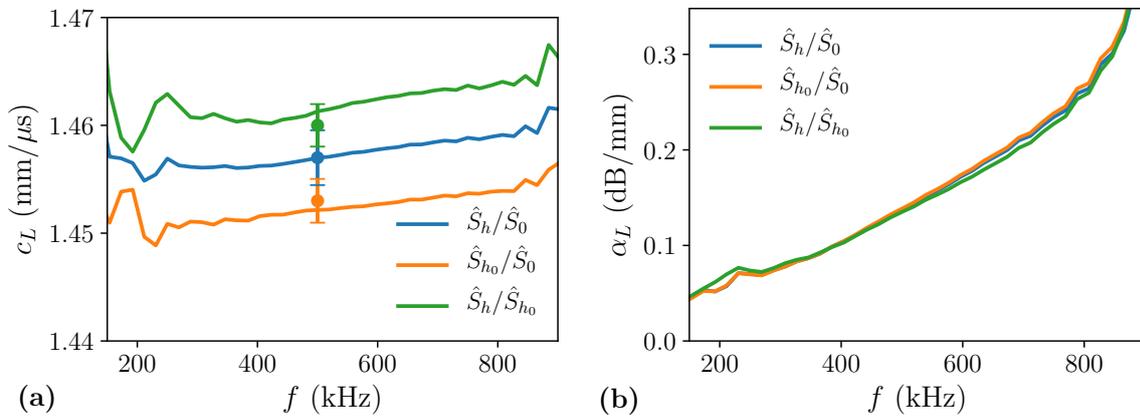


Figure 1.13 – (a) Vitesse de phase, vitesse calculée par temps de vol (1.18), (b) et atténuation de l'onde longitudinale. Comparaison entre les méthodes itératives utilisant comme référence le signal propagé uniquement dans l'eau pour un échantillon d'épaisseur h ou h_0 (rapport \hat{S}_h/\hat{S}_0 ou \hat{S}_{h_0}/\hat{S}_0) et un signal de référence propagé dans l'échantillon d'épaisseur h_0 (rapport \hat{S}_h/\hat{S}_{h_0}).

1.4.2 Répétabilité

Trois échantillons de PU, d'épaisseur respective h_1 , h_2 et h_3 , sont sondés successivement pour trois températures. Ces épaisseurs étant proches les unes des autres (c'est-à-dire de 10 ± 1 mm), nous quantifions ici la répétabilité allant de la fabrication des échantillons jus-

qu'au traitement du signal. Pour chacune des épaisseurs, les variations de la vitesse de phase c_L et de l'atténuation α_L du PU sont tracées sur la figure 1.14 en fonction de la fréquence et pour trois températures différentes. Les barres d'incertitudes associées à ces mesures sont calculées en propageant les incertitudes des quantités physiques intervenant dans la détermination de c_L et α_L (équation (1.14)). Il est intéressant de remarquer que pour la température $T = 20^\circ\text{C}$, qui est celle se rapprochant le plus de la température ambiante $T_a = 22^\circ\text{C}$, l'écart entre les trois mesures différentes est minimal. Cet effet est attendu puisque la régulation en température est plus difficile à maintenir lorsqu'on s'éloigne de la température ambiante. Les cercles tracés à la fréquence centrale $f_c = 2,25$ MHz représentent les mesures par temps de vol calculés avec la relation (1.18) et leurs incertitudes de mesure associées. Les tirets verticaux représentent f_{\min} et f_{\max} déterminées dans la sous-section 1.3.3. En conclusion, toutes les mesures sont en accord entre elles à une température donnée compte tenu de leurs incertitudes respectives (représentées en remplissage transparent) ce qui montre que l'expérience est bien répétable.

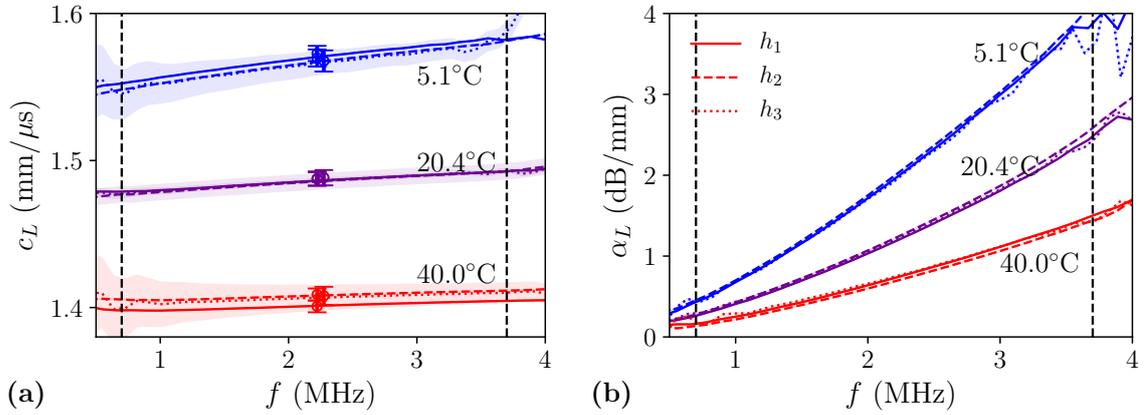


Figure 1.14 – (a) Vitesse de phase et (b) atténuation α_L de l'onde longitudinale se propageant dans des PU de trois épaisseurs différentes en fonction de la fréquence f pour différentes températures.

1.4.3 Dépendance en température

Maintenant que le processus d'extraction de la vitesse de phase et de l'atténuation des ondes longitudinales est bien défini et prouvé comme répétable, des études à différentes températures et à différentes plages de fréquences ultrasonores sont menées.

1.4.3.1 Mesures basses fréquences

En vue des applications sous-marines envisagées dans le cadre de cette thèse, il est nécessaire de connaître le comportement dynamique du PU à basses fréquences. De cette façon, les paires de transducteurs piézoélectriques en immersion de fréquence centrale $f_c = 500$ kHz et $f_c = 250$ kHz sont utilisées. Les calculs d'ouverture de faisceau et de distance de champ lointain présentés à la section 1.3 sont réalisés en amont pour définir f_{\min} et f_{\max} correspondant à cette nouvelle configuration expérimentale. Ces valeurs et les caractéristiques de ces deux paires de transducteurs sont reportées dans le tableau 1.1.

La vitesse de phase c_L du PU est représentée sur la figure 1.15a pour des mesures réalisées avec les trois paires de transducteurs et à différentes températures. L'ensemble de ces mesures se raccorde correctement pour les températures allant de 5 °C à 20 °C. Cependant, à partir de 25 °C, les mesures réalisées avec la paire à $f_c = 250$ kHz se recouvrent moins bien avec les autres. Au contraire, la continuité des mesures réalisées avec la paire à $f_c = 500$ kHz et celle à $f_c = 2,25$ MHz est meilleure, pour toutes les températures. A une température donnée, la raison pour laquelle les courbes ne sont pas toutes continues entre elles peut être attribuée aux légères variations de température dans le bassin régulé d'une mesure à une autre, ainsi qu'aux incertitudes de la technique. En effet, les écarts de célérité liés à l'incertitude de mesure de la température sont d'environ 0,2 %, ce qui est légèrement inférieur aux écarts observés au niveau des discontinuités, à une température donnée, qui sont au maximum de 0,4 %.

Concernant l'atténuation α_L du PU représentée sur la figure 1.15b, les mesures réalisées avec la paire à $f_c = 500$ kHz et celle à $f_c = 2,25$ MHz se recouvrent également correctement. Cependant, pour les mesures réalisées à $f_c = 250$ kHz l'atténuation du PU devient trop faible ($\sim 0,1$ dB/mm) et les mesures ne sont pas satisfaisantes quelle que soit la température. Par ailleurs, notons que les variations de l'atténuation avec la fréquence sont linéaires en représentation log-log, ce qui justifie son comportement en loi de puissance, classique pour des milieux visco-élastiques [44].

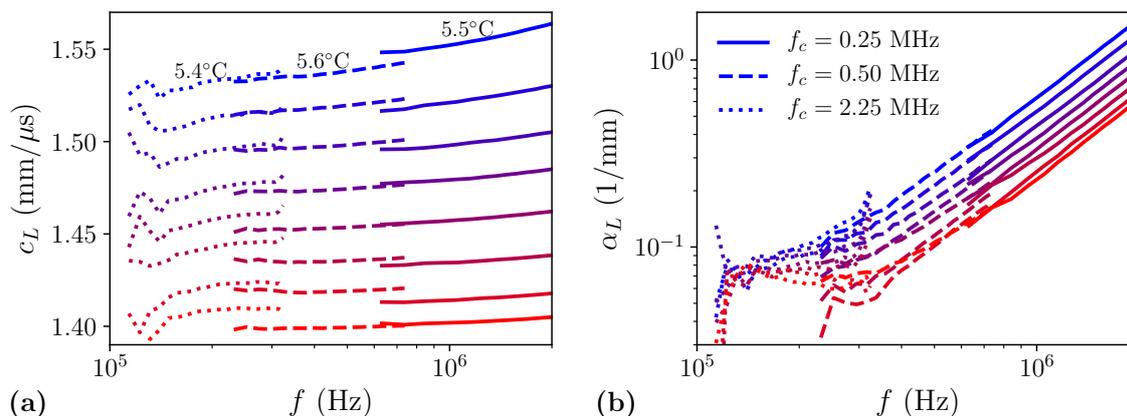


Figure 1.15 – (a) Mesures de la vitesse de phase c_L et (b) de l'atténuation α_L en échelle log-log du PU en fonction de la fréquence pour différentes paires de transducteurs et à différentes températures.

1.4.3.2 Mesures hautes fréquences

Les variations de la vitesse de phase c_L et de l'atténuation α_L de l'échantillon de PU sont tracées respectivement sur les figures 1.16a et 1.16b pour une gamme de températures allant de 5°C à 40°C. Ces deux paramètres sont extraits en utilisant la différence de phase. La vitesse c_L présente une faible dispersion et diminue avec la température, ainsi que la vitesse de groupe c_L^g déterminée en utilisant l'équation (1.18). On vérifie bien que ces deux mesures sont égales à la fréquence centrale compte tenu de leurs incertitudes respectives. Les variations d'épaisseur et de masse volumique en fonction de la température sont prises en compte dans le calcul de c_L^g , c_L , α_L à l'aide des relations (1.5).

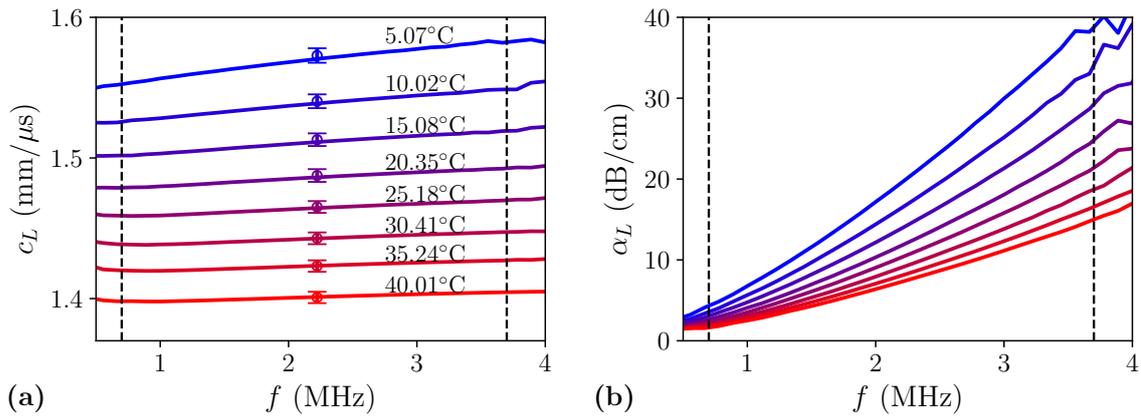


Figure 1.16 – Variations en fonction de la fréquence (a) de la vitesse de phase c_L et de la vitesse de groupe c_L^g associées (symboles), et (b) de l'atténuation α_L pour différentes températures.

La mesure de $k_L = \omega/c_T - i\alpha_L$ permet de déterminer le module longitudinal M du PU en utilisant l'équation (1.2). Sur la figure 1.17 sont tracés les comportements des parties réelle M_1 et imaginaire M_2 du module longitudinal en fonction de la fréquence f et de la température T . Dans un premier temps, notons que $M_1 \gg M_2$, ce qui traduit une faible dissipation visqueuse du PU à ces fréquences. Ensuite, ces résultats montrent que plus la température diminue, plus le PU se rigidifie et dissipe car M_1 et M_2 augmentent lorsque T diminue.

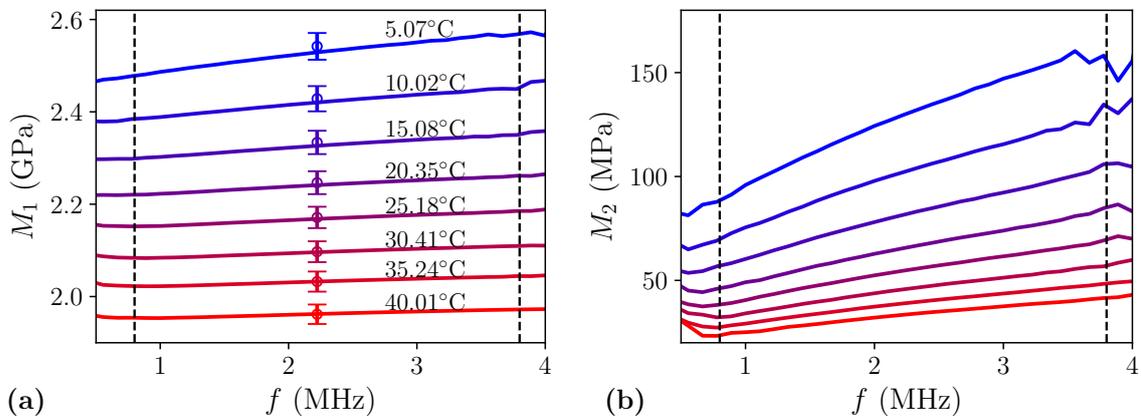


Figure 1.17 – Évolution de (a) la partie réelle M_1 et (b) la partie imaginaire M_2 du module longitudinale du PU en fonction de la fréquence f pour plusieurs températures T .

Conclusion

L'enjeu de ce premier chapitre a été de réaliser des mesures en transmission à différentes températures, précises et répétables, d'ondes longitudinales se propageant dans un échantillon de polyuréthane immergé dans l'eau en utilisant la technique de la différence de phase.

Avec cette technique, les propriétés longitudinales du PU ont été extraites par un processus itératif en utilisant la différence de phase, où les coefficients de transmission ont été initialisés à un. Utiliser cette modélisation d'onde plane en incidence normale requiert que les conditions expérimentales lors de la mesure lui soit fidèle. C'est pourquoi un effort particulier a été réalisé pour contrôler l'orientation et l'alignement des transducteurs et de l'échantillon par rapport à l'axe acoustique. Des mesures précises et répétables de vitesse de phase et d'atténuation des ondes longitudinales du PU ont été réalisées avec des transducteurs de fréquence centrale 250 kHz, 500 kHz et 2,25 MHz, couvrant ainsi une gamme de fréquences 0,1 – 5,0 MHz environ, et sur une plage de températures 5,0 – 40,0 °C. Le module longitudinal complexe du PU est donc calculé sur ces mêmes gammes de fréquences et de températures.

Caractériser complètement le PU, nécessite de mesurer également son module de cisaillement G . Le chapitre suivant présente l'adaptation d'un dispositif expérimental, développé au cours de ces dernières années par l'équipe, pour réaliser des mesures de vitesse de phase et d'atténuation d'onde transverse dans du PU, sur les mêmes gammes de fréquences et de températures.

Chapitre 2

Mesure d'onde transverse dans un polyuréthane

Sommaire

Introduction	42
2.1 Dispositif expérimental et protocole de mesure	46
2.1.1 Couplage des transducteurs aux lignes à retard	46
2.1.2 État de surface des lignes à retard	47
2.1.3 Couplage des lignes à retard aux échantillons	48
2.1.4 Acquisition des signaux	49
2.2 Traitement des signaux et modèle de propagation	50
2.2.1 Ouverture du faisceau et limites fréquentielles	50
2.2.2 Mesure des coefficients de réflexion et de transmission	51
2.2.3 Modèle de propagation	52
2.2.4 Effet de la température	53
2.3 Résolution du problème inverse	54
2.3.1 Position du problème	55
2.3.2 Identification de la solution physiquement admissible	55
2.4 Tests de qualité des mesures	57
2.4.1 Répétabilité	57
2.4.2 Dépendance en température	58
2.4.3 Vérification d'un critère énergétique	59
2.4.4 Module d'incompressibilité K	60
2.5 Étude de la cinétique de réticulation	60
2.5.1 Suivi du signal temporel au cours du durcissement	61
2.5.2 Suivi du cisaillement au cours du durcissement	62
Conclusion	64

Introduction

Aujourd'hui, des méthodes mécaniques quasi-statiques, dynamiques ou acoustiques sont utilisées pour caractériser les propriétés en cisaillement de matériaux visco-élastiques. Les propriétés rhéologiques de polymères peuvent être déterminées sur une large gamme de fréquence en combinant plusieurs techniques de mesures opérant sur des plages de fréquences distinctes [31, 56]. Cependant, si le matériau étudié est trop dissipatif, de nombreuses techniques deviennent inopérantes [57]. Les propriétés en cisaillement des élastomères sont généralement mesurées en utilisant des dispositifs basses fréquences, comme le rhéomètre ou le viscoanalyseur, mais à différentes températures afin d'évaluer leurs comportement au-delà de la plage de fréquences de l'appareil de mesure [58, 59].

Les techniques de mesures ultrasonores directes d'onde de cisaillement dans les milieux mous, c'est à dire des matériaux où $G \ll K$, sont quant à elles plus rares et compliquées à mettre en œuvre. De la même manière que la caractérisation du comportement des ondes longitudinales, les méthodes temporelles ne peuvent pas être appliquées pour caractériser le comportement des ondes de cisaillement car celles-ci sont trop atténuées et dispersées dans les élastomères. Bien que certains auteurs utilisent des méthodes temporelles [60–62], ce sont les techniques spectrales qui sont principalement utilisées pour caractériser les propriétés acoustiques transverses de matériaux atténuants aux fréquences ultrasonores.

Parmi ces méthodes spectrales, la technique de mesure en transmission à l'incidence oblique schématisée sur la figure 2.1 est couramment utilisée pour caractériser les propriétés mécaniques d'un matériau visco-élastique homogène, isotrope ou anisotrope. Celle-ci est basée sur la conversion d'une onde plane incidente longitudinale en une onde transverse à l'interface entre un fluide et un échantillon immergé avec un angle non nul θ_F par rapport à l'axe de propagation, d'où son appellation. En imposant cet angle d'incidence supérieur à l'angle critique tel que $\theta_L^c = \arcsin(c_F/c_L)$, et inférieur à $\theta_T^c = \arcsin(c_F/c_T)$, l'onde incidente donne naissance dans le matériau à une onde longitudinale évanescence confinée à l'interface, et une onde transverse se propageant à un angle de réfraction

$$\theta_T = \arcsin(c_T \sin \theta_F / c_F). \quad (2.1)$$

Puisque le faisceau acoustique dans l'échantillon est dévié par réfraction, le transducteur récepteur doit être translaté transversalement d'une distance

$$\delta = \sin(\theta_T - \theta_F)h / \cos \theta_T. \quad (2.2)$$

Cette technique a été notamment appliquée avec succès pour caractériser les constantes visco-élastiques de matériaux anisotropes faiblement dissipatifs aux fréquences ultrasonores [63, 64]. Elle a été également utilisée pour caractériser l'atténuation des ondes transverses dans des matériaux homogènes isotropes dissipatifs aux fréquences ultrasonores [30, 65]. Plus récemment, cette méthode a été employée pour mesurer les ondes cohérentes transverses dans des milieux élastiques hétérogènes [66]. Cependant, les mesures réalisées dans le chapitre précédent ont montré que la vitesse des ondes longitudinales dans le PU est très proche de celle de l'eau ($c_F/c_L \simeq 1$), ce qui implique un angle critique θ_L^c proche de 90° rendant l'expérience difficile à mettre en place. Cette méthode est difficilement applicable lorsque le matériau sondé est trop atténuant puisque découpler les échos impose l'utilisation d'un échantillon ayant une épaisseur suffisamment grande devant la longueur d'onde.

Ces différentes raisons conduisent à ne pas retenir cette technique de mesure pour caractériser la vitesse et l'atténuation des ondes transverses du PU.

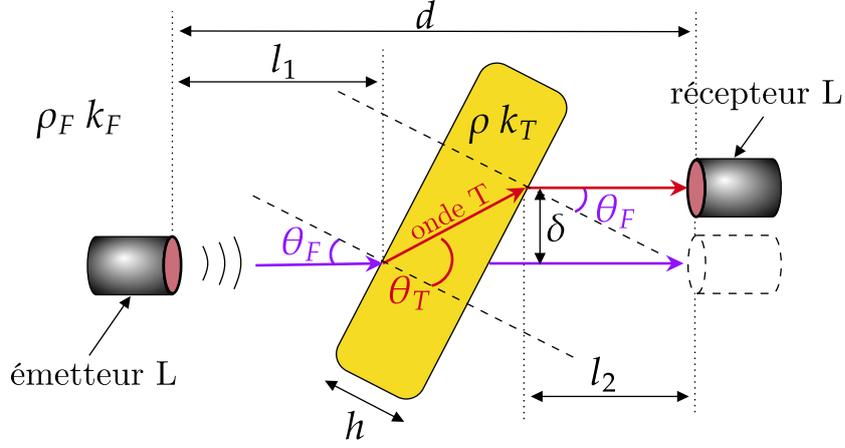


Figure 2.1 – Schéma de la technique de mesure en transmission en incidence oblique.

La technique de mesure en réflexion en incidence rasante schématisée sur la figure 2.2 permet quant à elle d'extraire directement le comportement dynamique du module de cisaillement d'un matériau dissipatif [67–69]. Le principe de cette méthode repose sur l'émission d'une onde transverse horizontale (TH) avec un angle d'incidence θ_i rasant, c'est-à-dire proche de 90° , et la comparaison du signal réfléchi à l'interface entre le bloc solide et l'échantillon visco-élastique $S_h(t)$ avec le signal réfléchi à la surface libre en l'absence de l'échantillon $S_0(t)$. L'émission d'une onde TH implique de ne générer aucun autre type d'onde par conversion à l'interface. Le coefficient de réflexion \mathcal{R} du système s'obtient par le rapport des spectres de ces signaux et s'exprime analytiquement par la relation suivante [70]

$$\mathcal{R}(\theta_i, \omega) = \frac{\hat{S}_h(\omega)}{\hat{S}_0(\omega)} = \frac{k_0 G_0 \cos \theta_i - k_T G \cos \theta_T}{k_{T_0} G_0 \cos \theta_i + k_T G \cos \theta_T}, \quad (2.3)$$

où le milieu de référence est constitué d'un matériau de masse volumique ρ_0 , de nombre d'onde k_0 , et de module de cisaillement G_0 . Le nombre d'onde k_T et le module de cisaillement G sont les paramètres inconnus et recherchés de l'échantillon.

En choisissant pour le milieu de référence un matériau tel que $|G_0| \gg |G|$, c'est-à-dire pour un contraste de vitesse des ondes transverses entre les deux milieu important, l'angle transmis dans le matériau est tel que $\theta_T = \arcsin(c_T \sin \theta_i / c_{T_e}) \ll 1$ radian, donc $\cos \theta_T \simeq 1$. Ainsi, la relation (2.3) se met sous la forme

$$\mathcal{R}(\theta_i, \omega) = \frac{k_{T_0} G_0 \cos \theta_i - k_T G}{k_{T_0} G_0 \cos \theta_i + k_T G}. \quad (2.4)$$

Compte tenu de cette approximation, le module de cisaillement du matériau est directement mesuré en inversant l'équation (2.4) :

$$G(\omega) = \cos^2 \theta_i \frac{\rho_0 G_0}{\rho} \left(\frac{1 - \mathcal{R}(\theta_i, \omega)}{1 + \mathcal{R}(\theta_i, \omega)} \right)^2, \quad (2.5)$$

avec ρ la masse volumique connue du matériau à sonder.

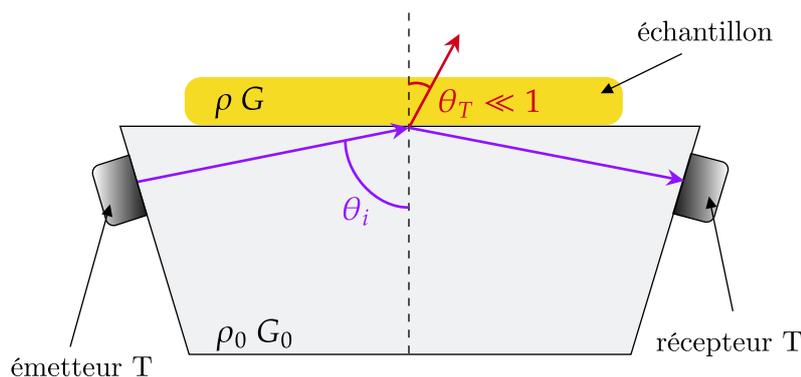


Figure 2.2 – Schéma de la technique de mesure en réflexion en incidence rasante.

L'expression (2.5) indique que pour déterminer le module de cisaillement G du matériau mou avec une bonne précision, il est nécessaire que $|\mathcal{R}|$ soit suffisamment éloigné de l'unité afin que le rapport $(1 - \mathcal{R})/(1 + \mathcal{R})$ soit correctement résolu, compte tenu que la dynamique de la carte d'acquisition. Par exemple, les variations du module et de la phase de \mathcal{R} , calculé à partir de l'équation (2.4), sont tracées sur la figure 2.3 en fonction de l'angle d'incidence θ_i pour différentes configurations et à une fréquence $f_c = 2,25$ MHz. La valeur de G du PU implémentée dans le calcul est celle mesurée *a posteriori* et celle du PDMS vient de la référence [71]. Ces variations mettent en avant l'intérêt d'utiliser un angle rasant θ_i entre 80° et 90° pour que \mathcal{R} soit faible et que la technique soit sensible.

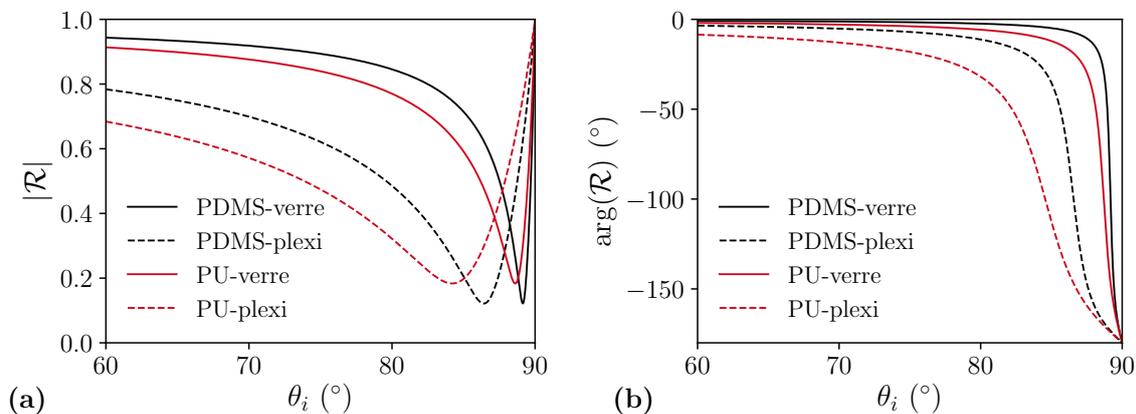


Figure 2.3 – (a) Module (b) et phase du coefficient de réflexion en fonction de l'angle d'incidence, calculés à partir de l'équation (2.4) dans le cas de différentes interfaces.

Dans la littérature, plusieurs auteurs ont appliqué cette méthode spectrale à des matériaux solides visco-élastiques [71], ou très mous comme certains produits alimentaires [72]. Cette technique s'avère prometteuse pour accéder au module de cisaillement de matériaux aussi atténuants que les polymères aux fréquences ultrasonores [31, 73], mais rendre les mesures reproductibles est difficile en particulier au niveau du couplage et de l'alignement des transducteurs à hautes fréquences.

Dans le cas de mesures au contact d'ondes de cisaillement, c'est-à-dire lorsque le transducteur est placé directement au contact de l'échantillon [74], il est nécessaire de placer un couplant visqueux ou solide entre ces deux éléments. Bien que les épaisseurs de couplant utilisées soient généralement faibles, elle peuvent biaiser notablement la détermination des paramètres mécaniques de l'échantillon, et dégrader fortement la reproductibilité de l'expérience [75]. Lorsque les mesures d'ondes de cisaillement en incidence oblique dans l'eau et celles au contact ne sont pas possibles, ce sont des lignes à retard solides qui sont privilégiées pour étudier la propagation des ondes transverses puisque celles-ci ne se propagent pas dans les liquides [26, 76]. De plus, comme expliqué au début du chapitre 1, séparer les échos successifs au sein de l'échantillon impose un critère sur son épaisseur, ce qui n'est pas envisageable si le matériau est trop atténuant. Pour répondre à ces différentes problématiques, une solution schématisée sur la figure 2.4, est d'analyser les interférences constructives et destructives (interférences Fabry-Perot) dans un milieu multi-couches, où l'échantillon d'intérêt est d'épaisseur comparable aux longueurs d'ondes, et placé entre deux lignes à retard identiques considérées comme infinies [77, 78].

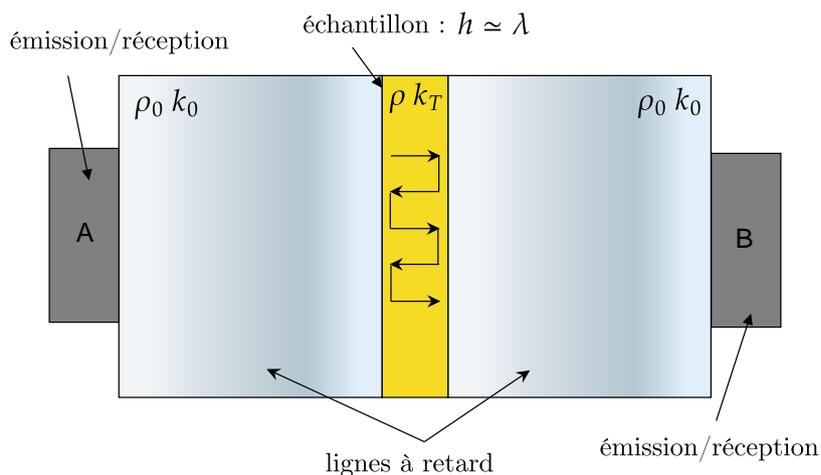


Figure 2.4 – Schéma de la technique interférométrique en incidence normale.

Travailler sur des échantillons fins et employer une méthode de mesure interférométrique s'avère être mieux adapté à l'extraction des propriétés acoustiques transverses de matériaux extrêmement dissipatifs à des fréquences ultrasonores. C'est pourquoi nous utiliserons ici la technique "sandwich" développée récemment par l'équipe pour mesurer le module de cisaillement de liquides visco-élastiques dans le cadre du contrat post-doctoral de G. Lefebvre [32], et de solides visco-élastiques "durs" ($|G| \sim 1$ GPa) dans le cadre de la thèse d'A. Simon [29, 50]. Lors du développement de cette technique, une attention particulière a été portée au contrôle du couplage entre les différents éléments du montage de sorte à rendre la mesure reproductible. Cette technique est adaptée ici pour mesurer la vitesse de phase et l'atténuation des ondes de cisaillement dans la gamme de fréquence 0,5 – 5,0 MHz d'un matériau aussi souple et dissipatif que le PU ($|G| \sim 10$ MPa). Ceci est rendu possible par l'utilisation d'échantillons fins et la mise en œuvre d'un procédé expérimental contrôlé et reproductible détaillé ci-après.

2.1 Dispositif expérimental et protocole de mesure

Le dispositif "sandwich" est basé sur la mesure des coefficients de réflexion et de transmission d'une onde plane transverse se propageant à travers un échantillon de PU de faible épaisseur inséré entre deux blocs de duralumin utilisés comme lignes à retard (LR) pour séparer les différents échos. L'ensemble du dispositif est schématisé sur la figure 2.5. Fondamentalement, le principe de mesure de la vitesse de phase c_T et de l'atténuation α_T du PU est similaire à celui de c_L et α_L , sauf qu'ici (i) l'eau est remplacée par les lignes à retard solides et (ii) le signal de référence n'est pas la transmission à travers l'eau mais la réflexion à la surface libre de la ligne à retard démontée, appelé signal de calibration ci-après.

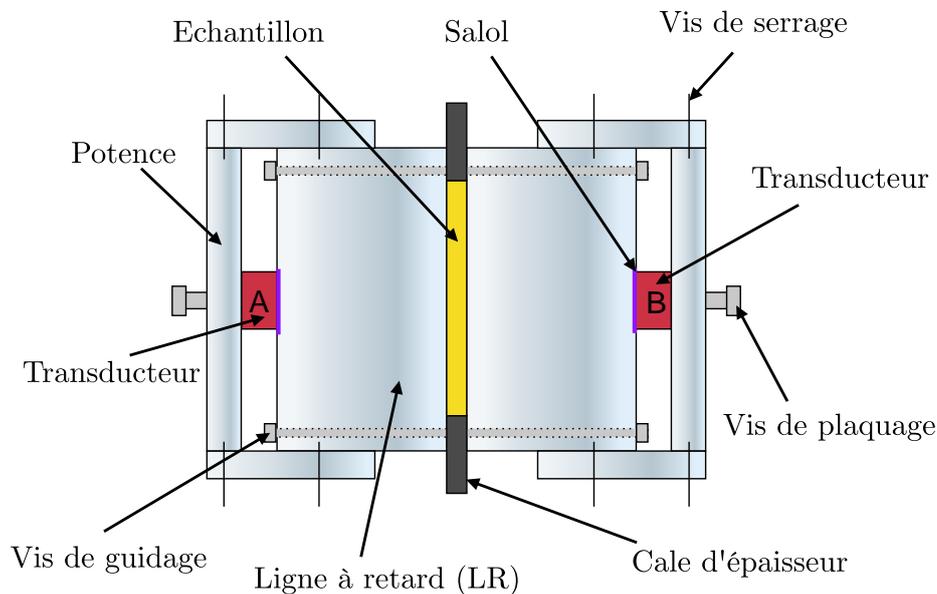


Figure 2.5 – Schématisation du dispositif sandwich développé et usiné dans le cadre de cette thèse afin de réaliser des mesures d'ondes transverse dans du polyuréthane.

2.1.1 Couplage des transducteurs aux lignes à retard

Les transducteurs piézoélectriques utilisés pour l'ensemble des mesures présentées dans cette partie sont des transducteurs à onde de cisaillement de la marque *Olympus* de type V154 (voir tableau 1.1). Ces transducteurs sont montés au contact de chaque LR en utilisant du Salicylate de phénol (Salol), assurant un couplage solide et peu dissipatif entre ces deux éléments. Les différentes étapes du couplage sont illustrées sur la figure 2.6. Pour réaliser ce couplage, environ 5 g de Salol sous forme de petits cristaux sont d'abord déposés sur chacune des LR démontées. Celles-ci sont ensuite placées dans une étuve et chauffées au-delà de 60°C de sorte à faire fondre les cristaux de Salol. Les transducteurs sont ensuite montés sur le Salol encore liquide et une pression est exercée à l'aide d'une vis de serrage appliquant un couple contrôlé établi à la clef dynamométrique de $(8,0 \pm 0,2)$ N.m. Le surplus de Salol est évacué par les bords des transducteurs. Lorsque la ligne à retard se refroidit suffisamment, le Salol se solidifie et constitue ainsi un couplant entre les transducteurs et les lignes à retard transmettant efficacement les ondes, transverse en particulier.

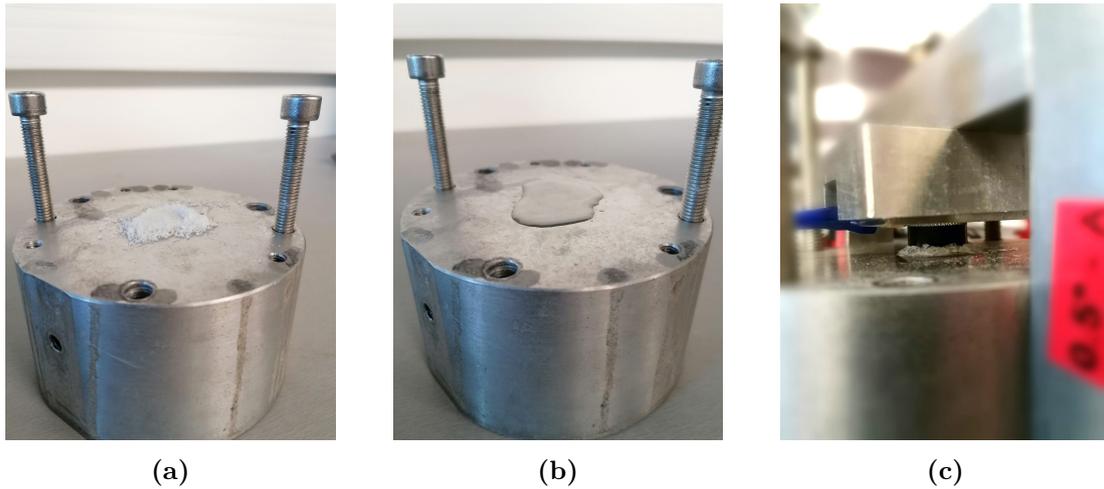


Figure 2.6 – (a) LR recouverte de cristaux solides de Salol. (b) LR recouverte de cristaux liquide de Salol chauffés à 60°C. (c) Couplage entre le transducteur et la LR et durcissement du Salol.

La figure 2.7 montre l'évolution de l'amplitude et du temps de propagation aller-retour de l'onde transverse réfléchi sur la surface libre d'une ligne à retard et qui traverse deux fois la couche mince de Salol en cours de durcissement. Ces résultats montrent que les propriétés du Salol sont stables après environ 7 h de solidification à température ambiante. À noter que contrairement au couplant visqueux utilisé dans le cadre des travaux de A. Simon, et dont les propriétés mécaniques sont stables seulement en-dessous de 5 °C, le Salol reste stable et sous forme solide jusqu'à sa température de fusion $T_f \simeq 43$ °C. Le Salol est donc adapté à l'étude en température envisagée par la suite.

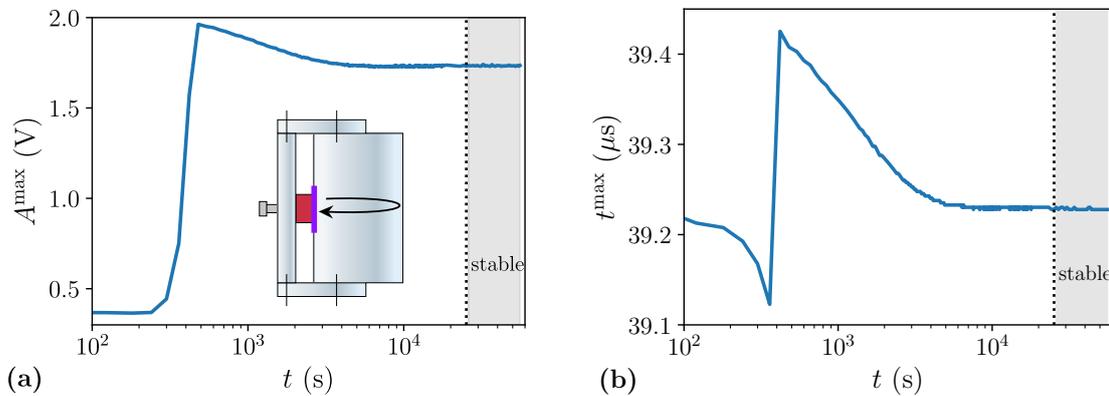


Figure 2.7 – (a) Amplitude et (b) temps de vol du maximum du premier écho de l'onde transverse réfléchis à la surface libre d'une LR au cours du durcissement du Salol à température ambiante.

2.1.2 État de surface des lignes à retard

Lors de la conception et de l'usinage des lignes à retard en duralumin, une attention particulière est portée à la planéité et au parallélisme de leur surfaces pour reproduire le plus fidèlement possible la configuration unidimensionnelle employée pour modéliser la propagation. Les surfaces de chacune des lignes à retard ont été préalablement polies sur un marbre avec du papier abrasif de type P5000 jusqu'à atteindre une taille de grain moyenne d'environ

$5 \mu\text{m}$, de sorte que les rugosités soient petites devant la longueur de l'onde de cisaillement ($\lambda \sim 50 \mu\text{m}$). L'image en réflexion de l'objet vue sur la figure 2.8a permet de se représenter la rugosité de l'état de surface obtenue.

2.1.3 Couplage des lignes à retard aux échantillons

Une fois les couplages entre les transducteurs et lignes à retard réalisés, une goutte de PU liquide est déposée sur la surface intérieure d'une des lignes à retard à l'aide d'une pipette à volume contrôlé. Cette étape est montrée sur la figure 2.8b. A noter que le PU est préalablement mélangé puis dégazé en utilisant le protocole présenté en section 1.1. Cette petite quantité de PU encore liquide est alors écrasée entre les lignes à retard et l'épaisseur h de l'échantillon de PU est fixée par les cales d'épaisseur calibrées et étalonnées qui sont disposées sur le pourtour de la ligne à retard (figure 2.8b). Le surplus de PU est évacué par les bords des lignes à retard. La solidification du PU se produit ensuite, ce qui entraîne une adhésion parfaite de l'échantillon sur les deux lignes à retard. Contrairement au cas d'échantillons visco-élastiques "durs" utilisés dans le cadre des travaux de A. Simon, le couplage entre les lignes à retard et l'échantillon de PU ne nécessite pas l'ajout d'un matériau assurant la transmission de l'onde transverse. Ainsi, la modélisation de la propagation de l'onde T à travers le sandwich implique seulement trois milieux de propagation différents (LR-échantillon-LR).

Une fois que le PU liquide est écrasé et l'ensemble du dispositif fermé puis serré comme présenté sur la figure 2.8c, ce dernier est placé dans une étuve à température contrôlée et la réticulation du PU se produit, entraînant l'adhésion parfaite du PU aux lignes à retard. L'évolution de sa réticulation est surveillée en acquérant régulièrement le signal de l'onde transverse transmise dans ce système multi-couche. Lors de ce processus, le maximum d'amplitude crête-à-crête et le temps de vol du premier écho de l'onde transmise sont suivis pendant plusieurs jours. Dès lors que ces deux quantités n'évoluent plus, le processus de durcissement est considéré comme achevé et le PU est dit solidifié. Plus de détail sur ce processus sont donnés dans la section 2.5.

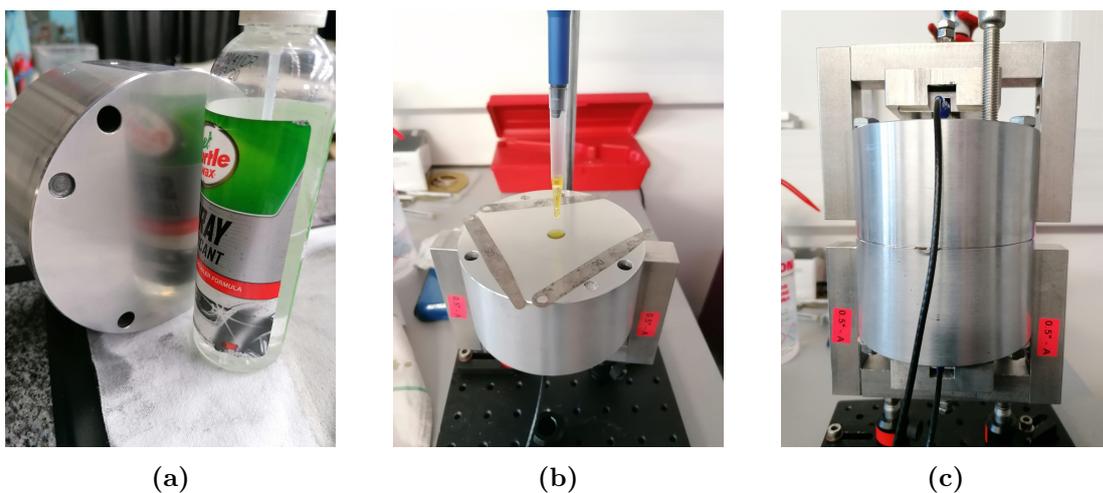


Figure 2.8 – (a) L'état de surface d'une LR après l'avoir poncée peut être évalué grâce à l'image en réflexion d'un objet quelconque qui permet d'apprécier l'aspect "miroir". (b) Dépôt d'une goutte de PU liquide au centre d'une des LR et positionnement des cales d'épaisseurs sur le pourtour de celle-ci. (c) Le PU est écrasé, assurant un contact parfait aux interfaces LR-échantillon après durcissement.

2.1.4 Acquisition des signaux

Une fois que le Salol est solidifié, que le dispositif entièrement monté est placé dans l'étuve, que la température des lignes à retard est homogène et constante, et que l'échantillon de PU inséré au centre du système a terminé de durcir à cette même température T_c , les derniers signaux acquis sont considérés comme les signaux stationnaires et une étude à d'autres températures du comportement du PU réticulé peut avoir lieu.

