

Mesure du paramètre acoustique non linéaire dans les solvants et dans les polymères

Julien Banchet

Thèse
présentée
au
Département de Physique

comme exigence partielle au grade de
Philosophae doctor (Ph. D.)
Université Concordia
Montréal, Québec, Canada

Mars, 2000

© Julien Banchet, 2000



National Library
of Canada

Acquisitions and
Bibliographic Services

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque nationale
du Canada

Acquisitions et
services bibliographiques

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-54376-5

Canada

ABSTRACT

Mesure du paramètre acoustique non linéaire dans les solvants et dans les polymères

Julien BANCHET, Ph. D.
Université Concordia, 2000

Dans cette étude, une technique d'amplitude finie visant la mesure du paramètre non linéaire B/A fut mise au point puis appliquée à trois familles de solvants à savoir les 1-alkanols, les cétones et les esters, ainsi qu'à deux polymères. Par l'intermédiaire d'une lentille acoustique, un signal fut focalisé dans le milieu à caractériser et l'amplitude du second harmonique généré, mesurée. Le paramètre non linéaire put alors être calculé pour chacun des liquides et solides testés. Les résultats obtenus concernant les liquides permirent de démontrer la variation de B/A avec la longueur de chaîne et la dépendance de ce paramètre avec la vitesse du son. Un modèle fut par la suite établi puis appliqué aux 1-alkanols, obtenant une description de la variation de B/A à la vitesse du son conforme à nos résultats expérimentaux. Le même principe de mesure fut appliqué à deux polymères, montrant le potentiel de cette technique pour déterminer la valeur du paramètre non linéaire dans les solides.

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma gratitude au Dr David Cheeke, pour avoir eu confiance en moi, et avoir pu mettre à ma disposition les éléments nécessaires à l'accomplissement de ce travail, tant au niveau intellectuel que matériel.

Je remercie également Jacques Tatibouët, pour sa disponibilité, ses conseils et son expertise.

À Sophie, pour son amour inconditionnel, son soutien, son aide, son écoute et sa patience, sans qui, au sens propre comme au figuré, aucune ligne de cette thèse n'aurait pu être écrite.

A mes parents et à ma sœur, pour leur soutien moral et financier, pour n'avoir jamais désespéré et m'avoir aidé à trouver la motivation nécessaire afin de mener à bien ce projet.

Je tiens enfin à adresser ma profonde reconnaissance à tous les membres du département de physique, et principalement Manas, Kevin et Mustapha pour leurs conseils et leurs discussions stimulantes.

TABLE DES MATIÈRES

TABLE DES FIGURES	viii
-------------------------	------

TABLE DES TABLEAUX	x
--------------------------	---

CHAPITRE 1 HISTORIQUE ET FONDEMENTS DE L'ACOUSTIQUE NON LINÉAIRE 1

INTRODUCTION	1
--------------------	---

1.1 HISTORIQUE	4
----------------------	---

1.2 L'ÉQUATION DE BURGERS DANS LES FLUIDES ET LES SOLIDES	14
---	----

1.2.1 <i>Equation de Burgers dans les fluides</i>	15
---	----

1.2.1.1 Démonstration de l'équation de Burgers dans les fluides	15
---	----

1.2.1.2 Solutions de l'équation de Burgers.....	19
---	----

1.2.2 <i>Equation de Burgers dans les solides</i>	22
---	----

1.2.2.1 Démonstration de l'équation de Burgers dans les solides.....	22
--	----

1.2.2.2 Solution de l'équation de Burgers.....	23
--	----

1.3 LE COEFFICIENT DE NON LINÉARITÉ β	25
---	----

1.3.1 <i>Le coefficient de non linéarité dans les liquides</i>	26
--	----

1.3.2 <i>Le coefficient de non linéarité dans les solides</i>	36
---	----

CHAPITRE 2 TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES 41

2.1 LES QUATRE FAMILLES DE TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES PROPRES À LA MESURE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE	41
---	----

