



**HAL**  
open science

# Recherche expérimentale de la localisation d'Anderson des ultrasons dans des suspensions multi-diffusantes et résonantes

Fanambinana Delmotte

► **To cite this version:**

Fanambinana Delmotte. Recherche expérimentale de la localisation d'Anderson des ultrasons dans des suspensions multi-diffusantes et résonantes. Mécanique [physics]. Université de Bordeaux, 2023. Français. NNT : 2023BORD0226 . tel-04250442

**HAL Id: tel-04250442**

**<https://theses.hal.science/tel-04250442>**

Submitted on 19 Oct 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.

THÈSE PRÉSENTÉE  
POUR OBTENIR LE GRADE DE  
**DOCTEUR**  
**DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX**

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE  
L'INGÉNIEUR

SPÉCIALITÉ : Mécanique

par **Fanambinana DELMOTTE**

Recherche expérimentale de la localisation d'Anderson des  
ultrasons dans des suspensions multi-diffusantes et  
résonantes

Sous la direction de : **Thomas BRUNET**

Soutenue le 2 Octobre 2023

Membres du jury :

M.	Alexandre AUBRY	Chargé de Recherche CNRS	Rapporteur
Mme	Émilie FRANCESCHINI	Chargée de Recherche CNRS	Rapporteur
M.	Frank SCHEFFOLD	Professeur à l'Université de Fribourg	Examineur
M.	Sergey SKIPETROV	Directeur de Recherche CNRS	Examineur
M.	Régis WUNENBURGER	Professeur à Sorbonne Université	Président du jury
M.	Thomas BRUNET	Maître de conférence à Bordeaux INP	Directeur de thèse
M.	Jacques LENG	Directeur de recherche CNRS	Invité
M.	John H. PAGE	Professeur à l'Université du Manitoba	Invité



## Remerciements

Ces travaux ont été réalisés dans le département d'Acoustique Physique (APY) au sein de l'Institut de Mécanique et d'Ingénierie de Bordeaux (I2M). Je tiens tout d'abord à remercier Thomas Brunet qui a dirigé avec bienveillance ces travaux de thèse et qui m'a surtout permis d'apprécier le monde expérimental de la recherche scientifique. Grâce à ses précieux conseils, il a réussi à m'inculquer une grande discipline qui m'a été bénéfique depuis mes stages de Master et jusqu'à la bonne réussite de cette thèse. Je tiens également à remercier John H. Page, de l'Université du Manitoba pour sa disponibilité, son extrême rigueur et dont les échanges ont également été indispensables à la compréhension des phénomènes en jeu dans ces travaux.

Je remercie Alexandre Aubry et Émilie Franceschini pour avoir examiné ce manuscrit. Je remercie également Frank Scheffold, Serguey Skipetrov et Régis Wunenburger pour avoir participé à mon jury. J'ai été sensible à l'enthousiasme et à la bienveillance dont ils ont fait preuve lors de nos échanges.

Je remercie également tous les membres du département APY et plus particulièrement les membres de l'équipe FAMAS dont je faisais partie.

Je remercie également chacun des membres de l'*Ultrasonics Research Laboratory* pour leur accueil chaleureux. Merci à Anatoliy Strybulevych ("Tolia") pour son aide et ses conseils. Merci également à Benoit Tallon pour son aide considérable durant ma thèse.

Je remercie aussi Jacques Leng et Gérard Clisson du Laboratoire du Futur qui m'ont apporté leur savoir-faire pour la fabrication des échantillons.

Ce travail de thèse a pu être réalisé dans de bonnes conditions grâce au soutien de mes collègues et amis. Merci à Ludovic Alhaitz, Victor Gayoux, Olivier Lombard, Marie-Marthe Groz, Thomas Lacour, Romain Kubecki, Côme de Tournemire et Thomas Southarewsky, mes co-bureaux avec qui j'ai partagé de supers moments tout au long de ces années de thèse. Merci également à Ewen Raoul, Antoine Penneron, Hugo Boue, Clément Desprès, Caroline Coin et Malo Lecorgne qui ont été mes associés lors des pauses cafés et avec qui j'ai partagé les meilleurs cookies. Je vous souhaite à tous le meilleur.

Je remercie également le personnel administratif et technique de l'I2M ainsi que l'ensemble des chercheurs permanents et non-permanents.

Enfin, je tiens à adresser mes remerciements à ma femme, ma famille et mes amis qui m'ont soutenu durant ces années.



## Résumé

Ces travaux de thèse portent sur l'étude du transport des ondes ultrasonores multiples diffusées dans des milieux désordonnés et localement résonants. Plus particulièrement, nous considérons ici des suspensions « modèles » constituées de microbilles métalliques très peu absorbantes distribuées aléatoirement dans un gel aqueux. Les microbilles présentant une très faible dispersion en taille et en forme, ces dernières sont le siège de fortes résonances acoustiques de type Mie que nous exploitons pour faire chuter les libres parcours moyens.

Dans un premier temps, nous détaillons les formalismes classiques permettant de décrire les différents régimes de transports susceptibles de se manifester dans ces milieux complexes. Ensuite, nous présentons le dispositif millifluidique spécifiquement développé pour notre besoin autorisant la fabrication de microbilles hautement calibrées en forme et en taille, faites d'un alliage métallique fondant à basse température. Les deux derniers chapitres de ces travaux de thèse sont quant à eux consacrés à l'étude expérimentale du transport des ondes ultrasonores dans ces suspensions résonantes. Dans un premier temps, nous étudions le transport balistique de l'onde cohérente en caractérisant notamment les propriétés effectives de suspensions diluées et concentrées (jusqu'à 40%). Nos mesures ultrasonores du libre parcours moyen, des vitesses de phase et de groupe révèlent un très fort impact des résonances acoustiques multipolaires des micro-billes sur ces propriétés effectives.

Pour des échantillons plus épais, l'onde cohérente disparaît peu à peu au profit des ondes dites « multiples diffusées » ou incohérentes. Leur transport est alors régi par un processus de diffusion dont nous caractérisons les paramètres (coefficient de diffusion et vitesse de transport) en fonction de la fréquence. Proches des résonances acoustiques des microbilles, nous observons une déviation significative à ce régime diffusif. Dans le cas de suspensions concentrées (20%), nous identifions également un régime de localisation forte pour lequel l'énergie acoustique reste piégée près de la source. Ces observations corroborent des prédictions issues d'une théorie auto-consistante prenant en compte la renormalisation du coefficient de diffusion. Enfin une analyse statistique de la distribution d'intensité de la figure de speckle vient confirmer l'existence d'un régime de localisation d'Anderson dans nos suspensions concentrées.

**Mots-clés : Résonances acoustiques, Diffusion multiple, Localisation d'Anderson, Ultrasons**

## **Abstract**

This thesis work focuses on the transport of multiply scattered acoustic waves in disordered and locally resonant media. More specifically, the “model” suspensions considered here are composed of weakly absorbing soft metallic microbeads randomly distributed in an aqueous gel. Due to their weak dispersion in size and shape, these microbeads exhibit strong Mie-type acoustic resonances that are exploited to reduce considerably the mean free path.

First, the different transport regimes that might occur in these complex media are described through classical formalisms. Next, a millifluidic device designed specifically for bead fabrication is presented, enabling the production of highly calibrated microbeads with controlled shape and size, using a low- temperature- melting metallic alloy. The last two chapters of this thesis are dedicated to the experimental study of ultrasonic wave transport in these resonant suspensions. Initially, the ballistic transport of the coherent waves is investigated by characterizing the effective properties of both diluted and concentrated suspensions (up to 40%). Ultrasonic measurements of the mean free path, phase and group velocities reveal the strong impact of the acoustic multipolar resonances of the microbeads on these effective parameters.

For thicker samples, the coherent wave tends to vanish as multiply scattered waves are gradually developing. The transport of these incoherent waves is usually governed by a diffusion process of which the parameters are characterized (diffusion coefficient and transport velocity) as a function of frequency. In the vicinity of microbeads’ resonances, a significant deviation from this diffusive regime is observed. In the case of concentrated suspensions (20%), a regime of strong localization is identified for which the acoustic energy becomes trapped near the source. These observations are corroborated by predictions from the self-consistent theory of localization that takes into account the renormalization of the diffusion coefficient. Finally, a statistical analysis of the intensity distribution of the speckle pattern confirms the existence of an Anderson localization regime in our concentrated suspensions.

**Keywords : Acoustic resonances, Multiple scattering, Anderson localization, Ultrasound**

# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>vii</b>
<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Régimes de transport des ondes en milieux complexes</b>	<b>5</b>
1.1 Transport balistique de l'onde cohérente . . . . .	7
1.1.1 Diffusion par une particule sphérique élastique . . . . .	7
1.1.2 Formalisme de la matrice $\mathbf{T}$ . . . . .	11
1.1.3 Fonction de Green moyenne . . . . .	13
1.2 Transport diffusif du champ incohérent . . . . .	16
1.2.1 Transport de l'intensité moyenne . . . . .	16
1.2.2 Approximation de Boltzmann . . . . .	18
1.3 Localisation d'Anderson et renormalisation de la diffusion . . . . .	21
1.3.1 La localisation d'Anderson . . . . .	21
1.3.2 <i>Self Consistent Theory</i> . . . . .	22
1.4 Conclusion . . . . .	25
<b>2 Fabrication et caractérisation des échantillons</b>	<b>27</b>
2.1 Choix des particules résonantes . . . . .	29
2.1.1 Bulles, gouttes ou billes? . . . . .	29
2.1.2 Billes métalliques de BiPbInSnCd . . . . .	31
2.2 Fabrication des échantillons . . . . .	34
2.2.1 Fabrication du gel . . . . .	34
2.2.2 Dispositif millifluidique pour la fabrication des billes . . . . .	35
2.3 Caractérisation des échantillons . . . . .	41
2.3.1 Caractérisation de la taille des billes . . . . .	41
2.3.2 Caractérisation de la forme des billes . . . . .	42
2.3.3 Caractérisation de la structure de la suspension . . . . .	44
2.4 Conclusion . . . . .	47
<b>3 Propagation des ondes et nombre d'onde effectif</b>	<b>49</b>
3.1 Caractérisation de l'onde cohérente . . . . .	51
3.1.1 Dispositif expérimental . . . . .	51
3.1.2 Extraction du nombre d'onde effectif . . . . .	52

---

3.2	Confrontation aux modèles de diffusion multiple . . . . .	56
3.2.1	Suspensions diluées : modèle d'ordre 1 . . . . .	57
3.2.2	Suspensions concentrées : modèles d'ordre 2 . . . . .	61
3.3	Intégration des corrélations de positions . . . . .	66
3.3.1	Modèle de Keller . . . . .	67
3.3.2	«Hole Correction» . . . . .	68
3.3.3	Fonction $g(r)$ reconstituée . . . . .	71
3.4	Conclusion . . . . .	75
<b>4</b>	<b>Régimes de transports de l'intensité moyenne</b>	<b>77</b>
4.1	Caractérisation de l'onde incohérente . . . . .	79
4.1.1	Dispositif expérimental . . . . .	79
4.1.2	Extraction du coefficient de diffusion « effectif » . . . . .	84
4.2	Régime de transport diffusif et sub-diffusif . . . . .	86
4.2.1	Suspensions diluées : approximation de la diffusion . . . . .	86
4.2.2	Suspensions concentrées : régime de sub-diffusion . . . . .	89
4.3	Mise en évidence de la localisation d'Anderson . . . . .	93
4.3.1	Confinement transversale du halo diffusif . . . . .	93
4.3.2	Distribution d'intensité de la figure de <i>speckle</i> . . . . .	100
4.4	Conclusion . . . . .	104
	<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>105</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>109</b>

# Introduction générale

Le transport des ondes en milieux hétérogènes est un vaste domaine d'étude qui a connu un regain d'intérêt ces dernières décennies notamment avec l'émergence des métamatériaux [1]. Les problématiques liées au transport des ondes en milieux complexes sont présentes dans de nombreux domaines d'applications tels que l'imagerie médicale, la communication sans fil ou encore en géophysique. Contrairement aux milieux homogènes dans lesquels la propagation des ondes est relativement simple à décrire à l'aide de constantes physiques telles que les célérités de phase ou de groupe, le transport des ondes dans les milieux hétérogènes fortement diffusants est plus délicate en raison notamment d'effets de dispersion et d'absorption dans le milieu. Ce problème est néanmoins classique, posé depuis longtemps et en partie résolu [2]. La partie propagative de l'onde qui a résisté au désordre est généralement appelée onde cohérente et son énergie décroît au profit des ondes dites incohérentes qui ont perdu la mémoire de leur direction initiale de propagation. Elles suivent alors une marche aléatoire associée à un processus de diffusion pour lequel la vitesse de transport de l'intensité est différente des vitesses de phase et de groupe de l'onde cohérente [3]. Dans certains cas, il arrive même que les interférences ralentissent ce processus de diffusion au point que les ondes restent piégées proches de la source : c'est ce qu'on appelle la localisation d'Anderson.

Ce concept de localisation forte a été introduit par Philip Warren Anderson en 1958 [4] pour expliquer l'arrêt du transport des électrons dans un réseau d'atomes lorsque ce dernier présente trop d'impuretés. Ce concept a été étendu au transport des ondes classiques (lumineuses et acoustiques) dans les années 1980 par Sajeed John [5] se propageant dans un milieu très désordonné. Depuis, la localisation d'Anderson demeure un domaine de recherche expérimental actif. Pour les ondes lumineuses, l'observation du régime localisé dans des milieux tridimensionnels a fait l'objet de nombreuses publications [6–8] dont les interprétations ont été sujettes à controverses à cause des effets parasites d'absorption, de fluorescence ou de diffusion inélastique [9, 10]. À ce jour, la localisation forte de la lumière n'a toujours pas été observée dans un milieu tridimensionnel même si de récentes études ont montré que des atomes froids soumis à un champ électrique pourraient être de bons candidats pour l'observation de ce régime localisé [11].

Pour les ondes élastiques, la localisation d'Anderson a été mise en évidence dans des réseaux tridimensionnels de billes d'aluminium frittées à des fréquences ultrasonores par le groupe du Professeur John H. Page en 2008 [12]. Ensuite, ces structures particulières ont fait l'objet de nombreuses études portant sur l'estimation directe de la densité d'état [13], de la suppression de l'anis-

---

tropie de la diffusion [14], du couplage de modes diffusifs et localisés [15]... Cependant, la nature solide des échantillons interdit toute inspection du phénomène au cœur même du matériau. Pour une étude *in-situ* de la localisation, il est donc nécessaire de développer des systèmes modèles ayant une nature plutôt fluide et non absorbante comme les gels à base d'eau par exemple. Le choix des diffuseurs constitue également un point crucial car il est nécessaire d'avoir des particules fortement diffusantes ou résonantes pour faire chuter les libres parcours moyens.

Les bulles d'air [16] ou les billes de silicone poreux [17] pourraient être de très bonnes candidates mais ces dernières induisent des pertes trop importantes aux interfaces ou dans les diffuseurs pour être utilisées dans notre étude. Il est donc indispensable de trouver d'autres particules contrastées d'un point de vue acoustique avec la matrice environnante mais présentant de très faibles niveaux d'absorption. Les gouttelettes d'huile fluorée auraient pu également constituer des particules résonantes idéales en raison de leur faible absorption (et leur faible vitesse du son qui est trois fois inférieure à celle de l'eau), mais une récente étude menée sur des émulsions concentrées constituées de ces gouttelettes a montré qu'elles tendaient à coalescer pour des concentrations élevées [18?]. Dans le cadre de cette thèse, notre intérêt s'est porté sur des suspensions de billes métalliques dispersées dans un gel aqueux et faites à partir d'un alliage de bismuth, plomb, indium, étain et cadmium (BiPbInSnCd) dont la faible température de fusion permet de les mettre en forme « assez » facilement. De plus, leur fort contraste de propriétés acoustiques avec la matrice environnante induit de fortes résonances acoustiques multipolaires qui ont tendance à faire chuter les libres parcours moyens.

Dans un premier temps, nous présenterons le formalisme de la diffusion multiple d'une onde acoustique par une population de particules sphériques en commençant par la diffusion d'une onde par un objet isolé. Cette étude préliminaire nous servira à définir les quantités nécessaires pour notre étude (les amplitudes modales de l'onde diffusée, la fonction de diffusion  $f(\theta)$ , la section efficace de diffusion, ...). Puis, nous étendrons le développement à une population d'objets identiques. Les équations obtenues étant récursives, il sera donc indispensable de faire des approximations pour pouvoir les résoudre. Par exemple il sera nécessaire de faire l'approximation des diffusions indépendantes pour obtenir une expression du nombre d'onde effectif de l'onde cohérente valable pour des suspensions diluées. De même, le transport de l'intensité moyenne se fera dans le cadre de l'approximation de Boltzmann, conduisant à une équation de diffusion (au sens diffusion de la chaleur).

Dans le deuxième chapitre, nous détaillerons les raisons qui nous ont conduit à choisir un alliage métallique bien particulier pour fabriquer nos billes diffusantes et résonantes. Le procédé millifluidique qui a conduit à la production massive d'un grand nombre de ces billes toutes identiques (plusieurs dizaines de milliers) sera explicité [19]. Leur caractérisation par des méthodes optiques classiques montreront que leurs dispersions en taille et en forme n'excèdent pas quelques pourcents. Ce chapitre sera également l'occasion de détailler la fabrication du gel aqueux à base de carbopol utilisé dans cette thèse.

---

Le troisième chapitre sera consacré à l'étude de l'onde cohérente et des propriétés effectives associées. Dans un premier temps, nous détaillerons la méthode expérimentale d'extraction qui a permis d'extraire finement le nombre d'onde effectif des suspensions testées. Cette étude expérimentale mettra notamment en évidence l'impact des résonances acoustiques multipolaires des billes sur la dispersion de l'onde cohérente. Dans un second temps, nous comparerons les résultats expérimentaux à des modèles de diffusion multiple « classiques » pour des échantillons dont la fraction volumique en billes variera entre 5 et 40%. Nous verrons alors que ces modèles ne suffisent plus lorsque la concentration est trop élevée ( $\phi > 10\%$ ) et qu'il est nécessaire d'utiliser des modèles plus sophistiqués prenant en compte les corrélations de position à courtes portée.

Enfin, le transport de l'intensité moyenne sera étudié dans le dernier chapitre de cette thèse. À travers différentes expériences résolues en espace et en temps, nous caractériserons la vitesse d'étalement du halo diffusif à différentes fréquences. Nous nous intéresserons également à l'impact des résonances sur le transport de l'intensité moyenne. Ces résultats expérimentaux seront confrontés aux prédictions théoriques issues de l'approximation de la diffusion. Lorsque la concentration sera plus élevée, les interférences entre les ondes multiples diffusées conduiront à un ralentissement de l'étalement du halo de diffusion par des effets de sub-diffusion. En comparant nos résultats au modèle théorique de la « *Self Consistent Theory* », nous mettrons en évidence une transition entre un régime de transport diffusif et un régime de transport localisé [20]. Nos observations du régime localisé ont été confirmées par des analyses statistiques de la figure de tavelure acoustique transmise [21, 22]. Enfin, la nature fluide de la matrice nous permettra une inspection de ce phénomène au sein même du matériau.



# Chapitre 1

## Régimes de transport des ondes en milieux complexes

### Sommaire

---

<b>1.1 Transport balistique de l'onde cohérente</b> . . . . .	<b>7</b>
1.1.1 Diffusion par une particule sphérique élastique . . . . .	7
1.1.2 Formalisme de la matrice $T$ . . . . .	11
1.1.3 Fonction de Green moyenne . . . . .	13
<b>1.2 Transport diffusif du champ incohérent</b> . . . . .	<b>16</b>
1.2.1 Transport de l'intensité moyenne . . . . .	16
1.2.2 Approximation de Boltzmann . . . . .	18
<b>1.3 Localisation d'Anderson et renormalisation de la diffusion</b> . . . . .	<b>21</b>
1.3.1 La localisation d'Anderson . . . . .	21
1.3.2 <i>Self Consistent Theory</i> . . . . .	22
<b>1.4 Conclusion</b> . . . . .	<b>25</b>

---

## Introduction

Dans ce chapitre nous détaillons le formalisme des équations qui décrivent le transport des ondes dans des milieux hétérogènes. Les calculs pouvant être difficiles, nous utilisons dans notre étude un système modèle constitué d'une population d'objets identiques dont la fraction volumique en diffuseurs  $\eta$  est connue. Plus précisément, nous considérons une suspension d'inclusions sphériques et solides réparties aléatoirement dans une matrice fluide non absorbante.

Lorsqu'une onde incidente  $\psi_0$  interagit avec un milieu hétérogène, il est possible de décrire l'onde  $\psi$  issue de ces interactions de la manière suivante :

$$\psi = \langle \psi \rangle + \delta\psi \tag{1.1}$$

Cette décomposition signifie que le champ  $\psi$  est la superposition d'une onde moyenne dite « cohérente »  $\langle \psi \rangle$  ayant résisté au désordre et d'un terme supplémentaire  $\delta\psi$  représentant les ondes multiplement diffusées dont le transport est dicté par un processus de marche aléatoire.

Dans un premier temps, nous décrirons la diffusion d'une onde plane monochromatique par une sphère élastique unique immergée dans un fluide parfait. Par la suite, nous détaillerons le formalisme qui conduit à la description du champ cohérent  $\langle \psi \rangle$ . Nous introduirons notamment les premières approximations qui mènent à l'écriture du nombre d'onde effectif  $k_{\text{eff}}$ . L'étude détaillée du champ cohérent fait l'objet du chapitre 3 de ce manuscrit. Enfin, nous terminerons par la caractérisation du champ incohérent  $\delta\psi$  au travers du transport de l'intensité moyenne  $\langle |\psi|^2 \rangle$ . Nous introduirons également quelques notions sur la localisation d'Anderson dont la mise en évidence expérimentale fait l'objet du chapitre 4.

## 1.1 Transport balistique de l'onde cohérente

### 1.1.1 Diffusion par une particule sphérique élastique

La sphère élastique isolée est la brique élémentaire du milieu complexe étudié dans ce travail de thèse. Dans cette première section nous étudions la diffusion d'une onde plane harmonique par une bille immergée dans une matrice fluide. Les calculs seront appliqués au cas d'une bille faite d'un alliage métallique BiPbInSnCd (bismuth, plomb, indium, étain et cadmium) immergée dans un gel aqueux non absorbant utilisé dans cette thèse.

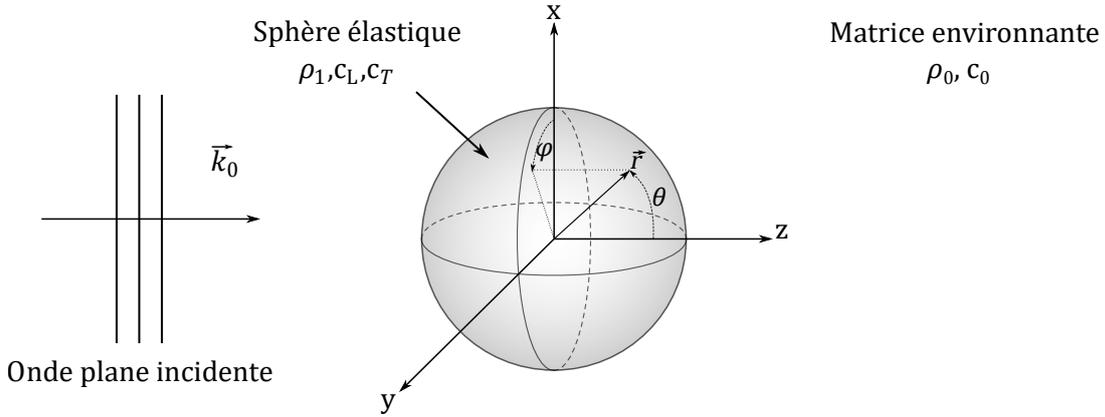


FIGURE 1.1 – Système de coordonnées utilisé pour la description de notre problème de diffusion.

La géométrie du problème de diffusion est affichée en figure 1.1 où l'indice "0" est associé à la matrice et l'indice "1" au diffuseur placé au centre du repère. Le champ incident  $P_{\text{inc}}$  est une onde plane se propageant dans la direction  $\vec{z}$  dans la matrice environnante. Ce choix de direction de propagation rend alors le problème invariant par rotation d'angle azimutal  $\varphi$  autour de l'axe  $(0, \vec{z})$ ,  $P_{\text{inc}}$  s'écrit alors dans la base des harmoniques sphériques suivante [23, 24] :

$$P_{\text{inc}} = \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) i^n j_n(k_0 r) P_n(\cos \theta) e^{-i\omega t}. \quad (1.2)$$

Par conséquent l'onde diffusée  $P_d$  dans la matrice environnante s'écrit :

$$P_d = \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) i^n A_n h_n(k_0 r) P_n(\cos \theta) e^{-i\omega t}, \quad (1.3)$$

où  $j_n$  et  $h_n$  sont les fonctions de Bessel et Hankel sphériques de première espèce et  $P_n$  les polynômes de Legendre. On note que l'utilisation des fonctions de Hankel  $h_n$  sont particulièrement adaptées pour décrire la propagation d'ondes qui s'éloignent de la source.

En ce qui concerne les ondes diffusées à l'intérieur de l'objet sphérique de rayon  $a$ , le choix d'un diffuseur élastique mène à la présence de deux types d'ondes : une onde de compression,

notée  $P_c$  et une onde de cisaillement notée  $P_s$ .

$$P_c = \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) i^n A'_n j_n(k_L r) P_n(\cos \theta) e^{-i\omega t}. \quad (1.4)$$

$$P_s = \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) i^n C'_n j_n(k_T r) P'_n(\cos \theta) e^{-i\omega t}. \quad (1.5)$$

où  $k_L$  et  $k_T$  sont les nombres d'ondes dans le diffuseur, relatifs à l'onde longitudinale et transversale respectivement et  $P'_n$  est la notation compact de :

$$P'_n = -\frac{dP_n}{d\theta}. \quad (1.6)$$

Les amplitudes modales  $A_n$ ,  $A'_n$  et  $C'_n$  peuvent être déterminées grâce aux conditions de continuité de vitesse radiale ( $v_r^0 = v_r^1$ ), de contrainte radiale ( $\sigma_{rr}^0 = \sigma_{rr}^1$ ) et tangentielle ( $\sigma_{r\theta}^0 = \sigma_{r\theta}^1 = 0$ ) à l'interface matrice/inclusion (en  $r = a$ ), que l'on peut écrire sous la forme matricielle suivante :

$$\mathbf{M}(k_0 a, k_L a, k_T a) \begin{pmatrix} A_n \\ A'_n \\ C'_n \end{pmatrix} = \vec{B}, \quad (1.7)$$

où la matrice  $\mathbf{M}(k_0 a, k_L a, k_T a)$  s'écrit :

$$\mathbf{M} = \begin{bmatrix} k_0 h'_n(k_0 a) & -k_L j'_n(k_L a) & n(n+1) \frac{j_n(k_T a)}{a} \\ \omega^2 \rho_0 h_n(k_0 a) & 2\mu k_L^2 j''_n(k_L a) + (2\mu k_L^2 - \omega^2 \rho_1) j_n(k_L a) & 2\mu n(n+1) \left[ \frac{j_n(k_T a)}{a^2} - \frac{k_T j'_n(k_T a)}{a} \right] \\ 0 & 2\mu \left[ \frac{k_L}{a} j'_n(k_L a) - \frac{j_n(k_L a)}{a^2} \right] & \mu \left[ (2 - n(n+1)) \frac{j_n(k_T a)}{a^2} - k_T^2 j''_n(k_T a) \right] \end{bmatrix}. \quad (1.8)$$

Le vecteur  $\vec{B}$  contient quant à lui, les informations relatives à l'onde incidente :

$$\vec{B} = \begin{pmatrix} -k_0 j'_n(k_0 a) \\ -\omega^2 \rho_0 j_n(k_0 r) \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (1.9)$$

Les amplitudes modales de l'onde diffusée dans le milieu hôte  $A_n$  sont affichées en figure 1.2. Les modes supérieurs à  $n = 2$  exhibent des pics correspondant à des résonances acoustiques de formes (de type de Mie). Il n'existe pas de telles résonances pour les modes  $n = 0$  et  $n = 1$  dont la localisation dans le spectre fréquentiel précède celle du mode  $n = 2$ . En effet, l'étude des amplitudes modales  $|A'_n|$  et  $|C'_n|$  permet de mettre en évidence que les résonances des modes  $n = 0$  et  $n = 1$  apparaissent aux mêmes fréquences que pour les modes  $n$  supérieurs.

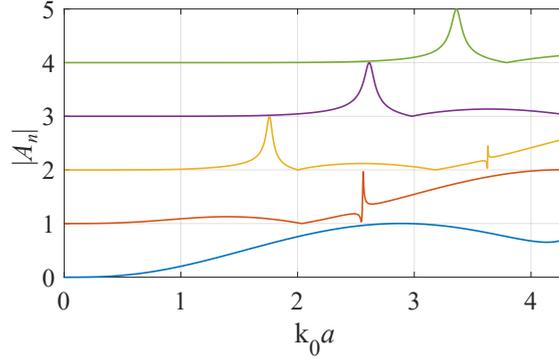


FIGURE 1.2 – Module des amplitudes modales  $A_n$  pour les 5 premiers modes d'une bille de rayon  $a$  immergée dans un gel aqueux.

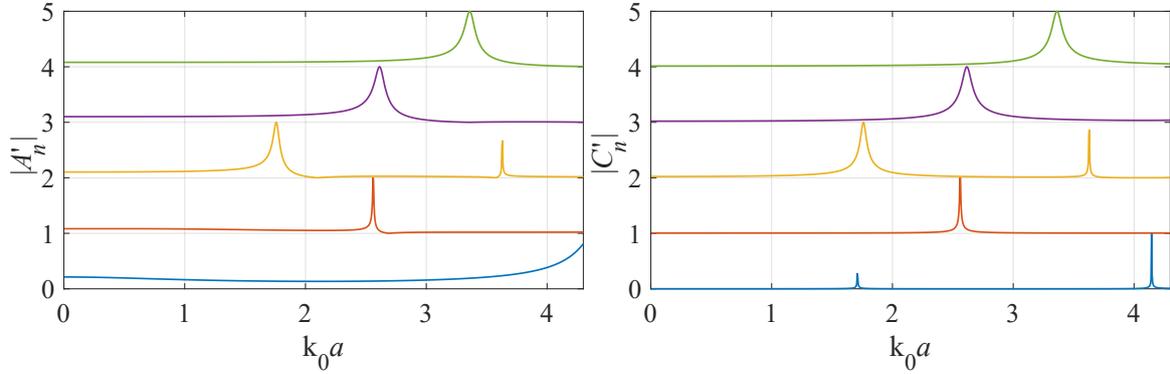


FIGURE 1.3 – Module des amplitudes modales  $A'_n$  et  $C'_n$  normalisées pour les 5 premiers modes d'une bille de rayon  $a$  immergée dans un gel aqueux.

Le mode  $n = 1$  correspondant à la résonance dipolaire apparaît à la même fréquence que le mode  $n = 3$ . De plus, ce dernier a un facteur de qualité  $Q_n$  très élevé ce qui le rend difficile à observer expérimentalement, de même pour les pics du mode  $n = 0$  donc la résonance est qualifiée de monopolaire. Nous verrons par exemple dans les prochains chapitres qu'une dispersion en taille des diffuseurs tend à amoindrir l'impact des résonances qui peuvent être caractérisées par un facteur de qualité  $Q_n$  :

$$Q_n = \frac{f_n}{\Delta f_n}, \quad (1.10)$$

où  $f_n$  est la fréquence de résonance du mode  $n$ , et  $\Delta f_n$  est la largeur de la résonance.

Les amplitudes modales  $A_n$  permettent de calculer la fonction de diffusion  $f(\theta)$  de l'onde diffusée en champ lointain pour laquelle  $P_d$  devient :

$$P_d(r > \lambda_0) = f(\theta) \frac{e^{ik_0 r}}{r}, \quad (1.11)$$

avec

$$f(\theta) = \frac{1}{ik_0} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) A_n P_n(\cos \theta). \quad (1.12)$$

La fonction de diffusion  $f(\theta)$  peut prendre des valeurs complexes. Le module  $|f(\theta)|$  représente

l'amplitude de diffusion dans la direction  $\theta$  tandis que l'argument noté  $\arg\{f(\theta)\}$ , représente le déphasage de l'onde diffusée dans cette même direction. Sur la figure 1.4 est représentée  $|f(\theta)|$  d'une bille métallique immergée dans un gel aqueux à différentes fréquences de résonances à partir du mode  $n = 2$ . Pour  $n = 2$ , la fonction de diffusion est symétrique avec 4 directions privilégiées de diffusion,  $\theta = [0, 90, 180, 270]^\circ$  : il s'agit donc de la résonance quadrupolaire. Pour le mode  $n = 3$  et  $n = 4$  on remarque respectivement 6 et 8 directions de diffusion privilégiées : il s'agit donc des modes hexapolaire et octopolaire.

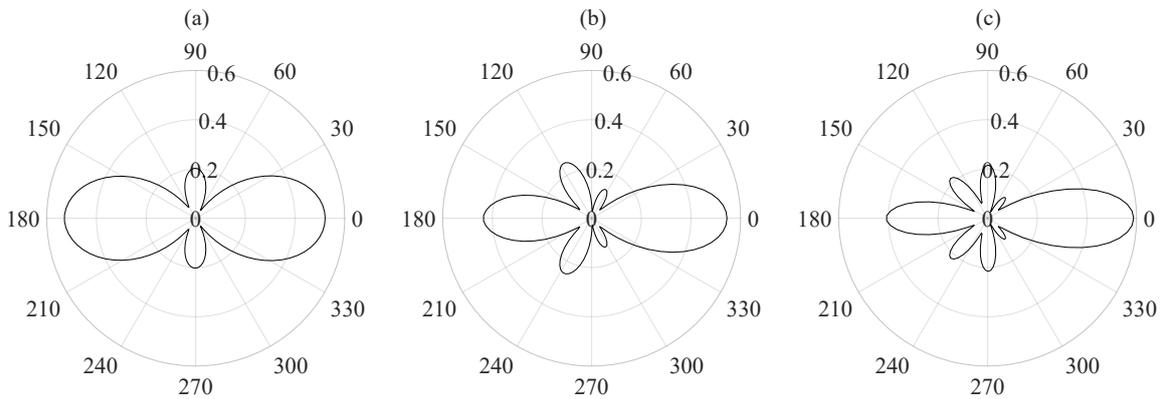


FIGURE 1.4 – Module de la fonction de diffusion  $|f(\theta)|$  pour les fréquences correspondant aux résonances des modes (a)  $n = 2$ , (b)  $n = 3$  et (c)  $n = 4$  d'une bille de rayon  $a$  immergée dans un gel aqueux.

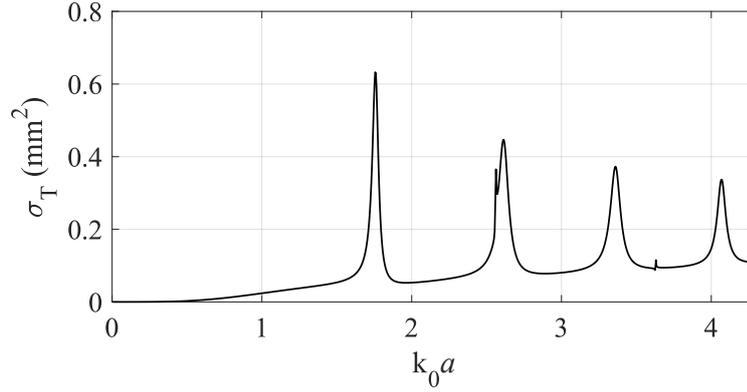
Une fois la fonction de diffusion définie, nous pouvons introduire la section efficace différentielle de diffusion. Elle est définie comme étant le rapport entre le flux de puissance de l'onde diffusée dans la direction  $\theta$  et la densité de puissance de l'onde incidente (par unité de surface). Son lien avec la fonction de diffusion  $f(\theta)$  est alors :

$$\sigma_d(\theta) = |f(\theta)|^2 \quad (1.13)$$

On peut également définir la section efficace totale de diffusion  $\sigma_T$  en intégrant la section efficace différentielle  $\sigma_d$  sur toute la sphère autour du diffuseur :

$$\sigma_T = 2\pi \int_0^\pi \sin(\theta) |f(\theta)|^2 d\theta. \quad (1.14)$$

Celle-ci correspond au flux total diffusé normalisé par la densité surfacique de puissance de l'onde incidente.


 FIGURE 1.5 – Section efficace de diffusion  $\sigma_T$  d'une bille de rayon  $a$  immergée dans un gel aqueux.

$\sigma_T$  caractérise donc le pouvoir diffusant du diffuseur et elle s'exprime en unité de surface. Sur la figure 1.5, on remarque qu'aux fréquences correspondant aux résonances des différents modes ( $n = 2$ ,  $n = 3$ ,  $n = 4$  et  $n = 5$ ) la section de diffusion présentent des pics marqués et étroits ce qui signifie que la diffusion est plus « forte ».

### 1.1.2 Formalisme de la matrice $\mathbf{T}$

Dans les sections suivantes, on développe le formalisme de la diffusion par un ensemble de particules conduisant à l'expression du champ moyen  $\langle \psi \rangle$  ainsi qu'au nombre effectif  $k$ . Il est alors nécessaire de commencer par développer le formalisme de la matrice  $\mathbf{T}$  d'une unique particule pour y parvenir.

Considérons premièrement une sphère élastique placée au centre du repère. Dans l'objectif d'obtenir la fonction de Green  $G(\vec{r}, \vec{r}_0)$  dans le milieu perturbé par la présence du diffuseur, nous ré-écrivons les équations constitutives de l'acoustique. À savoir :

- l'équation d'Euler :

$$\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = -\frac{1}{\rho_0(\vec{r})} \vec{\nabla} \psi, \quad (1.15)$$

- l'équation de conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho_0(\vec{r}) \vec{v}) = 0, \quad (1.16)$$

- l'équation d'état :

$$\psi = \frac{\rho}{\rho_0(\vec{r}) \chi_0(\vec{r})}. \quad (1.17)$$

Les grandeurs sans indice sont associées à la perturbation acoustique, tandis que la présence de l'indice 0 désigne ici la grandeur statique. Ces trois équations font apparaître la masse volumique  $\rho_0(\vec{r})$  et la compressibilité  $\chi_0(\vec{r})$  dépendantes de l'espace (à cause de la sphère élastique) et mènent à une équation des ondes :

$$\Delta \psi - \frac{1}{c^2(\vec{r})} \frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} = \frac{1}{\rho_0(\vec{r})} \vec{\nabla} \rho_0(\vec{r}) \cdot \vec{\nabla} \psi, \quad (1.18)$$

que l'on ré-écrit sous la forme d'une équation de Helmholtz avec un terme source :

$$\Delta\psi + k_0^2\psi = k_0^2\mu(\vec{r})\psi, \quad (1.19)$$

où l'opérateur  $\mu(\vec{r})$  s'écrit de la manière suivante :

$$\mu(\vec{r}) = 1 - \frac{c_0^2}{c^2(\vec{r})} + \frac{1}{k_0^2\rho_0(\vec{r})} \vec{\nabla} \rho_0(\vec{r}) \cdot \vec{\nabla}. \quad (1.20)$$

C'est donc l'opérateur  $\mu(\vec{r})$  qui contient les informations concernant les hétérogénéités du milieu. Dans le cas où  $c(\vec{r}) = c_0$  et  $\rho_0(\vec{r}) = cte$  on remarque que l'équation 1.19 devient une l'équation de Helmholtz classique.

La fonction de Green  $G$  du milieu avec le diffuseur est maintenant obtenue en résolvant l'équation 1.19 avec une source ponctuelle :

$$\Delta G + k_0^2 G = k_0^2 \mu(\vec{r}) G + \delta(\vec{r} - \vec{r}_0). \quad (1.21)$$

Le terme source est donc donné par le membre de droite de l'équation 1.21,  $S(\vec{r}) = k_0^2 \mu(\vec{r}) G + \delta(\vec{r} - \vec{r}_0)$ . La fonction de Green  $G$  est obtenue en convoluant la fonction de Green en milieu homogène  $G_0$  avec le terme source  $S(\vec{r})$  :

$$G(\vec{r}, \vec{r}_0) = G_0(\vec{r}, \vec{r}_0) + k_0^2 \int G_0(\vec{r}, \vec{r}_1) \mu(\vec{r}_1) G(\vec{r}_1, \vec{r}_0) d^3 r_1. \quad (1.22)$$

Ainsi la fonction de Green dans le milieu hétérogène est la somme de la fonction de Green du milieu sans diffuseur notée  $G_0$  et d'une contribution liée à la présence de la sphère élastique. L'équation 1.22 est cependant récursive et peut être ré-écrite avec un développement de Born :

$$\begin{aligned} G(\vec{r}, \vec{r}_0) &= G_0(\vec{r}, \vec{r}_0) \\ &+ k_0^2 \int G_0(\vec{r}, \vec{r}_1) \mu(\vec{r}_1) G_0(\vec{r}_1, \vec{r}_0) d^3 r_1 \\ &+ k_0^4 \int G_0(\vec{r}, \vec{r}_1) \mu(\vec{r}_1) G_0(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \mu(\vec{r}_2) G_0(\vec{r}_2, \vec{r}_0) d^3 r_1 d^3 r_2 \\ &+ k_0^6 \int G_0(\vec{r}, \vec{r}_1) \mu(\vec{r}_1) G_0(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \mu(\vec{r}_2) G_0(\vec{r}_2, \vec{r}_3) \mu(\vec{r}_3) G_0(\vec{r}_3, \vec{r}_0) d^3 r_1 d^3 r_2 d^3 r_3 \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (1.23)$$

Le schéma en figure 1.6 met en évidence la signification de l'équation 1.23. Le premier terme de droite représente la partie de l'onde qui n'a pas interagi avec le diffuseur, le deuxième terme représente la partie de l'onde qui n'a interagi qu'une fois avec le diffuseur...

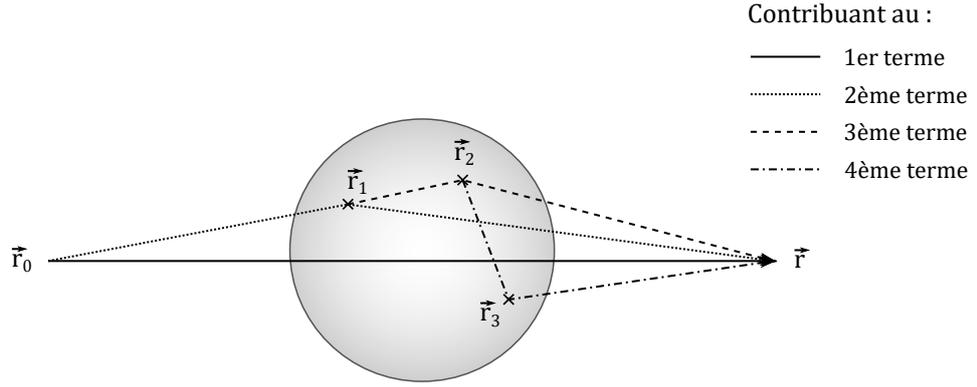


FIGURE 1.6 – Illustration graphique des quatre premiers termes de l'équation 1.23.

En définissant le potentiel  $V(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  tel que :

$$\int V(\vec{r}_1, \vec{r}_2) d^3 r_2 = k_0^2 \mu(\vec{r}_1), \quad (1.24)$$

et en utilisant l'écriture compacte matricielle, l'équation 1.23 devient :

$$\mathbf{G} = \mathbf{G}_0 + \mathbf{G}_0 \mathbf{V} \mathbf{G}_0 + \mathbf{G}_0 \mathbf{V} \mathbf{G}_0 \mathbf{V} \mathbf{G}_0 + \mathbf{G}_0 \mathbf{V} \mathbf{G}_0 \mathbf{V} \mathbf{G}_0 \mathbf{V} \mathbf{G}_0 + \dots \quad (1.25)$$

Cette équation prend alors en compte l'infinité des interactions entre l'onde incidente et le diffuseur. C'est notamment de cette manière que la matrice  $\mathbf{T}$  du diffuseur est introduite :

$$\mathbf{T} = \mathbf{V} + \mathbf{V} \mathbf{G}_0 \mathbf{V} + \mathbf{V} \mathbf{G}_0 \mathbf{V} \mathbf{G}_0 \mathbf{V} + \dots \quad (1.26)$$

L'écriture dans le domaine de Fourier spatiale de  $\mathbf{T}$  est notée  $\tilde{T}$  et est donnée par :

$$\tilde{T}(k_0 \vec{u}_{\text{inc}}, k_0 \vec{u}) = -\frac{1}{4\pi} f(\vec{u}_{\text{inc}}, \vec{u}) \quad (1.27)$$

Il est possible de relier la matrice  $\mathbf{T}$  du diffuseur avec la section efficace totale de diffusion  $\sigma_T$  grâce au théorème optique [25] :

$$\sigma_T = -\frac{1}{k_0} \text{Im} \{ \tilde{T}(k_0 \vec{u}_{\text{inc}}, k_0 \vec{u}_{\text{inc}}) \} = \frac{4\pi}{k_0} \text{Im} \{ f(\vec{u}_{\text{inc}}, \vec{u}_{\text{inc}}) \} \quad (1.28)$$

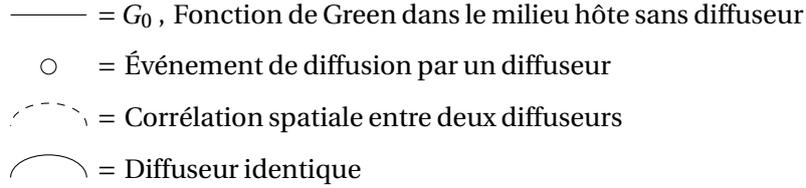
### 1.1.3 Fonction de Green moyenne

Maintenant que la matrice  $\mathbf{T}$  liée à un diffuseur est définie, nous pouvons calculer la fonction de Green d'un milieu constitué d'un ensemble de diffuseurs identiques. En gardant les notations matricielles on obtient :

$$\mathbf{G} = \mathbf{G}_0 + \sum_i \mathbf{G}_0 \mathbf{T}_i \mathbf{G}_0 + \sum_{i, j \neq i} \mathbf{G}_0 \mathbf{T}_i \mathbf{G}_0 \mathbf{T}_j \mathbf{G}_0 + \dots \quad (1.29)$$

L'équation 1.29 signifie que la fonction de Green dans la suspension de diffuseurs peut être vu comme la superposition d'une onde qui a traversé la suspension sans interagir avec les diffuseurs, d'une onde qui a interagi avec un seul diffuseur, puis deux, puis trois ...

Le calcul de la fonction de Green moyenne  $\langle G \rangle$  nécessite de prendre en compte tous les événements de diffusion possibles. L'approche diagrammatique est donc adaptée pour cette étude :



S'agissant d'une grandeur moyennée sur les configurations, le symbole ○ représente ici  $\langle T \rangle$ .

$$\begin{aligned}
 \langle G \rangle = & \text{—} + \text{—} \circ \text{—} + \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} + \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} + \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \\
 & \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} + \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} \circ \text{—} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \dots
 \end{aligned} \tag{1.30}$$

L'équation 1.30 représente les premiers termes constitutifs de la fonction de Green moyenne. On y retrouve des séquences de diffusion pour laquelle l'onde incidente n'est pas perturbée par la présence des diffuseurs (1er terme de droite), ou des séquences de diffusions pour lesquelles les positions sont corrélées (4ème et 6ème terme de droite). On peut également trouver une séquence de diffusion pour laquelle l'onde interagit deux fois avec le même diffuseur (7ème terme de droite) : il s'agit d'une boucle de diffusion récurrente.