Afin d'accéder aux coefficients de réflexion et de transmission de l'échantillon de PU à une température T donnée, le protocole d'acquisition des différents signaux, schématisé sur la figure 2.9a, est défini comme suit : nous mesurons (i) le signal $S_{R_A}(t)$ (resp. $S_{R_B}(t)$) émis par le transducteur A (resp. B), réfléchi par l'échantillon de PU et détecté par A (resp. B) et (ii) le signal $S_{T_A}(t)$ (resp. $S_{T_B}(t)$) émis par le transducteur A (resp. B), transmis par l'échantillon et détecté par B (resp. A). Ensuite, le dispositif est démonté et l'échantillon retiré comme indiqué sur la figure 2.9b, et le signal de calibration $S_{C_A}(t)$ (resp. $S_{C_B}(t)$) émis par le transducteur A (resp. B), réfléchi à la surface libre de la ligne à retard et détecté par A (resp. B) est mesuré.

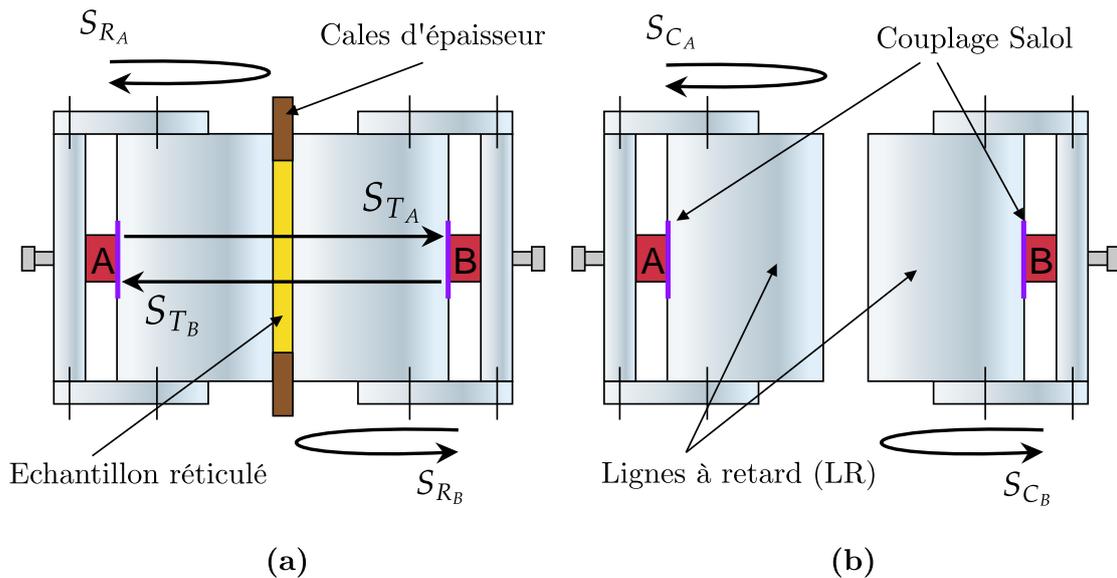


Figure 2.9 – Schéma du dispositif expérimental. A, B : transducteurs à ondes de cisaillement. (a) Trajet des ondes réfléchies S_{R_A} et S_{R_B} et transmises S_{T_A} et S_{T_B} par l'échantillon de PU et mesurées lorsque le dispositif est assemblé. (b) Trajet des ondes réfléchies S_{C_A} et S_{C_B} à la surfaces libre et mesurées lorsque le dispositif est démonté.

Les signaux réfléchis, transmis et de calibration mesurés à la température $T = 5\text{ °C}$ sont tracés sur la figure 2.10 pour un échantillon de PU réticulé à une température $T_c = 5\text{ °C}$ et d'épaisseur imposée par des cales de $h = 110\text{ }\mu\text{m}$. Malgré l'utilisation d'échantillons fins (90, 110 ou 130 μm), l'amplitude du signal transmis reste faible par rapport à celle du signal réfléchi (environ 50 fois plus faible), en raison du fort contraste d'impédance entre les lignes à retard en duralumin ($\sim 8,6\text{ MRayl}$) et le PU ($\sim 0,3\text{ MRayl}$), mais aussi d'une forte atténuation de l'onde de cisaillement dans le PU.

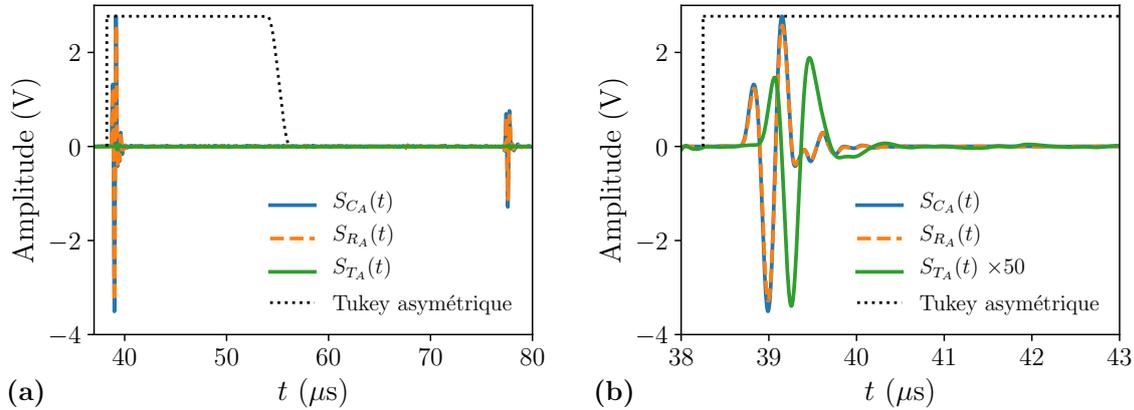


Figure 2.10 – (a) Signaux réfléchis S_{RA} , transmis S_{TA} et de calibration S_{CA} à travers un échantillon d'épaisseur $h = 110 \mu\text{m}$ sondé à la fréquence centrale 2,25 MHz. La courbe en pointillé représente la fenêtre appliquée aux signaux. (b) Zoom sur les signaux. Le signal transmis est amplifié 50 fois.

2.2 Traitement des signaux et modèle de propagation

Dans ce qui suit, le dispositif est dimensionné de sorte à extraire l'information fréquentielle sur toute la bande passante des transducteurs utilisés, et séparer correctement les différents échos réfléchis et transmis dans les lignes à retard. Les coefficients de transmission et de réflexion du système sandwich sont mesurés directement à partir de signaux de référence. On cherche à quantifier la dépendance en température des quantités physiques intervenant dans le modèle de propagation utilisé aussi pour extraire les propriétés du PU.

2.2.1 Ouverture du faisceau et limites fréquentielles

Les signaux représentés à la figure précédente sont fenêtrés par une fenêtre de Tukey de sorte à pouvoir considérer les lignes à retard comme infiniment longues et ne pas tenir comptes des multiples échos réfléchis dans celles-ci. Néanmoins, des ondes longitudinales de faibles amplitude sont générées par les bords du transducteur émetteur. Celles-ci se propagent à environ deux fois la vitesse des ondes transverses et risquent de parasiter le signal transmis à travers l'échantillon qui est d'amplitude comparable. Il n'est donc pas possible de fenêtrer le signal juste avant l'instant où le récepteur enregistre la deuxième arrivée. La taille de la fenêtre d'analyse est donc choisie de sorte à extraire convenablement les paramètres du PU.

Pour déterminer un ordre de grandeur des bornes spectrales admissibles f_{\min} et f_{\max} , il est possible d'utiliser les équations (1.20) et (1.22) même si celles-ci proviennent d'une modélisation pour un milieu de référence fluide. Compte tenu des caractéristiques des transducteurs et des dimensions du dispositif présentées sur la figure 2.11a, il vient : $f_{\min} = 0,6 \text{ MHz}$ et $f_{\max} = 4,6 \text{ MHz}$ à 5°C . Étant donnée la faible intensité des spectres transmis montrés à la figure 2.11b, ces limites sont déterminées selon un critère plus restrictif de -10 dB par rapport au maximum du spectre de référence, d'où $f'_{\min} = 1,2 \text{ MHz}$ et $f'_{\max} = 4,3 \text{ MHz}$.

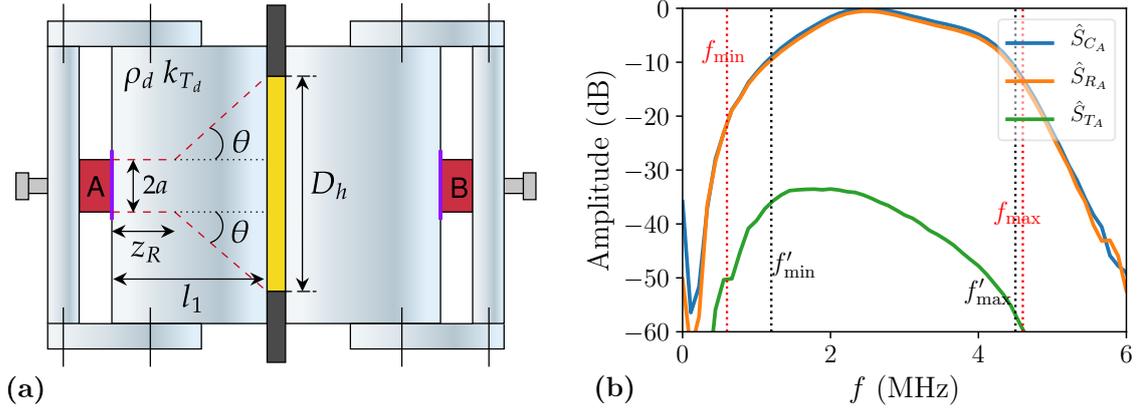


Figure 2.11 – (a) Schéma de l'ouverture du faisceau acoustique au cours de sa propagation dans une ligne à retard jusqu'à l'échantillon. (b) Spectres des signaux réfléchis, transmis et de calibration.

2.2.2 Mesure des coefficients de réflexion et de transmission

L'objectif est de déterminer les coefficients de réflexion \mathcal{R}_A et \mathcal{R}_B et de transmission \mathcal{T}_A et \mathcal{T}_B de l'assemblage. En faisant l'hypothèse d'ondes planes se propageant dans les systèmes et en considérant le coefficient de réflexion en contrainte valant -1 à la surface libre de chaque ligne à retard, les spectres des six signaux ont pour expressions :

$$\begin{cases} \hat{S}_{C_m}(\omega) = -S(\omega)A_e^m(\omega)A_r^m(\omega)e^{-2ik_{T_d}L_m}, \\ \hat{S}_{R_m}(\omega) = S(\omega)A_e^m(\omega)A_r^m(\omega)e^{-2ik_{T_d}L_m}\mathcal{R}_m(\omega), \\ \hat{S}_{T_m}(\omega) = S(\omega)A_e^m(\omega)A_r^m(\omega)e^{-2ik_{T_d}L_m}\mathcal{T}_m(\omega), \end{cases} \quad \text{avec } m = A, B \quad (2.6)$$

où $S(\omega)$ est le signal électrique appliqué à l'émetteur par le générateur-récepteur d'impulsions, $A_e^m(\omega)$ (resp. $A_r^m(\omega)$) est le coefficient de conversion électro-mécanique en émission (resp. réception) du transducteur m (resp. à la ligne à retard m) à la ligne à retard m (resp. au transducteur m) de longueur L_m avec $m = A, B$, $k_{T_d} = \omega/c_{T_d}$ est le nombre d'onde dans les lignes à retard déterminé en amont suivant le protocole détaillé dans la sous-section 2.2.4.

Les coefficients de transduction étant inconnus, il faut s'en affranchir en normalisant les spectres des signaux transmis et réfléchis à travers l'échantillon par les spectre des signaux réfléchis à la surface libre de chaque ligne à retard m . Le système est supposé comme symétrique par rapport au plan de symétrie de l'échantillon, c'est-à-dire $L_A = L_B = L$. De cette façon, en combinant les expressions (2.6) des signaux acquis montrés figure 2.10, les coefficients \mathcal{R}_m et \mathcal{T}_m sont donnés par

$$\begin{cases} \mathcal{R}_m = \frac{\hat{S}_{R_m}(\omega)}{\hat{S}_{C_m}(\omega)}, \\ \mathcal{T}_A\mathcal{T}_B = \frac{\hat{S}_{T_A}\hat{S}_{T_B}}{\hat{S}_{C_A}\hat{S}_{C_B}}. \end{cases} \quad \text{avec } m = A, B \quad (2.7)$$

Précisons que si le système est symétrique, il vient $\mathcal{R}_A = \mathcal{R}_B = \mathcal{R}$ et $\mathcal{T}_A \mathcal{T}_B = \mathcal{T}^2$. De cette manière, la mesure expérimentale des coefficient de réflexion et de transmission du système sandwich est définie telle que :

$$\begin{cases} \mathcal{R}^{\text{exp}} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\hat{S}_{R_A}(\omega)}{\hat{S}_{C_A}(\omega)} + \frac{\hat{S}_{R_B}(\omega)}{\hat{S}_{C_B}(\omega)} \right), \\ (\mathcal{T}^{\text{exp}})^2 &= \frac{\hat{S}_{T_A}(\omega) \hat{S}_{T_B}(\omega)}{\hat{S}_{C_A}(\omega) \hat{S}_{C_B}(\omega)}. \end{cases} \quad (2.8)$$

Cette normalisation conduit également à ne pas subir les différences mécaniques entre les couplages réalisés au Salol aux interfaces entre les transducteurs et les lignes à retard.

Les variations des modules de \mathcal{R}_A , \mathcal{R}_B et \mathcal{R}^{exp} , ainsi que $(\mathcal{T}^{\text{exp}})^2$ sont tracées sur la figure 2.12 en fonction de la fréquence. L'écart entre les mesures de \mathcal{R}_A et \mathcal{R}_B est d'environ 0,3 %, ce qui confirme la validité de l'hypothèse de symétrie du dispositif.

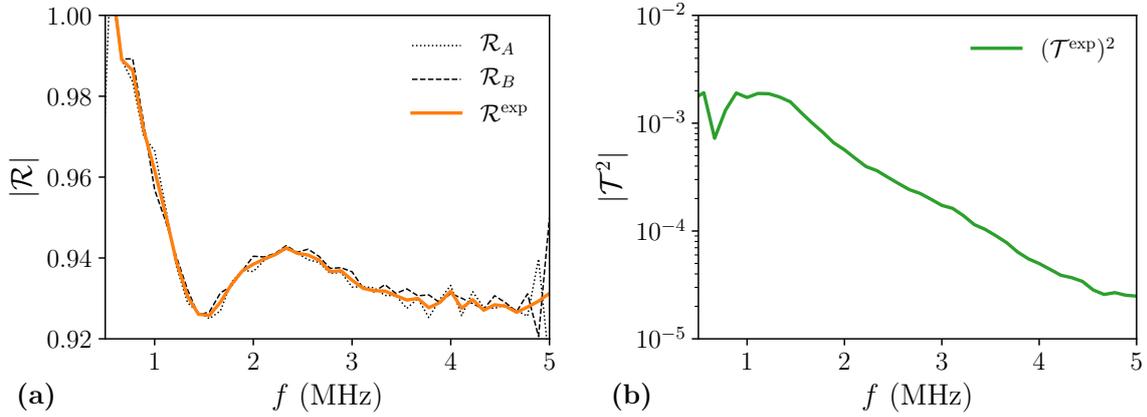


Figure 2.12 – Modules des coefficients (a) de réflexion et (b) de transmission calculés à partir de la relation (2.8).

2.2.3 Modèle de propagation

En supposant que les lignes à retard soient infiniment longues et que les ondes qui se propagent dans les deux sens à travers l'échantillon d'épaisseur comparable à la longueur d'onde, et que les lignes à retard soient des ondes planes transverses, un modèle d'interférences Fabry-Perot unidimensionnel décrit convenablement la réflexion et la transmission à l'intérieur de l'échantillon par l'ensemble du système, ce qui conduit aux expressions théoriques suivantes pour le coefficient de transmission \mathcal{T}^{th} et le coefficient de réflexion \mathcal{R}^{th} :

$$\begin{cases} \mathcal{T}^{\text{th}}(k_T, \omega) &= \frac{t_{01} t_{10} e^{-ik_T h}}{1 + r_{01} r_{10} e^{-2ik_T h}}, \\ \mathcal{R}^{\text{th}}(k_T, \omega) &= r_{01} + \frac{t_{01} r_{10} t_{10} e^{-ik_T h}}{1 + r_{01} r_{10} e^{-2ik_T h}}, \end{cases} \quad (2.9)$$

où $k_T(\omega) = \omega/c_T(\omega) - i\alpha_T(\omega)$ est le nombre d'onde transverse de l'échantillon à déterminer. Les indices 0 et 1 représentent respectivement le matériau constituant la ligne à retard et l'échantillon. Les coefficients r_{nm} et t_{nm} sont respectivement les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude de contrainte aux interfaces entre la ligne à retard et l'échantillon d'une part et l'échantillon et la ligne à retard d'autre part. Ils sont définis par [34] :

$$\begin{cases} t_{nm} = \frac{2\rho_m k_n}{\rho_m k_n + \rho_n k_m}, \\ r_{nm} = \frac{\rho_m k_n - \rho_n k_m}{\rho_m k_n + \rho_n k_m}, \end{cases} \quad \text{avec } n, m = 0 \text{ ou } 1. \quad (2.10)$$

Le problème est implicite car les coefficients aux interfaces dépendent également du nombre d'onde du PU k_T inconnu. Pour remédier à cette indétermination, un moyen est d'inverser l'équation (2.9), c'est à dire déterminer k_T à partir de \mathcal{R}^{th} et \mathcal{T}^{th} . Précisons que la détermination de k_T à partir de \mathcal{T}^{th} et \mathcal{R}^{th} est non unique puisque les fonctions exponentielles complexes rendent les expressions de ces coefficients périodiques vis-à-vis de $\text{Re}[k_T h]$.

2.2.4 Effet de la température

Pour terminer cette section, il est nécessaire de préciser la dépendance en température des quantités intervenant dans l'équation (2.9). Les lignes à retard sont constituées de duralumin 2017A [79], dont la masse volumique à 20 °C est $\rho_d = 2790 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Sa dilatation thermique, qui est caractérisée par son coefficient de dilatation linéaire $\kappa = 2,3 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, entraîne une variation de 0,24 % de sa densité massique ρ_d et une variation de 0,08 % de la longueur des lignes à retard dans la plage de température étudiée 5 – 35 °C. De plus, les cales d'épaisseur sont en acier. En raison de son faible coefficient de dilatation linéaire $\kappa \simeq 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, la variation de l'épaisseur des cales dans la plage de température étudiée est de 0,03 % correspondant à une valeur absolue très inférieure aux incertitudes sur les épaisseurs des cales. Ainsi, nous négligeons leur dilatation et nous considérons leur épaisseur nominale h , qui est fournie par le service de calibration avec une incertitude de $\pm 5 \mu\text{m}$.

Enfin, les variations de vitesse des ondes de cisaillement se propageant dans les blocs de duralumin en fonction de la température peuvent être directement mesurées *via* la mesure du temps de vol du signal de calibration. La figure 2.13a montre les échos successifs issus des réflexions multiples sur la surface libre des lignes à retard à $T = 5 \text{ °C}$. Pour déterminer la valeur moyenne de c_{T_d} à cette température, on exploite la différence des temps d'arrivée des maxima d'amplitude de l'enveloppe du premier écho et des suivants. La figure 2.13b représente l'évolution de la distance émetteur-LR en fonction du décalage des temps d'arrivée, et permet d'extraire numériquement la pente qui correspond à la vitesse de propagation c_{T_d} .

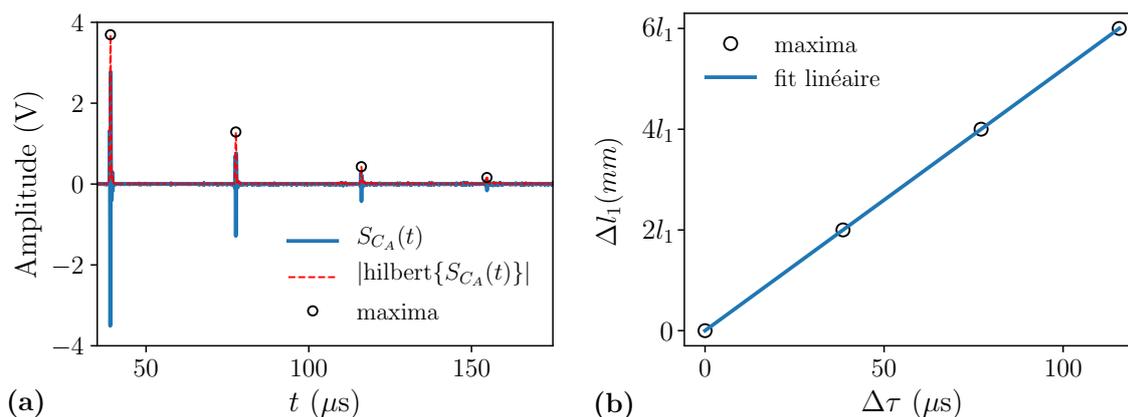


Figure 2.13 – (a) Détermination par transformée de Hilbert des temps d'arrivée des échos successifs réfléchis à la surface libre d'une LR à une température homogène de 5°C . (b) Meilleure approximation linéaire permettant d'extraire c_{T_d} .

La vitesse de propagation des ondes transverses c_{T_d} est tracée en fonction de la température sur la figure 2.14. Celle-ci suit une loi affine décroissante avec la température de type $c_{T_d}(T) = b - aT$, ce qui est attendu sur cette gamme de température peu élevée. Finalement ces mesures montrent que la variation de la vitesse des ondes transverses c_{T_d} dans le duralumin dans la plage de température étudiée est de 0,83 %.

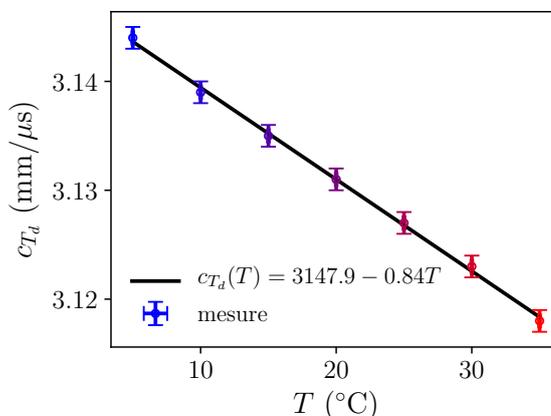


Figure 2.14 – Variations linéaires de la vitesse de propagation des ondes T dans la LR en fonction de la température. Les barres d'incertitudes associées sont calculées à partir de la relation (1.7).

2.3 Résolution du problème inverse

Afin de déterminer le nombre d'onde $k_T(\omega)$ dans le PU, il s'agit de déterminer les valeurs de c_T et α_T telles que $\mathcal{T}^{\text{th}} = \mathcal{T}^{\text{exp}}$ à chaque fréquence ω . Dans la pratique, il s'agit de déterminer les valeurs de c_T et α_T telles que l'erreur $\varepsilon(\omega)$ définie comme suit est minimale :

$$\varepsilon(\omega) = \left| (\mathcal{T}^{\text{th}})^2(c_T, \alpha_T, \omega) - (\mathcal{T}^{\text{exp}})^2(\omega) \right|^2 \quad (2.11)$$

Pour cela, la fonction de coût ε est évaluée à chaque fréquences pour c_T et α_T parcourant les intervalles $[100 - 900]$ m.s^{-1} et $[1 - 400]$ dB.mm^{-1} et ses minima sont recherchés.

Sur la figure 2.15 sont représentées les variations du logarithme décimal de l'erreur relative $\varepsilon/\min(\varepsilon)$ en fonction de c_T et α_T pour un échantillon d'épaisseur $110 \mu\text{m}$, à la fréquence centrale f_c et à une température $T = 5 \text{ }^\circ\text{C}$. Comme attendu compte tenu du comportement périodique de \mathcal{T}^{th} vis-à-vis de $1/c_T$ (cf. (2.9)), quatre minima (numérotés de 1 à 4) sont détectés correspondant à quatre valeurs différentes et possibles de c_T et α_T . Il s'agit de déterminer laquelle de ces paires de valeurs $\{\alpha_T, c_T\}$ est physiquement admissible à chaque fréquence $\omega = 2\pi f$.

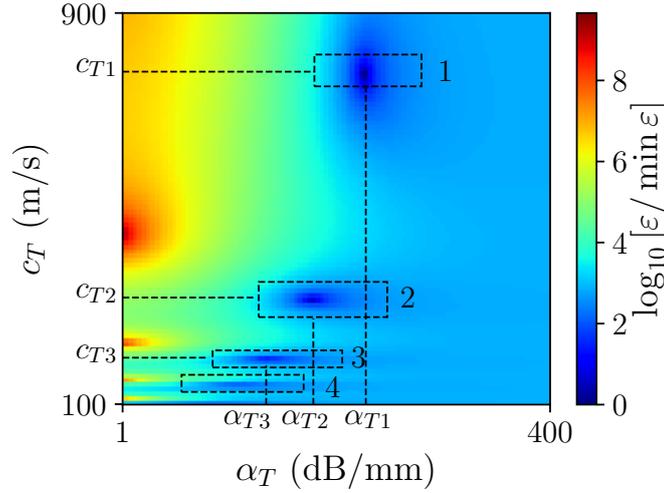


Figure 2.15 – Variation du logarithme décimal de l'erreur relative définie par l'équation (2.11) en fonction de c_T et α_T à la fréquence centrale f_c . Les cadres en pointillés entourent les minima.

2.3.1 Position du problème

Il s'agit de mettre en œuvre une stratégie pour identifier la solution physiquement admissible au problème inverse. Dans les études précédentes portant sur des échantillons visco-élastiques "durs" [50], deux procédures sont appliquées pour identifier la solution admissible : une analyse par temps de vol et une comparaison des résultats pour des échantillons d'épaisseurs différentes. Comme expliqué précédemment, l'analyse par temps de vol n'est pas applicable dans le cas du PU à cause de la forte atténuation des ondes transverses. Il est donc nécessaire de trouver un critère supplémentaire pour pouvoir discriminer ces différentes solutions à partir d'un seul échantillon.

2.3.2 Identification de la solution physiquement admissible

Afin de sélectionner la courbe de dispersion physiquement admissible $\{c_T(\omega), \alpha_T(\omega)\}$, deux approches peuvent être adoptées : (i) observer si les variations de c_T et α_T en fonction de la fréquence déterminées à partir d'échantillons de PU d'épaisseur différentes sont similaires ou non (ii) sélectionner la courbe de dispersion qui correspond au meilleur ajustement de $|\mathcal{T}^{\text{th}}|^2$ et $|\mathcal{R}^{\text{th}}|$ par l'équation (2.9).

2.3.2.1 Discrimination par l'épaisseur

Trois échantillons d'épaisseurs différentes, $90 \mu\text{m}$, $110 \mu\text{m}$ et $130 \mu\text{m}$, sont sondés. Les variations des vitesses de phase c_{T1} , c_{T2} et c_{T3} associées respectivement aux branches de solution 1, 2 et 3 sont tracées en fonction de la fréquence sur la figure 2.16a. De la même manière, les variations de l'atténuation α_T pour les trois solutions sont représentées sur la figure 2.16b. Le comportement de c_T est indépendant de l'épaisseur pour la solution n°2. Celui de α_T est plus bruité et ne permet pas de conclure définitivement. On en déduit que, $\{c_{T2}(\omega), \alpha_{T2}(\omega)\}$ est la seule branche de solution physiquement admissible.

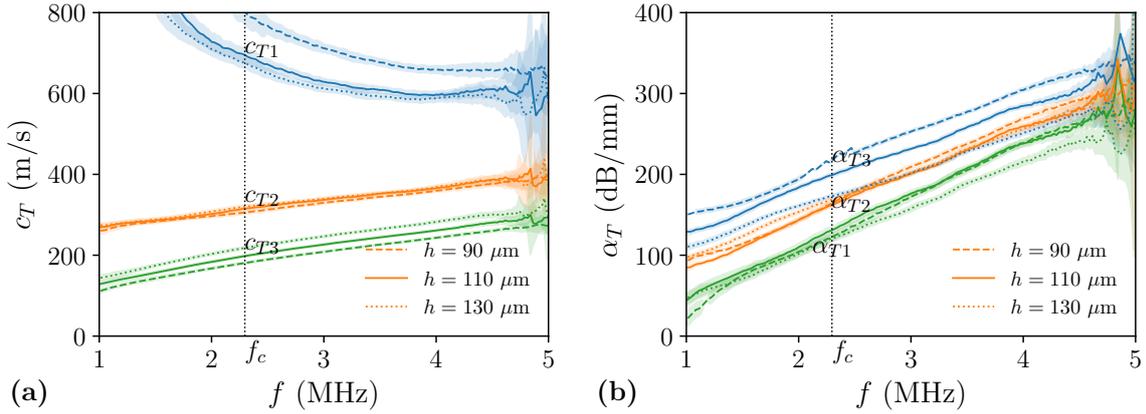


Figure 2.16 – Variations en fonction de la fréquence des valeurs de (a) vitesses de phases c_T et (b) de l'atténuation α_T correspondantes aux minima étiquetés 1, 2 et 3 sur la figure 2.15 pour chacun des trois échantillons. Les barres d'incertitudes sont représentées en remplissage transparent et correspondent à l'incertitude associée au processus d'inversion et détaillée dans la référence [50].

2.3.2.2 Discrimination par la réflexion

Les variations du coefficient de transmission expérimental $|(\mathcal{T}^{\text{exp}})^2|$ en fonction de la fréquences pour une épaisseur donnée sont représentées sur la figure 2.17a, ainsi que les prédictions théoriques $|(\mathcal{T}_i^{\text{th}})^2|$ calculées avec l'équation (2.9) avec les 3 branches des solutions possibles $\{c_{Ti}(\omega), \alpha_{Ti}(\omega)\}$, $i = 1$ à 3. Leur comparaison ne permet pas de sélectionner la solution physiquement admissible car toutes les courbes théoriques se superposent avec la mesure expérimentale.

Les variations du coefficient de réflexion expérimental $|\mathcal{R}^{\text{exp}}|$ sont tracées sur la figure 2.17b, ainsi que le coefficient de réflexion théorique $|\mathcal{R}^{\text{th}}|$ calculé à partir de l'équation (2.9) avec les 3 branches de solutions possibles $\{c_{Ti}(\omega), \alpha_{Ti}(\omega)\}$, $i = 1$ à 3. Contrairement au coefficient de transmission, la mesure expérimentale de la réflexion est en accord avec une seule solution, ce qui permet d'identifier $\{c_{T2}(\omega), \alpha_{T2}(\omega)\}$ comme l'unique solution physiquement admissible.

Pour conclure, ces deux critères conduisent à la même solution physiquement admissible de c_{T2} et α_{T2} . La comparaison entre \mathcal{R}^{exp} et de \mathcal{R}^{th} apparaît comme une alternative intéressante pour discriminer les différentes solutions puisqu'elle est adaptée aux matériaux atténuants contrairement à la mesure du temps de vol utilisée dans la référence [50]. Ce

nouveau critère est auto-consistant car un unique échantillon est sondé, contrairement au critère sur l'épaisseur qui nécessite la réalisation de plusieurs échantillons, ce qui peut poser des problèmes de répétabilité.

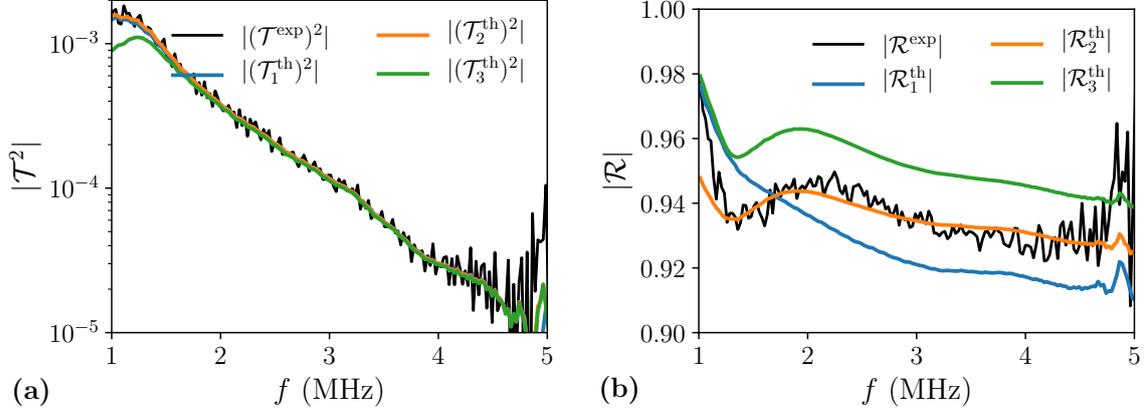


Figure 2.17 – (a) Variations en fonction de la fréquence de l’amplitude du carré du coefficient de transmission expérimental $|(\mathcal{T}^{\text{exp}})^2|$ et de ses prédictions théoriques $|(\mathcal{T}_1^{\text{th}})^2|$, $|(\mathcal{T}_2^{\text{th}})^2|$ et $|(\mathcal{T}_3^{\text{th}})^2|$ calculées à partir de l’équation (2.9) avec les solutions présentées sur la figure 2.16. (b) Variations en fonction de la fréquence du coefficient de réflexion expérimental $|\mathcal{R}^{\text{exp}}|$ et de ses prédictions théoriques $|\mathcal{R}_1^{\text{th}}|$, $|\mathcal{R}_2^{\text{th}}|$ et $|\mathcal{R}_3^{\text{th}}|$.

2.4 Tests de qualité des mesures

Dans ce qui suit, le protocole d’extraction de c_T et α_T du PU établi précédemment est appliqué à différentes températures. Il convient également de justifier la répétabilité de l’expérience allant de la fabrication des échantillons jusqu’à l’identification des ses paramètres acoustiques. Le module de cisaillement du PU est calculé pour toutes les températures. De plus, un critère est appliqué permettant de vérifier la véracité de l’ensemble des mesures.

2.4.1 Répétabilité

En métrologie, la répétabilité d’une expérience consiste à quantifier précisément les écarts entre plusieurs réalisations d’une même expérience, dans exactement les mêmes conditions expérimentales. Ceci permet d’évaluer la fidélité de la technique de mesure. Par conséquent, deux expériences successives ont été menées en suivant le protocole détaillé dans la sous-section 2.1, c’est-à-dire : fabrication du mélange, mêmes cales d’épaisseur à $h = (110 \pm 5) \mu\text{m}$, échantillon réticulé à $T_c = 5 \text{ }^\circ\text{C}$ pendant la même durée, et mesures à différentes températures. Pour ces deux séries de mesures successives, les variations des valeurs physiquement admissibles de c_T et α_T en fonction de la fréquence sont représentées sur la figure 2.18 pour deux températures différentes. Les écarts entre les déterminations de c_T et α_T à la température $5 \text{ }^\circ\text{C}$, provenant de deux expériences différentes, sont respectivement de l’ordre de $6 - 7 \%$ et de $8 - 13 \%$ et augmentent avec la fréquence. De plus, ces écarts ont tendance à se réduire lorsque la température augmente. En effet, pour $T = 35 \text{ }^\circ\text{C}$, les écarts entre les détermination de c_T et α_T impliquant ces trois mêmes échantillons sont respectivement de $3 - 4 \%$ et $1 - 5\%$. Par ailleurs, ces écarts sont compatibles compte-tenu des incertitudes associées au processus d’inversion.

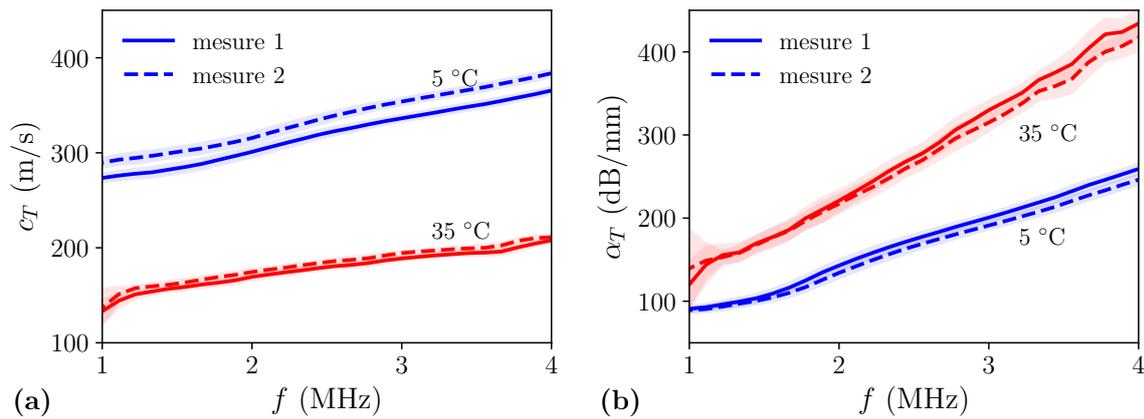


Figure 2.18 – Variations de (a) la vitesse de phase et (b) l'atténuation des ondes transverses en fonction de la fréquence pour deux expériences successives à même épaisseur $h = (110 \pm 5) \mu\text{m}$, mesurées à deux températures différentes. Les barres d'incertitudes sont représentées en remplissage transparent et correspondent à l'incertitude associée au processus d'inversion [50].

2.4.2 Dépendance en température

Les variations de c_T et de α_T en fonction de f correspondant à la solution physiquement admissible sont représentées sur les figures 2.19 pour plusieurs températures. Sur cette plage de fréquences, la vitesse de phase c_T et l'atténuation α_T varient linéairement avec la fréquence f . Concernant l'atténuation un comportement de type loi de puissance en fréquence serait attendu [44], mais les variations sont trop faibles sur cette gamme pour réellement conclure. Concernant la dépendance en température, plus T est faible, plus la vitesse de phase c_T est importante et plus l'atténuation α_T est petite. Aux basses températures, le PU a tendance à se rigidifier et à être moins dissipatif.

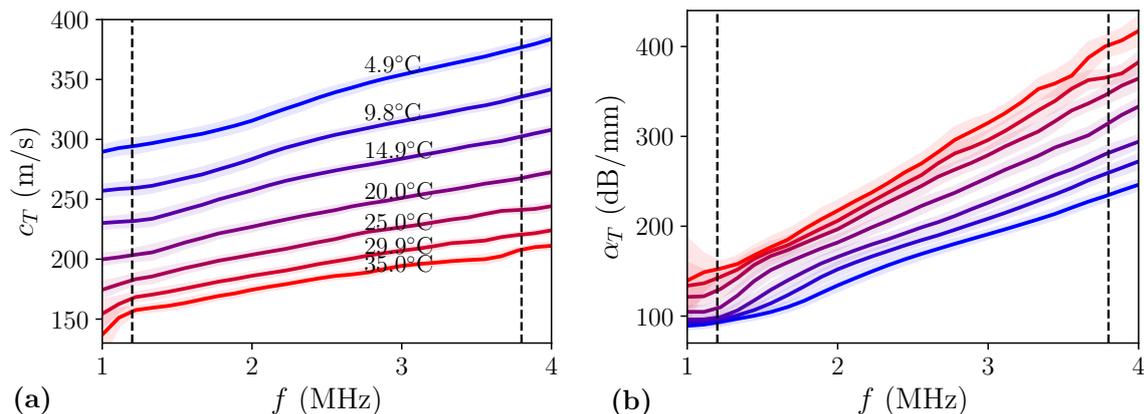


Figure 2.19 – (a) Vitesse de phase et (b) atténuation de l'onde T se propageant dans le PU en fonction de la fréquence pour différentes températures. Les barres d'incertitudes sont représentées en remplissage transparent et correspondent à l'incertitude associée au processus d'inversion [50].

La mesure du nombre d'onde transverse $k_T = \omega/c_T - i\alpha_T$ permet de calculer le module de cisaillement du PU. Les variations des parties réelle G_1 et imaginaire G_2 du module de cisaillement du PU sont tracées sur la figure 2.20 en fonction de la fréquence f et de la température T . Il faut remarquer que $G_1 \simeq G_2$, ce qui traduit une forte dissipation visqueuse lorsque l'échantillon de PU est sollicité par une onde transverse sur ces gammes de fréquences ultrasonores.

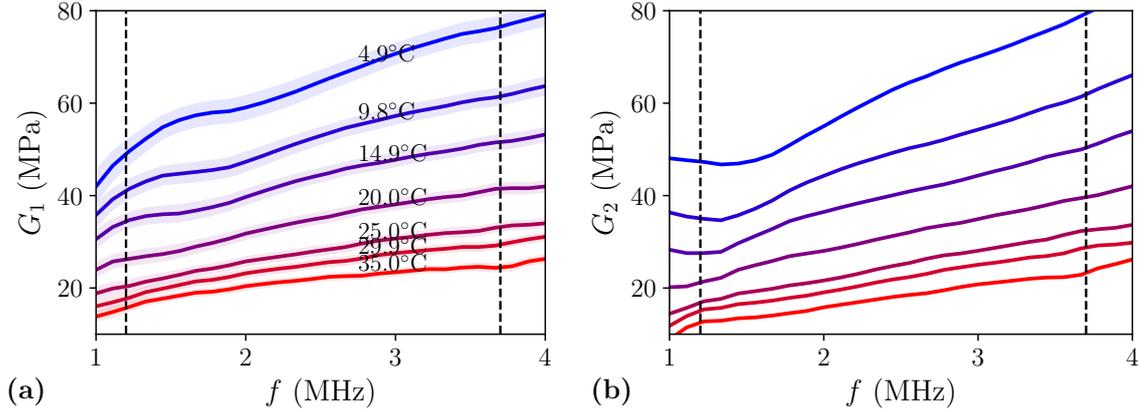


Figure 2.20 – Évolution de (a) la partie réelle G_1 et (b) la partie imaginaire G_2 du module de cisaillement du PU en fonction de la fréquence et de plusieurs températures.

2.4.3 Vérification d'un critère énergétique

La physique du comportement d'un solide visco-élastique linéaire isotrope et homogène induit nécessairement que la partie dissipative de son module d'incompressibilité $\text{Im}[K(\omega)]$ doit être strictement positive ou nulle. Partant de ce postulat, W. Madigosky et plus tard A. Norris ont établi un critère, que doivent satisfaire les valeurs de c_L , α_L , c_T et α_T [80,81] :

$$\frac{\gamma_L}{\gamma_T} - \frac{4c_T^2}{3c_L^2} I \geq 0, \quad \text{avec} \quad I = \left(\frac{1 + \gamma_L^2}{1 + \gamma_T^2} \right)^2, \quad (2.12)$$

où $\gamma_M = c_M \alpha_M / \omega$ pour $M = L$ ou T sont les coefficients d'absorptions adimensionnés.

La figure 2.21 montre l'évolution du membre de gauche de cette inégalité en fonction de la fréquence. Cette quantité est bien strictement positive ou nulle pour toutes les températures, ce qui vérifie ce critère. Par ailleurs, A. Norris met en défaut la justesse des résultats expérimentaux de J. Wu [30] qui réalise des mesures d'ondes longitudinales et transverses en immersion par conversion d'onde puisque celles-ci ne vérifient pas l'équation (2.12).

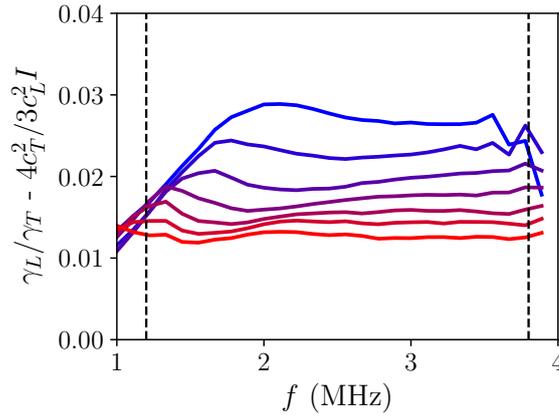


Figure 2.21 – Représentation du critère de Norris défini par l'équation (2.12) pour les mesures de c_L , α_L , c_T et α_T en fonction de la température. Voir la figure 2.20 pour le code couleur.

2.4.4 Module d'incompressibilité K

En supposant que les mesures de M et G ont été réalisées aux mêmes températures, il est possible d'accéder au module d'incompressibilité $K = M + 4/3G$ du PU. La figure 2.22 montre le comportement des parties réelle K_1 et imaginaire K_2 de ce module en fonction de la fréquence et de la température. Les variations du rapport K_2/K_1 sont très petites, ce qui traduit une faible dissipation visqueuse. Par ailleurs, $K_2 \geq 0, \forall T$, ce qui montre que le critère (2.12) est vérifié. Dans la littérature, les mesures ultrasonores indirectes et répétables de K sont inexistantes à ces fréquences.

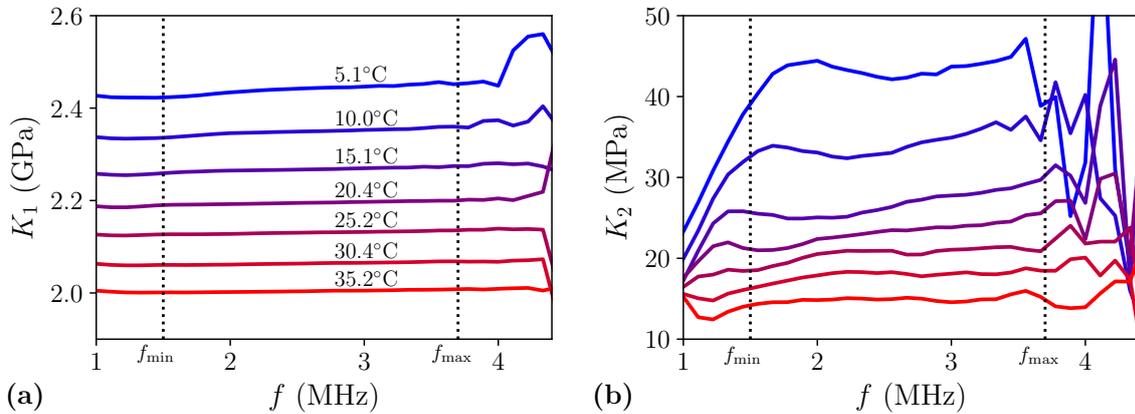


Figure 2.22 – Évolution de (a) la partie réelle K_1 et (b) la partie imaginaire K_2 du module d'incompressibilité du PU en fonction de la fréquence f et de plusieurs températures.