2.1.1 <i>Techniques expérimentales dans les fluides</i>	41
---	----

2.1.1.1 Méthode thermodynamique.....	42
--------------------------------------	----

2.1.1.2 Méthode optique.....	44
------------------------------	----

2.1.1.3 Méthode de la distorsion d'onde	45
---	----

2.1.1.4 Méthode des amplitudes finies.....	46
--	----

2.1.2 <i>Techniques expérimentales dans les solides</i>	50
---	----

2.1.3 <i>Choix de technique expérimentale</i>	52
---	----

2.2	DESCRIPTIF DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL.....	53
CHAPITRE 3 B/A DANS LES FLUIDES.....		67
3.1	CORRECTIONS THÉORIQUES ET EXPÉRIMENTALES	67
3.2	MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE.....	72
3.2.1	<i>Mesure de la vitesse du son</i>	<i>72</i>
3.2.2	<i>Mesure de la quantité Att2 et détermination de $\Delta Att2$</i>	<i>75</i>
3.3	RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.....	79
3.3.1	<i>Résultats concernant la vitesse du son</i>	<i>80</i>
3.3.2	<i>Résultats concernant les paramètres non linéaires dans les solvants.....</i>	<i>83</i>
3.4	DISCUSSION.....	90
3.4.1	<i>Atténuation en fonction de la distance.....</i>	<i>90</i>
3.4.2	<i>Dépendance du paramètre non linéaire avec le nombre de carbones</i>	<i>98</i>
3.4.3	<i>Dépendance du paramètre non linéaire avec la vitesse du son.....</i>	<i>104</i>
3.4.4	<i>Modélisation des dépendances de B/A avec le nombre de carbones et avec la vitesse du son.</i>	<i>107</i>
CHAPITRE 4 B/A DANS LES POLYMÈRES.....		115
4.1	DESCRIPTION DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL.....	115
4.2	CORRECTIONS THÉORIQUES.....	117
4.3	MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE.....	122
4.3.1	<i>Mesure de la vitesse du son</i>	<i>123</i>
4.3.2	<i>Mesure de la quantité Att2 et détermination de $\Delta Att2$</i>	<i>124</i>
4.4	RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET DISCUSSION.....	127
4.4.1	<i>Résultats concernant la vitesse du son</i>	<i>127</i>
4.4.2	<i>Résultats concernant la mesure du paramètre non linéaire.....</i>	<i>128</i>
4.4.3	<i>Discussion.....</i>	<i>130</i>
CONCLUSION		132
BIBLIOGRAPHIE		135

ANNEXE 1 : COMPLÉMENTS D'INFORMATION SUR LES SOLVANTS UTILISÉS	143
ANNEXE 2 : TABLEAUX DE CALCUL DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE DANS LES SOLVANTS UTILISÉS.	144
ANNEXE 3 : CALCUL DE L'INCERTITUDE EXPÉRIMENTALE SUR B/A	147
ANNEXE 4 : CODE MAPLEV POUR LE CALCUL DES COURBES DE SIMULATION $ATT2 = F(X)$	149
ANNEXE 5 : TABLEAU DE CALCUL DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE DANS LES POLYMÈRES	152

TABLE DES FIGURES

Figure 1.1: Distorsion de l'onde d'amplitude finie avec la distance de propagation	8
Figure 1.2: Variation du paramètre non linéaire avec l'inverse de la vitesse du son, avec l'aimable autorisation de W. Madigosky.....	33
Figure 2.1: Méthode de la distorsion d'onde, avec l'aimable permission S. Takahashi.....	45
Figure 2.2: Dépendance du second harmonique avec la distance dans le cas d'une onde Gaussienne focalisée	48
Figure 2.3: Montage expérimental.....	54
Figure 2.4 : Plan de la cellule de mesure	59
Figure 3.1: Courbes $Att2 = f(x)$ pour l'eau et l'éthanol	78
Figure 3.2: Courbes $Att2 = f(x)$ pour les cinq premiers alcanols du Méthanol au 1- Pentanol.....	84
Figure 3.3 : Courbes $Att2 = f(x)$ pour les alcanols du 1-Hexanol au 1-Décanol.....	86
Figure 3.4: Courbes $Att2 = f(x)$ pour les cétones	86
Figure 3.5: Courbes $Att2 = f(x)$ pour les esters	87
Figure 3.6 : Comparaison entre les simulations théoriques et la courbe expérimentale de $Att2 = f(x)$ pour l'eau.....	91
Figure 3.7: Comparaison entre les simulations théoriques et la courbe expérimentale $Att2$ $= f(x)$ pour l'éthanol	91
Figure 3.8: Position du maximum d'atténuation en fonction de la distance normalisée à la distance focale de l'eau pour les alcanols.....	95
Figure 3.9: Position du maximum d'atténuation en fonction de la distance normalisée à la distance focale de l'eau pour les cétones.....	96
Figure 3.10: Position du maximum d'atténuation en fonction de la distance normalisée à la distance focale de l'eau pour les esters.....	96
Figure 3.11: Variation de B/A avec le nombre de carbones.....	99
Figure 3.12: Comparaison entre la loi de Ballou et les résultats expérimentaux pour les solvants et les alcanes	105