Les 2ème, 3ème, 5ème et 6ème termes de droite sont sécables ce qui signifie qu'ils peuvent être « décomposés » en séquences de diffusion plus simples. Les 4ème et 7ème termes sont quant à eux insécables (mise à part l'onde incidente et l'onde sortante). En regroupant toutes les séquences non sécables, l'opérateur de masse  $\Sigma$  est ainsi défini :

$$\Sigma = \circ + \text{---} \circ \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \text{---} \circ \text{---} \circ \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \text{---} \circ \text{---} \circ \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \dots \tag{1.31}$$

Ce qui permet d'écrire :

$$\langle \mathbf{G} \rangle = \mathbf{G}_0 + \mathbf{G}_0 \Sigma \langle \mathbf{G} \rangle, \tag{1.32}$$

et en écriture intégrale :

$$\langle G(\vec{r}, \vec{r}_0) \rangle = G_0(\vec{r}, \vec{r}_0) + \int G_0(\vec{r}, \vec{r}_1) \Sigma(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \langle G(\vec{r}_2, \vec{r}_0) \rangle d^3 r_1 d^3 r_2. \tag{1.33}$$

En tenant compte de l'isotropie du milieu hétérogène, l'opérateur de masse ne dépend que de la différence  $(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$ . En faisant ainsi une transformée de Fourier spatiale de variable  $\vec{k}$ , on obtient :

$$\langle \tilde{G}(\vec{k}, \omega) \rangle = \frac{1}{k_0^2(\omega) - \tilde{\Sigma}(\vec{k}, \omega) - k^2}. \tag{1.34}$$

Lorsque l'opérateur de masse  $\Sigma$  dépend peu de  $\vec{k}$ , alors  $\Sigma(\vec{k}, \omega) \approx \Sigma(\omega)$ , la fonction de Green apparaît identique à celle du milieu sans diffuseur mais avec un nombre d'onde modifié, appelé « nombre d'onde effectif » noté  $k_{\text{eff}}$  :

$$\langle \tilde{G}(\vec{k}, \omega) \rangle = \frac{1}{k_{\text{eff}}^2 - k^2}, \quad (1.35)$$

où

$$k_{\text{eff}}^2 = k_0^2(\omega) - \tilde{\Sigma}(\omega). \quad (1.36)$$

Le nombre d'onde effectif  $k_{\text{eff}}$  est le nombre d'onde qui décrit la propagation de la fonction de Green moyenne. Il est calculé comme étant le nombre d'onde  $k_0$  perturbé par la présence des diffuseurs au travers de l'opérateur de masse  $\tilde{\Sigma}(\omega)$ . La difficulté réside alors dans le calcul de ce dernier tout en conservant son sens physique et sans avoir un calcul complexe à multiples intégrales. Nous verrons notamment au chapitre 3 deux modèles de diffusion multiple qui utilisent uniquement le premier terme de l'opérateur de masse (*Independent Scattering Approximation*) et les deux premiers termes (modèle de Keller) pour le calcul du nombre d'onde effectif.

Le nombre d'onde effectif étant à valeurs complexes, l'atténuation de  $\langle G \rangle$  est donnée par la partie imaginaire  $\text{Im}\{k_{\text{eff}}\}$  et sa célérité par la partie réelle  $c_{\text{ph}} = \omega / \text{Re}\{k_{\text{eff}}\}$ . On définit également la longueur caractéristique d'extinction de l'onde cohérente, notée  $l_{\text{ext}}$  :

$$l_{\text{ext}} = \frac{1}{2\text{Im}\{k_{\text{eff}}\}}. \quad (1.37)$$

Cette longueur est appelée « libre parcours moyen d'extinction » et caractérise l'extinction de l'intensité de l'onde cohérente, d'où le facteur "2" au dénominateur de l'équation 1.37.

La redirection de l'énergie acoustique dans toutes les directions à chaque événement de diffusion est la première cause de cette extinction. On appelle ainsi  $l_e$  le libre parcours moyen élastique comme étant la décroissance de l'onde cohérente uniquement due aux effets de diffusion.  $l_e$  est alors égal à  $l_{\text{ext}}$  lorsque l'absorption est négligeable. Il est également admis de définir  $l_e$  comme la distance moyenne entre deux événements de diffusion.

Cependant, les effets d'absorption peuvent également jouer un rôle dans la décroissance de l'onde cohérente. Il convient alors de définir une longueur caractéristique de décroissance de l'onde cohérente par des effets d'absorption  $l_a$  :

$$l_a = \frac{1}{2\alpha_0} \quad (1.38)$$

où  $\alpha_0$  représente l'atténuation dans le milieu hôte sans diffuseur. L'hypothèse principale derrière l'équation 1.38 est que l'atténuation par absorption est uniquement attribuée à la propagation dans le milieu environnant et néglige ainsi les probables couplages visqueux à l'interface diffuseurs/matrice. Ensemble, ces deux longueurs contribuent à l'extinction de l'onde cohérente  $l_{\text{ext}}$  :

$$\frac{1}{l_{\text{ext}}} = \frac{1}{l_e} + \frac{1}{l_a}. \quad (1.39)$$

Enfin on peut définir le libre parcours moyen de transport  $l^*$  comme étant la distance à partir de laquelle l'onde a perdu sa cohérence. L'onde a donc perdu la mémoire de sa direction initiale de propagation :

$$l^* = \frac{l_e}{1 - \langle \cos \rangle}. \quad (1.40)$$

Dans cette équation, le terme  $\langle \cos \rangle$  est appelé « cosinus moyen », ou « facteur d'anisotropie » et est défini de la manière suivante :

$$\langle \cos \rangle = \frac{2\pi \int_0^\pi |f(\theta)|^2 \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta}{\sigma_T}. \quad (1.41)$$

Il indique la propension de l'onde à être diffusée soit vers l'avant  $\langle \cos \rangle \rightarrow 1$ , soit vers l'arrière  $\langle \cos \rangle \rightarrow (-1)$  ou si la diffusion vers l'avant est identique à celle vers l'arrière pour quel cas  $\langle \cos \rangle \rightarrow 0$  (cas de la diffusion isotrope). Ainsi lorsque la diffusion s'effectue uniquement vers l'avant,  $l^* \rightarrow \infty$ , l'onde qui se propage mettra beaucoup de temps avant de perdre la mémoire de sa direction initiale de propagation. À l'inverse, lorsque la direction de diffusion est principalement vers l'arrière alors  $l^* \rightarrow l_e/2$ .

## 1.2 Transport diffusif du champ incohérent

Pour des distances de transport grandes devant  $l^*$ , l'étude du champ cohérent n'est plus adaptée. En effet, l'onde aura perdu toute cohérence au profit des ondes incohérentes  $\delta\psi$ . Afin d'étudier la transition entre ces deux régimes de transport, nous reprenons dans cette section, le formalisme permettant la description de l'intensité moyenne  $\langle |\psi|^2 \rangle$  [2, 3, 26].

### 1.2.1 Transport de l'intensité moyenne

Pour décrire le transport de l'intensité moyenne  $\langle |\psi|^2 \rangle$ , il est d'abord nécessaire de définir la fonction de Green en intensité :

$$\mathbf{G}_2(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) = \mathbf{G}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \mathbf{G}^*(\vec{r}_3, \vec{r}_4). \quad (1.42)$$

La figure 1.7 met en évidence que le calcul de la fonction de Green en intensité n'est pas triviale car les deux branches  $\mathbf{G}$  et  $\mathbf{G}^*$  ne passent pas forcément par les mêmes diffuseurs.

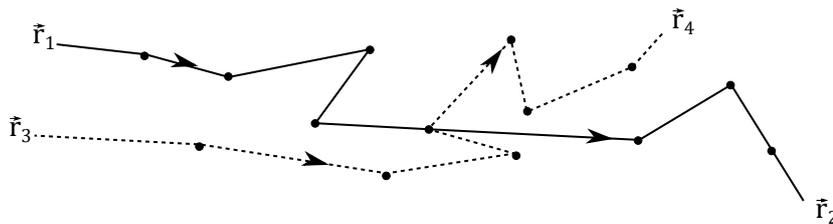


FIGURE 1.7 – Représentation schématique d'une paire de chemins de diffusion contribuant au calcul de l'intensité.

Le calcul de l'intensité moyenne est alors délicate et nécessite de définir le vertex irréductible  $\Gamma(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4)$  comme étant l'ensemble des combinaisons d'événements de  $\mathbf{G}$  et  $\mathbf{G}^*$  insécables. Il s'agit de la quantité analogue à l'opérateur de masse  $\Sigma$  mais ici pour le calcul de l'intensité [3, 26–28] :

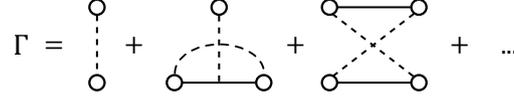


FIGURE 1.8 – Représentation diagrammatique des premiers termes constitutifs du vertex irréductible  $\Gamma$ .

L'introduction de  $\Gamma$  permet d'obtenir une équation similaire à l'équation 1.33, mais pour la grandeur  $\langle G(\vec{r}, \vec{r}_0) G^*(\vec{r}', \vec{r}'_0) \rangle$  :

$$\begin{aligned} \langle G(\vec{r}, \vec{r}_0) G^*(\vec{r}', \vec{r}'_0) \rangle &= \langle G(\vec{r}, \vec{r}_0) \rangle \langle G^*(\vec{r}', \vec{r}'_0) \rangle \\ &+ \int \langle G(\vec{r}, \vec{r}_1) \rangle \langle G^*(\vec{r}', \vec{r}'_2) \rangle \Gamma(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) \langle G(\vec{r}_3, \vec{r}_0) G^*(\vec{r}_4, \vec{r}'_0) \rangle d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 d\vec{r}_3 d\vec{r}_4 \end{aligned} \quad (1.43)$$

Il s'agit de l'équation de Bethe-Salpeter qui gouverne de manière exacte le transport de l'intensité moyenne. Le premier terme du membre de droite correspond à l'intensité de l'onde cohérente et le second terme, à celui des ondes incohérentes. Cette équation est difficile à appréhender car récursive, mais en lui appliquant une transformée de Laplace relativement au temps et de Fourier relativement à l'espace, il est possible de montrer que l'équation obtenue est similaire à une équation de transport pour une particule (par exemple d'une particule de fluide dans un liquide) [3].

On nomme  $\phi_{\omega \vec{k}}(\Omega, \vec{q})$  la transformée de Laplace en temps et Fourier en espace de  $\langle GG^* \rangle$ . La pulsation  $\omega$  décrit les oscillations temporelles internes et  $\vec{k}$  les oscillations spatiales et rapides de  $\phi_{\omega \vec{k}}(\Omega, \vec{q})$ , typique d'un milieu multi-diffusant.  $\Omega$  et  $\vec{q}$  décrivent quant à eux les oscillations lentes de l'enveloppe (voir figure 1.9). L'équation de Bethe-Salpeter prend dans sa nouvelle forme :

$$\left[ \frac{i\omega\Omega}{c_0^2} - i\vec{k}\vec{q} + \Delta\tilde{\Sigma}(\Omega, \vec{q}) \right] \phi_{\omega \vec{k}}(\Omega, \vec{q}) = \Delta\tilde{G}_{\omega \vec{k}}(\Omega, \vec{q}) \left[ 1 + \sum_{\vec{k}'} \tilde{\Gamma}_{\omega \vec{k} \vec{k}'}(\Omega, \vec{q}) \phi_{\omega \vec{k}'}(\Omega, \vec{q}) \right]. \quad (1.44)$$

Les deux premiers termes du membre de gauche peuvent être assimilés à la dérivée particulière de  $\phi_{\omega \vec{k}}(\Omega, \vec{q})$ . Le troisième terme du membre de gauche représente les pertes de l'onde cohérente (d'où la présence de  $\tilde{\Sigma}$ ). Le premier terme du membre de droite est un terme source, et le deuxième terme contient les informations liées à la redirection de l'intensité dans la direction  $\vec{k}$  pour des ondes venant de toutes les directions  $\vec{k}'$ . Tout comme le calcul de  $\Sigma$ , il n'est ici pas possible de résoudre l'équation 1.44 de manière exacte car elle nécessite la prise en compte de tous les événements de diffusion dans le calcul de  $\Gamma$ . Il est alors nécessaire d'effectuer des approximations pour résoudre cette équation.

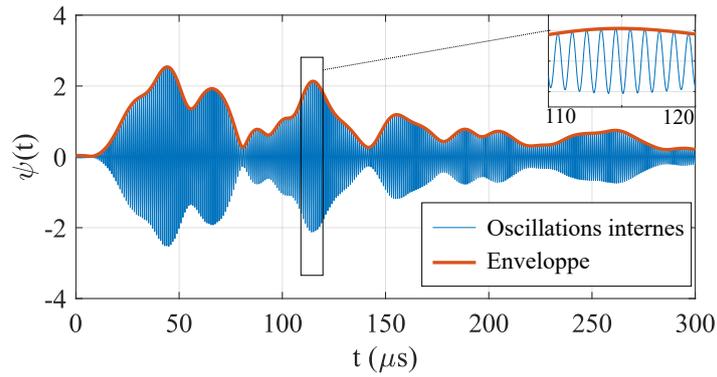


FIGURE 1.9 – Évolution de  $\psi(t)$  au cours du temps. Les oscillations internes sont décrites par la pulsation  $\omega$  et le nombre d'onde  $\vec{k}$ , tandis que l'enveloppe est décrite par  $\Omega$  et  $\vec{q}$ .

$$\Delta \tilde{\Sigma}_{\omega \vec{k}}(\Omega, \vec{q}) = \frac{1}{2i} \left\{ \tilde{\Sigma}(\omega + \Omega/2, \vec{k} + \vec{q}/2) - \tilde{\Sigma}(\omega - \Omega/2, \vec{k} - \vec{q}/2) \right\} \quad (1.45)$$

$$\Delta \tilde{G}_{\omega \vec{k}}(\Omega, \vec{q}) = \frac{1}{2i} \left\{ \tilde{G}(\omega + \Omega/2, \vec{k} + \vec{q}/2) - \tilde{G}(\omega - \Omega/2, \vec{k} - \vec{q}/2) \right\} \quad (1.46)$$

### 1.2.2 Approximation de Boltzmann

Dans l'approximation de Boltzmann, seules les paires de chemins de diffusion  $G(\vec{r}, \vec{r}')$  et  $G^*(\vec{r}, \vec{r}')$  passant par les mêmes diffuseurs sont prises en compte dans le calcul de l'intensité. Cette approximation est également connue sous le nom de *Ladder Approximation* [2, 29], car sa représentation dans l'approche diagrammatique est similaire à une échelle (figure 1.10 (b)). Elle réduit ainsi le vertex irréductible  $\Gamma$  à son premier terme (cf figure 1.8) :

$$\tilde{\Gamma}_{\omega \vec{k} \vec{k}'}(\Omega, \vec{q}) \approx \eta \tilde{T}(\vec{k}, \vec{k}', \omega + \Omega/2) \tilde{T}^*(\vec{k}, \vec{k}', \omega - \Omega/2). \quad (1.47)$$

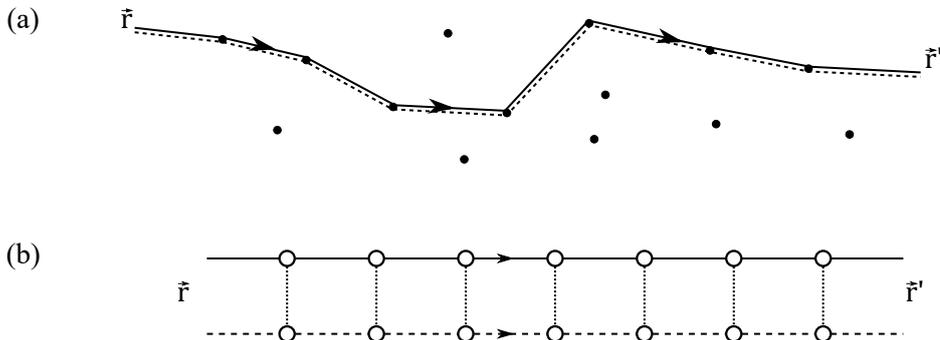


FIGURE 1.10 – (a) Représentation schématique d'une paire de chemins de diffusion contribuant au calcul de l'intensité dans le cadre de l'approximation de Boltzmann. (b) Représentation diagrammatique de la paire de diffusion.

On remarque alors que les séquences de diffusion ne passent que par des diffuseurs différents : par exemple, ce n'est pas possible de revenir deux fois sur un même diffuseur. De manière générale, les boucles de diffusion ainsi que les corrélations de position sont négligées. Ces approxima-

tions peuvent être valides dans le cas de faibles concentrations.

De plus, au cours de la propagation, l'énergie de l'onde cohérente  $\langle G \rangle$ , décrite par l'opérateur de masse  $\Sigma$ , décroît et alimente celle des ondes incohérentes décrite par le vertex irréductible  $\Gamma$ . Il existe donc une relation reliant  $\Gamma$  et  $\Sigma$ , il s'agit de l'identité de Ward obtenue sous l'hypothèse quasi-stationnaire ( $\Omega \approx 0$ ) [3] :

$$\Delta \tilde{\Sigma}_{\omega \vec{k}}(\vec{q}) = \sum_{\vec{k}'} \Delta \tilde{G}_{\omega \vec{k}'}(\vec{q}) \tilde{\Gamma}_{\omega \vec{k} \vec{k}'}(\vec{q}) \quad (1.48)$$

Avec les deux approximations précédentes (équation 1.47 et 1.48), l'équation 1.44 est modifiée en une équation appelée « équation du transfert radiatif » (ETR) portant sur l'intensité spécifique  $L(\vec{r}, \vec{u}, t) \propto \phi_{\omega \vec{k}}(\Omega, \vec{q})$  [3] :

$$\frac{1}{v_e} \frac{\partial L(\vec{r}, \vec{u}, t)}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} L(\vec{r}, \vec{u}, t) = -\frac{L(\vec{r}, \vec{u}, t)}{l_e} + \eta \int d\theta_{u_s} \sigma_d(\vec{u}, \vec{u}_s, t). \quad (1.49)$$

Cette grandeur  $L(\vec{r}, \vec{u}, t)$  permet de quantifier la quantité d'énergie au point  $\vec{r}$  et qui est redirigée dans la direction  $\vec{u}$  par des effets de diffusion. En intégrant l'ETR sur les directions  $\vec{u}$  [30], il apparaît deux quantités dont le vecteur courant, noté  $\vec{J}(\vec{r}, t)$  ainsi que la densité locale d'énergie  $U(\vec{r}, t)$ . La quantité  $\vec{J}(\vec{r}, t)$  représente le flux moyen d'énergie tandis que  $U(\vec{r}, t)$  représente la quantité d'énergie au point  $\vec{r}$ , toutes directions confondues :

$$U(\vec{r}, t) = \frac{1}{v_e} \int L(\vec{r}, \vec{u}, t) d\theta_{\vec{u}}, \quad (1.50)$$

$$\vec{J}(\vec{r}, t) = \int L(\vec{r}, \vec{u}, t) \vec{u} d\theta_{\vec{u}}. \quad (1.51)$$

L'introduction de ces deux nouvelles quantités permet de définir la vitesse de transport de l'énergie comme étant le rapport des modules de  $\vec{J}$  et  $U$ . Dans l'étude de la dynamique ( $\Omega \neq 0$ ) du transport des ondes, la densité locale d'énergie doit être séparée en deux contributions afin de prendre en compte l'énergie potentielle stockée dans les diffuseurs  $U' = U + \delta U$  [3] :

$$v_e = \frac{J/U}{1 + \delta}. \quad (1.52)$$

Le paramètre  $\delta$ , calculé dans l'approximation de Boltzmann, est donné par [3, 18] :

$$\delta = \Delta_1 + \Delta_2, \quad (1.53)$$

où,

$$\Delta_1 = 2\pi\eta c_{gr} \frac{c_{ph}}{\omega} \frac{\partial \text{Re}f(0)}{\partial \omega} \quad (1.54)$$

et

$$\Delta_2 = 2\pi\eta c_{gr} \int_0^\pi \sin(\theta) |f(\theta)|^2 \frac{\partial \phi(\theta)}{\partial \omega} d\theta. \quad (1.55)$$

Le paramètre  $\Delta_1$  représente la contribution de la vitesse de groupe dans le transport de l'intensité. Le terme  $\Delta_2$  représente la « contribution collisionnelle » [3] et prend en compte le délai de stockage de l'énergie dans les diffuseurs.

Après un grand nombre d'événements de diffusion, l'ETR peut être simplifiée en une équation de diffusion (au sens diffusion de la chaleur) portée par la densité locale d'énergie  $U$ . En effet, en intégrant l'équation du transfert radiatif sur toutes les directions  $\vec{u}$  on obtient :

$$\frac{\partial U(\vec{r}, t)}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J}(\vec{r}, t) = 0. \quad (1.56)$$

Dans l'hypothèse d'une diffusion quasi-isotrope, qui peut se produire après une propagation sur de grandes distances devant  $l^*$ , l'intensité spécifique est écrite :

$$L(\vec{r}, \vec{u}, t) = \alpha U(\vec{r}, t) + \beta \vec{J}(\vec{r}, t) \cdot \vec{u} \quad (1.57)$$

avec les inconnues  $\alpha = \nu_e/4\pi$  et  $\beta = 3/4\pi$  que l'on obtient en substituant l'intensité spécifique 1.57 dans les définitions 1.50 et 1.51. En intégrant l'ETR préalablement multiplié à la direction  $\vec{u}$  et en utilisant la nouvelle définition de  $L(\vec{r}, \vec{u}, t)$ , on trouve la loi de Fick :

$$\vec{J}(\vec{r}, t) = -\frac{\nu_e l^*}{3} \vec{\nabla} U(\vec{r}, t). \quad (1.58)$$

Les deux équations 1.56 et 1.58 mènent donc à l'équation de la diffusion :

$$\frac{\partial U(\vec{r}, t)}{\partial t} - D_B \Delta U(\vec{r}, t) = 0. \quad (1.59)$$

avec le coefficient de diffusion  $D_B$  :

$$D_B = \frac{\nu_e l^*}{3}, \quad (1.60)$$

où l'indice B, fait référence à l'approximation de Boltzmann. La solution de l'équation de diffusion en milieu infini avec absorption est [31] :

$$U(\vec{r}, t) = \frac{U_0}{(4\pi D t)^{3/2}} \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_a}\right), \quad (1.61)$$

Le temps caractéristique de décroissance de l'intensité des ondes  $\tau$  est donné de la manière suivante :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_D} + \frac{1}{\tau_a}. \quad (1.62)$$

L'équation 1.62 signifie que la décroissance de l'intensité des ondes est due aux effets de diffusion pour lesquels l'énergie de l'onde est redistribuée dans toutes les directions ainsi qu'à des effets d'absorption pour lesquels l'énergie des ondes est convertie en énergie thermique. L'expression de  $\tau_D$  dans un milieu de taille finie est donnée comme suit [32] :

$$\tau_D = \frac{L^2}{\pi^2 D}. \quad (1.63)$$

En revanche, il n'existe pas d'expression analytique pour  $\tau_a$ . Dans la littérature, cette valeur  $\tau_a$  est souvent obtenue en ajustant les modèles de diffusion multiple aux résultats expérimentaux [28, 32–34].

## 1.3 Localisation d'Anderson et renormalisation de la diffusion

### 1.3.1 La localisation d'Anderson

La localisation d'Anderson a été introduite par Philip Warren Anderson en 1958 [4]. Il s'agit d'une théorie selon laquelle le transport d'électron<sup>1</sup> dans un réseau d'atomes peut être stoppé à cause des « impuretés » constitutives du milieu. Les fonctions d'état relatives au transport de celui-ci se trouvent ainsi spatialement localisées. Elle a ensuite été étendue pour les ondes classiques (ondes lumineuses et acoustiques) pour lesquelles les interférences (en plus d'un certain degré de désordre) peuvent jouer un rôle sur l'arrêt du processus de diffusion [35].

De nombreux critères ont été établis, essayant alors de prédire l'émergence d'un régime de localisation. On peut citer le critère de Ioffe Regel pour lequel la localisation est atteinte lorsque le produit  $kl_e < 1$  [36]. Ce critère est intéressant car il signifie qu'il est nécessaire que l'onde ait subi deux événements de diffusion sur une propagation inférieure à la longueur d'onde  $\lambda/2\pi$ . Ce critère n'est pas précis mais il est toujours utilisé aujourd'hui de manière qualitative. Ce critère peut être remplacé par  $kl_e < kl_c$  où  $kl_c$  est défini comme étant la valeur de  $kl_e$  critique pour que la localisation soit atteinte [37]. Les modèles de diffuseurs ponctuels résonants [37], ont montré que  $kl_c$  est très proche de l'unité (entre 0.8 et 1.2). Cependant, il devient difficile de trouver un critère équivalent pour des diffuseurs de taille finie ( $kl_c$  reste inconnue dans ces conditions).

Depuis qu'Anderson a introduit la localisation en 1958, les tentatives d'observation de la localisation des ondes de matière ont abouties pour des désordres unidimensionnels [38] et tridimensionnels [39]. Pour les ondes lumineuses, seules des observations pour des désordres uni et bidimensionnels ont été faites [21, 40]. En ce qui concerne les ondes ultrasonores, plusieurs études ont montré l'observation de la localisation dans des milieux à deux dimensions [41, 42] mais également à trois dimensions [12]. Il existe alors plusieurs méthodes de détection de la localisation d'Anderson des ondes classiques :

- Des études ont montré que la décroissance de la transmission moyenne  $T$  de la lumière en fonction de l'épaisseur  $L$  est linéaire en régime diffusif et exponentielle en régime localisé ( $T(L) \propto \exp(-L/\xi)$  avec  $\xi$  la longueur de localisation). Cependant, la difficulté des expériences réalisées avec des ondes lumineuses, liées à cette méthode d'observation, réside dans le fait que l'absorption se manifeste conjointement à la localisation ce qui mène à des confusions sur l'interprétation des résultats [6, 9].
- Il a également été montré que la décroissance temporelle non-exponentielle de l'intensité transmise peut être interprétée comme une signature de la localisation. Cependant, il existe également un grand nombre de facteurs de confusion qui rendent également difficile l'interprétation des résultats liés à ces expériences [7, 8, 10].
- L'analyse statistique de la figure de *speckle* de l'intensité transmise comporte aussi des informations sur le régime de transport des ondes multiplement diffusées. En effet pour le régime classique de diffusion, les ondes sont distribuées aléatoirement à la surface de

1. Dans l'article de 1958, Anderson décrit le transport du spin quantique mais affirme qu'il est possible d'étendre le raisonnement au transport des électrons et même à « peut être d'autres particules »

l'échantillon et l'analyse statistique de la figure de *speckle* associée suit la loi de Rayleigh  $P(I/\langle I \rangle) \propto \exp(-I/\langle I \rangle)$ . En revanche, dans le régime localisé, les interférences entre les chemins de diffusion exacerbent les points de hautes intensités entraînant une déviation à la loi de Rayleigh pour ces intensités [21].

- Enfin, il est possible d'observer le régime localisé en suivant l'étalement transversal du halo-diffusif au cours du temps  $w(t)$ . Lorsque la localisation est atteinte, alors  $w(t)$  devient constant et met en évidence le piégeage des ondes au voisinage de la source. Cette méthode est indépendante des effets d'absorption et de réflexion et constitue la signature la plus convaincante de la localisation d'Anderson.

C'est donc cette dernière méthode que nous utiliserons dans nos suspensions de billes métalliques en association à la *Self Consistent Theory* qui prédit le comportement des  $w^2(t)/L^2$  dans le cas où la localisation est approchée, voire atteinte.

### 1.3.2 Self Consistent Theory

La *Self Consistent Theory* a été développée par Wölfe et Vollhardt [43, 44], initialement implémentée par Skipetrov et van Tiggelen [20, 45, 46] et optimisée par les membres de l'équipe de l'*Ultrasonics Research Laboratory* du professeur John H. Page à l'Université du Manitoba [15, 27, 47]. Il s'agit d'une théorie qui prend en compte les interférences dans l'étalement transversal de l'intensité moyenne.

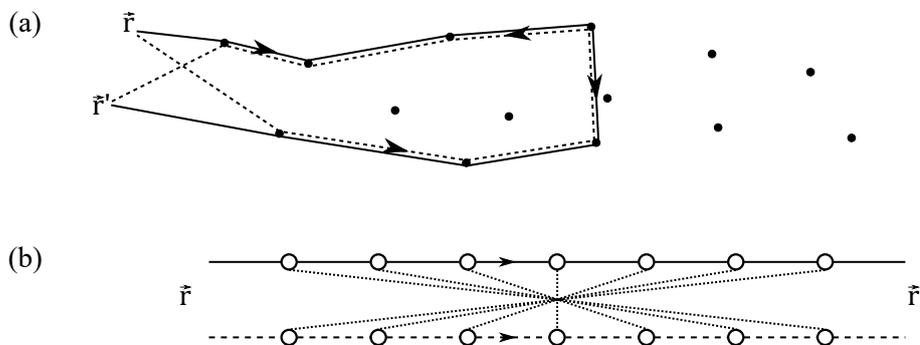


FIGURE 1.11 – (a) Représentation schématique d'une paire de chemins de diffusion contribuant au calcul de l'intensité dans la *Self Consistent Theory*. (b) Représentation diagrammatique de la paire de chemins de diffusion.

En supplément de la *Ladder Approximation*, cette théorie prend en compte la possibilité pour les paires de chemins de diffusion  $G$  et  $G^*$  de passer par les mêmes diffuseurs mais dans le sens opposé (figure 1.11) (principe de réciprocité). Ces paires de chemins de diffusion ont pour conséquence d'augmenter la probabilité pour une onde de revenir à son origine. La correction apportée va alors modifier le transport et induire une renormalisation du coefficient de diffusion  $D(\omega) \neq D_B(\omega)$ .

La quantité qui est calculée est  $C(\vec{r}, \vec{r}', t) \propto \langle G(\vec{r}, \vec{r}', t) G^*(\vec{r}, \vec{r}', t) \rangle$ . Elle exprime la probabilité pour une onde au point  $\vec{r}$ , d'être redirigée vers le point  $\vec{r}'$  après un temps  $t$ . Cette probabilité est

alors gouvernée par une équation de diffusion avec une source ponctuelle et impulsionnelle :

$$[-i\Omega - \nabla \cdot D(\vec{r}, \Omega) \nabla] C(\vec{r}, \vec{r}', \Omega) = \delta(\vec{r} - \vec{r}'). \quad (1.64)$$

Avec le coefficient de diffusion qui est renormalisé de la manière suivante :

$$\frac{1}{D(\vec{r}, \Omega)} = \frac{1}{D_B} + \frac{12\pi}{k^2 l_B^*} C(\vec{r}, \vec{r}, \Omega) \quad (1.65)$$

Aussi, plus la probabilité de retour  $C(\vec{r}, \vec{r}, \Omega)$  est élevée, plus la renormalisation sera importante. Dans un échantillon de taille finie, la dépendance du coefficient de diffusion à l'espace apparaît dans le cas où les interférences aux extrémités sont réduites par les fuites des ondes hors de l'échantillon. La renormalisation de  $D(\vec{r}, \Omega)$  (équation 1.65) dépend de  $C(\vec{r}, \vec{r}, \Omega)$  et doit donc être calculée de manière cohérente avec l'équation 1.64. La résolution du système d'équations 1.64 et 1.65 s'effectue alors de manière itérative en initialisant  $D(\vec{r}, \Omega) = D_B$  et s'arrête lorsque la convergence du coefficient de diffusion est obtenue. Le critère de convergence est donnée par  $|D(n) - D(n-1)| < 10^{-5}\%$ .

Le système d'équations est à implémenter en prenant en compte les conditions aux limites aux plans  $z = 0$  et  $z = L$  [48] :

$$C(\vec{r}, \vec{r}', \Omega) - z_0 \frac{D(\vec{r}, \Omega)}{D_B} \nabla C(\vec{r}, \vec{r}', \Omega) = 0 \quad \text{en } z = 0, \quad (1.66)$$

$$C(\vec{r}, \vec{r}', \Omega) + z_0 \frac{D(\vec{r}, \Omega)}{D_B} \nabla C(\vec{r}, \vec{r}', \Omega) = 0 \quad \text{en } z = L, \quad (1.67)$$

correspondant à des flux incidents à ces surfaces nuls.  $z_0$  est la distance d'extrapolation, définie comme l'épaisseur minimale d'échantillon qu'il faut rajouter pour que le flux d'intensité sortant soit nul à la surface  $z = L$ . Elle tient donc compte des conditions aux limites et des réflexions internes à cause de la présence des interfaces (milieu hétérogène)/(milieu extérieur).

Une des limites de la SCT est que l'impulsion doit être suffisamment courte temporellement pour être assimilée à un Dirac, mais doit être porteuse d'une unique fréquence. En pratique il est impossible d'avoir un signal en même temps très court et étroit fréquentiellement. Cependant, ces conditions doivent être respectées afin d'avoir un bon ajustement avec l'expérience aux temps courts. Le transport de l'intensité aux temps longs est néanmoins beaucoup moins sensible à ces mêmes conditions.

La SCT prend en paramètre d'entrée le produit  $kl_e$ , ainsi que le produit  $kl_c$  critique pour laquelle la localisation est atteinte. Dans notre cas, la valeur de  $kl_c$  est inconnue, et il s'agit du principale paramètre ajustable. Si un ajustement entre la SCT et les mesures expérimentales est trouvé, alors la valeur de  $kl_c$  est correcte, sinon elle est erronée et le calcul est relancé avec une autre valeur de  $kl_c$ . En pratique, la SCT n'est que peu sensible aux valeurs que prennent le couple  $kl_e$  et  $kl_c$ , mais est davantage sensible au ratio  $L/\xi$  :

$$\frac{L}{\xi} = \frac{(kl_c)^2}{6l_e} \left( \frac{l_B^*}{l_e} \right) \frac{1 - \chi^4}{\chi^2} \quad (1.68)$$

où  $\xi$  est la longueur de localisation représentant la distance caractéristique de confinement des ondes, et  $\chi = kl_e/kl_c$ .

L'équation 1.68 fait apparaître la différence  $1 - \chi^4$ . Lorsque le régime localisé est atteint  $\chi < 1$  : la longueur  $\xi$  est donc bien définie. En revanche, lorsque le régime localisé n'est pas atteint, la longueur de localisation devient négative. Afin de contourner cette limitation, la valeur de  $\xi$  change de signe afin de devenir la distance de corrélation  $\zeta$ , relative aux fluctuations d'intensité :

$$\frac{L}{\zeta} = \frac{(kl_c)^2}{6l_e} \left( \frac{l_B^*}{l_e} \right) \frac{\chi^4 - 1}{\chi^2}. \quad (1.69)$$

Dans le régime localisé ( $kl_e < kl_c$ ), une solution analytique est trouvée au système d'équations 1.64 et 1.65 pour une source ponctuelle émettant une impulsion en  $\vec{r}' = 0$  et au temps  $t' = 0$  dans un milieu infini :

$$C(\vec{r}, \vec{r}', t) = \frac{1}{4\pi\xi^2|\vec{r} - \vec{r}'|} \exp\left(-\frac{|\vec{r} - \vec{r}'|}{\xi}\right) \quad (1.70)$$

Même si cette expression de  $C(\vec{r}, \vec{r}', t)$  n'est plus valable pour des milieux de taille finie, elle permet de rendre compte du rôle de la longueur de localisation  $\xi$ . Elle caractérise donc le pouvoir localisant d'un échantillon. Plus elle est petite, plus les ondes resteront confinées proches de la source.

Enfin, dans le cas d'un échantillon cylindrique et grâce à la symétrie de révolution,  $D(\vec{r}, \Omega = D(z, \Omega)$  où  $z$  est l'axe de révolution. Le flux transmis à travers la surface  $z = L$  vaut donc :

$$T(q_{\perp}, \Omega) = -D(z = L, \Omega) \frac{\partial}{\partial z} C(q_{\perp}, z = L, z' = l_B^*, \Omega) \quad (1.71)$$

où  $q_{\perp}$  fait ici référence à la composante du nombre d'onde  $\vec{q}$  projeté dans le plan perpendiculaire à la direction  $\vec{z}$ . La SCT permet donc d'extraire l'évolution temporelle du flux transmis à travers la surface située à une distance  $z$  de la source. Le choix du plan dépend des conditions expérimentales et peut être prit à  $z = L$  pour prédire le champ transmis à travers l'échantillon, ou un plan situé en  $z < L$  pour sonder « numériquement » l'intérieur de l'échantillon.

Enfin, les derniers paramètres ajustables sont l'amplitude, les temps caractéristiques de diffusion  $\tau_D$  et d'absorption  $\tau_a$  bien que ce dernier n'a aucune incidence sur les profils des  $w^2/L^2$ .

## 1.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons donc détaillé les théories permettant de décrire le transport des ondes dans des milieux hétérogènes multiplement diffusants.

Lorsque la distance de propagation est de l'ordre de grandeur du libre parcours moyen élastique  $l_e$  il est pertinent d'étudier le champ cohérent  $\langle \psi \rangle$  au travers de la fonction de Green moyenne  $\langle G \rangle$ . En revanche, lorsque la distance de propagation est grande devant le libre parcours de transport  $l^*$ , l'onde est dite incohérente et il est possible de la caractériser au travers de la quantité  $\langle GG^* \rangle$ . Ces deux quantités sont cependant récursives et leurs résolutions est rendue possible grâce à quelques approximations. On cite par exemple les approximations de faibles concentrations  $\eta$  permettant une écriture perturbative du nombre d'onde effectif. On peut également citer la *Ladder Approximation* nécessaire à la description du transport de l'intensité en conduisant à des équations de diffusion.

Enfin, nous avons introduit les notions liées à la localisation d'Anderson. Grâce aux interférences, la localisation est particulièrement attendue pour les ondes classiques lorsque le désordre est suffisamment important. Cependant, les difficultés expérimentales font que ce phénomène n'a été que très peu observé pour des ondes classiques dans des milieux tridimensionnels.



## Chapitre 2

# Fabrication et caractérisation des échantillons

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Choix des particules résonantes</b>	<b>29</b>
2.1.1	Bulles, gouttes ou billes?	29
2.1.2	Billes métalliques de BiPbInSnCd	31
<b>2.2</b>	<b>Fabrication des échantillons</b>	<b>34</b>
2.2.1	Fabrication du gel	34
2.2.2	Dispositif millifluidique pour la fabrication des billes	35
<b>2.3</b>	<b>Caractérisation des échantillons</b>	<b>41</b>
2.3.1	Caractérisation de la taille des billes	41
2.3.2	Caractérisation de la forme des billes	42
2.3.3	Caractérisation de la structure de la suspension	44
<b>2.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>47</b>

---

## Introduction

La localisation d'Anderson des ondes ultrasonores dans des milieux tridimensionnels a été observée pour la première fois dans des réseaux de billes d'aluminium [12]. Cependant, la nature solide du réseau, rend l'étude du régime localisé à l'intérieur de l'échantillon impossible.

Aussi, dans l'objectif d'observer le régime localisé des ondes ultrasonores *in-situ*, nous utiliserons des systèmes «modèles» constitués de diffuseurs calibrés suspendus dans une matrice. Les diffuseurs doivent être stables dans le temps en vue d'effectuer des expériences portant sur le champ incohérent (pouvant s'étaler sur des temps longs, typiquement quelques semaines) et la matrice doit permettre des mesures à l'intérieur de l'échantillon. La dissipation à l'interface diffuseurs-matrice pouvant être importantes, il devient alors primordial de choisir des constituants dont l'absorption intrinsèque est faible afin d'enregistrer des longues *codas* de diffusion multiple. Nous utiliserons notamment une matrice faiblement absorbante à base d'eau (gel aqueux de type fluide à seuil) permettant d'une part le maintien des diffuseurs en suspension, et d'autre part d'effectuer des acquisitions à l'intérieur des échantillons.

Quant aux inclusions, nous les choisirons de manière à avoir un fort contraste de propriétés acoustiques avec la matrice environnante afin d'obtenir de fortes résonances, pour augmenter la section efficace de diffusion  $\sigma_T$  et réduire le produit  $kl_e$  (où  $k$  est le nombre d'onde effectif, et  $l_e$  est le libre parcours moyen élastique de diffusion). En effet, dans le cadre de l'*Independent Scattering Approximation* (ISA), il est possible de relier la section efficace totale de diffusion  $\sigma_T$  au libre parcours moyen de diffusion  $l_e$  connaissant le nombre d'objets par unité de volume  $\eta$  :

$$\sigma_T = \frac{1}{\eta l_e}, \quad (2.1)$$

La relation 2.1 montre qu'une section efficace de diffusion  $\sigma_T$  élevée peut alors faire chuter le libre parcours moyen élastique  $l_e$  tel que le produit  $kl_e \sim 1$ . D'après le critère de Ioffe Regel,  $kl_e$  doit être proche de l'unité pour observer le régime localisé [36]. Bien que ce critère ne soit pas précis [37], et que l'ISA soit inadaptée proche de la localisation, ils nous serviront d'indicateurs pour le choix des diffuseurs. Nous discuterons notamment du domaine de validité de l'ISA au chapitre 3.

Enfin, nous détaillerons les étapes de fabrication des billes de telle sorte à ce que leurs résonances se manifestent dans la bande passante de nos transducteurs ultrasonores. Ce choix va ainsi fortement impacter la gamme des tailles des billes (de rayon  $a$ ) acceptable pour notre étude ( $a \in [150 - 500] \mu\text{m}$ ).

## 2.1 Choix des particules résonantes

### 2.1.1 Bulles, gouttes ou billes?

Cette section a pour objectif de présenter trois diffuseurs résonants de nature différente (gaz, liquide, solide) utilisés précédemment pour comprendre l'influence des résonances locales sur la propagation des ondes acoustiques.

#### Bulles d'air

La première particule résonante présentée est la « bulle d'air ». Les bulles sont de très bons résonateurs grâce à leur résonance monopolaire basse fréquence dite de Minnaert. Cette forte résonance basse fréquence est due à la différence de compressibilité entre l'air et l'eau [49].

Sur la figure 2.1, on trace la section efficace totale de diffusion  $\sigma_T$  d'une bulle d'air isolée de rayon  $a = 100\mu\text{m}$  dans un gel aqueux (on notera ici l'échelle semi-logarithmique).

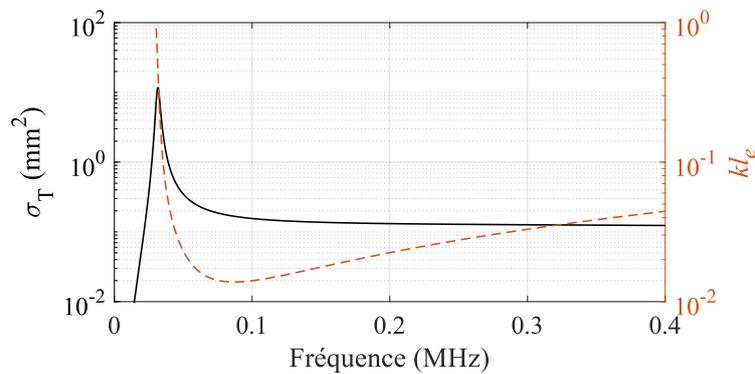


FIGURE 2.1 – Section efficace de diffusion  $\sigma_T$  d'une bulle d'air isolée de rayon  $a = 100\mu\text{m}$  (en trait plein noir) et produit  $kl_e$  (trait discontinu orange) d'une suspension de bulles à  $\phi = 20\%$  dans un gel aqueux.

Grâce à la résonance de Minnaert de la bulle, à  $f \approx 30\text{kHz}$ , la section totale de diffusion  $\sigma_T$  observe un pic à près de 300 fois la section géométrique de la bulle ( $\pi \times a^2$ ). Ce pic de  $\sigma_T$  est accompagné d'une rapide décroissance du produit  $kl_e$  vers un minimum à  $kl_e = 2 \times 10^{-2}$  suivi d'une légère augmentation qui n'excède pas une valeur de  $1 \times 10^{-1}$  sur la gamme de fréquence considérée. Ces valeurs de  $kl_e$  strictement inférieures à 1 rendent *a priori* ces diffuseurs intéressants pour notre étude. Le produit  $kl_e$  est ici calculé pour une concentration de  $\phi = 20\%$  de bulles d'air.

Cependant, les pertes par radiation et les dissipations d'origine visqueuse et thermiques sont importantes et atténuent très vite la partie incohérente du champ, rendant difficile l'observation des codas de diffusion multiple pour des fréquences proches de la résonance. De plus, les échanges de molécules à l'interface gel/bulle font que l'air contenu dans une petite bulle d'air a tendance à se dissoudre dans le gel. Les grosses bulles ont, quant à elles, tendance à grossir par murrissement d'Ostwald [50, 51]. Valentin Leroy *et al.* ont notamment montré qu'après 24h de repos, les paramètres structurels d'une suspension de bulles (taille, polydispersité) étaient drastiquement modifiés [52].

### Gouttes d'huile fluorée

Le deuxième diffuseur présenté est la goutte d'huile fluorée. L'huile allie une très faible absorption ( $\alpha_{\text{FC40}} = 1 \times 10^{-3} \text{Np} \cdot \text{mm}^{-1} \cdot \text{MHz}^{-2}$ ) à un fort contraste de célérité des ondes acoustiques avec la matrice aqueuse ( $c_{\text{FC40}} = 0.646 \text{mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$  et  $c_{\text{gel}} = 1.492 \text{mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$ ) tel qu'il induit de fortes résonances de forme. Ces résonances multipolaires induisent des maxima dans la section efficace totale de diffusion  $\sigma_T$  (figure 2.2) où chaque maximum de  $\sigma_T$  correspond à la fréquence de résonance d'un mode de vibration.

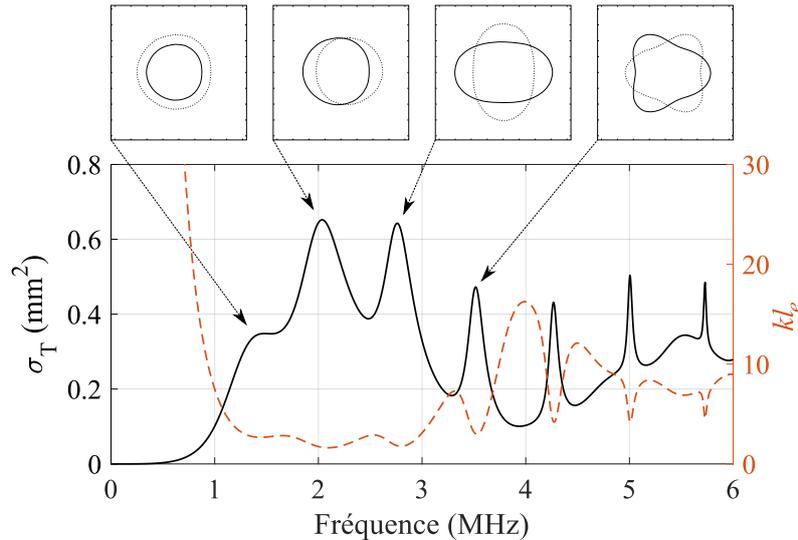


FIGURE 2.2 – Section efficace de diffusion  $\sigma_T$  d'une goutte d'huile fluorée isolée de rayon  $a = 170 \mu\text{m}$  (en trait plein noir) et produit  $kl_e$  (trait discontinu orange) d'une suspension de gouttes à  $\phi = 20\%$  dans un gel aqueux. Insets : déformées modales associées aux maxima de  $\sigma_T$ , respectivement monopolaire, dipolaire, quadrupolaire et hexapolaire.

De la même manière que pour les bulles, c'est le caractère résonant des gouttes d'huile fluorée qui les rend intéressantes pour l'observation de la localisation d'Anderson en faisant tendre  $kl_e$  vers l'unité. Le produit  $kl_e$  est donné en figure 2.2 pour une émulsion contenant  $\phi = 20\%$  de gouttes d'huile fluorée ayant un rayon de  $a = 170 \mu\text{m}$ . On observe un minimum global à la fréquence du mode dipolaire à  $f = 2.05 \text{MHz}$  pour laquelle le produit  $kl_e = 1,62$ .

Durant ses travaux de thèse à l'Université de Bordeaux [28], Benoit Tallon a étudié le transport des ondes ultrasonores dans ces émulsions d'huile FC40 pour différentes concentrations en diffuseurs. Pour des concentrations  $\phi \approx 20\%$ , il a mis en évidence une déviation au régime diffusif appelée « subdiffusion », sans pour autant observer le régime localisé. S'il est raisonnable de penser qu'il suffit d'augmenter la concentration en diffuseurs pour ralentir davantage le processus de diffusion, une concentration optimale proche de  $\phi = 25\%$  est apparue pour laquelle le ralentissement de la diffusion est le plus prononcé. Pour des concentrations plus élevées (à  $\phi = 40\%$ ), les ondes se transportent à nouveau de manière diffusif et le coefficient de diffusion  $D$  augmente à mesure que la concentration  $\phi$  augmente. De plus, l'étude du transport des ondes en milieux concentrés était rendu d'autant plus difficile que les gouttes avaient tendance à coalescer.