2.5 Étude de la cinétique de réticulation

Le processus de réticulation désigne la réaction chimique entre les deux liquides conduisant à la formation de liaisons entre macro-molécules, et ainsi à la solidification de l'ensemble. La cinétique de durcissement des polymères peut être suivie à l'aide d'ultrasons [82,83]. Pour les matériaux visco-élastiques "durs", tels que $K \simeq G$, les variations du module de cisailment

G sont accessibles *via* celles du module longitudinal M tels que $M \simeq 7/3G$. Par conséquent, leur durcissement peut être suivi à l'aide d'ondes longitudinales. Pour les matériaux souples tels que $G \ll K$, le durcissement a peu d'effet sur le module longitudinal M , de sorte que son suivi par ondes longitudinales n'est pas pertinent. Cette section montre comment le montage sandwich utilisé pour mesurer la vitesse transverse et l'atténuation des échantillons déjà réticulés peut également être utilisé pour suivre le processus de durcissement du PU, et plus précisément pour évaluer *a posteriori* l'évolution du module de cisaillement du PU au cours de ce processus.

2.5.1 Suivi du signal temporel au cours du durcissement

Pendant le processus de durcissement du PU qui se déroule à température contrôlée T_c , le signal transmis $S_{T_A}(t)$ est acquis de manière régulière. La figure 2.23 montre l'évolution de l'amplitude A^{\max} et du temps de vol t^{\max} du premier écho de l'onde transverse transmise dans le milieu multi-couches lors du processus de réticulation du PU. Ces quantités sont suivies sur plusieurs jours afin de déterminer le moment à partir duquel elles n'évoluent plus, indiquant l'état solide du PU.

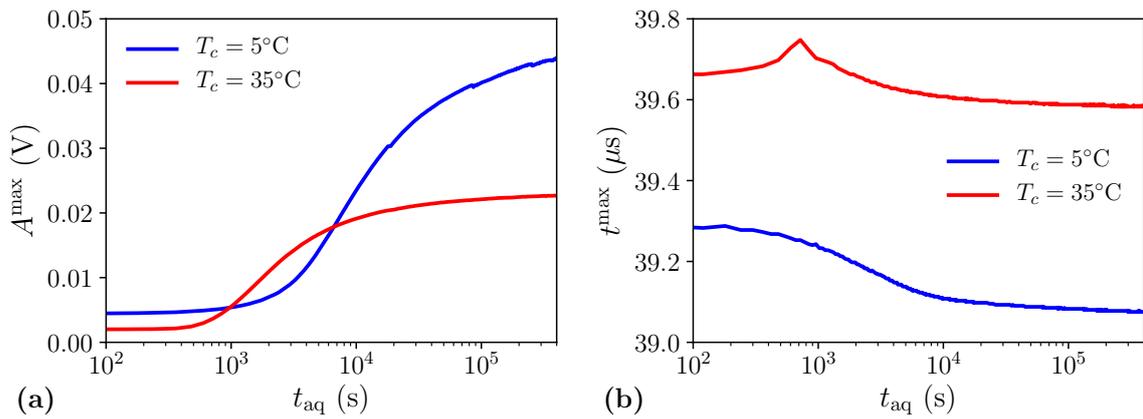


Figure 2.23 – Évolution de (a) l'amplitude et (b) du temps de vol du premier écho de l'onde transverse transmise dans le milieu multi-couches duralumin/PU/duralumin lors du processus de réticulation d'un échantillon de PU d'épaisseur $h = (110 \pm 5) \mu\text{m}$, pour deux températures T_c différentes.

Afin de définir clairement la fin de la solidification du PU, la quantité suivante est étudiée

$$Y(t_{\text{aq}}) = \frac{|A^{\max}(t_{\text{aq}}) - A_\infty|}{|A^{\max}(t_0) - A_\infty|}, \quad (2.13)$$

où A_∞ est la valeur asymptotique prise comme légèrement supérieure au maximum d'amplitude du dernier signal acquis, et $t_{\text{aq}} = t - t_0$ où t_0 représente l'instant où la température du système est stabilisée et à partir duquel les variations d'amplitudes et de temps d'arrivée sont dues uniquement à la solidification de l'échantillon.

Lorsque Y atteint une valeur proche de 1 %, on considère que le PU a atteint un état définitif de solidification. La figure 2.24 représente l'évolution de Y en fonction du temps d'acquisition en échelle log-log. Son comportement linéaire correspond à une loi de puissance $-2/3$ pour l'échantillon réticulé à $T_c = 35^\circ\text{C}$ et une loi de puissance $-1/2$ pour celui réticulé à $T_c = 5^\circ\text{C}$. Ces lois de puissance sont plus lentes qu'une loi de relaxation exponentielle.

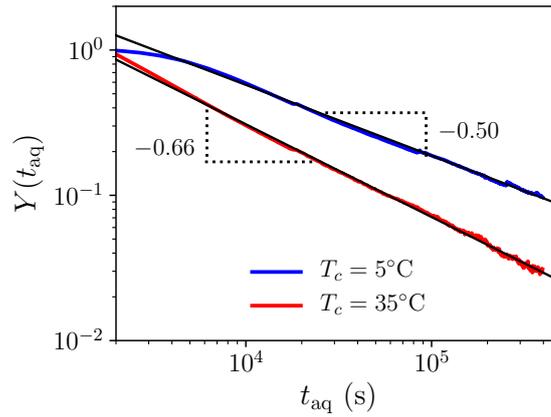


Figure 2.24 – Évolution temporelle de Y en échelle log-log pour deux températures de réticulation différentes, et extraction d'un comportement en loi de puissance aux temps longs.

2.5.2 Suivi du cisaillement au cours du durcissement

Compte tenu de l'équation (2.8), le module de cisaillement $G(\omega, t)$ du PU en cours de durcissement à l'instant t peut être déterminé par problème inverse à partir de la mesure du coefficient de transmission $\mathcal{T}^{\text{exp}}(\omega, t)$ mesuré au temps t défini comme :

$$\mathcal{T}^{\text{exp}}(\omega, t) = \mathcal{T}_{\text{final}}^{\text{exp}} \frac{\hat{S}(\omega, t)}{\hat{S}_{\text{final}}(\omega)} \quad (2.14)$$

où $\mathcal{T}_{\text{final}}^{\text{exp}}$ est le signal en régime permanent, mesuré après durcissement du PU, et \hat{S}_{final} le spectre du signal transmis d'un côté. Le terme $\hat{S}(\omega, t)$ est le spectre du signal transmis d'un seul côté et mesuré à l'instant t .

La figure 2.25a montre l'évolution de la dépendance en fréquence de $G(f, t)$ avec le temps de durcissement t d'un échantillon d'épaisseur $h = 110 \mu\text{m}$ réticulé à une température $T_c = 5^\circ\text{C}$. Un processus d'inversion similaire est réalisé pour extraire vitesse de phase $c_T(\omega, t)$ et atténuation $\alpha_T(\omega, t)$ du PU à chaque instant t . La partie réelle G_1 et imaginaire G_2 du PU augmentent dans le temps et un plateau apparaît aux basses fréquences pour G_1 , ce qui traduit le passage d'un comportement liquide à un comportement solide à basses fréquences.

L'évolution temporelle de G est tracée à la fréquence centrale f_c sur la figure 2.25b pour deux échantillons d'épaisseurs différentes et réticulés à la même température T_c . Les variations de $G_1(f_c, t)$ et $G_2(f_c, t)$ sont les mêmes pour les deux échantillons et présentent deux asymptotes, ainsi qu'un régime transitoire caractérisé par une évolution abrupte de l'amplitude après environ une heure de durcissement. Celle-ci peut être interprétée comme la transition du comportement liquide du matériau vers son comportement solide. De plus, ces résultats mettent en avant l'indépendance de la cinétique de réticulation vis-à-vis de l'épaisseur de l'échantillon puisque les écarts entre les mesures réalisées à des épaisseurs différentes sont faibles, compte tenu des incertitudes.

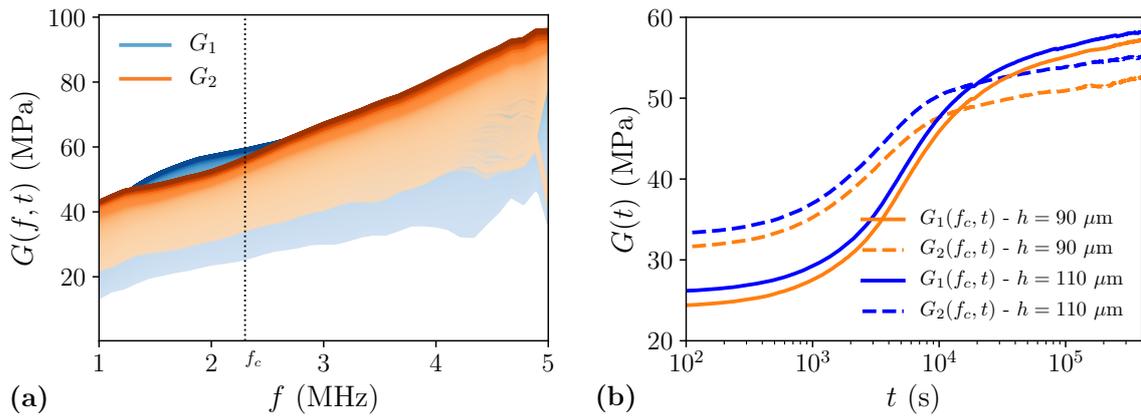


Figure 2.25 – (a) Évolution temporelle de G_1 et G_2 en fonction de la fréquence et au cours du processus de réticulation à 5°C . Plus la courbe est foncée, plus son temps d’acquisition est tardif. (b) Évolution temporelle de G_1 et G_2 à f_c au cours du temps à 5°C pour deux échantillons.

La technique de mesure présentée dans ce chapitre est suffisamment sensible et reproductible pour suivre un processus de réticulation et envisager des études paramétriques et quantitatives sur la cinétique de durcissement de polymères par mesures d’ondes transverses ultrasonores. Par exemple, il est possible de déterminer si la cinétique de durcissement du PU dépend ou non de la température. L’évolution temporelle du module de cisaillement G du PU est tracée sur la figure 2.26 pour deux températures de réticulation T_c différentes à la fréquence centrale f_c . Ces variations montrent que plus T_c est grand, plus l’inflexion des courbes $G_1(t)$ et $G_2(t)$ se produit tôt. Ceci est en accord avec l’observation empirique que le processus de durcissement du PU est activé par la température (le constructeur annonce un durcissement de 4 h à 80°C et 144 h à 20°C). De la même manière que pour le suivi du signal temporel, une valeur asymptotique $G_{1\infty}$ et $G_{2\infty}$ peut être identifiée afin de caractériser le comportement au temps longs de G pendant son durcissement en fonction de la température T_c . Ces quantités évoluent comme des lois de puissance du temps avec un exposant -0.70 , indiquant un régime transitoire vers le durcissement complet plus lent qu’une loi de relaxation exponentielle.

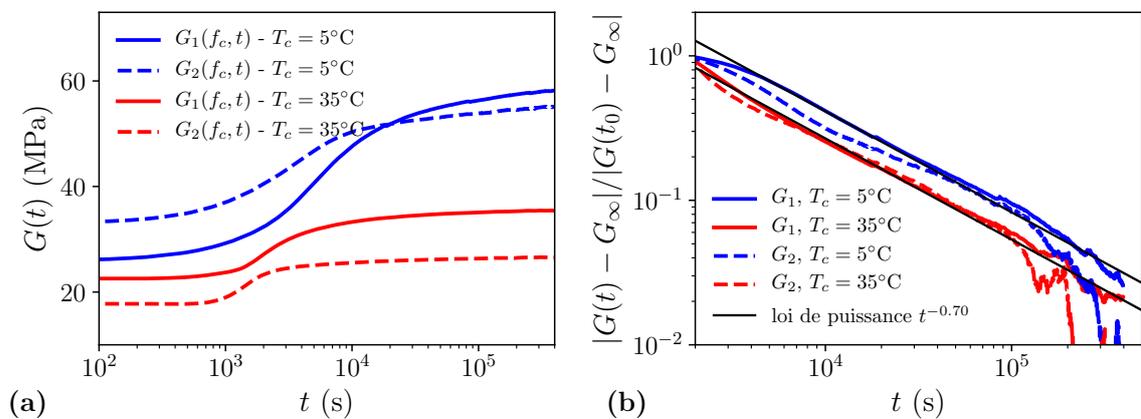


Figure 2.26 – (a) Évolution temporelle de $G_1(t)$ et $G_2(t)$ à la fréquence f_c pendant le processus de réticulation du PU à $T_c = 5^\circ\text{C}$ et $T_c = 35^\circ\text{C}$. (b) Évolution temporelle en échelle log-log de l’écart adimensionnel de G_1 (resp. G_2) par rapport à sa valeur finale $G_{1\infty}$ (resp. $G_{2\infty}$). ($t_0 = 10^3$ s).

Conclusion

Le dispositif de mesure présenté dans ce chapitre a permis de réaliser des mesures ultrasonores d'ondes transverses dans des échantillons fins de polyuréthane. Contrairement aux méthodes expérimentales déjà existantes pour mesurer les propriétés transverses de solides visco-élastiques, la technique sandwich permet d'accéder au comportement du module de cisaillement de matériaux très atténuants aux fréquences ultrasonores.

Les mesures de vitesse de phase et d'atténuation des ondes transverses ont été montrées comme répétables, dépendantes de la température, et consistantes vis-à-vis du critère thermodynamique sur l'ensemble des mesures longitudinales et transverses. Enfin, le module d'incompressibilité K du PU a été mesuré sur des fréquences allant de 1 MHz à 5 MHz, et des températures allant de 5 °C à 35 °C. La répétabilité et la sensibilité de la technique sandwich ont conduit à explorer qualitativement certains phénomènes physico-chimiques. Ainsi, la dépendance en température de la cinétique de polymérisation du PU a été montrée. Il est possible d'envisager des études quantitatives approfondies sur l'influence de l'épaisseur, de la température, et du poids moléculaire du matériau lors de son processus de réticulation aux fréquences ultrasonores.

Le chapitre suivant présente l'application du principe d'équivalence temps-température sur la mesure des modules $M(f, T)$, $G(f, T)$ et $K(f, T)$ du PU obtenues dans les deux premiers chapitres expérimentaux. Ce principe, basé sur des observations empiriques, conduit à réaliser des changements d'échelles appliqués aux fréquences et aux modules permettant de mesurer leur comportement sur une gamme de fréquence bien plus large que celle mesurée initialement. L'identification d'un modèle rhéologique adapté à la description de chacun de ces modules devient réalisable.

Chapitre 3

Rhéologie du polyuréthane

Sommaire

Introduction	66
3.1 Principe d'équivalence temps-température	68
3.1.1 Définition du principe de superposition	68
3.1.2 Changement d'échelle en fréquence	70
3.1.3 Changement d'échelle en amplitude	70
3.2 Courbes maîtresses du polyuréthane	71
3.2.1 Détermination de a_T	71
3.2.2 Détermination de b_T^M	73
3.2.3 Détermination de b_T^G	75
3.2.4 Détermination de b_T^K	77
3.2.5 Incertitudes et répétabilité de l'ETT	79
3.3 Rhéologie du polyuréthane	81
3.3.1 Visco-élasticité fractionnaire	81
3.3.2 Caractérisation de la rhéologie du polyuréthane	85
3.3.3 Comparaison des valeurs de M avec des mesures basses fréquences	87
3.3.4 Comparaison des valeurs de G avec des mesures de DMA	88
3.3.5 Influence de la température de réticulation	89
Conclusion	90

Introduction

Les polymères sont des matériaux constitués de longues chaînes de molécules appelées marco-molécules formées par l'assemblage d'un grand nombre de petites molécules chimiques appelés monomères. Ils constituent une classe de matériaux à part entière et sont répartis en plusieurs familles. Parmi celles-ci, on y retrouve notamment les fibres naturelles, les résines, les matières plastiques ou encore les caoutchoucs qui peuvent être d'origine naturelle ou synthétique. Dans la famille des caoutchoucs, là encore il est possible d'identifier des sous-groupes : les thermodurcissables, qui sont des matériaux ne possédant pas de point de fusion, et les thermoplastiques qui sont des caoutchoucs possédant au contraire une température de fusion T_m . Le polyuréthane est quant à lui qualifié d'élastomère, c'est à dire un polymère réticulé souple (ou flexible) appartenant à la famille des caoutchoucs synthétiques thermoplastiques (TPE, de l'anglais *thermoplastic-elastomer*).

La température est une grandeur physique qui influence la réponse mécanique d'un matériau. Les polymères sont particulièrement sensibles à celle-ci puisque leur résistance à une sollicitation quelconque varie considérablement avec elle. Le schéma sur la figure 3.1 représente l'évolution d'un module de relaxation d'un matériau polymère en fonction de la température et met en évidence cinq régions où le comportement du polymère change radicalement avec la température. Parmi celles-ci on retrouve notamment le régime vitreux, où le matériau possède un état rigide, c'est-à-dire où l'énergie thermique est faible, empêchant le mouvement des chaînes de macro-molécules. Au delà du régime vitreux, le matériau rentre dans un régime de transition caractérisé par une température T_g . L'agitation des chaînes de macro-molécules induit la dissipation d'une partie de l'énergie sous forme visqueuse, traduisant un retard de la déformation mécanique. Chez certains polymères, un régime d'écoulement se produit lorsque la température devient trop importante, ou respectivement si la fréquence d'excitation tend vers zéro.

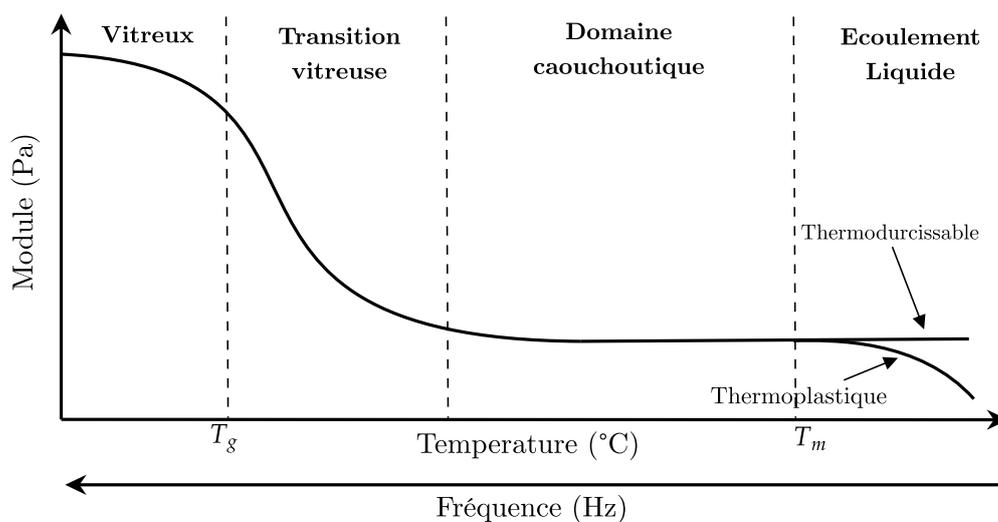


Figure 3.1 – Schématisation du comportement visco-élastique d'un élastomère décomposé en cinq régions en fonction de la température et de la fréquence.

Les élastomères sont considérablement utilisés dans l'industrie pour leur propriétés d'amortissement par dissipation visco-élastique. Par exemple, dans l'aéronautique ou l'automobile, où la réduction du bruit et de l'énergie vibratoire transmise dans l'habitacle des véhicules est une exigence majeure. Ces matériaux sont des candidats idéaux pour répondre à ces problématiques d'atténuation, et sont généralement placés sur la surface des structures vibrantes [39, 84]. Dans l'industrie navale, la plupart des bâtiments sous-marins sont réalisés dans des matériaux qui possèdent un contraste d'impédance acoustique important avec l'eau, impliquant une réflexion conséquente des ondes, et un rayonnement important des vibrations de la structure. Les élastomères de polyuréthane sont également largement utilisés pour revêtir les systèmes de détection SONAR ou encore de certains transducteurs en immersion, car ils possèdent une impédance similaire à celle de l'eau favorisant la transmission des ondes [85]. Par ailleurs, la forte dissipation des ondes transverses dans cet élastomère fait de lui un bon candidat pour amortir le bruit généré des structures sous-marines. Dans un contexte de furtivité ou de discrétion des sous-marins, la caractérisation et la modélisation large-bande des propriétés mécaniques du PU est essentielle afin de concevoir des revêtements performants pour les navires [45, 86].

Afin de caractériser le comportement dynamique de matériaux visco-élastiques, de nombreux auteurs utilisent des méthodes d'analyse mécanique dynamique (DMA, de l'anglais *dynamic mechanical analysis*), dans la gamme de fréquences 0,01 – 100 Hz [57]. Ces mesures sont généralement réalisées à différentes températures afin d'appliquer le principe d'équivalence temps-température (ETT) et d'évaluer le comportement des modules de visco-élasticité du matériau sur des fréquences bien plus hautes (parfois jusqu'au GHz) [87]. La littérature est riche concernant la caractérisation du PU par des méthodes de DMA combinées à ce principe, aussi bien sur son module d'Young [65, 86] que sur son module de cisaillement [45, 88]. Néanmoins, lorsque les méthodes acoustiques ultrasonores sont confrontées qualitativement à la reconstruction des courbes maîtresses entre 10 kHz et 100 MHz, un désaccord conséquent avec les mesures de DMA est identifié, notamment sur la partie dissipative des modules mesurés [71, 89–92]. La définition, l'application et les limites de cet outil sont détaillées dans la suite sur les mesures de M , G et K du PU.

La littérature est limitée concernant la mesure directe du module d'incompressibilité complexe K de matériaux dissipatifs. Ce sont principalement des dispositifs inspirés de celui développé par McKinney *et al* [93] qui sont utilisés où l'échantillon est placé dans une cavité en acier entre deux transducteurs piézoélectriques permettant de solliciter l'échantillon par une perturbation acoustique et réaliser des compressions volumiques *via* différents procédés. De cette façon, la caractérisation de K en utilisant ce type de dispositif est difficile à réaliser pour des fréquences au delà de 5 kHz, en particulier pour les milieux mous [94–96]. L'alternative principale est de combiner des mesures ultrasonores de M avec des mesures basses fréquences de G pour évaluer indirectement le spectre de $K = M - 4/3G$ sur une gamme de fréquences plus élevées. [97]. Par exemple, Mott *et al.* [45] réalisent des mesures de DMA dans la gamme 0,01 – 100 Hz et des mesures acoustiques en immersion dans la gamme 0,01 – 0,1 MHz, pour caractériser respectivement le module de cisaillement et longitudinal d'un PU de type *DeSoto* PR1547. L'application de l'équivalence temps-température leur permet d'évaluer K sur une plage de fréquences 0,01 – 10 MHz. Cependant, les procédures qu'ils emploient pour mesurer l'atténuation des ondes longitudinales d'une part, et K d'autre part, soulèvent de nombreuses questions. Par ailleurs, Qiao *et al* [98] combinent des mesures ultrasonores d'ondes longitudi-

nales (transmission au contact direct) et transverses (multi-couche émetteur - ligne à retard - échantillon - récepteur) pour en déduire K à différentes températures d'un échantillon de PU dont le type n'est pas mentionné. Cependant, les mesures sont réalisées à une fréquence unique de 1,0 MHz et les auteurs n'appliquent pas le ETT pour étendre le spectre de celles-ci.

C'est pourquoi nous proposons ici d'appliquer le principe d'équivalence temps-température aux mesures acoustiques de M , G et $K = M - 4/3G$ présentées dans les deux premiers chapitres. Comme nous le verrons, la reconstruction du comportement large-bande de ces différents modules conduit à identifier un modèle rhéologique décrivant précisément leur dynamique sur plus de deux décades en fréquences à une température de référence. La modélisation du comportement linéaire d'un matériau visco-élastique homogène isotrope est aujourd'hui bien maîtrisée [99]. Cependant, des modèles rhéologiques plus complexes existent afin de mieux décrire le régime transitoire, c'est à dire la relaxation d'un matériau particulièrement dissipatif [100]. Les modèles rhéologiques à dérivées fractionnaires semblent adaptés pour décrire précisément le comportement de polymères sur ces gammes de fréquences [101, 102].

3.1 Principe d'équivalence temps-température

Pour des matériaux qualifiés de "thermo-rhéologiquement" simples [103], c'est à dire des matériaux dont tous les temps de relaxation sont affectés de la même manière par la température, il est observé empiriquement qu'un essai mécanique de courte durée à haute température entraîne le même comportement qu'une sollicitation de plus longue durée mais à une température plus basse. C'est ce phénomène qui est appelé usuellement le principe d'équivalence temps-température ou encore fréquence-température, et qui tire son origine des travaux de Leaderman [104] en 1943 sur des mesures statiques de fluage. De manière générale, ce principe est un outil efficace pour décrire le comportement visco-élastique de polymères sur une gamme de temps, de température ou de fréquences bien plus large que celle explorée pour la mesure initiale, à partir de changements d'échelle sur les données expérimentales. Cet outil est généralement applicable lorsque les mesures sont réalisées dans le régime de transition vitreuse du polymère.

3.1.1 Définition du principe de superposition

Ce principe donne une équivalence entre les propriétés mécaniques mesurées à une fréquence f et une température T , et les propriétés mécaniques à la fréquence réduite f_r à une température de référence T_{ref} . Cette dualité entre fréquence et température est quantifiée par la loi de correspondance suivante [87, 105] :

$$\begin{cases} f_r = a_T(T, T_{\text{ref}})f, \\ C(f_r, T_{\text{ref}}) = b_T^C(T, T_{\text{ref}})C(f, T), \end{cases} \quad (3.1)$$

où $a(T, T_{\text{ref}})$ sont les changements d'échelle horizontaux appliqués aux fréquences, et $b_T^C(T, T_{\text{ref}})$ les changements d'échelle verticaux appliqués au module visco-élastique C . Dans ce qui suit, C désigne les modules de relaxation M , G ou K .

Le protocole pour construire la courbe maîtresse d'un module de relaxation quelconque C est le suivant :

1. Après avoir mesuré le comportement fréquentiel du module C à plusieurs température sur la bande passante du transducteur, une référence est choisie à la température T_{ref} (figure 3.2a)
2. Un changement d'échelle $a_T(T, T_{\text{ref}})$ est appliqué aux fréquences de sorte à rendre continue les variations de C_2/C_1 (figure 3.2b). En effet, l'équation (3.1) montre que ce rapport est indépendant de b_T
3. Les variations de C_1 en fonction de la fréquence mise à l'échelle $a_T f$, tracées sur la figure 3.2c, montrent qu'il est nécessaire de considérer un changement d'échelle vertical
4. Un changement d'échelle vertical $b_T^C(T, T_{\text{ref}})$ est appliqué au module visco-élastique C_1 de sorte à rendre continue ses variations en fonction de $a_T(T, T_{\text{ref}})f$. Cette courbe est représentée sur la figure 3.2d et est appelée courbe maîtresse
5. Le même changement d'échelle $b_T^C(T, T_{\text{ref}})$ est appliqué aux variations de C_2 en fonction de $a_T(T, T_{\text{ref}})f$

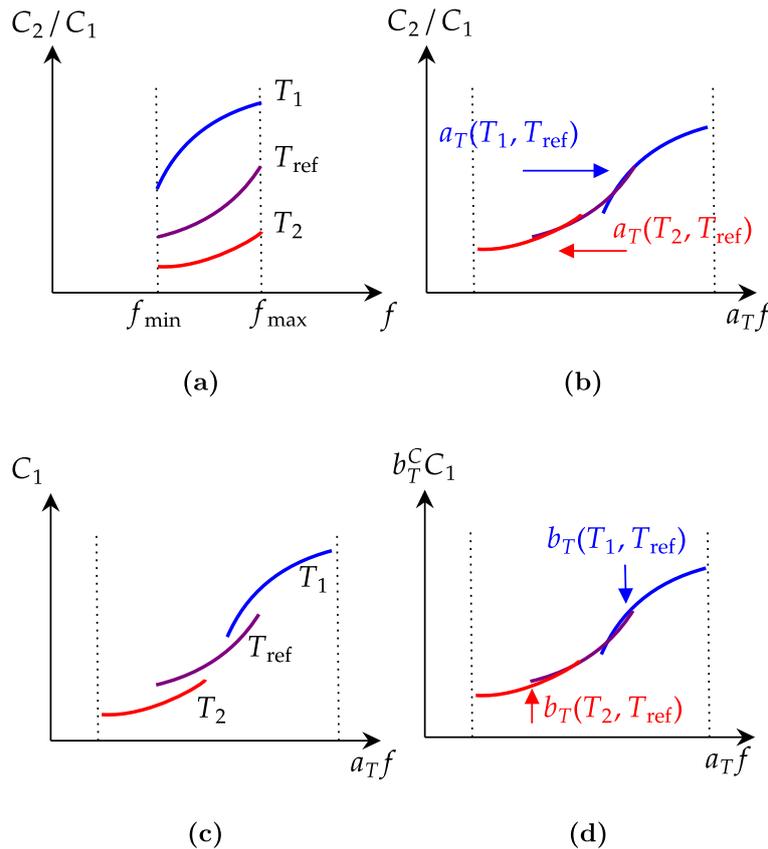


Figure 3.2 – Construction de la courbe maîtresse d'un module de relaxation C à une température de référence T_{ref} . (a) Allure des isothermes dans le cas où $T_1 < T_{\text{ref}} < T_2$. (b) Les changements d'échelle en fréquence $a_T(T, T_{\text{ref}})$ sont déterminés à partir des variations de C_2/C_1 . (c) Les variations de C_1 en fonction de la fréquence mise à l'échelle $a_T(T, T_{\text{ref}})f$ montrent qu'il est nécessaire de considérer des changements d'échelle verticaux. (d) Les changements d'échelle verticaux $b_T^C(T, T_{\text{ref}})$ sont déterminés à partir des variations de C_1 en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, T_{\text{ref}})f$.

3.1.2 Changement d'échelle en fréquence

Ce principe de superposition est appliqué à des mesures dynamiques en cisaillement par Ferry [106] et a conduit à l'équation WLF établie par Williams, Landel et Ferry [107] :

$$\log_{10} a_T(T, T_{\text{ref}}) = -\frac{c_1(T - T_{\text{ref}})}{c_2 + T - T_{\text{ref}}} \quad (3.2)$$

où la température de référence $T_{\text{ref}} = T_g$ est la température de transition vitreuse du polymère étudié.

Dans ces travaux, les constantes $c_1 = 17,44$ et $c_2 = 51,6$ K sont admises comme universelles car elles semblent décrire convenablement ces changements d'échelle en fréquence pour un grand nombre de solutions de polymères. Cependant, des travaux ultérieurs montrent que ces deux constantes sont intrinsèques aux matériaux étudiés et par conséquent non-universelles.

3.1.3 Changement d'échelle en amplitude

Ferry [87] utilise la théorie moléculaire formulée par Rouse [108] ainsi que celle du volume libre énoncée par Doolittle [109] pour lier temps de relaxation et viscosité. Par ailleurs, la théorie de Bueche [110], reprenant celle de Rouse pour des solides visco-élastiques, et dont la modélisation du spectre est étendu aux hautes fréquences par Doi et Edwards [111], suggère que l'amplitude du module de cisaillement complexe d'un polymère est proportionnelle au produit de la masse volumique et de la température. Celui-ci est normalisé par rapport à un état de référence connu et s'exprime comme :

$$b_T(T, T_{\text{ref}}) = \frac{\rho(T_{\text{ref}})}{\rho(T)} \frac{T_{\text{ref}}}{T}, \quad (3.3)$$

où $\rho(T)$ est la masse volumique du matériau à la température T qui vérifie

$$\rho(T) = \rho(T_{\text{ref}})[1 - 3\kappa(T - T_{\text{ref}})]. \quad (3.4)$$

Pour la plupart des polymères, le coefficient de dilatation linéaire κ est de l'ordre de 10^{-4} K⁻¹, ce qui implique des variations de masse volumique assez faibles avec la température. C'est pourquoi de nombreux auteurs négligent ces variations et considèrent uniquement les variations de température dans l'expression du changement d'échelle vertical, c'est-à-dire :

$$b_T(T, T_{\text{ref}}) = \frac{T_{\text{ref}}}{T}. \quad (3.5)$$

La majorité va jusqu'à négliger totalement ces variations et suppose que

$$b_T(T, T_{\text{ref}}) = 1. \quad (3.6)$$

C'est une des raisons pour laquelle très peu d'études existent sur ce changement d'échelle vertical. Dans ses travaux, Colby [112] discute tout de même rapidement de la valeur de b_T pour du polybutadiène et montre que la loi de Bueche-Rouse (3.3) semble adaptée pour des températures proches de la température vitreuse T_g du matériau étudié mais n'est plus valide au delà d'une température seuil. Par ailleurs, dans les travaux de Mott *et al.* [45] discutés précédemment, les auteurs écrivent brièvement que les changements d'échelle verticaux b_T^G sont égaux à l'unité quelque soit la température, et que b_T^K augmente linéairement avec la

température. Il est intéressant de constater qu'il existe bien plusieurs descriptions des coefficients b_T et qu'ils dépendent du module de relaxation C étudié.

Dans la plupart des cas, la reconstruction des courbes maîtresse est réalisée en traduisant les données manuellement [87] ou suivant une procédure automatisée [113]. La première méthode est subjective et manque de précision tandis que la deuxième est plus fiable. Cependant, ces deux techniques ne proposent pas de justification physique aux opérations de changements d'échelle et impliquent une forte propagation des incertitudes de mesure, ce qui peut poser des problèmes de reproductibilité. Pour palier à cette difficulté, des travaux plus récents consistent à déterminer ces deux facteurs à partir de modèles rhéologiques [114], donnant un sens plus physique à l'équivalence temps-température puisque les conditions de causalité sont vérifiées [115]. Dans leur travaux, Rouleau *et al* [116] proposent un processus de minimisation à partir des relations de Kramers-Kronig qui traduisent la causalité de la fonction complexe $G(\omega) = G_1(\omega) + iG_2(\omega)$. Cette méthode requiert moins d'hypothèses que les précédentes car elle ne nécessite pas une modélisation de la fonction de relaxation en amont du processus.

3.2 Courbes maîtresses du polyuréthane

Dans cette section le principe d'équivalence est appliqué dans un premier temps aux mesures de M , puisque celles-ci sont les plus précises et les moins bruitées. La température de référence choisie pour l'ensemble des résultats présentés dans cette section est $T_{\text{ref}} = 5^\circ\text{C}$. De cette façon, le comportement des modules de relaxation du PU peut être évalué à bien plus basses fréquences ultrasonores, ce qui est avantageux en vue des applications sous-marines. Les changements d'échelle a_T sont déterminés suivant une procédure automatisée. Concernant les changements d'échelle b_T^C , plusieurs descriptions sont discutées et proposées.

3.2.1 Détermination de a_T

Les variations de M_2/M_1 en fonction de la fréquence sont représentées sur la figure 3.3a pour toutes les températures étudiées et numérotées par ordre croissant T_i , $i = 1$ à 8. D'après l'équation (3.1), il vient

$$\frac{M_2}{M_1}(f, T) = \frac{M_2}{M_1}(a_T(T, T_{\text{ref}}), f, T_{\text{ref}}) \quad (3.7)$$

Ainsi, pour chaque température T_i , la valeur $a_T(T_i, T_{\text{ref}})$ des changements d'échelle a_T sont déterminés, de sorte à garantir que $M_2/M_1(f, T_i)$ coïncide avec $M_2/M_1(a_T(T_i, T_{\text{ref}})f, T_{\text{ref}})$ dans leur gamme de fréquences commune comprises entre les limites f_{min} et f_{max} déterminées dans le chapitre 1. En pratique, la valeur $a_T(T_{i+1}, T_{\text{ref}})$ est déterminée par itération telle que le point d'abscisse $a_T(T_{i+1}, T_{\text{ref}})f_{\text{max}}$ et d'ordonnée $M_2/M_1(f_{\text{max}}, T_{i+1})$ coïncide avec le point d'abscisse $a_T(T_i, T_{\text{ref}})f_c$ et d'ordonnée $M_2/M_1(f_c, T_i)$ avec $a_T(T_1, T_{\text{ref}}) = 1$ puisque $T_1 = T_{\text{ref}}$. Le comportement continu de M_2/M_1 en fonction de $a_T f$ qui en résulte est illustré à la figure 3.3b.

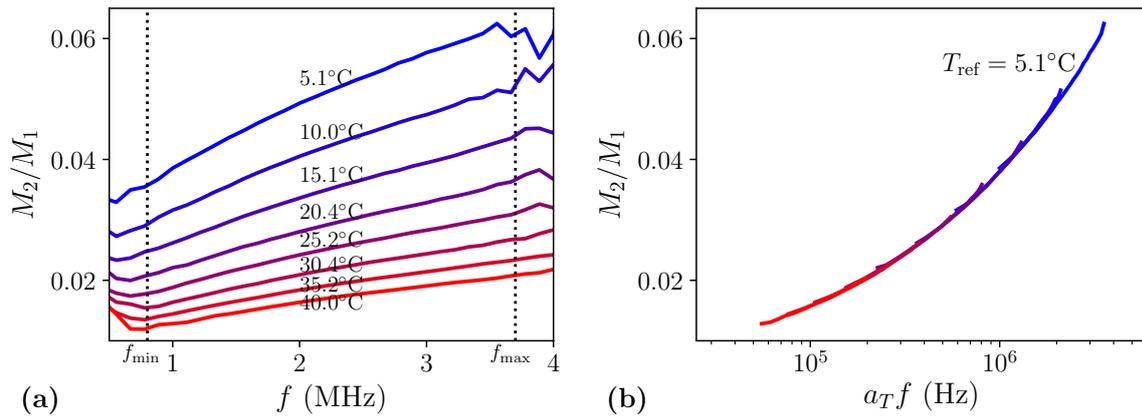


Figure 3.3 – (a) Variations du rapport M_2/M_1 en fonction de la fréquence f pour toutes les températures $T_{i=1-8}$. (b) Variations du rapport M_2/M_1 en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, 5^\circ\text{C})f$.

Sur la figure 3.4a, les valeurs de c_1 et c_2 sont déterminées par le meilleur ajustement de $a_T(T, T_{\text{ref}})$ avec l'équation (3.2) qui se met sous la forme

$$T - T_{\text{ref}} = -c_2 - c_1 \frac{T - T_{\text{ref}}}{\log_{10}(a_T)}, \quad (3.8)$$

de sorte que la variation modélisée de $T - T_{\text{ref}}$ en fonction de $(T - T_{\text{ref}}) / \log_{10}(a_T)$ est linéaire avec une pente $-c_1$ et une ordonnée $-c_2$. Le meilleur ajustement du comportement de a_T par l'équation (3.2) est montré sur la figure 3.4b.

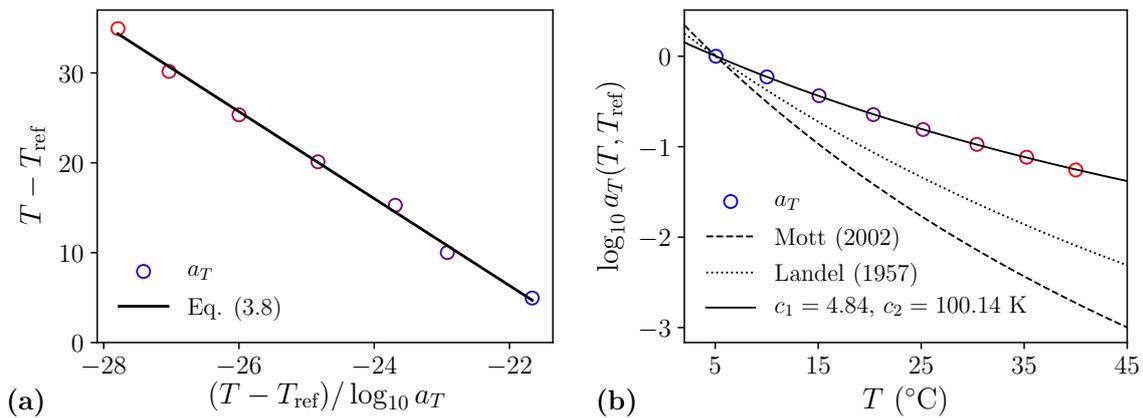


Figure 3.4 – (a) Extraction de c_1 et c_2 par un fit linéaire en utilisant la relation (3.8). (b) Accord des mesures expérimentales de $\log_{10} a_T(T, T_{\text{ref}})$ avec l'équation (3.2) et comparaison avec la littérature pour d'autres type de PU (pointillés).

Sur cette même figure sont comparées à d'autres déterminations de c_1 et c_2 rapportées dans la littérature pour des PU différents, à condition que les différences de température de référence soient prises en compte de la manière suivante [86]

$$\begin{cases} c_1 = \frac{c_1^{\text{litt}} c_2^{\text{litt}}}{c_2^{\text{litt}} + T_{\text{ref}} - T_{\text{ref}}^{\text{litt}}} \\ c_2 = c_2^{\text{litt}} + T_{\text{ref}} - T_{\text{ref}}^{\text{litt}} \end{cases} \quad (3.9)$$

Ces différentes valeurs de c_1^{litt} et c_2^{litt} mesurées à T_{ref} sont de même ordre de grandeur, ce qui est en accord avec l'observation générale que $c_1 \sim 10$ et $c_2 \sim 100$ K pour la famille des PU [87]. Les valeurs correspondantes de c_1 et c_2 sont données dans le tableau 3.1.

	depuis M	depuis K	Capps (1983) [86]	Mott (2002) [45]	Landel (1957) [88]
Type de PU	UR-3440	UR-3440	PR1574	PR1547	Vulkollan
T_{ref} (°C)	5.1	5.1	5.1	5.1	5.1
c_1	4.8	6.3	7.5	9.8	8.5
c_2 (K)	100.1	89.7	88.0	90.6	106.2

Tableau 3.1 – Valeurs de c_1 et c_2 à $T_{\text{ref}} = 5$ °C. Comparaison à d'autres déterminations expérimentales rapportées dans la littérature pour des PU différents, calculées pour T_{ref} .

Une fois les changements d'échelle a_T sont déterminés, il est intéressant de s'intéresser aux quantités $M_1(a_T(T, T_{\text{ref}}), f, T)$ et $M_2(a_T(T, T_{\text{ref}}), f, T)$ tracées sur la figure 3.5. Le comportement de M_1 et M_2 en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, T_{\text{ref}}) f$ montre qu'il est nécessaire de considérer des changements d'échelle verticaux sur M pour tous les isothermes T_i puisque les courbes maîtresses ne sont pas continues sinon.

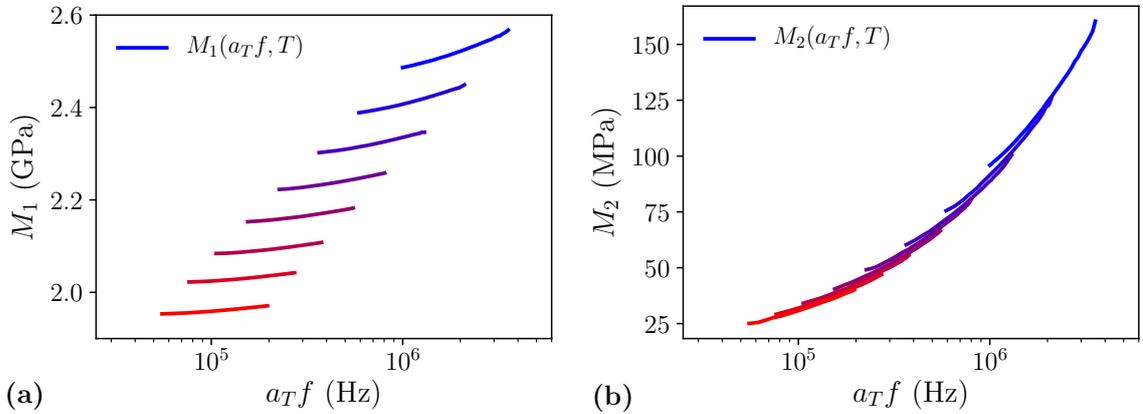


Figure 3.5 – Comportement de (a) la partie réelle et (b) la partie imaginaire du module longitudinal M en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, T_{\text{ref}}) f$ pour chaque température T_i .

3.2.2 Détermination de b_T^M

D'après l'expression (3.1), les changements d'échelle b_T^M satisfont la relation :

$$M(a_T(T, T_{\text{ref}}) f, T_{\text{ref}}) = b_T^M(T, T_{\text{ref}}) M(f, T) \quad (3.10)$$

Ce coefficient est calculé de manière itérative. La valeur $b_T^M(T_{i+1}, T_{\text{ref}})$ est déterminée telle que le point d'abscisse $a_T(T_{i+1}, T_{\text{ref}}) f_{\text{max}}$ et d'ordonnée $b_T^M(T_{i+1}, T_{\text{ref}}) M_1(f_{\text{max}}, T_{i+1})$ coïncide

avec le point d'abscisse $a_T(T_i, T_{\text{ref}}) f_c$ et d'ordonnée $b_T^M(T_i, T_{\text{ref}}) M_1(f_c, T_i)$ avec $b_T^M(T_1, T_{\text{ref}}) = 1$ puisque $T_1 = T_{\text{ref}}$. Le comportement continu résultant de $b_T^M M_1$ en fonction de $a_T f$ est représenté sur la figure 3.6a. Comme le montre la figure 3.6b, $b_T^M M_2$ varie également de façon continue avec $a_T f$, ce qui confirme la validité de l'équation (3.10) concernant M .