Figure 3.13: Comparaison entre les résultats expérimentaux et les prédictions théoriques du paramètre non linéaire selon le modèle de Tong et al. pour les alcanols en fonction du nombre de carbones	109
Figure 3.14: Comparaison entre les résultats expérimentaux et les prédictions du paramètre non linéaire par le modèle hybride pour les alcanols en fonction du nombre de carbones.....	111
Figure 3.15: Comparaison entre les résultats obtenus pour le modèle hybride et les résultats expérimentaux pour les alcanols concernant la variation B/A avec la vitesse du son	113
Figure 4.1: Partie acoustique du montage expérimental relatif à la mesure de l'atténuation dans les polymères	116
Figure 4.2: Calcul de la localisation du point focal dans le polymère.....	119

TABLE DES TABLEAUX

Tableau 3-1: Vitesses du son obtenues en comparaison à celles issues de la littérature ...	81
Tableau 3-2: Vitesses du son obtenues pour les cétones en comparaison à celles issues de la littérature	81
Tableau 3-3: Vitesses du son obtenues pour les esters en comparaison à celles issues de la littérature	82
Tableau 3-4 : Comparaison entre les résultats expérimentaux et les valeurs issues de la littérature pour le paramètre non linéaire sur les cinq premiers alcanols.....	85
Tableau 3-5 : Comparaison entre les B/A obtenus et les valeurs issues de la littérature ..	88
Tableau 4-1: Vitesses du son obtenues dans le polystyrène et le PMMA comparées à des valeurs issues de la littérature	127

CHAPITRE 1 HISTORIQUE ET FONDEMENTS DE L'ACOUSTIQUE NON LINÉAIRE

INTRODUCTION

L'acoustique non linéaire demeure de nos jours un champ de recherche très dynamique, conditionné par ses applications dans des domaines aussi divers que la médecine, que ce soit pour l'échographie ou le traitement thérapeutique par ultrasons, le contrôle non destructif appliqué aux chaînes de production, la sonochimie ou les appareils de détection tels que les sonars. Le domaine de l'acoustique non linéaire apparaît donc vaste et par là même, regroupe plusieurs phénomènes tels que les ondes d'amplitudes finies, l'interaction son-son, la cavitation, la « radiation pressure » ou encore le « streaming ». Pour autant, nous ne traiterons dans cette thèse que des amplitudes finies, les autres phénomènes possédant leurs propres développements théoriques et historiques. Afin d'apporter une définition de l'acoustique non linéaire, il nous paraît important de rappeler les conditions selon lesquelles on considère la propagation d'une onde régit par l'acoustique linéaire.

Dans un milieu, quel qu'il soit, une onde est régit par une équation de propagation linéaire si, d'une part, l'amplitude de l'onde est infinitésimale et si, d'autre part le temps et la distance d'observation de cette onde sont petits. Si l'une de ces deux conditions est violée, la propagation linéaire ne devient plus une manière acceptable de décrire l'évolution de cette onde au cours du temps. En effet, nous verrons comment tout au long

de l'histoire, il a été découvert qu'une amplitude faible (mais plus grande qu'infinitésimale) induit des effets non linéaires cumulatifs, qui ne peuvent plus être considérés comme négligeables. Il fut également observé que sur des temps ou distances d'observation longs, ces mêmes effets cumulatifs étaient à la source d'une distorsion de l'onde originale.

Par ailleurs, du point de vue mathématique, l'acoustique non linéaire se fonde sur une équation de propagation au deuxième ordre par rapport au nombre de Mach défini comme le rapport de la vitesse d'une particule du milieu de propagation à la vitesse de son. Dans cette ou ces équations et dans leurs solutions apparaît un paramètre, dépendant des caractéristiques physiques du milieu dans lequel l'onde se propage, appelé logiquement paramètre non linéaire. Cette quantité, sans unité, propre à chaque milieu de propagation, caractérise le degré de non linéarité du milieu, ou encore la capacité de ce milieu à générer des effets non linéaires.

Dans le travail que nous présentons, nous nous sommes attachés à mesurer le paramètre non linéaire dans différents milieux de propagation liquides ou solides, et ce, par l'intermédiaire d'une technique expérimentale simple. En choisissant des liquides issus d'une même famille chimique, nous avons pu vérifier la validité de notre technique pour les produits de cette famille dont le paramètre non linéaire était déjà connu et poursuivre l'étude pour des liquides n'ayant pas encore été caractérisés. De ce fait, nous avons pu effectuer une étude systématique sur la dépendance du paramètre non linéaire avec différentes propriétés physiques de liquides appartenant à une même famille chimique.