### Billes de silicone poreux

La troisième particule résonante présentée est la bille de silicone poreux. L'intérêt pour cette dernière réside dans le fait que les vitesses dans le silicone poreux sont exceptionnellement basses (pour une porosité de 35%,  $c_L = 0.039 \text{ mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$ ,  $c_T = 0.016 \text{ mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$ ) [53, 54]. De ce fait, le fort contraste de célérités avec la matrice aqueuse permet d'exhiber de fortes résonances acoustiques.

La section efficace totale de diffusion  $\sigma_T$  d'une bille isolée de silicone poreux de rayon  $a = 170 \mu\text{m}$  est donnée en figure 2.3. Le produit  $kl_e$  est donné pour une suspension à 20% de billes. La section efficace de diffusion présente une augmentation rapide jusqu'à un pic à  $f = 80 \text{ kHz}$ , accompagnée d'une décroissance tout aussi rapide de  $kl_e$  pour des valeurs toujours très inférieures à 1.

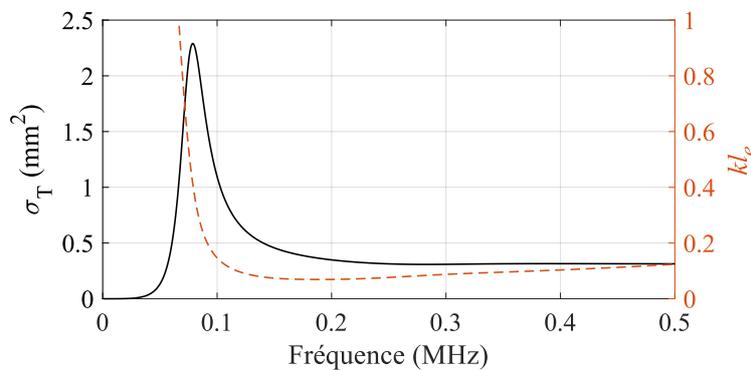


FIGURE 2.3 – Section efficace de diffusion d'une bille de silicone poreux isolée de rayon  $a = 170 \mu\text{m}$  (en trait plein noir) et produit  $kl_e$  (trait discontinu orange) d'une suspension de bille à  $\phi = 20\%$  dans un gel aqueux.

On remarque alors que le comportement fréquentiel de  $\sigma_T$  et  $kl_e$  d'une bille est fortement similaire à celui d'une goutte d'air, mais la nature solide du silicone poreux offre aux billes une meilleure stabilité dans le temps et permet de ne pas être limité par la coalescence des diffuseurs à de fortes concentrations (contrairement aux gouttes d'huile). L'utilisation de billes de silicone poreux comme diffuseurs résonants pour nos suspensions semble être idéale pour l'observation du régime de transport localisé des ondes. Cependant le niveau d'absorption intrinsèque du silicone poreux est très élevé ( $\alpha_L = 78 \times 10^3 \text{ Np} \cdot \text{mm}^{-1} \cdot \text{MHz}^{-1.4}$  et  $\alpha_T = 175 \times 10^3 \text{ Np} \cdot \text{mm}^{-1} \cdot \text{MHz}^{-1.5}$ ) [54]) et tend également à atténuer rapidement les *codas* de diffusion multiple [28].

#### 2.1.2 Billes métalliques de BiPbInSnCd

Le métal choisi est un alliage eutectique constitué à 44,7% de Bi, 22,6% de Pb, 19,1% de In, 8,3% de Sn et de 5,3% de Cd dont la référence commerciale est Indalloy®117. Son module d'Young  $E = 26.7 \text{ GPa}$  et son module de cisaillement  $G = 9.72 \text{ GPa}$  font de lui un métal "mou". Ces valeurs de  $E$  et de  $G$  ont été déduites des mesures de célérité par temps de vol  $c_T$  et  $c_L$  effectuées au laboratoire I2M. Ce métal est également si peu absorbant que la mesure de l'atténuation n'a pu être effectuée précisément : elle sera considérée négligeable dans la suite de notre étude.

À titre indicatif, l'alliage BiPbInSnCd possède des caractéristiques mécaniques situées entre l'étain et le plomb (tableau 2.1).

	E (GPa)	G (GPa)	$\rho$ ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ )	$c_L$ ( $\text{mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$ )	$c_T$ ( $\text{mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$ )
Plomb	15,9	5,5	11,2	2,2	0,7
BiPbInSnCd	26,7	9,72	9,16	2,37	1,03
Etain	55,5	21	7,3	3,3	1,7
Aluminium	72,4	27	2,7	6,35	3,12

TABLEAU 2.1 – Liste non exhaustive de matériaux métalliques «mous» et de leurs caractéristiques mécaniques[55, 56].

Tout comme les gouttes d’huile fluorée, le fort contraste de propriétés acoustiques entre l’eau et le métal est tel que des billes de cet alliage métallique ont un fort pouvoir résonant. Ici, la nature "molle" de l’alliage exacerbe les résonances acoustiques de formes, se traduisant par la présence de pics étroits sur la section efficace de diffusion d’une bille (figure 2.4). Il est utile de relever qu’à rayon identique,  $\sigma_T$  est du même ordre de grandeur pour une goutte de FC40 et pour une bille de BiPbInSnCd.

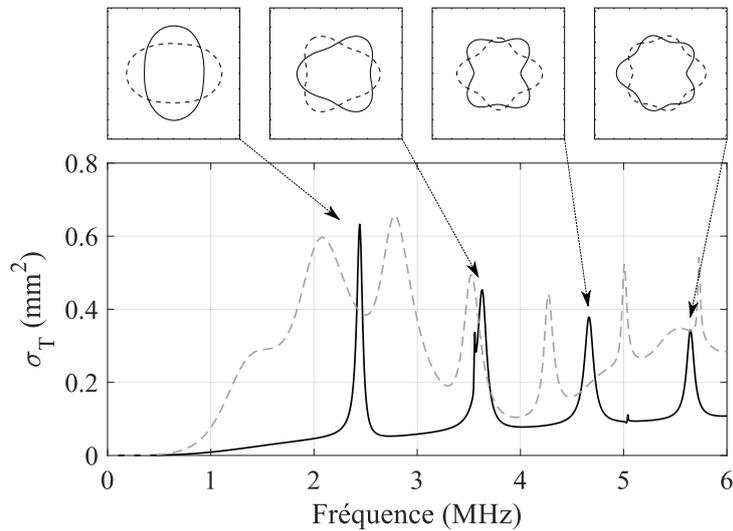


FIGURE 2.4 – Section efficace totale de diffusion d’une bille métallique de BiPbInSnCd immergée dans de l’eau (trait plein noir) superposée à celle d’une goutte d’huile fluorée (trait discontinu gris). Le rayon de la bille est de  $a = 170\mu\text{m}$ . Insets : déformées modales associées aux maxima locaux de  $\sigma_T$ .

Pour une bille de BiPbInSnCd, on notera que le premier pic sur la section efficace de diffusion à  $f = 2.44\text{MHz}$  correspond à la résonance du mode quadripolaire, le deuxième pic à  $f = 3.63\text{MHz}$  au mode hexapolaire, le troisième pic à  $f = 4.66\text{MHz}$  au mode octopolaire (figure 2.4)... Le mode monopolaire correspondant à la « respiration » de la bille se situe à  $f = 5.04\text{MHz}$  mais est très étroit et de faible amplitude. Le pic du mode dipolaire, très étroit également, coïncide avec le pic du mode hexapolaire à  $f = 3.56\text{MHz}$ . Ce sont donc les modes  $n \geq 2$  qui induisent de forts pics de résonances.

Pour une population de billes de BiPbInSnCd de rayon  $a = 170\mu\text{m}$  concentrée à  $\phi = 20\%$ , le produit  $kl_e$  (en figure 2.5) présente des creux aux fréquences de résonances avec un minimum global se situant à  $f = 2.44\text{MHz}$  pour  $kl_e = 1.68$  correspondant à la résonance du mode quadripolaire. Cette valeur de  $kl_e$  est également très proche de l’unité ce qui fait de cet alliage un bon

candidat pour l'observation de la localisation d'Anderson.

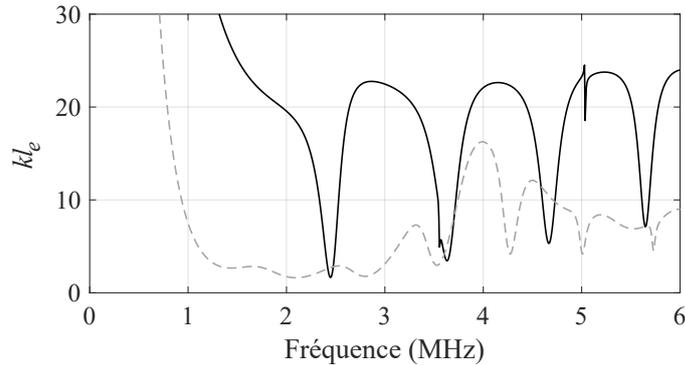


FIGURE 2.5 – Produit  $kl_e$  d'une suspension de billes identiques de BiPbInSnCd dans un gel aqueux (trait plein noir) superposé au cas des gouttes d'huile fluorée (trait discontinu gris). Le rayon des gouttes est de  $a = 170 \mu\text{m}$  et la fraction volumique des diffuseurs est de  $\phi = 20\%$ .

### Synthèse

La bulle d'air est intéressante grâce à sa forte résonance monopolaire de Minnaert. Cependant la dissipation aux interfaces est forte et atténue rapidement la partie incohérente du champ acoustique.

La goutte de FC40 est quant à elle très peu absorbante et présente de fortes résonances multipolaires. Cependant la nature fluide du diffuseur ne permet pas d'étudier des émulsions fortement concentrées.

La bille de silicone poreux présente des similarité avec la bulle d'air ( $\sigma_T$  et  $kl_e$ ) mais possède par sa nature solide, l'avantage d'être stable dans le temps et de ne pas coalescer pour de fortes concentrations. Cependant c'est ici l'absorption intrinsèque du silicone poreux qui atténue tout aussi rapidement les codas de diffusion multiple.

Enfin, la bille de BiPbInSnCd, tout comme la goutte d'huile fluorée est peu absorbante et présente de fortes résonances multipolaires. Tout comme la bille de silicone poreux, par sa nature solide elle est stable dans le temps et permet l'étude de suspensions concentrées. Elle constitue ainsi un diffuseur idéal pour notre étude.

## 2.2 Fabrication des échantillons

La fabrication des échantillons est une étape cruciale : maîtriser la production des diffuseurs nous permettrait par exemple, de contrôler la taille des diffuseurs pour les ajuster aux fréquences d'intérêt. Une mauvaise maîtrise du dispositif de fabrication peut induire une forte dispersion en taille des billes et amoindrir leurs résonances.

Dans notre étude, les diffuseurs sont solides et répartis dans une matrice aqueuse faiblement absorbante. La fabrication de ces diffuseurs est rendue possible grâce à des méthodes millifluidiques, mais également grâce à la faible température de fusion de l'alliage métallique utilisé (BiPbInSnCd) proche de 50°C.

### 2.2.1 Fabrication du gel

Le gel utilisé est un gel de carbopol (Lubrizol ETD2050) à base aqueuse. Étant constitué à plus de 98% d'eau, ses propriétés acoustiques sont quasiment identiques à celle de l'eau, à savoir une célérité  $c_{\text{gel}} = 1.495 \text{ mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$  et une masse volumique  $\rho_{\text{gel}} = 1.005 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ . Ce gel est également très faiblement absorbant ( $\alpha_{\text{gel}} = 5 \times 10^{-5} \text{ Np} \cdot \text{MHz}^{-2} \cdot \text{mm}^{-1}$ ).

Le gel de carbopol est un gel à seuil : pour mettre en mouvement ce fluide, il faut lui imposer une contrainte de cisaillement supérieure à une contrainte seuil. En deçà de celle-ci, le gel ne s'écoule pas. Cette propriété du gel est particulièrement intéressante car elle permet le maintien des diffuseurs en suspension, et leur évite ainsi la sédimentation. Il est alors nécessaire d'ajuster le seuil du gel en fonction du poids des diffuseurs. Cette augmentation du seuil s'effectue directement lors de la synthèse du gel en ajustant la quantité de poudre de carbopol à diluer dans l'eau [57] que nous utiliserons avec un pourcentage massique de 1.5%.

Initialement sous forme de poudre, ce composé est dissout dans de l'eau distillée dont la température est portée à 50°C. La solution est chauffée grâce à une plaque chauffante disposant d'une agitation magnétique constante. Environ une heure d'agitation est nécessaire pour dissoudre toute la poudre dans l'eau. La solution est refroidie jusqu'à température ambiante tout en maintenant l'agitation. La solution obtenue est acide (pH 3) et est ramenée à pH 7 par ajout progressif d'une solution de soude ( $10 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ). C'est lors de cette étape que la gélification se produit.

Les bulles d'air piégées lors des différentes étapes de la fabrication du gel sont enlevées à l'aide d'une pompe à vide Welch™. Le gel est inséré dans un dessiccateur dont l'air est aspiré grâce à cette pompe (figure 2.6). Le manomètre présent sur le dispositif ne donne pas une mesure précise de la pression interne, mais selon les données fabricant, la pression minimale dans le dessiccateur sous vide est inférieure à 8 mbar. Pour 200 ml de gel, une heure est suffisante pour enlever la majeure partie des bulles. Cette méthode de suppression des bulles a l'avantage d'extraire également une partie de l'air dissout dans le gel. Ainsi les bulles restantes et les bulles insérées par manipulation du gel ont une très faible durée de vie (< 1 min).

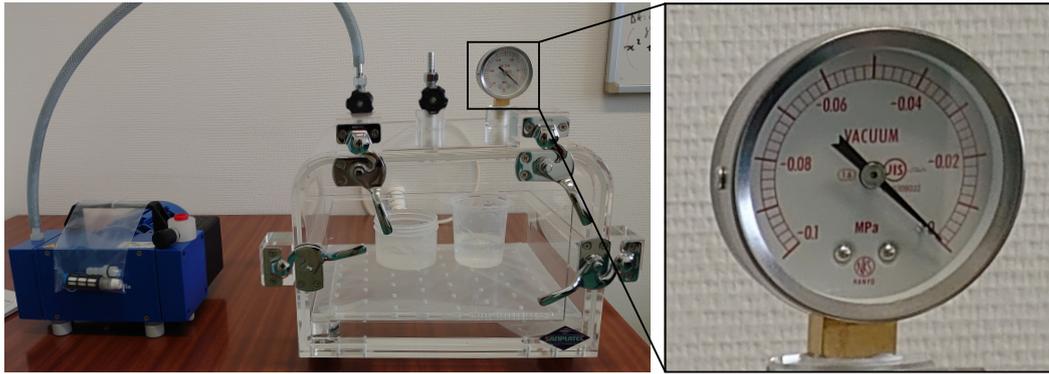


FIGURE 2.6 – Photo du dispositif d'extraction des bulles d'air piégées dans le gel.

## 2.2.2 Dispositif millifluidique pour la fabrication des billes

### Principe de fabrication des billes

Le principe de fabrication des billes de BiPbInSnCd par des méthodes millifluidiques a été développé au cours du post-doctorat de Rawad Tadmouri en 2012 [19]. Le terme millifluidique fait référence aux dimensions submillimétriques des orifices des tubes et des différentes pièces utilisées.

La méthode de fabrication millifluidique ici utilisée est appelée « co-écoulement ». Elle met en jeu l'écoulement parallèle de deux phases : une première phase dite « continue », et une autre phase dite « dispersée » constituée respectivement d'un mélange d'eau (70%)/glycérol (30%) et de l'alliage métallique à l'état liquide. La phase continue en arrivant dans la jonction en T, s'écoule autour du capillaire contenant lui-même l'écoulement du métal : c'est le co-écoulement (figure 2.7). Ainsi à la sortie du capillaire, le métal est cisailé par l'écoulement rapide de la phase continue permettant la production et l'évacuation des gouttes métalliques de taille submillimétrique.

L'alliage eutectique de BiPbInSnCd possède une faible température de fusion ( $T_{\text{fus}} = 47^\circ\text{C}$ ). Il est amené à l'état liquide par augmentation de sa température jusqu'à  $80^\circ\text{C}$  grâce à un film chauffant (MINCO®) disposé sur les parois latérales du réservoir pouvant contenir jusqu'à 55 ml. Les écoulements sont créés et maintenus en imposant une pression  $P_0$  et  $P_1$  respectivement à l'intérieur du réservoir de phase continue et à l'intérieur du réservoir de métal à l'aide d'un contrôleur de pression Fluigent®. Afin de conserver le métal à l'état liquide, l'ensemble du dispositif est plongé dans un grand bœcher contenant de l'eau préalablement chauffée dans un bain thermostatique ( $T_{\text{eau}} > 60^\circ\text{C}$ ). Afin de solidifier le métal, les gouttes sont plongées dans un bac de collecte rempli d'eau froide ( $T_{\text{eau}} \sim 25^\circ\text{C}$ ).

	Capillaire	ID <sub>C</sub>	OD <sub>C</sub>	Tube	ID <sub>T</sub>
Petites billes, $a \approx 230\mu\text{m}$	Verre	0.20 mm	0.33 mm	Téflon-PFA	2/100''
Grosses billes, $a \approx 350\mu\text{m}$	Acier	0.26 mm	0.45 mm	Téflon-PFA	3/100''

TABLEAU 2.2 – Caractéristiques des tubes et des capillaires utilisés pour la fabrication des billes. ID : diamètre interne et OD : diamètre externe.

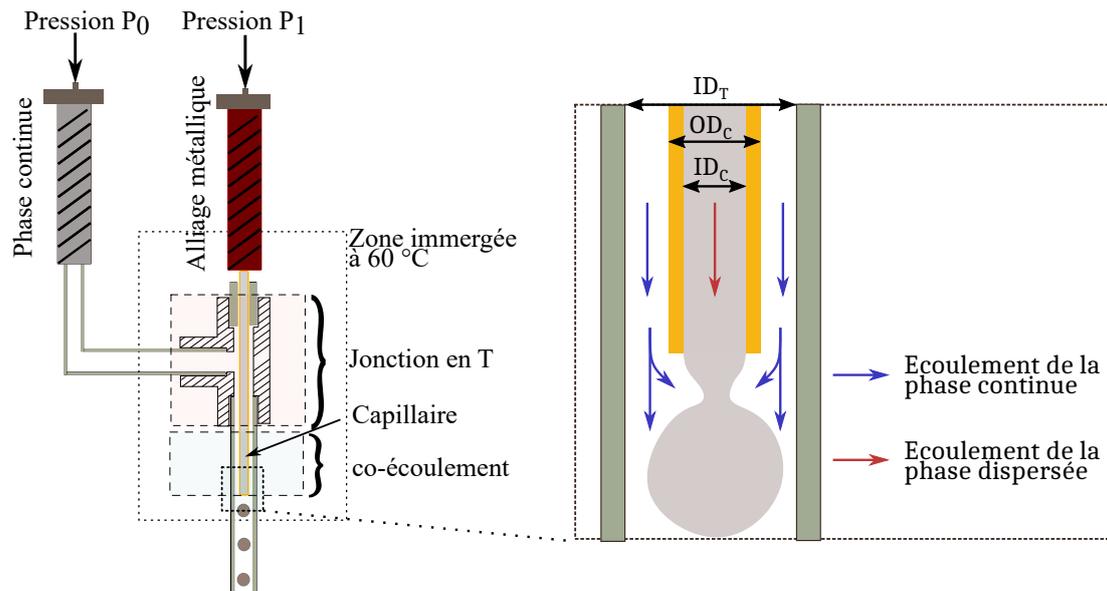


FIGURE 2.7 – Schéma du premier dispositif millifluidique utilisé pour la fabrication des billes métalliques.

A la suite de quelques tests préliminaires, nous avons choisi les matériaux constitutifs des tubes et des capillaires utilisés. Nous avons également déterminé que le paramètre clef pour contrôler la taille des billes est le diamètre interne du tube  $ID_T$  (ID pour Inner Diameter). Nous avons alors adapté notre dispositif de fabrication afin de fabriquer deux populations de billes avec deux tailles différentes : une première population de billes avec un rayon  $a \approx 230\mu\text{m}$  et une deuxième population avec un rayon  $a \approx 350\mu\text{m}$  que nous appellerons respectivement « petites billes » et « grosses billes ». Les tailles des billes ont été choisies afin d'avoir leurs premières résonances aux alentours de 2.25MHz qui correspond à la fréquence centrale des transducteurs focalisés disponibles au laboratoire.

La stabilité des écoulements en jeu est indispensable afin de produire des billes monodisperses. Il faut être particulièrement vigilant aux impuretés qui peuvent se glisser dans le système et perturber les écoulements. De ce fait, le premier dispositif de fabrication utilisé, identique à celui représenté en figure 2.7, ne nous a pas permis de fabriquer une grande quantité de billes. Les raisons des échecs de production avec ce système sont diverses et peuvent entraîner un arrêt de la production :

- Il est difficile d'anticiper le moment exact où le métal commence à fondre. Dans ces conditions, le métal s'écoule par gravité dans le capillaire et fini par créer un bouchon de métal s'il n'est pas évacué rapidement (figure 2.8).
- Il est également difficile de déterminer le moment où la totalité du métal contenu dans le réservoir est à l'état liquide. Aussi, si nous lançons la production trop tôt relativement à la fonte du métal, il ne sera pas possible d'utiliser tout le métal (une partie de l'alliage étant encore à l'état solide).
- Si les gouttes ne sont pas évacuées assez rapidement, elles ont tendance à coalescer. Un bouchon se crée et il n'est alors plus possible d'évacuer le métal.
- La phase continue remonte le capillaire et pollue le métal encore dans le réservoir. Le métal

en présence redevient solide même si la température imposée est supérieure à la température de fusion du métal pur ( $T_{\text{fus}} = 47^\circ\text{C}$ ).

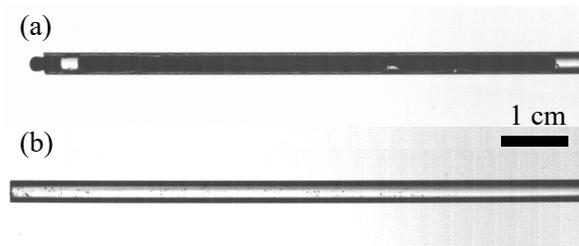


FIGURE 2.8 – Photographie du capillaire en verre : en (a) lorsque le métal a bouché le capillaire et en (b) avec présence de poussières à l’entrée du capillaire.

Au vu des différents inconvénients intrinsèques au dispositif de fabrication, il devient alors nécessaire d’apporter des améliorations significatives au dispositif actuel afin de contourner ces difficultés.

### Amélioration du processus de fabrication

La première amélioration apportée au montage millifluidique concerne la préparation du matériel. Chaque pièce utilisée est préalablement nettoyée à l’isopropanol afin d’enlever les poussières et autres résidus présents. Un soin particulier est apporté à la préparation du capillaire : pièce en contact direct avec le métal. Les surfaces latérales internes du capillaire sont recouvertes d’une fine couche d’huile Certonal Acota® (huile fluorée FC742) afin de diminuer l’adhérence du métal sur le capillaire. Les capillaires sont trempés dans cette huile et l’excédent est enlevé à l’aide d’une soufflette à air comprimé. L’huile restante sur les parois est alors fixée par augmentation de la température dans un four à  $120^\circ\text{C}$  ( $\sim 10\text{min}$ ). Afin que l’huile recouvre et adhère sur l’entièreté du capillaire, les parois du capillaire sont préalablement activées au plasma (sous vide) [58].



FIGURE 2.9 – Cuve à plasma sous vide.

L’appareil à plasma utilisé est visible en figure 2.9. Une fois le capillaire à l’intérieur de l’appareil, la première étape consiste à retirer l’air présent dans la cuve jusqu’à atteindre une pression interne de 3 mbar. Une fois cette pression atteinte, on injecte du gaz jusqu’à atteindre la pression de 5 mbar. Le matériel utilisé permet d’opérer avec différents gaz (oxygène, azote pur...), mais nous

injecterons dans notre cas de l'air (20% d'oxygène et 80% d'azote). Par application d'un champ électrique externe, une partie du gaz est ionisée : c'est le plasma. Enfin, en réagissant avec les surfaces du capillaire, l'activation plasma permet d'augmenter l'adhérence des parois, et permet donc à l'huile Certonal Acota® d'avoir une bonne adhérence. Ici la durée typique de cette étape est de 3 min.

La deuxième amélioration apportée concerne le nettoyage du métal. Comme énoncé précédemment, le métal peut entrer en contact avec la phase continue ce qui a pour effet de le "polluer". Le métal pollué engendre des agrégats et des poussières qui ne fondent pas (figure 2.10 (c) et (d)). Ces poussières peuvent pénétrer dans le capillaire et boucher l'écoulement du métal.

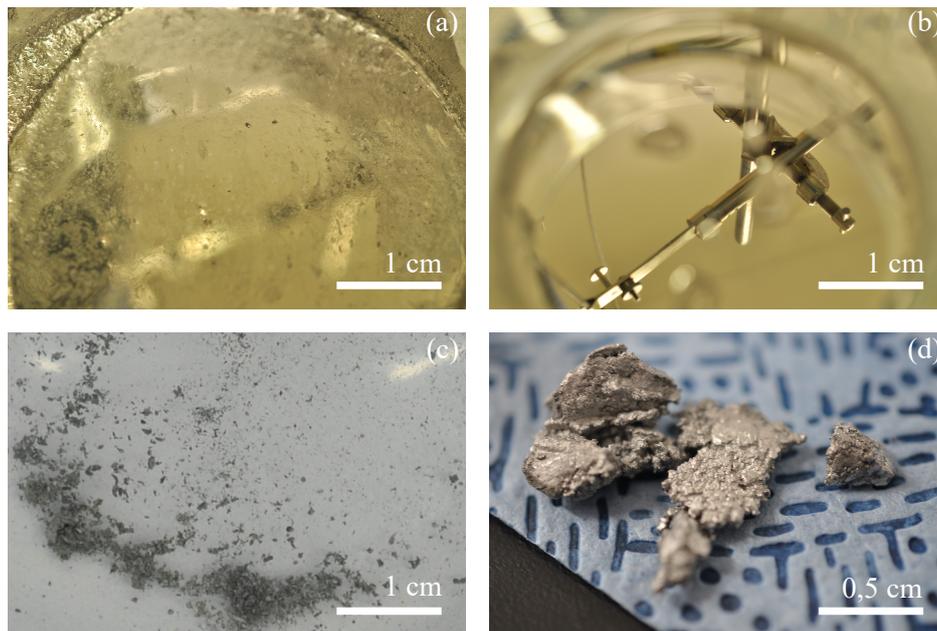


FIGURE 2.10 – Photographie de l'alliage métallique fondu (a) avant nettoyage, et (b) après nettoyage. (c) poussières de métal pollué et (d) agrégats de métal pollué .

Pour nettoyer le métal, sa température est élevée à 60 °C pour le faire fondre. Quelques gouttes d'acide chlorhydrique sont ajoutées pour neutraliser les oxydes de métal. Les plus gros agrégats (figure 2.10 (c)) sont quant à eux récupérés à l'aide d'une spatule.

La dernière amélioration consiste en une amélioration du dispositif de fabrication dont un schéma complet est visible en figure 2.11 et une photographie en figure 2.12. Une vanne est placée entre la sortie du réservoir de métal et l'entrée du capillaire. Cela permet d'attendre la fonte totale du métal et évite que la phase continue entre en contact avec ce dernier avant de débiter la production. Un réservoir plus grand de phase continue est également installé afin d'accélérer l'évacuation des billes et d'anticiper les (longues) durées de production. Enfin, une clef dynamométrique est utilisée afin d'avoir un serrage identique au niveau de chaque écrou présent sur le dispositif.

Les billes produites sont aussi fortement dépendantes des vitesses d'écoulement. Si l'écoulement de phase continue est trop rapide, le cisaillement à la sortie du capillaire peut être trop important et empêcher le métal de couler. Cependant si l'écoulement de métal est trop important,

il risque d'être instable et de créer un écoulement continu de métal. Pour certaines conditions de fabrication, les gouttes de métal peuvent sortir de l'écoulement sous forme de petits cylindres [19].

Afin d'éviter la coalescence des gouttes, nous ajoutons dans la phase continue du poly (butyral de vinyle) (PVB) un polymère utilisé comme agent émulsifiant. Ce polymère se fixe à l'interface entre les gouttes métalliques et la phase continue et génère ainsi des interactions répulsives entre les gouttes ce qui les empêche de coalescer.

Après un grand nombre d'essais, nous avons ainsi pu fabriquer 170 g de « petites billes » en imposant les pressions  $P_0 = 1.9$  bar et  $P_1 = 1.3$  bar. Nous avons également produit 235 g de « grosses billes » en imposant les pressions  $P_0 = 1.3$  bar et  $P_1 = 1$  bar. Avec ce système, le débit de production des billes est de  $\approx 3.5 \text{ g} \cdot \text{min}^{-1}$ .

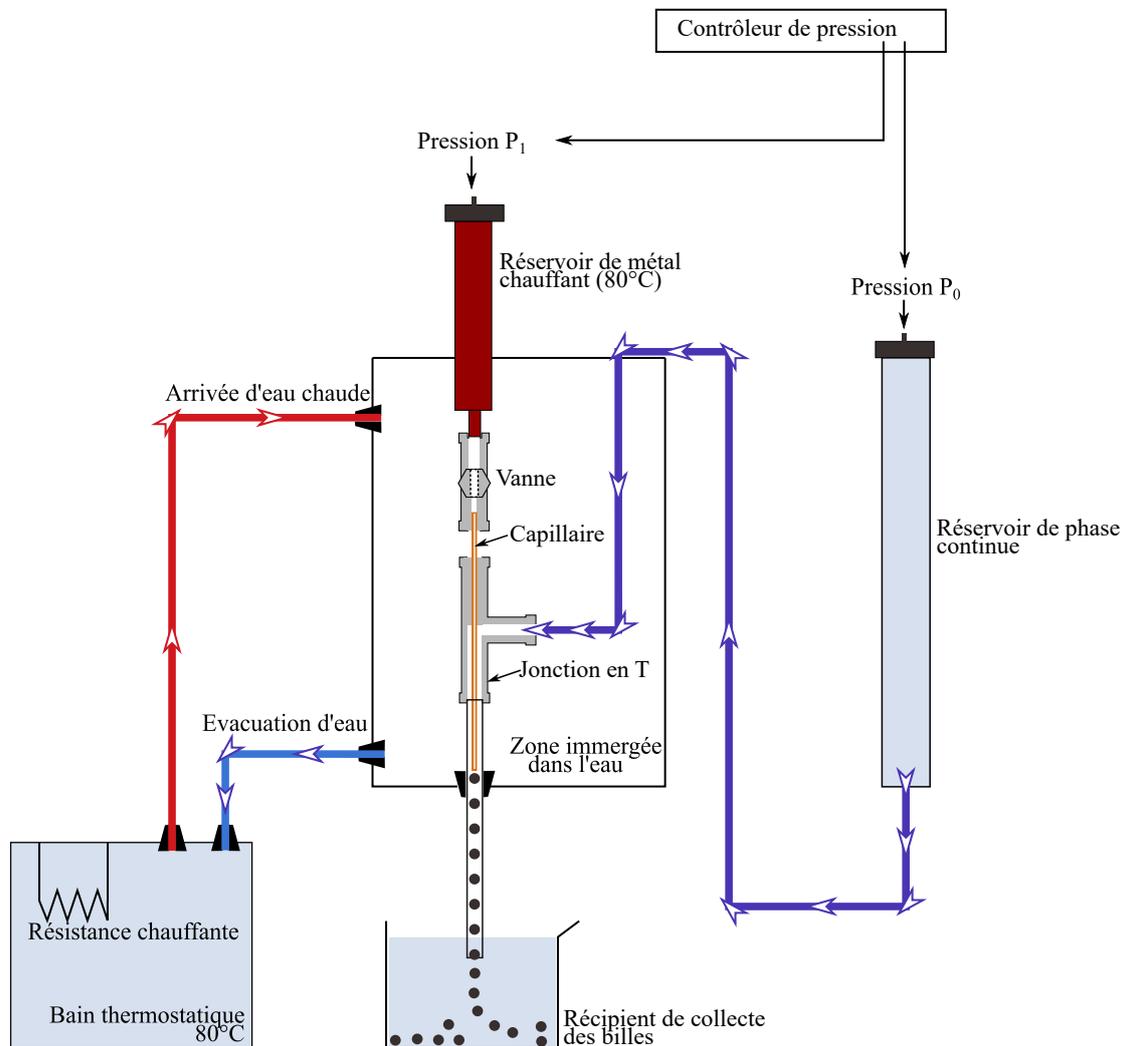


FIGURE 2.11 – Schéma complet du dispositif de fabrication des billes après amélioration. Le capillaire est en orange. Les flèches colorées indiquent la direction des écoulements.

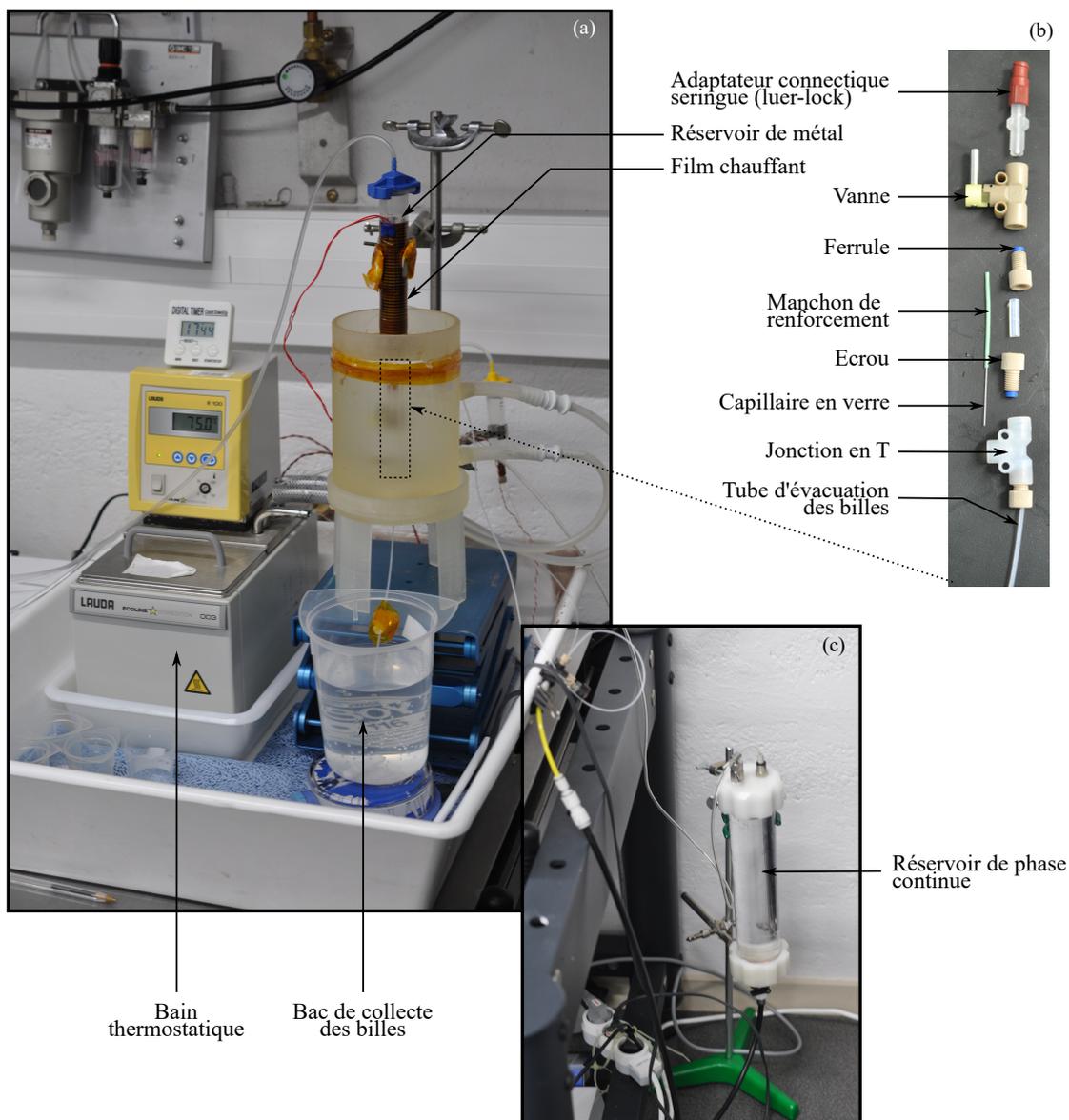


FIGURE 2.12 – Photo du dispositif de fabrication après amélioration. (a) Photo du réservoir de métal, du béccher rempli d’eau, le bain thermostatique ainsi que du bac de collecte des billes, le tout contenu dans un bac de rétention d’eau. (b) Photo en vue éclatée des éléments constitutifs du dispositif de fabrication des gouttes métalliques : vanne, capillaire et jonction en T. (c) Photo du réservoir de phase continue.

## 2.3 Caractérisation des échantillons

Dans la section précédente, nous avons décrit la fabrication du gel, ainsi que la production des billes de BiPbInSnCd. Dans cette section, nous allons caractériser la forme et la taille des billes produites. Les résultats obtenus nous serviront de données d'entrée pour les modèles de diffusion multiple que nous utiliserons par la suite. Nous discuterons également de la structure des suspensions au travers de la fonction de corrélation de paire  $g(r)$ .

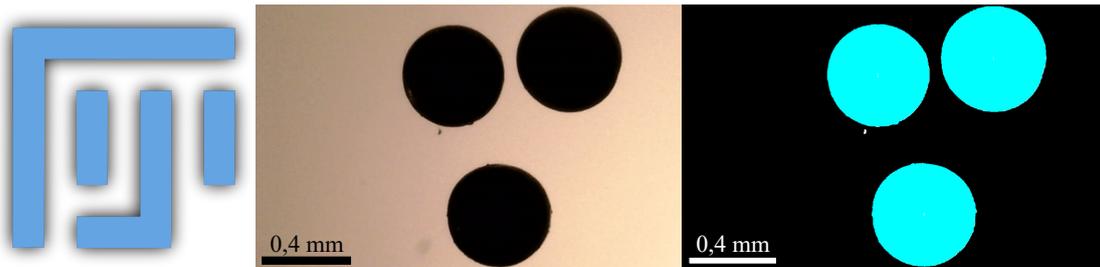


FIGURE 2.13 – (a) Logo du logiciel. (b) Photo des billes avant analyse d'image. (c) Photo des billes après analyse d'image (la couleur bleue indique que le logiciel a identifié la bille et que le traitement a bien été effectué). Dimensions image  $2560 \times 1920$  pixels, grossissement  $\times 200$ .

L'analyse de la taille et de la forme des billes produites s'effectue de manière optique à l'aide d'un logiciel libre d'analyse d'image ImageJ. La méthode utilisée pour l'analyse des billes s'effectue dans un plan (2D) et ne nous permet pas d'avoir des informations sur la troisième dimension.

Les images capturées à l'aide de l'appareil Dino Lite sont des images matricielles avec des dimensions connues (typiquement  $2560 \times 1920$  pixels). Avant de commencer les analyses d'image, il est nécessaire de calibrer l'appareil de mesure à l'aide d'une mire (règle d'étalonnage) afin de lier la taille apparente d'un pixel sur l'image avec la taille réelle (exprimée en  $\mu\text{m}$ ). Cette calibration s'effectue sur une mire dont la longueur connue est de 1 mm ce qui nous permet d'avoir une calibration très précise de notre appareil de mesure. Ainsi, un pixel sur l'image représente une distance  $\Delta = 0.781 \mu\text{m}$ .

### 2.3.1 Caractérisation de la taille des billes

Sur une image contenant des billes, le traitement d'image consiste à binariser l'image afin de faire apparaître en blanc les pixels liés aux billes. Nous connaissons ainsi le nombre de pixels que compose chaque bille. Grâce à la calibration effectuée précédemment, nous déduisons l'aire d'une bille notée  $\mathcal{A}$ . C'est donc à partir de l'aire mesurée que nous extrayons la mesure du rayon  $a = \sqrt{\mathcal{A}/\pi}$ .

Nous avons pu mesurer la taille d'approximativement 200 billes pour les deux productions de billes. Les distributions en taille des billes sont affichées en figure 2.14. Par un ajustement gaussien de ces distributions, nous obtenons le rayon moyen  $\langle a \rangle$  ainsi que l'écart-type  $\sigma$  de la distribution gaussienne.

Ainsi les grosses billes ont un rayon moyen de  $349 \mu\text{m}$  et les petites billes ont un rayon moyen de  $233 \mu\text{m}$ . La polydispersité ( $P = (\sigma / \langle a \rangle) \times 100$ ) calculée est très faible ( $\approx 2\%$ ) dans les 2 cas. Il

s'agit d'un avantage certain pour ne pas « lisser » les résonances des billes [59, 60].

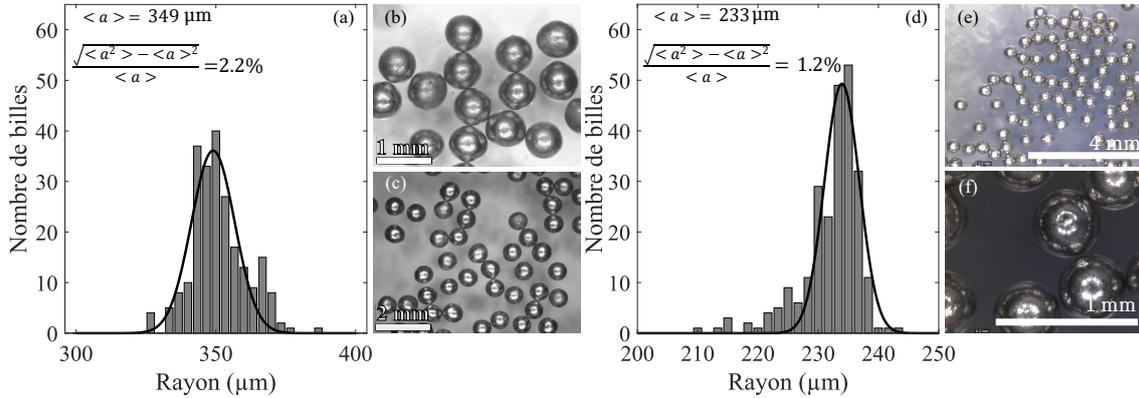


FIGURE 2.14 – Analyse de la taille par méthode optique des deux populations de billes produites. (a)-(c) distribution en taille et photographies des « grosses billes ». (d)-(f) distribution en taille et photographies des « petites billes ».

Afin de discuter de l'incertitude sur la mesure des billes, il est nécessaire de revenir sur quelques points du traitement d'image. Comme énoncé précédemment, un pixel a une taille réelle de  $\Delta = 0.781 \mu\text{m}$ . Cette mesure de la taille d'un pixel est le premier point de discussion mais ne permet pas de conclure directement à une incertitude sur la taille des billes. En effet lors de la binarisation de l'image, nous définissons une gamme de nuances sombres afin de déterminer l'appartenance d'un pixel à une bille ou au fond de l'image. Même si l'image présente un fort contraste comme en figure 2.13, il y a toujours une zone d'incertitude à l'interface entre la bille et l'arrière plan de l'image.

Ces deux étapes combinées (calibration+binarisation) constituent les principales causes d'incertitudes de nos mesures. Ainsi, dans l'objectif d'avoir une valeur précise de l'incertitude sur la taille des billes, nous avons répété les deux étapes citées précédemment  $N$  fois de manière indépendante afin d'obtenir  $N$  valeurs de rayon moyen ( $N = 8$ ). L'écart-type sur la valeur du rayon moyen est estimé à  $S = 0.4 \mu\text{m}$ . Pour finir, nous faisons le choix de définir un intervalle de confiance à 99% sur la valeur du rayon moyen  $\langle a \rangle$  :

$$\left[ \langle a \rangle - t_{\alpha/2}^{N-1} \frac{S}{\sqrt{N}}; \langle a \rangle + t_{\alpha/2}^{N-1} \frac{S}{\sqrt{N}} \right] \quad (2.2)$$

où la valeur de  $t_{\alpha/2}^{N-1}$  est obtenue avec la loi de Student avec  $\alpha = 0.01$  et  $N = 8$ . De cette façon, l'incertitude de mesure sur la taille des billes est estimée à  $1.1 \mu\text{m}$  qui est largement acceptable pour des mesures de billes de l'ordre de  $230 \mu\text{m}$  ( $\approx 0,5\%$ ) et d'autant plus acceptable pour des billes de  $340 \mu\text{m}$  ( $\approx 0,3\%$ ).

### 2.3.2 Caractérisation de la forme des billes

Il est important de caractériser la forme des billes. En effet, la méthode millifluidique utilisée permet la production de billes sphériques mais également allongées [19] et cette élongation des billes peut impacter significativement les résonances des billes [61].

De plus, lors de la mesure du rayon des billes, nous avons considéré que les billes sont sphériques. Or, si elles présentent une forme ellipsoïdale, chaque bille devrait être caractérisée par son grand axe  $GA$  ainsi que son petit axe  $PA$ . Le logiciel Fiji propose des outils d'analyse de forme afin d'étudier la sphéricité des billes. Nous nous concentrerons alors sur deux paramètres de forme que le logiciel calcule automatiquement :

- AR : rapport entre le grand axe  $GA$  et le petit axe  $PA$ ,
- Round : rapport entre l'aire mesurée  $\mathcal{A}$ , et l'aire déduite de la mesure du grand axe  $\mathcal{A}_{GA}$ .

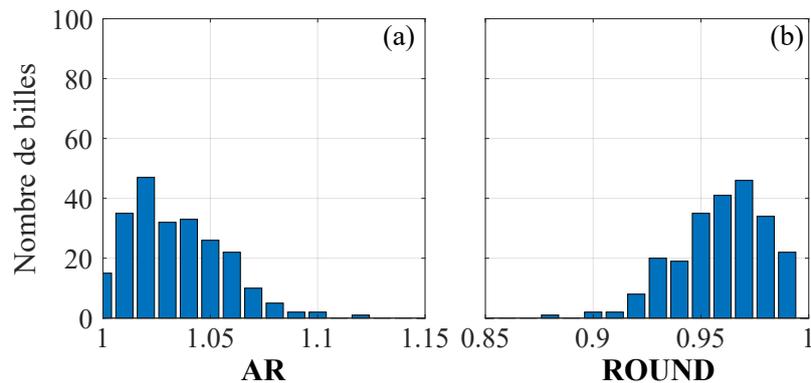


FIGURE 2.15 – Paramètre de forme (a) AR et (b) ROUND obtenus avec les grosses billes.

Ainsi les 2 paramètres sont complémentaires pour avoir une bonne idée de la forme des billes produites. Tandis que AR donne des informations sur l'élongation des billes, le paramètre ROUND nous donne des informations sur l'impact de cette élongation sur l'aire mesurée. Si les diffuseurs sont parfaitement sphériques  $GA = PA$  et  $AR = 1$  et en conséquence  $ROUND = 1$  ( $\mathcal{A} = \mathcal{A}_{GA}$ ). Dans le cas limite où une bille serait infiniment allongée,  $AR \rightarrow \infty$  et  $ROUND \rightarrow 0$ .

Dans le cas des grosses billes, nous déterminons que le grand axe est en moyenne  $1.038 \times PA$ . Il y a donc en moyenne une différence de taille de 3,8% entre le grand axe et le petit axe, avec un écart type de 2,2%. Le paramètre ROUND, quant à lui, met en évidence une diminution de 3,64% de l'aire mesurée  $\mathcal{A}$  par rapport à l'aire calculée à partir du grand axe  $GA$ .

La même analyse est menée dans le cas des petites billes. En moyenne, le grand axe  $GA = 1,0215 \times PA$  avec un écart type de 1,3%. Quant au paramètre ROUND, il indique une réduction de 2,1% de l'aire mesurée par rapport à  $\mathcal{A}_{GA}$  avec un écart-type de 1,27%.