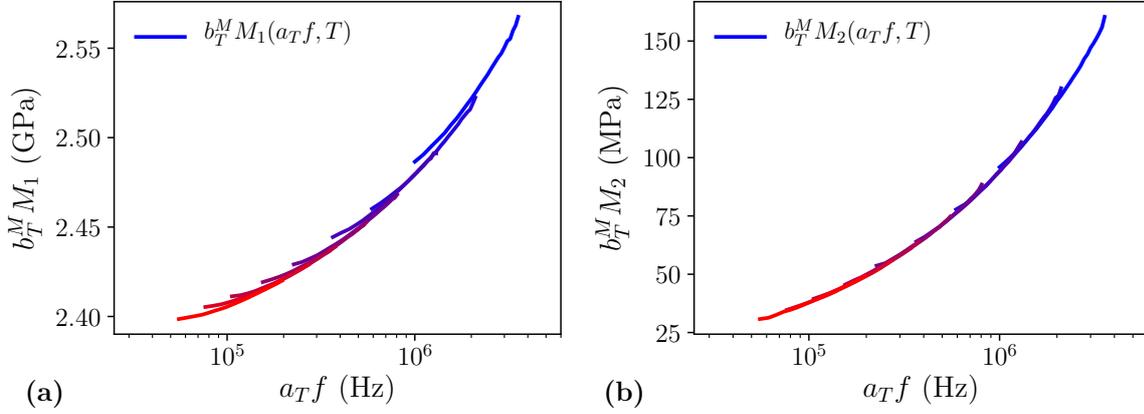


Figure 3.6 – (a) Reconstruction des courbes maîtresses $b_T^M(T, T_{\text{ref}}) M_1$ et (b) $b_T^M(T, T_{\text{ref}}) M_2$ en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, T_{\text{ref}}) f$.

Les facteurs de changement d'échelle $b_T^M(T, T_{\text{ref}})$, représentées sur la figure 3.7, augmente linéairement avec $T - T_{\text{ref}}$ de avec une pente $6,50 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$, alors que l'équation (3.3) prédit un comportement décroissant. En effet, la modélisation de b_T par l'équation (3.3) provient uniquement de la description du comportement du module de cisaillement G d'un matériau visco-élastique, qui est par nature différent du comportement du module longitudinal M présenté ici.

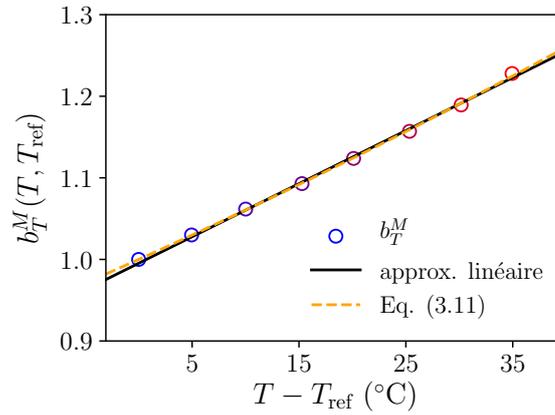


Figure 3.7 – Variations de b_T^M en fonction de T et comparaison entre différentes modélisations.

Dans les travaux de Ferry *et al.* [117] portant sur la caractérisation large bande des propriétés mécaniques et diélectriques d'un polychlorure de vinyle (PVC), les auteurs utilisent une autre expression des coefficients b_T qui sont appliqués aux mesures en température de la fonction de relaxation diélectrique ϵ du matériau :

$$b_T^\epsilon(T, T_{\text{ref}}) = \frac{\rho(T_{\text{ref}})}{\rho(T)} \frac{T}{T_{\text{ref}}} \quad (3.11)$$

Le terme T_{ref}/T dont dépend l'expression de b_T (c.f. équation (3.3)) est donc ici inversé, ce qui correspond aux variations de $b_T^M(T)$. La justification physique sur l'orientation et la polarisation de l'organisation moléculaire proposée par les auteurs n'est pas facile à comprendre, mais il est intéressant d'utiliser cette nouvelle expression de b_T pour modéliser les mesures. Le meilleur ajustement entre cette relation et les mesures de b_T^M est tracé en tirets sur la figure 3.7, pour $\kappa = 0,77 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$, ce qui est presque trois fois supérieur à la valeur donnée par le constructeur, ce qui montre que la loi 3.11 n'est pas valide. Finalement, l'approximation linéaire de b_T^M est retenue ici.

3.2.3 Détermination de b_T^G

Les variations en fonction de la fréquence du rapport entre le module de perte et le module de stockage G_2/G_1 sont présentées sur la figure 3.8a pour plusieurs températures T_i^G , $i = 1$ à 7. Ce rapport étant proche de l'unité, cela met en évidence la forte atténuation de ce PU et valorise les performances de la technique sandwich. De plus, la figure 3.8b montre que les mesures du rapport $G_2/G_1(a_T f, T)$ sont trop bruitées pour permettre de déterminer $a_T(T)$ avec la même procédure.

Comme vu précédemment, les changements d'échelles horizontaux dépendent de deux constantes intrinsèques au matériau étudié et par conséquent il doit s'appliquer à n'importe quel module de relaxation. Par exemple, dans les travaux de Mott *et al.*, les auteurs déterminent a_T à partir de la mesure du module de cisaillement et appliquent également ces coefficients au module d'incompressibilité de leur matériau. C'est pourquoi les coefficients $a_T(T, T_{\text{ref}})$ déterminés dans la partie précédente seront appliqués directement aux mesures de G . En pratique, cela suggère que les mêmes mécanismes moléculaires gouvernent les différents modules de relaxations au dessus de la transition vitreuse T_g du matériau [105].

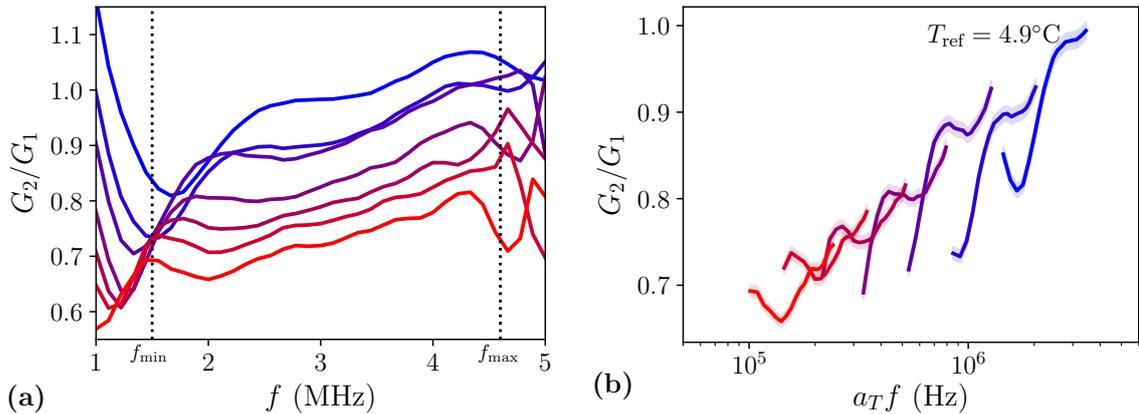


Figure 3.8 – (a) Variations du rapport G_2/G_1 en fonction de f pour toutes les températures $T_{i,i=1-7}$. (b) Variations du rapport G_2/G_1 en fonction de $a_T(T, T_{\text{ref}})f$, où $T_{\text{ref}} = 4,9^\circ\text{C}$.

Les variations de la partie réelle G_1 et imaginaire G_2 du module de cisaillement en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, T_{\text{ref}})f$ sont tracées sur la figure 3.9a. Ces résultats permettent de mieux comprendre pourquoi la communauté n'est pas en accord sur la prise en compte ou non d'un changement d'échelle vertical b_T puisque les courbes maîtresses semblent déjà continues. Cependant, il reste intéressant de calculer des changements d'échelle verticaux b_T^G

qui vérifient :

$$G(a_T(T, T_{\text{ref}}) f, T_{\text{ref}}) = b_T^G(T, T_{\text{ref}}) G(f, T). \quad (3.12)$$

De cette façon, la procédure automatisée et détaillée dans le point précédent pour calculer b_T^M peut être utilisée. Les variations de $b_T^G(T, T_{\text{ref}})G(a_T(T, T_{\text{ref}}), f, T)$ sont tracées sur la figure 3.9b et montrent que le raccordement des parties réelle et imaginaire formant la courbe maîtresse du module de cisaillement est de meilleure qualité.

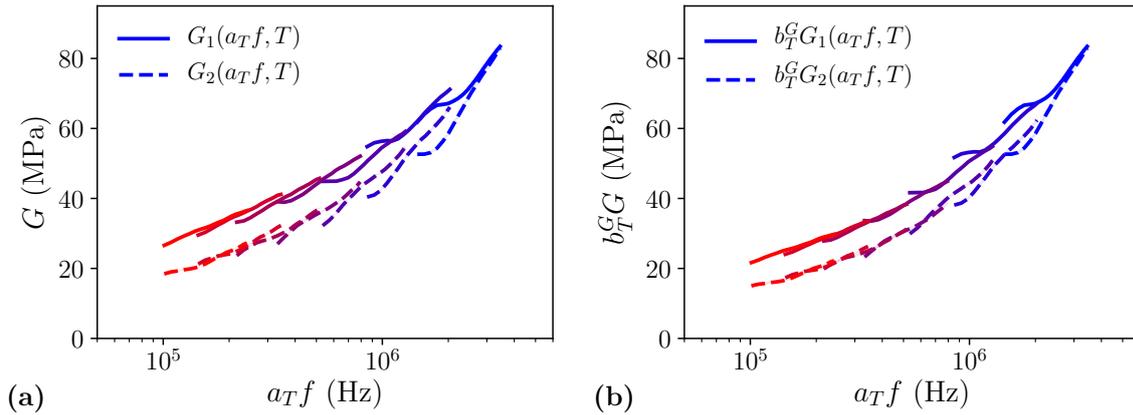


Figure 3.9 – Variations des parties réelle et imaginaire (a) du module de cisaillement, G et (b) du module de cisaillement réduit $b_T^G G$ en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, T_{\text{ref}})f$.

La figure 3.10 présente la variation de b_T^G en fonction de $T - T_{\text{ref}}$. On constate qu'elle est linéaire et que le meilleur ajustement est donné par la pente $-6,27 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$. Par ailleurs, on peut identifier un comportement prédit par la loi empirique (3.3) pour $\kappa = 1,08 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$, mais cette valeur s'éloigne fortement de la donnée constructeur $\kappa = 2,60 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ puisque celle-ci est six fois supérieure. De la même manière que pour b_T^M , nous retenons l'approximation linéaire pour modéliser b_T^G .

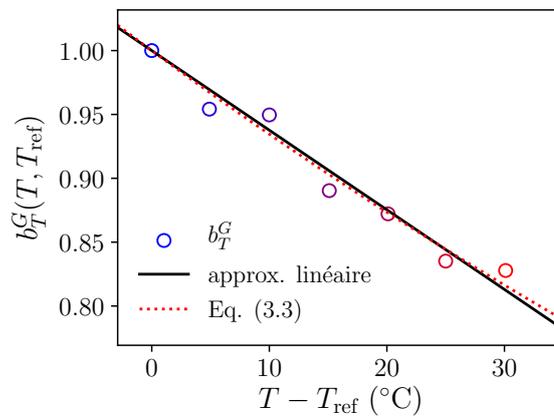


Figure 3.10 – Variations de $b_T^G(T, T_{\text{ref}})$ en fonction de T et comparaison entre une loi empirique linéaire et la loi empirique de Bueche-Rouse (3.3).

3.2.4 Détermination de b_T^K

Puisque $T_i^M \simeq T_i^G$, $i = 1$ à 7 , le module apparent K peut être évalué à partir des mesures brutes de M et G en supposant $K(T_i^M, f) = M(T_i^M, f) - 4/3G(T_i^G, f)$, $i = 1$ à 7 . Le rapport K_2/K_1 est représenté sur la figure 3.11a. L'intervalle fréquentiel choisi est encadré par les bornes inférieure et supérieure calculées dans les chapitres précédents. Sur la figure 3.11b, bien que K_2/K_1 varie de manière approximativement continue avec les changements d'échelle horizontaux $a_T f$, la recherche d'autres coefficients permet d'obtenir un comportement de K_2/K_1 plus lisse pour une nouvelle détermination de a_T notée a'_T , qui est calculé suivant la procédure détaillée dans la sous-section 3.2.1 en considérant $f = 1,5$ MHz au lieu de f_c .

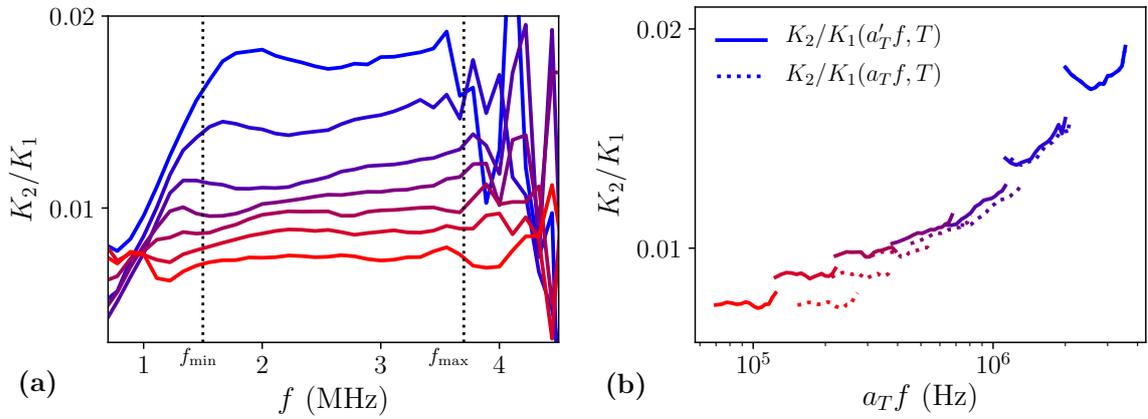


Figure 3.11 – (a) Variations du rapport G_2/G_1 en fonction de la fréquence f pour toutes les températures $T_{i=1-7}$. (b) Variations du rapport G_2/G_1 en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, 5^\circ\text{C})f$.

Les variations de a'_T en fonction de la température sont tracées sur la figure 3.12. L'écart entre a_T et a'_T peut être considéré comme une évaluation de l'incertitude de la détermination de a_T . Le meilleur ajustement de a'_T par l'équation WLF (3.2) est également montré et les valeurs correspondantes du meilleur ajustement de c_1 et c_2 sont données dans le tableau 3.1.

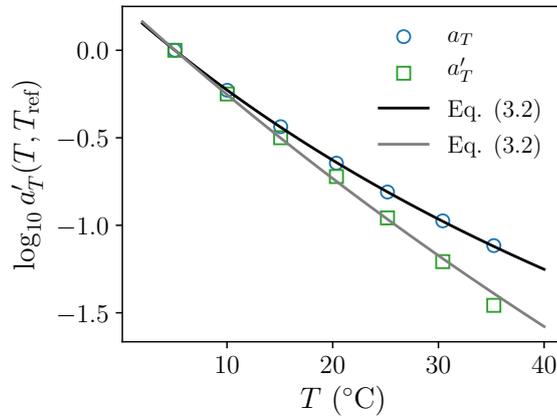


Figure 3.12 – Comparaison entre a_T déterminé à partir de M_2/M_1 et a'_T à partir de K_2/K_1 . Les meilleurs ajustements avec la loi empirique (3.2) sont tracés en traits pleins.

Ensuite, les changements d'échelle b_T^K sont déterminés à partir de la mesure de K_1 en suivant la procédure détaillée dans la sous-section 3.2.2 pour les deux fréquences réduites, et satisfait :

$$K(a_T(T, T_{\text{ref}}) f, T_{\text{ref}}) = b_T^K(T, T_{\text{ref}}) K(f, T). \quad (3.13)$$

ou bien

$$K(a'_T(T, T_{\text{ref}}) f, T_{\text{ref}}) = b_T^K(T, T_{\text{ref}}) K(f, T). \quad (3.14)$$

Sur la figure 3.13 sont tracées les parties réelle K_1 et imaginaire K_2 du module d'incompressibilité. Leurs variations montrent qu'il est nécessaire d'appliquer un changement d'échelle verticale b_T^K , que l'on considère aussi bien avec un changement d'échelle horizontale $a_T(T, T_{\text{ref}})$ ou un changement d'échelle horizontale $a'_T(T, T_{\text{ref}})$. Les variations de K en fonction de la fréquence redimensionnée $a'_T f$ sont évaluées à plus basse fréquences, en dessous de 100 kHz contrairement aux variations de K en fonction de la fréquence redimensionnée $a_T f$.

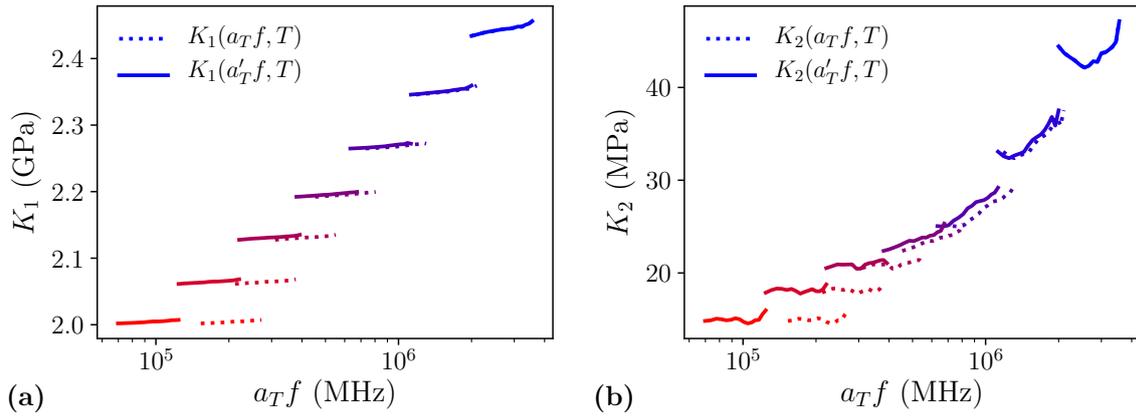


Figure 3.13 – Comportement de (a) la partie réelle et (b) la partie imaginaire du module d'incompressibilité K en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, T_{\text{ref}})$ et $a'_T(T, T_{\text{ref}})$.

Les variations de b_T^K en fonction de la température $T - T_{\text{ref}}$ sont représentées sur la figure 3.14. Les changements d'échelle b_T^K sont observés comme augmentant linéairement avec T et le meilleur ajustement linéaire est de pente $6,23 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$, qui est proche de celle déterminée sur $b_T^M(T)$, ainsi que de la pente déterminée par P.H Mott *et al.* [45] par combinaison de mesures en cisaillement par DMA et de mesures acoustiques longitudinales en immersion. Cette détermination de b_T^K est similaire à celle de b_T^M présentée dans la sous-section 3.2.2 puisque les écarts entre ces mesures varient de maximum 0,3 % sur cette gamme de températures. Précisons enfin que b_T^K satisfait également la forme alternative de l'équation de Bueche-Rouse (3.11) discutée dans la sous-section 3.2.2, pour $\kappa = 0,78 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$, qui est une valeur du coefficient de dilatation linéaire trois fois supérieure à la donnée constructeur $\kappa = 2,60 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ et similaire à celle déterminée sur b_T^M à 1,3 % près.

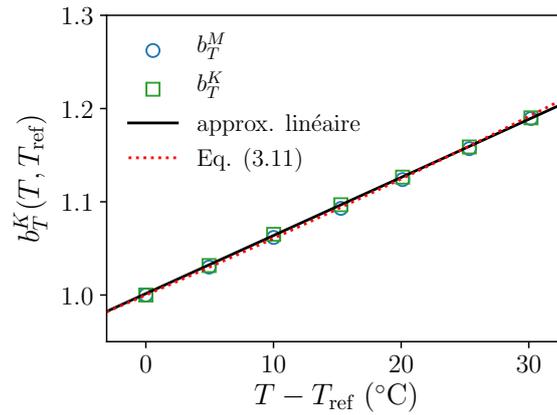


Figure 3.14 – Variations de b_T^M et b_T^K en fonction de la température à une température de référence T_{ref} et meilleur ajustement linéaire.

Les variations de la partie réelle et imaginaire du module d'incompressibilité $b_T^K K$ en fonction de la fréquence réduite $a_T' f$ à la température de référence $T_{\text{ref}} = 5,1^\circ\text{C}$ sont représentées sur la figure 3.15. Les comportements continus de $b_T^K K_1$ et $b_T^K K_2$ en fonction de $a_T f$ et $a_T' f$, montrés respectivement sur les figures 3.15a et 3.15b, confirment la validité de l'équation (3.14) concernant K . Les courbes maîtresses de $b_T^K K_2$ pour les deux fréquences réduites sont moins bien continues car elles sont plus sensibles aux variations de G_2 .

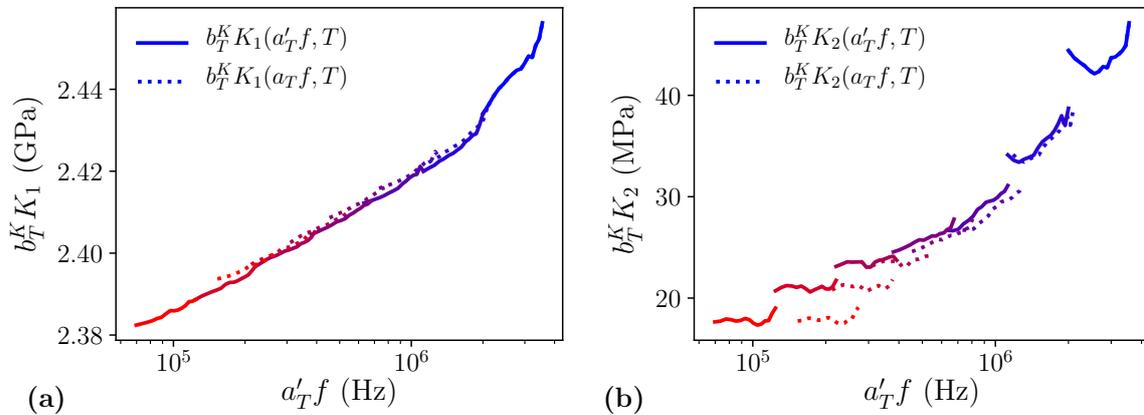


Figure 3.15 – Comportement de (a) la partie réelle et (b) la partie imaginaire du module d'incompressibilité réduit $b_T^K K(T, T_{\text{ref}})$ en fonction des fréquences réduites $a_T(T, T_{\text{ref}})$ et $a_T'(T, T_{\text{ref}})$.

3.2.5 Incertitudes et répétabilité de l'ETT

Afin de quantifier l'incertitude de l'équivalence temps-température, une bonne approche est d'appliquer le même protocole d'identification des coefficients a_T , b_T^M et b_T^G sur des échantillons de PU d'épaisseurs différentes mais comparables. De cette manière, il est possible de mesurer une incertitude globale sur la reconstruction des courbes maîtresses.

La figure 3.16 représente l'écart entre les déterminations de M_1 et M_2 provenant de trois expériences différentes, pour des échantillons d'épaisseurs voisines ~ 10 mm. L'écart entre ces différentes mesures de M_1 varie avec la fréquence entre 0,8 et 1,2 % et augmente vers les basses fréquences. En effet, cela s'explique par l'écart entre les mesures de b_T^M qui augmente avec la températures et varie entre 0,0 et 1,9 %. Concernant la partie imaginaire M_2 , celle-ci est moins sensible aux variations de b_T^M , donc l'écart est minime.

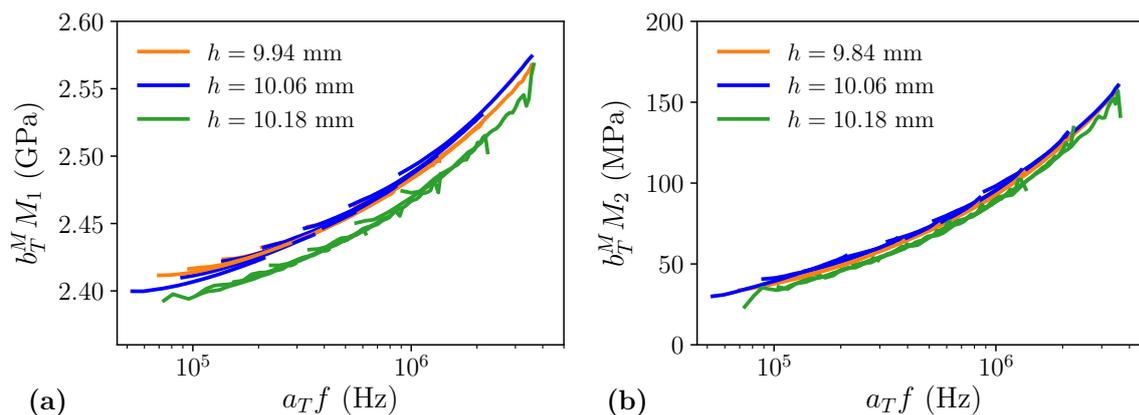


Figure 3.16 – Variations (a) de la partie réelle du module de cisaillement réduit $b_T^M M_1$ et (b) de sa partie imaginaire $b_T^M M_2$ en fonction de l'échelle de fréquence $a_T f$ qui ont été mesurées trois fois sur des échantillons d'environ 10 mm d'épaisseur à $T_{\text{ref}} = 5^\circ\text{C}$.

La figure 3.17 représente l'écart entre les déterminations de G_1 et G_2 provenant de trois expériences différentes (portant sur deux échantillons de même épaisseur, à savoir $110 \mu\text{m}$, et un échantillon de $90 \mu\text{m}$ d'épaisseur). Celui-ci est de l'ordre de 12 – 16 % et augmente avec la fréquence. En propageant ces incertitudes mesurées sur G et M , cela conduit à exprimer celles associées à la mesure de K .

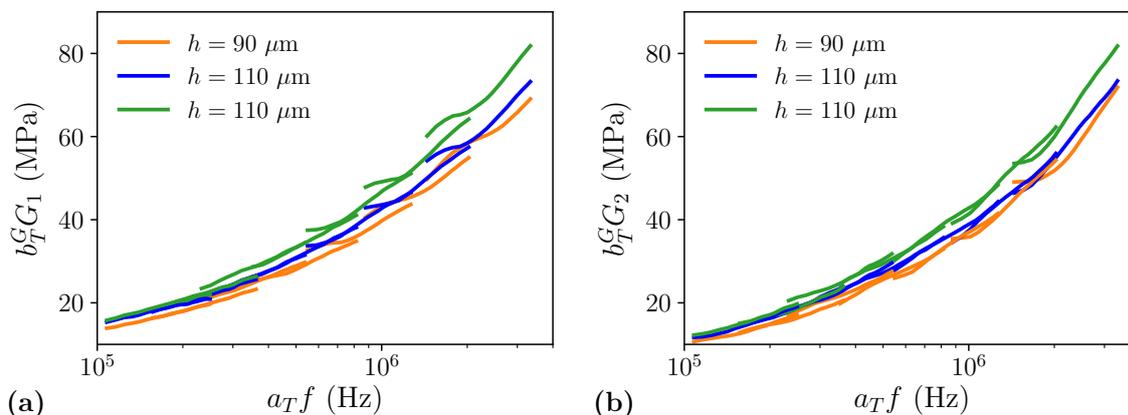


Figure 3.17 – Variations (a) de la partie réelle du module de cisaillement réduit $b_T^G G_1$ et (b) de sa partie imaginaire $b_T^G G_2$ en fonction de l'échelle de fréquence $a_T f$ qui ont été mesurées deux fois sur un échantillon de $110 \mu\text{m}$ d'épaisseur et sur un même échantillon de $90 \mu\text{m}$ d'épaisseur à $T_{\text{ref}} = 5^\circ\text{C}$.

3.3 Rhéologie du polyuréthane

Nous avons montré dans la section précédente que les modules visco-élastiques M , G et K du polyuréthane satisfont le principe d'équivalence fréquence-température. Ainsi, leur dynamique est évaluée sur plus de deux décades de fréquences ultrasonores au lieu de se limiter à la bande passante des transducteurs utilisés. De cette manière, l'identification précise d'un modèle rhéologique adapté devient possible. Les mesures d'ondes transverses ultrasonores sont comparées à des mesures basses fréquences par DMA, et des mesures d'ondes longitudinales hautes fréquences sont comparées à des mesures basses fréquences sur le même échantillon.

3.3.1 Visco-élasticité fractionnaire

Modéliser le comportement d'un élastomère à partir des équations classiques de l'élasticité linéaire ne suffit pas. En effet, il est essentiel considérer les pertes par dissipation visco-élastique. Le théorème de superposition de Boltzmann [118] conduit à exprimer la loi de comportement d'un matériau visco-élastique linéaire de manière continue en fonction d'une intégrale reliant les contraintes à l'histoire des déformations, ou réciproquement les déformations à l'histoire des contraintes. Ces descriptions sont deux formulations équivalentes et s'expriment telles que [99, 119] :

$$\sigma(t) = \int_{-\infty}^t \mathcal{R}(t - \tau) \frac{d\varepsilon(\tau)}{d\tau} d\tau, \quad (3.15a)$$

$$\varepsilon(t) = \int_{-\infty}^t \mathcal{F}(t - \tau) \frac{d\sigma(\tau)}{d\tau} d\tau. \quad (3.15b)$$

où $\mathcal{R}(t)$ et $\mathcal{F}(t)$ sont respectivement les fonctions de relaxation et de fluage.

Les formes que prennent ces deux fonctions dépendent du matériau lui-même. De manière schématique, son comportement est modélisé par un assemblage d'unités élémentaires appelés ressort (en anglais *spring*) de raideur C , et amortisseur (en anglais *dashpot*) de coefficient d'amortissement η . Ils décrivent respectivement l'élasticité et la viscosité du matériau par les relation linéaires suivantes :

$$\sigma(t) = C\varepsilon(t), \quad (3.16)$$

$$\sigma(t) = \eta \frac{d\varepsilon(t)}{dt}. \quad (3.17)$$

Associer ces différents éléments, en série ou en parallèle, à partir des équations (3.15), permet de construire différents modèles rhéologiques, comme par exemple le modèle de Kelvin-Voigt, de Maxwell ou bien de Zener représentés sur la figure 3.18. Ces modèles rhéologiques présentent l'avantage d'être simples mais ne sont pas réellement représentatifs du comportement des polymères, notamment lors d'essais dynamiques à hautes fréquences où la dissipation du matériau devient trop importante. C'est pourquoi des modélisations basées sur l'assemblage plus complexe de ces éléments ont été proposés dans la littérature [120–122].

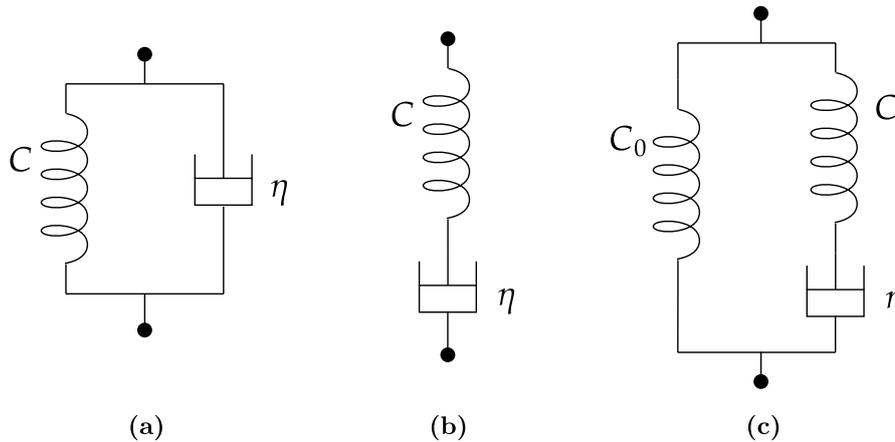


Figure 3.18 – Modèles rhéologiques simples de (a) Kelvin-Voigt, (b) Maxwell, et (c) Zener.

Parmi ces assemblages plus sophistiqués, Havriliak [101] suivi de Bagley et Torvik [123], montrent que les modèles rhéologiques à dérivées fractionnaires décrivent avec précision le comportement visco-élastique des polymères. Cette modélisation consiste à remplacer l'amortisseur classique par un amortisseur fractionnaire défini par la relation

$$\sigma(t) = C\tau^\alpha \mathcal{D}^\alpha [\varepsilon(t)], \quad \text{avec} \quad 0 < \alpha < 1, \quad (3.18)$$

où $\mathcal{D}^\alpha \equiv d^\alpha/dt^\alpha$ est l'opérateur de dérivée fractionnaire d'ordre α appliqué à la fonction de déformation $\varepsilon(t)$, défini par [100, 124] :

$$\mathcal{D}^\alpha [\varepsilon(t)] \equiv \frac{d^\alpha \varepsilon(t)}{d^\alpha t} = \frac{C\tau^\alpha}{\Gamma(1-\alpha)} \int_{-\infty}^t \frac{1}{(t-s)^\alpha} \frac{d\varepsilon(s)}{ds} ds, \quad 0 < \alpha < 1, \quad (3.19)$$

où s est l'intégrant temporel, et τ le temps de relaxation.

Précisons que l'ordre fractionnaire α de ce nouvel élément, appelé *spring-pot*, est strictement compris entre 0 et 1. En effet, $\alpha = 0$ représente le comportement de l'élément élastique (*spring*), et $\alpha = 1$ celui de l'élément visqueux (*dash-pot*). L'élément fractionnaire *spring-pot* est bien une combinaison de ces deux régimes.

Les modèles rhéologiques classiques présentés précédemment peuvent s'exprimer de manière analogue avec un formalisme fractionnaire. La figure 3.19 présente différents assemblages de ressorts et d'amortisseurs fractionnaires qui constituent les modèles Kelvin-Voigt fractionnaire (KVF) et Zener fractionnaire (ZF). Par exemple, Bagley et Torvik [102] montrent que la théorie moléculaire de Rouse [108], mentionnée dans la section 3.1, est en fait une description type KVF d'ordre 1/2 du module de cisaillement du polymère étudié.

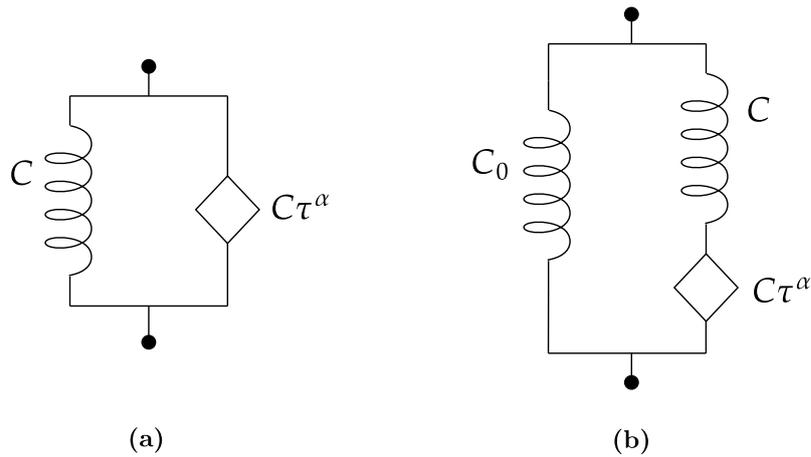


Figure 3.19 – Modèles rhéologiques fractionnaires de type (a) Kelvin-Voigt et (b) Zener.

3.3.1.1 Modèle de Zener fractionnaire

Ce modèle est caractérisé par un état asymptotique élastique aux temps courts ainsi qu'aux temps longs. Dans ce cadre, la loi de comportement se met sous la forme suivante :

$$\sigma(t) + \tau^\alpha \mathcal{D}^\alpha[\sigma(t)] = C_0 \varepsilon(t) + C_\infty \tau^\alpha \mathcal{D}^\alpha[\varepsilon(t)], \quad 0 < \alpha < 1, \quad (3.20)$$

où τ est le temps de relaxation, C_0 et C_∞ sont respectivement les modules élastiques asymptotiques aux temps longs et aux temps courts. En régime harmonique, et en utilisant la propriété $\text{TF}\{\mathcal{D}^\alpha[f(t)]\} = (i\omega)^\alpha \hat{f}(\omega)$, il vient

$$\hat{\sigma}(\omega) + \tau^\alpha (i\omega)^\alpha \hat{\sigma}(\omega) = C_0 \hat{\varepsilon}(\omega) + C_\infty \tau^\alpha (i\omega)^\alpha \hat{\varepsilon}(\omega). \quad (3.21)$$

En rassemblant les termes, le module de relaxation fractionnaire s'exprime tel que :

$$C(\omega) = \frac{C_0 + C_\infty (i\omega\tau)^\alpha}{1 + (i\omega\tau)^\alpha}. \quad (3.22)$$

Contrairement à l'utilisation courante des séries de Prony caractérisées par une distribution de temps de relaxation $\tau_{i=1,\dots,N}$, le modèle de Zener fractionnaire est caractérisé par un temps de relaxation τ unique, dont le régime transitoire est gouverné par le paramètre non-entier α . La figure 3.20 illustre l'influence de ce dernier sur les parties réelle et imaginaire du module de relaxation qui permet d'adoucir la transition visqueuse. De plus, les comportements asymptotiques élastiques C_0 et C_∞ sont clairement identifiés respectivement au temps court et au temps long. Ce modèle fractionnaire présente le grand avantage de décrire correctement les modules de relaxation d'un polymères avec seulement quatre paramètres.

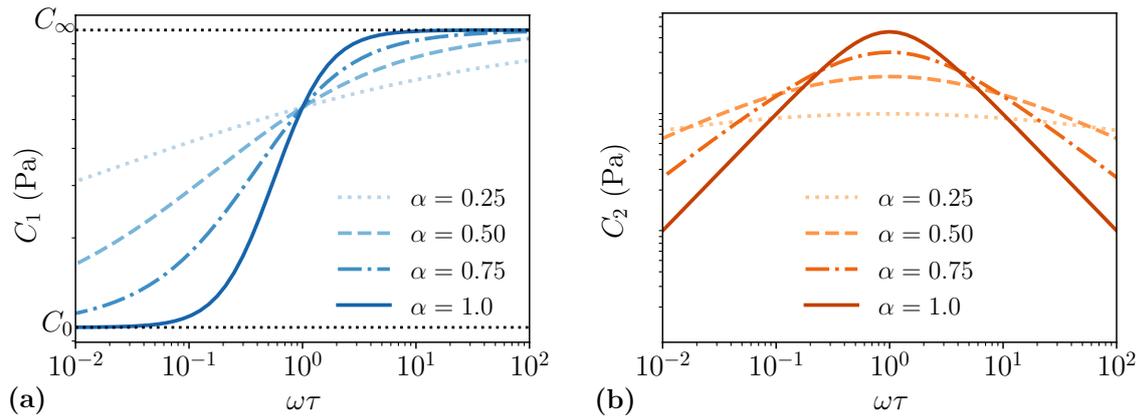


Figure 3.20 – Influence du paramètre non-entier α sur les modélisation type Zener fractionnaire de (a) la partie réelle et (b) la partie imaginaire du module de relaxation $C(\omega)$.

3.3.1.2 Modèle de Kelvin-Voigt fractionnaire

Ce modèle est caractérisé par une réponse visqueuse fractionnaire au temps court et élastique au temps long. De cette façon, le module de relaxation se met sous la forme suivante en régime harmonique :

$$C(\omega) = C_0 + C_v(i\omega)^\alpha. \quad (3.23)$$

Contrairement au modèle ZF, le modèle KVF ne présente pas de temps de relaxation et possède par conséquent trois paramètres ajustables. Il est caractérisé par une viscosité C_v (ou module visqueux) et une réponse purement élastique C_0 à fréquence nulle. La figure 3.21 illustre l'influence du paramètre α sur les parties réelle et imaginaire du module de relaxation qui adoucit leur variations. Cette modélisation peut également être vue comme une approximation basse fréquence du modèle ZF pour $\omega\tau \ll 1$ et présente l'avantage d'être gouvernée par seulement trois paramètres. Précisons que si $\alpha = 1$, le modèle classique Kelvin-Voigt apparaît tel que $C_1 = C_0$, et $C_2 = \eta\omega$, avec η la viscosité dynamique du milieu visco-élastique.

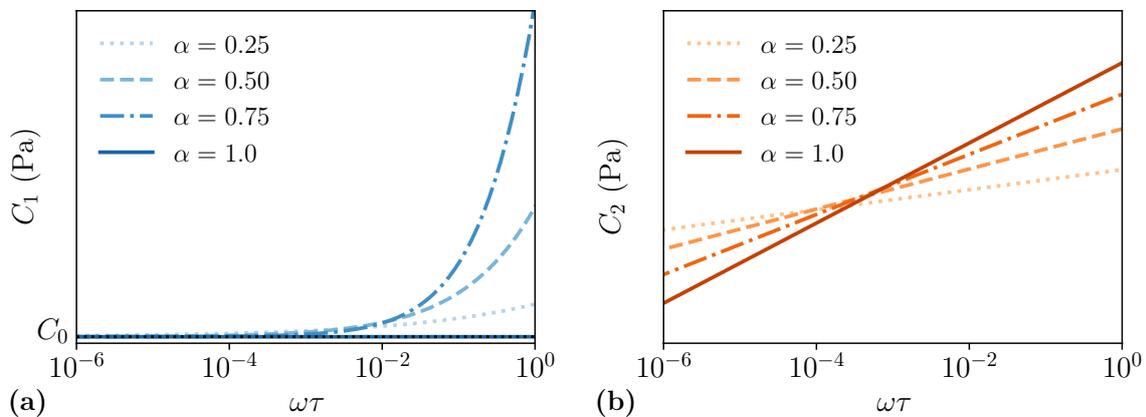


Figure 3.21 – Influence du paramètre non-entier α sur les modélisation type Kelvin-Voigt fractionnaire de (a) la partie réelle et (b) la partie imaginaire du module de relaxation $C(\omega)$.

3.3.2 Caractérisation de la rhéologie du polyuréthane

Les modules complexes $b_T^C(T, T_{\text{ref}})C$, où $C = M, G$ ou K , sont représentés sur la figure 3.22 en fonction de $a_T(T, T_{\text{ref}})f$. Les meilleurs ajustements résultants de M, G et K par les équations (3.23) et (3.22) sont également représentés. L'accord entre les mesures de ces modules visco-élastiques et les modèles KVF et ZF est quantitatif sur ces deux décades de fréquences. Ainsi, le modèle de KVF est suffisant pour décrire précisément la rhéologie des modules visco-élastiques du PU à seulement trois paramètres.

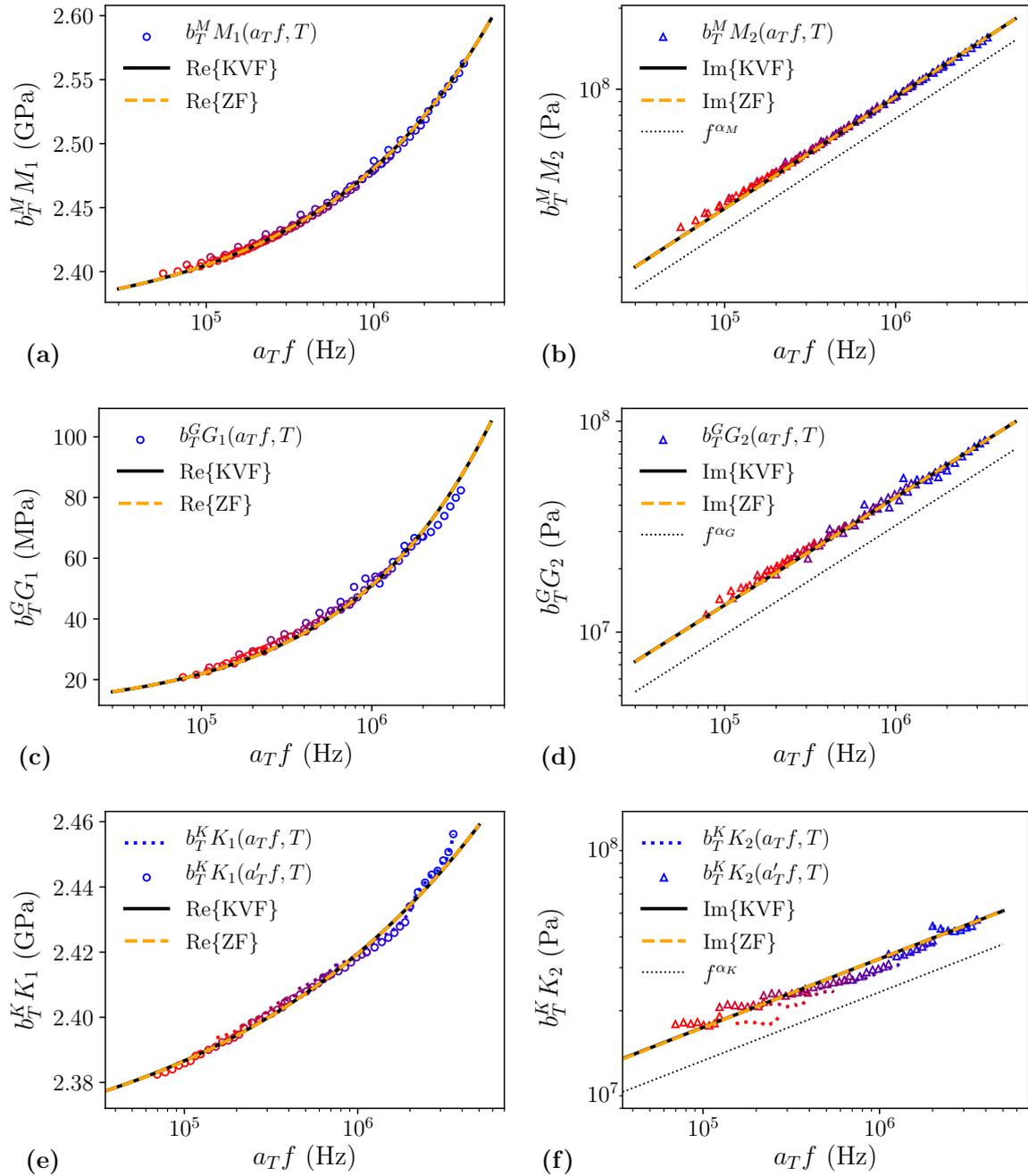


Figure 3.22 – Accords entre les modèles rhéologiques KVF et ZF et les mesures des modules visco-élastiques M, G, K du PU satisfaisant le ETT.