Ainsi, nous avons quantifié la sphéricité des billes et avons observé que les billes produites ne sont que très peu allongées. Les petites billes présentent une plus faible polydispersion en forme que les grosses billes (respectivement 2,15% et 3,8% pour le paramètre AR). Les billes produites sont donc conformes à nos attentes ainsi qu'à nos exigences et ce, grâce à l'efficacité et à la stabilité de la méthode millifluidique utilisée. En effet avec leur forme sphérique, leur faible polydispersité en forme et en taille, les diffuseurs produits devraient présenter de belles résonances acoustiques.

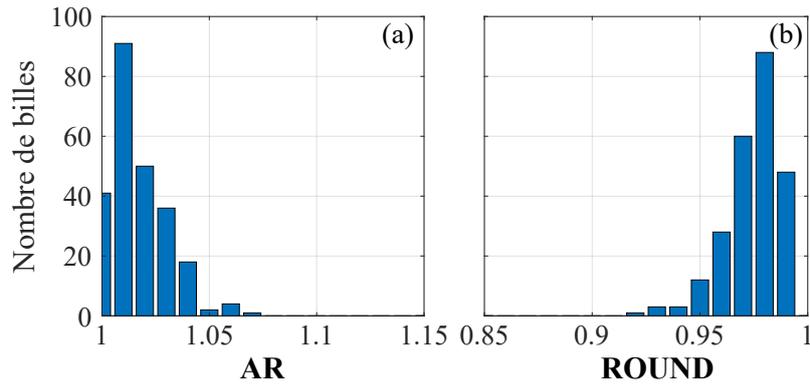


FIGURE 2.16 – Paramètre de forme (a) AR et (b) ROUND obtenus avec les petites billes.

### 2.3.3 Caractérisation de la structure de la suspension

La répartition des diffuseurs dans le milieu est un point essentiel pour mener à bien une étude sur la diffusion multiple en milieu complexe. D'abord dans les milieux complexes ordonnés, où l'agencement des diffuseurs peut notamment engendrer des bandes de fréquences interdites, mais également dans les milieux complexes désordonnés où la répartition spatiale des diffuseurs ainsi que leur taille peuvent fortement impacter la propagation des ondes et doivent être pris en compte dans les différents modèles de diffusion multiple [62–67].

Considérons ainsi la répartition spatiale aléatoire de  $N$  objets sphériques identiques dans un volume  $V$ . Une fois les objets répartis dans la matrice tridimensionnelle, il devient extrêmement difficile d'accéder à la position de chaque objet ( $N \sim 10^5$  pour un volume  $V = 100$  ml). En utilisant des outils statistiques, nous chercherons à obtenir un maximum d'informations concernant la répartition des diffuseurs dans la matrice.

Nous savons notamment que dans le cas où aucune partie de l'espace n'est privilégiée, les  $N$  objets ont chacun autant de probabilité d'occuper un volume  $dV_1$  situé en  $\vec{r}_1$ . On a donc  $NP(\vec{r}_1) = \eta$ , où  $\eta$  est la densité de diffuseurs par unité de volume, et  $P(\vec{r}_1)$  la probabilité de trouver un objet situé en  $\vec{r}_1$ .

Une autre grandeur d'intérêt, est la probabilité conditionnelle de trouver un deuxième diffuseur situé en  $\vec{r}_2$  connaissant la position d'un premier diffuseur situé en  $\vec{r}_1$ , noté  $P(\vec{r}_2|\vec{r}_1)$ . Celle-ci s'exprime de la manière suivante [65] :

$$P(\vec{r}_2|\vec{r}_1) = P(\vec{r}_1)g_2(\vec{r}_2 - \vec{r}_1), \quad (2.3)$$

où  $g_2(\vec{r}_2 - \vec{r}_1)$  est la fonction de distribution radiale. Cette fonction donne la probabilité de trouver 2 diffuseurs espacés de  $r = |\vec{r}_2 - \vec{r}_1|$ . Elle est reliée avec la fonction de corrélation de paire  $g(r) = g_2(r) - 1$  qui indique le degré de corrélation entre 2 diffuseurs espacés d'une distance  $r$ . Ainsi lorsque  $g(r) = 0$  cela signifie que la position d'un diffuseur situé en  $\vec{r}_1$  n'influera pas la position d'un deuxième diffuseur en  $\vec{r}_2$ . En revanche, deux diffuseurs auront une probabilité élevée d'être espacés d'une distance  $r$  lorsque  $g(r) > 0$  et auront une probabilité moindre d'être espacés de  $r$  si  $g(r) < 0$  (Figure 2.17).

Pour des faibles concentrations une première estimation de  $g_2(r)$  est donnée par la « *Hole Correction* » [64], pour laquelle :

$$g_2(r) = \begin{cases} 0 & \text{si } r < b \\ 1 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (2.4)$$

où  $b$  est la « distance d'exclusion ». La relation 2.4 signifie qu'il est autant probable de trouver deux diffuseurs espacés d'une distance  $r$  (grande ou petite), à condition que  $r$  soit supérieure à  $b$ . La probabilité de trouver 2 diffuseurs espacés d'une distance  $r$  devient donc nulle si  $r < b$ . Afin d'interdire l'interpénétration de deux diffuseurs de rayon  $a$ , on pose  $b = 2a$ . Il devient ainsi impossible pour 2 diffuseurs distincts d'avoir leurs centres espacés d'une distance inférieure à leur diamètre. Cependant la *Hole correction* n'est valide que pour de faible concentration en diffuseurs. Elle doit être utilisée avec précautions pour de fortes concentrations, car elle peut engendrer des résultats non physiques [65].

Hormis le cas particulier de la *Hole correction* cette fonction de distribution radiale est difficile à calculer. Sous les approximations de Percus et Yevick [68], Tsang *et-al* ont donné une écriture analytique sous forme d'une Transformée de Laplace inverse [65]. Durant *et-al* ont préféré des méthodes statistiques de Monte Carlo [69].

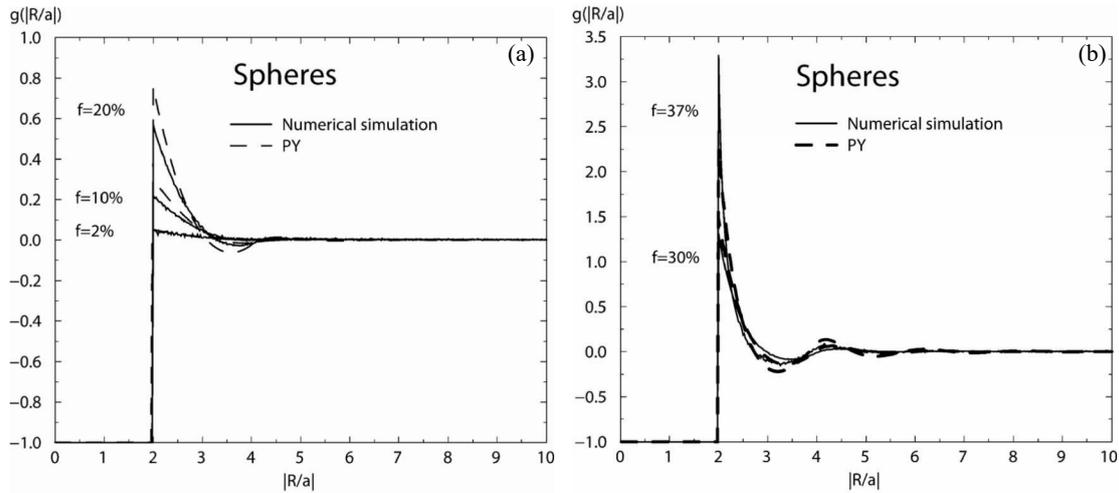


FIGURE 2.17 – Fonction de corrélation de paire  $g(r) = g_2(r) - 1$  calculé à partir de l'expression analytique donnée par Percus et Yevick [68] en ligne discontinue et par des méthodes Monte Carlo (figure extraite de [69]). (a) Concentration en diffuseur noté  $f < 20\%$  et (b) concentration en diffuseurs noté  $f > 20\%$ .

La figure 2.17 compare ces deux méthodes d'obtention de la fonction de corrélation de paire  $g(r)$  (où  $g(r) = g_2(r) - 1$ ). Dans les deux cas, on observe que la *Hole correction* n'est plus suffisante pour estimer  $g(r)$  pour des fractions volumiques supérieures à 10%. En effet, on observe également une forte augmentation de la fonction  $g(r)$  pour  $r = 2a$ . Ce pic situé en  $r = 2a$  s'explique simplement dans le cas de l'empilement compacte de particules, pour lequel il serait très probable de trouver 2 diffuseurs espacés de  $2a$ . Dans un autre cas limite, on comprend que dans le cas d'un empilement ordonné, la fonction  $g_2(r)$  présenterait des pics à la manière d'un peigne de Dirac (figure 2.18), justifiant ainsi les fluctuations présentes sur  $g(r)$  (figure 2.17).

Ces travaux tendent donc à montrer qu'en augmentant la concentration en diffuseurs, on diminue automatiquement leur propension à se positionner librement, entraînant la présence de corrélations fortes à courtes portées. Cependant ce n'est pas la seule façon de modifier la fonction  $g_2(r)$ . La figure 2.18 met en évidence différents type de désordre ainsi que la fonction  $g_2(r)$  associée. On retrouve des structures colloïdales denses (première colonne), mais on trouve également d'autres types de structures comme une structure imparfaitement ordonnée (troisième colonne) pour lequel la fonction  $g_2(r)$  est fortement similaire à un peigne de Dirac où chaque pointe est élargie à cause des imperfections de positionnement des diffuseurs. Dans la deuxième colonne, on trouve une structure polycristalline pour laquelle  $g_2(r) \approx 0$  pour des distances plus grandes que la taille des grains. Dans la cinquième colonne, on observe un désordre fractale pour lequel les diffuseurs auront tendance à se regrouper pour former des agrégats plus ou moins gros : la corrélation est principalement positive. Enfin, dans la quatrième colonne on a l'exemple d'un désordre hyperuniforme. Pour ce type de désordre, la position d'un diffuseur dépend de la position de tous les autres diffuseurs : il s'agit d'un désordre corrélé à longue distance. Adrien Rohfritsch s'est intéressé dans sa thèse à des milieux hyperuniformes particuliers appelés : « hyperuniformes furtifs ». Il a notamment montré que dans ces milieux l'onde cohérente traverse le milieu sans y être atténuée [67].

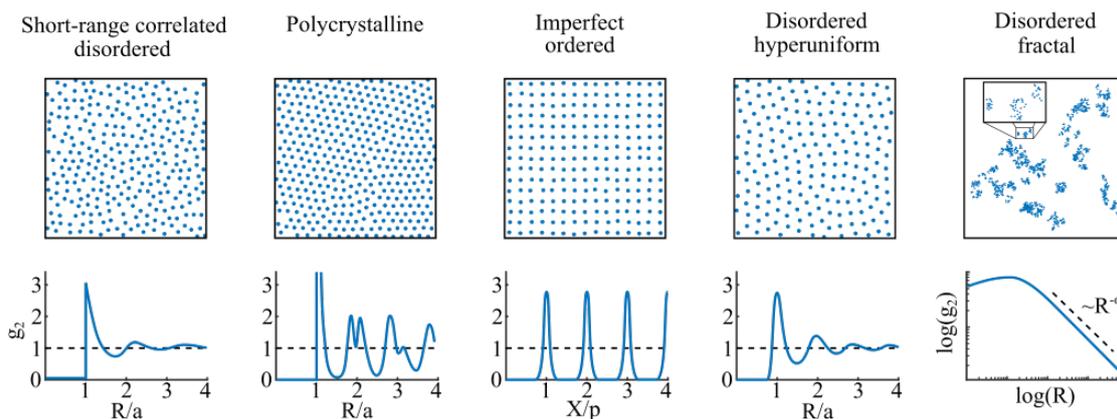


FIGURE 2.18 – Exemple de répartition spatiale de diffuseurs et leurs fonction de distribution radiale (figure extraite de [70]).

Ainsi, il est tout à fait justifié et même indispensable de prendre en compte la répartition spatiale des diffuseurs dans des suspensions concentrées. Nous avons vu de fortes variations sur la fonction de corrélation de paire  $g(r)$ , indiquant un début d'organisation dans la répartition aléatoire de diffuseurs. On note cependant que dans les considérations statistiques ci-dessus, les diffuseurs sont tous identiques. Dans notre cas, où les populations de diffuseurs présentent une dispersion en taille, il n'y a, *a priori*, aucune raison pour que les fonctions de corrélations de paires caractérisant nos milieux soient identiques à celles présentées.

## 2.4 Conclusion

Ce chapitre a été consacré au choix des constituants des échantillons, à la fabrication des particules résonantes et à leur caractérisation géométrique. Nous avons ainsi produit deux populations faiblement polydisperses : les « petites billes » d'un rayon moyen de  $233\ \mu\text{m}$  et également les « grosses billes » d'un rayon moyen de  $349\ \mu\text{m}$ . Nous avons également apporté des éléments de discussion sur la répartition spatiale des particules au sein de l'échantillon au travers de la fonction de distribution radiale  $g_2(r)$ .

Ces billes de BiPbInSnCd dispersées dans un gel aqueux, nous serviront de systèmes modèles 3D dans lesquels nous étudierons le transport des ondes ultrasonores. Dans la suite des travaux, nous confronterons d'une part les différentes méthodes d'homogénéisation du champ moyen  $\langle\psi\rangle$  (chapitre 3), et d'autre part, nous étudierons le transport diffusif voir localisé des ondes multiple-ment diffusées (chapitre 4).



## Chapitre 3

# Propagation des ondes et nombre d'onde effectif

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Caractérisation de l'onde cohérente</b>	<b>51</b>
3.1.1	Dispositif expérimental	51
3.1.2	Extraction du nombre d'onde effectif	52
<b>3.2</b>	<b>Confrontation aux modèles de diffusion multiple</b>	<b>56</b>
3.2.1	Suspensions diluées : modèle d'ordre 1	57
3.2.2	Suspensions concentrées : modèles d'ordre 2	61
<b>3.3</b>	<b>Intégration des corrélations de positions</b>	<b>66</b>
3.3.1	Modèle de Keller	67
3.3.2	«Hole Correction»	68
3.3.3	Fonction $g(r)$ reconstituée	71
<b>3.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>75</b>

---

## Introduction

La première étude du transport des ondes multiples diffusées porte sur la caractérisation du champ cohérent noté  $\langle \psi \rangle$ . Il s'agit de la partie du champ total  $\psi$  qui a résisté au moyennage configurationnel sur les positions des diffuseurs. Cette onde  $\langle \psi \rangle$  a conservé sa direction initiale de propagation ainsi que sa forme : si l'onde incidente est une onde plane, l'onde cohérente sera également une onde plane [62] qui s'écrit de la manière suivante :

$$\langle \psi \rangle = e^{i(kx - \omega t)} \quad (3.1)$$

avec  $k$  le nombre d'onde effectif et  $\omega$  la pulsation de l'onde.

Le nombre d'onde effectif  $k$  est celui du milieu homogène équivalent ayant des propriétés « effectives » (vitesse de phase effective, vitesse de groupe effective et atténuation effective). Dans le cas le plus général, le nombre d'onde effectif  $k$  s'écrit de la manière suivante :

$$k = \frac{\omega}{c_{\text{ph}}} + i\alpha. \quad (3.2)$$

L'expression 3.2 montre que la partie réelle de  $k$  donne des informations sur les célérités de phase et de groupe, respectivement  $c_{\text{ph}} = \omega / \text{Re}(k)$  et  $c_{\text{gr}} = \partial\omega / \partial\text{Re}(k)$ . La partie imaginaire de  $k$  donne, quant à elle, des informations sur la décroissance de l'amplitude de l'onde  $\alpha = \text{Im}(k)$ . La longueur associée à cette atténuation est nommée « libre parcours moyen d'extinction » et est notée  $l_{\text{ext}}$  telle que  $l_{\text{ext}} = 1/2\alpha$ . Grâce à l'utilisation de constituants faiblement absorbants,  $l_{\text{ext}} \approx l_e$ , où  $l_e$  est le libre parcours moyen élastique.

Dans ce chapitre, nous discuterons premièrement de la mesure des propriétés effectives de nos suspensions résonantes. Deuxièmement, nous comparerons ces mesures avec des résultats issus de différents modèles de diffusion multiple dont l'Independent Scattering Approximation (I.S.A), mais également des modèles plus complexes. Bien que ces modèles reposent sur des fortes hypothèses, nous les mettrons à l'épreuve jusqu'à de fortes concentrations ( $\phi \rightarrow 40\%$ ). Nous discuterons également de la prise en compte des corrélations de positions dans les modèles.

La caractérisation du champ cohérent est alors cruciale car elle permet d'accéder au produit  $kl_e$ , paramètre clé du transport du champ incohérent  $\delta\psi$  discuté au chapitre 4.

### 3.1 Caractérisation de l'onde cohérente

Expérimentalement, il existe plusieurs manières d'accéder au champ cohérent. Idéalement, cette mesure doit résulter d'un moyennage sur un très grand nombre de configurations du désordre. En fonction du matériau étudié (béton, bois, milieux bulleux, *etc.*) ce moyennage configurationnel représente un travail important. Il est donc préférable d'utiliser l'hypothèse d'ergodicité du milieu : pour une réalisation donnée, le milieu possède en son sein toutes les configurations du désordre, statistiquement équivalentes au milieu considéré. Ainsi, la moyenne configurationnelle peut être remplacée par une moyenne spatiale [71]. C'est cette dernière méthode que nous utiliserons.

Dans cette section nous détaillerons le dispositif expérimental utilisé pour la mesure de l'onde cohérente  $\langle \psi \rangle$ . Nous détaillerons ensuite la méthode d'extraction du nombre d'onde effectif  $k$  à partir des signaux mesurés.

#### 3.1.1 Dispositif expérimental

Le dispositif utilisé est composé d'une paire de transducteurs ultrasonores disposés en vis à vis. Le transducteur situé en dessous de l'échantillon fonctionne en émission tandis que celui situé au dessus de l'échantillon fonctionne en réception. L'échantillon fluide est confiné dans une cellule en plexiglas permettant ainsi à la suspension d'être en contact direct avec les transducteurs. Afin d'éviter les fuites de gel entre l'émetteur et la cellule, ce dernier est enroulé avec un ruban de téflon à la jonction avec la bague.

La position des transducteurs est contrôlable par un robot. L'émetteur peut ainsi se mouvoir dans le plan horizontal  $(\vec{x}, \vec{y})$  dans l'objectif d'avoir un alignement parfait entre les deux transducteurs. Le récepteur peut quant à lui se translater verticalement (selon l'axe  $\vec{z}$ ) afin de contrôler avec précision ( $\pm 10 \mu\text{m}$ ) la distance  $z$  de propagation de l'onde.

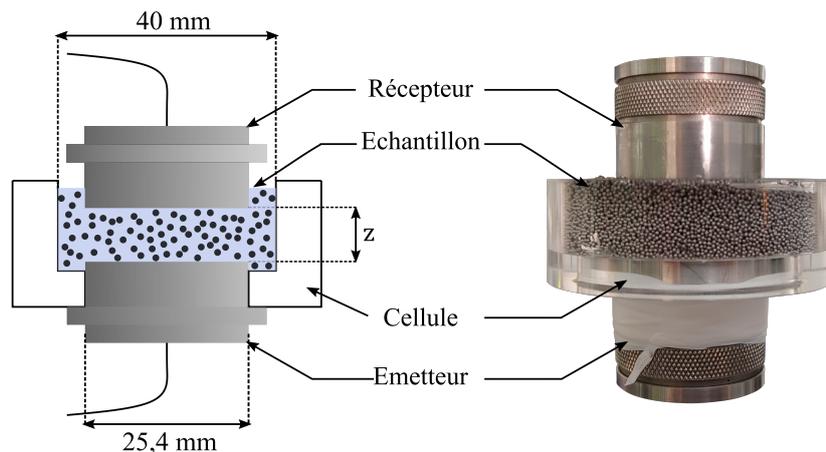


FIGURE 3.1 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la mesure de l'onde cohérente.

Le diamètre des transducteurs (25.4 mm), grand devant la longueur d'onde (inférieure au millimètre pour des fréquences supérieures au MHz) permet l'acquisition du champ cohérent avec un seul tir en profitant d'un moyennage spatial du champ sur la surface du transducteur.

Ici le choix de la distance de propagation est déterminée de la manière suivante : elle doit être assez importante pour que l'onde interagisse avec un grand nombre de diffuseurs mais également pour que les échos générés à l'interface transducteur/échantillon soient bien séparés. Cependant, l'intensité de l'onde cohérente décroît exponentiellement avec la distance de propagation. Les transducteurs ne doivent donc pas être trop éloignés, au risque d'avoir un très faible rapport signal sur bruit. Pour nos échantillons, une distance de propagation comprise entre [4 – 8]mm est suffisante. En effet, dans le cadre de très faibles concentrations  $\phi \approx 3\%$  l'onde aura interagi avec plus de 500 diffuseurs et jusqu'à 8000 pour de très fortes concentrations ( $\phi = 40\%$ ).

Pour les mesures présentées dans ce chapitre, les signaux sont générés avec le pulser Olympus 5077PR. Selon les expériences, une impulsion de 100V ou 200V est envoyée avec une cadence de 100 Hz. Le signal temporel est alors moyenné sur plus de 1000 occurrences. Au laboratoire, nous disposons d'une paire de transducteurs Panametrics A304R ayant un diamètre de 25.4 mm (1"), une fréquence centrale proche de 2.25MHz et une bande passante de 50% à -6dB. Nous disposons également d'une paire de transducteurs Ultrason WS100-5 d'un diamètre de 25.4 mm (1"), de fréquence centrale proche de 5MHz et d'une bande passante de 50% également à -6dB.

Afin de confirmer les données constructeurs, nous avons testé chaque paire de transducteurs. L'émetteur est excité par le générateur d'impulsion qui envoie une brève impulsion électrique dont la durée vaut une demi période, soit  $\sim 0.25\mu\text{s}$  pour le transducteur panametrics et  $\sim 0.1\mu\text{s}$  pour le transducteur Ultrason. La figure 3.2, montre le module de la transformée de Fourier de l'onde qui s'est propagée dans 3 mm de gel pur avec (en noir) les transducteurs Ultrason et (en rouge) les transducteurs Panametrics. Les transducteurs Panametrics sont ainsi adaptés aux expériences pour lesquelles les fréquences d'intérêt sont comprises entre 1 et 3 MHz. Les transducteurs Ultrason sont quant à eux adaptés à une étude large bande et davantage hautes fréquences.

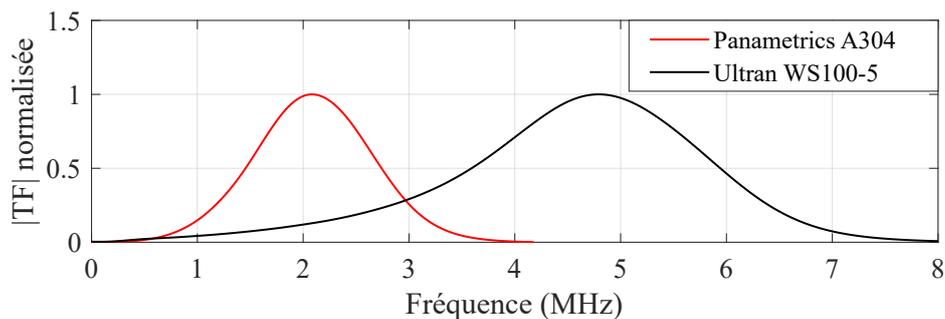


FIGURE 3.2 – Module de la transformée de Fourier normalisée d'une onde qui s'est propagée dans 3 mm de gel pur.

### 3.1.2 Extraction du nombre d'onde effectif

L'extraction expérimentale du nombre d'onde effectif  $k$  s'effectue au travers d'une mesure différentielle, premièrement dans un milieu aux caractéristiques connues (le gel pur), puis dans le milieu à caractériser (l'échantillon).

Nous avons réalisé une première mesure du champ cohérent  $\langle \psi \rangle$  sur un échantillon de quelques

grammes, obtenu après de nombreux essais de production infructueuse. La taille des billes ciblée lors de la fabrication est de  $350\mu\text{m}$ , mais aucune caractérisation précise en taille ( $\langle a \rangle, \sigma$ ) et en forme n'a été effectuée sur cet échantillon à ce stade. Seule la fraction volumique  $\phi = 2.5\%$  est connue. Nous comparons les signaux obtenus dans le gel pur et dans l'échantillon sur la figure 3.3.

Les signaux enregistrés sont « pollués » par le couplage électromagnétique lors de l'émission du signal à  $t \approx 0\mu\text{s}$  (ici très faible). L'écho qui s'est réfléchi sur le récepteur puis sur l'émetteur est visible vers  $15\mu\text{s}$ . Le signal d'intérêt est alors sélectionné en appliquant une fenêtre de Tukey de paramètre 0.25 [72], représentée en rouge sur la figure 3.3.

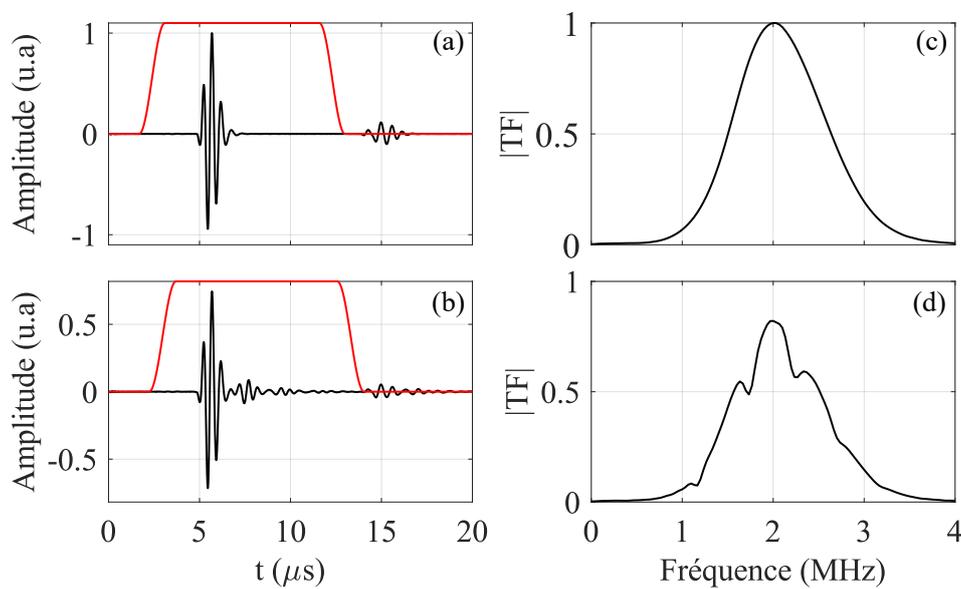


FIGURE 3.3 – Signal temporel (a) (respectivement (b)) et la transformée de Fourier associée (c) (respectivement (d)) pour une onde qui s'est propagée dans du gel pur (respectivement dans une suspension de billes à 2.5%). Les distances de propagation valent  $z = 7\text{ mm}$ .

Après s'être propagée dans 7 mm de gel pur, l'onde est constituée de quelques cycles, et a une durée d'environ  $\sim 2\mu\text{s}$ . Le spectre associé à cette propagation affiche une fréquence centrale à 2 MHz et une largeur de bande passante à mi-hauteur de 50%. En revanche, après s'être propagée dans 7 mm de suspension de billes ( $\phi = 2.5\%$ ), le paquet d'ondes s'est étalé dans le temps, signature d'une dispersion importante. Des fluctuations sont également visibles dans le domaine fréquentiel pour l'onde ayant traversé la suspension (cf figure 3.3(d)). Ces fluctuations sont dues aux résonances locales des billes qui impactent la propagation de l'onde en atténuant son amplitude aux fréquences de résonances, expliquant la présence des creux à certaines fréquences.

Afin d'extraire le nombre d'onde effectif, on donne premièrement l'expression de l'onde qui s'est propagée dans le milieu de référence, indicé "0" :

$$s_0(t, z) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{s}_i(\omega) e^{i(k_0 z - \omega t)} d\omega. \quad (3.3)$$

$k_0$  désigne le nombre d'onde dans la matrice pure,  $z$  la distance de propagation et  $\tilde{s}_i(\omega)$  le contenu fréquentiel de l'onde incidente. De même, dans le cas de la propagation dans le milieu à caractériser :

$$s(t, z) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{s}_i(\omega) e^{i(kz - \omega t)} d\omega, \quad (3.4)$$

où  $k$  est le nombre d'onde effectif.

En passant dans le domaine fréquentiel par application de la transformée de Fourier, nous obtenons :

$$\text{TF}\{s(t, z)\} = \tilde{s}_i(\omega) e^{i \frac{\omega}{c_{\text{ph}}} z} e^{-\alpha z} \quad (3.5)$$

$$\text{TF}\{s_0(t, z)\} = \tilde{s}_i(\omega) e^{i \frac{\omega}{c_0} z} e^{-\alpha_0 z} \quad (3.6)$$

où  $\text{TF}\{s(t, z)\}$  est la transformée de Fourier du signal  $s(t, z)$ .

Ainsi, à partir de ces deux dernières expressions, et en ayant une parfaite connaissance des propriétés acoustiques du milieu de référence (vitesse  $c_0$  et atténuation  $\alpha_0$  connues) ainsi que de la distance de propagation  $z = d$ , nous pouvons remonter aux propriétés acoustiques effectives du milieu à caractériser.

En faisant une division spectrale, nous obtenons l'atténuation effective :

$$\alpha = -\frac{1}{d} \ln \frac{|\text{TF}\{s(t, d)\}|}{|\text{TF}\{s_0(t, d)\}|} + \alpha_0. \quad (3.7)$$

La vitesse de phase  $c_{\text{ph}}$  est quant à elle calculée par une différence de phase :

$$\frac{1}{c_{\text{ph}}} = \frac{\varphi(\omega, d) - \varphi_0(\omega, d) + 2n\pi}{\omega d} + \frac{1}{c_0}, \quad (3.8)$$

où  $\varphi$  est la phase de l'onde cohérente et  $\varphi_0$  la phase de l'onde qui s'est propagée dans le milieu de référence. Numériquement, la différence de phase est calculée modulo  $2\pi$ . Afin de corriger les potentiels déphasages induits par le calcul numérique, nous rajoutons le terme  $2n\pi$  et nous choisissons la valeur de  $n$  pour laquelle la  $\lim_{f \rightarrow +\infty} c_{\text{ph}} = c_0$ .

Enfin la vitesse de groupe est mesurée par différence de temps de vol d'un paquet d'ondes dans l'échantillon et dans le gel pur. Pour étudier la dépendance fréquentielle de  $c_{\text{gr}}$ , un filtre numérique gaussien, centré à la fréquence  $f$  et de largeur  $df$  est appliqué aux signaux. En comparant les temps de propagation des paquets d'ondes filtrés, dans la suspension et dans le gel pur on calcule la vitesse de groupe à la fréquence  $f$  :

$$\frac{1}{c_{\text{gr}}(f)} = \frac{t_{\text{pk}}(f) - t_{\text{pk},0}(f)}{d} + \frac{1}{c_0}. \quad (3.9)$$

où  $t_{\text{pk}}$  (respectivement  $t_{\text{pk},0}$ ) est le temps pour lequel le signal filtré  $s(t, z)$  (respectivement  $s_0(t, z)$ ) présente un maximum d'amplitude. En réitérant le processus pour plusieurs valeurs de  $f$ , nous obtenons l'évolution de la vitesse de groupe en fonction de la fréquence.

La largeur du filtre numérique  $df$  doit être assez étroite afin d'étudier la vitesse de groupe en fonction de la fréquence. En effet, pour une largeur de filtre trop importante, des effets de moyen-

nage fréquentiel peuvent lisser des variations abruptes. De plus, avec un filtre peu sélectif, nous pouvons voir sur la figure 3.4(e), deux paquets d'ondes résultants de leurs propagations à des vitesses différentes. En effet, la figure 3.4 est donnée pour une fréquence de  $f = 1.15$  MHz qui correspond à une fréquence voisine de la résonance quadrupolaire. Or, au voisinage des résonances, la dispersion est très importante, et le filtre choisi ( $df = 100$  kHz) ne permet pas de sélectionner un unique paquet d'ondes. La détection de  $t_{pk}$  n'est plus pertinente, il faut alors utiliser une largeur de filtre nettement inférieure. Les figures 3.4 (c) et (f) correspondent à un filtre  $df = 30$  kHz. Dans ces conditions, le filtre est suffisamment sélectif comme en témoigne l'absence de paquets d'ondes supplémentaires. Les signaux s'étendent sur des durées plus élevées, mais permettent tout de même une mesure précise de  $t_{pk}$ .

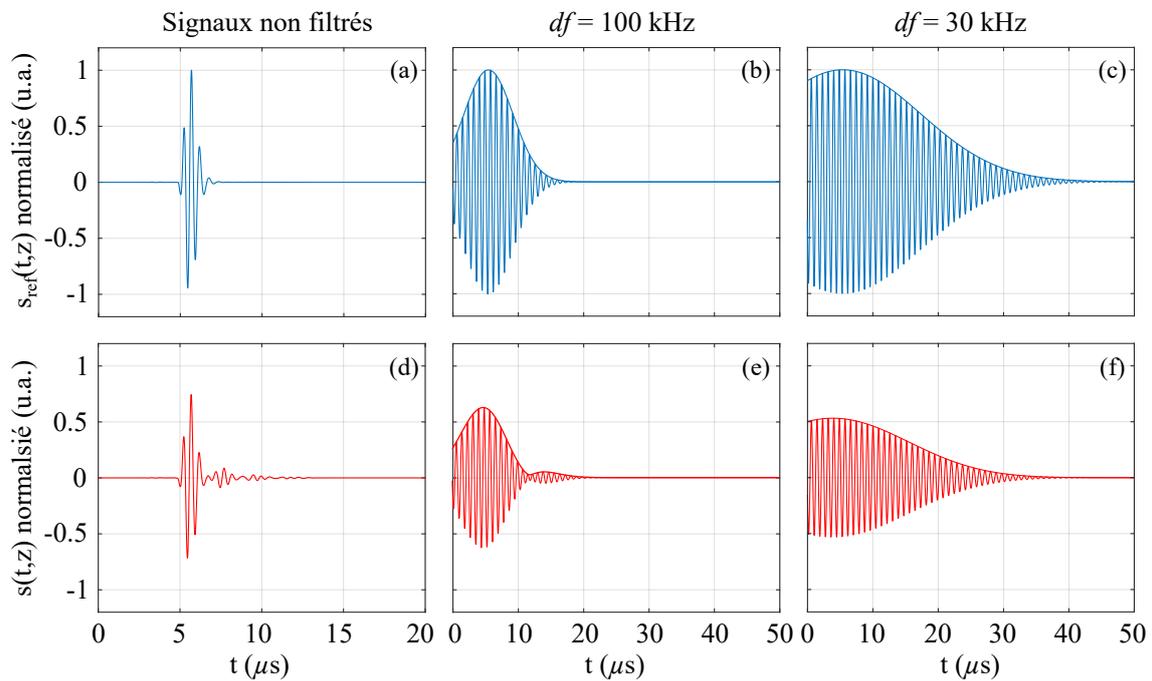


FIGURE 3.4 – Signaux temporels non filtrés  $s_0(t, z)$  en (a) et  $s(t, z)$  en (d). Signaux après filtrage à la fréquence centrale de 1.15 MHz avec une largeur de 100 kHz en (b) et (e) ainsi qu'une largeur de 30 kHz en (c) et (f). La couleur bleue est associée à la propagation dans le gel pur, tandis que la couleur rouge est associée à la propagation dans la suspension de billes.

Les mesures de l'atténuation, de la vitesse de phase et de la vitesse de groupe effectives sont affichées en figure 3.5 en fonction de la fréquence. Tout comme le spectre de l'onde cohérente (figure 3.3 (d)), ces grandeurs présentent de fortes fluctuations aux fréquences de résonances des billes comme en témoignent les pics d'atténuation. Le trait en pointillés sur la figure 3.5 (a) représente l'atténuation mesurée dans le gel pur. L'atténuation de l'onde cohérente est sur toute la gamme de fréquence supérieure à 10 fois celle dans le gel pur alors que la suspension utilisée est composée de  $\phi = 2,5\%$  de diffuseurs uniquement. Pour les fréquences de résonances, ce facteur peut monter jusqu'à 150 pour la première fréquence de résonance à 1.167 MHz.

La vitesse de phase présente des oscillations de l'ordre de 1% autour de la vitesse du son  $c_0$  dans le gel pur (représentée en pointillés sur la figure 3.5 (b) et (c)). Bien que les fluctuations observées sur la vitesse de phase aient une amplitude relativement faible ( $\sim 0.6\%$ ), elles sont

néanmoins très piquées. Ce sont notamment ces variations rapides de la vitesse de phase qui engendrent les valeurs élevées de la vitesse de groupe. Celle-ci présente alors de fortes variations, jusqu'à 30% pour la première résonance.

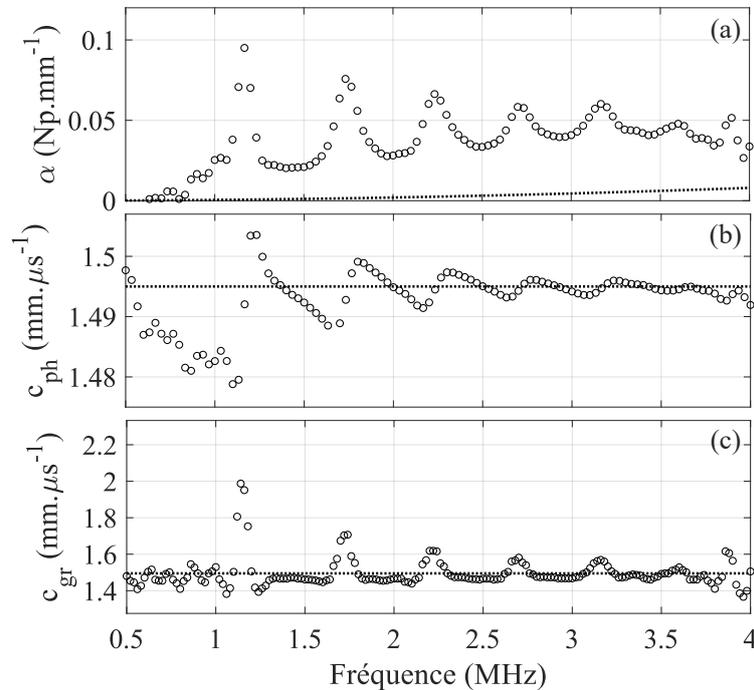


FIGURE 3.5 – (a) Atténuation  $\alpha$ , (b) vitesse de phase  $c_{ph}$  et (c) vitesse de groupe  $c_{gr}$  de l'onde cohérente mesurées dans la suspension de billes. Le trait en pointillés en (a) représente l'atténuation de l'onde se propageant dans le gel pur  $\alpha_0 \times f^2$ . Il représente en (b) et en (c) la vitesse de l'onde mesurée dans le gel pur  $c_0 = 1.495 \text{ mm} \cdot \mu\text{s}^{-1}$ .

Les vitesses de phase et de groupe oscillent autour de la valeur  $c_0$ . Cependant, cette valeur de  $c_0$  dépend des conditions expérimentales (par exemple la température). Aussi, pour faciliter les comparaisons entre les différentes expériences, nous choisirons par la suite d'étudier les vitesses normalisées par la vitesse de référence ( $c_{ph}/c_0$  et  $c_{gr}/c_0$ ).

Cette section a été l'occasion de détailler la méthode d'extraction du nombre d'onde effectif  $k$ , grâce à une mesure différentielle : dans le gel pur et dans la suspension de billes. Une fois de plus, nous montrons que les résonances locales de nos suspensions peuvent fortement impacter la propagation des ondes au sein du milieu. Ces mesures préliminaires valident donc notre choix du résonateur grâce à une atténuation effective  $\alpha$  élevée aux fréquences de résonances, faisant ainsi chuter le libre parcours moyen  $l_e$ .

### 3.2 Confrontation aux modèles de diffusion multiple

La confrontation des résultats expérimentaux aux prédictions issues des modèles de diffusion multiple présente un double intérêt. D'une part elle permet de valider ou de mettre en défaut un modèle de diffusion multiple en y apportant des précisions liées aux méthodes expérimentales (domaine de validité en concentration  $\phi$ , en fréquence ...). D'autre part, elle permet d'identifier

les paramètres structurels de l'échantillon (fraction volumique  $\phi$ , rayon moyen des diffuseurs  $\langle a \rangle$  et dispersion en taille des diffuseurs).

Les modèles théoriques utilisés dans cette thèse donnent une expression du nombre d'onde effectif comme étant le nombre d'onde  $k_0$  dans la matrice auquel viennent s'ajouter des termes perturbatifs en puissance de  $\eta$ , le nombre de diffuseurs par unité de volume :

$$k^2 = k_0^2 + \delta_1 \eta + \delta_2 \eta^2 + \dots O(\eta^2) \quad (3.10)$$

Pour chaque modèle, nous discuterons des hypothèses sous-jacentes et nous établirons leur domaine de validité.

### 3.2.1 Suspensions diluées : modèle d'ordre 1

Pour cette section, nous commençons notre étude en considérant des suspensions faiblement concentrées ( $\eta \ll 1$ ). Dans ces conditions, la recherche du nombre d'onde effectif se limite à l'ordre 1 en  $\eta$ , car le terme en  $\eta^2$  est négligeable.

#### Modèle de Foldy

En 1945 [62], Foldy propose une méthode afin de trouver une expression analytique du nombre d'onde effectif dans un milieu contenant des diffuseurs ponctuels isotropes. Il écrit alors le champ total associé à une réalisation du désordre de la manière suivante :

$$\psi(\vec{r}) = \psi_0 + \sum_j A_j E(\vec{r}, \vec{r}_j) \quad (3.11)$$

où  $\psi_0$  est le champ incident,  $\vec{r}$  est le point d'observation,  $\vec{r}_j$  la position du  $j^{\text{ème}}$  diffuseur et  $A_j$  l'amplitude de l'onde diffusée par le  $j^{\text{ème}}$  diffuseur.  $E(\vec{r}, \vec{r}_j)$  représente la fonction de diffusion de l'onde par le diffuseur situé en  $\vec{r}_j$ . Le diffuseur étant ponctuel,  $E(\vec{r}, \vec{r}_j)$  s'écrit de la manière suivante :

$$E(\vec{r}, \vec{r}_j) = \frac{\exp(-i k_0 |\vec{r} - \vec{r}_j|)}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} \quad (3.12)$$

où  $k_0 = \omega / c_0$  est le nombre d'onde dans la matrice,  $\omega$  la pulsation et  $c_0$  la célérité du son dans la matrice.

L'équation 3.11 est alors établie sans aucune approximation, mais la difficulté porte sur les valeurs encore inconnues des  $A_j$ . En effet, pour connaître l'amplitude de l'onde diffusée par le diffuseur  $j$ , il faut connaître l'amplitude de l'onde qui arrive sur celui-ci, appelée « champ exciteur », notée  $\psi_j$  tel que :

$$A_j = \mathcal{G}(\omega) \psi_j(\vec{r}_j) \quad (3.13)$$

où  $\mathcal{G}(\omega)$  représente le coefficient de diffusion qui dépend des propriétés acoustiques du diffuseur et de la pulsation  $\omega$ .

Ainsi le moyennage configurationnel noté  $\langle \dots \rangle$  de  $\psi(\vec{r})$  donne :

$$\langle \psi(\vec{r}) \rangle = \psi_0 + \int_V \mathcal{G}(\omega) \eta(\vec{r}_j) \langle \psi_j(\vec{r}_j) \rangle_j E(\vec{r}, \vec{r}_j) d\vec{r}_j \quad (3.14)$$

où  $\langle \psi_j(\vec{r}_j) \rangle_j$  représente le champ exciteur moyen au point  $\vec{r}_j$  calculé en l'absence du  $j^{\text{ème}}$  diffuseur et  $\eta(\vec{r})$  est la concentration en diffuseurs dans le voisinage de  $\vec{r}$ . Dans le cas où le milieu est statistiquement homogène,  $\eta(\vec{r}) = \text{cte} = \eta$ .

C'est alors à cette étape qu'intervient l'approximation suivante :

$$\langle \psi_j(\vec{r}_j) \rangle_j = \langle \psi(\vec{r}_j) \rangle. \quad (3.15)$$

L'expression 3.15 signifie alors que le champ moyen total en  $\vec{r}_j$  est directement égal au champ exciteur au diffuseur  $j$  obtenu en l'absence de celui-ci. Autrement dit, le champ moyen total n'est pas perturbé par la présence du diffuseur situé en  $\vec{r}_j$ . Ainsi, les boucles de diffusion récurrentes sont négligées.

En appliquant l'opérateur  $\nabla^2 + k_0^2$  à l'équation 3.14 après application de l'approximation 3.15 on obtient :

$$\nabla^2 \langle \psi(\vec{r}) \rangle + k_0^2 \langle \psi(\vec{r}) \rangle = -4\pi \mathcal{G}(\omega) \eta(\vec{r}) \langle \psi(\vec{r}) \rangle \quad (3.16)$$

En effet,  $(\nabla^2 + k_0^2)E(\vec{r}, \vec{r}_j) = -4\pi\delta(\vec{r} - \vec{r}_j)$  et  $(\nabla^2 + k_0^2)\psi_0 = 0$ .

On peut réécrire l'équation 3.16 de la manière suivante :

$$\nabla^2 \langle \psi(\vec{r}) \rangle + (k_0^2 + 4\pi \mathcal{G}(\omega) \eta(\vec{r})) \langle \psi(\vec{r}) \rangle = 0. \quad (3.17)$$

On en déduit donc le nombre d'onde effectif pour une population de diffuseurs ponctuels et isotropes :

$$k_{\text{Foldy}}^2 = k_0^2 + 4\pi \eta \mathcal{G}(\omega). \quad (3.18)$$

### Independent Scattering Approximation (ISA)

Un modèle généralisé à une population de diffuseurs ponctuels et anisotropes a été développé par Lax en 1951 [73]. Il laisse dans son cas la possibilité d'introduire des corrélations de positions entre les diffuseurs. Afin de prendre en compte ces corrélations, il introduit un facteur  $c$  tel que :

$$c = \frac{\langle \psi_j(\vec{r}) \rangle_j}{\langle \psi(\vec{r}) \rangle} \quad (3.19)$$

où  $\langle \psi(\vec{r}) \rangle$  est le champ moyen total, tandis que  $\langle \psi_j(\vec{r}) \rangle_j$  est le champ exciteur moyen au point  $\vec{r}$ .

Il obtient alors une expression du nombre d'onde effectif :

$$k_{\text{Lax}}^2 = k_0^2 + 4\pi \eta c f(0). \quad (3.20)$$

où  $f(0)$  est la fonction de diffusion d'un unique diffuseur évaluée vers l'avant ( $\theta = 0$ ).

En appliquant l'approximation de Foldy 3.15 à l'équation 3.19, on obtient l'expression du

nombre d'onde effectif sous les hypothèses de l'ISA pour une population de diffuseurs ponctuels et anisotropes :

$$k_{\text{ISA}}^2 = k_0^2 + 4\pi\eta f(0). \quad (3.21)$$

On rappelle que pour des diffuseurs sphériques, la fonction de diffusion vers l'avant  $f(\theta = 0)$  s'exprime comme une somme sur les amplitudes modales  $A_n$  :

$$f(0) = \frac{1}{jk_0} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) A_n. \quad (3.22)$$

De ce fait, c'est par  $f(0)$  que l'ISA tient compte des résonances multipolaires des diffuseurs. On note également que le nombre d'onde effectif  $k$  trouvé par Foldy est un cas particulier du nombre d'onde de l'ISA mais pour le cas d'un diffuseur isotrope (résonance monopolaire  $n = 0$ ) pour lequel la fonction de diffusion  $f(\theta)$  ne dépend pas de l'angle  $\theta$ .

L'expression 3.21 est valable pour une population de diffuseurs identiques. Cependant, nos échantillons présentent une dispersion en taille qui n'est pas prise en compte dans la forme actuelle de l'équation 3.21. Afin d'adapter ce modèle dans le cas polydisperse, nous introduisons une densité de diffuseurs dépendante du rayon  $a$  et notée  $\eta(a)$ . La distribution considérée est une gaussienne de rayon moyen  $\langle a \rangle$  et d'écart-type  $\sigma$  :

$$\eta(a) = \frac{\eta}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(a - \langle a \rangle)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (3.23)$$

où  $\eta$  est le nombre de diffuseurs total (tous rayons  $a$  confondus) par unité de volume :

$$\eta = \frac{\phi}{\int_a \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(a - \langle a \rangle)^2}{2\sigma^2}\right) \times \frac{4}{3}\pi a^3 da}, \quad (3.24)$$

et  $\phi$  la fraction volumique en diffuseurs.

Ainsi pour un échantillon présentant une population polydisperse de diffuseurs, le second terme de l'équation 3.18 est sommé sur toutes les contributions des différents rayons  $a$  et pondéré par la densité de diffuseurs  $\eta(a)$  [59–61] :

$$k^2 = k_0^2 + \int_a 4\pi\eta(a) f(a,0) da. \quad (3.25)$$

L'hypothèse sous-jacente à cette somme sur les rayons  $a$  est forte car les interactions entre les billes de différentes tailles sont négligées (comme en témoigne l'absence de terme de type  $\eta^2(a)$  par exemple).

### Confrontation expérimentale avec l'ISA

Sur la figure 3.6, on compare l'atténuation  $\alpha$ , la vitesse de phase  $c_{\text{ph}}$  et la vitesse de groupe  $c_{\text{gr}}$  effective mesurées avec les prédictions théoriques issues de l'ISA sans dispersion (équation 3.21, trait plein clair) et l'ISA avec la dispersion en taille (équation 3.25, trait discontinu noir).

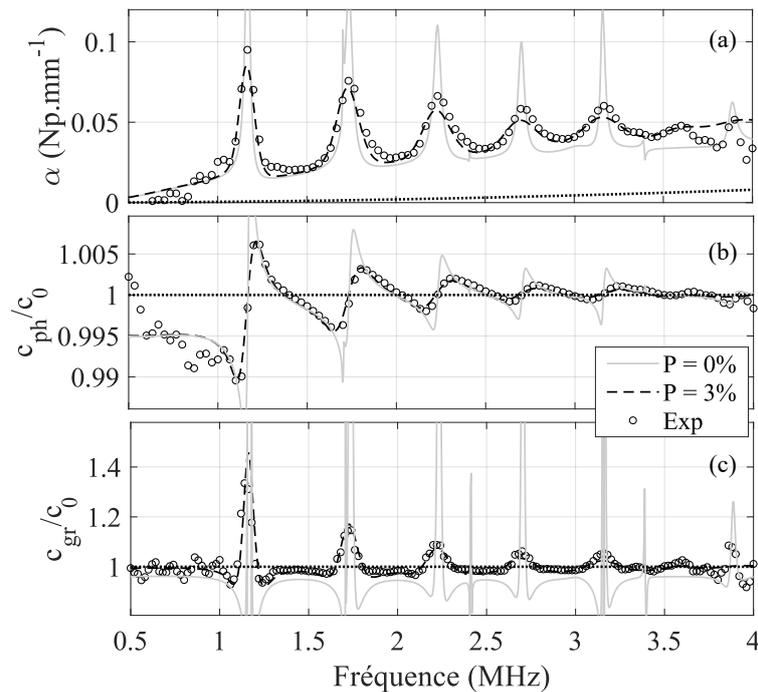


FIGURE 3.6 – (a) Atténuation  $\alpha$ , (b) vitesse de phase  $c_{ph}$  et (c) vitesse de groupe  $c_{gr}$  effective mesurée (o), en comparaison avec l’ISA monodisperse (trait plein clair) et l’ISA polydisperse  $P=3\%$  (trait discontinu noir),  $\langle a \rangle = 355\mu\text{m}$  et  $\phi = 2.5\%$ .

Les localisations des fréquences de résonances sont données par le rayon moyen  $\langle a \rangle$ . En réglant ce paramètre « à la main » afin que les pics prédits par l’ISA coïncident avec les pics mesurés, on trouve un rayon moyen qui vaut  $\langle a \rangle = 355\mu\text{m}$ . La polydispersité va quant à elle fixer le facteur de qualité  $Q_n = f_n/\Delta f_n$  des résonances, où  $\Delta f_n$  est la largeur du pic à la fréquence du mode  $n$ . En effet, on peut voir dans le cas de l’ISA monodisperse que le facteur de qualité  $Q_n$  est largement surestimé pour tout  $n$ . Ainsi, en réglant également à la main la polydispersion  $P = \sigma/\langle a \rangle$ , on trouve une polydispersité  $P = 3\%$  afin d’avoir un accord excellent entre le nombre d’onde effectif mesuré et obtenu dans le cadre de l’ISA polydisperse.

Dans l’objectif d’étudier des milieux concentrés, nous avons eu à produire des billes en plus grandes quantités. Nous avons donc fabriqué deux lots importants de billes : des petites ( $\langle a \rangle = 233\mu\text{m}$ ) et des grosses ( $\langle a \rangle = 349\mu\text{m}$ ). Nous concentrerons notre étude des suspensions concentrées sur les grosses billes puis établirons une comparaison avec les petites billes à la fin de ce chapitre.

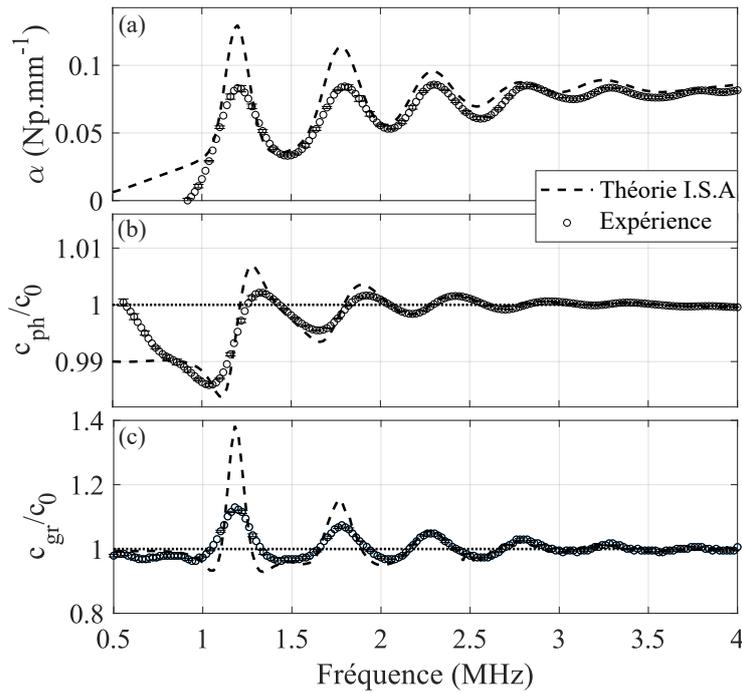


FIGURE 3.7 – (a) Atténuation  $\alpha$ , (b) vitesse de phase  $c_{\text{ph}}$  et (c) vitesse de groupe  $c_{\text{gr}}$  effective mesurée (o), en comparaison avec l’ISA monodisperse (trait plein clair) et l’ISA (trait discontinu noir).  $\langle a \rangle = 349\mu\text{m}$ , polydispersion  $P = 3\%$  et  $\phi = 5\%$ .

Pour une suspension de grosses billes à  $\phi = 5\%$ , l’accord entre les mesures et les valeurs prédites par l’ISA est bon sans être excellent (voir figure 3.7). Ici, une polydispersité  $P = 5\%$  est injectée dans le calcul du nombre d’onde afin d’avoir le meilleur accord entre les mesures et la théorie. Cependant cette valeur de polydispersité est largement supérieure à celle mesurée optiquement estimée à  $P_{\text{opt}} = 2.2\%$  (voir figure 2.14). Cette différence de valeurs pour la polydispersité est imputée à la forme légèrement ellipsoïdale des billes. En effet, au même titre que la « polydispersité en taille » amoindrit les résonances, cette « polydispersité en forme » doit également diminuer l’impact des résonances mais celle-ci n’est pas facile à prendre en compte dans les modèles. De plus, les incertitudes sur les paramètres acoustiques du métal dont l’atténuation intrinsèque qui est ici négligée, ou du gel considéré comme étant non-visqueux sont autant de paramètres qui peuvent expliquer le désaccord entre la théorie et les mesures. Pour bien observer les premières résonances très piquées, un échantillon de très bonne qualité est nécessaire afin d’avoir une correspondance parfaite entre la théorie et l’expérimentation, ce qui n’est pas le cas pour nos échantillons. De ce fait, la gamme de fréquences pour estimer le domaine de validité de l’ISA est  $f \geq 2\text{MHz}$ . Finalement, les incertitudes sont définies comme étant l’écart-type des mesures effectuées aux différentes distances de propagation  $z \in [4 - 8]\text{mm}$  par pas de 1 mm.

### 3.2.2 Suspensions concentrées : modèles d’ordre 2

Dans la suite, nous proposons de confronter les mesures expérimentales dans des suspensions concentrées  $\phi = [10 - 40]\%$  avec divers modèles de diffusion multiple d’ordre 2 en concentration  $\eta$  ainsi que l’ISA.

**Modèle de Waterman et Truell**

Waterman et Truell [63] proposent une expression du nombre d'onde effectif pour une suspension d'objets identiques ponctuels dont la diffusion est anisotrope :

$$\left(\frac{k_{WT}}{k_0}\right)^2 = \left[1 + \frac{2\pi\eta_0 f(0)}{k_0^2}\right]^2 - \left[\frac{2\pi\eta_0 f(\pi)}{k_0^2}\right]^2. \quad (3.26)$$

Afin de prendre en compte l'anisotropie de la diffusion, ils ont initié leurs calculs avec des diffuseurs de tailles finies, de rayon  $a$  avec impossibilité d'interpénétration (ils feront tendre  $a \rightarrow 0$  au cours du développement).

La première étape est centrée sur le calcul du champ exciteur moyen au diffuseur situé en  $\vec{r}_1$  noté  $\langle\psi_1(\vec{r}|\vec{r}_1)\rangle$  connaissant sa position. Ils obtiennent ainsi :

$$\langle\psi_1(\vec{r}|\vec{r}_1)\rangle = \psi_0 + \int \eta(r_j|\vec{r}_1) T(\vec{r}_j) \langle\psi_j(\vec{r}|\vec{r}_j)\rangle d\vec{r}_j - R(\vec{r}|\vec{r}_1). \quad (3.27)$$

où  $T(\vec{r}_j)$  est l'opérateur de diffusion et  $\eta(\vec{r}_j|\vec{r}_1)$  est la concentration conditionnelle en diffuseurs qui comprend l'interdiction d'interpénétration :

$$\eta(\vec{r}_j|\vec{r}_1) = \begin{cases} \eta_0 & \text{si } |\vec{r}_j - \vec{r}_1| > 2a \\ 0 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (3.28)$$

$2a$  est une distance d'exclusion, avec  $a$  le rayon des diffuseurs.  $R(\vec{r}|\vec{r}_1)$  est une correction apportée au cas où les diffuseurs présentent des corrélations de positions.

Les diffuseurs sont des sphères de tailles finies et le champ incident est plan. Le champ  $\langle\psi_1(\vec{r}|\vec{r}_1)\rangle$  est donc cherché sous la forme d'une onde plane développée sur la base d'harmoniques sphériques :

$$\langle\psi_1(\vec{r}|\vec{r}_1)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} a_n A_n^0 e^{ikz_1} j_n(k_0|\vec{r} - \vec{r}_1|) P_n(\cos\theta(\vec{r} - \vec{r}_1)) \quad (3.29)$$

avec  $j_n$  les fonctions de Bessel sphérique de première espèce,  $P_n$  les polynômes de Legendre, les  $a_n$  sont liés à l'onde incidente  $\psi_0$  et les coefficients  $A_n^0$  sont les inconnues du problème.

En substituant ainsi l'expression du champ exciteur (éq.3.29) ainsi que le champ incident  $\psi_0$  (également développé sur la base d'harmoniques sphériques) dans l'équation 3.27, ils obtiennent le système d'équations suivant :

$$A_n^0 = 1 - \frac{2\pi\eta_0(-1)^n}{ik_0^2(k+k_0)} \sum_{j=0}^{\infty} (-1)^j (2j+1) B_j A_j^0 \quad (3.30)$$

C'est notamment à cette étape que le rayon  $a$  des diffuseurs tend vers 0. En identifiant  $f(0)$  et  $f(\pi)$  dans le système 3.30 et en se servant du *théorème d'extinction*, ils obtiennent une écriture explicite du nombre d'onde effectif pour des diffuseurs ponctuels anisotropes d'ordre 2 en  $\eta$  :

$$\left(\frac{k_{WT}}{k_0}\right)^2 = \left[1 + \frac{2\pi\eta_0 f(0)}{k_0^2}\right]^2 - \left[\frac{2\pi\eta_0 f(\pi)}{k_0^2}\right]^2. \quad (3.31)$$

Les fonctions de diffusion  $f(0)$  et  $f(\pi)$  sont données comme suit :

$$f(0) = \frac{1}{ik_0} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1)B_n, \quad (3.32)$$

$$f(\pi) = \frac{1}{ik_0} \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n (2n+1)B_n. \quad (3.33)$$

### Modèle de Fikioris et Waterman

Fikioris et Waterman [64], quant à eux, ont l'objectif de donner l'expression du nombre d'onde effectif  $k$  dans une suspension de diffuseurs sphériques de tailles finies (sans faire tendre  $a \rightarrow 0$ ). Ils posent alors  $b = 2a$ , une distance d'exclusion afin de prendre en compte les corrélations de positions à courte portée entre les diffuseurs. Cependant l'écriture du nombre d'onde effectif pour le modèle de Fikioris et Waterman n'est pas explicite.

La première étape consiste en une recherche d'une expression pour le champ exciteur au diffuseur  $\vec{r}_1$  :

$$\langle \psi_1(\vec{r}|\vec{r}_1) \rangle = \psi_0 + \int \eta(r_j|\vec{r}_1) T(\vec{r}_j) \langle \psi_j(\vec{r}|\vec{r}_j) \rangle d\vec{r}_j. \quad (3.34)$$

De même,  $\eta(\vec{r}_j|\vec{r}_1)$  est la concentration conditionnelle en diffuseurs qui comprend l'interdiction d'interpénétration (équation 3.28). Une solution de  $\langle \psi_1(\vec{r}|\vec{r}_1) \rangle$  est également cherchée sous une forme identique à celle pour Waterman et Truell (éq. 3.29) :

$$\langle \psi_1(\vec{r}|\vec{r}_1) \rangle = \sum_{n=0}^{\infty} a_n A_n^0 e^{ikz_1} j_n(k_0|\vec{r} - \vec{r}_1|) P_n(\cos\theta(\vec{r} - \vec{r}_1)) \quad (3.35)$$

L'expression du champ exciteur (équation 3.35) et du champ incident  $\psi_0$  sont ainsi substituées dans l'équation 3.34. Ils obtiennent ainsi le système d'équations suivant :

$$A_n^0 = \eta_0 \sum_{j=0}^{\infty} (2j+1) B_j A_j^0 \sum_p (-i)^p a(0, j|0, n|p) \times d_p(k_0, k_{FW}|b), \quad (3.36)$$

où

$$d_p(k_0, k_{FW}|b) = -\frac{4\pi b^2}{k_{FW}^2 - k_0^2} i^p [k_0 h'_p(k_0 b) j_p(k_{FW} b) - k_{FW} h_p(k_0 b) j'_p(k_{FW} b)]. \quad (3.37)$$

Ainsi, une solution non-triviale du système d'équations 3.36 existe en annulant le déterminant de la matrice associée nous donnant ainsi le nombre d'onde effectif  $k_{FW}$ . On remarque que c'est au travers du facteur  $d_p(k_0, k_{FW}|b)$  (équation 3.37) que l'information de non interpénétrabilité des diffuseurs est prise en compte.  $d_p(k_0, k_{FW}|b)$  fait en effet apparaître la distance d'exclusion  $b$ .

Cependant, pour cette thèse nous avons préféré une écriture simplifiée et explicite du nombre d'onde donné par Luppé *et al* [74], obtenue dans l'hypothèse des faibles concentrations ( $\eta \ll 1$ ) :

$$k_{FW(L)}^2 = k_0^2 + 4\pi\eta_0 \frac{1}{ik_0} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) A_n - \frac{(4\pi\eta_0)^2}{k_0} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{\nu=0}^{\infty} (-1)^{n+\nu} (2n+1)(2\nu+1) A_n A_\nu Q_{n\nu}(k_0) \quad (3.38)$$

avec

$$Q_{nv}(k_0) = -\frac{i\pi b^2}{2k_0} (-1)^{n+v} \sum_{l=0}^{\infty} G(0, \nu; 0, n; l) \{j_l'(k_0 b)(h_l^{(1)}(k_0 b) + k_0 b h_l^{(1)'}(k_0 b)) + \frac{1}{k_0 b} [(k_0 b)^2 - l(l+1)] j_l(k_0 b) h_l^{(1)}(k_0 b)\}, \quad (3.39)$$

avec  $G(0, \nu; 0, n; l)$ , le nombre de Gaunt.

Ainsi le nombre d'onde (équation 3.38) est ici donné pour de faibles concentrations ( $\eta \ll 1$ ) mais l'interdiction d'interpénétrabilité entre les diffuseurs est conservée dans le terme  $Q_{nv}(k_0)$ . Enfin on remarque par un développement d'ordre 1 en concentration  $\eta$ , qu'on retrouve le nombre d'onde effectif obtenu dans le cadre de l'ISA (équation 3.21).

### Modèle de Lloyd et Berry

Lloyd et Berry [66] ont proposé un nombre d'onde effectif pour un milieu contenant des diffuseurs ponctuels, dont la diffusion est anisotrope :

$$k_{LB}^2 = k_0^2 + 4\pi\eta f(0) + \frac{(4\pi\eta)^2}{4k_0^2} \left[ -f^2(0) + f^2(\pi) - \int_0^\pi \frac{1}{\sin(\theta/2)} \frac{d}{d\theta} \{f(\theta)\} d\theta \right]. \quad (3.40)$$

Le développement qui conduit à cette écriture a été mené au travers de l'approche diagrammatique appliquée à la diffusion par une particule (par exemple un électron) dans un ensemble de diffuseurs (par exemple des atomes).

Le nombre d'onde obtenu fait apparaître la fonction d'onde vers l'avant  $f(0)$  et vers l'arrière  $f(\pi)$  mais a également l'avantage de faire apparaître la fonction de diffusion dans toutes les directions  $f(\theta)$ , particulièrement adaptée dans notre cas.

L'expression utilisée dans cette thèse est celle donnée par Linton et Martin en 2006 [75] simplifiant notamment la prise en compte de la polydispersité dans nos échantillons, mais néanmoins totalement équivalente :

$$k_{LB(LM)}^2 = k_0^2 + \frac{4\pi}{ik_0} \sum_{n,i} (2n+1) \eta(a_i) A_n(a_i) - \frac{1}{2} \left( \frac{4\pi}{k_0} \right)^4 \sum_{n,i} \sum_{\nu,j} \eta(a_i) A_n(a_i) \eta(a_j) A_\nu(a_j) K_{n\nu} \quad (3.41)$$

avec :

$$K_{n\nu} = \frac{\sqrt{(2n+1)(2\nu+1)}}{(4\pi)^{3/2}} \sum_q q \sqrt{2q+1} G(n, 0; \nu, 0; q). \quad (3.42)$$

Dans le développement de Lloyd et Berry, aucune approximation sur la concentration  $\eta$  est faite. Cependant, l'hypothèse des faibles concentrations est nécessaire à Linton et Martin pour retrouver l'expression donnée par Lloyd et Berry  $k_{LB}$ .

### Confrontation aux différents modèles de diffusion multiple

La comparaison entre les différents modèles de diffusion multiple est affichée en figure 3.8. Il apparaît alors qu'aucun des modèles de diffusion multiple ici considéré ne prédit correctement

les propriétés effectives de l'onde moyenne. Le modèle de Fikioris et Waterman et le modèle de Waterman et Truell sont similaires à l'ISA et le modèle de Lloyd et Berry augmente l'impact des résonances et prédit un léger décalage fréquentiel.

Néanmoins, on voit alors que les différents modèles dont l'ISA fonctionnent étonnamment bien pour une fraction volumique de  $\phi = 10\%$ . L'atténuation et la vitesse de phase sont très bien prédites. Pour les concentrations plus élevées, on note que l'atténuation mesurée est plus élevée que celle attendue par les modèles de diffusion multiple. Afin d'écartier les erreurs liées à l'expérimentation, l'augmentation de l'atténuation en fonction de la concentration a été confirmée expérimentalement avec plusieurs mesures indépendantes, réalisées avec deux paires de transducteurs différentes.

Pour la vitesse de phase, l'excellent accord entre les résultats expérimentaux et les valeurs prédites par les différents modèles pour toutes les concentrations est également étonnant mais le désaccord sur la vitesse de groupe aux deux premières fréquences de résonances confirme que l'impact des résonances est clairement diminué par rapport à ce qui est attendu. Pour des concentrations supérieures à 20%, les modèles prédisent même une divergence de la vitesse de groupe. Cette divergence n'est pas observée expérimentalement même si on remarque qu'aux résonances, les barres d'incertitudes sont très importantes.

Bien que les nombres d'ondes effectifs donnés par Fikioris et Waterman (simplifié par Luppé *et al.*) et Lloyd et Berry (réécrite par Linton et Martin) soient plus complexes, ils demeurent tous deux dans le cadre de faibles concentrations ( $\eta \ll 1$ ). En ce qui concerne le modèle de Waterman et Truell, celui-ci a déjà fait preuve de son efficacité pour des milieux présentant uniquement une résonance monopolaire et dipolaire (milieux bulleux [76] ou constitués de billes poreuses [17]) mais semble ne plus fonctionner dans le cas où les résonances sont multipolaires et très piquées [28].

Pour des suspensions très concentrées ( $\phi > 20\%$ ), nous avons montré que les modèles précédents étaient insuffisants. La taille finie des diffuseurs et les corrélations de positions entre les diffuseurs ne sont pas correctement intégrées dans les modèles. En effet, cette condition n'est intégrée ni dans l'ISA, ni dans le modèle de Waterman et Truell, ni dans le modèle de Lloyd et Berry. Elle est cependant correctement prise en compte dans le modèle de Fikioris et Waterman, mais la version utilisée, est uniquement appliquée aux cas des faibles concentrations ( $\eta \ll 1$ ) [74].

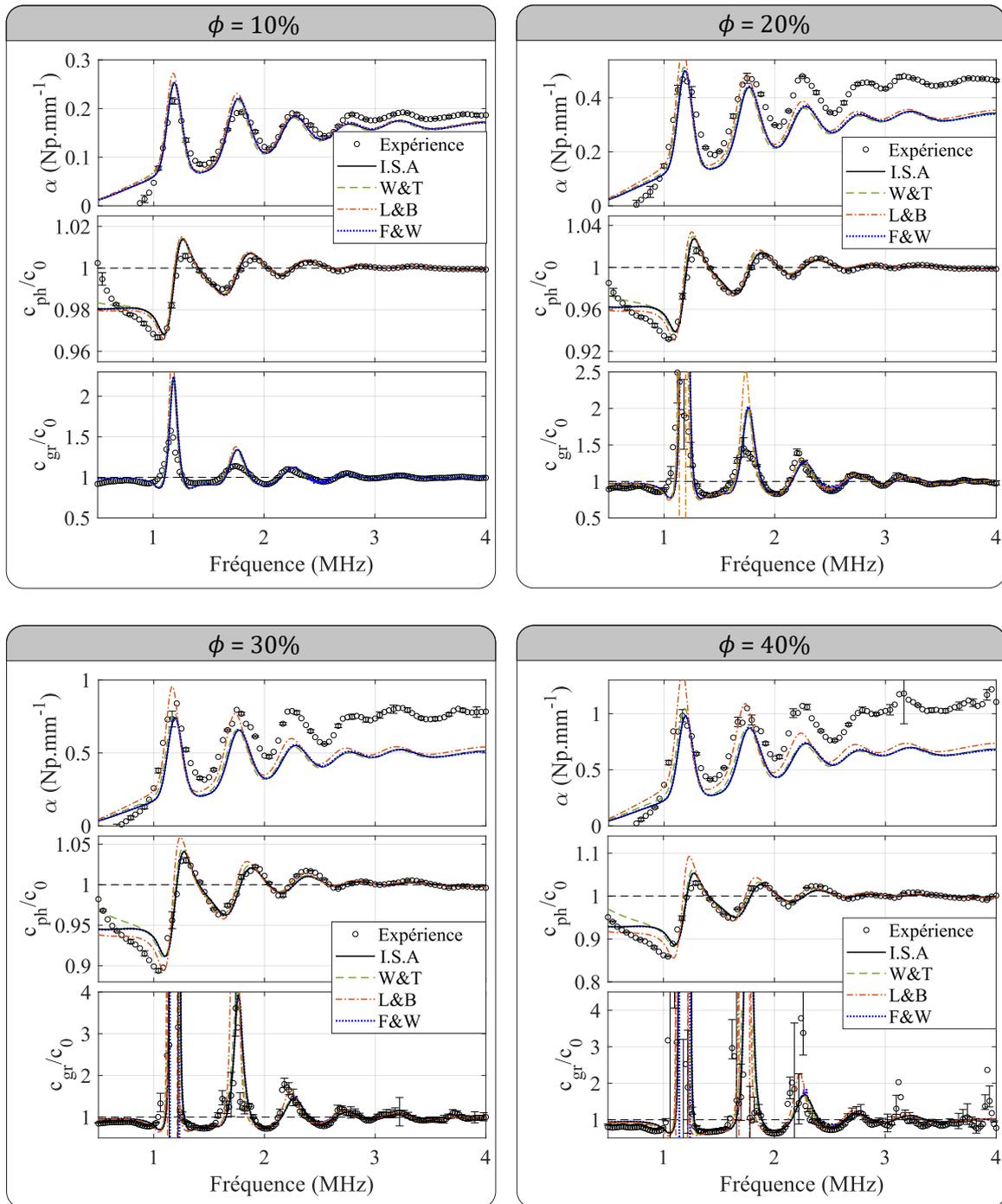


FIGURE 3.8 – Mesures de l'atténuation, de la vitesse de phase et de la vitesse de groupe avec les grosses billes ( $a = 349\mu\text{m}$  ( $P = 5\%$ )) à différentes concentrations ( $\phi = [10-40]\%$ ) en comparaison avec les différents modèles de diffusion multiple considérés.

### 3.3 Intégration des corrélations de positions

L'objectif de cette section est d'intégrer dans l'écriture du nombre d'onde effectif, l'information contenant les corrélations de positions entre les diffuseurs. Le milieu étant purement aléatoire, mais contraint par la taille finie des diffuseurs, on s'attend à ce que les corrélations de positions à courtes portées entre les diffuseurs aient une influence non-négligeable sur la propagation



fuseurs. Expérimentalement, l'extraction de  $g(r)$  est difficile. Elle requière la mesure de la position de chaque diffuseur par des méthodes de type tomographie IR par exemple [79]. Dans les paragraphes suivants, nous utiliserons premièrement la *Hole Correction* (bien qu'elle soit insuffisante). Par la suite, nous reconstruirons « à la main » une fonction de corrélation afin d'étudier l'impact de la complexité de  $g(r)$  sur le nombre d'onde.

### 3.3.2 «Hole Correction»

La première approximation est celle de la *Hole-correction*. Il s'agit simplement d'interdire la condition d'interpénétration des diffuseurs. Comme montré sur la figure 2.17 au chapitre 2, cette approximation n'est plus suffisante pour des suspensions dont la fraction volumique dépasse  $\sim 10\%$ . En effet, la fonction  $g(r)$  voit apparaître un pic à  $r = 2a$ , absent dans l'approximation de la *Hole correction*. Cependant, elle a quand même l'avantage de prendre proprement la condition de non-pénétration des diffuseurs.

Dans un premier temps, nous approximos la fonction de distribution radiale de la manière suivante :

$$g(r) = \begin{cases} 0 & \text{si } r < 2\langle a \rangle \\ 1 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (3.49)$$

Cette approximation n'est pas adaptée à nos échantillons qui sont constitués d'une population polydisperse de billes. Or, la version actuelle de la *Hole Correction* (équation 3.49), interdit aux petites billes ( $a < \langle a \rangle$ ) de se toucher en insérant « artificiellement » un écart entre elles. De la même façon, l'interpénétration n'est pas totalement supprimée pour les plus grosses billes dont le rayon est supérieur au rayon moyen ( $a > \langle a \rangle$ , cf figure 3.9 (b)). Dans l'objectif de remédier à ces limites, nous reconstruisons une version de la *Hole Correction* appliquée aux échantillons polydisperses.

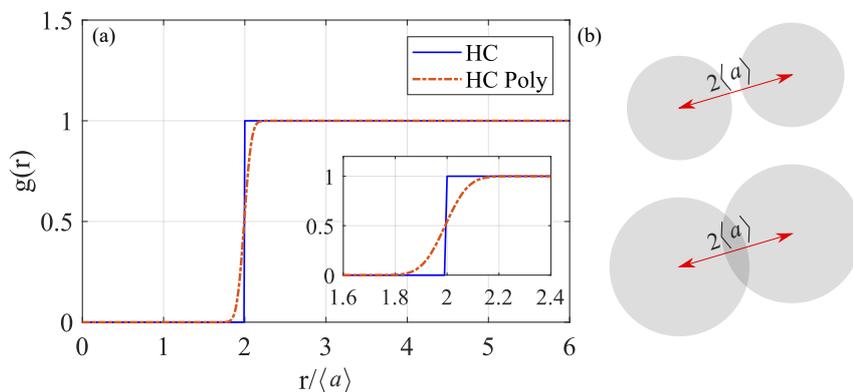


FIGURE 3.9 – (a) Fonction de corrélation de paire dans le cadre de la *Hole Correction* monodisperse (équation 3.49) et dans le cadre de la *Hole Correction* adaptée aux échantillons polydisperses (équation 3.52). (b) Limites de la HC monodisperse appliquée à des échantillons polydisperses.

Pour ce faire, nous récrivons l'expression de la concentration en diffuseurs  $\eta(a)$  (équation

3.23) normalisée par la concentration totale  $\eta$  :

$$\frac{\eta(a)}{\eta} \equiv d(a) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(a-\langle a \rangle)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (3.50)$$

où  $d(a)$  est une densité de probabilité liée à la taille des billes. On souhaite maintenant avoir la densité de probabilité pour la somme des rayons de deux billes choisies aléatoirement, notée  $d_2(a)$ . Connaissant  $d(a)$ , nous pouvons écrire  $d_2(a)$  de la manière suivante :

$$d_2(a) = \int_{-\infty}^{\infty} d(t)d(a-t)dt. \quad (3.51)$$

Enfin, on définit la fonction de distribution radiale, comme étant la probabilité de choisir deux billes dont la somme des rayons est inférieure à  $r$  :

$$g(r) = \int_{-\infty}^r d_2(a)da. \quad (3.52)$$

Ainsi, les deux versions de la *Hole Correction* sont affichées en figure 3.9.

Le modèle de Keller, étant implicite, il est résolu par itérations en initialisant :  $k = k_0$ . Le calcul se termine lorsque l'erreur  $\epsilon(n) < 10^{-30}$ , avec  $n$  le numéro de l'itération, tel que :

$$\epsilon(n) = \sum_m |k(m,n) - k(m,n-1)|^2. \quad (3.53)$$

Avec  $m$ , l'indice duale des fréquences.

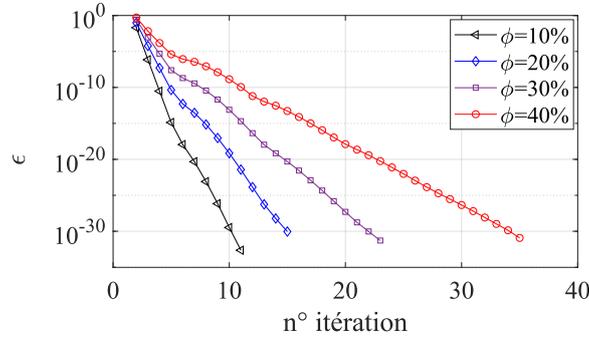


FIGURE 3.10 – Évolution de l'erreur  $\epsilon(n)$  en fonction des itérations.

Le nombre d'onde donné par le modèle de Keller dans le cadre de la *Hole Correction* est comparé au nombre d'onde expérimental sur la figure 3.11. Pour toutes les concentrations, le modèle de Keller associé à la *Hole correction* « pur » (en bleu) est quasiment identique à la *Hole Correction* appliquée aux échantillons polydisperses (en orange). Dans les deux cas, le modèle de Keller surestime l'atténuation pour les deux premières fréquences de résonances. Cependant pour les fréquences  $f \geq 2$  MHz, le modèle apporte une correction remarquable, là où l'ISA sous-estime l'atténuation. Quant aux vitesses de phase et de groupe, le modèle de Keller amplifie les oscillations jusqu'à avoir des discontinuités aux trois premières résonances à  $\phi = 40\%$ .

Ainsi, malgré les fortes hypothèses sous-jacentes à la *Hole correction*, le modèle de Keller ap-

porte des corrections intéressantes qui tendent à confirmer l'importance de la condition de non-interpénétrabilité des diffuseurs. Les désaccords aux premières résonances peuvent être dus au modèle de Keller qui prend mal en considération le caractère multimodal des résonances [80]. S. Durant affirme notamment que l'expression 3.45 est rigoureuse uniquement pour  $\lambda > a$  [78]. De plus, dans le modèle de Keller, les boucles de diffusion récurrentes sont aussi négligées. Cette hypothèse peut être remise en cause pour des suspensions très concentrées telles que  $\phi > 20\%$ .

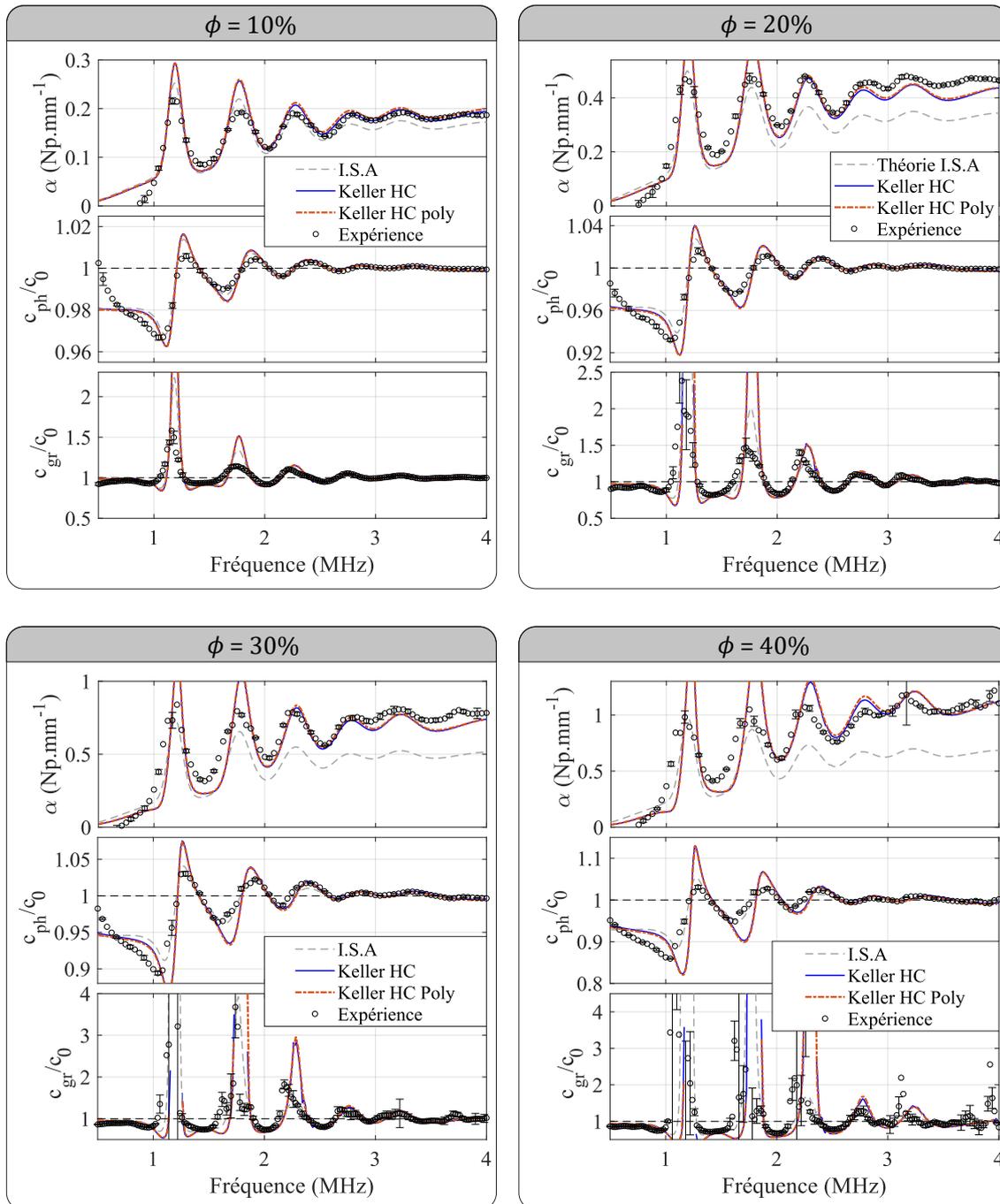


FIGURE 3.11 – Mesures de l'atténuation, de la vitesse de phase et de la vitesse de groupe pour les grosses billes ( $a = 349\mu\text{m}$  ( $P = 5\%$ )) à différentes concentrations ( $\phi = [10 - 40]\%$ ) en comparaison avec le modèle de Keller.

### 3.3.3 Fonction $g(r)$ reconstituée

Dans la section précédente, nous avons mis en évidence l'impact de la condition de non-pénétration des diffuseurs. Cependant comme nous l'avons vu à maintes reprises, les corrélations à courtes portées ne se limitent pas à cette condition d'exclusion pour de fortes concentrations. Elles se manifestent par la présence d'un pic pour  $r = 2a$  et des oscillations de la fonction  $g(r)$  qui s'atténuent progressivement (voir figure 2.17).

Dans l'objectif d'étudier l'impact de  $g(r)$  avec de telles caractéristiques sur le nombre d'onde, nous faisons le choix d'ajouter un terme correctif à la *Hole Correction*. Nous écrivons dans un premier temps la fonction de distribution radiale d'une suspension de billes identiques de rayon  $a$  :

$$g_a(r) = g'_a(r) + g''_a(r) \quad (3.54)$$

où  $g'_a(r)$  le terme similaire à la *Hole Correction* et  $g''_a(r)$  est le produit d'un cosinus  $2a$  périodique et d'une exponentielle décroissante.

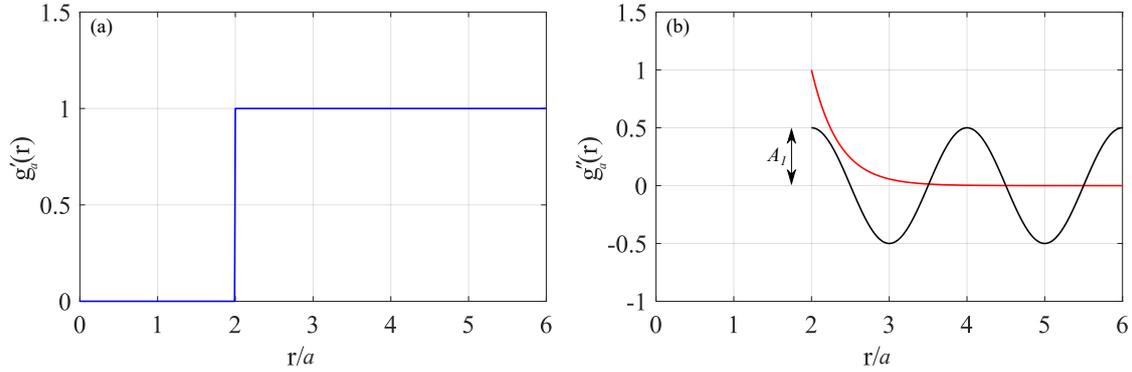


FIGURE 3.12 – Construction de la fonction de corrélation de paire  $g(r)$ .

Ici la vitesse de décroissance de l'exponentielle et l'amplitude d'oscillations du cosinus  $A_1$  sont également choisies de manière arbitraire :

$$g''_a(r) = \begin{cases} 0 & \text{si } r < 2a \\ 3 \cos\left(\pi \frac{r}{a}\right) \exp\left(-\frac{(r/a)-2}{0.35}\right) & \text{sinon.} \end{cases} \quad (3.55)$$

La dernière étape de construction consiste alors à intégrer la dispersion en taille. Pour ce faire, un facteur dépendant de la concentration  $\eta(a)$  pondère la contribution de chaque rayon  $a$  :

$$g(r) = \frac{1}{\sum \eta(a_i)} \sum_{a_i} \eta(a_i) g_{a_i}(r). \quad (3.56)$$

La fonction de distribution radiale associée à 3.56 est affichée en figure 3.13 (noir). Elle met en évidence la présence d'un pic aux environs  $r = 2a$  suivi d'un creux comme prédit par Durant *et al* [69] ainsi que Percus et Yevick [65, 68]. Cependant, la version construite de la fonction  $g(r)$  est ici indépendante de la concentration contrairement à la version donnée en figure 2.17. On rappelle également que la fonction de distribution radiale  $g(r)$  est ici « faite à la main », et n'a

aucunement l'intention de décrire précisément nos échantillons mais a uniquement vocation à étudier l'impact d'une fonction de  $g(r)$  plus sophistiquée sur le nombre d'onde donné par le modèle de Keller.

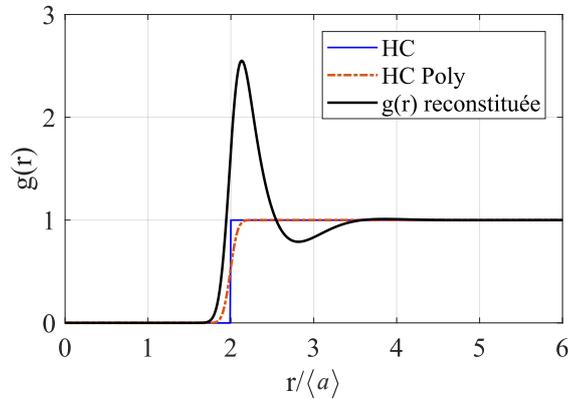


FIGURE 3.13 – Les différentes fonctions de corrélation de paire  $g(r)$  utilisées.

Le nombre d'onde  $k$  issu du modèle de Keller associé à cette version de  $g(r)$  reconstituée est affiché en noir dans la figure 3.15. On voit alors que les résultats entre les deux versions du modèle de Keller sont relativement différents. L'introduction de la fonction  $g(r)$  reconstituée semble atténuer l'impact des résonances pour l'atténuation mais aussi pour les vitesses. L'écart entre les deux modèles de Keller augmente à mesure que la concentration  $\phi$  augmente.

En ce qui concerne la comparaison avec le nombre d'onde mesuré avec les grosses billes, l'accord est remarquable avec la version Keller appliquée à la *Hole Correction* polydisperse, tandis que celle appliquée avec la fonction  $g(r)$  reconstituée sous estime l'atténuation mesurée lorsque la concentration augmente.

Les mesures réalisées avec les petites billes montrent des déformations des pics aux résonances. On note notamment les double-pics sur l'atténuation et la vitesse de groupe pouvant également être dus à une sphéricité imparfaite des billes. La comparaison des atténuations mesurée et prédite montre que le modèle de Keller avec  $g(r)$  reconstitué donne un meilleur accord tandis que Keller HC Poly surestime les mesures.

Ainsi, nous confirmons que la forme de la fonction de distribution radiale  $g(r)$  a un impact non négligeable dans le modèle de Keller. Bien que la *Hole Correction* apporte de bonnes corrections elle demeure néanmoins insuffisante. Une connaissance parfaite de la structure du milieu semble nécessaire afin d'utiliser le modèle de Keller rigoureusement.

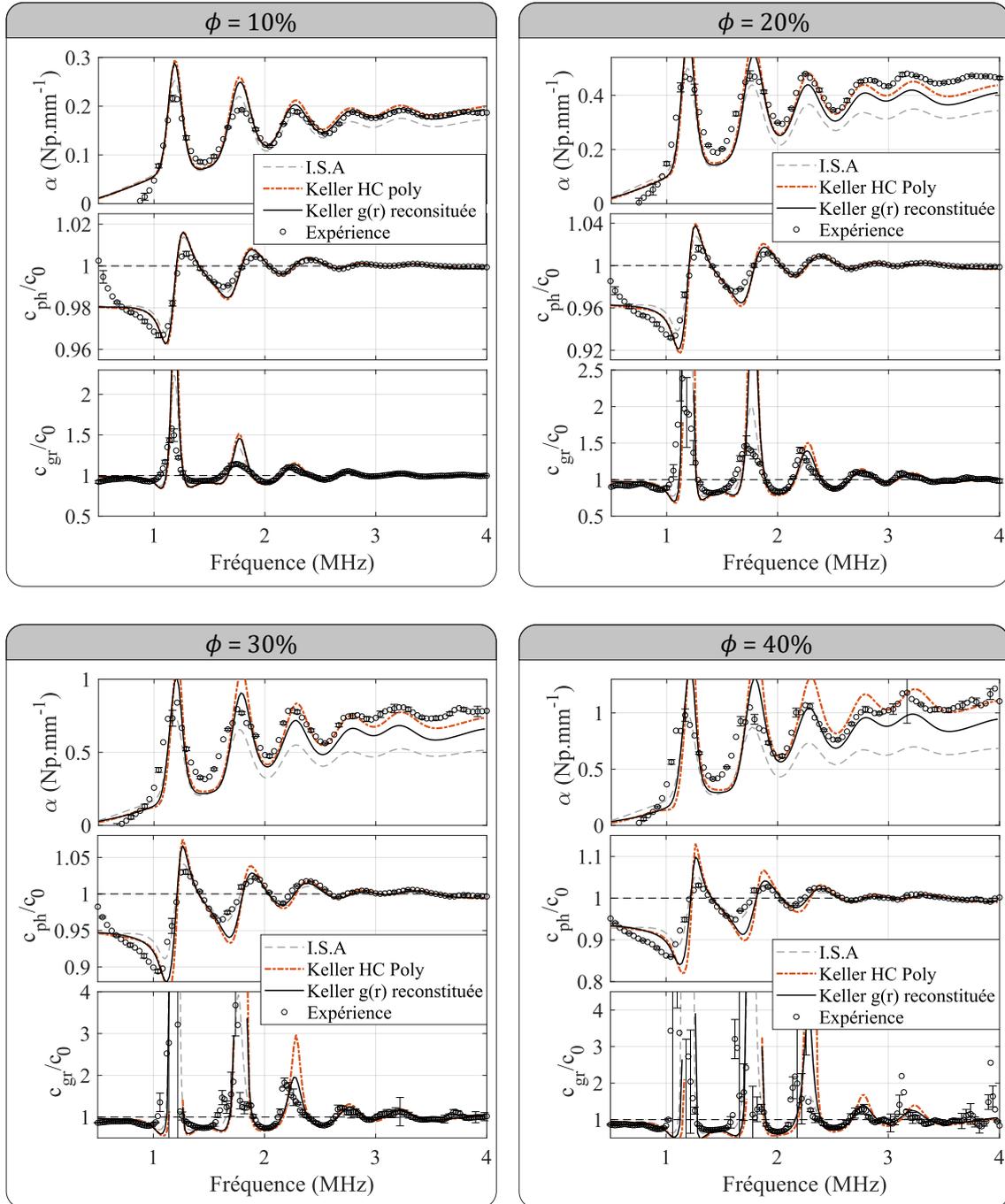


FIGURE 3.14 – Mesures de l'atténuation, de la vitesse de phase et de la vitesse de groupe pour les grosses billes ( $a = 349\mu\text{m}$  ( $P = 5\%$ )) à différentes concentrations ( $\phi = [10 - 40]\%$ ) en comparaison avec le modèle de Keller.