Le tableau 3.2 présente les valeurs des paramètres des modèles KVF et ZF déterminés numériquement à l'aide de la librairie Python *lmfit*. Il est intéressant de constater que les temps de relaxation τ_C identifiés en utilisant le modèle ZF sont tous très faibles. Plus précisément, $\omega\tau_C \ll 1$, ce qui confirme l'approximation KVF = ZF sur cette gamme de fréquences. Par conséquent, les paramètres C_0 et α_C sont équivalents entre ces deux modèles. En particulier, le paramètre K_0 est égal à M_0 , car la partie réelle de $M = K + 4/3G$ est grande devant celle de G de plus de trois ordres de grandeurs. Cependant, il est surprenant d'observer que $K_v > M_v \gg G_v$. Il est intéressant de remarquer que $\alpha_G \simeq 2\alpha_K$. Dans ses travaux portant sur la caractérisation d'un élastomère Deltan 350 par des méthodes de DMA couplées au ETT, Rouleau [116] identifie des modèles ZF pour décrire la rhéologie du module de cisaillement et d'incompressibilité du matériau. Les paramètres α_C qu'ils déterminent par optimisation sont également tels que $\alpha_G \simeq 2\alpha_K$.

	$C =$	M	G	K
KVF	C_0 (MPa)	2357,8	9,3	2350,0
	C_v (kPa · s)	234,4	19,1	961,0
	α_C	0,415	0,514	0,280
ZF	C_0 (MPa)	2358,0	9,4	2350
	C_∞ (GPa)	133,9	92,0	16,9
	τ_C (s)	$1,0 \times 10^{-14}$	$1,0 \times 10^{-13}$	$1,2 \times 10^{-14}$
	α_C	0,415	0,518	0,282

Tableau 3.2 – Valeurs des coefficients gouvernant les équations (3.23) et (3.22) décrivant avec précision le comportement large-bande des modules de relaxation M , G et K du PU à 5 °C.

Les valeurs de a_T et b_T déterminées précédemment sont appliquées à $C(\omega, T)$ suivant la procédure décrite précédemment en prenant comme référence chacune des températures mesurées telle que $T_{\text{ref}} = T$. De cette façon, l'extraction des paramètres du modèle KVF devient possible à partir de $b_T(T, T_{\text{ref}})C(a_T(T, T_{\text{ref}})f, T)$ reconstruites à T_{ref} . Les variations de C_0 , C_v et α_C en fonction de T_{ref} sont respectivement tracées sur la figure 3.23 pour les trois modules de relaxation C . Les paramètres α_C sont tous constants, tandis que les modules visqueux C_v diminuent exponentiellement lorsque la température augmente (variations linéaires en représentation lin-log). Les paramètres élastiques M_0 et K_0 diminuent linéairement avec la température, mais les variations de G_0 sont trop bruitées pour conclure sur une tendance.

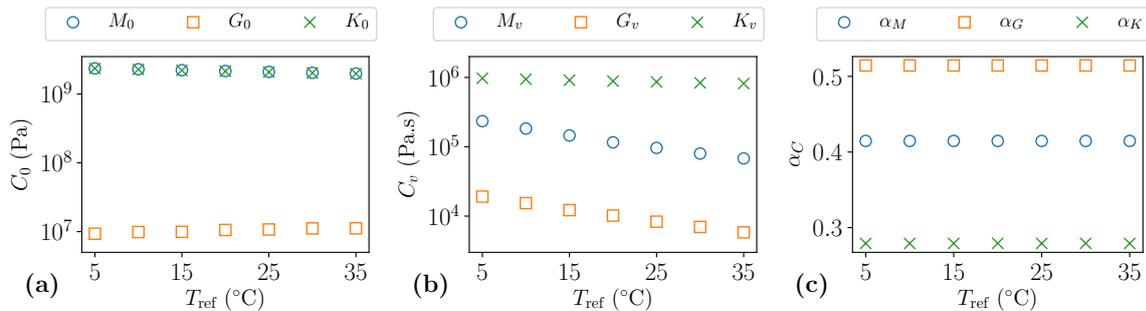


Figure 3.23 – Variations des paramètres du modèle KVF (a) C_0 , (b) C_v et (c) α_C , en fonction de la température de référence T_{ref} , pour les trois modules de relaxation $C = M, G$, et K .

3.3.3 Comparaison des valeurs de M avec des mesures basses fréquences

Les mesures directes de M sont initialement réalisées à l'aide d'un transducteur piézo-électrique ayant une bande passante limitée : 0,5 – 5,0 MHz. En prenant la température la plus froide comme référence, l'application du ETT conduit à évaluer $b_T M$ sur une gamme de fréquences bien plus large 0,05 – 5,0 MHz. Pour vérifier la validité du ETT et du modèle KVF identifiés précédemment à basses fréquences, il est intéressant de réaliser la même procédure avec une paire de transducteurs de bande passante 250 – 800 kHz et d'observer si les mesures se recouvrent entre-elles.

Sur la figure 3.24 sont tracées les variations de $b_T^M(T, T_{\text{ref}})M(f, T)$ en fonction de la fréquence réduite $a_T(T, T_{\text{ref}})f$ à $T_{\text{ref}} = 5^\circ\text{C}$, pour deux séries de mesures réalisées avec une paire de transducteurs piézoélectrique résonnant respectivement à $f_c = 500$ kHz (mesures basses fréquences) et $f_c = 2,25$ MHz (mesures hautes fréquences) sur un même échantillon d'épaisseur 10,18 mm. Le ETT est appliqué sur ces deux jeux de données en utilisant les mêmes changements d'échelle a_T et b_T^M déterminés précédemment à partir des mesures hautes fréquences. Les mesures hautes et basses fréquences des parties réelle et imaginaire de M se recouvrent parfaitement et permet d'évaluer $b_T M$ jusqu'à 0,02 MHz. Le fait que toutes ces mesures soient parfaitement continues confirme la robustesse et la reproductibilité de la procédure automatisée employée pour appliquer le ETT. Par ailleurs, le modèle KVF est également représenté sur la figure 3.24 pour les paramètres M_0 , M_v et α_M identifiés dans la section précédente à partir des mesures hautes fréquences uniquement. L'accord précis entre l'ensemble de ces mesures et le modèle KVF permet de conclure que les données obtenues en hautes fréquences sont suffisantes pour identifier et extrapoler le comportement du PU sur presque quatre décades au lieu de deux, c'est à dire de 0,01 à 5,0 MHz. On montre ainsi que, le dimensionnement et la prédiction des performances anéchoïques de cet élastomère est pertinent pour les applications sous-marines.

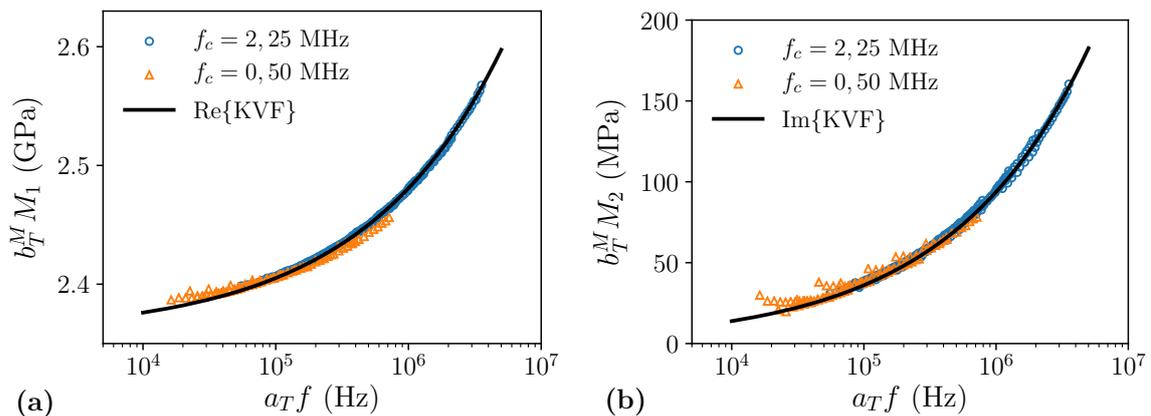


Figure 3.24 – Application du ETT sur deux séries de mesures de (a) M_1 et (b) M_2 d'un même échantillon de PU, aux mêmes températures à $f_c = 0,5$ MHz (BF) et $f_c = 2,25$ MHz (HF). Comparaison de ces données avec un modèle KVF identifié à partir des mesures HF uniquement.

En perspective, il convient de réaliser une expérience similaire pour évaluer le module de cisaillement G aux basses fréquences et vérifier les outils employés. Cependant, les dimensions actuelles des lignes à retard ne sont pas adaptées aux mesures basses fréquences. En effet, comme le signal d'intérêt est plus long à ces fréquences, cela nécessite d'augmenter leur

longueur afin de séparer convenablement les échos indésirables liés aux dimensions finies des lignes à retard. Il est également possible de changer le matériau qui constitue la ligne à retard pour retarder encore plus le signal. La surface de l'échantillon éclairé doit également être augmentée afin de limiter les effets de diffraction.

3.3.4 Comparaison des valeurs de G avec des mesures de DMA

La technique de DMA consiste à réaliser des essais périodiques de traction, compression, flexion, ou cisaillement sur un élastomère donnant ainsi accès à ses propriétés visco-élastiques. En général, ce sont le module de cisaillement G et le module d'Young E qui sont mesurés sur une gamme de fréquence allant de 10^{-2} à 10^2 Hz. L'application du ETT sur ces mesures permet de couvrir une gamme de fréquence extrêmement large, allant parfois jusqu'au GHz.

Dans ce contexte, les mesures large-bande du module de cisaillement du PU-UR3440 obtenues précédemment à partir d'une technique acoustiques ultrasonore sont comparées avec des mesures de DMA sur le même matériau fournies par Naval Group. Ces données sont confrontées sur la figure 3.25 sur leur plage de fréquences communes. Les deux techniques s'accordent sur la mesure du comportement de G_1 , moyennant leurs incertitudes respectives. Cependant, le désaccord est bien plus prononcé sur la mesure de G_2 . En effet, les variations de G_2^{ACOU} sont bien plus abruptes que celles de G_2^{DMA} . De plus, le rapport $G_2/G_1 \simeq 0,4$ à 1 MHz dans le cas de la DMA, tandis que la mesure acoustique de ce rapport est de l'ordre de l'unité à la même fréquence. Ceci suggère que le DMA sous-évalue la dissipation du module sollicité par rapport à la mesure acoustique. Concernant l'application du ETT sur les mesures de DMA, les changements d'échelle verticaux b_T n'ont pas été pris en compte, et les changements d'échelle horizontaux a_T ont été déterminés de sorte à décaler les courbes jusqu'au GHz. Ces choix induisent donc une forte propagation de l'incertitude sur le mesure de G_1^{DMA} et G_2^{DMA} .

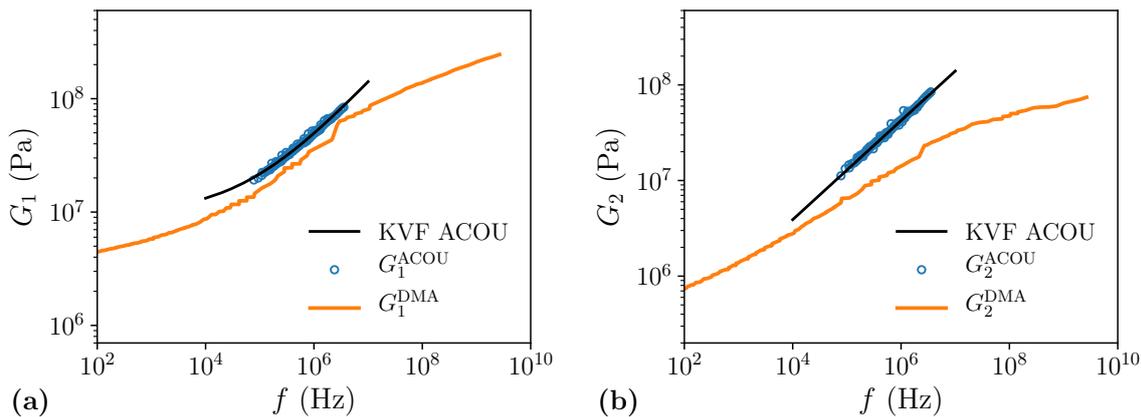


Figure 3.25 – Confrontation des mesures de (a) la partie réelle et (b) la partie imaginaire du module de cisaillement du PU-UR3440 réalisées d'une part par la méthode DMA et d'autre part par la méthode ultrasonores, et application du ETT à une température de référence $T_{\text{ref}} = 5^\circ\text{C}$.

Ces dernières années, ce type de désaccord entre des mesures acoustiques et de DMA a déjà été présenté par de nombreux auteurs. En particulier, Thieury [71] met en avant une différence non négligeable entre les parties réelle et imaginaire du module de cisaillement de

deux PDMS mesurés par DMA d'une part et avec la méthode ultrasonore en incidence rasante présentée dans l'introduction du chapitre 2 d'autre part. Lepert [26] utilise également une méthode acoustique pour mesurer la vitesses des ondes transverses du PU à 500 kHz et détermine une différence notable avec les mesures de DMA. D'autres auteurs ont identifié une différence notable entre la DMA et les mesures acoustiques au MHz, notamment sur la partie dissipative des modules de visco-élasticité de différents polyuréthanes [89–91]. Les auteurs justifient ces différences en soulignant les limites du ETT quant à son applicabilité lorsque la température est proche ou trop éloignée de T_g , ou bien à cause de la forte propagation d'erreur induite par l'utilisation de procédures manuelles ou automatisées. Cependant, la technique de mesures ultrasonore d'ondes transverses qu'ils utilisent soulèvent quelques questions concernant la reproductibilité, notamment des couplages et de l'adhésion du transducteur récepteur sur l'échantillon. De plus, les techniques de DMA ne sont pas aussi bien discrétisées en fréquences que les techniques spectrale acoustiques, ce qui peut faire manquer de l'information importante lorsque les procédures de reconstruction des courbes maîtresses $b_T^G C(a_T f, T)$ sont effectuées.

3.3.5 Influence de la température de réticulation

En plus d'accéder propriétés transverses du PU aux fréquences ultrasonores avec la technique présentée dans le chapitre 2 et de mesurer le comportement de $G(\omega, t)$ au cours du durcissement, il est possible de mettre en lumière l'influence de la température de réticulation T_c sur les propriétés rhéologiques du PU.

Concernant la mesure de G , la réticulation d'un échantillon de PU de même épaisseur a été effectuée à deux températures T_c différentes, à savoir 5°C et 35°C pour un échantillon de même épaisseur. Comme le montre la figure 3.26, le module de cisaillement G dépend nettement de T_c , c'est-à-dire que sa sensibilité à T_c est plus importante que la dispersion associée au manque de répétabilité de la technique de mesure dont les incertitudes sont représentées en couleurs transparentes et correspondent aux mesures présentées à la figure 3.17. Ceci démontre l'importance du contrôle de la température pendant le processus de durcissement.

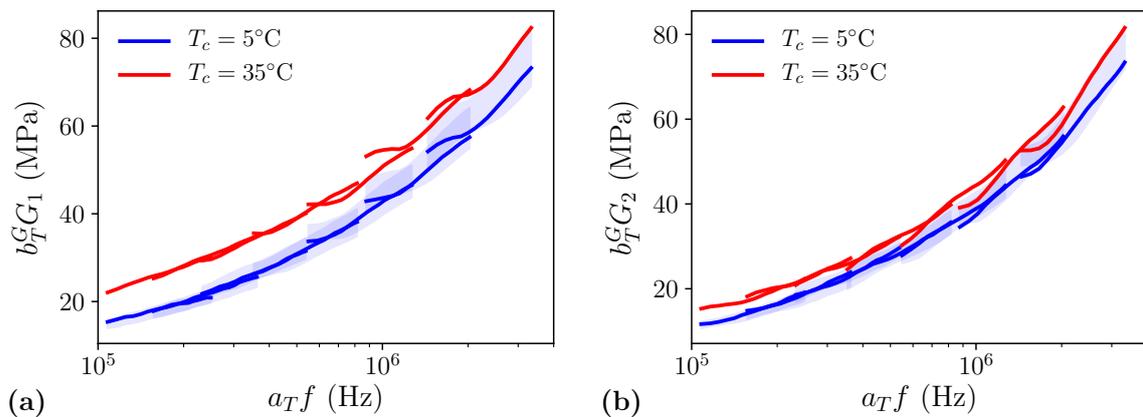


Figure 3.26 – Variations de (a) $b_T^G G_1$, et (b) $b_T^G G_2$ en fonction de $a_T f$ à $T_{\text{ref}} = 5^\circ\text{C}$, de deux échantillons réticulés respectivement à $T_c = 5^\circ\text{C}$ et $T_c = 35^\circ\text{C}$. La barre d'incertitude en couleur bleue transparente correspond à la dispersion associée aux tests de répétabilité de la figure 3.17.

En ce qui concerne le module longitudinal M , la réticulation a été effectuée à deux températures T_c différentes, à savoir 25°C et 80°C pour un échantillon de même épaisseur. Sur la figure 3.27, aucun effet de cette température n'a pu être mesuré sur les parties réelle et imaginaire de M puisque les incertitudes liées à la répétabilité sont plus importantes que l'écart entre les mesures à 25°C et 80°C. Ainsi, les mesures de M sont insensibles à T_c .

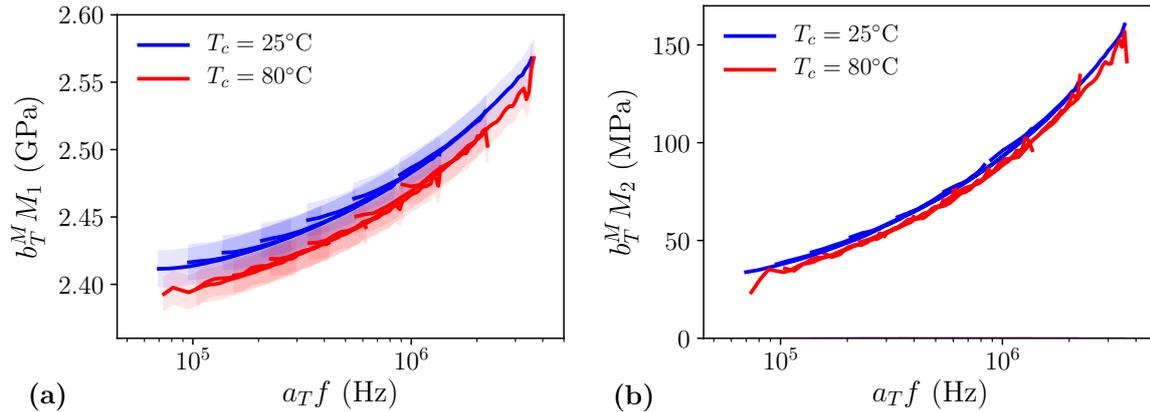


Figure 3.27 – Variations de (a) $b_T^M M_1$, et (b) $b_T^M M_2$ en fonction de $a_T f$ à $T_{\text{ref}} = 5^\circ\text{C}$, de deux échantillons, réticulés respectivement à $T_c = 25^\circ\text{C}$ (lignes bleues) et $T_c = 80^\circ\text{C}$ (lignes rouges) et d'épaisseurs similaires. La barre d'incertitude représentée en transparent correspond à la dispersion associée aux tests de répétabilité de la figure 3.16.

Conclusion

Les mesures d'ondes transverses et longitudinales réalisées dans les chapitres 1 et 2 permettent de mesurer les modules de visco-élasticité M , G , et K sur une gamme de température allant de 5 °C à 35 °C. Dans ce chapitre, le principe d'équivalence temps-température est appliqué sur ces paramètres mécaniques du PU de sorte à évaluer leur comportement sur une gamme de fréquences bien plus large que celle permise par la bande passante des transducteurs piézoélectriques utilisés. De cette manière, des modèles rhéologiques sont identifiés et décrivent précisément le comportement de ces paramètres. Le modèle de Kelvin-Voigt fractionnaire dépendant de seulement trois paramètres ajustables est adapté pour décrire précisément le comportement des modules visco-élastiques du PU sur plus de deux décades en fréquence. De plus, la sensibilité et la répétabilité de la technique permet notamment de quantifier les incertitudes partant de la fabrication des échantillons jusqu'à l'application du principe d'équivalence temps-température. De cette façon, il est possible de mesurer la sensibilité des modules visco-élastiques du PU à plusieurs phénomènes physico-chimiques comme par exemple l'influence de la température de réticulation T_c . Enfin cette technique a mis en défaut des mesures de DMA sur le module de cisaillement du même polyuréthane aux fréquences ultrasonores.

Pour conclure, ces trois chapitres constituent une étude approfondie des propriétés visco-élastiques d'un matériau souple de type PU-UR3440 dans la gamme de fréquences ultrasonores 0,05 – 5,0 MHz et 5 – 35 °C. Ces travaux conduisent à déterminer avec précision ses modules de cisaillement et d'incompressibilité en fonction de la température, au-dessus de sa transition vitreuse. Les techniques et méthodes présentées peuvent être considérées comme génériques pour la caractérisation de la rhéologie de ce type de matériaux. Des matériaux plus souples (c'est-à-dire des matériaux avec G_1 plus petit) peuvent être considérés mais plus G_1 est petit, plus le coefficient de transmission est petit en raison du contraste d'impédance plus grand entre l'échantillon et les lignes à retard, et par conséquent plus le rapport signal sur bruit se dégrade. Pour surmonter ce problème, les échantillons peuvent être rendus plus fins, mais le contrôle de la planéité et du parallélisme des surfaces des lignes à retard devient plus crucial.

Chapitre 4

Mesure d'onde cohérente longitudinale dans un polyuréthane chargé

Sommaire

Introduction	94
4.1 Modélisation de la diffusion d'ondes élastiques	95
4.1.1 Diffusion par une sphère élastique	95
4.1.2 Diffusion par une sphère rigide	97
4.1.3 Théorie de la diffusion multiple	99
4.2 Conception et optimisation des échantillons	103
4.2.1 Protocole de fabrication	103
4.2.2 Contrôle de la répartition des billes au sein d'une couche	105
4.2.3 Isotropie des échantillons	107
4.2.4 Corrélations spatiales	109
4.3 Mesures du nombre d'onde effectif	110
4.3.1 Mesures des paramètres effectifs	111
4.3.2 Influence du nombre de plans	113
4.3.3 Influence de la température	114
4.4 Confrontation des résultats avec MuScat	115
4.4.1 Extraction des paramètres effectifs	116
4.4.2 Extraction de la densité effective	117
4.4.3 Importance des conversions d'ondes	118
4.4.4 Validation expérimentale	119
4.5 Dimensionnement du revêtement aux basses fréquences	120
Conclusion	125

Introduction

La propagation des ondes élastiques dans les milieux hétérogènes est un problème fondamental et ancien, qui a été renouvelé par l'avènement des métamatériaux localement résonnants [125]. L'amortissement extraordinaire dans ces matériaux présente un intérêt majeur pour les revêtements de sous-marin. Toutefois, la conception et la caractérisation de ces matériaux sont souvent complexes, mais sont rendus possibles par l'utilisation de résonateurs simples à modéliser ainsi qu'à insérer dans une résine polyuréthane.

Si la conception de milieux hétérogènes élastiques bidimensionnels a été abordée à de nombreuses reprises, la conception tridimensionnelle est plus difficile [126]. La méthode de fabrication des échantillons dépend des constituants, c'est-à-dire de la matrice et des diffuseurs. Par exemple, Kinra *et al.* [24] ont proposé un protocole de fabrication par dépôts de couches successives de résine contenant des distributions aléatoires ou périodiques de sphères. Les récentes avancées technologiques en matière de fabrication additive devraient permettre de créer des échantillons 3D avec un contrôle précis de la distribution des particules. Cependant, alors que l'introduction de cavités sphériques dans des matériaux métalliques a été réalisée récemment [127], il n'existe pas de technique pour insérer des particules denses dans ces matériaux. Inspiré des travaux de Kinra *et al.* [128, 129], le processus de conception des échantillons présenté ici consiste à réaliser des couches successives de matériau durcissable contenant une distribution aléatoire de billes disposées de manière contrôlée. En effet, un protocole de conception d'échantillons à base de particules denses a été mis au point dans le cadre de la thèse d'Alverède Simon, soutenue en 2020 [29]. Ce protocole permet de contrôler précisément la répartition des billes au sein d'une matrice époxy, ouvrant la voie à l'utilisation de corrélations spatiales pour l'optimisation de l'influence des résonances sur les ondes cohérentes [130].

Du point de vue expérimental, peu de mesures d'ondes élastiques dans les milieux composites solides existent dans la littérature. En plus des difficultés liées à la fabrication de ces composites, l'atténuation des ondes est souvent importante aux fréquences ultrasonores et limite des applications potentielles. Les mesures de réflectivité dans des milieux solides multiplement diffusant sont encore plus rares que les mesures en transmission. Méresse *et al.* [131] réalisent des mesures basses fréquences de réflectivité par un panneau de polyuréthane chargé en cylindres d'acier immergé. Plus récemment, la mesure de la réflexion et de la transmission d'ondes de cisaillement dans des échantillons hétérogènes a été réalisée à l'aide de la technique Sandwich [132]. Ces travaux ont permis de mesurer la vitesse, l'atténuation et la masse volumique effectives de ce matériau. Ces résultats sont également en très bon accord avec des modèles de diffusion multiple. Dans ce contexte, la technique Sandwich apparaît comme une technique particulièrement adaptée pour quantifier la réflectivité des échantillons à hautes fréquences.

En vue de transposer ces mesures aux fréquences d'intérêt pour la furtivité sous-marine, il est nécessaire d'avoir une compréhension fine des propriétés effectives des revêtements. Puisque la densité effective et le nombre d'onde effectif sont les paramètres permettant de décrire comme homogène un milieu hétérogène, il est important de déterminer les modélisations les plus adaptées. Cela nécessite une compréhension fine de l'interaction d'une onde avec un ou plusieurs diffuseurs, résonants ou non. La forte conversion d'ondes longitudinales en ondes transverses à la résonance exige l'utilisation de modèles prenant en compte les conversions. Le modèle de Luppé, Conoir et Valier-Brasier [133] apparaît alors comme bien adapté

pour décrire le nombre d'onde effectif des échantillons de polyuréthane chargés. Toutefois, peu de modélisations de la densité effective existent dans la littérature sur ce type de milieu.

4.1 Modélisation de la diffusion d'ondes élastiques

Ce chapitre traite de la propagation des ondes élastiques dans un solide visco-élastique contenant des billes distribuées aléatoirement. Pour décrire la propagation dans ce milieu hétérogène, il est nécessaire d'avoir une compréhension précise de la diffusion des ondes élastiques par une seule particule en amont.

Dans un solide visco-élastique, le champ de déplacement \mathbf{u} associé à des perturbations harmoniques de pulsation ω est déterminé en utilisant la décomposition de Helmholtz [34] :

$$\mathbf{u}(\mathbf{x}, t) = [\mathbf{grad} \phi_L(\mathbf{x}) + \mathbf{rot} \psi_T(\mathbf{x})] e^{-i\omega t} \quad (4.1)$$

où le potentiel scalaire ϕ_L est associé aux ondes longitudinales L et le potentiel vectoriel ψ_T aux ondes transverses T . Dans le système de coordonnées sphériques, ψ_T peut être décrit comme la superposition des ondes transverses T_1 et T_2 , qui sont modélisées à l'aide de potentiels scalaires respectifs ϕ_{T_1} et ϕ_{T_2} tels que [134] :

$$\psi_T = \mathbf{rot}(r\phi_{T_1}\mathbf{e}_r) + \frac{1}{k_T} \mathbf{rot}[\mathbf{rot}(r\phi_{T_2}\mathbf{e}_r)]. \quad (4.2)$$

Ces potentiels sont solutions des équations de Helmholtz :

$$\Delta\phi_M + k_M^2\phi_M = 0 \quad \text{avec} \quad M = L, T_1, T_2. \quad (4.3)$$

Précisons que dans le contexte de la thèse, seulement le cas d'une onde incidente longitudinale doit être considéré, donc le potentiel $\phi_{T_2} = 0$ dans les développements à venir.

4.1.1 Diffusion par une sphère élastique

Lorsqu'une onde incidente longitudinale interagit avec une particule dense enfouie dans une matrice élastique (ou visco-élastique), celle-ci est perturbée autour de sa position d'équilibre et mise en mouvement de translation polarisé suivant la direction de propagation [9]. La présence de la matrice élastique induit une force de rappel naturelle impliquant la génération d'un cisaillement. A la résonance du système, ce phénomène de translation est amplifié, ainsi que la force de rappel et donc le cisaillement. Si le matériau qui constitue la matrice est souple, la particule a plus de facilité à se mettre en mouvement de translation, et l'énergie est d'autant plus dissipée.

L'interaction de l'onde plane longitudinale incidente avec la particule donne naissance à deux ondes diffusées : une onde longitudinale et une onde transverse par conversion se propageant orthogonalement à la direction de l'onde incidente dans la matrice visco-élastique (figure 4.1). A cause de la forte dissipation des ondes de cisaillement par la matrice, celles-ci ne peuvent quasiment pas se propager. Le phénomène de conversion est amplifié à la résonance donc l'onde transverse est d'autant plus amortie.

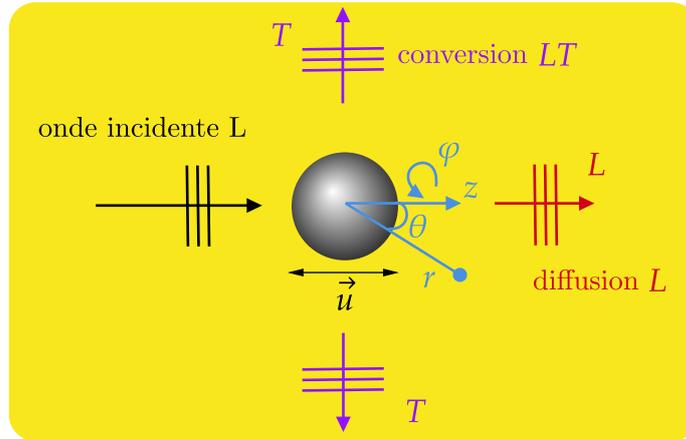


Figure 4.1 – Onde plane longitudinale incidente sur un diffuseur sphérique donnant naissance à deux ondes diffusées : une longitudinale L (conversion LL) et une onde transverse T (conversion LT).

Les différents potentiels scalaires, qu'ils soient incidents, diffusés ou transmis, sont développés suivant les harmoniques sphériques, qui est une base modale solution de l'équation de Helmholtz adaptée à la forme des diffuseurs [9]. Puisque l'onde incidente est longitudinale et que seulement deux types d'ondes sont induites par conversion L et T , cette base se réduit de sorte à ce que les champs vectoriels ou scalaires ne dépendent pas de l'angle azimutal φ . De cette façon, tout potentiel scalaire ϕ peut se mettre sous la forme générique

$$\phi(r, \theta) = \sum_{n=0}^{\infty} A_n z_n(k_M r) P_n(\cos \theta), \quad (4.4)$$

où la fonction $P_n(\cos \theta)$ représente les polynômes de Legendre, la fonction z_n est une combinaison aire des fonctions de Bessel sphériques $j_n(k_M r)$ et de Neumann sphérique $y_n(k_M r)$, ou des fonctions de Hankel sphériques de première espèce $h_n^{(1)}(k_M r)$ et de seconde espèce $h_n^{(2)}(k_M r)$. Les amplitudes A_n dépendent du type d'onde (plane, sphérique, vortex) et de sa nature (longitudinale ou transverse).

Plus précisément, l'onde plane longitudinale incidente se propageant dans la direction z avec le potentiel $\phi_L^i = \phi_0 e^{ik_L z}$, où $z = r \cos \theta$, est développé sur les harmoniques sphériques et se met sous la forme

$$\phi_L^i(r, \theta) = \phi_0 e^{ik_L r \cos \theta} = \phi_0 \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) j_n(k_L r) P_n(\cos \theta), \quad \forall r \geq R. \quad (4.5)$$

Comme annoncé précédemment, l'interaction de l'onde longitudinale incidente avec la particule induit l'existence de deux ondes diffusées dans la matrice, mais également deux ondes transmises dans la sphère. Les potentiels associés à ces quatre ondes sont donnés par :

$$\phi_M^d(r, \theta) = \phi_0 \sum_{n=q}^{\infty} i^n (2n+1) T_n^{LM} h_n(k_M r) P_n(\cos \theta), \quad \forall r \geq R, \quad (4.6)$$

$$\phi_M^p(r, \theta) = \phi_0 \sum_{n=q}^{\infty} i^n (2n+1) S_n^{LM} j_n(k_M^p r) P_n(\cos \theta), \quad \forall r \leq R, \quad (4.7)$$

où ϕ_M^d et ϕ_M^p sont les potentiels scalaires des ondes $M = L, T$ respectivement diffusées dans la matrice et transmises dans la particule. Les coefficients T_n^{LM} et S_n^{LM} sont respectivement les amplitudes du mode n des ondes diffusées dans la matrice et transmises dans la particule pour une onde incidente longitudinale. Les sommations débutent à $q = 1$ dans le cas où $M = T$ car il n'existe pas de mode monopolaire transverse, et à $q = 0$ sinon.

Les composantes en coordonnées sphériques du champ de déplacement $\mathbf{u} = (u_r, u_\theta)$, et celles du vecteur contraintes $\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{e}_r = (\sigma_{rr}, \sigma_{r\theta})$ interviennent dans les conditions aux frontières entre le milieu hôte et la particule. Ces composantes s'expriment en fonction des potentiels scalaires associés à chaque milieu, et l'application des conditions de continuité à l'interface matrice-particule en $r = R$ conduit à déterminer les coefficients $T_n^{LL}, T_n^{LT}, S_n^{LL}$ et S_n^{LT} en résolvant un système matriciel de type $\mathbf{x} = \mathbb{A}^{-1} \mathbf{b}$.

Les particules utilisées sont des sphères d'acier inoxydable de rayon $R = 198,5 \mu\text{m}$, caractérisées par leurs coefficients de Lamé $\lambda_p = 105 \text{ GPa}$ et $\mu_p = 80 \text{ GPa}$, ainsi que leur masse volumique $\rho_p = 7750 \text{ kg/m}^3$. La matrice est du PU de masse volumique ρ et dont la rhéologie de ses paramètres élastiques $\lambda = M - 2G$ et $\mu = G$ a été caractérisée dans les chapitres précédents pour plusieurs températures. Par exemple, en utilisant ces paramètres mécaniques à une température de $5 \text{ }^\circ\text{C}$, la fréquence et le facteur de qualité de la résonance dipolaire en translation calculés numériquement par inversion du système matriciel sont

$$f_{\text{res}}^{\text{exact}} = 71 \text{ kHz} \quad \text{et} \quad Q^{\text{exact}} = 0,66 \quad (4.8)$$

La fréquence de résonance est particulièrement basse puisqu'elle correspond à $k_L R \simeq 0,04$. Ce résultat traduit le caractère *sub*-longueur d'onde de la résonance dipolaire en translation des billes, ce qui est intéressant pour les applications à la furtivité sous-marine.

4.1.2 Diffusion par une sphère rigide

Dans le cas particulier où la particule de masse finie est considérée comme rigide par rapport à la matrice, c'est-à-dire que le contraste des modules de cisaillement des deux milieux est tel que $\mu_p/\mu \gg 1$, celle-ci peut se déplacer uniquement autour de sa position d'équilibre. De plus, lorsque que la longueur d'onde longitudinale est grande devant le rayon de la sphère, c'est-à-dire $k_L R \ll 1$, les coefficients de diffusion T_n^{LM} des deux premiers modes $n = 0$ et $n = 1$ ont pour expression [135] :

$$\begin{cases} T_0^{LL} = -i(k_L R)^3 \frac{K_p - K}{3K_p + 4\mu - \rho(\omega R)^2(1 + i(k_L R))} \\ T_1^{LL} = -i \frac{(1 - \tilde{\rho})(k_L R)^3}{3} \frac{(k_T R)^2 + 3ik_T R - 3}{(k_T R)^2(2\tilde{\rho} + 1) + 9ik_T R - 9} \\ T_1^{LT} = i(1 - \tilde{\rho}) \frac{(k_L R)(k_T R)^2 e^{-ik_T R}}{(k_T R)^2(2\tilde{\rho} + 1) + 9ik_T R - 9} \end{cases} \quad (4.9)$$

Le mode monopolaire $n = 0$ dépend directement de la différence des modules d'incompressibilité des deux milieux ($K = \lambda + 2/3\mu$ et $K_p = \lambda_p + 2/3\mu_p$), alors que le mode dipolaire $n = 1$ dépend du rapport des masses volumiques $\tilde{\rho} = \rho_p/\rho$. Ces coefficients de diffusion présentent des résonances en basse fréquence très fortes, dont les fréquences ω_{res}^n correspondent à l'annulation des dénominateurs et les facteurs de qualité associés sont donnés par

$$Q^n = \frac{\text{Re}[\omega_{\text{res}}^n]}{2\text{Im}[\omega_{\text{res}}^n]}. \quad (4.10)$$

Résonance monopolaire

L'annulation du dénominateur du coefficient de diffusion monopolaire T_0^{LL} conduit à résoudre numériquement l'équation

$$3K_p + 4\mu - \rho(\omega R)^2(1 + i(k_L R)) = 0. \quad (4.11)$$

Cette équation doit être résolue numériquement. Si une rhéologie classique de type Kelvin-Voigt est choisie pour décrire le comportement de la matrice, la fréquence de résonance est donnée par

$$\omega_{\text{res}}^0 = \frac{1}{R} \sqrt{\frac{3K_p + 4\mu}{\rho}}. \quad (4.12)$$

Dans le cas d'une bulle enfouie dans une matrice de polyuréthane, on retrouve la fréquence de résonance dimensionnée telle que $k_L^0 R = 0,10$, qui est surprenamment plus haute fréquence que la résonance dipolaire des billes d'acier.

Résonance dipolaire

Les deux coefficients de diffusion des modes dipolaires $n = 1$ présentent le même dénominateur. L'annulation de celui-ci correspond à une résonance dipolaire sub-longueur d'onde associée à un mouvement de translation, pour laquelle l'équation caractéristique est [25]

$$(k_T R)^2(2\tilde{\rho} + 1) + 9ik_T R - 9 = 0. \quad (4.13)$$

Il est important de souligner qu'aucune approximation n'est faite à ce stade sur les fonctions de Bessel et de Hankel, c'est-à-dire que cette expression reste valable pour un matériau mou tant que l'hypothèse de particule rigide est vérifiée. Néanmoins, en supposant la matrice non dissipative, c'est-à-dire telle que $k_T = \text{Re}\{k_T\} = \omega/c_T$, et le contraste de densité $\tilde{\rho} > 5/8$, il est possible de calculer analytiquement la racine complexe de l'équation ci-dessus. De cette manière, la fréquence de résonance et le facteur de qualité sont donnés par [28] :

$$f_{\text{res}}^{\text{elast}} = \frac{3c_T \sqrt{8\tilde{\rho} - 5}}{4\pi R(2\tilde{\rho} + 1)} \quad \text{et} \quad Q^{\text{elast}} = \frac{1}{6} \sqrt{8\tilde{\rho} - 5} \quad (4.14)$$

Bien que cette approche soit simplifiée dans le cas d'une matrice PU puisque l'atténuation des ondes transverses est non négligeable, il est tout de même intéressant d'observer que la fréquence de résonance est proportionnelle aux variations de c_T , et que le facteur de qualité ne dépend que de $\tilde{\rho}$. De plus, la fréquence de résonance dipolaire adimensionnée est telle que $k_L^1 R \approx 0,04$. Il est surprenant d'observer qu'à rayon équivalent, la fréquence de résonance dipolaire d'une bille d'inox dans du polyuréthane est deux fois plus basse que la fréquence de résonance monopolaire $k_L^0 R$ d'une bulle.

Puisque la rhéologie du PU est mesurée dans le chapitre 3 pour différentes températures, il est intéressant d'observer les variations de la fréquence de résonance et de son facteur de qualité en fonction de la température (figure 4.2). Ces variations sont approximativement linéaires et montrent que plus la température est élevée, plus la fréquence de résonance est basse et plus son facteur de qualité est grand. En effet, la vitesse de phase des ondes traverses c_T du PU diminue lorsque la température augmente, de même que la partie dissipative du module de cisaillement G_2 . Ces effets soulignent l'importance d'une caractérisation précise de la rhéologie du PU en fonction de la température. Par ailleurs, les différences entre les solutions de l'équation (4.14) et celles obtenues par inversion du système matriciel sont importantes, ce qui montre que la dissipation visqueuse de la matrice PU joue un rôle prédominant sur la résonance du système et son amortissement. Les écarts entre les fréquences de résonances calculées numériquement en résolvant l'équation caractéristique (4.13) et celles calculées par inversion du système matriciel sont inférieurs à 0,1 % pour toutes les températures, ce qui confirme que l'hypothèse de particule rigide est justifiée.

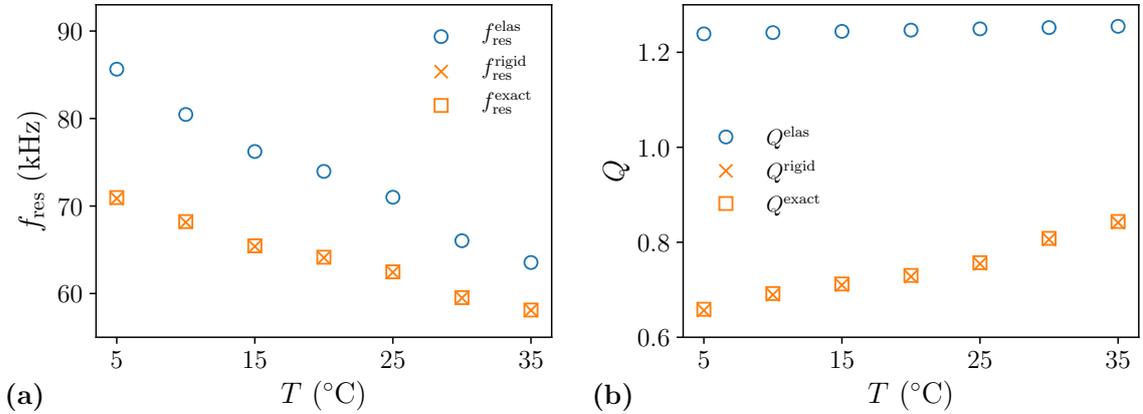


Figure 4.2 – Variations de (a) la fréquence de résonance d'une sphère dans une matrice de PU et (b) de son facteur de qualité en fonction de la température. Comparaisons entre la résolution exacte du système matriciel, l'hypothèse de particule rigide et une approximation élastique.

4.1.3 Théorie de la diffusion multiple

Suivant la taille caractéristique et le degré de désordre d'un milieu hétérogène, de nombreux formalismes existent pour décrire les phénomènes de diffusion multiple. Dans notre cas, les régimes de localisation ne sont pas concernés et seul le régime propagatif est considéré. Le milieu hétérogène est théoriquement remplacé par un milieu effectif homogène défini par son module d'incompressibilité effectif K^{eff} et sa masse volumique effective ρ^{eff} . L'onde cohérente qui s'y propage est caractérisée par un nombre d'onde effectif complexe k_L^{eff} .

4.1.3.1 Modélisation du nombre d'onde effectif

Une description du désordre a été proposée par Foldy [136] qui considère que le champ moyen incident sur un diffuseur ponctuel à une position donnée, conditionné par la présence d'un diffuseur à une position voisine, est équivalent au champ moyen à cette position mais en l'absence du diffuseur. Cette approximation qui néglige les boucles de diffusion est communément appelée l'*Independent Scattering Approximation* (ISA). Elle est valide pour une faible concentration de diffuseurs et le nombre d'onde effectif prend la forme suivante

$$\left(\frac{k_L^{\text{eff}}}{k_L}\right)^2 = 1 - i \frac{3\phi_v}{(k_L R)^3} \delta_1, \quad (4.15)$$

où ϕ_v est la concentration volumique de diffuseurs. Le coefficient δ_1 représente les effets de diffusion multiple du premier ordre défini par

$$\delta_1 = \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) T_n^{LL}, \quad (4.16)$$

où les coefficients T_n^{LL} sont les amplitudes des modes n associés aux ondes L diffusées dans la matrice.

Pour une population de diffuseurs plus concentrée, Lax [137] a considéré les interactions au deuxième ordre telles que le champ moyen conditionné par la présence d'une particule soit équivalent au champ moyen conditionné par la présence de deux particules voisines. Cette approximation, connue sous le nom de Quasi-Crystalline Approximation (QCA), est par conséquent moins forte que celle imposée par l'ISA. Fikioris et Watermann [138] ont étudié ce problème dans le cas de particules sphériques en imposant une condition de non-pénétrabilité appelée *hole correction*. Ce critère est introduit uniquement d'un point de vue mathématique afin d'extraire les singularités par un rayon d'exclusion minimal b vérifiant $b \geq 2R$, où R est le rayon de la particule. Ainsi, le nombre d'onde effectif prend la forme suivante

$$\left(\frac{k_L^{\text{eff}}}{k_L}\right)^2 = 1 - i \frac{3\phi_v}{(k_L R)^3} \delta_1 - i \left(\frac{3\phi_v}{(k_L R)^3}\right)^2 \frac{b}{R} \frac{\delta_2^L}{(k_L R)^2}, \quad (4.17)$$

où le coefficient longitudinal δ_2^L représente les effets de diffusion multiple du deuxième ordre en concentration et dépendent des effets de corrélation liés à la distance d'exclusion b . Comme δ_1 , ce coefficient dépend uniquement des amplitudes T_n^{LL} et est défini tel que

$$\delta_2^L = \frac{1}{2} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{\nu=0}^{\infty} \sum_{p=0}^{\infty} T_\nu^{LL} T_n^{LL} G_c(n,0,p,\nu) M_p(k_L b), \quad (4.18)$$

avec

$$\begin{cases} G_c(n,m,p,\nu) = (-1)^m (2n+1)(2\nu+1) G(m,\nu | m,n|p), \\ M_n(k_L b) = h_n^{(1)}(k_L b) \left[(n(n+1) - (k_L b)^2) j_n(k_L b) - k_L b j_n'(k_L b) \right] - (k_L b)^2 j_n'(k_L b) h_n'(k_L b). \end{cases} \quad (4.19)$$

où les expressions des coefficients $G(m,\nu | m,n|p)$, $G(m,\nu | m,n|p,q)$ et $a(\nu,n,p)$ issus du théorème d'addition sont données dans la référence [133].

Les équations (4.15) et (4.17) sont développées pour le cas des ondes acoustiques, c'est-à-dire où seules les ondes longitudinales peuvent exister dans le milieu de propagation effectif. Les ondes élastiques dans les solides ont été comparativement moins étudiées que les ondes acoustiques ou électromagnétiques. Ceci peut s'expliquer par plusieurs raisons. D'une part, les ondes élastiques sont des ondes vectorielles (contrairement aux ondes acoustiques dans les fluides) décrites par deux ou trois potentiels scalaires, et d'autre part, les ondes longitudinales et transverses sont couplées impliquant des conversions d'ondes à la surface de chaque diffuseur (contrairement aux ondes électromagnétiques).

Dans ce contexte, Luppé, Conoir et Norris [139] reprennent les équations de Fikioris et Waterman [138] en considérant le milieu de propagation comme élastique. L'équation de dispersion du milieu effectif proposée par les auteurs est issue de l'expression des potentiels moyens dans la base des harmoniques sphériques scalaires. Dans la continuité de ces travaux, Luppé, Conoir et Valier-Brasier [133] proposent une nouvelle approche basée sur l'expression du champ de déplacement moyen dans la base des harmoniques sphériques en utilisant le théorème d'addition vectoriel. Cette description, appelée ici LCVB, est plus générale que la précédente et tient compte de toutes les conversions d'ondes à l'ordre deux en concentration. Ainsi, le nombre d'onde effectif de l'onde cohérente longitudinale, compte tenu des conversions d'ondes, est donné par l'expression suivante :

$$\left(\frac{k_{LCVB}^{\text{eff}}}{k_L}\right)^2 = 1 - i\frac{3\phi_v}{(k_L R)^3}\delta_1 - i\left(\frac{3\phi_v}{(k_L R)^3}\right)^2 \frac{b}{R} \left[\frac{\delta_2^L}{(k_L R)^2} + \frac{\delta_2^T}{(k_L^2 - k_T^2)R^2} \right]. \quad (4.20)$$

où les coefficients du second ordre en concentration δ_2^T sont donnés par

$$\delta_2^T = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{p=0}^{\infty} T_{\nu}^{LT} T_n^{TL} G_a(n, 0, p, \nu) N_p(k_L, k_T), \quad (4.21)$$

avec

$$\begin{cases} G_a(n, m, p, \nu) = (-1)^{m+p} i^{\nu-n+p} (2\nu+1) G(m, \nu | -m, n | p) a(\nu, n, p), \\ N_n(k_L, k_T) = k_L b j_n'(k_L b) h_n^{(1)}(k_T b) - k_T b j_n(k_L b) h_n^{(1)'}(k_P b). \end{cases} \quad (4.22)$$

L'équation (4.20) est également étendue au cas d'une onde cohérente transverse par les mêmes auteurs. Le terme δ_2^T de cette équation représente les effets de diffusion d'ordre deux en concentration liés aux conversion des ondes transverses d'amplitudes T_n^{LT} diffusées dans la matrice.

L'utilisation du paramètre $b > 2R$ dans les modèles de diffusion multiple bidimensionnels [140, 141] conduit à lui donner un sens plus physique. En effet, Rohfritsch *et al.* [142] ont montré que ce paramètre est directement lié aux effets de corrélation sur une distribution de tiges cylindriques plongées dans l'eau, ce qui a conduit à préciser la notion de milieux corrélés à courtes portées (SRC, de l'anglais *Short Range Correlation*).

De manière générale, les réalisations expérimentales d'échantillons solides à particules denses sont rares dans la littérature. Fabriquer ces milieux tridimensionnels est une tâche complexe et la mesure des paramètres effectifs est délicate. Néanmoins, Kinra *et al.* [24] ont obtenu des résultats expérimentaux sur la vitesse de phase de l'onde longitudinale cohérente

d'échantillons de résine époxy chargés en billes de plomb et ont mis en avant l'influence de la résonance des billes sur le comportement de l'onde cohérente. Cependant, la méthode chronométrique qu'ils ont employée est peu précise et l'atténuation effective des échantillons ne peut pas être évaluée. Plus récemment, Duranteau *et al.* [28] ont réalisé des mesures d'ondes longitudinales cohérentes en immersion et en transmission à travers des échantillons de résine époxy chargés en billes de carbure de tungstène. Le nombre d'onde effectif expérimental est extrait à partir de la méthode de la différence de phase. Les auteurs ont obtenu des résultats expérimentaux en très bon accord avec le modèle de Luppé, Conoir et Norris qui tient compte des conversions.

Des mesures d'ondes cohérentes longitudinales ont été réalisées sur des échantillons ayant une matrice et des inclusions similaires, mais fabriqués suivant le protocole décrit dans la thèse de A. Simon [29] qui a apporté un contrôle bien plus précis de la répartition des billes dans la résine d'époxy. Les efforts conséquents employés pour concevoir ces échantillons ont permis de réaliser une étude approfondie de l'influence des corrélations spatiales entre les particules sur le comportement des ondes cohérentes longitudinale et transverse. Des mesures de c_L^{eff} et α_L^{eff} sont tracées sur la figure 4.3 dans un composite de résine époxy chargé à $\phi_v = 2\%$ de billes de tungstène distantes au minimum de $b = 4R$ les unes des autres. Ces résultats montrent une forte dispersion sur la vitesse et un pic d'atténuation à la résonance qui est attendue théoriquement à $f_{\text{res}} = 495$ kHz. En plus de la nécessité de tenir compte des conversions, les corrélations spatiales entre les particules jouent un rôle important sur le comportement des paramètres effectifs et le modèle LCVB intègre ces effets.

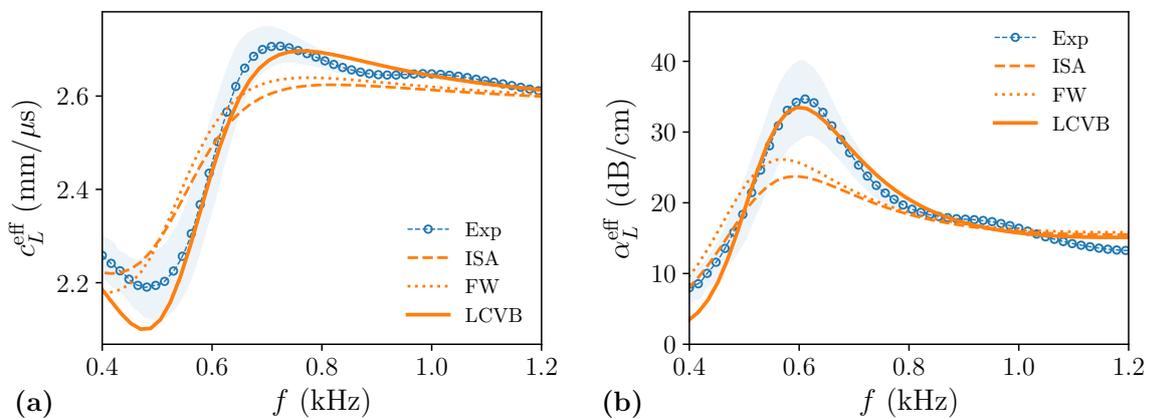


Figure 4.3 – Comparaison entre les résultats expérimentaux (a) de vitesse et (b) d'atténuation et les formules (4.15) de Foldy (ISA), (4.17) de Fikioris et Waterman (FW) et (4.20) de Luppé, Conoir et Valier-Brasier (LCVB), pour un échantillon de résine époxy chargé à 2 % de billes de tungstène.

4.1.3.2 Modélisation de la densité effective

Basé sur la modélisation de Waterman et Truell [27], Artiségui *et al.* [143] ont fourni une première expression de la densité effective d'un milieu faiblement concentré en particules dispersées dans une matrice fluide. Par ailleurs, Fikioris et Waterman [138] ont donné une expression de la masse volumique effective à partir de la modélisation du coefficient de

réflexion à une interface entre le milieu hôte et le milieu homogénéisé telle que

$$r = -\frac{6\phi_v}{4ik_L^2(k_L^{\text{eff}} + k_L)R^3} \sum_n (-1)^n (2n+1) A_n^0 T_n^{LL}. \quad (4.23)$$

où A_n^0 sont les amplitudes du développement en harmoniques sphériques de l'onde cohérente. En tronquant les sommes aux deux premiers modes, il vient :

$$r = -\frac{3\phi_v}{2ik_L^2 R^3 (k_L^{\text{eff}} + k_L)} \left(A_0^0 T_0^{LL} - 3A_1^0 T_1^{LL} \right). \quad (4.24)$$

En régime basse fréquence, c'est-à-dire lorsque $k_L R \ll 1$, les amplitudes du champ cohérent s'écrivent

$$\begin{cases} A_0^0 = \frac{2k_L^2 k_L^{\text{eff}} R^3}{(k_L R)^3 + k_L^2 k_{\text{eff}} R^3 - 3i\phi_v T_n^{LL}}, \\ A_1^0 = A_0^0 \frac{k_L^2 k_L^{\text{eff}} R^3}{(k_L R)^3 - 3i\phi_v T_n^{LL}}. \end{cases} \quad (4.25)$$

En supposant que le coefficient de réflexion r à l'interface entre la matrice et le milieu effectif s'écrive

$$r = \frac{\rho^{\text{eff}} k_L - \rho k_L^{\text{eff}}}{\rho^{\text{eff}} k_L + \rho k_L^{\text{eff}}}, \quad (4.26)$$

la densité effective peut être calculée à partir de l'équation (4.24) telle que

$$\frac{\rho^{\text{eff}}}{\rho} = \frac{k_L^{\text{eff}}}{k_L} \frac{1-r}{1+r}. \quad (4.27)$$

où le nombre d'onde effectif k_L^{eff} peut être modélisé suivant l'approche de Fikioris et Waterman (4.17) ou Luppé *et al.* (4.20)

A ce jour, il n'existe pas de modélisation de la densité effective de particules élastiques sphériques enfouies dans une matrice élastique ou visco-élastique, où les conversions affectent sensiblement la propagation. Cela nécessite des développements théoriques supplémentaires qui n'ont pas encore été faits. La modélisation proposée par Fikioris et Waterman semble être la plus aboutie dans le cas de particules sphériques enfouies dans une matrice fluide. Ainsi, la formule (4.27) sera discutée ultérieurement dans le chapitre pour confronter des résultats numériques et expérimentaux dans des échantillons de polyuréthane chargés en billes d'acier.

4.2 Conception et optimisation des échantillons

Le dispositif utilisé pour fabriquer les échantillons chargés en billes de manière contrôlée et reproductible a été conçu et réalisé dans le cadre de la thèse de A. Simon [29]. Il a été modifié et amélioré dans le cadre de cette thèse en collaboration avec Jean-Marie Citerne, ingénieur de recherche au laboratoire. Le protocole de fabrication est adapté à la résine PU utilisée ici, et le contrôle de la répartition des billes ainsi que sa quantification a été améliorée.

4.2.1 Protocole de fabrication

Les échantillons sont constitués de billes d'acier enfouies dans une matrice visco-élastique. Leur fabrication est réalisée couche par couche dans un moule cylindrique de diamètre 100

mm de hauteur réglable, présenté sur la figure 4.4. Ce moule a la particularité d'être fabriqué dans du polyoxyméthylène (POM), un polymère auquel les résines adhèrent généralement peu, ce qui facilite le démoulage des échantillons.

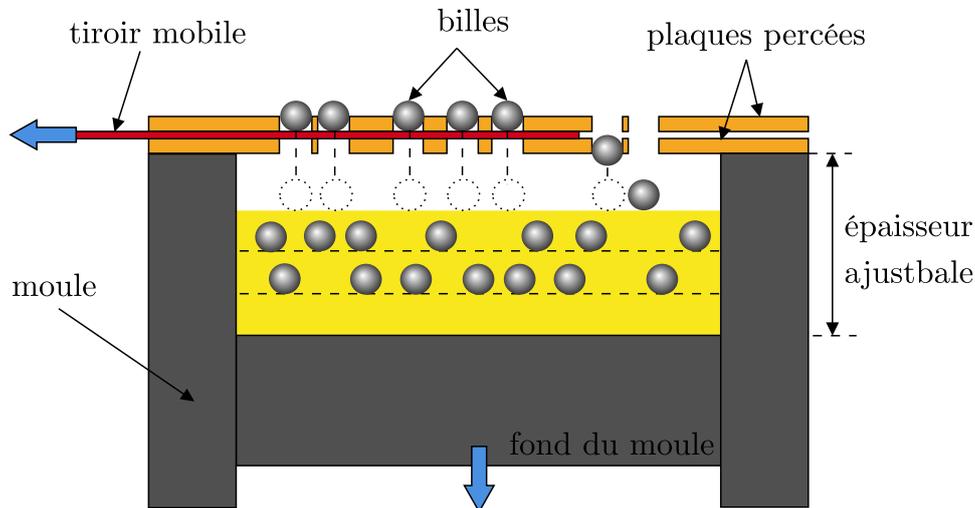


Figure 4.4 – Schéma du moule à épaisseur variable intégré du dispositif de chute de billes permettant de les déposer à l'endroit souhaité grâce au retrait du tiroir.

La technique de fabrication consiste à déposer des couches de billes successives dans le moule. A chaque étapes de fabrication mentionnée ci-après, le PU est parallèlement dégazé. Tout d'abord, une couche de PU encore liquide est versée dans le moule dont la hauteur est réglée de manière à recevoir cette première couche. La quantité de polymère déposée est volontairement excessive de sorte à pouvoir retirer l'excédent au bord du moule à l'aide d'une raclette. Le moule est ensuite abaissé à la profondeur souhaitée et un dispositif de chute de billes amovible est monté au-dessus de celui-ci. Ce dispositif est fait de deux plaques identiques de laiton percées de trous de $450\ \mu\text{m}$ de diamètre à des positions contrôlées. Ces deux plaques sont mises en regard l'une de l'autre et une fine plaque d'aluminium de $50\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, appelée tiroir, est insérée entre celles-ci. Chaque trou de la plaque percée supérieure est rempli par une seule bille de diamètre $397\ \mu\text{m}$, et la présence du tiroir les empêche de tomber. Ensuite, le tiroir est retiré lentement de sorte à libérer les particules et les faire tomber naturellement par gravité sur la couche de PU solidifié mais encore collante, à travers les trous de la plaque inférieure. Le moule est abaissé d'une épaisseur e bien déterminée (voir section suivante) avant de faire chuter les billes afin que la hauteur soit suffisamment faible pour que les billes adhèrent à l'endroit de leur impact sans rouler ni rebondir. Ensuite, une autre couche de PU liquide est versée en excès dans le moule afin de former une couche d'épaisseur e contrôlée en évacuant l'excédent à l'aide de la raclette. Cette procédure est répétée afin de former plusieurs couches de PU chargées, mais le dispositif de chute de billes est tourné de façon aléatoire entre chaque dépôt de billes. Grâce à ces dispositifs, on peut contrôler précisément la répartition des billes dans chaque couche de l'échantillon, ainsi que la distance entre deux couches successives notée e dans la suite.

Le fait que les échantillons chargés soient fabriqués couche par couche implique que la répartition des billes est intrinsèquement inhomogène et anisotrope. Dans la suite, on cherche à quantifier le degré d'inhomogénéité et d'anisotropie des échantillons afin de concevoir des distributions aussi homogènes et isotropes que possible.

4.2.2 Contrôle de la répartition des billes au sein d'une couche

Les paramètres contrôlés au cours du processus de fabrication d'un échantillon sont le nombre N_p de billes par couche, le nombre N_l de couches et leur épaisseur e représentée sur la figure 4.5. Le nombre de billes N_p est lié à la concentration surfacique ϕ_s des trous dans la plaque du dispositif de chute des billes telle que

$$\phi_s = N_p \left(\frac{R}{R_d} \right)^2 \quad (4.28)$$

où $R_d = 49$ mm est le rayon de la plaque circulaire trouée.

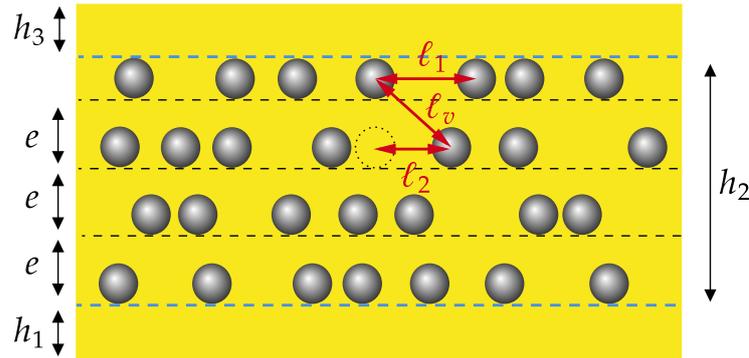


Figure 4.5 – Schéma d'une coupe latérale d'un échantillon.

Pour chaque échantillon, une première couche fine de PU d'épaisseur h_1 est déposée au début du processus de fabrication pour fixer le premier plan des billes. En raison de la technique expérimentale de mesure et du traitement du signal employé pour extraire les paramètres effectifs d'un échantillon chargé, ce dernier ne nécessite pas d'être symétrique par rapport à son plan médian. De cette façon, la dernière couche de PU d'épaisseur h_3 déposée sur le dessus de chaque échantillon peut être différente de h_1 tant que celles-ci sont bien contrôlées. L'épaisseur totale de l'échantillon est $h = h_1 + h_2 + h_3$. Si les épaisseurs h_1 et h_3 sont faibles devant h_2 , une première définition de la fraction volumique des billes dans les échantillons est ϕ_v^{min} , définie comme :

$$\phi_v^{min} = \frac{4N_l N_p R^3}{3R_d^2 h} = \frac{4N_l R}{3h} \phi_s, \quad (4.29)$$

Lorsque les épaisseurs h_1 et h_3 sont grandes, on peut utiliser une autre définition de la fraction volumique des billes ϕ_v^{max} , définie comme suit :

$$\phi_v^{max} = \frac{4N_l R}{3h_2} \phi_s, \quad (4.30)$$

avec $h_2 = (N_l - 1)e + 2R$. Par ailleurs, dans la limite des grandes valeurs de N_l , c'est-à-dire tant que ϕ_v^{min} et ϕ_v^{max} convergent vers la même valeur, la concentration volumique ϕ_v est définie comme :

$$\phi_v = \frac{4R}{3e} \phi_s. \quad (4.31)$$

Le programme de génération des distributions aléatoires est utilisé avec la bibliothèque *numpy* de Python et intègre une distance minimale entre les plus proches voisins. Un exemple de distribution ciblée générée numériquement est représenté sur la figure 4.6a. Pour cette distribution, la concentration surfacique est $\phi_s = 7,71\%$, le nombre de billes $N_p = 1214$, et la distance d'exclusion $b = 2,3R$. La distribution des billes dans une seule couche de PU unique réalisée à l'aide du dispositif de chute de billes est représentée sur la figure 4.6b. Cette distribution est obtenue en traitant l'image d'un échantillon à l'aide du logiciel ImageJ et de la bibliothèque Python *trackpy*. Des grossissements des zones encadrées en rouge sont représentés respectivement sur les figures 4.6c et 4.6d. La comparaison de ces visuels avec ces deux distributions permet de conclure que les billes dans la couche de PU sont qualitativement proches des positions ciblées. Néanmoins, une bille (en rouge) est présente dans l'échantillon à une position non désirée.

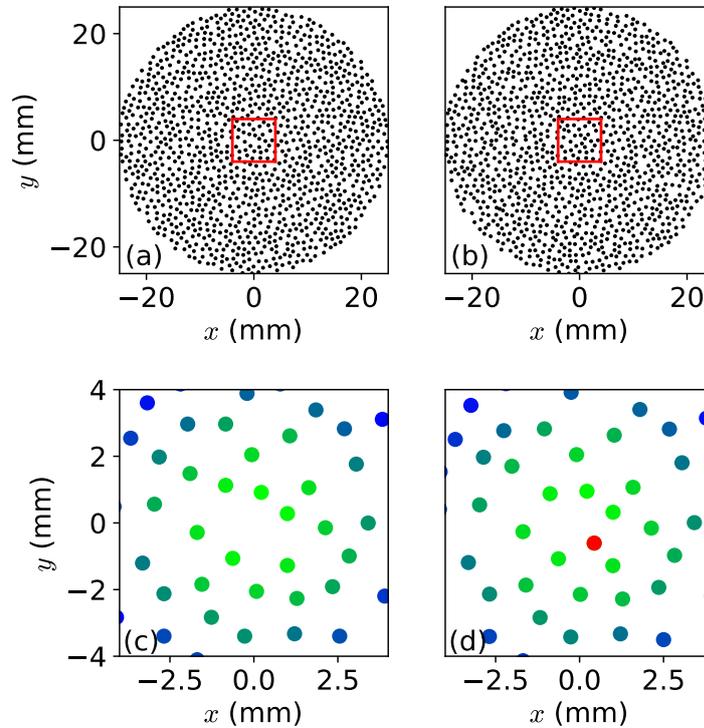


Figure 4.6 – (a) Une distribution ciblée correspondant à $\phi_s = 7,71\%$, $N_p = 1214$, et $b = 2,3R$ et (b) la distribution de billes résultante. Les figures (c) et (d) sont des agrandissements des zones encadrées en rouge sur les figures (a) et (b).

Afin de quantifier la précision du processus de positionnement des billes, la distribution de l'erreur de positionnement δ_i est calculée. Cette fonction est définie comme la distance entre l'emplacement ciblé $\mathbf{x}_i^{(t)}$ de la bille indexée par i et son emplacement réel $\mathbf{x}_i^{(e)}$, $i = 1$ à N_p , normalisé par le rayon R de la bille, et s'exprime comme :

$$\delta_i = \frac{1}{R} \sqrt{(\mathbf{x}_i^{(e)} - \mathbf{x}_i^{(t)})^2} \quad (4.32)$$

La distribution δ_i , $i = 1$ à N_p est représentée sur la figure 4.7. Cet histogramme nous renseigne que plus de 2/3 des billes sont positionnées avec une erreur relative inférieure à 10 %, ce qui démontre la précision du positionnement des billes au sein d'une couche.

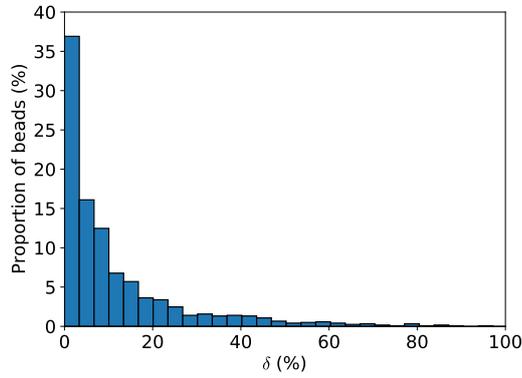


Figure 4.7 – Histogramme des erreurs de positionnement relatives des billes.

4.2.3 Isotropie des échantillons

A des fins de comparaison avec les modèles de diffusion multiple, il est souhaitable de réaliser des répartitions aléatoires volumiques des particules les plus proches possibles d'une vraie distribution tridimensionnelle et isotrope. Ainsi, l'épaisseur e de chaque couche et la fraction surfacique ϕ_s des billes doivent être choisies de manière judicieuse. La distance d'exclusion b_{3D} étant définie comme la distance minimale entre les centres des billes les plus proches, la distance moyenne ℓ_v^{3D} entre deux sphères les plus proches dans une distribution aléatoire 3D parfaitement homogène et isotrope est [144] :

$$\ell_v^{3D}(\phi_v) = b_{3D} \left(1 + \frac{e^{(b_{3D}/R)^3 \phi_v}}{3 \sqrt[3]{(b_{3D}/R)^3 \phi_v}} \Gamma \left[\frac{1}{3}, \left(\frac{b_{3D}}{R} \right)^3 \phi_v \right] \right), \quad (4.33)$$

La fonction Γ est la fonction gamma incomplète :

$$\Gamma(a, x) = \int_x^\infty t^{a-1} e^{-t} dt. \quad (4.34)$$

Cependant, le processus de fabrication couche par couche conduit à réaliser des échantillons intrinsèquement anisotropes et inhomogènes. Afin d'obtenir une distribution de billes aussi proche que possible d'une distribution aléatoire 3D, homogène et isotrope, le critère choisi est de rendre égale la distance moyenne ℓ_1 entre deux billes voisines appartenant à la même couche et la distance moyenne ℓ_v entre deux billes voisines appartenant à deux

couches successives (voir figure 4.6). Puisque les billes situées dans une même couche sont impénétrables, ℓ_1 est donné par [144] :

$$\ell_1(\phi_s) = R \frac{e^{\phi_s (b_{2D}/R)^2}}{\sqrt{\phi_s}} \Gamma \left(\frac{3}{2}, \left(\frac{b_{2D}}{R} \right)^2 \phi_s \right). \quad (4.35)$$

où b_{2D} représente la distance d'exclusion au sein d'une couche, c'est-à-dire la distance minimale entre les centres des billes les plus proches au sein de la même couche. D'autre part, la distance moyenne ℓ_v entre deux billes voisines appartenant à deux couches successives satisfait :

$$\ell_v(e, \phi_s) = \sqrt{e^2 + [\ell_2(\phi_s)]^2}, \quad (4.36)$$

où la distance moyenne ℓ_2 entre les projections perpendiculaires aux couches de deux billes voisines appartenant à deux couches voisines est donnée par :

$$\ell_2(\phi_s) = \frac{R}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\phi_s}}. \quad (4.37)$$

L'épaisseur optimale e_1 , pour laquelle la distribution volumique est aussi isotrope que possible, est définie par $\ell_v(e_1, \phi_s) = \ell_1(\phi_s)$. En résolvant cette équation, on obtient les valeurs optimales de e_1 et ϕ_s . Ensuite, une distribution aléatoire 2D de points N_p avec la distance minimale b entre chaque point est calculée et les deux plaques en laiton du dispositif de chute de billes sont percées avec cette distribution. La figure 4.8 montre les variations des distances ℓ_1 , ℓ_v et ℓ_v^{3D} en fonction de l'épaisseur de la couche e pour $\phi_v = 2\%$. Pour une telle concentration, l'épaisseur optimale des couches d'époxy est $e_1 = 0,45$ mm. Idéalement, les trois distances moyennes ℓ_1 , ℓ_v et ℓ_v^{3D} devraient être égales, mais ceci est irréalisable en pratique. En effet, en imposant $b_{2D} = 2R$, l'égalité $\ell_v = \ell_v^{3D}$ ne peut être satisfaite que pour des concentrations ϕ_v supérieures à 22%. Néanmoins, en imposant $b_{2D} > 4.5R$, l'égalité $\ell_v = \ell_v^{3D}$ peut être satisfaite pour deux valeurs de e et la plus proche de e_1 est choisie pour être une autre épaisseur optimale, notée e_2 . Des valeurs plus grandes de b permettent donc de se rapprocher des valeurs de ℓ_1 , ℓ_v et ℓ_v^{3D} , ce qui implique que b_{2D} est un paramètre clé pour approcher une distribution isotrope et homogène. Par exemple, sur la figure 4.8 pour $e = e_1$, on a $\ell_v/\ell_v^{3D} = 1,1$ si $b = 5R$ alors que $\ell_v/\ell_v^{3D} = 1,5$ si $b = 2R$.

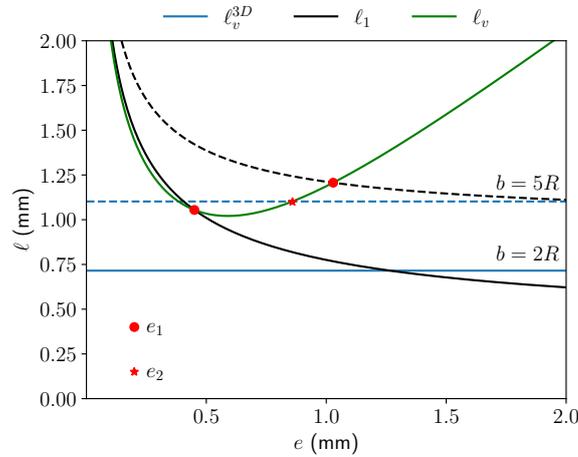


Figure 4.8 – Distances caractéristiques ℓ_1 , ℓ_v , et ℓ_v^{3D} en fonction de l'épaisseur e pour la fraction volumique $\phi_v = 2\%$ (voir texte pour leurs définitions). Les courbes pleines correspondent à la distance d'exclusion $b_{2D} = 2R$ et les courbes en pointillés à $b_{2D} = 5R$.

4.2.4 Corrélations spatiales

L'augmentation de la distance d'exclusion b réduit la liberté de position des particules, induisant ainsi des corrélations à courte portée entre diffuseurs [145]. La distance d'exclusion minimale $b_{2D}^{\min} = 2R$ correspond à une condition de non-recouvrement et la distance maximale est définie par $b_{2D}^{\max} \approx 2R\sqrt{0.907\phi_s}$ et correspond à une distribution périodique avec une maille hexagonale. Le paramètre b est fixé par la distribution des trous du dispositif de chute de billes, mais il ne coïncide pas avec la distance d'exclusion b_{3D} d'une dispersion aléatoire 3D. L'objectif est de quantifier l'influence de la distance d'exclusion b_{2D} et de l'épaisseur e sur les corrélations spatiales des diffuseurs. De cette façon, la fonction de corrélation de paires $g(r)$ est calculée pour trois distributions correspondant à la même fraction volumique $\phi_v = 2\%$ et à différentes valeurs de b et e , à savoir $(b_{2D} = 2R, e = e_1)$, $(b_{2D} = 5R, e = e_1)$, et $(b_{2D} = 5R, e = e_2)$. La fonction $g(r)$ correspondant à $(b_{2D} = 2R, e = e_1)$ est tracée en fonction du rayon sans dimension r/R sur la figure 4.9a et est comparée à la fonction de corrélation de paires d'une distribution aléatoire 3D correspondant à $b_{3D} = 2R$ à la même fraction volumique. Pour la distribution 3D, la fonction de corrélation de paires n'a que deux valeurs caractéristiques, *i.e.* $g(r) = 0$ si $r < 2R$, et $g(r) = 1$, sinon. Cela correspond à la fonction de corrélation de paires associée à la *hole correction*. Dans le cas des échantillons fabriqués, la fonction $g(r)$ présente des pics et des creux périodiques. De plus, au voisinage de $r \approx 2R$, la fonction g présente un maximum assez conséquent, dont l'influence sur la propagation des ondes élastiques peut être sensible. Pour de petites valeurs de b_{2D} , les échantillons fabriqués peuvent donc présenter des corrélations spatiales. La variation en fonction du rayon sans dimension r/R des fonctions de corrélation de paires des distributions correspondant à $(b_{2D} = 5R, e = e_1)$ et $(b_{2D} = 5R, e = e_2)$ sont tracées sur la figure 4.9b. Elles sont comparées à la fonction de corrélation de paire théorique d'une distribution aléatoire 3D correspondant à $b_{3D} = 5R$ et à la même fraction volumique. Comme sur la figure 4.9a, dans le cas des échantillons fabriqués, g présente des pics et des creux réguliers. Au voisinage de $r \approx 5R$, les trois courbes de g présentent un maximum. Néanmoins, la valeur de ce maximum est la même pour la distribution 3D que pour la distribution correspondant à $e = e_2$ et est inférieure à celle de la distribution correspondant à $e = e_1$. Le choix de e_1 pour e peut entraîner des corrélations spatiales plus fortes que celles observées pour e_2 .

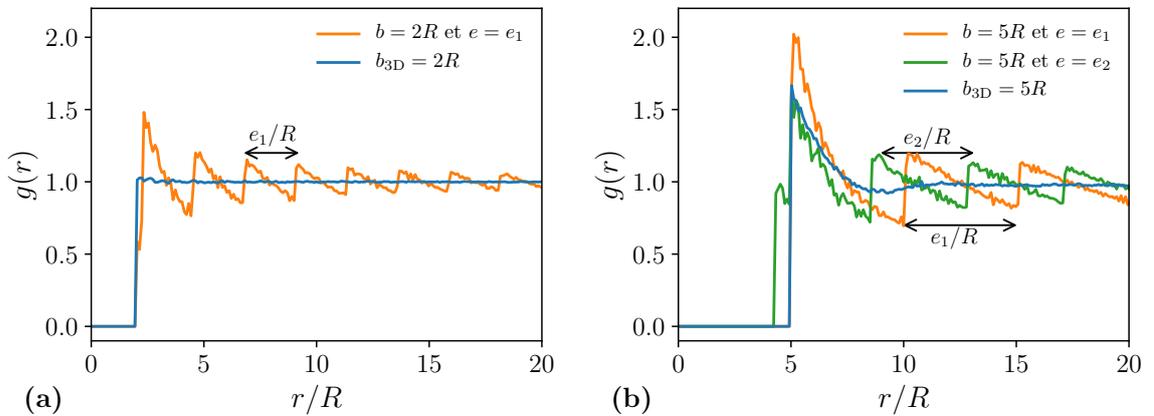


Figure 4.9 – Fonction de corrélation de paires $g(r)$ en fonction de r/R des distributions correspondant à $\phi_v = 2\%$ et à différentes valeurs de b_{2D} et e , à savoir (a) $b_{2D} = 2R, e = e_1$, (b) $b_{2D} = 5R, e = e_1$ et $b_{2D} = 5R, e = e_2$, comparées aux fonctions $g(r)$ de distributions aléatoires 3D correspondantes.

Les travaux de l'équipe, soumis pour relecture [130], conduisent à étudier précisément l'influence du paramètre d'exclusion b_{2D} sur le comportement de l'onde cohérente longitudinale. Dans ce contexte, trois échantillons de résine époxy chargés de trois couches de billes de carbure de tungstène, tous caractérisés par $\phi_v^{moyen} \approx 2\%$ sont fabriqués avec différentes distances d'exclusion $b_{2D} = 3R, 4R$ et $5R$. Les variations de la vitesse de phase effective et de l'atténuation des ondes cohérentes mesurées en fonction de la fréquence dans ces quatre échantillons sont représentées sur la figure 4.10. Plus la distance d'exclusion $b = b_{2D}$ est grande, plus la dispersion de la vitesse de phase et le pic d'atténuation au voisinage de f_{res} sont importants. Le modèle de diffusion multiple (4.20) restitue remarquablement bien l'effet des corrélations à courte portée sur la propagation des ondes longitudinales, sans avoir à introduire la fonction de corrélation de paires $g(r)$. Ces corrélations amplifient donc l'effet des résonances dipolaires sur la propagation de l'onde cohérente longitudinale. Par conséquent, l'utilisation des corrélations à courte portée entre les diffuseurs est une piste intéressante afin d'augmenter l'amortissement dans ce type de matériaux hétérogènes, ce qui est pertinent pour les applications à la furtivité sous-marine.

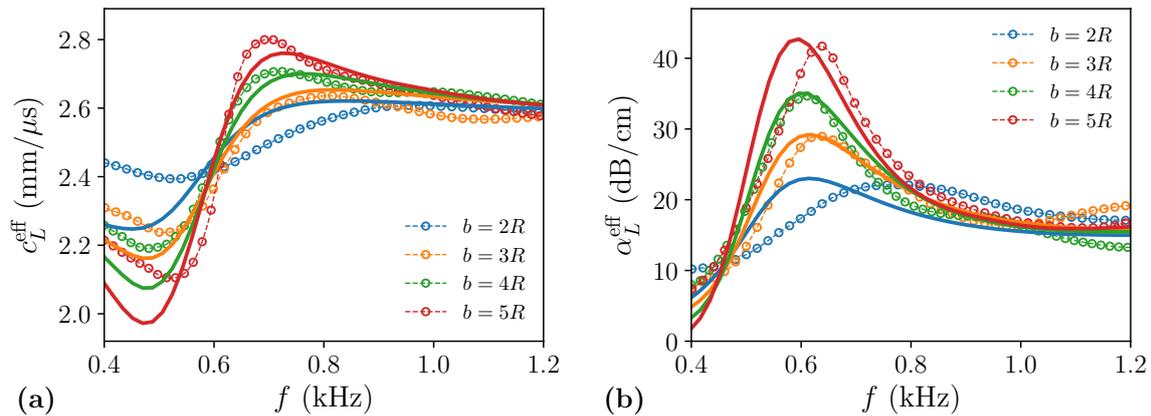


Figure 4.10 – Mesures de (a) la vitesse de phase et (b) l'atténuation des ondes longitudinales cohérentes dans des échantillons d'époxy chargés en billes à 2 % et fabriqués avec une distance d'exclusion croissante $b_{2D} = 3R, 4R$ et $5R$. Comparaison avec la prédiction du modèle (4.20).

4.3 Mesures du nombre d'onde effectif

Dans ce qui suit, les mesures ultrasonores d'ondes longitudinales sont effectuées sur des échantillons chargés à environ $\phi_v = 8\%$ de billes d'innox. Cette concentration volumique est calculée par la loi de mélange $\rho_{eq} = (1 - \phi_v)\rho + \rho_p\phi_v$ de sorte à fixer la masse volumique équivalente des échantillons autour de $\rho_{eq} \simeq 1500 \text{ kg.m}^{-3}$. Les expériences sont réalisées en transmission en immersion à différentes températures avec le banc expérimental présenté au chapitre 1. La paire de transducteurs piézoélectriques de fréquence centrale $f_c = 500 \text{ kHz}$ est utilisée car leur bande passante est suffisante pour solliciter les échantillons chargés à leur fréquence de résonance prédite entre 55 et 75 kHz dans la gamme de température 5 – 35 °C.

4.3.1 Mesures des paramètres effectifs

En incidence normale, le spectre du train d'onde plane ayant traversé l'échantillon de PU chargé a pour expression

$$\hat{S}_h(\omega) = S(\omega)A_e(\omega)A_r(\omega)e^{-ik_0(l_1+l_2)}\mathcal{T}^{\text{exp}}(\omega), \quad (4.38)$$

où $S(\omega)$ est le spectre du signal électrique alimentant l'émetteur, $A_e(\omega)$ et $A_r(\omega)$ sont respectivement les coefficients de transduction électro-mécanique et mécano-électrique, $k_0 = \omega/c_0$ le nombre d'onde dans l'eau supposé réel, l_1 et l_2 sont respectivement les distances émetteur-échantillon et échantillon-récepteur. $\mathcal{T}^{\text{exp}}(\omega)$ est le coefficient de transmission acoustique de l'échantillon qui dépend des coefficients de réflexion et de transmission en contraintes aux interfaces.

De la même manière, le spectre du train d'onde plane se propageant uniquement dans l'eau s'écrit

$$\hat{S}_0(\omega) = S(\omega)A_e(\omega)A_r(\omega)e^{-ik_0d}, \quad (4.39)$$

où $d = l_1 + h + l_2$ est la distance émetteur-récepteur, et h l'épaisseur totale de l'échantillon (ici absent). Le rapport de ces deux spectres permet de déterminer le coefficient de transmission de l'échantillon

$$\mathcal{T}^{\text{exp}}(\omega) = \frac{\hat{S}_h(\omega)}{\hat{S}_0(\omega)}e^{ik_0h}. \quad (4.40)$$

Pour extraire le nombre d'onde effectif du PU chargé $k_L^{\text{eff}}(\omega)$ à partir de la mesure de la transmission, plusieurs méthodes sont possibles. Puisque les couches amont et aval des échantillons chargés sont épaisses, il faut tenir compte de la propagation dans cinq milieux : eau, PU, PU chargés, PU, eau. La méthode de la différence de phase n'est pas retenue ici puisque il n'est pas certain que les échos successifs dans l'échantillon ne se recouvrent pas. Le modèle d'interférences Fabry-Perot est donc choisi pour décrire \mathcal{T}^{exp} . Ainsi, l'expression théorique des coefficients de transmission et de réflexion d'une onde plane incidente propagée dans un milieu à cinq couches (figure 4.11) est la suivante [50] :

$$\mathcal{T}^{\text{th}} = \frac{T_{34}t_{45}e^{-ik_Lh_3}}{1 - r_{45}R_{43}e^{-2ik_Lh_3}}, \quad \text{et} \quad \mathcal{R}^{\text{th}} = R_{21} + \frac{R_{43}T_{34}t_{45}e^{-ik_Lh_3}}{1 - r_{45}R_{43}e^{-2ik_Lh_3}} \quad (4.41)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} T_{34} = \frac{T_{23}t_{34}e^{-ik_L^{\text{eff}}h_2}}{1 - r_{34}R_{32}e^{-2ik_L^{\text{eff}}h_2}} \\ T_{23} = \frac{T_{12}t_{23}e^{-ik_Lh_1}}{1 - r_{23}R_{21}e^{-2ik_Lh_1}}, \\ T_{12} = t_{12}, \end{array} \right. \quad \text{et} \quad \left\{ \begin{array}{l} R_{43} = r_{43} + \frac{t_{43}R_{32}t_{34}e^{-2ik_L^{\text{eff}}h_2}}{1 - r_{34}R_{32}e^{-2ik_L^{\text{eff}}h_2}}, \\ R_{32} = r_{32} + \frac{t_{32}R_{21}t_{23}e^{-2ik_Lh_1}}{1 - r_{23}R_{21}e^{-2ik_Lh_1}}, \\ R_{21} = r_{21}, \end{array} \right. \quad (4.42)$$

où h_1 et h_3 sont respectivement les épaisseurs de PU sans billes amont et aval où le nombre d'onde longitudinal k_L est déterminé à partir du modèle Kelvin-Voigt fractionnaire établi dans le chapitre précédent à la température T . h_2 est l'épaisseur du PU chargé et k_L^{eff} le nombre d'onde effectif recherché. Les expressions des coefficients de réflexion r_{nm} et de transmission t_{nm} à l'interface entre le milieu n et le milieu m sont définies par l'équation (2.10).

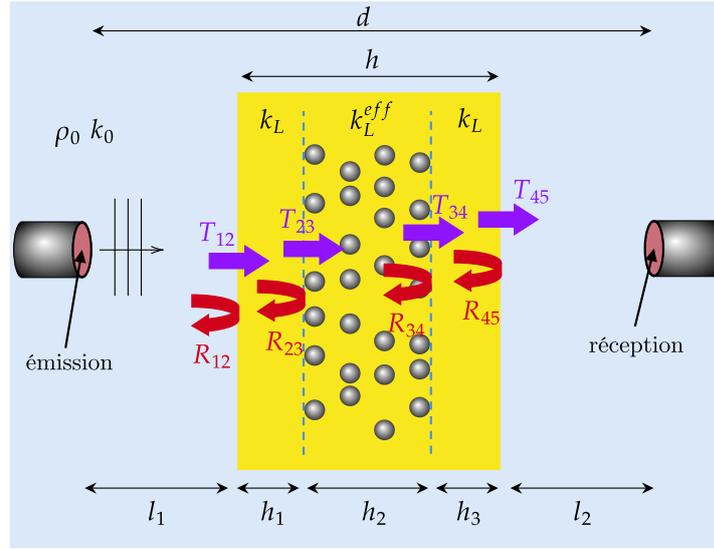


Figure 4.11 – Modèle d'interférences unidimensionnel à cinq milieux de propagation.

Afin de déterminer le nombre d'onde effectif $k_L^{\text{eff}}(\omega)$ dans le PU chargé, il s'agit de mesurer les valeurs de la vitesse de phase effective c_L^{eff} et de l'atténuation effective α_L^{eff} telles que $\mathcal{T}^{\text{th}} = \mathcal{T}^{\text{exp}}$ à chaque fréquence ω . Dans la pratique, il s'agit de déterminer les valeurs de c_L^{eff} et α_L^{eff} telles que l'erreur $\varepsilon(\omega)$ définie comme suit est minimale :

$$\varepsilon(\omega) = \left| \mathcal{T}^{\text{th}}(c_L^{\text{eff}}, \alpha_L^{\text{eff}}, \omega) - \mathcal{T}^{\text{exp}}(\omega) \right|^2 \quad (4.43)$$

Pour cela, la fonction erreur ε est évaluée à chaque fréquence pour c_L^{eff} et α_L^{eff} parcourant respectivement les intervalles $[1, 0 - 2, 0] \text{ mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$ et $[1 - 20] \text{ dB} \cdot \text{cm}^{-1}$ et ses minima sont recherchés. Contrairement au problème inverse posé dans le chapitre 2 pour extraire k_T d'un échantillon de PU fin, la figure 4.12 montre qu'une seule solution apparaît dans le plan des paramètres recherchés. De cette façon, cet unique minimum est traqué pour toutes les fréquences.