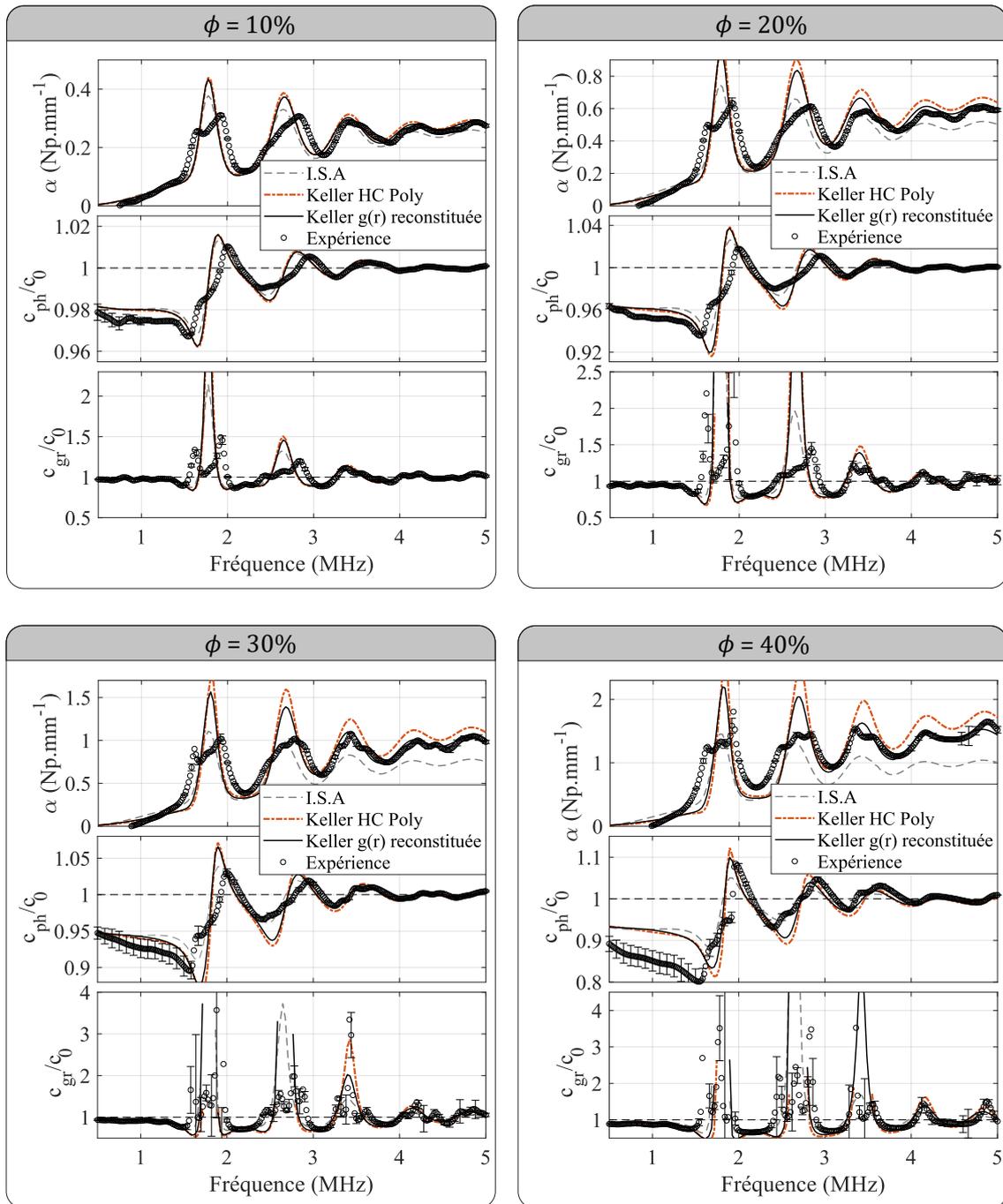


FIGURE 3.15 – Mesures de l'atténuation, de la vitesse de phase et de la vitesse de groupe pour les petites billes ( $a = 233\mu\text{m}$  ( $P = 5\%$ )) à différentes concentrations ( $\phi = [10 - 40]\%$ ) en comparaison avec le modèle de Keller.

### 3.4 Conclusion

Ce chapitre a été consacré à la caractérisation de l'onde cohérente par l'extraction de l'atténuation, de la vitesse de phase et de groupe effectives dans des suspensions diluées ( $\phi < 5\%$ ) mais également concentrées ( $\phi > 20\%$ ). Les comparaisons avec les modèles dans le cadre de l'I.S.A ont ainsi permis d'établir que les hypothèses de milieux dilués sont valables jusqu'à  $\phi \sim 10\%$ . Au-delà, les causes des désaccords entre les mesures et les modèles d'ordre 2 en concentration sont plus difficiles à comprendre. On note tout de même que la sphéricité imparfaite des billes, l'incertitude sur les paramètres acoustiques du métal, ou du gel considéré comme un fluide non visqueux [81, 82], peuvent expliquer ces écarts. Nous avons également démontré l'importance d'intégrer les corrélations de positions entre les diffuseurs avec la fonction de distribution radiale  $g(r)$ .

Dans le chapitre suivant, nous nous intéresserons au transport diffusif des ondes multiplement diffusées, particulièrement dans nos échantillons à  $\phi = 20\%$ . Le nombre d'onde et le produit  $kl_{\text{ext}}$  mesurés pour les petites et les grosses billes sont donc affichées sur la figure 3.16. Pour les valeurs minimales de  $kl_{\text{ext}}$  ( $\approx 5$ ), la longueur d'onde  $\lambda$  est plus petite que le libre parcours moyen élastique  $l_e$ . Bien que le critère de localisation  $kl_e < 1$  ne soit pas rigoureusement respecté dans nos échantillons, nous verrons dans le prochain chapitre que des preuves indiscutables de la localisation d'Anderson ont tout de même été observées pour ces concentrations.

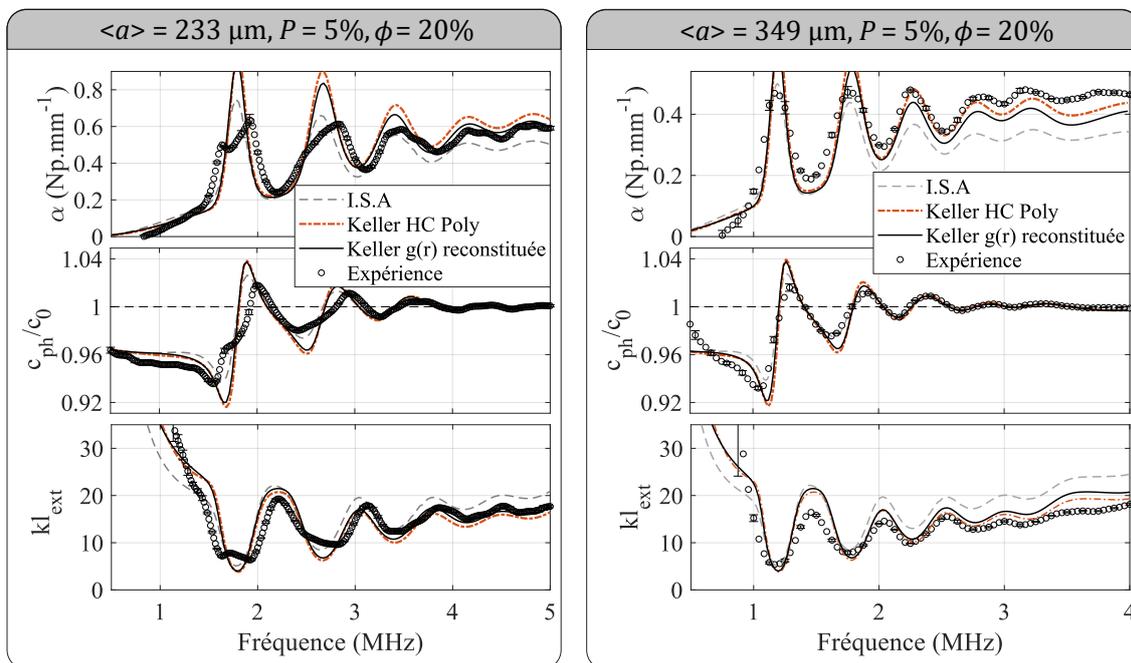


FIGURE 3.16 – Mesures de l'atténuation, de la vitesse de phase et du produit  $kl_{\text{ext}}$  pour  $\phi = 20\%$  avec les petites billes (gauche), et avec les grosses billes (droite), en comparaison avec le modèle de Keller et l'ISA.



## Chapitre 4

# Régimes de transports de l'intensité moyenne

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Caractérisation de l'onde incohérente</b> . . . . .	<b>79</b>
4.1.1	Dispositif expérimental . . . . .	79
4.1.2	Extraction du coefficient de diffusion « effectif » . . . . .	84
<b>4.2</b>	<b>Régime de transport diffusif et sub-diffusif</b> . . . . .	<b>86</b>
4.2.1	Suspensions diluées : approximation de la diffusion . . . . .	86
4.2.2	Suspensions concentrées : régime de sub-diffusion . . . . .	89
<b>4.3</b>	<b>Mise en évidence de la localisation d'Anderson</b> . . . . .	<b>93</b>
4.3.1	Confinement transversale du halo diffusif . . . . .	93
4.3.2	Distribution d'intensité de la figure de <i>speckle</i> . . . . .	100
<b>4.4</b>	<b>Conclusion</b> . . . . .	<b>104</b>

---

## Introduction

Il n'est plus pertinent de parler de propagation pour décrire le transport des ondes incohérentes, sur des distances largement supérieures au libre parcours moyen de diffusion. Dans ce cas, l'équation de transfert radiatif (ETR) est nécessaire pour décrire le transport de l'intensité moyenne  $\langle |\delta\psi|^2 \rangle$ , qui devient diffusif pour des distances grandes devant  $l^*$  (au sens diffusion de la chaleur).

Le transport diffusif peut être caractérisé par la vitesse de transport de l'intensité  $v_e$  qui est définie dans l'équation du transfert radiatif. Elle est naturellement liée au coefficient de diffusion  $D$  qui apparaît quant à lui dans l'équation de la diffusion. Il s'exprime en unité de surface par unité de temps (typiquement  $\text{mm}^2 \cdot \mu\text{s}^{-1}$ ) et traduit ainsi une vitesse d'étalement d'énergie dans le milieu.

$$v_e = \frac{3D}{l^*}. \quad (4.1)$$

Dans ce dernier chapitre, nous caractériserons dans un premier temps le transport de l'intensité incohérente par l'extraction expérimentale du coefficient de diffusion  $D$  dont nous déduirons la vitesse de transport  $v_e$  dans des suspensions de billes diluées puis dans des suspensions concentrées. Dans les deux cas, nous confronterons les résultats expérimentaux à l'approximation de la diffusion. Dans un deuxième temps, nous mettrons en évidence le ralentissement du processus de diffusion se traduisant par une déviation au régime conventionnel de diffusion, en particulier à la première résonance qui est la plus piquée. Enfin, nous mettrons en évidence le phénomène de localisation d'Anderson à travers plusieurs expériences complémentaires basées sur le confinement du halo diffusif et la statistique « non-gaussienne » du *speckle* acoustique.

## 4.1 Caractérisation de l'onde incohérente

Pour caractériser le transport du champ incohérent, nous avons eu recours à un dispositif expérimental qui consiste à générer dans l'échantillon, une source impulsionnelle et ponctuelle afin d'étudier l'étalement de l'intensité moyenne  $\langle |\delta\psi|^2 \rangle$  au cours du temps. Selon les fréquences, l'intensité s'étale à des vitesses différentes, ce qui nous permet d'accéder directement au coefficient de diffusion en fonction de la fréquence  $D(f)$ . Pour ce faire, nous utilisons un dispositif expérimental résolu en temps et en espace dont nous présentons le principe au paragraphe suivant.

### 4.1.1 Dispositif expérimental

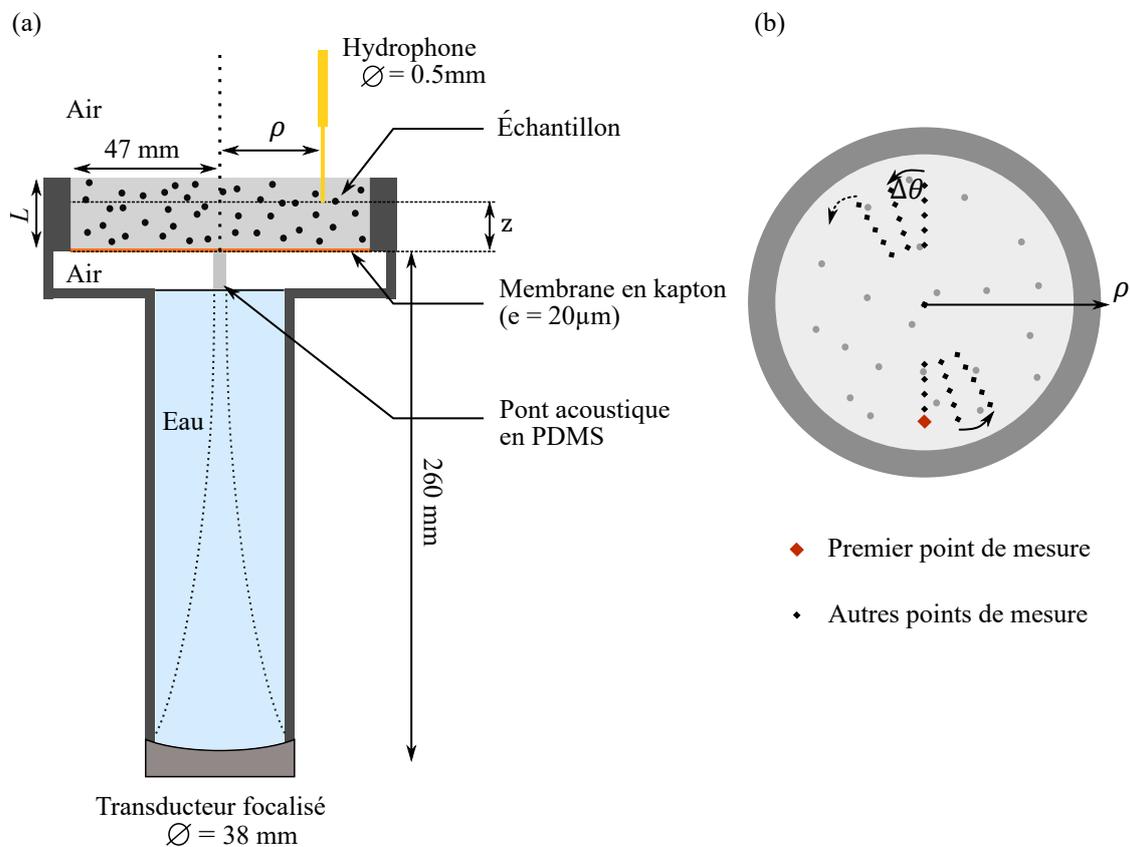


FIGURE 4.1 – (a) Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation de l'onde incohérente. (b) Trois premières lignes du « chemin d'acquisition » permettant le moyennage configurationnel de  $\delta\psi$ .

L'expérience de caractérisation du champ incohérent consiste à étudier l'étalement transversal du halo de diffusion [28]. Pour ce faire, nous disposons notre échantillon dans un réservoir cylindrique de diamètre  $\varnothing = 94 \text{ mm}$  et d'épaisseur  $L$  pouvant atteindre 26mm (donc  $L < \varnothing$ ). La source ponctuelle est située en dessous de l'échantillon dans le plan  $z = 0 \text{ mm}$ . La nature ponctuelle de la source est assurée par l'utilisation d'un transducteur à surface active incurvée Olympus V395 d'un diamètre de 38 mm (1.5"), de focale  $F = 254 \text{ mm}$  et dont la fréquence centrale vaut 2.25 MHz. Les lobes secondaires générés lors de la focalisations sont alors supprimés grâce à une lame d'air située entre l'échantillon et la colonne d'eau située au dessus du transducteur. L'éner-

gie contenue dans le lobe principal est quant à elle transmise à l'échantillon grâce à un pont acoustique en PDMS de petites dimensions (diamètre de 3 mm).

Pour tester l'efficacité de ce pont acoustique, nous avons premièrement caractérisé le transducteur immergé dans un aquarium de grandes dimensions rempli d'eau. L'onde incidente se propage dans la direction  $\vec{z}$  et est constituée de 5 cycles apodisés par une gaussienne, dont la fréquence centrale vaut 2.25 MHz. Nous avons scanné une zone de 46 mm  $\times$  90 mm dans le plan  $(\vec{y}, \vec{z})$  avec un pas de 0.4 mm. L'intensité du champ dans ce plan est donné en figure 4.2. La mesure de l'intensité sur la ligne discontinue verticale (respectivement horizontale) est affichée en figure 4.2(b) (respectivement sur la figure 4.2(c)). L'utilisation d'un transducteur d'un tel diamètre ( $\varnothing = 38$  mm) pour une distance focale aussi grande ( $F = 254$  mm) a l'avantage d'avoir une profondeur de champ très grande ( $7\lambda(F/D)^2 = 208$  mm à -6dB) ce qui permet d'avoir moins de contraintes lors de la mise en place du dispositif, notamment sur la longueur de la ligne à retard. Cependant, comme le met en évidence la figure 4.2(c), la largeur transversale du faisceau focalisé est importante devant la longueur d'onde. Elle vaut 6.8 mm à -6dB, ce qui représente  $10\lambda$  pour une fréquence de 2.25 MHz. De plus les lobes secondaires, ne sont pas négligeables, et risquent d'introduire de l'énergie sur tout le plan situé en  $z = 0$  mm ce qui n'est pas souhaitable pour notre étude. C'est pour cette raison qu'une lame d'air est présente entre la ligne à retard et l'échantillon.

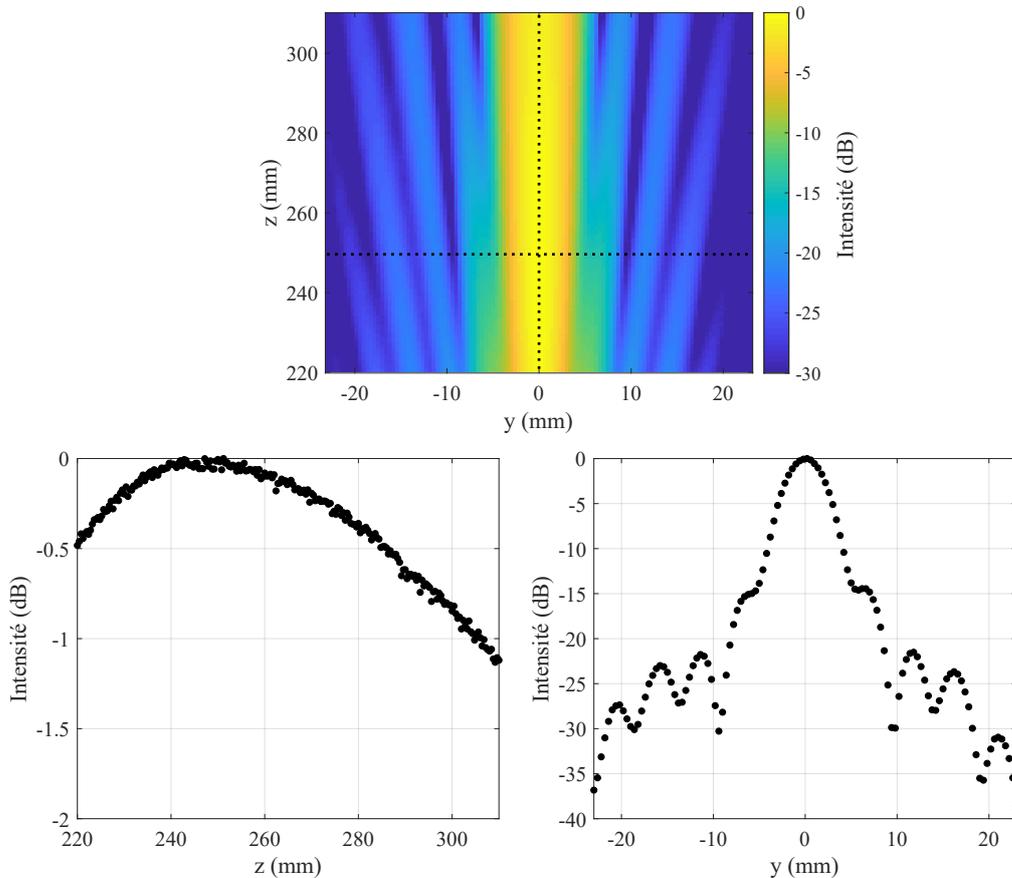


FIGURE 4.2 – Caractérisation du transducteur focalisé en espace libre.

L'impact de la présence du pont acoustique a été testé dans la configuration expérimentale vi-

sible en figure 4.1. Les acquisitions ont été réalisées dans le plan  $z \approx 0.5$  mm. La figure 4.3 montre alors une largeur transversale de 1.2 mm à -6dB. À 2.25 MHz la largeur de la source est alors de  $2\lambda$  et peut alors être considérée comme quasi-punctuelle. Le choix d'un pont acoustique en PDMS a été justifié par la nécessité d'avoir un matériau dont l'impédance acoustique est proche de celle de l'eau afin de limiter la réflexion à l'interface eau/pont ( $Z_{\text{PDMS}}/Z_{\text{eau}} = 0.7$ ). Le PDMS est également facilement manipulable ce qui permet de lui donner les dimensions souhaitées. Ici le pont acoustique choisi a un diamètre de 3 mm et une hauteur de 5 mm.

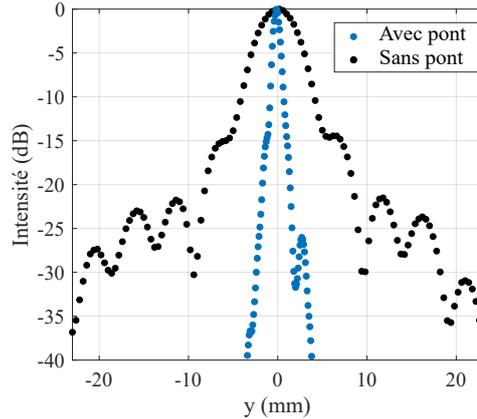


FIGURE 4.3 – Effet du pont acoustique sur la transmission acoustique dans la cellule remplie d'eau.

Grâce à l'utilisation d'une matrice aqueuse, l'acquisition des signaux s'effectue directement à l'intérieur de l'échantillon dans un plan situé à une distance  $z$  du plan contenant la source. Contrairement au dispositif expérimental précédent utilisé pour la caractérisation du champ cohérent, la mesure doit être effectuée de manière ponctuelle. En effet, l'utilisation d'un transducteur à large surface active avait pour conséquence de moyenner les fluctuations spatiales du champ, et donc de supprimer les contributions de l'onde incohérente lors de l'acquisition. Ainsi, nous utilisons un hydrophone Precision Acoustic de petites dimensions dont le diamètre est  $\varnothing = 0.5$  mm comparable à la longueur d'onde qui vaut 0.67 mm à 2.25 MHz, permettant de considérer la mesure du champ transmis comme ponctuelle.

L'axe vertical passant par le centre de l'échantillon est confondu avec l'axe de symétrie du dispositif qui sera mis à profit pour effectuer le moyennage configurationnel. De part la symétrie de révolution, les coordonnées cylindriques  $(\rho, \theta, z)$  sont adaptées à la description du système. L'intensité moyenne  $\langle |\delta\psi(\rho, t)|^2 \rangle$  sera obtenue par plusieurs acquisitions sur un cercle de rayon  $\rho$  :

$$\langle |\delta\psi(\rho, t)|^2 \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |\delta\psi(\rho, \theta_i, t)|^2 \quad (4.2)$$

En pratique, le chemin d'acquisition permettant le moyennage configurationnel ne dessine pas un cercle autour de l'axe de révolution du dispositif, mais des lignes en différentes valeurs de  $\rho$ , passant à chaque fois par le centre situé en  $\rho = 0$  mm (voir figure 4.1(b)). Entre chaque ligne, une petite rotation de  $\Delta\theta$  est effectuée, ce qui permet de sonder une nouvelle configuration du désordre.

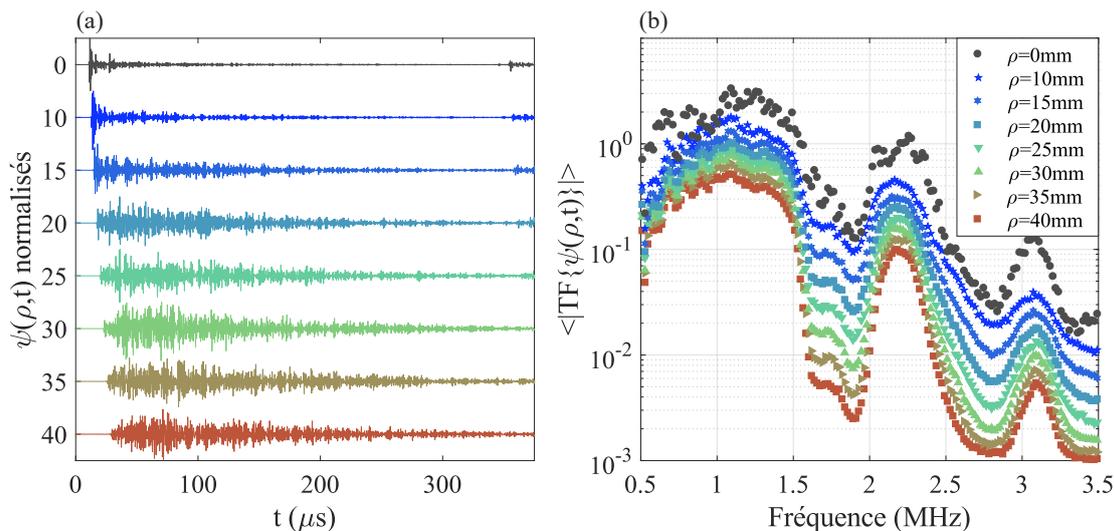


FIGURE 4.4 – (a) Signaux  $\psi(\rho, t)$  pour différents  $\rho$  variant de 0 à 40 mm en fonction du temps mesuré dans une suspension diluée de petites billes. (b) Transformées de Fourier (TF) de  $\psi(\rho, t)$  moyennées sur 400 configurations du désordre pour plusieurs rayons  $\rho$ .

Le signal incident est composé de quelques cycles (typiquement 5) apodisés par une gaussienne, dont la fréquence centrale est définie par la première résonance des billes (ici 1.8 MHz). La figure 4.4(a) montre des signaux enregistrés pour différentes distances transversales  $\rho$ . On remarque que les signaux ont une durée 100 fois supérieure à l'onde incidente. Ces longs signaux sont appelés *codas* de diffusion multiple et sont la signature des nombreuses séquences de diffusion au sein de l'échantillon. De ce fait, plus le signal dure longtemps, plus il aura interagi avec un grand nombre de diffuseurs.

Pour des faibles  $\rho$  (par exemple  $\rho = 0$  mm), la première arrivée est constituée d'un petit paquet d'ondes de forte amplitude, suivi d'un long signal de plus faible amplitude. Il s'agit de l'onde balistique, qui s'est propagée de manière rectiligne et dont l'amplitude est largement supérieure à celle des fluctuations incohérentes  $\delta\psi$ . On distingue également à  $t \sim 350\mu\text{s}$  un signal non négligeable. Il s'agit de l'onde réfléchiée sur la lame d'air et qui a effectué un aller-retour supplémentaire dans la ligne à retard avant de rentrer dans l'échantillon. Il est évident que ce signal va « polluer » les *codas* et que la durée d'observation des expériences sera donc limitée à  $350\mu\text{s}$ . Enfin, lorsque  $\rho$  augmente, l'amplitude de l'onde balistique diminue au profit des ondes incohérentes.

La figure 4.4(b) représente le module de la transformée de Fourier du champ moyenné sur les  $N = 400$  configurations du désordre. On retrouve ainsi des creux aux fréquences de résonances, tout comme dans le spectre de l'onde cohérente vu au chapitre 3. On remarque également que le spectre pour  $\rho = 0$  mm présente des fluctuations rapides en raison d'un moyennage configurationnel moins efficace.

Expérimentalement, le champ mesuré au point  $\vec{r}$  est le champ total  $\psi(\vec{r}, t)$ . Afin d'accéder au champ incohérent  $\delta\psi$ , il faut soustraire la contribution de l'onde cohérente. Cependant, l'extraction de cette dernière est délicate car les signaux n'arrivent pas tous au même instant  $t$ , comme le montre la figure 4.5. Ce léger décalage, noté  $\tau_0$ , est attribué à des temps de propagation différents dans la ligne à retard qui sont probablement dus aux légères variations de température se

produisant au cours des expériences qui peuvent durer plusieurs jours.

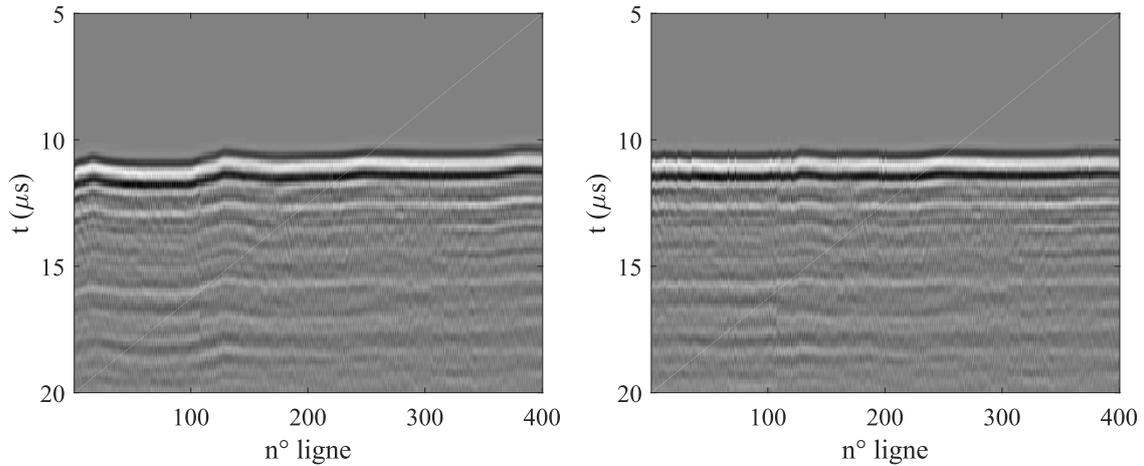


FIGURE 4.5 – À gauche :  $\psi(\rho = 0 \text{ mm}, t)$  sans recalage temporel . À droite : après recalage temporel.

Afin de recalcr les signaux temporels, le décalage  $\tau_0$  est recherché à l'aide d'une fonction d'auto-corrélation :

$$R_{\psi_1 \psi_n}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \psi_1(t) \psi_n(t - \tau) dt. \quad (4.3)$$

$\psi_1$  est la première acquisition servant de référence. Le champ  $\psi_n$  est le champ enregistré sur la  $n^{\text{ème}}$  ligne. Le décalage  $\tau_0$  est donc trouvé en cherchant le maximum de  $R_{\psi_1 \psi_n}(\tau)$  dont l'effet est illustré en figure 4.5.

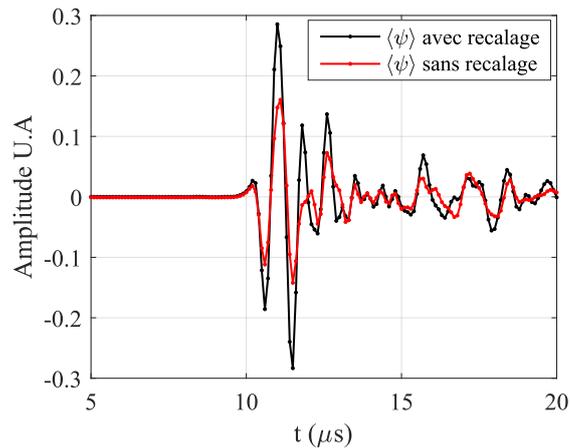


FIGURE 4.6 – Champ cohérent  $\langle \psi(\rho = 0, t) \rangle$  sans recalage temporel (rouge) et avec recalage temporel (noir) pour la distance transversale  $\rho = 0 \text{ mm}$ .

La figure 4.6 montre le champ moyen avec et sans recalage. On remarque alors que le champ moyen obtenu avec un recalage temporel des signaux possède une plus grande amplitude. Sans le recalage, l'onde cohérente est alors sous estimée, et le champ obtenu après soustraction aura toujours un résidu d'onde cohérente.

### 4.1.2 Extraction du coefficient de diffusion « effectif »

La méthode d'extraction du coefficient de diffusion [33] est basée sur l'approximation de la diffusion (cf Chapitre 1). Dans le régime diffusif, l'intensité moyenne  $I(\rho, t)$  est solution d'une équation de diffusion, au sens diffusion de la chaleur, et le coefficient de diffusion est une grandeur intrinsèque au milieu et indépendante du lieu d'observation. Dans un milieu infini sans absorption :

$$I(\rho, t) = \frac{I_0}{(4\pi Dt)^{3/2}} \exp\left(-\frac{\rho^2 + z^2}{w^2(t)}\right), \quad (4.4)$$

où l'intensité moyenne  $I(\rho, t) = \langle |\delta\psi(\rho, z, t)|^2 \rangle$  et  $w(t) = \sqrt{4Dt}$  est l'extension latérale du halo diffusif dépendant du coefficient de diffusion  $D$ . Pour des acquisitions effectuées dans un même plan  $z$ , le rapport des intensités hors d'axe et sur l'axe donne :

$$\frac{I(\rho, t)}{I(\rho = 0, t)} = \exp\left(-\frac{\rho^2}{w^2(t)}\right). \quad (4.5)$$

Le rapport des intensités prend alors la forme d'une fonction gaussienne en régime diffusif, dont l'extension latérale est caractérisée par  $w(t)$ . On note que ce résultat est valide, même en présence d'absorption et pour un échantillon de taille finie [33]. En isolant  $w^2(t)$  dans l'équation 4.5 on retrouve ainsi le coefficient  $D$  :

$$w^2(t) = -\rho^2 \left[ \ln\left(\frac{I(\rho, t)}{I(\rho = 0, t)}\right) \right]^{-1} = 4Dt. \quad (4.6)$$

Nous avons fait une première extraction de  $D$  « effectif » sur un échantillon à  $\phi = 6.5\%$  constitué de petites billes ( $\langle a \rangle = 233 \mu\text{m}$ ). Le terme « effectif » fait donc référence à la méthode d'extraction de  $D$  pour laquelle une régression linéaire en fonction du temps est effectuée sans vérification préalable de la validité de l'approximation de la diffusion. Sur la figure 4.7 nous voyons les intensités moyennes enregistrées dans le plan  $z = 15 \text{ mm}$  pour différentes valeurs de  $\rho$  et pour deux fréquences différentes ( $L = 26 \text{ mm}$ ). L'étude fréquentielle, s'effectue en appliquant préalablement sur chaque signal un filtre numérique gaussien de largeur  $df = 50 \text{ kHz}$  à mi-hauteur, autour de la fréquence choisie.

À 1.4 MHz, il est intéressant de voir que la dynamique d'étalement des ondes multiples diffusées permet de distinguer deux régimes de transport particuliers :

- Le premier régime est caractérisé par l'évolution linéaire des  $w^2(t)$  au cours du temps. Ce régime est prédit dans le régime diffusif où la pente des  $w^2$  donne le coefficient de diffusion  $w^2 = 4Dt$ .
- Le deuxième régime est quant à lui caractérisé par une stagnation de l'étalement du halo de diffusion. Un « plateau » apparaît pour  $w^2(t) \approx 2.5L^2$ . Cet effet est dû à la taille finie de l'échantillon. L'onde atteint les bords de la cellule et le halo de diffusion ne s'étale plus. Expérimentalement la largeur du halo de diffusion vaut  $w(t) = 41.1 \text{ mm}$  ce qui correspond approximativement au rayon de l'échantillon.

En dehors de la résonance, le transport des ondes est alors rapide, et les effets de confinement

géométrique se font vite sentir et débutent à  $t \approx 100\mu\text{s}$ . Le rapport des intensités hors d'axe et sur l'axe est aussi proche de l'unité rendant l'extraction des  $w^2$  difficile et expliquant les fortes fluctuations observées pour les plus faibles valeurs de  $\rho$ . En revanche, la pente des  $w^2(t)$  est très faible pour des fréquences proches des résonances (par exemple  $f = 1.8\text{MHz}$ ) indiquant que celles-ci ralentissent l'étalement du halo diffusif. Ce ralentissement est tel que les ondes multiples diffusées n'atteignent pas les bords de l'échantillon sur la gamme de temps considérée. Cependant, à ces fréquences la décroissance de l'intensité des ondes est largement plus rapide, et les signaux atteignent très vite le niveau de bruit.

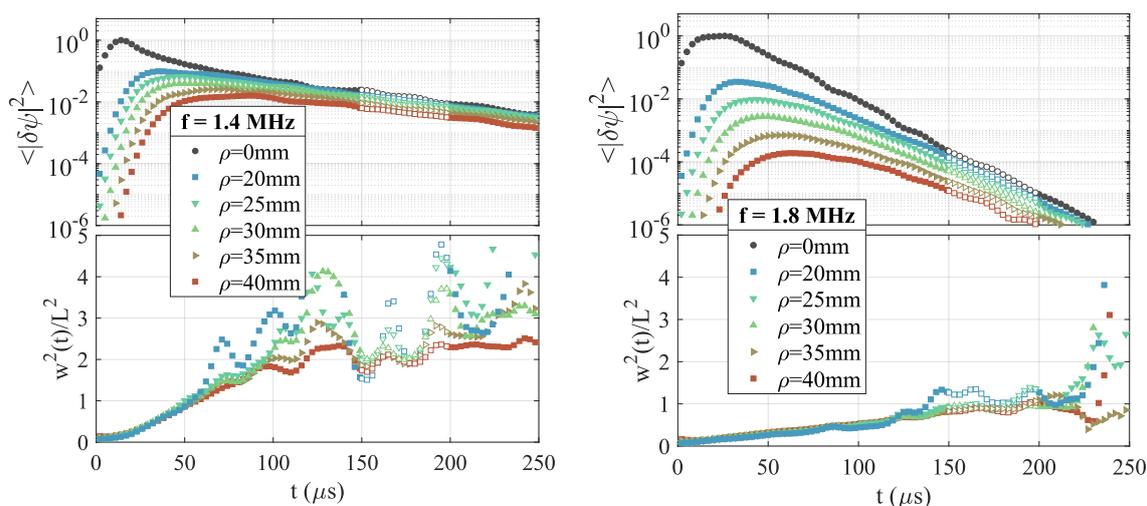


FIGURE 4.7 – Mesure de l'intensité moyenne  $\langle |\delta\psi(\rho, t)|^2 \rangle$  dans une suspension diluée de petites billes, en fonction du temps ainsi que l'évolution de l'extension latérale du halo normalisé  $w^2(t)/L^2$ .

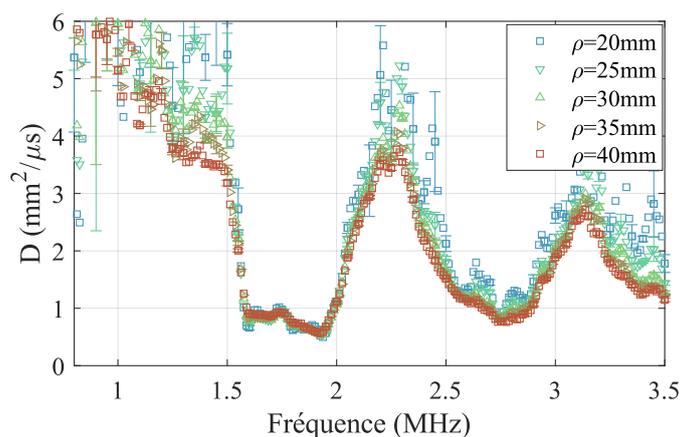


FIGURE 4.8 – Coefficient de diffusion effectif mesuré pour  $\rho \in [20 - 40]\text{mm}$  dans un échantillon à  $\phi = 6.5\%$  de petites billes  $\langle a \rangle = 233\mu\text{m}$ . Les bornes de fits sont  $t \in [10 - 75]\mu\text{s}$ .

Enfin, le coefficient de diffusion  $D$  est extrait en ajustant linéairement  $w^2(t)$  à chaque fréquence comme indiqué dans la figure 4.8 pour différentes valeurs de  $\rho$ . Les résonances sont marquées par des creux confirmant le ralentissement du transport des ondes multiples diffusées.

Les coefficients de diffusion mesurés aux différentes distances  $\rho$  se superposent et confirment ainsi que  $D$  ne dépend pas de l'espace dans le régime diffusif.

## 4.2 Régime de transport diffusif et sub-diffusif

Dans la section précédente, nous avons explicité la méthode expérimentale d'extraction du coefficient de diffusion  $D$ . Nous allons désormais confronter ces résultats expérimentaux à l'approximation de la diffusion.

### 4.2.1 Suspensions diluées : approximation de la diffusion

On rappelle que la solution de l'équation de diffusion en milieu infini est [31] :

$$U(\vec{r}, t) = \frac{U_0}{(4\pi Dt)^{3/2}} \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_a}\right). \quad (4.7)$$

En prenant en compte les conditions limites en  $z = 0$  et  $z = L$  celle-ci devient [34] :

$$U(\vec{r}, t) = \frac{U_0}{2\pi Dt} \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_a}\right) \sum_{n=1}^{\infty} K_n(z) \exp\left(-\frac{D\alpha_n^2 t}{L^2}\right). \quad (4.8)$$

Le calcul des coefficients  $K_n$  est donné par les trois équations suivantes [33, 34] :

$$K_n(z) = \frac{[\alpha_n z_0 \cos(\alpha_n z/L) + \sin(\alpha_n z/L)][\alpha_n z_0 \cos(\alpha_n l^*/L) + \sin(\alpha_n l^*/L)]}{\alpha_n^2 z_0^2 + 1 + 2z_0}, \quad (4.9)$$

avec la distance d'extrapolation  $z_0$  [83] dépendant du coefficient de réflexion moyen  $R^M$  [84] à l'interface :

$$z_0 = \frac{2l^*}{3} \frac{1 + R^M}{1 - R^M}. \quad (4.10)$$

Enfin les  $\alpha_n$  sont obtenus en résolvant l'équation :

$$\tan(\alpha_n) = \frac{2\alpha_n z_0}{z_0^2 \alpha_n^2 - 1}. \quad (4.11)$$

L'équation 4.8 en milieu borné est adaptée à notre étude, pour laquelle l'échantillon a une épaisseur petite devant les dimensions latérales. Elle fait cependant apparaître une distance d'extrapolation  $z_0$  (équation 4.10). Cette distance représente l'épaisseur d'échantillon minimale qu'il faudrait ajouter pour que le flux d'énergie sortant à la surface  $z = L + z_0$  soit nulle [30, 83]. Elle prend ainsi en compte les réflexions internes qui tendent à réintroduire l'énergie dans le milieu.

Selon le dispositif expérimental présenté en figure 4.1, les échantillons sont entourés d'air. La différence d'impédance acoustique avec l'échantillon est alors très forte, et le coefficient de réflexion moyen est toujours supérieur à 0.999. Aussi, la distance  $z_0$  est de l'ordre du mètre (figure 4.9). Dans ces conditions le temps caractéristique de diffusion  $\tau_D$  est donné de la manière suivante :

$$\tau_D = \frac{(L + 2z_0)^2}{\pi^2 D}. \quad (4.12)$$

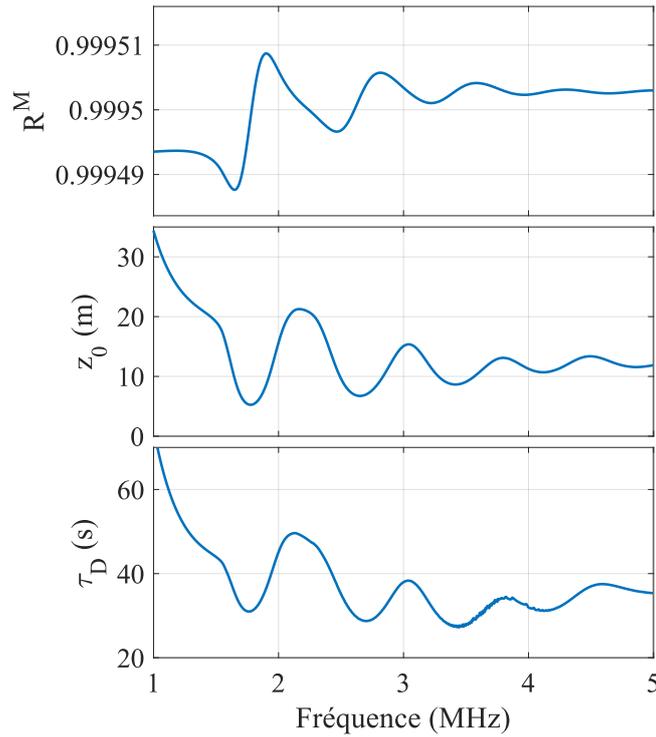


FIGURE 4.9 – Calcul du coefficient de réflexion moyen, de la distance d’extrapolation et du temps caractéristique de diffusion. Paramètres d’entrée du calcul :  $\langle a \rangle = 233 \mu\text{m}$ ,  $P = 5\%$ ,  $\phi = 6.5\%$  et  $L = 26 \text{ mm}$ .

À cause des conditions aux limites, le temps  $\tau_D$  est de l’ordre de la seconde, ce qui permet de déduire que ce sont les effets d’absorption qui dominent la décroissance temporelle des ondes. En revanche, il n’existe pas d’expression analytique pour  $\tau_a$ . Par exemple, si on considère que la longueur d’absorption  $l_a$  est uniquement donnée par l’absorption dans le gel, alors  $l_a = 1/2\alpha_0$  et le temps d’absorption serait  $\tau_{a0} = l_a/c_0 \approx 3 \text{ ms}$ . Or, on peut déduire qualitativement d’après la figure 4.7 que  $\tau_a$  vaut quelques dizaines de microsecondes et est donc largement inférieur à  $\tau_{a0}$ . Les constituants étant peu absorbants, les pertes sont probablement dues à des effets visqueux à l’interface billes/gel, ce qui pourrait expliquer la décroissance plus rapide observée à la résonance (voir figure 4.7).

La méthode expérimentale d’extraction du coefficient de diffusion nécessite la mesure précise du rapport des intensités moyenne hors d’axe et sur l’axe de révolution :

$$\frac{I(\rho, t)}{I(\rho = 0, t)} = \frac{U(\rho, t)}{U(\rho = 0, t)} = \exp(-\rho^2/4Dt). \quad (4.13)$$

Dans le régime diffusif, la distribution spatiale de l’intensité normalisée est donc une gaussienne dont l’écart-type vaut  $\sqrt{2Dt}$ . Comme énoncé précédemment, ce rapport ne dépend pas des effets d’absorption marqués par le facteur  $\exp(-t/\tau_a)$ , ni des conditions aux limites qui ne dépendent que de  $z$  au travers de  $K_n(z)$ .

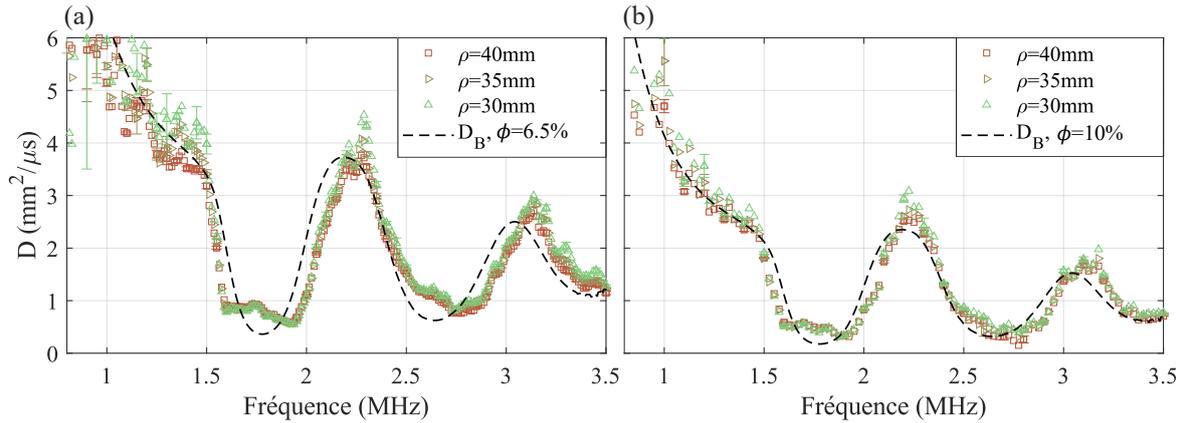


FIGURE 4.10 – Comparaison entre le coefficient de diffusion effectif mesuré avec  $\rho \in [30 - 40]$ mm pour une fraction volumique de (a)  $\phi = 6.5\%$  et (b)  $\phi = 10\%$  en comparaison avec le coefficient de diffusion  $D_B$  calculé dans l'approximation de Boltzmann. Les bornes de fits sont  $t \in [10 - 75]\mu s$ .