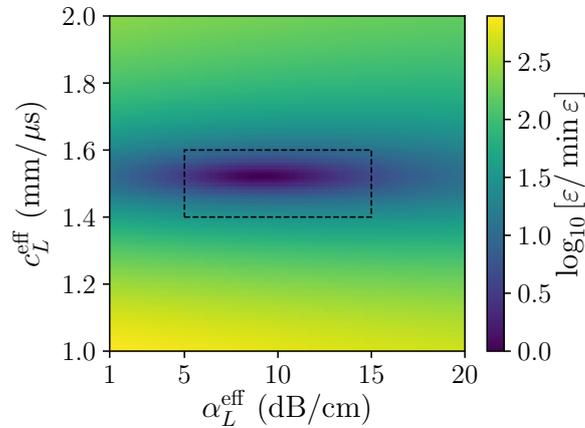


Figure 4.12 – Variation du logarithme décimal de l'erreur relative $\varepsilon / \min \varepsilon$ en fonction de c_L^{eff} et α_L^{eff} à la fréquence centrale f_c . Le cadre en pointillé entoure le minimum.

4.3.2 Influence du nombre de plans

Il est intéressant d'observer le comportement effectif du matériau composite en fonction du nombre de plans de billes N_l . Ceci permet de déterminer le nombre minimum de plans nécessaire pour obtenir des propriétés effectives indépendantes du nombre de plans. Dans ce but, trois échantillons sont conçus contenant respectivement $N_l = 1, 2$ et 3 couches de billes. Chaque couche contient $N_p = 8900$ billes, ce qui implique une concentration surfacique $\phi_s = 14,61$ %. Pour tous ces échantillons fabriqués, la distance d'exclusion est $b_{2D} = 2,3R$ et l'épaisseur e entre chaque couche correspond à l'épaisseur optimale $e_2 = 0,498$ mm calculée en utilisant une fraction volumique fixée à $\phi_v = 8$ %. Les valeurs des différents paramètres caractérisant les échantillons sont données dans le tableau 4.1.

Paramètres	h (mm)	ϕ_v^{\min} (%)	h_2 (mm)	ϕ_v^{\max} (%)
1 couche	5,90	0,65	0,4	9,66
2 couches	6,40	1,21	1,0	7,73
3 couches	7,17	1,62	1,57	7,38

Tableau 4.1 – Paramètres des échantillons utilisés. La fraction volumique visée est de $\phi_v = 8$ % et la distance d'exclusion est de $b_{2D} = 2,3R$.

Les mesures du coefficient de transmission expérimental \mathcal{T}^{exp} à travers ces trois échantillons sont présentées par des symboles sur la figure 4.13 en fonction de la fréquence pour une température de $T = 5$ °C. La reconstruction du problème inverse est également représentée en traits pleins pour tous les échantillons et confirme la précision de l'inversion. Ces mesures de transmission à travers les échantillons chargés sont également comparées à celle d'un échantillon de PU sans billes. On observe d'une part l'influence du chargement, d'autre part une convergence avec le nombre de plan utilisés.

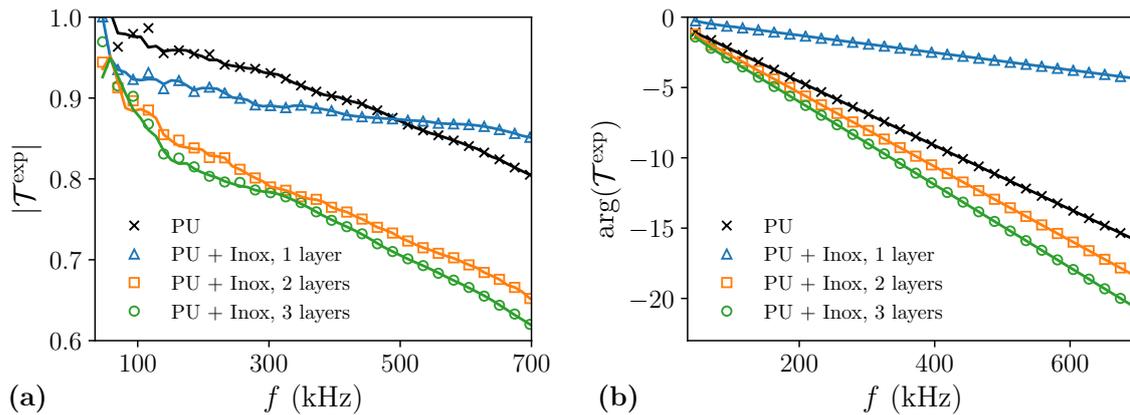


Figure 4.13 – Influence du nombre de plan de billes sur (a) le module et (b) la phase du coefficient de transmission \mathcal{T}^{exp} des échantillons de PU chargés et comparaison avec un PU non chargé (représentés en symboles). La reconstruction du problème inverse est également représentée pour chacun des échantillons (représentés en traits pleins).

Afin de confirmer que trois plans de billes sont suffisants pour obtenir un comportement homogène, il est intéressant d'observer le comportement des paramètres effectifs en fonction du nombre de couches de billes (figures 4.14). Les variations de la vitesse de phase effective

c_L^{eff} et de l'atténuation effective α_L^{eff} des échantillons chargés confirment qu'il faut réaliser des échantillons contenant au minimum trois couches de billes. Enfin, le modèle Kelvin-Voigt déterminé sur la mesure de $b_T^M M(a_T(T, T_{\text{ref}})f, T)$ à $T_{\text{ref}} = 5\%$ dans le chapitre précédent est également représenté et présente un accord très satisfaisant avec la mesure dans le PU qui ne contient pas de billes.

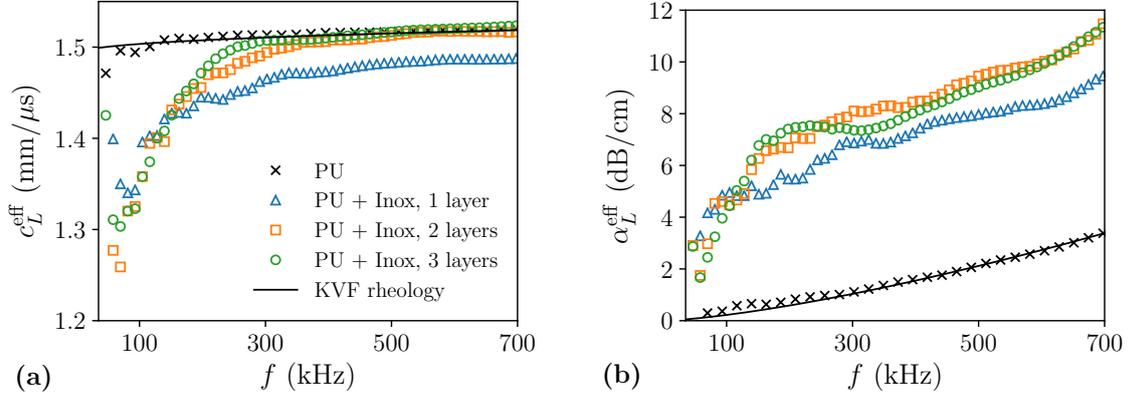


Figure 4.14 – Variations des paramètres effectifs d'un échantillon de PU chargé à environ $\phi_v = 8\%$, en fonction du nombre de plans de billes d'inox. (a) Vitesse de phase et (b) atténuation.

4.3.3 Influence de la température

Les variations des coefficients de transmission \mathcal{T}^{exp} d'un échantillon de PU chargé à environ $\phi_v = 8\%$ et d'un échantillon de PU non chargé sont tracées sur la figure 4.15a et 4.15b en fonction de la fréquence, à respectivement $10\text{ }^\circ\text{C}$ et $25\text{ }^\circ\text{C}$. En comparaison, les paramètres effectifs calculés à partir des modèles de diffusion multiple LCVB et FW sont injectés dans le modèle d'interférences Fabry-Perot cinq couches (4.41), compte tenu de la rhéologie Kelvin-Voigt fractionnaire du PU déterminée au chapitre précédent pour ces deux températures. Le modèle LCVB décrit mieux que FW la transmission de l'onde cohérente par ce milieu composite à matrice visco-élastique. On en déduit que la prise en compte des conversions d'onde par le modèle LCVB est crucial.

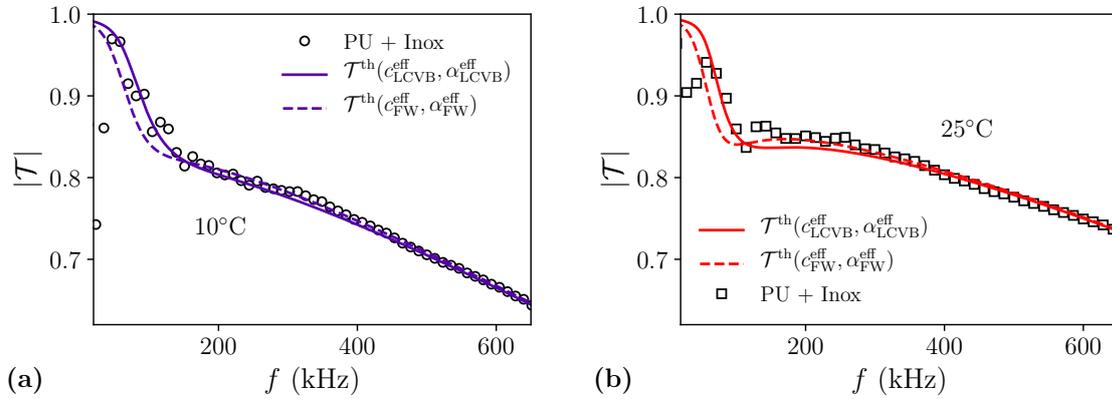


Figure 4.15 – Comparaison entre les prédictions LCVB (4.20) et FW (4.17) du nombre d'onde effectif injecté dans un modèle d'interférences Fabry-Perot à cinq couches (4.41) et les mesures du coefficient de transmission à une température (a) $10\text{ }^\circ\text{C}$ et (b) $25\text{ }^\circ\text{C}$.

Des mesures de la vitesse de phase effective et de l'atténuation effective du même échantillon sont représentées sur les figures 4.16a et 4.16b en fonction de la fréquence, à de 10 °C et de 25 °C. Le modèle LCVB est également représenté compte tenu de la rhéologie Kelvin-Voigt fractionnaire du PU identifiée précédemment pour ces deux températures. L'accord des paramètres effectifs mesurés avec la prédiction du modèle de diffusion multiple est très satisfaisant pour les deux températures. Le pic d'atténuation se décale vers les basses fréquences lorsque la température augmente, ce qui est attribué à la fréquence de résonance dont la dépendance en température est montrée à la figure 4.2a. Le pic d'atténuation est plus étroit lorsque la température augmente, ce qui correspond également aux variations du facteur de qualité prédites à la figure 4.2b. Puisque le nombre d'onde effectif k_L^{eff} est correctement prédit à la résonance du composite, il reste à déterminer sa densité effective ρ_{eff} afin d'obtenir un modèle homogénéisé exhaustif du matériau composite localement résonnant et prédire sa réflectivité aux fréquences d'intérêt pour la furtivité des sous-marins.

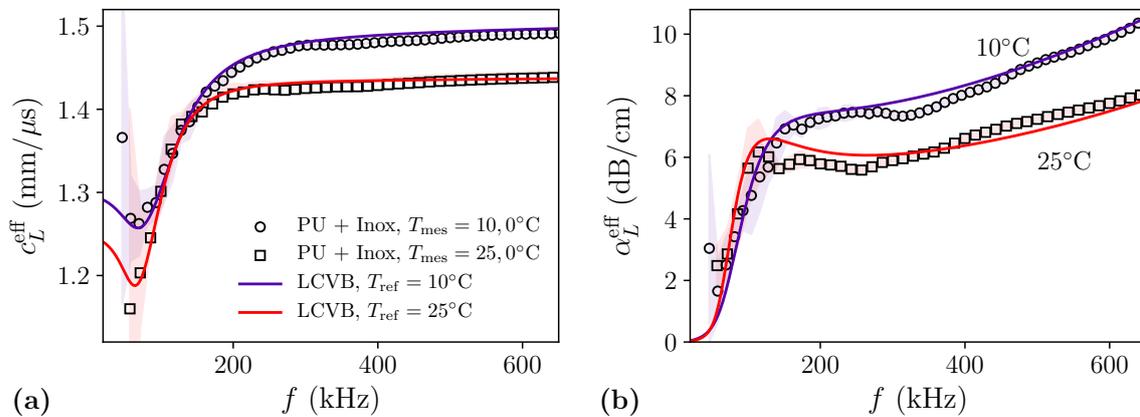


Figure 4.16 – Comparaison entre la prédiction du modèle de diffusion multiple (4.20) et des mesures en transmission de la (a) vitesse de phase effective et (b) de l'atténuation effective d'un échantillon chargé de trois couches de billes et de concentration volumique de 8 %, aux températures 10 °C et 25 °C.

4.4 Confrontation des résultats avec MuScat

Afin de compléter les prédictions des modèles de diffusion multiple qui sont souvent limités en concentration et en intensité de diffusion, il est intéressant d'utiliser des outils numériques pour traiter certains problèmes de propagation en milieu multi-diffusant. Les méthodes telles que les éléments finis ou les différences finies sont adaptées à des géométries complexes, mais elle ne peuvent pas être utilisées pour un grand nombre de diffuseurs car elles nécessitent de discrétiser l'ensemble du domaine d'étude. Le développement d'un code de calcul pouvant traiter de grands nombres de diffuseurs apparaît comme un enjeu majeur pour la modélisation de la propagation d'ondes en milieu multi-diffusant. Pour répondre à cette problématique, l'outil numérique **MuScat** pour *Multiple Scattering*, a été développé au laboratoire dans le cadre de la thèse d'Adrien Rohfritsch [146]. Ce code numérique, validé sur plusieurs cas tests, permet de traiter des problèmes avec plusieurs dizaines de milliers de diffuseurs et repose sur la résolution exacte des équations de la diffusion multiple [147]. Aucune contrainte n'est

imposée sur les positions des particules, ce qui permet d'envisager aussi bien la propagation à travers des milieux parfaitement désordonnés que fortement corrélés (ou périodique), pour une population de particules sphériques ou cylindriques, de tailles ou de propriétés mécaniques différentes. Ce code de calcul a déjà été utilisé pour mettre en évidence plusieurs phénomènes physiques, difficilement accessibles par d'autres modélisations numériques ou théoriques de la propagation d'ondes cohérentes [148, 149]. Par exemple, il a permis d'étudier l'influence des corrélations spatiales entre diffuseurs de mêmes tailles et de discriminer des modèles de diffusion multiple capables de prendre en compte ces corrélations [142].

La version tridimensionnelle de MuScat est utilisée ici afin de comparer les prédictions des modèles de diffusion multiple sur les paramètres effectifs du composite étudié. Néanmoins, ce code numérique ne tient pas compte des conversions d'ondes. Le but est notamment d'extraire la densité effective du matériau calculée par MuScat et de la comparer à l'approche de Fikioris et Waterman (4.27) d'ordre deux en concentration.

4.4.1 Extraction des paramètres effectifs

MuScat donne accès aux champs moyens diffusés ϕ_d^r et ϕ_d^t respectivement vers l'avant et vers l'arrière du système présenté sur la figure 4.17. Ce champ résultant est moyenné sur plusieurs configurations du désordre N_m et sur une surface carrée d'aire \mathcal{A} dont les dimensions se rapprochent de celles des transducteurs piézoélectriques utilisés pour les expériences. L'échantillon parallélépipédique diffusant de dimensions $h \times H \times H$ est constitué de N_p diffuseurs de rayon R similaire à celui des billes utilisées pour les expériences. La dimension h de l'échantillon est alignée avec l'axe de propagation et correspond à son épaisseur choisie proche de l'épaisseur h_2 de l'échantillon réalisé avec trois couches de billes. L'ensemble de ces dimensions est choisi de sorte à minimiser les possibles effets de bords tout en limitant les temps de calculs.

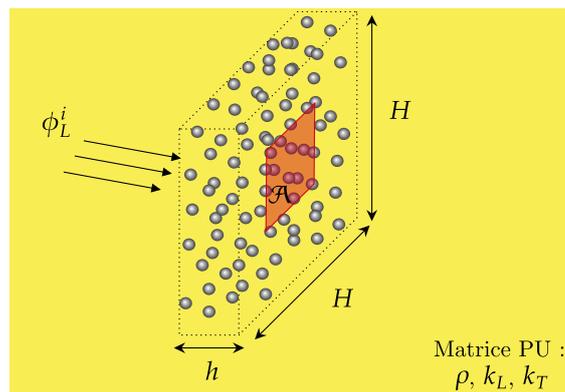


Figure 4.17 – Représentation d'une configuration de diffuseurs sphériques répartis aléatoirement dans un slab de dimensions $h \times H \times H$ et moyenne du champ sur une surface carrée \mathcal{A} .

Après un moyennage configurationnel N_m suffisant et spatial sur la surface \mathcal{A} , la simulation retourne le champ diffusé vers l'avant et vers l'arrière de l'échantillon diffusant, ce qui conduit

à calculer les coefficients de réflexion et de transmission tels que :

$$\mathcal{T}^{\text{MuS}} = \frac{\phi_i + \phi_d^t}{\phi_i}, \quad (4.44)$$

$$\mathcal{R}^{\text{MuS}} = \frac{\phi_d^r}{\phi_i}, \quad (4.45)$$

où ϕ_i , ϕ_d^r et ϕ_d^t sont respectivement les champs des ondes longitudinale incidente, rétrodiffusée et transmise.

L'extraction du nombre d'onde effectif $k_L^{\text{eff}} = \omega/c_L^{\text{eff}} + i\alpha_L^{\text{eff}}$ et de la densité effective $\rho^{\text{eff}} = \rho_1 + i\rho_2$ du composite est réalisée par résolution d'un problème inverse similaire à celui présenté dans la section 2.3, avec la fonction d'erreur

$$\epsilon(\omega) = \left| \mathcal{R}^{\text{th}}(c_L^{\text{eff}}, \alpha_L^{\text{eff}}, \rho_1, \rho_2) - \mathcal{R}^{\text{MuS}} \right|^2 + \left| \mathcal{T}^{\text{th}}(c_L^{\text{eff}}, \alpha_L^{\text{eff}}, \rho_1, \rho_2) - \mathcal{T}^{\text{MuS}} \right|^2 \quad (4.46)$$

où les expressions théoriques de \mathcal{R}^{th} et \mathcal{T}^{th} sont décrites par le modèle d'interférences Fabry-Perot à trois couches présenté à l'équation (2.9).

La méthode employée pour extraire ces quatre paramètres à chaque fréquence n'est pas celle présentée dans le chapitre 2, mais utilise un algorithme de minimisation appelé Nelder-Mead [150], utilisé avec la bibliothèque *lmfit* de Python. Les paramètres clés de la simulation présentée ici sont les suivants : $h = 2$ mm ; $H = 30$ mm ; $Np = 4000$; $R = 198,5$ μm ; $b = 2,3R$; $\mathcal{A} = 55$ mm^2 et $N_m = 20$. De cette manière, les coefficients de réflexion et de transmission en sortie de simulation et ceux optimisés par résolution du problème inverse sont tracés sur la figure 4.18 en fonction de la fréquence. L'accord est satisfaisant, ce qui montre que l'extraction des paramètres effectifs à partir de \mathcal{R}^{MuS} et \mathcal{T}^{MuS} est valide.

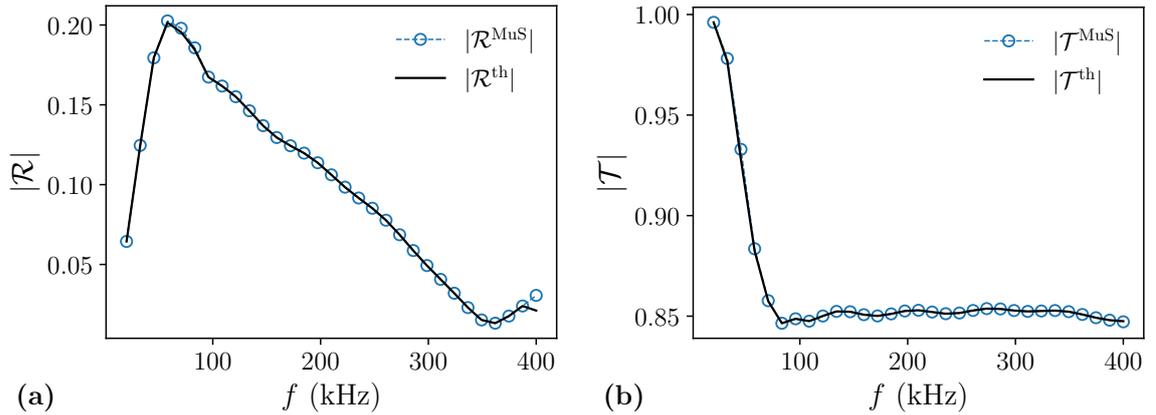


Figure 4.18 – Modules des coefficients (a) de réflexion et (b) de transmission simulés par MuScat et optimisés par le problème inverse (4.46) afin d'extraire les paramètres effectifs de l'échantillon.

4.4.2 Extraction de la densité effective

Les parties réelle et imaginaire de la densité effective sont extraites par minimisation de l'erreur (4.46) à partir de \mathcal{R}^{MuS} et \mathcal{T}^{MuS} . Elles sont confrontées à la modélisation proposée

par Fikioris et Waterman (4.27) sur la figure 4.19. Cette comparaison permet de valider la modélisation de ρ^{eff} par FW retenue pour la suite.

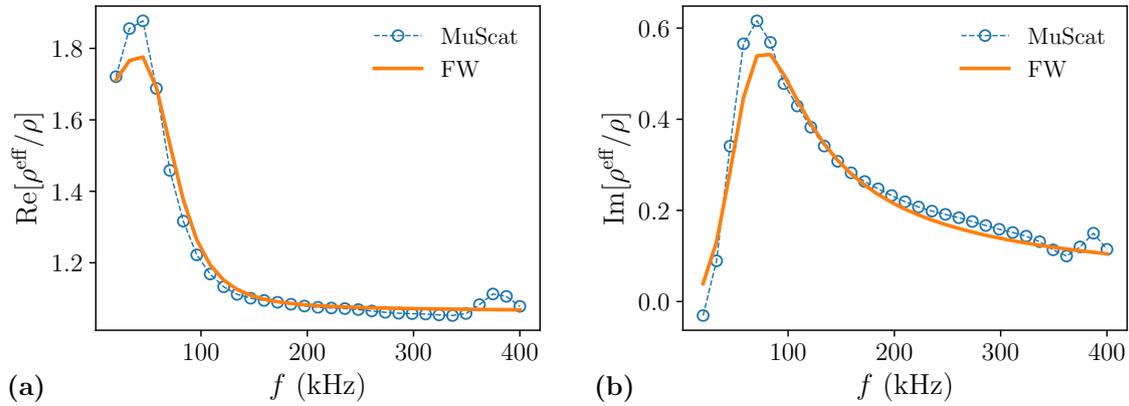


Figure 4.19 – Comparaison de la simulation au modèle de FW (4.17) des parties (a) réelle (b) et imaginaire de la densité effective.

4.4.3 Importance des conversions d'ondes

Les variations de la vitesse de phase effective et de l'atténuation effective sont tracées respectivement sur les figures 4.20a et 4.20b en fonction de la fréquence. Les paramètres simulés sont comparés aux prédictions des modèles LCVB et FW. Il est important de rappeler ici que le code MuScat ne tient pas compte des conversions d'ondes à ce stade, ce qui explique que la simulation s'accorde mieux avec FW qu'avec LCVB. Bien que les conversions d'ondes soient essentielles pour décrire correctement le comportement effectif de ce composite, il est satisfaisant de constater que MuScat ainsi que la modélisation de la diffusion multiple proposée par Fikioris et Waterman [138] sont en accord pour décrire $k_L^{\text{eff}}(\omega)$ et $\rho^{\text{eff}}(\omega)$. En effet, la théorie de la diffusion multiple formulée par Fikioris et Waterman et les simulation numériques sont basées sur les mêmes hypothèses concernant la diffusion.

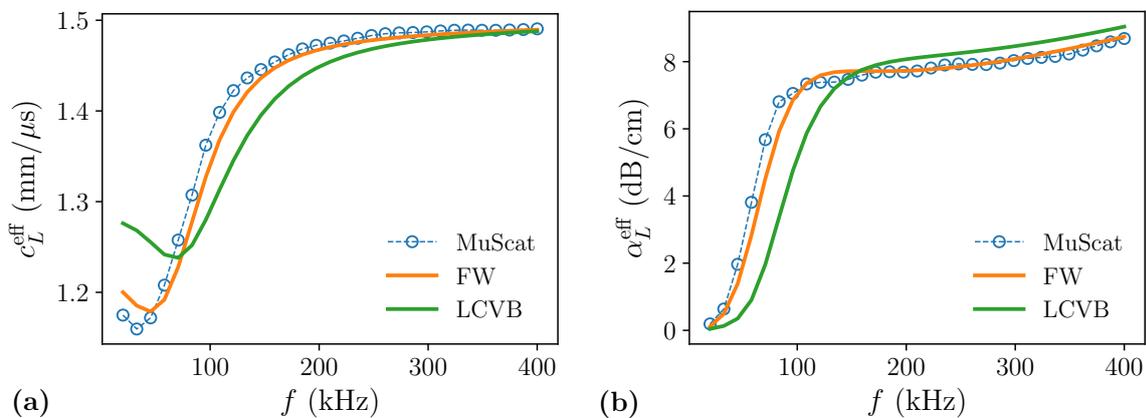


Figure 4.20 – Simulation numérique de (a) la vitesse de phase effective et (b) de l'atténuation effective. Comparaison des paramètres effectifs avec des modèles de diffusion multiple.

4.4.4 Validation expérimentale

Afin de vérifier si les modélisations de la densité effective et du nombre d'onde effectif choisies précédemment sont adaptées, il est nécessaire de mesurer le coefficient de réflexion des échantillons de PU chargés. Pour cela, une nouvelle version du "sandwich" présenté au chapitre 2 a été conçue et réalisée, en collaboration avec Jean-Marie Citerne. Ce dispositif est présenté dans sa version démontée et montée sur la figure 4.21. Les précédentes lignes à retard constituées de duralumin ne sont pas adaptées à des mesures d'ondes longitudinales en dessous de 1,0 MHz à cause d'une trop grande diffraction sur à basses fréquences. Puisque la résonance du composite est attendue autour de 70 kHz, une paire de transducteurs piézoélectriques de fréquence centrale 250 kHz est utilisée. Pour limiter les effets de diffraction à ces fréquences, il est nécessaire d'augmenter le diamètre des lignes à retard. De plus, le signal d'intérêt est plus long à ces fréquences. Ainsi, les lignes à retard ne sont pas allongées mais c'est le matériau qui les constitue qui est changé de sorte à ce que les ondes se propagent moins vite pour pouvoir les séparer. Le polycarbonate semble être un bon candidat pour répondre à ces problématiques. Ses propriétés longitudinales sont mesurées à plusieurs températures à l'aide du dispositif en immersion en transmission présenté dans le chapitre 1. La vitesse de phase et l'atténuation des ondes longitudinales du polycarbonate sont extraites par un problème inverse similaire. Une loi de puissance est identifiée sur ces deux paramètres de sorte à l'implémenter dans le traitement si l'on souhaite extraire les paramètres effectifs des échantillons chargés.

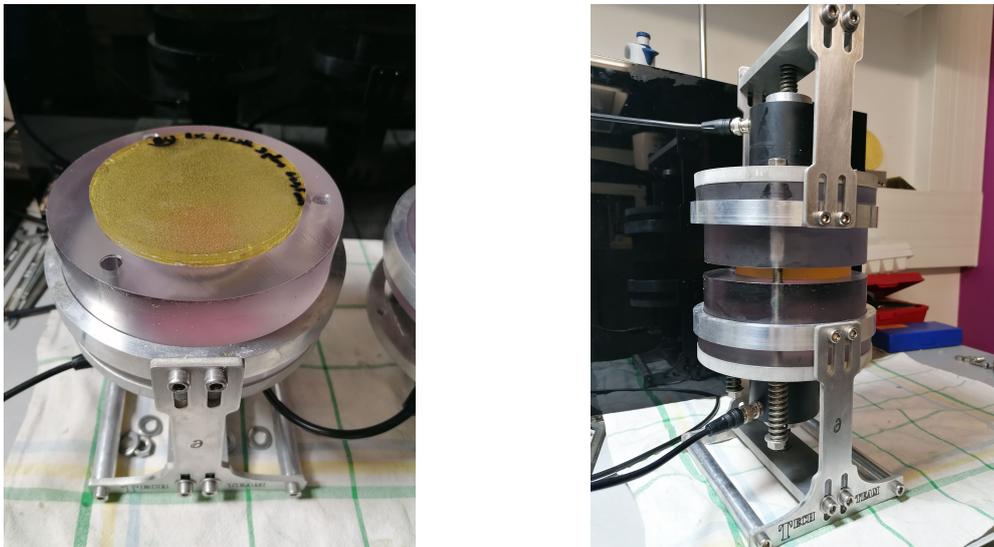


Figure 4.21 – Nouvelle version du dispositif "sandwich" pour réaliser des mesures basses fréquences dans des échantillons chargés en billes. Les lignes à retard sont usinées dans du polycarbonate. (a) Version démontée et (b) montée.

Dans ce qui suit, nous nous intéressons à vérifier si le comportement du coefficient de réflexion expérimental \mathcal{R}^{exp} aux interfaces entre les lignes à retard de polycarbonate et un échantillon de PU chargé est convenablement décrit à partir de $k_{\text{LCVB}}^{\text{eff}}$ et $\rho_{\text{FW}}^{\text{eff}}$. Les variations des modules du coefficient de réflexion \mathcal{R}^{exp} d'un échantillon de PU pur et de l'échantillon de PU chargé à trois couches, sont tracées respectivement sur les figures 4.22a et 4.22b en fonction de la fréquence, à une température de 10°C. Les périodes d'oscillations correspondent

à l'épaisseur des échantillons sondés ($\propto 2h/c_L$). L'effet du chargement est visible. En effet, la période et l'amplitude des oscillations de \mathcal{R}^{exp} est différente selon que le PU est chargé ou non. Concernant le PU non chargé, l'accord des mesures avec le modèle d'interférence Fabry-Perot à 3 couches (2.9) confirme encore une fois que cette modélisation est adaptée et que la rhéologie de la matrice est correctement évaluée. Concernant le PU chargé, un modèle d'interférences Fabry-Perot à 5 couches (4.41) est calculé en utilisant respectivement la densité du PU pur et la densité effective $\rho_{\text{FW}}^{\text{eff}}$. Le modèle calculé avec $\rho_{\text{FW}}^{\text{eff}}$ s'accorde mieux avec les données expérimentales de la réflectivité du composite.

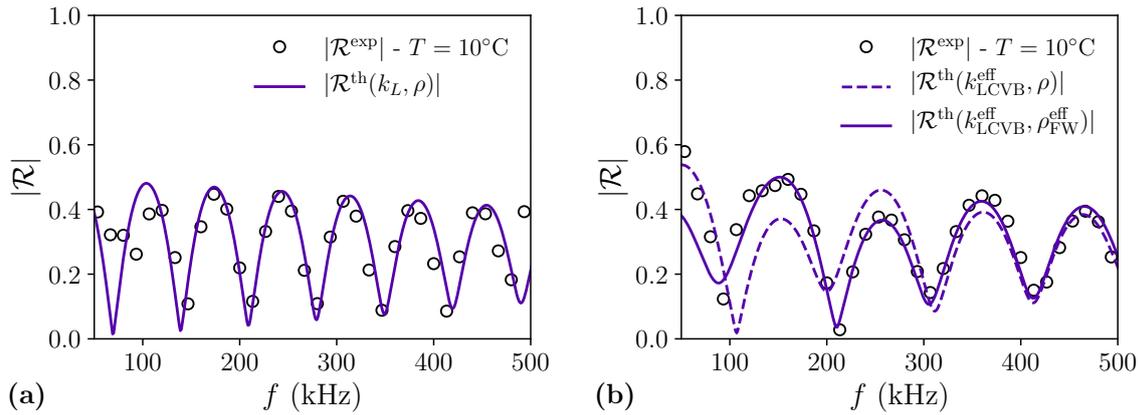


Figure 4.22 – Coefficients de réflexion aux interfaces entre du polycarbonate et (a) un PU sans billes, et (b) du PU chargé en billes à environ 8 %.

En conclusion, puisqu'il n'existe pas de modélisation de ρ^{eff} qui tient compte des conversions d'ondes dans la littérature, nous utiliserons la prédiction de FW pour ρ^{eff} et celle de LCVB pour k^{eff} pour dimensionner ce revêtement aux fréquences sous-marines.

4.5 Dimensionnement du revêtement aux basses fréquences

Il est très difficile de mesurer directement le coefficient de réflexion d'une plaque de PU chargé immergée \mathcal{R}^{exp} . Des méthodes basses fréquences ont été mises en place depuis les années 1990 pour réaliser des mesures en bassin d'essai sur des panneaux visco-élastiques chargés en inclusions [151]. Même si ces techniques ont été améliorées depuis [152], nous n'avons pas les moyens de les appliquer dans le cadre de la thèse. Néanmoins, nous avons validé précédemment la robustesse des prédictions théoriques de k_L^{eff} et ρ_{eff} vis-à-vis de mesures expérimentales à plus hautes fréquences, compte tenu de la rhéologie de la matrice PU. Le comportement du composite homogénéisé est donc extrapolé à plus basses fréquences. Une étude paramétrique est possible afin de prédire et optimiser la réflectivité du revêtement aux fréquences d'intérêt pour la furtivité sous-marine.

En conditions réelles, le revêtement de sous-marin doit présenter des performances anéchoïques sur une gamme de fréquences comprises entre 0,3 kHz et 300 kHz, et son épaisseur ne doit pas excéder $h = 15$ cm. La température est fixée à $T = 5$ °C. Si l'on souhaite profiter de la résonance dipolaire des billes sur cette gamme de fréquences, leur rayon doit être ajusté à $R = 5$ mm. La fraction volumique des particules est fixée à $\phi_v = 8$ % de sorte à obtenir

une masse volumique apparente d'environ $1500 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$. De cette façon, en extrapolant les données rhéologiques du polyuréthane pour ces fréquences, la densité effective et le nombre d'onde effectif sont calculés à partir des équations (4.27) et (4.20) pour en déduire le coefficient de réflexion du revêtement immergée au contact d'une plaque d'acier qui a pour expression [34] :

$$\mathcal{R}_{0-1-2} = r_{01} + \frac{t_{01}t_{10}r_{12}e^{2ik_1h}}{1 - r_{10}r_{12}e^{2ik_1h}}, \quad (4.47)$$

où les coefficients de réflexion et de transmission aux interfaces sont définis à l'équation (2.10) pour les indices n, m allant de 0 à 2, avec (ρ_0, k_0) les paramètres acoustiques de l'eau, (ρ_2, k_2) les paramètres élastiques de l'acier et (ρ_1, k_1) les paramètres du revêtement. Lorsque celui-ci est homogène ou hétérogène, on a respectivement $\rho_1 = \rho$ et $k_1 = k_L$, ou $\rho_1 = \rho_{\text{FW}}^{\text{eff}}$ et $k_1 = k_{\text{LCVB}}^{\text{eff}}$.

Le comportement de \mathcal{R} est représenté sur la figure 4.23 en fonction de la fréquence dans les cas d'un revêtement homogène et d'un revêtement chargé en billes immergé au contact d'une plaque d'acier. La réflectivité d'une plaque de PU pur sur un support en acier $\mathcal{R}_{0-1-2}^{\text{PU}}$ est très proche de l'unité jusqu'à environ 10 kHz, fréquence à partir de laquelle la dissipation de la matrice affecte son comportement. Des oscillations liées aux interférences Fabry-Perot dans le revêtement apparaissent à partir de 100 kHz, ce qui est attendu compte tenu de l'épaisseur du revêtement. L'effet du chargement est bien visible sur le comportement de $\mathcal{R}_{0-1-2}^{\text{PUcharge}}$ puisqu'une forte décroissance apparaît autour de la fréquence de résonance en translation prédite à $f_{\text{res}} \simeq 2,2 \text{ kHz}$. Ce minimum est assez large en fréquence puisque la dissipation de la matrice joue un rôle important au niveau des conversions d'ondes à la résonance dipolaire des billes.

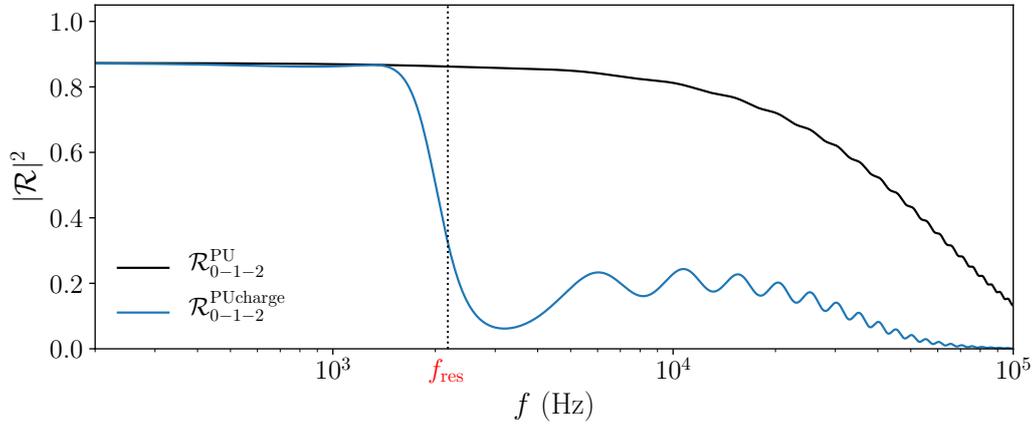


Figure 4.23 – Comportement de la réflectivité d'un revêtement chargé en billes denses résonnantes au contact d'une paroi en acier immergée. Celui d'un revêtement homogène est montré en comparaison.

Contrairement au cas d'une paroi en acier, le cas d'un revêtement anéchoïque reposant sur une paroi rigide immergée a fait l'objet de nombreuses études théoriques ou numériques. La réalisation expérimentale d'un tel système semble très difficile à mettre en œuvre pour des mesures basses fréquences. C'est pourquoi Audoly et Giangreco [151] ont introduit une expression simple du coefficient de réflexion d'un revêtement reposant sur un support rigide. Celui-ci est communément appelé coefficient d'anéchoïsme (C_A) et dépend uniquement des

coefficients de réflexion et de transmission d'une plaque immergée sans support (c'est-à-dire aux interfaces eau, plaque, eau) et a pour expression :

$$C_A = \mathcal{R}_{0-1-0}^{\text{PUcharge}} + \frac{(\mathcal{T}_{0-1-0}^{\text{PUcharge}})^2}{1 - \mathcal{R}_{0-1-0}^{\text{PUcharge}}} \quad (4.48)$$

Dans le cadre de ses travaux de thèse, Pierre Méresse [3] présente des mesures expérimentales des coefficients de réflexion et de transmission basses fréquences d'un panneau de polyuréthane hétérogène immergé dans l'eau sans support d'acier, en vue de calculer C_A . Ce panneau consiste en plusieurs alignements de tiges d'acier de 6 mm de diamètre, séparés chacun de 10 mm centre à centre. Il y a au total 90 tiges réparties périodiquement dans un panneau de 200 mm d'épaisseur et de surface $900 \times 900 \text{ mm}^2$. La concentration surfacique de ce matériau est de $\phi_s = 31 \%$. Ces mesures sont présentées à la figure 4.24 et comparées aux prédictions de l'équation (4.47) dans le cas d'un panneau de polyuréthane chargé à $\phi_v = 8 \%$ de billes d'acier réparties aléatoirement. A titre de comparaison, le diamètre des billes est le même que celui des tiges d'acier, et l'épaisseur du revêtement est choisie égale à celle du panneau utilisé par Méresse. Les prédictions présentées ici montrent que la résonance en translation des billes semble plus prometteuse pour les applications visées. En effet, le minimum de la transmission lié à la résonance des billes apparaît à des fréquences plus basses. L'effet est également plus large et plus important que pour les tiges résonnantes. De plus, l'amplitude du coefficient de réflexion reste moins élevée.

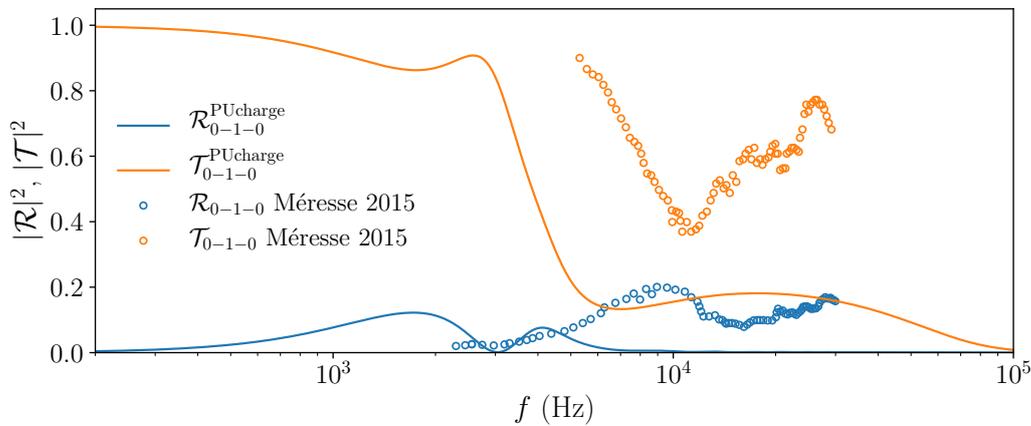


Figure 4.24 – Comportement de la réflectivité d'un revêtement chargé en billes denses résonnantes au contact d'une paroi en acier immergée. Celui d'un revêtement homogène est montré en comparaison. Des résultats issus de la référence [3] sont présentés pour une population de cylindres d'acier.

De même qu'à la figure 4.23, le comportement de $\mathcal{R}_{0-1-2}^{\text{PUcharge}}$ est représenté sur la figure 4.25 en fonction de la fréquence dans le cas d'un revêtement d'épaisseur 15 cm chargé en billes de rayon 5 mm et au contact d'une paroi en acier immergée. En comparaison, le cas d'une paroi rigide est calculé de deux manières différentes. La première utilise la formule (4.48) proposée par Audoly et Giangreco. La deuxième consiste à calculer le coefficient de réflexion $\mathcal{R}_{0-1-2'}^{\text{PUcharge}}$ en imposant $r_{12} = 1$ et $t_{12} = 0$ dans l'équation (4.47). Ces deux modélisations sont équivalentes mais diffèrent très légèrement en amplitude quand la paroi en acier est considérée comme élastique. Enfin, des simulations issues de la thèse de Méresse sont présentées pour la même configuration de tiges cylindriques d'acier que celle explicitée

ci-dessus. Comme précédemment, le revêtement contenant des billes semble plus prometteur pour optimiser les performances anéchoïques du revêtement.

Par ailleurs, on remarque la présence d'une incohérence sur C_A et $\mathcal{R}_{0-1-2'}^{\text{PUcharge}}$ en amont de la résonance car $\mathcal{R} > 1$. Ceci peut-être attribué à la mauvaise évaluation de $\rho_{\text{FW}}^{\text{eff}}$ sur des fréquences aussi basses. En effet, la figure 4.19 montre que l'accord entre la simulation et la modélisation de Fikioris et Waterman est moins satisfaisante en amont de la résonance, ce qui se répercute directement sur son extrapolation à très basses fréquence. Néanmoins, l'accord entre FW et MuScat est bien meilleur en aval de la résonance ce qui conduit à penser que cette prédiction théorique avec FW est valable au-delà de la résonance.

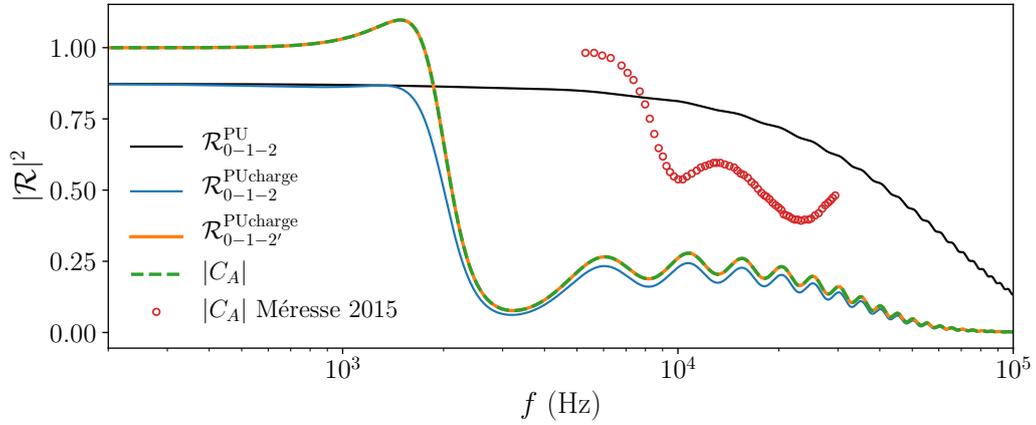


Figure 4.25 – Comportement de la réflectivité d'un revêtement chargé en billes denses résonnantes au contact d'une paroi en acier immergée. Le cas d'une paroi rigide est montré en comparaison.

L'objectif global de la thèse étant de proposer des solutions pour optimiser l'amortissement et minimiser la réflectivité du revêtement chargés en billes denses résonnantes, nous réalisons des études paramétriques en utilisant l'expression (4.47) de la réflectivité et en considérant une paroi d'acier immergée dans l'eau. Le rayon des billes, la concentration volumique et les paramètres visco-élastiques de la matrice sont inchangés.