La comparaison entre le coefficient de diffusion effectif mesuré dans une suspension diluée de petites billes à  $\phi = 6.5\%$  ( $z = 15$  mm et  $L = 26$  mm) et le coefficient de Boltzmann calculé est affichée en figure 4.10 (a). La comparaison est également faite pour une suspension à  $\phi = 10\%$  de petites billes, où  $L = 24$  mm et  $z = 15$  mm (figure 4.10 (b)). Pour les deux concentrations, le coefficient de diffusion présente un « plateau » anormal à la résonance. L'accord est néanmoins remarquable pour les deux concentrations. Cette comparaison montre aussi la dépendance de  $D$  en fonction de la concentration  $\phi$ . Dans le régime diffusif, il est normalement attendu que  $D$  diminue lorsque  $\phi$  augmente. C'est notamment cette observation qui motive l'utilisation de suspensions concentrées pour l'observation de la localisation d'Anderson.

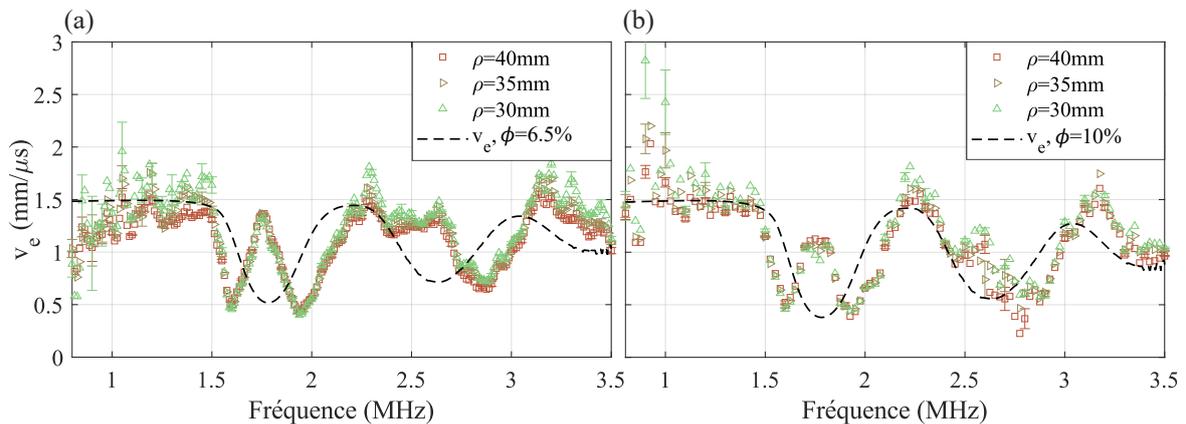


FIGURE 4.11 – Comparaison entre la vitesse de transport avec  $\rho \in [30 - 40]$ mm pour une fraction volumique de (a)  $\phi = 6.5\%$  (respectivement (b)  $\phi = 10\%$ ) en comparaison avec la vitesse de transport obtenue dans le cadre de l'approximation de Boltzmann. Les bornes de fits sont  $t \in [10 - 75]\mu s$ .

La vitesse de transport  $v_e$  est également extraite ( $= 3D/l^*$ ), où le libre parcours moyen de transport est obtenue grâce à la relation :

$$l^* = \frac{l_e}{1 - \langle \cos \rangle}, \quad (4.14)$$

que nous calculerons dans le cadre de l'ISA. La comparaison avec les prédictions théoriques sont affichées en figure 4.11. La vitesse de transport présente un double-creux à la résonance qui rappelle le double-pic observé sur la vitesse de groupe (figure 3.15). Or, dans l'approximation de Boltzmann, la décroissance de la vitesse de transport est liée au délai de diffusion des ondes. Aux résonances, ce délai noté  $\Delta_2$  (cf section 1.2) compense largement le comportement anormal de la vitesse de groupe intégré dans le terme  $\Delta_1$  tendant ainsi à une décroissance de  $v_e$  [3, 28, 85]. Ce double creux sur la mesure de  $v_e$  n'est donc pas attendu et suggère que le paramètre  $\Delta_2$  ne compense pas suffisamment le paramètre  $\Delta_1$ . Le paramètre  $\Delta_2$  étant plus important aux résonances, les problèmes de sphéricité des billes peuvent une fois encore expliquer les écarts observés sur  $v_e$  et le plateau de  $D$ .

Dans cette section nous avons donc détaillé le dispositif expérimental résolu en temps et espace pour l'extraction du coefficient de diffusion effectif  $D$ . La méthode utilisée permet de s'affranchir simplement des effets d'absorption et des conditions aux limites et lui confère ainsi une grande robustesse. L'approximation de la diffusion a été mise à l'épreuve et le très bon accord confirme la validité des hypothèses pour des suspensions dont la fraction volumique est inférieure à 10%.

#### 4.2.2 Suspensions concentrées : régime de sub-diffusion

Pour espérer atteindre le régime de localisation, il faut augmenter  $\phi$  pour faire diminuer le libre parcours moyen élastique  $l_e$  et ainsi avoir  $kl_e < 1$ . Cependant la décroissance des paramètres  $l_e$ ,  $l^*$  ou  $D$  en fonction de la fraction volumique n'est pas si triviale. De récentes simulations sur la propagations des ondes électromagnétiques dans des suspensions de sphères diélectriques ont montré qu'il existe une concentration optimale pour minimiser le coefficient de diffusion  $D$  ( $\sim 30\%$ ), une concentration optimale pour minimiser le produit  $kl_e$  ( $\sim 38\%$ ) et une autre pour minimiser le produit  $kl^*$  ( $\sim 18\%$ ) [86]. Ces résultats numériques corroborent les résultats expérimentaux de diffusion dans des émulsions de gouttelettes d'huiles FC40 pour lesquelles une fraction optimale de 25% a été trouvée pour minimiser la diffusivité [87]. Lorsque la concentration augmente, on s'attend à ce que les interférences entre les différents chemins de diffusion deviennent non-négligeables pouvant mener à un ralentissement de la diffusion. Cet effet se manifeste de deux manières :

- Les  $w^2(t)$  ne croissent plus linéairement avec le temps.
- Le profil d'intensité  $I(\rho)/I(0)$  n'est plus gaussien et la mesure de  $w_\rho^2(t)$  dépend de l'espace.

Ce sont alors ces deux signatures, typiques d'une déviation du régime diffusif que nous chercherons à observer dans des suspensions concentrées avec des fractions volumiques variant de 20% à 40 %.

##### Suspension de billes à $\phi = 20\%$

Dans cette première partie de l'étude, nous étudierons des suspensions concentrées à  $\phi = 20\%$ . D'une part, le coefficient de diffusion effectif extrait pour les grosses billes (où  $L = 18\text{mm}$  et  $z = 9\text{mm}$ ) sera comparé avec celui extrait pour les petites billes (où  $L = 15\text{mm}$  et  $z = 10\text{mm}$ ),

et d'autre part, ces mesures seront comparées à l'approximation de la diffusion (figure 4.12). Les mesures sont données pour les distances transversales  $\rho = [10 - 15]$ mm car les signaux mesurés plus loin ont une amplitude beaucoup trop faible.

On note alors que l'accord théorie/expérience demeure très bon pour les deux tailles de billes à cette fraction volumique. En ce qui concerne les petites billes, on retrouve toujours le « plateau » aux résonances, tandis que celui-ci est absent pour les grosses billes. À ces fréquences, le coefficient de diffusion mesuré atteint des très faibles valeurs : jusqu'à  $0.12 \text{ mm}^2 \cdot \mu\text{s}^{-1}$  pour les petites billes et  $0.07 \text{ mm}^2 \cdot \mu\text{s}^{-1}$  pour les grosses billes.

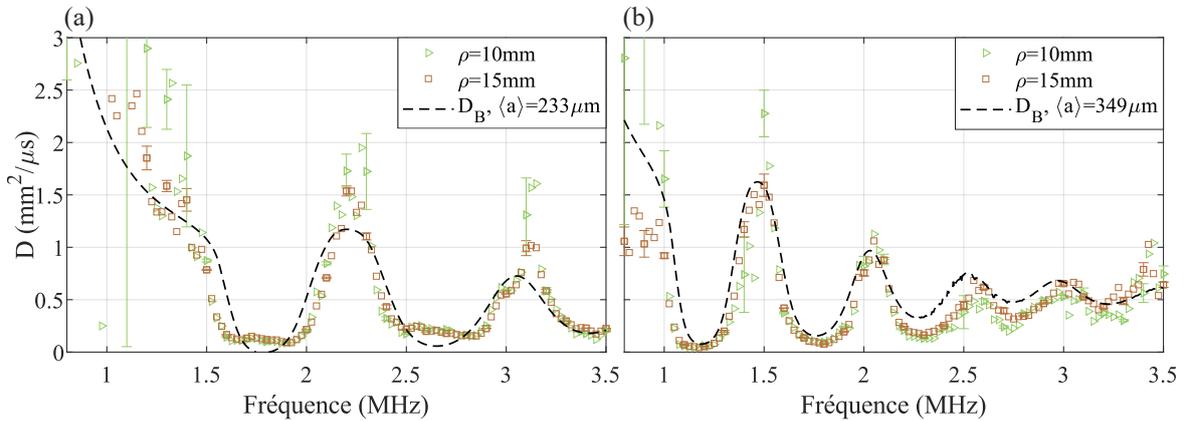


FIGURE 4.12 – Comparaison entre le coefficient de diffusion effectif mesuré pour  $\rho \in [10 - 15]$ mm pour une fraction volumique de  $\phi = 20\%$  (a) pour les petites billes, (b) avec les grosses billes en comparaison avec  $D_B$ . Les bornes de fits sont  $t \in [10 - 75]\mu\text{s}$ .

L'étalement transversal du halo diffusif au cours du temps est affiché en figure 4.13. Le premier fait marquant est que la quantité  $w^2(t)/L^2$  est inférieure à 1 sur toute la gamme d'observation. C'est notamment ce qui a été observé sur les « mésoglasses » de billes d'aluminium lorsque le régime localisé était atteint [12]. De plus, l'évolution des  $w^2(t)$  n'est plus linéaire. Cette observation est d'autant plus flagrante pour les petites billes, signature d'une réelle déviation du régime diffusif. Pour les grosses billes, il est plus difficile de conclure quant à cette déviation : la linéarité semble être maintenue. La pente très faible des  $w^2/L^2$  indique cependant que la résonance des billes a fortement ralenti le transport des ondes multiples diffusées.

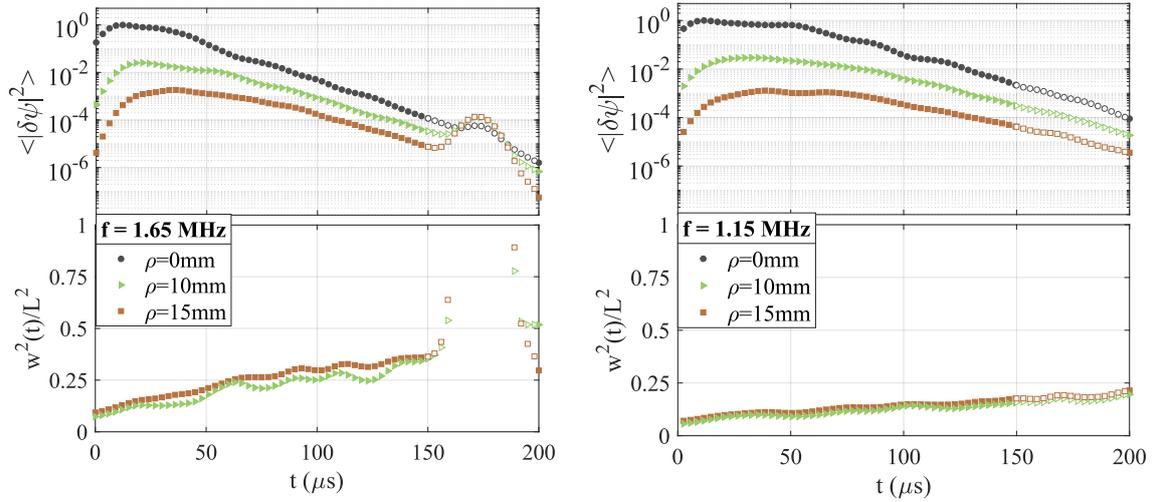


FIGURE 4.13 – Comparaison de l’intensité moyenne  $\langle |\delta\psi(\rho, t)|^2 \rangle$  en fonction du temps ainsi que l’évolution de l’extension latérale du halo normalisé  $w^2(t)/L^2$ , pour  $\phi = 20\%$  entre les petites billes (à gauche) et les grosses billes (à droite).

Les résultats obtenus pour une suspension de petites billes (figure 4.13 (a)) montrent un rebond d’intensité vers  $t \approx 150 \mu s$  qui se répercute sous la forme d’une « bosse » dans les  $w^2/L^2$ . Ceci est dû à un couplage électromagnétique au niveau de la chaîne d’acquisition.

Pour finir cette étude portant sur les suspensions à 20%, la vitesse de transport est également extraite. Même à cette concentration, le double creux est toujours présent pour les petites billes. Les valeurs de  $v_e$  mesurées sont également très faibles et confirment le fort ralentissement du transport des ondes multiples diffusées.

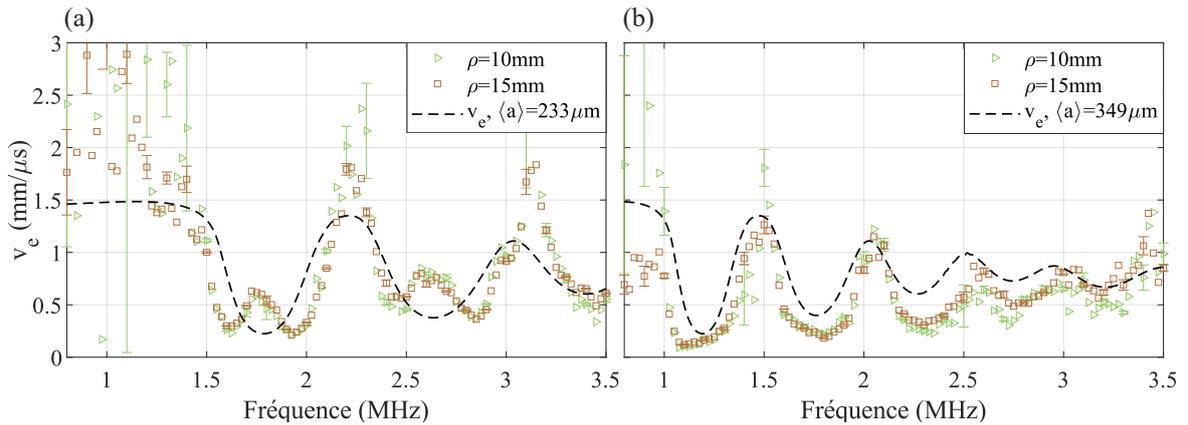


FIGURE 4.14 – Comparaison entre la vitesse de transport pour  $\rho \in [10-15]$  mm pour une fraction volumique de  $\phi = 20\%$  (a) pour les petites billes, et (b) les grosses billes en comparaison avec la vitesse de transport calculée dans le cadre de l’approximation de Boltzmann. Les bornes de fits sont  $t \in [10-75] \mu s$ .

Nous avons ainsi étudié des suspensions concentrées de grosses et de petites billes pour une concentration de 20%. Nous avons mis en évidence une chute brutale de la vitesse de transport et du coefficient de diffusion, accompagnée d’une déviation au régime diffusif. Ces déviations sont

néanmoins légères, et nous avons augmenté la concentration jusqu'à 40%. Les observations liées à ces expériences font l'objet de la partie suivante.

#### Suspensions de billes à $\phi = 30\%$ et $\phi = 40\%$

Lors de nos observations précédentes, nous avons vu que l'amplitude des ondes transmises était plus faible aux fréquences de résonances (figure 4.4). La baisse d'amplitude étant plus importante à mesure que la concentration augmente, le module de la transformée de Fourier moyenne est affiché pour  $\phi = 30\%$  et  $\phi = 40\%$  (figure 4.15).

- À 30% (figure 4.15 (a)), l'amplitude a diminuée de 91% entre  $\rho = 10$  mm et  $\rho = 15$  mm mais uniquement de 31% entre  $\rho = 15$  et 20 mm pour la fréquence  $f = 1.15$  MHz.
- À 40% (figure 4.15 (b)), l'amplitude a diminuée de 76% entre  $\rho = 10$  mm et  $\rho = 15$  mm mais uniquement de 14% entre  $\rho = 15$  et 20 mm pour la fréquence  $f = 1.15$  MHz.

On voit alors que l'amplitude décroît moins vite lorsque la mesure est effectuée loin de la source. Cette décroissance anormale témoigne que l'amplitude des signaux peine à sortir du niveau de bruit. Aussi, afin d'éviter toutes mauvaises interprétation dues à un trop faible rapport signal sur bruit, nous n'analyserons pas les données issues de ces expériences réalisées avec des fractions supérieures ou égal à 30%.

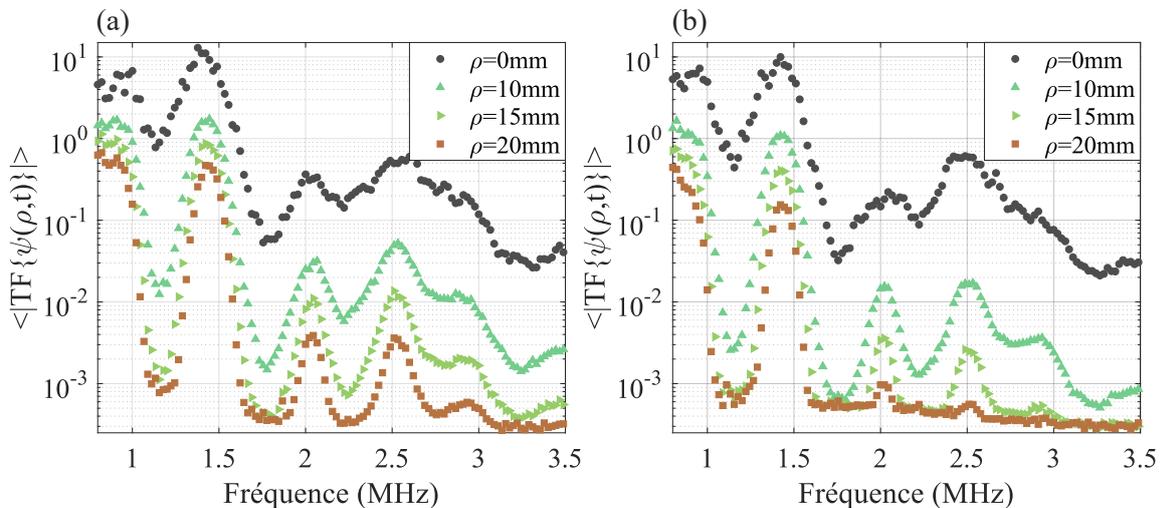


FIGURE 4.15 – Modules des transformées de Fourier de  $\psi(\rho, t)$  moyennées sur les configurations du désordre pour  $\phi = 30\%$  (à gauche) et  $\phi = 40\%$  (à droite).

Ainsi, l'augmentation de la concentration n'a pas été bénéfique. La contrainte d'un faible rapport signal sur bruit empêche une analyse pour de telles concentrations.

### 4.3 Mise en évidence de la localisation d'Anderson

Lorsque le régime de localisation est approché, les interférences entre les différents chemins de diffusion deviennent non-négligeables. La dynamique d'étalement du halo de diffusion est alors ralentie et une déviation au régime diffusif est attendue. Dans cette section, nous chercherons à quantifier cette déviation à l'aide de deux méthodes.

La première méthode est basée sur l'évolution de la largeur du halo de diffusion  $w^2(t)$ . En effet, comme énoncé précédemment, les  $w^2(t)$  n'évoluent plus linéairement avec le temps, lorsque le régime localisé est approché. Cependant, cette non-linéarité peut également être attribuée au régime « subdiffusif » qui est un régime transitoire entre le régime de diffusion, et le régime localisé. Ce régime peut amener à des confusions quant à la discrimination entre le régime localisé et subdiffusif. Un moyen de quantifier ce ralentissement est l'utilisation de la *Self Consistent Theory*.

La deuxième méthode est basée sur une analyse statistique de la figure de tavelure de l'intensité transmise (également connue sous le nom de « figure de *speckle* »). En effet, dans le régime diffusif, l'énergie des ondes multiples diffusées est distribuée de manière aléatoire dans toutes les directions. La conséquence directe de ce processus diffusif est que le flux d'énergie sortant de l'échantillon présente également des fluctuations aléatoires caractérisées par une distribution gaussienne de l'intensité. En revanche, dans le cas où le régime localisé est atteint, les interférences font que des zones de très hautes intensités apparaissent. La distribution d'intensité présente alors une déviation de la gaussienne pour les intensités élevées.

#### 4.3.1 Confinement transversale du halo diffusif

La première partie de cette section repose sur l'ajustement des expériences d'étalement de l'intensité avec la *Self Consistent Theory* (SCT). On rappelle que la SCT est une théorie qui prend en compte la *Ladder Approximation* ainsi que des boucles de diffusion (principe de réciprocité) dans le calcul du vertex irréductible  $\Gamma$  (voir Chapitre 1). Elle prend pour données d'entrées le produit  $kl_e$  et  $kl_c$  (valeur  $kl_e$  critique) qui conditionne ainsi la longueur de localisation  $\xi$  tel que :

$$\frac{L}{\xi} = \frac{(kl_c)^2}{6l_e} \left( \frac{l_B^*}{l_e} \right) \frac{1 - \chi^4}{\chi^2}. \quad (4.15)$$

où  $\chi = kl_e/kl_c$ . En pratique, la valeur du produit  $kl_c$  n'est pas connue et c'est donc elle qui est recherchée en effectuant le calcul sur une gamme de valeur de  $kl_c$ . Lorsque  $kl_c$  est supérieur à  $kl_e$ , la localisation est atteinte et une longueur de localisation  $\xi$  est trouvé. Dans le cas contraire, une longueur  $\zeta$  est obtenue. Le calcul étant exécuté pour le temps normalisé  $t/\tau_D$ , la valeur de  $\tau_D$  est également une donnée ajustable. De même, le temps caractéristique d'absorption  $\tau_a$  est ajouté *a posteriori* par un facteur  $\exp(-t/\tau_a)$ .

Le caractère *in-situ* de nos expériences est intéressant pour la vérification des théories basées sur la dépendance spatiales de  $D(z)$ . Nous avons donc tout d'abord essayé d'observer la variation du coefficient de diffusion en fonction de  $z$  dans un échantillon de grosses billes à 20% et  $L = 18$  mm. En figure 4.16, les  $w^2$  relevés en  $\rho = 15$  mm et en différents  $z$  sont affichés pour une fréquence  $f = 1.15$  MHz, afin de détecter une variation de pente et d'en déduire une variation de

$D(z)$  en fonction de  $z$ . Cependant, dans le cas où le régime localisé est atteint, il n'est pas évident qu'une variation de  $w^2(z, t)$  entraîne une variation de  $D(z)$ . Afin d'éviter une mauvaise interprétation, nous comparons directement les mesures aux  $w^2(t)$  attendues dans le régime localisé obtenus avec la SCT ( $L/\xi = 1$ ). Cette comparaison a été faite de manière qualitative, sans chercher à être ajustée aux expériences. On note quelques similitudes, comme la non-superposition des  $w^2(z)$  ainsi que leur dépendance avec  $z$  (de bas en haut :  $z = 9 \text{ mm} \rightarrow z = 15 \text{ mm}$ ).

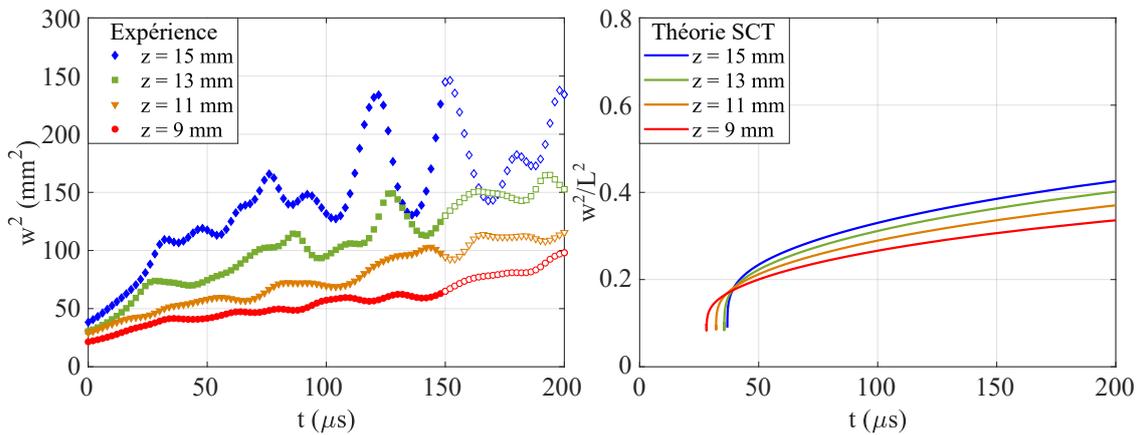


FIGURE 4.16 – (À gauche) Évolution des  $w^2(t)$  mesurés en fonction du temps pour plusieurs profondeurs  $z$  (à droite) donnés par la théorie SCT ( $L/\xi = 1$ ).

Une deuxième comparaison est faite entre la SCT et les mesures réalisées à Bordeaux pour  $z = 9 \text{ mm}$  (figure 4.17). On se rend compte que les résultats obtenus avec la SCT dans un cas localisé ( $L/\xi = 0.5$ ) et non localisé  $L/\xi = 3$  donne les mêmes résultats lorsque  $t \in [0 - 250] \mu\text{s}$ . C'est ici le temps caractéristique de diffusion qui est mis en cause  $\tau_D = 500 \text{ ms}$ , très grand devant la durée d'observation. En effet, la déviation au régime diffusif n'apparaît que lorsque  $t > \tau_D$  [20], ce qui n'est pas le cas pour les mesures effectuées jusqu'à présent. Ceci explique alors les raisons d'une faible déviation au régime diffusif observée dans les précédentes sections de ce chapitre.

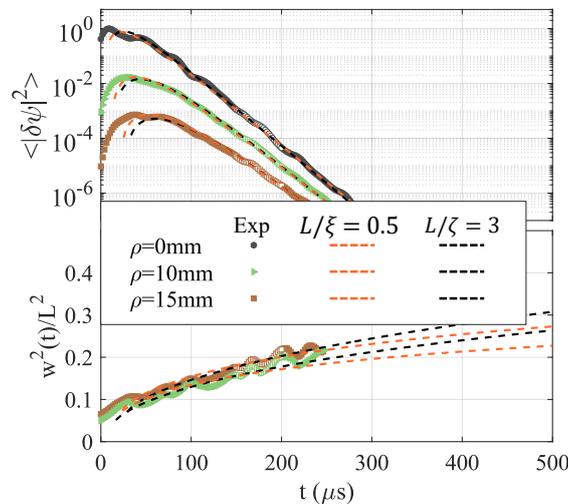


FIGURE 4.17 – Mesure de l'intensité moyenne  $\langle |\delta\psi(\rho, t)|^2 \rangle$  en fonction du temps ainsi que l'évolution de l'extension latérale du halo normalisé  $w^2(t)/L^2$ , pour  $\phi = 20\%$ .

Dans l'objectif de contourner les difficultés imposées par le dispositif expérimental actuel (notamment les conditions aux limites eau/air), nous avons réitéré ces expériences avec comme différence l'immersion totale de tout le dispositif dans l'eau afin de diminuer la valeur de  $\tau_D$ . Ces mesures ont été effectuées au sein de l'*Ultrasonics Research Laboratory* dans l'équipe du professeur John H. Page (Université du Manitoba). Le dispositif expérimental est présenté en figure 4.18 [15, 27, 47].

L'échantillon concentré à 20% est confiné dans une cellule cylindrique dont les parois latérales sont en PVC. Les parois situées en  $z = 0$  et  $z = L$  sont des feuilles de polycarbonate de 0.5 mm d'épaisseur. Les dimensions des cellules sont affichées dans le tableau ci-dessous en fonction de l'échantillon étudié :

	$L(\text{mm})$	$\emptyset (\text{mm})$
$\phi = 20\%$ grosses billes	14	95
$\phi = 20\%$ petites billes	10	100

TABLEAU 4.1 – Dimensions des cellules utilisées pour les mesures de confinement transversal de l'intensité.

Le transducteur focalisé est positionné à 305 mm ( $\approx 12''$ ) de l'échantillon. Les déplacements de l'échantillon et de l'hydrophone sont contrôlables par des robots motorisés. Afin de sonder en dehors de l'axe, un motif en forme de croix est dessiné par l'hydrophone lors de son déplacement où les points noirs représentent les points d'acquisitions. Afin de moyenner sur différentes configurations du désordre, l'échantillon est déplacé afin que la position  $\rho = 0$  mm coïncide avec un triangle rouge. C'est ensuite l'hydrophone qui se déplace à nouveau pour effectuer les acquisitions avec le motif en forme de croix. Sur le schéma 4.18, les triangles rouges forment une grille de  $6 \times 6 = 36$  positions, mais en pratique cette grille présente typiquement  $25 \times 25 = 625$  positions différentes. De ce fait, les acquisitions pour  $\rho = 0$  mm sont effectuées sur 625 configurations du désordre et les positions  $\rho \neq 0$  mm sur  $4 \times 625 = 2500$  configurations du désordre.

Dans cette configuration, la sélection du lobe principale de focalisation se fait grâce à un cône enroulé de téflon dont la réflexion interne est parfaite, empêchant ainsi le passage des lobes secondaires. Afin de s'assurer que les échos générés aux différentes interfaces, ou que certaines ondes qui contournent l'échantillon ne polluent les acquisitions, un écran aussi enroulé de téflon perforé est inséré entre l'émetteur et l'hydrophone (voir figure 4.1 (d)).

Tout comme le dispositif bordelais, l'expérience permet d'extraire l'évolution temporelle et spatiale de l'intensité moyenne  $\langle |\delta\psi|^2 \rangle$ . Dans cette nouvelle configuration, la mesure permet d'accéder au flux  $\vec{J}$ , tandis que les mesures *in-situ* réalisées à Bordeaux donne un accès direct à la densité locale d'énergie  $U$ . Afin d'étudier le comportement fréquentielle, un filtre numérique gaussien dont la largeur à mi-hauteur vaut  $df = 50$  kHz est appliqué à chaque signaux.

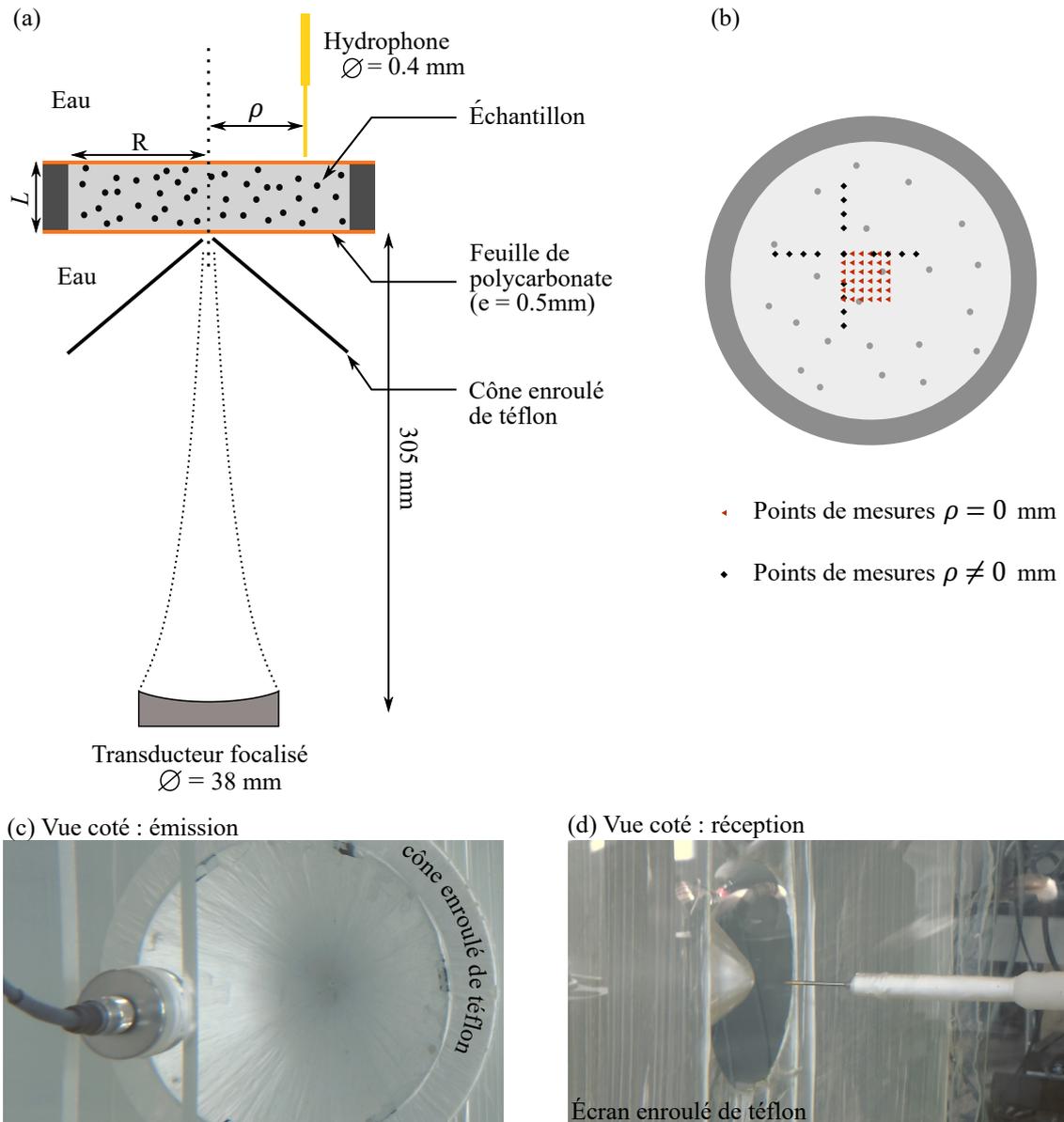


FIGURE 4.18 – (a) Schéma du dispositif expérimental utilisé à *Ultrasonics Research Laboratory* pour la caractérisation du transport des ondes multiples diffusées. (b) Méthode d'acquisition permettant le moyennage configurationnel de  $\delta\psi$ . Photographie du dispositif expérimental utilisé (c) vue émission et (d) vue réception.

Sur la figure 4.19, les courbes  $\langle |\delta\psi|^2 \rangle$  ainsi que la largeur du halo de diffusion normalisée  $w^2(t)/L^2$  mesurées pour les grosses billes sont affichées en fonction du temps à différentes fréquences. De façon similaire aux observations précédentes, l'évolution des  $w^2(t)/L^2$  est monotone et dépasse 1 sur des temps longs lorsque les ondes ne sont pas localisées (par exemple  $f = 1.05 \text{ MHz}$ ). Cependant, pour les autres fréquences les  $w^2(t)/L^2$  semble stagner. Par exemple, à  $f = 1.2 \text{ MHz}$ , les  $w^2(t)/L^2$  ne dépasse pas 0.5.

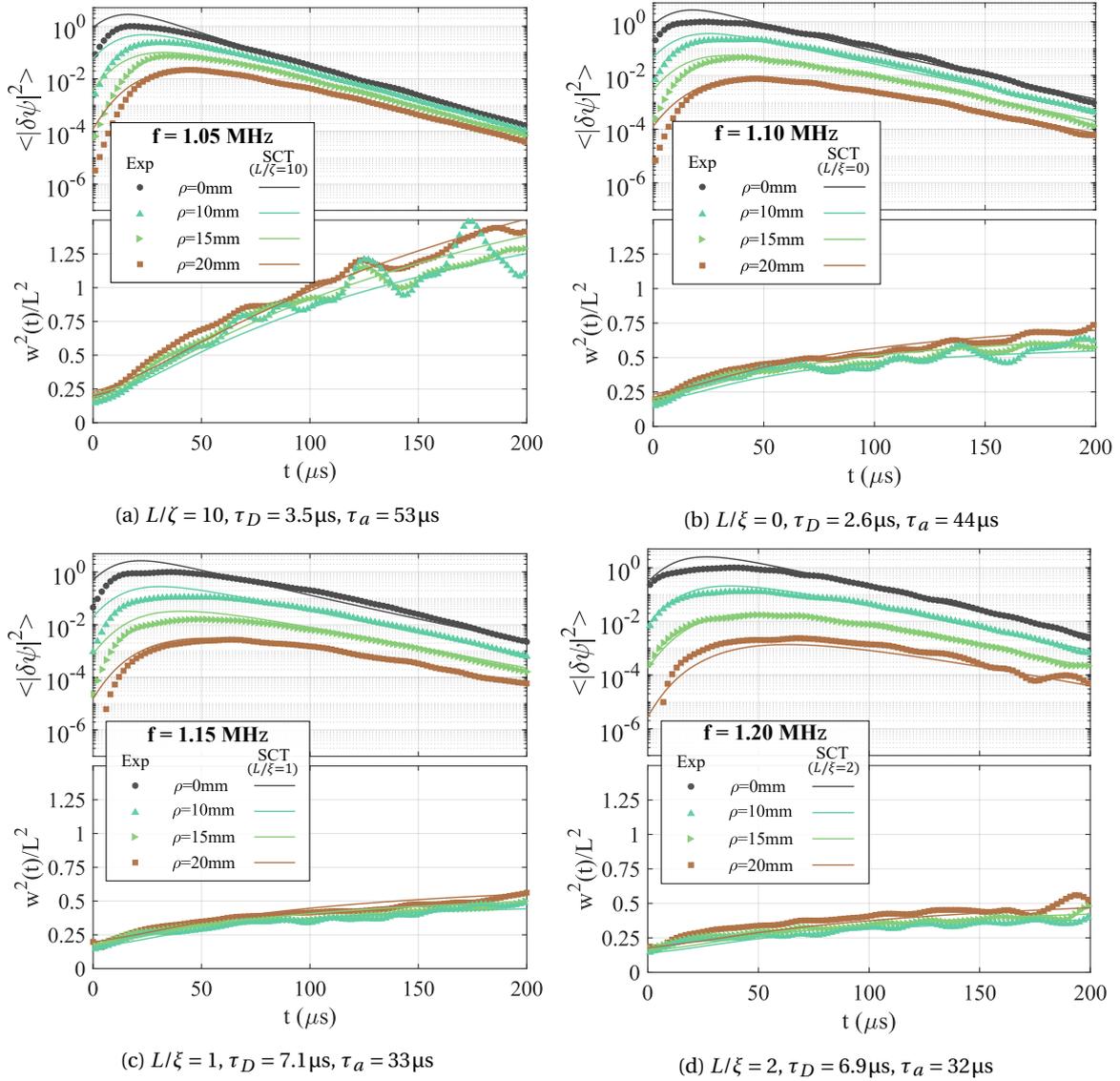


FIGURE 4.19 – Mesure de l'intensité moyenne  $\langle |\delta\psi(\rho, t)|^2 \rangle$  en fonction du temps ainsi que l'évolution de l'extension latérale du halo normalisé  $w^2(t)/L^2$ , pour les grosses billes avec  $\phi = 20\%$ . La largeur du filtre à mi-hauteur est de  $df=50$  kHz.

Ainsi, pour chaque fréquence, la *Self Consistent Theory* est calculée pour un jeu de valeur de  $L/\xi = [0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1, 2, 3, 4]$  et  $L/\zeta = [0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1, 2, 3, 4, 5, 10, 15, 20, 25, 30]$  où  $\xi$  est la longueur de localisation et  $\zeta$  est la longueur de corrélation. L'ajustement se fait simultanément sur les courbes d'intensités  $\langle |\delta\psi|^2 \rangle$  et sur les  $w^2/L^2$ . Il est en pratique très difficile de trouver un jeu de paramètre tel que la SCT prédise parfaitement les résultats expérimentaux. La figure 4.19 montre par exemple la comparaison des meilleurs ajustement entre la SCT et l'expérience. Afin de prendre en compte les effets du filtrage numérique des signaux, les résultats issus de la SCT sont convolués avec une impulsion dont la largeur est fixée par la largeur du filtre utilisé. Malgré la convolution temporelle réalisée préalablement, le désaccord aux temps courts  $t < 50 \mu\text{s}$  est attribué aux limites de la SCT qui nécessite des conditions expérimentales difficiles à atteindre. Une fois le pic d'intensité dépassé, la théorie présente un très bon accord avec les mesures.

Les ajustements théorie/expériences étant difficiles à réaliser, la longueur de localisation  $\xi$  (ou corrélation  $\zeta$ ) a uniquement été trouvée pour quatre fréquences  $f \in [1.05 - 1.20]$  MHz. Ils ont néanmoins permis de déterminer que le seuil de mobilité se situe à la fréquence  $f = 1.10$  MHz. Ce seuil est caractérisé par une distance de localisation  $\xi = +\infty$  qui illustre parfaitement la transition entre un régime de transport où les ondes peuvent s'étaler indéfiniment (non-localisé) et le régime où les ondes sont confinées au voisinage de la source avec cette distance  $\xi$ .

Ainsi, plus la localisation est prononcée, plus la longueur de localisation est faible. Pour  $f = 1.05$  MHz, une longueur de corrélation  $\zeta$  a été trouvée, ce qui permet de dire que les ondes ne sont pas localisées. À cette fréquence, les signatures typiques de la déviation au régime diffusif ont été observées, comme les non linéarités des  $w^2(t)$  ainsi que leur dépendance à l'espace, confirmant ainsi qu'elles ne sont pas des conditions suffisantes pour discriminer le régime localisé. Lorsque que  $f = 1.2$  MHz, la distance de localisation est minimale et vaut  $\xi = 7$  mm. Cette distance étant largement inférieure à l'épaisseur de l'échantillon  $L$ , il est alors possible de conclure sur le fait que les conditions aux limites n'ont eu que peu d'impact sur l'étalement des ondes.

Il est cependant à noter que ces ajustements n'ont pas été quantifiés. La valeur de  $L/\xi$  est donc donnée avec une incertitude de  $\pm 0.5$ . La localisation du seuil de mobilité n'est donc pas connu avec précision, mais il est possible de conclure quant à l'existence du seuil de mobilité pour une gamme de fréquence, comprise entre  $f \in [1.05 - 1.15]$  MHz.

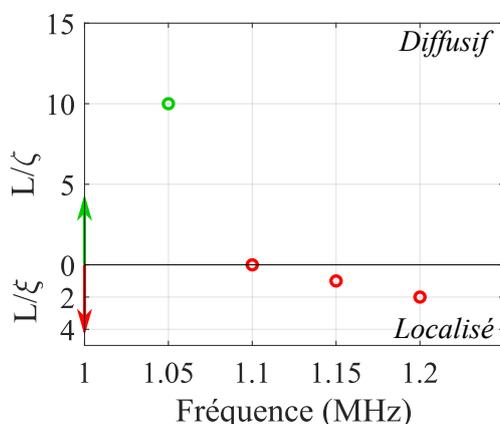


FIGURE 4.20 – Rapport  $L/\xi$  et  $L/\zeta$  déduit des ajustements avec la théorie SCT en fonction de la fréquence.

Nous avons également entrepris d'extraire l'évolution de la longueur de localisation pour des suspensions constituées de petites billes ( $\langle a \rangle = 233 \mu\text{m}$ ). Un unique ajustement a été trouvé à la fréquence  $f = 1.65$  MHz qui donne directement le seuil inférieur de mobilité (figure 4.21 (a)). Ici l'accord entre la théorie et l'expérience est excellent et laisse peu de doute sur l'existence du seuil de mobilité proche de cette fréquence. On note également que la durée d'observation ( $\sim 175 \mu\text{s}$ ) est plus courte que pour les grosses billes. Le nombre de petites billes étant plus important à concentration équivalente, le temps d'absorption est donc plus faible que lors des précédentes expériences ( $\tau_a = 24.4 \mu\text{s}$ ).

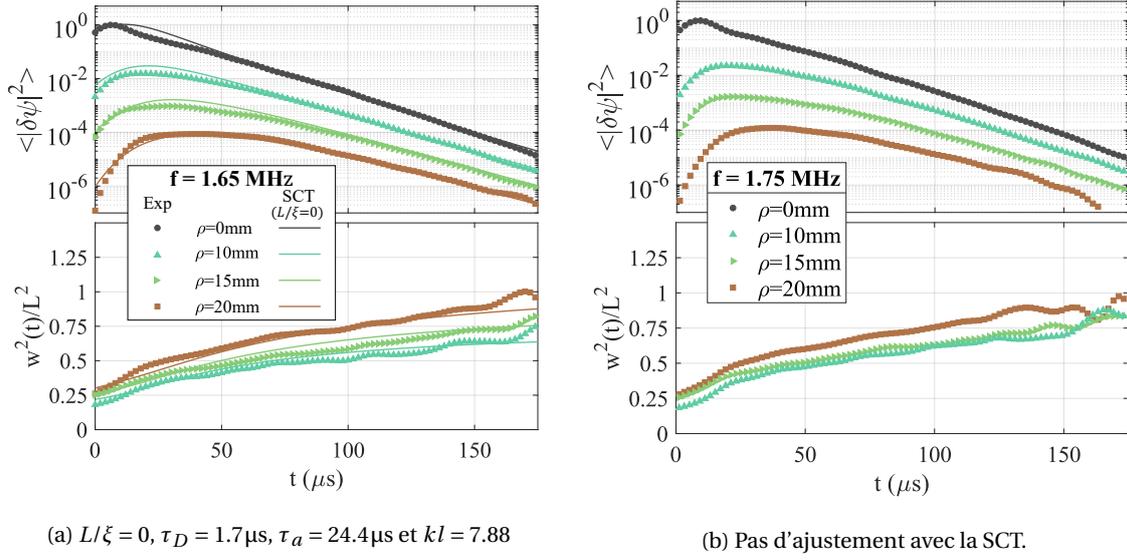


FIGURE 4.21 – Mesure de l'intensité moyenne  $\langle |\delta\psi(\rho, t)|^2 \rangle$  en fonction du temps ainsi que l'évolution de l'extension latérale du halo normalisé  $w^2(t)/L^2$ , pour les petites billes avec  $\phi = 20\%$ . La largeur du filtre à mi-hauteur est de  $df=50$  kHz.

Il est alors intéressant de remarquer que les ajustements ont été obtenus pour des temps de diffusion de l'ordre quelques microsecondes, tandis que le temps caractéristiques d'absorption est d'un ordre de grandeur supérieur. La différence d'impédance entre l'échantillon est l'eau n'est pas très élevé, ce qui réduit drastiquement les réflexions interne et par conséquent  $\tau_D$ . La décroissance de l'intensité est ainsi dominée par les effets de diffusion, mais l'absorption n'est pas négligeable pour autant. Il est donc très difficile de regarder sur des temps supérieur à  $200\mu\text{s}$ , car le rapport signal sur bruit devient très faible. La stagnation du halo de diffusion, caractérisée par  $w^2(t)/L^2 = \text{cte}$  n'a donc pas été directement observée mais les très bons ajustements obtenus avec la SCT permettent de conclure positivement quant à l'observation de la localisation d'Anderson dans nos échantillons.