La première étude porte sur l'influence de l'épaisseur h du composite sur la réflectivité (figure 4.26). Le résultat attendu est que l'amortissement de l'onde cohérente se trouve renforcé quand l'épaisseur du matériau augmente. Cependant, il est intéressant d'observer l'existence d'une épaisseur optimale pour laquelle l'amplitude de la réflectivité diminue fortement. En particulier, comme les interférences constructives et destructives dans la plaque sont reliées à son épaisseur par la relation $f_n = nc_L/(2h)$, où n est un entier strictement positif, pour $h = h_{\text{opt}} = 31$ cm la fréquence de résonance avec l'épaisseur coïncide avec la première interférence destructive telle que $h = c_L/(2f_{\text{res}})$.

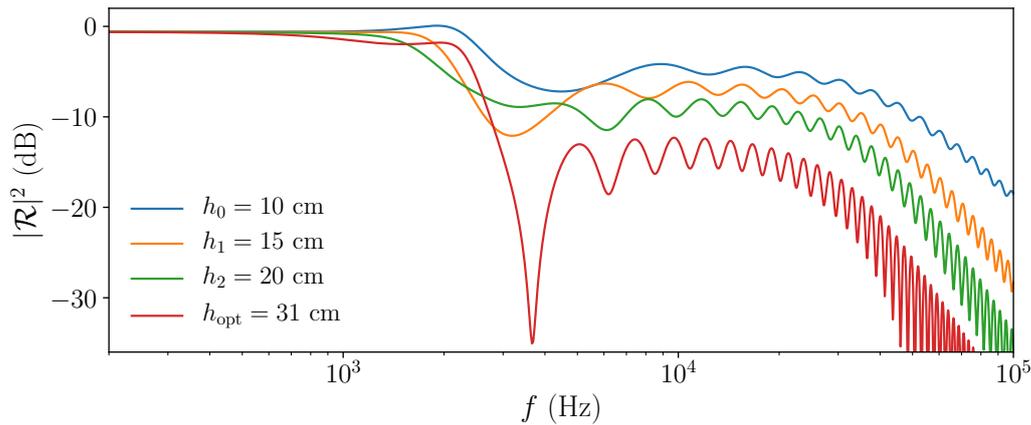


Figure 4.26 – Influence de l'épaisseur sur la réflectivité du revêtement envisagé.

Pour tenter de minimiser la réflectivité en maintenant une épaisseur de revêtement compatible aux contraintes imposées, une autre piste est envisagée. Celle-ci consiste à introduire d'une distance d'exclusion entre les particules dans le modèle de diffusion multiple (4.20). Les variations de \mathcal{R} en fonction de la fréquence pour différentes distances d'exclusions b entre les billes sont représentées sur la figure 4.27. Le jeu de courbes en tirets correspond à une épaisseur de revêtement fixée à $h = 10$ cm. Le jeu de courbes en traits pleins correspond à une épaisseur de revêtement fixée à $h = 15$ cm. Ces résultats montrent l'intérêt des corrélations spatiales puisque la réflectivité diminue énormément lorsque b augmente, notamment pour une épaisseur $h = 15$ cm. Précisons que les incohérences en amont de la résonance sont également présentes et s'intensifient avec le rayon d'exclusion b qui augmente. On peut attribuer cet effet indésirable aux modèles utilisés pour exprimer les paramètres effectifs. En particulier, il est admis que la modélisation de Luppé *et al.* peut présenter une atténuation négative non physique à la résonance pour une concentration moyenne ou des intensités de diffusion importantes [28].

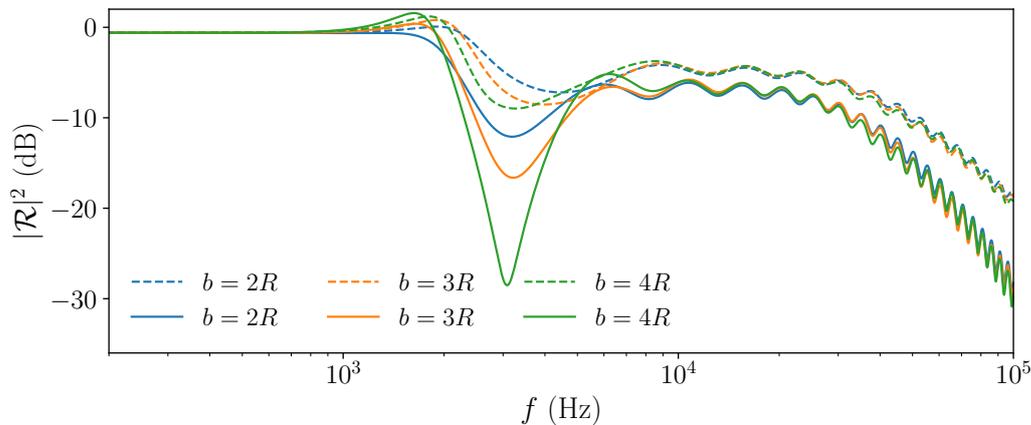


Figure 4.27 – Influence des corrélations spatiales sur la réflectivité du revêtement envisagé. Les traits en tirets et les traits pleins correspondent respectivement à un revêtement de 10 cm et 15 cm d'épaisseur.

Conclusion

La conception et la caractérisation de matériaux à matrice polyuréthane contenant des particules d'acier a été investiguée dans ce dernier chapitre.

Les échantillons chargés ont été fabriqués suivant un protocole de dépôt couche par couche, inspiré des travaux antérieurs de l'équipe. Des efforts conséquents ont été mis en œuvre pour contrôler précisément la répartition des billes dans la matrice polyuréthane. En particulier, des calculs de distances moyennes entre particules voisines au sein de l'échantillon ont été effectués. Ces calculs ont mis en lumière que l'augmentation de la distance d'exclusion b , associée à des corrélations à courtes portées, conduit à des meilleurs homogénéité et isotropies des échantillons. Par ailleurs, l'erreur de positionnement des billes par rapport à la distribution visée a été quantifiée, ce qui renforce de la robustesse du protocole de conception des échantillons.

Des mesures en transmission et en réflexion ont été effectuées sur les échantillons fabriqués. La vitesse de phase et l'atténuation de l'onde longitudinale cohérente se propageant dans ces échantillons ont été extraites des mesures en transmission et comparées avec succès avec le modèle de diffusion multiple LCVB. Le code de calcul MuScat, développé au laboratoire dans le cadre de la thèse d'Adrien Rohfritsch, a ensuite été utilisé pour simuler la réflectivité d'une interface entre du polyuréthane et du polyuréthane chargé. Cette étude numérique a mis en lumière l'efficacité de la modélisation de Fikioris et Waterman du coefficient de réflexion d'un demi-espace hétérogène. La densité effective ρ_{FW}^{eff} a été extraite de ce modèle. La mesure du coefficient de réflexion d'un échantillon de PU chargé inséré entre deux blocs de polycarbonate a finalement été comparée à la modélisation reposant sur la densité effective ρ_{FW}^{eff} et sur le nombre d'onde effectif k_{LCVB}^{eff} issue du modèle LCVB. Le bon accord entre ces résultats expérimentaux et numériques met en lumière l'efficacité des deux modélisations retenues. Celles-ci ont alors permis de dimensionner des échantillons en vue d'amortir des ondes longitudinales sans augmenter la réflectivité, aux fréquences d'intérêt pour la furtivité sous-marine.

Conclusion générale

Le cadre général dans lequel s'est inscrit ce travail de thèse est celui des matériaux localement résonant pour la furtivité sous-marine. L'objectif principal était en particulier de concevoir et caractériser un composite aux fréquences ultrasonores en exploitant la résonance dipolaire de billes denses enfouies dans une matrice visco-élastique, en vue de prédire ses performances anéchoïques aux gammes de fréquences d'intérêts pour les applications visées. Pour cela, ce travail s'est porté dans un premier temps sur la caractérisation complète de la matrice polyuréthane, puis sur la caractérisation des paramètres effectifs d'échantillons composites fabriqués avec un contrôle précis de la répartition des billes.

La modélisation de la diffusion d'ondes élastiques en milieu hétérogène exige de connaître précisément le comportement des différentes ondes se propageant dans la matrice. Dans ce but, deux techniques expérimentales ont été mises en place pour mesurer respectivement le comportement des ondes longitudinales et transverses de la matrice polyuréthane aux fréquences ultrasonores. Un banc en immersion en transmission a été développé dans le but d'extraire la vitesse de phase et l'atténuation des ondes longitudinales dans la matrice sur l'ensemble de la bande passante des transducteurs piézoélectriques utilisés. Une attention particulière a été portée au contrôle de nombreux paramètres dans le but d'obtenir des mesures précises et répétables à différentes températures. Les mesures d'ondes de cisaillement ont été rendues possibles par l'utilisation de la technique Sandwich, récemment développée au laboratoire. Celle-ci s'est montrée particulièrement robuste et efficace pour évaluer les paramètres transverses d'échantillons fins et très dissipatifs aux fréquences ultrasonores. La reproductibilité et haute sensibilité de la technique a également permis d'étudier la cinétique de polymérisation du polyuréthane et de montrer sa dépendance en température. Le module complexe d'incompressibilité du polyuréthane a été mesuré indirectement aux fréquences ultrasonores et à différentes températures. Le principe d'équivalence temps-température a été appliqué à l'ensemble de ces modules visco-élastiques. Leur comportement a ainsi été évalué à des fréquences plus basses et a conduit à identifier des modèles rhéologiques fractionnaires décrivant précisément la rhéologie du polyuréthane. En particulier, un désaccord significatif a été mis en avant entre les mesures de DMA et les mesures ultrasonores du module de cisaillement du même polyuréthane.

La deuxième partie de ce manuscrit a présenté des mesures expérimentales de réflexion au contact et de transmission en immersion d'ondes longitudinales cohérentes dans un polyuréthane chargé en billes denses résonnantes. Ces échantillons hétérogènes ont été réalisés suivant un protocole de fabrication par dépôt de couches successives. La répartition homogène isotrope des billes a été contrôlée en tenant compte du rayon d'exclusion entre ces particules. Le nombre d'onde effectif de ces échantillons a été extrait à partir d'un problème inverse sur la mesure du coefficient de transmission à différentes températures et de sa modélisation

interférométrie dans un milieu multi-couches. L'utilisation du code de simulation MuScat a mis en lumière que les modèles FW et LCVB sont adaptés pour décrire respectivement le comportement de la densité effective et le nombre d'onde effectif du composite autour de la fréquence de résonance des billes. Les mesures de réflectivité ont été réalisées à l'aide un dispositif similaire au sandwich en cisaillement mais adaptée ici aux ondes longitudinales à basses fréquences. Cette mesure a permis de vérifier que les modèles d'homogénéisation de la densité effective et du nombre d'onde effectif reproduisent fidèlement le comportement du coefficient de réflexion du système, compte tenu de la rhéologie de la matrice. Par conséquent, la caractérisation et le dimensionnement de ce matériau localement résonnant est rendu possible aux fréquences d'intérêts pour les applications sous-marines. Comparativement au revêtement de polyuréthane contenant une distribution de tiges d'acier périodiques, il a été montré que la distribution de billes aléatoire semble plus intéressante pour les applications visées. Il a également été mis en lumière que les performances anéchoïques du revêtement proposé ici peuvent être améliorées grâce aux corrélations spatiales entre les billes denses résonnantes.

En perspective de ce travail, plusieurs axes peuvent être améliorés. Puisque la diffusion d'ondes élastiques est fortement impactée par le comportement des ondes de cisaillement dans la matrice, il peut être intéressant de maximiser celles-ci à la résonance en optimisant la géométrie des diffuseurs et leur distribution. Il serait également très intéressant d'étudier une double population de billes et de bulles résonnantes dans le but d'exciter respectivement les résonances dipolaire et monopolaire et ainsi augmenter drastiquement l'amortissement du revêtement. Par ailleurs, il est essentiel de mesurer la densité effective du composite afin de vérifier si la modélisation choisie, qui ne tient pas compte des conversions d'ondes, est réellement représentative à la résonance des billes. En mesurant à la fois les coefficients de réflexion et de transmission, la techniques sandwich employée dans le dernier chapitre permettrait d'accéder à la mesure de la densité effective par résolution d'un problème inverse similaire à ceux présentés dans ces travaux. Enfin, puisque l'impact des corrélations spatiales à courtes portées entre particules a été mis en évidence, il serait intéressant d'explorer d'autres types d'agencements. Par ailleurs, dans le cadre de la thèse d'Alverède Simon, des mesures de vitesse et d'atténuation des ondes transverses cohérentes ont été effectuées sur des échantillons d'époxy contenant des billes denses. Ces mesures ont mis en évidence la forte influence de la résonance dipolaire en translation des particules, ainsi que celle d'une seconde résonance "en rotation" qui n'affecte que les ondes transverses, cette seconde résonance ayant été récemment prédite par Valier-Brasier et Conoir [153]. L'utilisation de ces deux résonances dipolaires constitue aussi une piste sérieuse pour augmenter l'absorption dans le revêtement.

Références

- [1] E. Meyer, W. Kuhl, H. Oberst, E. Skudrzyk, and K. Tamm, «Sound absorption and sound absorbers in water», *Department of the Navy, Bureau of Ships, Washington, DC, USA, Report NavShips* **900**, 1947. Citée page 12
- [2] S. Beretti, «Réponse Acoustique d'Elastomères Micro-Inclusionnaires Soumis à la Pression d'Immersion», in *10ème Congrès Français d'Acoustique*, Société Française d'Acoustique SFA, ed., –, Lyon, France, 2010. Citée page 12
- [3] Pierre Méresse, *Matériaux absorbants à structure périodique et inclusions résonantes pour l'acoustique sous-marine*, Ph.D. thesis, Lille 1, 2015. Citée page 12, 15, 122
- [4] J. B. Pendry, «Negative refraction makes a perfect lens», *Physical review letters* **85**(18), 3966, 2000. Citée page 13
- [5] Z. Liu, X. Zhang, Y. Mao, Y. Y. Zhu, Z. Yang, *et al.*, «Locally resonant sonic materials», *science* **289**(5485), 1734–1736, 2000. Citée page 13, 15
- [6] M. Florescu, S. Torquato, and P. J. Steinhardt, «Designer disordered materials with large, complete photonic band gaps», *P. Natl. Acad. Sci. USA* **106**(49), 20658–20663, 2009. Citée page 13
- [7] V. Romero-Garcia and A.-C. Hladky-Hennion, *Fundamentals and applications of acoustic metamaterials : from seismic to radio frequency*, John Wiley & Sons, 2019. Citée page 13
- [8] Y. Zhang, K. Chen, X. Hao, and Y. Cheng, «A review of underwater acoustic metamaterials», *Chinese Science Bulletin* **65**(15), 1396–1410, 2020. Citée page 13
- [9] T. Valier-Brasier and D. Royer, *Ondes élastiques dans les solides 2 : Rayonnement, diffusion, génération*, volume 2, ISTE Group, 2021. Citée page 13, 35, 95, 96
- [10] T. Brunet, A. Merlin, B. Mascaro, K. Zimny, J. Leng, *et al.*, «Soft 3d acoustic metamaterial with negative index», *Nature materials* **14**(4), 384–388, 2015. Citée page 13
- [11] G. Gaunaurd, «One-dimensional model for acoustic absorption in a viscoelastic medium containing short cylindrical cavities», *The Journal of the Acoustical Society of America* **62**(2), 298–307, 1977. Citée page 13
- [12] R. Lane, «Absorption mechanisms for waterborne sound in alberich anechoic layers», *Ultrasonics* **19**(1), 28–30, 1981. Citée page 13
- [13] C. Audoly, «Acoustic analysis of panels made with viscoelastic materials containing resonant cavities», *Acta acustica (Les Ulis)* **2**(5), 393–402, 1994. Citée page 13
- [14] A.-C. Hladky-Hennion and J.-N. Decarpigny, «Analysis of the scattering of a plane acoustic wave by a doubly periodic structure using the finite element method : Application to alberich anechoic coatings», *The Journal of the Acoustical Society of America* **90**(6), 3356–3367, 1991. Citée page 13

- [15] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, and M. G. Scanlon, «Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments», *The Journal of the Acoustical Society of America* **123**(4), 1931–1940, 2008. Citée page 13
- [16] V. Leroy, A. Bretagne, M. Fink, H. Willaime, P. Tabeling, *et al.*, «Design and characterization of bubble phononic crystals», *Applied Physics Letters* **95**(17), 171904, 2009. Citée page 13
- [17] V. Leroy, A. Strybulevych, M. G. Scanlon, and J. H. Page, «Transmission of ultrasound through a single layer of bubbles», *The European Physical Journal E* **29**(1), 123–130, 2009. Citée page 13
- [18] V. Leroy, A. Strybulevych, M. Lanoy, F. Lemoult, A. Tourin, *et al.*, «Superabsorption of acoustic waves with bubble metascreens», *Physical Review B* **91**(2), 020301, 2015. Citée page 14
- [19] M. Thieury, V. Leroy, J. Dassé, and A. Tourin, «Phenomenological law for the acoustic reflection by an array of cylindrical cavities in a soft elastic medium», *Journal of Applied Physics* **128**(13), 135106, 2020. Citée page 14
- [20] G. S. Sharma, A. Skvortsov, I. MacGillivray, and N. Kessissoglou, «On superscattering of sound waves by a lattice of disk-shaped cavities in a soft material», *Applied Physics Letters* **116**(4), 041602, 2020. Citée page 14
- [21] R. Poupart, T. Lacour, P. Darnige, O. Poncelet, C. Aristégui, *et al.*, «Elaboration of soft porous ultrasound insulators», *RSC advances* **10**(68), 41946–41953, 2020. Citée page 14
- [22] Yinghong G., Haibin Z., Bin B., Quan W., and Jiuhui W., «Experimental investigation of underwater locally multi-resonant metamaterials under high hydrostatic pressure for low frequency sound absorption», *Applied Acoustics* **172**, 107605, 2021. Citée page 15
- [23] G. S. Sharma, A. Skvortsov, I. MacGillivray, and N. Kessissoglou, «Acoustic performance of periodic steel cylinders embedded in a viscoelastic medium», *Journal of Sound and Vibration* **443**, 652–665, 2019. Citée page 15
- [24] V. K. Kinra, E. Ker, and S. K. Datta, «Influence of particle resonance on wave propagation in a random particulate composite», *Mech. Res. Comm.* **9**(2), 109 – 114, 1982. Citée page 15, 94, 101
- [25] F. C. Moon and C. C. Mow, «Wave propagation in a composite material containing dispersed rigid spherical inclusions», Technical report, Research memorandum series, Rand Corporation, 1970. Citée page 15, 98
- [26] Guillaume Lepert, *Étude des interactions élasto-acoustiques dans des métamatériaux formés d'inclusions résonnantes réparties aléatoirement*, Ph.D. thesis, Université Sciences et Technologies-Bordeaux I, 2013. Citée page 16, 45, 89
- [27] P. C. Waterman and R. Truell, «Multiple scattering of waves», *Journal of Mathematical Physics* **2**(4), 512–537, 1961. Citée page 16, 102
- [28] M. Duranteau, T. Valier-Brasier, J.-M. Conoir, and R. Wunenburger, «Random acoustic metamaterial with a subwavelength dipolar resonance», *The Journal of the Acoustical Society of America* **139**(6), 3341–3352, 2016. Citée page 16, 98, 102, 124
- [29] Alverède Simon, *Propagation d'ondes de cisaillement cohérentes dans un matériau multi-diffusant à résonances dipolaires locales*, Ph.D. thesis, Sorbonne Université, 2020. Citée page 17, 45, 94, 102, 103

- [30] J. Wu, «Determination of velocity and attenuation of shear waves using ultrasonic spectroscopy», *The Journal of the Acoustical Society of America* **99**(5), 2871–2875, 1996. Citée page 18, 23, 42, 59
- [31] P. Y. Longin, C. Verdier, and M. Piau, «Dynamic shear rheology of high molecular weight polydimethylsiloxanes : comparison of rheometry and ultrasound», *Journal of non-newtonian fluid mechanics* **76**(1-3), 213–232, 1998. Citée page 18, 42, 44
- [32] G. Lefebvre, R. Wunenburger, and T. Valier-Brasier, «Ultrasonic rheology of viscoelastic materials using shear and longitudinal waves», *Applied Physics Letters* **112**(24), 241906, 2018. Citée page 18, 24, 45
- [33] Q. Baudis, T. Valier-Brasier, and R. Wunenburger, «Thorough ultrasonic rheology of soft, visco-elastic materials : Example of crosslinked polyurethane elastomer», *Ultrasonics (en révision)* **XX**(X), XXX–XXX. Citée page 18
- [34] D. Royer and T. Valier-Brasier, *Ondes élastiques dans les solides 1 : Propagation*, volume 1, ISTE Group, 2021. Citée page 22, 53, 95, 121
- [35] A. W. Nolle, «Acoustic determination of the physical constants of rubber-like materials», *The Journal of the Acoustical Society of America* **19**(1), 194–201, 1947. Citée page 22
- [36] W. Sachse and Y.-H. Pao, «On the determination of phase and group velocities of dispersive waves in solids», *Journal of applied Physics* **49**(8), 4320–4327, 1978. Citée page 23
- [37] R. A. Kline, «Measurement of attenuation and dispersion using an ultrasonic spectroscopy technique», *The Journal of the Acoustical Society of America* **76**(2), 498–504, 1984. Citée page 23
- [38] T. Pialucha, C. C. H. Guyott, and R. Cawley, «Amplitude spectrum method for the measurement of phase velocity», *Ultrasonics* **27**(5), 270–279, 1989. Citée page 23
- [39] L. Rouleau, R. Pirk, B. Pluymers, and W. Desmet, «Characterization and modeling of the viscoelastic behavior of a self-adhesive rubber using dynamic mechanical analysis tests», *Journal of Aerospace Technology and Management* **7**, 200–208, 2015. Citée page 23, 67
- [40] M. Asmani, C. Kermel, A. Leriche, and M. Ourak, «Influence of porosity on young’s modulus and poisson’s ratio in alumina ceramics», *Journal of the European ceramic society* **21**(8), 1081–1086, 2001. Citée page 23
- [41] R. E. Challis, M. J. W. Povey, M. L. Mather, and A. K. Holmes, «Ultrasound techniques for characterizing colloidal dispersions», *Reports on progress in physics* **68**(7), 1541, 2005. Citée page 23
- [42] N. Guo, M. K. Lim, and T. Pialucha, «Measurement of attenuation using a normalized amplitude spectrum», *Journal of Nondestructive Evaluation* **14**(1), 9–19, 1995. Citée page 23
- [43] V. Fokin, M. Ambati, C. Sun, and X. Zhang, «Method for retrieving effective properties of locally resonant acoustic metamaterials», *Physical review B* **76**(14), 144302, 2007. Citée page 23
- [44] T. L. Szabo and J. Wu, «A model for longitudinal and shear wave propagation in viscoelastic media», *The Journal of the Acoustical Society of America* **107**(5), 2437–2446, 2000. Citée page 23, 38, 58

- [45] P. H. Mott, C. M. Roland, and R. D. Corsaro, «Acoustic and dynamic mechanical properties of a polyurethane rubber», *The Journal of the Acoustical Society of America* **111**(4), 1782–1790, 2002. Citée page 24, 67, 70, 73, 78
- [46] R. de L. Kronig and H. A. Kramers, «Zur theorie der absorption und dispersion in den röntgenspektren», *Zeitschrift für Physik* **48**(3), 174–179, 1928. Citée page 24
- [47] M. O'Donnell, E. T. Jaynes, and J. G. Miller, «Kramers–kronig relationship between ultrasonic attenuation and phase velocity», *The Journal of the Acoustical Society of America* **69**(3), 696–701, 1981. Citée page 24
- [48] P. He, «Measurement of acoustic dispersion using both transmitted and reflected pulses», *The journal of the acoustical society of America* **107**(2), 801–807, 2000. Citée page 24
- [49] P. He and J. Zheng, «Acoustic dispersion and attenuation measurement using both transmitted and reflected pulses», *Ultrasonics* **39**(1), 27–32, 2001. Citée page 24
- [50] A. Simon, G. Lefebvre, T. Valier-Brasier, and R. Wunenburger, «Viscoelastic shear modulus measurement of thin materials by interferometry at ultrasonic frequencies», *The Journal of the Acoustical Society of America* **146**(5), 3131–3140, 2019. Citée page 24, 45, 55, 56, 58, 111
- [51] H. Medwin and C. S. Clay, *Fundamentals of acoustical oceanography*, Elsevier, 1998. Citée page 29
- [52] L. E. Kinsle, Frey A. R., Coppens A. B., and Sanders J. V., *Fundamentals of Acoustics*, John Wiley and Sons, fourth edition, 2009. Citée page 29, 34
- [53] F. E. Jones and G. L. Harris, «Its-90 density of water formulation for volumetric standards calibration», *Journal of research of the National Institute of Standards and Technology* **97**(3), 335, 1992. Citée page 30
- [54] J. Luo, Z. Xie, and X. Li, «Asymmetric windows and their application in frequency estimation», *Journal of Algorithms and Computational Technology* **9**(4), 389–412, 2015. Citée page 33
- [55] J. D. N. Cheeke, *Fundamental and Applications of Ultrasonic waves*, CRC Press, Boca Raton, FL, 1st edition, 2002. Citée page 34
- [56] I. M. Ward, *Mechanical Properties of Solid Polymers*, Wiley, 3rd edition, 2003. Citée page 42
- [57] R. S. Lakes, «Viscoelastic measurement techniques», *Review of Scientific Instruments* **75**(4), 797–810, 2004. Citée page 42, 67
- [58] J. Dealy and D. Plazek, «Time-temperature superposition—a users guide», *Rheol. Bull* **78**(2), 16–31, 2009. Citée page 42
- [59] L. C. Brinson and H. F. Brinson, *Polymer Engineering Science and Viscoelasticity : An Introduction*, Springer US, 2nd edition, 2015. Citée page 42
- [60] N. Lagakos, J. Jarzynski, J. H. Cole, and J. A. Bucaro, «Frequency and temperature dependence of elastic moduli of polymers», *Journal of Applied Physics* **59**(12), 4017–4031, 1986. Citée page 42
- [61] Afifi H. A., «Ultrasonic pulse echo studies of the physical properties of pmma, ps, and pvc», *Polymer-Plastics Technology and Engineering* **42**(2), 193–205, 2003. Citée page 42

- [62] Bouhamed N., Souissi S., Marechal P., Ben Amar M., Lenoir O., *et al.*, «Ultrasound evaluation of the mechanical properties as an investigation tool for the wood-polymer composites including olive wood flour», *Mechanics of Materials* **148**, 103445, 2020. Citée page 42
- [63] M. Deschamps and B. Hosten, «The effects of viscoelasticity on the reflection and transmission of ultrasonic waves by an orthotropic plate», *The Journal of the Acoustical Society of America* **91**(4), 2007–2015, 1992. Citée page 42
- [64] M. Castaings, B. Hosten, and T. Kundu, «Inversion of ultrasonic, plane-wave transmission data in composite plates to infer viscoelastic material properties», *NDT & E International* **33**(6), 377–392, 2000. Citée page 42
- [65] B. Hartmann and J. Jarzynski, «Immersion apparatus for ultrasonic measurements in polymers», *The Journal of the Acoustical Society of America* **56**(5), 1469–1477, 1974. Citée page 42, 67
- [66] T. Valier-Brasier, A. Rohfritsch, J.-M. Conoir, and R. Marchiano, «Propagation of coherent longitudinal and shear waves in two-dimensional elastic media with randomly distributed resonant cavities», *Physical Review B* **105**(5), 054310, 2022. Citée page 42
- [67] W. P. Mason, W. O. Baker, H. J. McSkimin, and J. H. Heiss, «Measurement of shear elasticity and viscosity of liquids at ultrasonic frequencies», *Physical Review* **75**(6), 936, 1949. Citée page 43
- [68] H. J. McSkimin, «Measurement of dynamic shear viscosity and stiffness of viscous liquids by means of traveling torsional waves», *The Journal of the Acoustical Society of America* **24**(4), 355–365, 1952. Citée page 43
- [69] H. T. O’neil, «Reflection and refraction of plane shear waves in viscoelastic media», *Physical Review* **75**(6), 928, 1949. Citée page 43
- [70] D. Royer and E. Dieulesaint, *Ondes élastiques dans les solides : Propagation libre et guidée*, volume 1, Masson, 1997. Citée page 43
- [71] Margaux Thieury, *Developpement de metamateriaux super-absorbants pour l’acoustique sous-marine*, Ph.D. thesis, Universite Paris Sciences et Lettres, 2020. Citée page 44, 67, 88
- [72] V. Leroy, K. M. Pitura, M. G. Scanlon, and J. H. Page, «The complex shear modulus of dough over a wide frequency range», *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* **165**(9-10), 475–478, 2010. Citée page 44
- [73] I. Alig, D. Lellinger, J. Sulimma, and S. Tadjbakhsh, «Ultrasonic shear wave reflection method for measurements of the viscoelastic properties of polymer films», *Review of Scientific Instruments* **68**(3), 1536–1542, 1997. Citée page 44
- [74] J. R. Asay, D. L. Lamberson, and A. H. Guenther, «Pressure and temperature dependence of the acoustic velocities in polymethylmethacrylate», *Journal of Applied Physics* **40**(4), 1768–1783, 1969. Citée page 45
- [75] M. Treiber, J.-Y. Kim, L. J. Jacobs, and J. Qu, «Correction for partial reflection in ultrasonic attenuation measurements using contact transducers», *The Journal of the Acoustical Society of America* **125**(5), 2946–2953, 2009. Citée page 45
- [76] E. P. Papadakis, «Buffer rod system for ultrasonic attenuation measurements», *The Journal of the Acoustical Society of America* **44**(5), 1437–1441, 1968. Citée page 45

- [77] F. Simonetti and P. Cawley, «Ultrasonic interferometry for the measurement of shear velocity and attenuation in viscoelastic solids», *The Journal of the Acoustical Society of America* **115**(1), 157–164, 2004. Citée page 45
- [78] F. Simonetti, P. Cawley, and A. Demcenko, «On the measurement of the young's modulus of small samples by acoustic interferometry», *The Journal of the Acoustical Society of America* **118**(2), 832–840, 2005. Citée page 45
- [79] <https://www.euralliage.com/2017A.htm>. Citée page 53
- [80] W. Madigosky and R. Fiorito, «Modal resonance analysis of acoustic transmission and reflection losses in viscoelastic plates», *The Journal of the Acoustical Society of America* **65**(5), 1105–1115, 1979. Citée page 59
- [81] A. N. Norris, «An inequality for longitudinal and transverse wave attenuation coefficients», *The Journal of the Acoustical Society of America* **141**(1), 475–479, 2017. Citée page 59
- [82] N. Ghodhbani, P. Maréchal, and H. Duflo, «Ultrasound monitoring of the cure kinetics of an epoxy resin : Identification, frequency and temperature dependence», *Polymer Testing* **56**, 156–166, 2016. Citée page 60
- [83] F. Lionetto and A. Maffezzoli, «Monitoring the cure state of thermosetting resins by ultrasound», *Materials* **6**(9), 3783–3804, 2013. Citée page 60
- [84] D. R. Mohan, «Recent applications of viscoelastic damping for noise control in automobiles and commercial airplanes», *Journal of Sound and Vibration* **262**(3), 457–474, 2003, 2001 India-USA Symposium on Emerging Trends in Vibration and Noise Engineering. Citée page 67
- [85] R. N. Capps, *Elastometric Materials for Acoustical Applications*, Naval Research Laboratory, Washington DC, 1989. Citée page 67
- [86] R. N. Capps, «Dynamic young's moduli of some commercially available polyurethanes», *The Journal of the Acoustical Society of America* **73**(6), 2000–2005, 1983. Citée page 67, 72, 73
- [87] J. D. Ferry, *Viscoelastic Properties of Polymers*, Wiley, third edition, 1980. Citée page 67, 68, 70, 71, 73
- [88] R. F. Landel, «Mechanical properties of a polyurethane elastomer in the rubber-to-glass transition zone», *Journal of Colloid Science* **12**(3), 308–320, 1957. Citée page 67, 73
- [89] J. Qiao and G. Wu, «Tensile properties of fly ash/polyurea composites», *Journal of materials science* **46**(11), 3935–3941, 2011. Citée page 67, 89
- [90] Z. Jia, A. V. Amirkhizi, W. Nantasetphong, and S. Nemat-Nasser, «Experimentally-based relaxation modulus of polyurea and its composites», *Mechanics of time-dependent materials* **20**(2), 155–174, 2016. Citée page 67, 89
- [91] W. Nantasetphong, Z. Jia, M. A. Hasan, A. V. Amirkhizi, and S. Nemat-Nasser, «A new technique for characterization of low impedance materials at acoustic frequencies», *Experimental Mechanics* **58**(8), 1311–1324, 2018. Citée page 67, 89
- [92] D. Ionita, M. Cristea, and C. Gaina, «Prediction of polyurethane behaviour via time-temperature superposition : Meanings and limitations», *Polymer Testing* **83**, 106340, 2020. Citée page 67

- [93] J. E. McKinney, S. Edelman, and R. S. Marvin, «Apparatus for the direct determination of the dynamic bulk modulus», *Journal of Applied Physics* **27**(5), 425–430, 1956. Citée page 67
- [94] J. E. McKinney, H. V. Belcher, and R. S. Marvin, «The dynamic compressibility of a rubber-sulfur vulcanizate and its relation to free volume», *Transactions of the Society of Rheology* **4**(1), 347–362, 1960. Citée page 67
- [95] Pascal Ray, *Caractérisation acoustique des élastomères par la mesure de leur compressibilité dynamique*, Ph.D. thesis, Paris 6, 1993. Citée page 67
- [96] R. L. Willis, L. Wu, and Y. H. Berthelot, «Determination of the complex young and shear dynamic moduli of viscoelastic materials», *The Journal of the Acoustical Society of America* **109**(2), 611–621, 2001. Citée page 67
- [97] R. Meister, C. J. Marhoeffler, R. Sciamanda, L. Cotter, and T. Litovitz, «Ultrasonic viscoelastic properties of associated liquids», *Journal of applied physics* **31**(5), 854–870, 1960. Citée page 67
- [98] J. Qiao, W. Nantasetphong, A. A. Amirkhizi, and S. Nemat-Nasser, «Ultrasonic properties of fly ash/polyurea composites», *Materials & Design* **89**, 264–272, 2016. Citée page 67
- [99] R. Christensen, *Theory of viscoelasticity : an introduction*, Elsevier, 2012. Citée page 68, 81
- [100] N. W. Tschoegl, *The phenomenological theory of linear viscoelastic behavior : an introduction*, Springer Science & Business Media, 2012. Citée page 68, 82
- [101] S. Havriliak and S. Negami, «A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers», *Polymer* **8**, 161–210, 1967. Citée page 68, 82
- [102] R. Bagley and P. Torvik, «A theoretical basis for the application of fractional calculus to viscoelasticity», *Journal of Rheology* **27**(3), 201–210, 1983. Citée page 68, 82
- [103] C. D. Han and J. K. Kim, «On the use of time-temperature superposition in multicomponent/multiphase polymer systems», *Polymer* **34**(12), 2533–2539, 1993. Citée page 68
- [104] H. Leaderman, «Elastic and creep properties of filamentous materials and other high polymers», *Washington, Textile Foundation*, 1943. Citée page 68
- [105] D. J. Plazek and K. L. Ngai, «Correlation of polymer segmental chain dynamics with temperature-dependent time-scale shifts», *Macromolecules* **24**(5), 1222–1224, 1991. Citée page 68, 75
- [106] J. D. Ferry, «Mechanical properties of substances of high molecular weight. vi. dispersion in concentrated polymer solutions and its dependence on temperature and concentration», *Journal of the American Chemical Society* **72**(8), 3746–3752, 1950. Citée page 70
- [107] M. L. Williams, R. F. Landel, and J. D. Ferry, «The temperature dependence of relaxation mechanisms in amorphous polymers and other glass-forming liquids», *Journal of the American Chemical Society* **77**(14), 3701–3707, 1955. Citée page 70
- [108] Prince E. Rouse Jr., «A theory of the linear viscoelastic properties of dilute solutions of coiling polymers», *The Journal of Chemical Physics* **21**(7), 1272–1280, 1953. Citée page 70, 82

- [109] A. K. Doolittle, «Studies in newtonian flow. ii. the dependence of the viscosity of liquids on free-space», *Journal of Applied Physics* **22**(12), 1471–1475, 1951. Citée page 70
- [110] F. Bueche, «The viscoelastic properties of plastics», *The Journal of chemical physics* **22**(4), 603–609, 1954. Citée page 70
- [111] M. Doi and S. F. E., «Dynamics of concentrated polymer systems. part 3.—the constitutive equation», *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 2 : Molecular and Chemical Physics* **74**, 1818–1832, 1978. Citée page 70
- [112] R. H. Colby, L. J. Fetters, and W. W. Graessley, «The melt viscosity-molecular weight relationship for linear polymers», *Macromolecules* **20**(9), 2226–2237, 1987. Citée page 70
- [113] S. Sihm and S. W. Tsai, «Automated shift for time-temperature superposition», *Proceedings of the 12th International Committee on Composite Materials* **51**, 47, 1999. Citée page 71
- [114] R. M. Guedes, «A viscoelastic model for a biomedical ultra-high molecular weight polyethylene using the time-temperature superposition principle», *Polymer testing* **30**(3), 294–302, 2011. Citée page 71
- [115] T. Pritz, «Verification of local kramers–kronig relations for complex modulus by means of fractional derivative model», *Journal of Sound and Vibration* **228**(5), 1145–1165, 1999. Citée page 71
- [116] L. Rouleau, J.-F. Deu, A. Legay, and F. Le Lay, «Application of kramers–kronig relations to time-temperature superposition for viscoelastic materials», *Mechanics of Materials* **65**, 66–75, 2013. Citée page 71, 86
- [117] J. D. Ferry and E. R. Fitzgerald, «Mechanical and electrical relaxation distribution functions of two compositions of polyvinyl chloride and dimethylthianthrene», *Journal of Colloid Science* **8**(2), 224–242, 1953. Citée page 74
- [118] L. Boltzmann, «On the theory of the elastic aftereffect», *Poggendorff's Ann. Phys.* **7**, 624–645, 1876. Citée page 81
- [119] R. Lakes and R. S. Lakes, *Viscoelastic materials*, Cambridge university press, 2009. Citée page 81
- [120] E. Wiechert, *Ueber elastische Nachwirkung...*, Ph.D. thesis, Hartungsche buchdr., 1889. Citée page 81
- [121] D. J. McTavish and P. C. Hughes, «Modeling of Linear Viscoelastic Space Structures», *Journal of Vibration and Acoustics* **115**(1), 103–110, 1993. Citée page 81
- [122] G. A. Lesieutre and E. Bianchini, «Time Domain Modeling of Linear Viscoelasticity Using Anelastic Displacement Fields», *Journal of Vibration and Acoustics* **117**(4), 424–430, 1995. Citée page 81
- [123] R. L. Bagley and P. J. Torvik, «On the fractional calculus model of viscoelastic behavior», *Journal of Rheology* **30**(1), 133–155, 1986. Citée page 82
- [124] Valentin Gallican, *Homogenization estimates for polymer-based viscoelastic composite materials*, Ph.D. thesis, Sorbonne université, 2019. Citée page 82
- [125] Z. Liu, C. T. Chan, P. Sheng, A. L. Goertzen, and J. H. Page, «Elastic wave scattering by periodic structures of spherical objects : Theory and experiment», *Physical Review B* **62**(4), 2446, 2000. Citée page 94

- [126] X. Wu, Y. Su, and J. Shi, «Perspective of additive manufacturing for metamaterials development», *Smart Materials and Structures* **28**(9), 093001, 2019. Citée page 94
- [127] M. Marmonier, S. Robert, J. Laurent, and C. Prada, «Real-time 3d imaging with fourier-domain algorithms and matrix arrays applied to non-destructive testing», *Ultrasonics* **124**, 106708, 2022. Citée page 94
- [128] V. K. Kinra, N. A. Day, K. Maslov, B. K. Henderson, and G. Diderich, «The transmission of a longitudinal wave through a layer of spherical inclusions with a random or periodic arrangement», *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **46**(1), 153–165, 1998. Citée page 94
- [129] K. Maslov and V. K. Kinra, «Acoustic response of a periodic layer of nearly rigid spherical inclusions in an elastic solid», *The Journal of the Acoustical Society of America* **106**(6), 3081–3088, 1999. Citée page 94
- [130] A. Simon, Q. Baudis, T. Valier-Brasier, and R. Wunenburger, «Propagation of coherent elastic waves in multiple scattering media exhibiting dipolar resonances : effect of microstructure», *Soumis pour publication prochainement* . Citée page 94, 110
- [131] P. Méresse, C. Audoly, C. Croënne, and A.-C. Hladky-Hennion, «Acoustic coatings for maritime systems applications using resonant phenomena», *Comptes Rendus Mécanique* **343**(12), 645–655, 2015. Citée page 94
- [132] A. Simon, R. Wunenburger, and T. Valier-Brasier, «Propagation of coherent shear waves in scattering elastic media», *Physical Review E* **103**(5), L051001, 2021. Citée page 94
- [133] F. Luppé, J.-M. Conoir, and T. Valier-Brasier, «Longitudinal and transverse coherent waves in media containing randomly distributed spheres», *Wave Motion* **115**, 103082, 2022. Citée page 94, 100, 101
- [134] D. Brill and G. Gaunard, «Resonance theory of elastic waves ultrasonically scattered from an elastic sphere», *J. Acoust. Soc. Am.* **81**(1), 1–21, 1987. Citée page 95
- [135] T. Valier-Brasier, J.-M. Conoir, F. Coulouvrat, and J.-L. Thomas, «Sound propagation in dilute suspensions of spheres : Analytical comparison between coupled phase model and multiple scattering theory», *The Journal of the Acoustical Society of America* **138**(4), 2598–2612, 2015. Citée page 97
- [136] L. Foldy, «The multiple scattering of waves i. general theory of isotropic scattering by randomly distributed scatterers», *Physical Review* **67**, 1945. Citée page 100
- [137] M. Lax, «Multiple scattering of waves. ii. the effective field in dense systems», *Phys. Rev.* **85**, 621–629, 1952. Citée page 100
- [138] J.G. Fikioris and P.C. Waterman, «Multiple scattering of waves. ii. "hole corrections" in the scalar case», *Journal of Mathematical Physics* **5**, 1964. Citée page 100, 101, 102, 118
- [139] F. Luppé, J.-M. Conoir, and A. N. Norris, «Effective wave numbers for thermo-viscoelastic media containing random configurations of spherical scatterers», *The Journal of the Acoustical Society of America* **131**(2), 1113–1120, 2012. Citée page 101
- [140] J.-M. Conoir and A. N. Norris, «Effective wavenumbers and reflection coefficients for an elastic medium containing random configurations of cylindrical scatterers», *Wave Motion* **47**(3), 183–197, 2010. Citée page 101

- [141] A. N. Norris and J.-M. Conoir, «Multiple scattering by cylinders immersed in fluid : High order approximations for the effective wavenumbers», *J. Acoust. Soc. Am.* **129**(1), 104–113, 2011. Citée page 101
- [142] A. Rohfritsch, J.-M. Conoir, T. Valier-Brasier, and R. Marchiano, «Influence of the microstructure of two-dimensional random heterogeneous media on propagation of acoustic coherent waves», *Phys. Rev. E* **101**, 023001, 2020. Citée page 101, 116
- [143] C. Aristégui and Y. C. Angel, «Effective mass density and stiffness derived from p-wave multiple scattering», *Wave Motion* **44**(3), 153–164, 2007. Citée page 102
- [144] P. P. Bansal and A. J. Ardell, «Average nearest-neighbour distances between uniformly distributed finite particles», *Metallography* **5**, 97–111, 1972. Citée page 107, 108
- [145] G. M. Conley, M. Burrese, F. Pratesi, K. Vynck, and D. S. Wiersma, «Light transport and localization in two-dimensional correlated disorder», *Phys. Rev. Lett.* **112**, 143901, 2014. Citée page 109
- [146] Adrien Rohfritsch, *Diffusion multiple en milieux désordonnés : influence des propriétés macroscopiques et microscopiques sur les ondes cohérentes*, Ph.D. thesis, Sorbonne université, 2021. Citée page 115
- [147] A. Rohfritsch, J.-M. Conoir, R. Marchiano, and T. Valier-Brasier, «Numerical simulation of two-dimensional multiple scattering of sound by a large number of circular cylinders», *The Journal of the Acoustical Society of America* **145**(6), 3320–3329, 2019. Citée page 115
- [148] A. Rohfritsch, J.-M. Conoir, T. Valier-Brasier, and R. Marchiano, «Impact of particle size and multiple scattering on the propagation of waves in stealthy-hyperuniform media», *Phys. Rev. E* **102**, 053001, 2020. Citée page 116
- [149] A. Rohfritsch, J.-M. Conoir, T. Valier-Brasier, R. Pierrat, and R. Marchiano, «Propagation of scalar waves in dense disordered media exhibiting short- and long-range correlations», *Phys. Rev. E* **104**, 064138, 2021. Citée page 116
- [150] J. A. Nelder and R. Mead, «A simplex method for function minimization», *The Computer Journal* **7**(4), 308–313, 1965. Citée page 117
- [151] C. Audoly and C. Giangreco, «Global characterization of multilayer panels for underwater applications», *Journal of Wave-Material Interaction* **5**(1), 55–77, 1991. Citée page 120, 121
- [152] L. Roux, M. Pouille, C. Audoly, and A.-C. Hladky-Hennion, «Panel measurement method for the determination of scattering coefficients and edge diffraction in an open water tank», *The Journal of the Acoustical Society of America* **147**(2), 1104–1112, 2020. Citée page 120
- [153] T. Valier-Brasier and J.-M. Conoir, «Propagation of coherent transverse waves : Influence of the translational and rotational subwavelength resonances», *J. Acoust. Soc. Am.* **142**(2), 512–522, 2017. Citée page 128