En conclusion, nous présentons dans cette section la première signature de la localisation d'Anderson. La méthode choisie nous permet d'une part de discriminer le régime de transport atteint (diffusif, subdiffusif ou localisé), mais également de quantifier le pouvoir localisant des échantillons, au travers de la longueur de localisation  $\xi$ . Dans le cas le plus favorable, nous trouvons une longueur de localisation bien plus petite que l'épaisseur de l'échantillon ( $L/\xi = 2$ ). Cette faible valeur de  $\xi$  est souhaitable, car elle élimine les confusions que les conditions aux limites peuvent engendrer lorsque  $L/\xi < 1$ . Le seuil de mobilité est trouvé à une fréquence de  $f = 1.10 \pm 0.5\text{MHz}$ , pour un produit  $kl_e = 6.58$ .

Nous avons également mis en évidence que le dispositif bordelais de confinement transversal n'est donc pas efficace pour observer la localisation d'Anderson car la durée d'observation est trop faible par rapport au  $\tau_D$ . Pour contourner ce problème, il faudrait un échantillon, pour lequel le temps caractéristique d'absorption  $\tau_a$  soit plus grand que  $\tau_D$ .

### 4.3.2 Distribution d'intensité de la figure de *speckle*

Dans la section précédente, nous avons pu mettre en évidence l'observation du régime localisé dans nos suspensions de grosses billes. Cependant, le seuil de mobilité trouvé à la fréquence  $f = 1.10\text{MHz}$  est associé à un produit  $kl_e = 6.58$ . Cette valeur étant élevée devant 1, nous cherchons à confirmer ce résultat avec une autre expérience basée sur l'analyse statistique de la figure de *speckle*.

Comme pour l'expérience de confinement transversal de l'intensité, cette méthode est basée sur les interférences entre les différents chemins de diffusion. Dans le cas où une onde éclaire un échantillon, il est possible de déduire le régime de transport en se servant de l'intensité transmise au travers de l'échantillon [21, 88–90]. Chabanov *et al.* [21] ont montré que la variance de celle-ci, conduit à une estimation de la conductance adimensionnelle  $g$  tel que :

$$g = \frac{4}{3(\text{var}\{I\} - 1)}. \quad (4.16)$$

Initialement, la conductance adimensionnelle  $g$  caractérise le transport des électrons dans les métaux. Pour les ondes classiques,  $g$  caractérise la transmission. Il s'agit d'un paramètre qui peut être utilisé pour étudier la transition vers le régime de localisation. En effet, la localisation est atteinte lorsque  $g < 1$  ce qui constitue le critère connu sous le nom de « critère de Thouless ». Lorsque le régime localisé est approché, les grandeurs liées au transport des ondes fluctuent énormément, et il est communément admis que la moyenne configurationnelle de  $g$  peut néanmoins donner des informations sur le régime de transport. En proposant l'expression 4.16, basée sur l'analyse des fluctuations d'intensité, Chabanov *et al.* ont pu ainsi donner une expression de  $g$  indépendante des effets d'absorption. Cette approche implique ici que la variance de l'intensité doit être plus grande que 7/3 pour confirmer l'observation du régime localisé.

Un peu plus tôt, Kogan *et al.* [89, 90] ont également proposé d'analyser la distribution de l'intensité transmise. Dans le régime diffusif, celle-ci est gaussienne. Ce résultat est issu du théorème de la limite centrale en supposant que l'intensité transmise est une somme sur un grand nombre de chemins aléatoires de diffusion. La probabilité associée à cette distribution suit donc la loi de Rayleigh :

$$P(I/\langle I \rangle) = \exp(-I/\langle I \rangle). \quad (4.17)$$

Dans le régime localisé, les interférences constructives entre les différents chemins de diffusion tendent à amplifier les points de hautes intensités. La fonction de probabilité, dévie alors de la loi de Rayleigh et devient :

$$P(I/\langle I \rangle) = \int_0^{+\infty} \frac{dv}{v} \int_{-i\infty}^{+i\infty} \frac{dx}{2\pi i} \exp\left(-\frac{I/\langle I \rangle}{v} + xv - \Phi_{\text{con}}(x)\right). \quad (4.18)$$

Cette équation permet de prendre en compte les interactions entre une infinité de chemins de diffusion. Plus particulièrement, le terme  $\Phi_{\text{con}}$ , prend en compte l'infinité d'interactions entre les chemins de diffusion connectés. Nieuwenhuizen *et al* ont notamment montré que ce terme est

sensible à l'ouverture du faisceau incident [22, 30]. Si celui-ci est plan, alors :

$$\Phi_{\text{con}}(x) = g \ln^2 \left( \sqrt{1 + x/g} + \sqrt{x/g} \right). \quad (4.19)$$

Lorsque le faisceau incident est gaussien :

$$\Phi_{\text{con}}(x) = g \int_0^1 \frac{dy}{y} \ln^2 \left( \sqrt{1 + xy/g} + \sqrt{xy/g} \right). \quad (4.20)$$

Les équations 4.19 et 4.20 font ainsi intervenir la grandeur  $g$ . En ajustant ainsi les probabilités  $P(I/\langle I \rangle)$  calculées (équation 4.18) et mesurées, on déduira la valeur de  $g$ .

Le dispositif expérimental utilisé est présenté en figure 4.22. Une onde plane est envoyée par un transducteur rectangulaire de grande surface active  $50 \times 80 \text{ mm}^2$ . L'échantillon est contenu dans une cellule en plastique transparent. L'acquisition est réalisée grâce à l'hydrophone Precision Acoustic utilisé pour les expériences de confinement transversal. Afin de ne pas mélanger l'échantillon lors du passage de l'hydrophone, les acquisitions sont effectuées à l'intérieur d'une fine couche de gel (d'épaisseur  $e \approx 2 \text{ mm}$ ) disposée au dessus de l'échantillon.

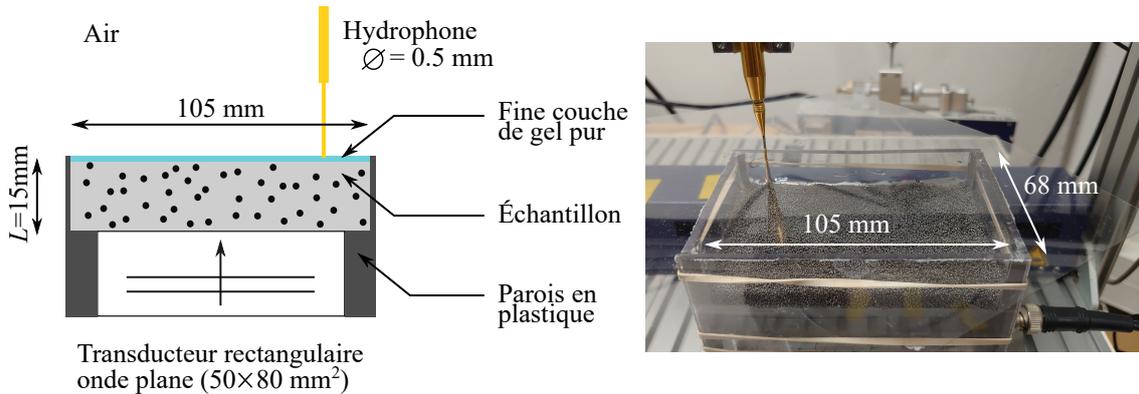


FIGURE 4.22 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation de la figure de *speckle*.

Le signal incident est composé de 15 cycles à la fréquence centrale de 1.2 MHz, apodisés par une gaussienne. De cette manière, la largeur fréquentielle du signal est d'environ 30% à mi-hauteur. Les figures de *speckle* à la fréquence de 0.9 MHz et 1.2 MHz sont affichées en figure 4.23. La zone de scan est une surface de  $52 \times 87 \text{ mm}^2$ . Les intensités sont normalisées par l'intensité moyenne, afin de mettre en évidence les variations. On peut alors voir dans le cas où les ondes ne sont pas localisées, que la distribution de l'intensité est uniforme sur toute la surface, et les valeurs de  $I/\langle I \rangle$  sont toujours inférieures à 20. En revanche, pour une fréquence où les ondes sont localisées selon les mesures de confinement transversal, on voit une région pour laquelle les variations d'intensité sont très fortes et les pics d'intensité prennent des valeurs très élevés ( $>40$ ).

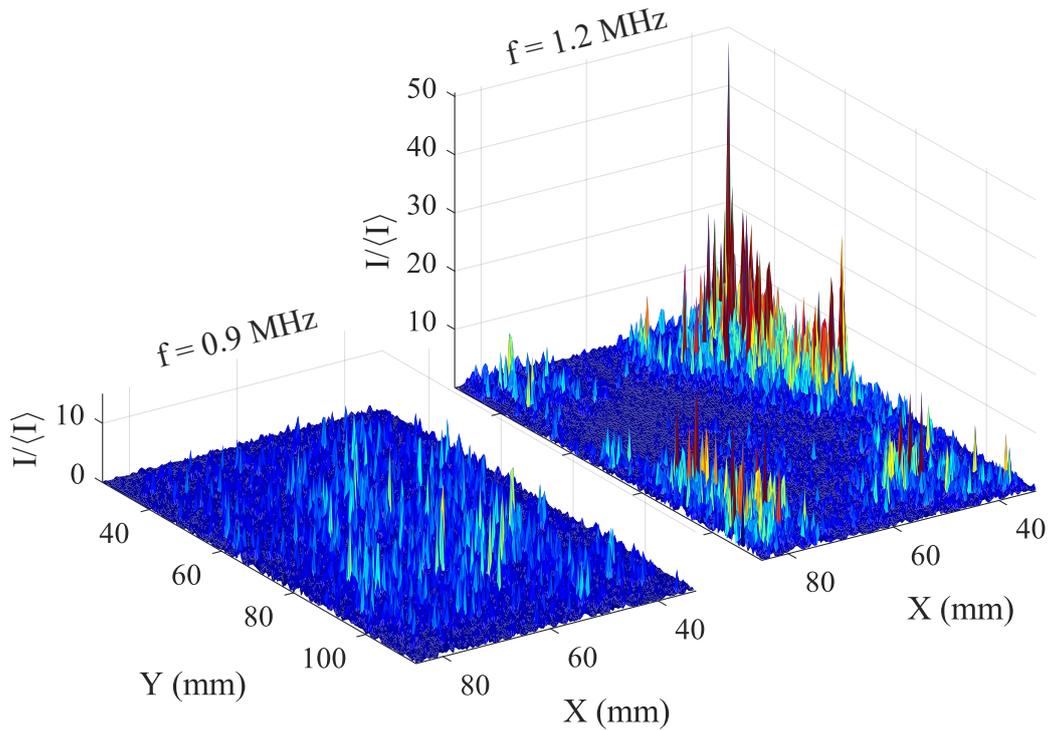


FIGURE 4.23 – Figure de speckle à  $f = 0.9\text{ MHz}$  et  $f = 1.2\text{ MHz}$  d'onde plane transmis au travers de l'échantillon 2, à fraction volumique  $\phi = 20\%$ .

Cependant, on note que ces pics de forte intensité sont situés proches des parois latérales de l'échantillon. Afin de nous assurer que ces effets ne sont pas dus aux réflexions des parois, nous enlevons, lors de l'analyse, un contour de 8 mm de large (respectivement 15 mm) afin de conserver la zone centrale de  $36 \times 71\text{ mm}^2$  (respectivement  $22 \times 57\text{ mm}^2$ ). Les probabilités  $P(I/\langle I \rangle)$  mesurées sont affichées en figure 4.24 pour  $f = 0.90\text{ MHz}$  et  $f = 1.20\text{ MHz}$  et sont moyennées avec les probabilités issues de fréquences voisines ( $\pm 12.5\text{ kHz}$ ). La ligne discontinue bleue montre la loi de Rayleigh attendue dans un régime diffusif  $g \rightarrow +\infty$ . La ligne noire est quant à elle obtenue avec l'équation 4.18 pour laquelle la valeur de  $g$  est ajustée avec l'expérience.

L'ajustement est une fois encore effectué visuellement, mais la forte sensibilité de  $P(I/\langle I \rangle)$  à la valeur de  $g$  permet d'avoir une incertitude de  $\pm 10\%$ . On peut alors voir que plus la localisation est forte, plus la déviation à la loi de Rayleigh est importante. Notre analyse avec la suppression des contours permet de confirmer que les fortes variations de l'intensité ne sont pas dues aux réflexions des parois latérales mais aux effets de localisation.

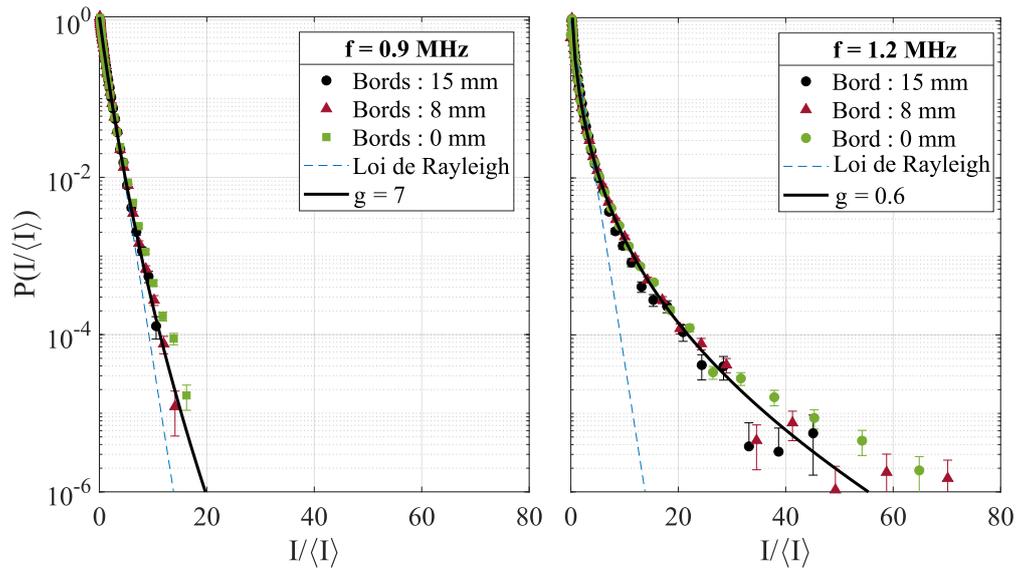


FIGURE 4.24 – Probabilités  $P(I/\langle I \rangle)$  à  $f = 0.90\text{MHz}$  et  $f = 1.2\text{MHz}$  mesurées en comparaison avec la loi de Rayleigh et l'équation 4.18.

En réitérant ainsi la procédure pour plusieurs fréquences, nous pouvons extraire l'évolution de  $g$  en fonction de la fréquence (figure 4.25). La mesure de ce paramètre nous permet ainsi de confirmer la localisation du seuil de mobilité à la fréquence  $f = 1.10\text{MHz}$ . La facilité d'extraction de  $g$  permet d'avoir la borne inférieure du seuil de mobilité mais également une estimation de la borne supérieure ( $f \in [1.25 - 1.30]\text{MHz}$ ), ce qui n'a pas été le cas avec l'expérience de confinement transversal de l'intensité.

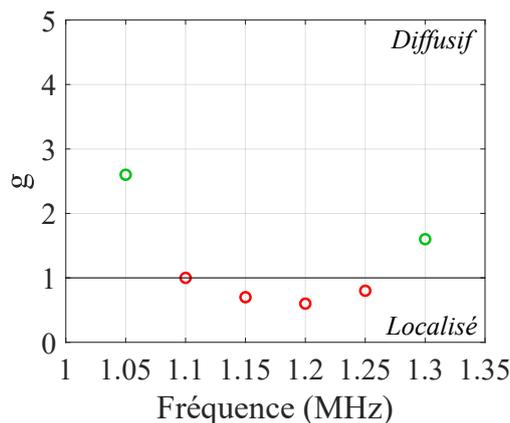


FIGURE 4.25 – Évolution de la conductance adimensionnelle  $g$  extraite des ajustements avec l'équation 4.24.

On note également que l'analyse statistique de la figure de *speckle* n'entre pas en contradiction avec les conclusions issues de l'expérience de confinement transversal, mais au contraire, elle les confirme et les complète.

## 4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié le transport de l'intensité des ondes multiples diffusées dans nos suspensions de billes résonantes. Grâce à diverses expériences de confinement transversal de l'intensité moyenne, nous avons d'une part confirmé l'approximation de la diffusion pour de faibles concentrations en diffuseurs, et d'autre part mis en évidence une déviation au régime diffusif pour des concentrations plus élevées. La *Self Consistent Theory* a ensuite donné une première preuve de la localisation d'Anderson dans nos suspensions concentrées ( $\phi = 20\%$ ) de grosses billes. Grâce à cette théorie, nous avons obtenu une estimation du seuil de mobilité pour  $f = 1.10$  MHz et déduit que le pouvoir localisant dans nos échantillons est le plus important à  $f = 1.20$  MHz pour laquelle la longueur de localisation  $\xi$  vaut 7 mm.

Nous avons également étudié l'impact des conditions aux limites sur l'observation de la localisation d'Anderson au travers de la mesure de confinement transversal de l'intensité, et conclu qu'il est préférable d'avoir des interfaces dont le coefficient de réflexion moyen  $R^M$  est très petit devant 1. En effet, dans la configuration bordelaise  $R^M \approx 1$  implique  $\tau_D \gg \tau_a$  ce qui empêche de faire des ajustements convaincants avec la SCT.

Enfin, nous avons étudié la statistique de l'intensité moyenne transmise. Grâce à la théorie développée par Nieuvenhuizen *et al*, nous avons pu estimer la conductance adimensionnelle moyenne  $g$  à différentes fréquences. L'évolution de  $g$ , confirme alors le seuil de mobilité trouvé avec l'expérience de confinement transversal à  $f = 1.10$  MHz. Elle a en plus, donné une estimation de la borne supérieure de localisation  $f \in [1.25 - 1.30]$  MHz.

Ainsi, ces deux études complémentaires permettent de donner une gamme de fréquences pour laquelle les ondes sont localisées  $f \in [1.10 - 1.25]$  MHz dans une suspension à 20% de grosses billes.

# Conclusion générale et perspectives

Que ce soit purement théorique ou expérimental, l'étude du transport des ondes classiques en milieux hétérogènes a fait l'objet de nombreuses études (imagerie médicale, sismologie,...). Une grande variété de systèmes modèles ont été développés afin de mettre en évidence certains mécanismes ou phénomènes ondulatoires particuliers (vitesse de phase négative [17], ultra-absorption [54], transmission totale [67],...) dont la localisation d'Anderson. Cependant, il est à ce jour difficile de prédire avec précision l'émergence du régime localisé. D'autre part, les difficultés expérimentales font que ce phénomène reste encore très peu observé pour des ondes classiques se propageant dans des milieux tridimensionnels [12].

Dans cette thèse, nous avons donc étudié le transport des ondes multiples diffusées dans un système modèle original constitué de billes métalliques résonantes avec pour objectif de comprendre l'impact des résonances locales sur les propriétés macroscopiques de l'échantillon. L'originalité de ce système réside dans le choix de ses constituants qui présentent de forts contrastes acoustiques et induisent des résonances très marquées.

Dans le premier chapitre nous avons détaillé le formalisme mathématique nécessaire à la compréhension des mécanismes physiques en jeu dans cette étude. L'étude de la diffusion par un diffuseur unique a été l'occasion de définir les quantités physiques et les relations utiles à l'étude de la propagation des ondes en milieux hétérogènes. Nous avons mis en évidence le caractère multipolaire des résonances des billes ainsi que leur fort pouvoir diffusant aux fréquences de résonances. Ensuite, nous avons décrit le transport de l'onde cohérente au travers de la fonction de Green moyenne. La difficulté du calcul a pu être contournée grâce à l'utilisation judicieuse d'approximations telles que l'approximation des faibles concentrations. Pour clore ce chapitre, l'étude du transport de l'intensité moyenne a mis en évidence le transfert d'énergie de l'onde cohérente vers celle des ondes incohérentes lorsque la distance de propagation devient grande devant le libre parcours moyen élastique. Avec les hypothèses de *Ladder Approximation* et une quasi-isotropisation de la diffusion, l'équation gouvernant le transport de l'intensité moyenne devient une simple équation de diffusion, au sens de diffusion de la chaleur.

Le deuxième chapitre est consacré à la fabrication des billes. Sur la base des travaux de Rawad Tadmouri [19], la production des billes de BiPbInSnCd repose sur des méthodes millifluidiques. La principale difficulté résidait dans le fait que le dispositif initial ne permettait de produire que quelques billes alors que les expériences présentées dans ce travail nécessitent l'utilisation de

centaines de milliers de billes identiques. Au total, deux grandes productions ont été faites au cours de cette thèse : une production de « petites billes » et une production de « grosses billes ». Une caractérisation optique a permis de déterminer avec précision le rayon des billes ainsi que la dispersion en taille et en forme qui n'excèdent pas quelques pourcents.

Au troisième chapitre, nous avons détaillé la méthode expérimentale d'extraction des propriétés effectives (atténuation, vitesse de phase et vitesse de groupe de l'onde cohérente). Nous les avons confrontées d'une part aux modèles de diffusion multiple classiques tels que l'*Independent Scattering Approximation*. Cette première comparaison a permis d'établir que ces modèles ne sont valides que jusqu'à une fraction volumique de 10% en diffuseurs dans nos suspensions. Au delà, le modèle de Keller apporte des corrections remarquables et confirme que l'impact des corrélations de positions courtes portées liées à la taille finie des diffuseurs doit être prise en compte afin de prédire correctement les variations fréquentielles du nombre d'onde effectif. Le deuxième enjeu de ce chapitre était de vérifier en première approximation si les échantillons étaient propices à l'observation de la localisation d'Anderson au travers du critère de Ioffe Regel. Pour cela nous avons calculé le produit  $kl_e$  dans nos suspensions à  $\phi = 20\%$ . Au plus bas, celui-ci vaut  $\sim 5$ . Cette valeur signifie que le libre parcours moyen élastique  $l_e$  est inférieur à la longueur d'onde  $\lambda$ , mais le critère de Ioffe Regel n'est pas rigoureusement respecté.

Enfin dans le dernier chapitre de ces travaux de thèse, nous avons décrit le dispositif expérimental pour l'étude du transport de l'intensité moyenne. Le dispositif a permis d'effectuer des mesures résolues en temps et en espace afin d'extraire le coefficient de diffusion effectif dans nos échantillons. Pour de faibles concentrations, nous avons validé l'approximation de la diffusion, mais pour des concentrations élevées, nous avons observé une déviation à ce régime de transport diffusif. C'est notamment à ces concentrations que les expériences de confinement transversal de l'intensité, en accord avec la *Self Consistent Theory*, ont permis de conclure positivement quant à l'observation de la localisation d'Anderson. Grâce à une analyse résolue en fréquence, nous avons mis en évidence la transition entre le régime diffusif et localisé en trouvant le seuil de mobilité. Cette observation a été confirmée avec une analyse statistique de la figure de *speckle* acoustique transmise. Ces deux études complémentaires permettent de donner une gamme de fréquences pour laquelle les ondes sont localisées.

Ainsi, ces travaux de thèse ont permis de mettre en évidence la localisation d'Anderson dans un nouveau système modèle, lorsque la concentration en diffuseur avoisine les 20%. Grâce à la SCT, nous avons trouvé la borne inférieure du seuil de mobilité. Il serait alors intéressant de chercher la borne supérieure de la localisation avec la même méthodologie pour la comparer avec celle obtenue par des méthodes statistiques.

Il serait également judicieux d'étudier l'évolution la localisation en fonction de la concentration, afin d'extraire expérimentalement une concentration minimale nécessaire à l'apparition de la localisation, et d'étudier la gamme de fréquence localisée en fonction de la concentration [91]. En effet, dans de précédent travaux à l'Université de Bordeaux, il a été montré qu'il existe une

concentration optimale pour exacerber les effets de sub-diffusion ( $\phi_{\text{opt}} = 25\%$ ), au delà, les ondes se transportent à nouveau de manière diffusive [87]. Ces travaux corroborent les récentes simulations effectuées dans le cadre de la propagation des ondes électromagnétiques pour laquelle il existe une concentration optimale pour minimiser le coefficient de diffusion ( $\phi_{\text{opt}} \approx 30\%$ ) [86]. Aussi, existe-il dans nos suspensions une concentration optimale pour l'observation de la localisation? Au-delà, la localisation disparaît-elle?

Enfin, il serait intéressant de tirer profit de la nature fluide de la matrice pour vérifier les prédictions théoriques au sujet de la dépendance spatiale du coefficient de diffusion  $D(z)$ . C'est notamment un des objectifs liés à cette thèse mais qui n'a pas pu être réalisé en raison des conditions aux limites à l'interface gel / air qui tendent à augmenter drastiquement le temps de diffusion  $\tau_D$ . Afin de contourner cette difficulté, il serait intéressant d'immerger le système dans l'eau tout en évitant la dissolution du gel porteur. Une première solution consisterait à immerger uniquement la partie inférieure et de laisser la partie supérieure à l'air libre. Une deuxième solution, plus délicate à mettre en œuvre, serait d'immerger tout le dispositif dans du gel.



# Bibliographie

- [1] N. Engheta and R. W. Ziolkowski. Metamaterials : physics and engineering explorations. John Wiley & Sons, 2006. → p. [1](#)
- [2] P. Sheng. Introduction to wave scattering, localization and mesoscopic phenomena. 2006. → p. [1](#), [16](#), [18](#)
- [3] A. Lagendijk and B. A. van Tiggelen. Resonant multiple scattering of light. Physics Reports, 270(3) :143–215, 1996. ISSN 0370-1573. doi: [10.1016/0370-1573\(95\)00065-8](#). → p. [1](#), [16](#), [17](#), [19](#), [67](#), [89](#)
- [4] P. W. Anderson. Absence of diffusion in certain random lattices. Phys. Rev., 109 :1492–1505, 1958. doi: [10.1103/PhysRev.109.1492](#). → p. [1](#), [21](#)
- [5] S. John. Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices. Phys. Rev. Lett., 58 :2486–2489, 1987. doi: [10.1103/PhysRevLett.58.2486](#). → p. [1](#)
- [6] D. S. Wiersma, P. Bartolini, A. Lagendijk, and R. Righini. Localization of light in a disordered medium. Nature, 390 :671–673, 1997. doi: [10.1038/37757](#). → p. [1](#), [21](#)
- [7] M. Störzer, P. Gross, C. M. Aegerter, and G. Maret. Observation of the critical regime near Anderson localization of light. Phys. Rev. Lett., 96 :063904, 2006. doi: [10.1103/PhysRevLett.96.063904](#). → p. [21](#)
- [8] C. M. Aegerter, M. Störzer, S. Fiebig, W. Bührer, and G. Maret. Observation of Anderson localization of light in three dimensions. J. Opt. Soc. Am. A, pages A23–A27, 2007. doi: [10.1364/JOSA.24.000A23](#). → p. [1](#), [21](#)
- [9] F. Scheffold, R. Lenke, R. Tweer, and G. Maret. Localization or classical diffusion of light? Nature, 398 :206–207, 1999. doi: [10.1038/18347](#). → p. [1](#), [21](#)
- [10] F. Scheffold and D. Wiersma. Inelastic scattering puts in question recent claims of Anderson localization of light. Nature Photonics, 7 :934, 2013. doi: [10.1038/nphoton.2013.210](#). → p. [1](#), [21](#)
- [11] S. E. Skipetrov and I. M. Sokolov. Search for Anderson localization of light by cold atoms in a static electric field. Phys. Rev. B, 99 :134201, 2019. doi: [10.1103/PhysRevB.99.134201](#). → p. [1](#)

- [12] H. Hu, A. Strybulevych, J. H. Page, S. E. Skipetrov, and B. A. Van Tiggelen. Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network. *Nature Physics*, 4 :945–948, 2008. doi: [10.1038/nphys1101](https://doi.org/10.1038/nphys1101). → p. [1](#), [21](#), [28](#), [90](#), [105](#)
- [13] W. K. Hildebrand, L. A. Cobus, and J. H. Page. A statistical approach to direct density of states measurements in disordered systems. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 127 : 2819–2824, 2010. doi: [10.1121/1.3365253](https://doi.org/10.1121/1.3365253). → p. [1](#)
- [14] A. Goicoechea, S. E. Skipetrov, and J. H. Page. Suppression of transport anisotropy at the Anderson localization transition in three-dimensional anisotropic media. *Physical Review B*, 102 :220201, 2020. doi: [10.1103/PhysRevB.102.220201](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.102.220201). → p. [2](#)
- [15] S. Kerhervé. *Transport of Ultrasonic Waves in Strongly Scattering or Absorbing Heterogeneous Media*. PhD thesis, University of Manitoba, 2018. → p. [2](#), [22](#), [95](#)
- [16] O. Lombard. *Diffusion multiple et non linéaire des ondes acoustiques dans les milieux bulleux*. PhD thesis, Sorbonne Paris Cité, 2016. → p. [2](#)
- [17] T. Brunet, A. Merlin, B. Mascaró, K. Zimny, J. Leng, O. Poncelet, C. Aristégui, and O. Mondain-Monval. Soft 3d acoustic metamaterial with negative index. *Nature Materials*, 14 :384–388, 2015. doi: [10.1038/NMAT4164](https://doi.org/10.1038/NMAT4164). → p. [2](#), [65](#), [105](#)
- [18] B. Tallon, T. Brunet, and J. H. Page. Impact of strong scattering resonances on ballistic and diffusive wave transport. *Physical Review Letters*, 119 :164301, 2017. doi: [10.1103/PhysRevLett.119.164301](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.164301). → p. [2](#), [19](#)
- [19] R. Tadmouri, M. Romano, L. Guillemot, O. Mondain-Monval, R. Wunenberger, and J. Leng. Millifluidic production of metallic particles. *Soft Matter*, 8 :10704, 2012. doi: [10.1039/c2sm25933h](https://doi.org/10.1039/c2sm25933h). → p. [2](#), [35](#), [39](#), [42](#), [105](#)
- [20] N. Cherroret, S. E. Skipetrov, and B. A. van Tiggelen. Transverse confinement of waves in three dimensional random media. *Physical Review E*, 82 :056603, 2010. doi: [10.1016/B978-0-444-88885-3.50006-8](https://doi.org/10.1016/B978-0-444-88885-3.50006-8). → p. [3](#), [22](#), [94](#)
- [21] A. Chabanov, M. Stoytchev, and A. Genack. Statistical signatures of photon localization. *Nature*, 404 :850–853, 2000. doi: [10.1038/35009055](https://doi.org/10.1038/35009055). → p. [3](#), [21](#), [22](#), [100](#)
- [22] T. M. Nieuwenhuizen and M. C. W. van Rossum. Intensity distributions of waves transmitted through a multiple scattering medium. *Physical Review Letters*, 74 :2674–2677, 1995. doi: [10.1103/PhysRevLett.74.2674](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.74.2674). → p. [3](#), [101](#)
- [23] P. S. Epstein and R. R. Carhart. The absorption of sound in suspensions and emulsions. i. water fog in air. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 25 :553, 1953. doi: [10.1121/1.1907107](https://doi.org/10.1121/1.1907107). → p. [7](#)
- [24] J. R. Allegra and S. A. Hawley. Attenuation of sound in suspensions and emulsions : Theory and experiments. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 51 :1545–1564, 1972. doi: [10.1121/1.1912999](https://doi.org/10.1121/1.1912999). → p. [7](#)

- [25] A. Ishimaru. Wave propagation and scattering in random media. 1978. → p. 13
- [26] A. Tourin. Diffusion multiple et renversement du temps des ondes ultrasonores. PhD thesis, Université Paris VII, 1999. → p. 16, 17
- [27] L. Cobus. Anderson Localization and Anomalous Transport of Ultrasound in Disordered Media. PhD thesis, University of Manitoba, 2016. → p. 22, 95
- [28] B. Tallon. Diffusion multiple résonante des ondes ultrasonores dans des milieux désordonnés. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2017. → p. 17, 20, 30, 31, 65, 79, 89
- [29] M. B. van der Mark, M. P. van Albada, and A. Lagendijk. Light scattering in strongly scattering media : Multiple scattering and weak localization. Physical Review B, 37 :3575, 1988. doi: [10.1103/PhysRevB.37.3575](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.37.3575). → p. 18
- [30] M. C. W. van Rossum and T. M. Nieuwenhuizen. Multiple scattering of classical waves : microscopy, mesoscopy, and diffusion. Review of Modern Physics, 71 :313, 1993. doi: [10.1103/RevModPhys.71.313](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.71.313). → p. 19, 86, 101
- [31] H. S. Carslaw and J. C. Jaeger. Conduction of Heat in Solids. Clarendon Press, 1959. → p. 20, 86
- [32] M. L. Cowan, J. H. Page, and P. Sheng. Ultrasonic wave transport in a system of disordered resonant scatterers : Propagating resonant modes and hybridization gaps. Physical Review B, 84 :094305, 2011. doi: [10.1103/PhysRevB.84.094305](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.094305). → p. 20
- [33] J. H. Page, H. P. Schriemer, A. Bailey, and D. A. Weitz. Experimental test of the diffusion approximation for multiply scattered sound. Physical Review E, 52 :3106, 1995. doi: [10.1103/PhysRevE.52.3106](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.52.3106). → p. 84, 86
- [34] H. P. Schriemer. Ballistic and diffusive transport of acoustic waves in random media. PhD thesis, University of Manitoba, 1997. → p. 20, 86
- [35] S. John, H. Sompolinsky, and M. J. Stephen. Localization in a disordered elastic medium near two dimensions. Phys. Rev. B, 27 :5592–5603, 1983. doi: [10.1103/PhysRevB.27.5592](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.27.5592). → p. 21
- [36] A. Ioffe and A. Regel. Non-crystalline, amorphous and liquid electronic semiconductors. Prog. Semicond, 4 :237–291, 1960. → p. 21, 28
- [37] S. Skipetrov and I. Sokolov. Ioffe-regel criterion of Anderson localization in the model of resonant point scatterers. Physical Review B, 98 :064207, 2018. doi: [10.1103/PhysRevB.98.064207](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.064207). → p. 21, 28
- [38] J. Billy, V. Josse, Z. Zuo, A. Bernard, B. Hambrecht, P. Lugan, D. Clément, L. Sanchez-Palencia, P. Bouyer, and A. Aspect. Direct observation of Anderson localization of matter waves in a controlled disorder. Nature, 453, 2008. doi: [10.1038/nature07000](https://doi.org/10.1038/nature07000). → p. 21

- [39] S. S. Kondov, W. R. McGehee, J. J. Zirbel, and B. DeMarco. Three-dimensional Anderson localization of ultracold matter. Science, 334 :66–68, 2011. doi: [10.1126/science.1209019](https://doi.org/10.1126/science.1209019). → p. 21
- [40] T. Schwartz, G. Bartal, S. Fishman, and M. Segev. Transport and Anderson localization in disordered two-dimensional photonic lattices. Nature, 446, 2007. doi: [10.1038/nature05623](https://doi.org/10.1038/nature05623). → p. 21
- [41] R. Weaver. Anderson localization of ultrasound. Wave Motion, 12 :129–142, 1990. doi: [https://doi.org/10.1016/0165-2125\(90\)90034-2](https://doi.org/10.1016/0165-2125(90)90034-2). → p. 21
- [42] A. Bretagne, M. Fink, and A. Tourin. Transverse localization of sound. Phys. Rev. B, 88 : 100302, 2013. doi: [10.1103/PhysRevB.88.100302](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.88.100302). → p. 21
- [43] D. Vollhardt and P. Wölfle. Chapter 1 - self-consistent theory of Anderson localization. Modern Problems in Condensed Matter Sciences, 32 :1–78, 1992. doi: [10.1016/B978-0-444-88885-3.50006-8](https://doi.org/10.1016/B978-0-444-88885-3.50006-8). → p. 22
- [44] D. Vollhardt and P. Wölfle. Anderson localization in  $d < \sim 2$  dimensions : A self-consistent diagrammatic theory. Physical Review Letters, 45 :842–846, 1980. doi: [10.1103/PhysRevLett.45.842](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.45.842). → p. 22
- [45] S. Skipetrov and B. van Tiggelen. Dynamics of Anderson localization in open 3D media. Physical Review Letters, 96 :043902, 2006. doi: [10.1103/PhysRevLett.96.043902](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.043902). → p. 22
- [46] N. Cherroret and S. E. Skipetrov. Microscopic derivation of self-consistent equations of Anderson localization in a disordered medium of finite size. Physical Review E, 77 :046608, 2008. doi: [10.1103/PhysRevE.77.046608](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.77.046608). → p. 22
- [47] W. K. Hildebrand. Ultrasonic waves in strongly scattering disordered media : understanding complex systems through statistics and correlations of multiply scattered acoustic and elastic waves. PhD thesis, University of Manitoba, 2015. → p. 22, 95
- [48] L. A. Cobus, W. K. Hildebrand, S. E. Skipetrov, B. A. van Tiggelen, and J. H. Page. Transverse confinement of ultrasound through the Anderson transition in three-dimensional meso-glasses. Physical Review B, 98 :214201, 2018. doi: [10.1103/PhysRevB.98.214201](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.214201). → p. 23
- [49] M. M. Sc.D. Xvi. on musical air-bubbles and the sounds of running water. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 16(104) :235–248, 1933. doi: [10.1080/14786443309462277](https://doi.org/10.1080/14786443309462277). → p. 29
- [50] W. Ostwald. Z. Phys. Chem., 34, 1900. → p. 29
- [51] P. W. Voorhees. Ostwald ripening of two-phase mixtures. Annual Review of Materials Science, 22(1) :197–215, 1992. doi: [10.1146/annurev.ms.22.080192.001213](https://doi.org/10.1146/annurev.ms.22.080192.001213). → p. 29
- [52] V. Leroy, A. Strybulevych, and J. H. Page. Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments. The Journal of the Acoustical Society of America, 123 : 1931, 2008. doi: [10.1121/1.2875420](https://doi.org/10.1121/1.2875420). → p. 29

- [53] K. Zimny, A. Merlin, A. Ba, C. Aristégui, T. Brunet, and O. Mondain-Monval. Soft porous silicone rubbers as key elements for the realization of acoustic metamaterials. American Chemical Society, 31 :3215–3221, 2015. doi: [10.1021/la504720f](https://doi.org/10.1021/la504720f). → p. 31
- [54] A. Ba, A. Kovalenko, C. Aristégui, T. Brunet, J. Leng, and O. Mondain-Monval. Soft porous silicone rubbers with ultra-low sound speeds in acoustic metamaterials. Scientific Reports, 7 :40106, 2017. doi: [10.1038/srep40106](https://doi.org/10.1038/srep40106). → p. 31, 105
- [55] Acoustic properties of solids. <https://www.ondacorp.com/images/Solids.pdf>. Date : 11 Avril 2003. → p. 32
- [56] G. E. Totten and D. S. MacKenzie. Handbook of Aluminum, Vol 1, Physical Metallurgy and Processes. Marcel Dekker, Inc., 2003. → p. 32
- [57] S. Raffy. Synthèse de métamatériaux acoustiques par voie microfluidique. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2014. → p. 34
- [58] A. Wrobel, M. Kryszewski, W. Rakowski, M. Okoniewski, and Z. Kubacki. Effect of plasma treatment on surface structure and properties of polyester fabric. Polymer, 1978 :908–912. doi: [10.1016/0032-3861\(78\)90197-0](https://doi.org/10.1016/0032-3861(78)90197-0). → p. 37
- [59] T. Brunet, S. Raffy, B. Mascaro, and J. Leng. Sharp acoustic multipolar-resonances in highly monodisperse emulsions. App. Phys. Lett, 101 :011913, 2012. doi: [10.1063/1.4733615](https://doi.org/10.1063/1.4733615). → p. 42, 59
- [60] B. Mascaro, T. Brunet, O. Poncelet, and C. Aristégui. Impact of polydispersity on multipolar resonant scattering in emulsions. J. Acoust. Soc. Am., 133 :1996–2003, 2013. doi: [10.1121/1.4792140](https://doi.org/10.1121/1.4792140). → p. 42
- [61] T. Brunet, K. Zimmy, B. Mascaro, O. Sandre, O. Poncelet, C. Aristégui, and O. Mondain-Monval. Tuning mie scattering resonances in soft materials with magnetic fields. Physical Review Letters, 111 :264301. doi: [10.1103/PhysRevLett.111.264301](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.264301). → p. 42, 59
- [62] L. L. Foldy. The multiple scattering of waves. Physical Review, 67 :107, 1945. doi: [10.1103/PhysRev.67.107](https://doi.org/10.1103/PhysRev.67.107). → p. 44, 50, 57
- [63] P. Waterman and R. Truell. Multiple scattering of waves. Journal of mathematical physics, 2 : 512, 1961. doi: [10.1063/1.1703737](https://doi.org/10.1063/1.1703737). → p. 62
- [64] J. G. Fikioris and P. C. Waterman. Multiple scattering of waves. ii. « hole corrections » in the scalar case. Journal of Mathematical Physics, 5 :1413, 1964. doi: <https://doi.org/10.1063/1.1704077>. → p. 45, 63
- [65] L. Tsang, J. Kong, and T. Habashy. Multiple scattering of acoustic waves by random distribution of discrete spherical scatterers with the quasicrystalline and percus–yevick approximation. The Journal of the Acoustical Society of America, 71 :552, 1982. doi: [10.1121/1.387524](https://doi.org/10.1121/1.387524). → p. 44, 45, 71

- [66] P. Lloyd and M. V. Berry. Wave propagation through an assembly of spheres iv. relations between different multiple scattering theories. Proceedings of the Physical Society, 91 :678, 1967. doi: [10.1088/0370-1328/91/3/321](https://doi.org/10.1088/0370-1328/91/3/321). → p. [64](#)
- [67] A. Rohfitsch, 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. Physical Review E, 102 :053001, 2020. doi: [10.1103/PhysRevE.102.053001](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.102.053001). → p. [44](#), [46](#), [105](#)
- [68] J. K. Percus and G. Yevick. Analysis of classical statistical mechanics by means of collective coordinates. A journal of experimental and theoretical physics, 110 :1, 1958. doi: [10.1103/PhysRev.110.1](https://doi.org/10.1103/PhysRev.110.1). → p. [45](#), [71](#)
- [69] S. Durant, O. Calvo Perez, N. Vukadinovic, and J. J. Greffet. Light scattering by a random distribution of particles embedded in absorbing media : full-wave monte carole solutions of the extinction coefficient. Journal of the Optical Society of America A, 9 :2953, 2007. doi: [10.1364/JOSAA.24.002953](https://doi.org/10.1364/JOSAA.24.002953). → p. [45](#), [71](#)
- [70] K. Vynck, R. Pierrat, R. Carminati, L.-S. Froufe-Pérez, F. Scheffold, R. Sapienza, S. Vignolini, and J. J. Sáenz. Light in correlated disordered media. arXiv:2106.13892 [physics.optics], 2021. doi: [10.48550/arXiv.2106.13892](https://doi.org/10.48550/arXiv.2106.13892). → p. [46](#)
- [71] A. Derode, A. Tourin, and M. Fink. Random multiple scattering of ultrasound. i. coherent and ballistic waves. Physical Review E, 64(3) :036605, 2001. doi: [10.1103/PhysRevE.64.036605](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.64.036605). → p. [51](#)
- [72] F. J. Harris. On the use of windows for harmonic analysis with the discrete fourier transform. Proceedings of the IEEE, 66(1) :51–83, 1978. doi: [10.1109/PROC.1978.10837](https://doi.org/10.1109/PROC.1978.10837). → p. [53](#)
- [73] M. Lax. Multiple scattering of waves. Reviews of Modern Physics, 236 :287, 1951. doi: [10.1103/RevModPhys.23.287](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.23.287). → p. [58](#)
- [74] 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. doi: [10.1121/1.3672690](https://doi.org/10.1121/1.3672690). → p. [63](#), [65](#)
- [75] C. M. Linton and P. A. Martin. Multiple scattering by multiple spheres : A new proof of the lloyd–berry formula for the effective wavenumber. SIAM Journal on Applied Mathematics, 66(5) :1649–1668, 2006. doi: [10.1137/050636401](https://doi.org/10.1137/050636401). → p. [64](#)
- [76] M. Lanoy, J. H. Page, G. Lerosey, F. Lemoult, A. Tourin, and V. Leroy. Acoustic double negativity induced by position correlations within a disordered set of monopolar resonators. Physical Review B, 96 :220201, 2017. doi: [10.1103/PhysRevB.96.220201](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.220201). → p. [65](#)
- [77] J. B. Keller. Stochastic processes in mathematical physics and engineering, volume 16. American Mathematical Soc., 1964. Stochastic equations and wave propagation in random media. → p. [67](#)

- [78] S. Durant, O. Calvo Perez, N. Vukadinovic, and J. J. Greffet. Light scattering by a random distribution of particles embedded in absorbing media : diagrammatic expansion of the extinction coefficient. Journal of the Optical Society of America A, 9 :2943, 2007. doi: [10.1364/JOSA.24.002943](https://doi.org/10.1364/JOSA.24.002943). → p. 67, 70
- [79] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, and M. G. Scanlon. Influence of positional correlations on the propagation of waves in complex medium with polydisperse resonant scatterers. Physical Review E, 83 :046605, 2011. doi: [10.1103/PhysRevE.83.046605](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.83.046605). → p. 68
- [80] A. Rohfritsch. Diffusion multiple en milieux désordonnés : influence des propriétés macroscopiques et microscopiques sur les ondes cohérentes. PhD thesis, Sorbonne Université, 2021. → p. 70
- [81] R. Chanamai, N. Herrmann, and D. J. McClements. Influence of thermal overlap effects on the ultrasonic attenuation spectra of polydisperse oil-in-water emulsions. Langmuir, 15 : 3418–3423, 1999. doi: [10.1021/la981195f](https://doi.org/10.1021/la981195f). → p. 75
- [82] A. K. Hipp and M. Storti, Giuseppe ans Morbidelli. Acoustic characterization of concentrated suspensions and emulsions. 2. experimental validation. Langmuir, 18 :405–412, 2002. doi: [10.1021/la015541w](https://doi.org/10.1021/la015541w). → p. 75
- [83] D. J. Durian. Influence of boundary reflection and refraction on diffusive photon transport. Physical Review E, 50 :857, 1994. doi: [10.1103/PhysRevE.50.857](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.50.857). → p. 86
- [84] J. X. Zhu, D. J. Pine, and D. A. Weitz. Internal reflection of diffusive light in random media. Physical Review A, 44 :3948, 1991. doi: [10.1103/PhysRevA.44.3948](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.44.3948). → p. 86
- [85] B. A. van Tiggelen, A. Lagendijk, M. P. van Albada, and A. Tip. Speed of light in random media. Phys. Rev. B, 45 :12233–12243, 1992. doi: [10.1103/PhysRevB.45.12233](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.45.12233). → p. 89
- [86] A. Yamilov, S. E. Skipetrov, T. W. Hughes, M. Minkov, Z. Yu, and H. Cao. Anderson localization of electromagnetic waves in three dimensions. nature physics, page 1308–1313, 2023. doi: [10.1038/s41567-023-02091-7](https://doi.org/10.1038/s41567-023-02091-7). → p. 89, 107
- [87] B. Tallon, T. Brunet, and J. H. Page. Ultrasonic wave transport in concentrated disordered resonant emulsions. Physical Review B, 108 :L060202, 2023. doi: [10.1103/PhysRevB.108.L060202](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.108.L060202). → p. 89, 107
- [88] A. Z. Genack and N. Garcia. Intensity statistics and correlation in absorbing random media. Europhysics Letters, 21 :753, 1993. doi: [10.1209/0295-5075/21/7/007](https://doi.org/10.1209/0295-5075/21/7/007). → p. 100
- [89] E. Kogan, M. Kaveh, R. Baumgartner, and R. Berkovits. Statistics of waves propagating in a random medium. Phys. Rev. B, 48 :9404–9410, 1993. doi: [10.1103/PhysRevB.48.9404](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.48.9404). → p. 100
- [90] E. Kogan and M. Kaveh. Statistics of waves propagating in a random medium. Foundations of Physics, 26 :679–690, 1996. doi: [10.1007/BF02058239](https://doi.org/10.1007/BF02058239). → p. 100

- [91] S. E. Skipetrov and I. M. Sokolov. Absence of Anderson localization of light in a random ensemble of point scatterers. Phys. Rev. Lett., 112 :023905, 2014. doi: [10.1103/PhysRevLett.112.023905](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.023905). → p. 106