Nous avons en effet montré la variation du paramètre non linéaire avec la longueur de chaîne et avec la vitesse du son de ces liquides. Par ailleurs, en effectuant ces mêmes expériences sur plusieurs familles chimiques, nous avons pu généraliser ces variations à un ensemble de liquides. Il est important de noter, que ces conclusions sont pour la première fois issues d'une étude systématique et que certaines d'entre elles vont à l'encontre de théories ou de comportements supposés réels. Nous avons également, à l'aide d'un modèle modifié, pu décrire certains de ces comportements, apportant pour la première fois, une prédiction théorique correspondant aux résultats expérimentaux. Nous avons ensuite appliqué une démarche similaire à certains polymères, dans le but de tester l'applicabilité de notre technique à la détermination du paramètre non linéaire dans les solides.

Le travail ayant mené à l'ensemble de ces résultats sera présenté ici de la manière suivante. Tout d'abord, le chapitre 1, après une courte introduction, détaillera l'histoire de l'acoustique non linéaire, de ses fondements aux années 30. Par la suite, sera développé un traitement théorique visant à obtenir l'équation de Burgers, équation fondamentale décrivant la propagation non linéaire d'une onde plane progressive dans un milieu dissipatif. Pour autant, ce traitement ne sera pas chronologique, faisant appel à des découvertes relativement récentes et ce afin de présenter un développement général dont l'équation de Burgers représente un cas particulier. Ce développement fera l'objet de deux sous-parties, l'une pour les liquides et l'autre pour les solides, les équations fondamentales s'avérant différentes pour ces deux milieux. Nous traiterons également des solutions des équations de Burgers, et notamment dans le cas de choc faible. Finalement

dans une troisième partie nous examinerons plus en détail la théorie relative au paramètre non linéaire, ses différentes expressions dans les liquides et dans les solides, ainsi que les modèles utilisés pour sa prédiction.

Le chapitre 2, quant à lui, s'intéressera aux techniques expérimentales relatives à la mesure de ce paramètre. Nous y détaillerons les techniques mises au point par différents chercheurs ainsi que la description de la méthode et du montage expérimental que nous avons utilisés.

Le chapitre 3 concernera les mesures du paramètre non linéaire dans les liquides que nous avons choisis. Ce chapitre inclura également la méthodologie expérimentale utilisée, ainsi que les résultats relatifs à ces expériences, ceux du modèle théorique élaboré ainsi que les conclusions qui peuvent en être tirées.

Le chapitre 4 sera analogue au troisième, traitant cette fois ci du paramètre non linéaire dans les polymères choisis. Enfin, nous dresserons un bilan de ce travail, en proposant des avenues de recherche.

1.1 HISTORIQUE

Le premier phénomène non linéaire rapporté fut certainement celui de la Harpe Eolienne du Roi David. Bien que cet instrument existât en des temps anciens, Athanasius Kircher⁽¹⁾ fut le premier à laisser une trace écrite de sa description en 1650. Il raconta comment le vent soufflant dans les cordes de la harpe produisait la vibration de ces dernières, témoignant du premier exemple de transformation d'un flux d'air en mouvement

vibratoire. Bien que d'autres phénomènes du même type furent décrits pendant le XVIIème siècle, aucun traitement théorique n'apparut avant le XVIIIème siècle.

Le point de départ de ce développement théorique fut les efforts des scientifiques de l'époque, motivés par la volonté d'expliquer la différence entre les vitesses du son calculées et mesurées. En effet, en 1686, Newton⁽²⁾ calcula la vitesse du son à température constante d'un fluide et trouva :

$$b = \sqrt{P_0 / \rho_0} \quad (1)$$

équation directement reliée à l'équation d'état de Boyle définie par

$$P / P_0 = \rho / \rho_0 \quad (2)$$

où P_0 et ρ_0 sont les pressions et densités ambiantes, et P et ρ les pressions et densités lorsque l'onde se propage. La vitesse calculée par l'équation de Newton s'avéra 16% plus basse que celle mesurée, problème qui ne manqua pas de mobiliser les chercheurs pendant plus d'un siècle.

Il est à noter qu'aujourd'hui, cette vitesse du son est reconnue comme étant celle d'une gaz adiabatique (gaz respectant un écoulement sans échange d'énergie avec le système extérieur) où γ , le ratio des capacités calorifiques est égal à l'unité et dans le cas d'amplitudes infinitésimales. Il s'agit donc de ce que l'on appelle aujourd'hui la vitesse du son « petits signaux ».

Nombreux de ces chercheurs commencèrent donc à se questionner sur la nature de cette différence, pensant de plus en plus à un possible effet de l'amplitude de l'onde propagée : l'on assistait alors à la naissance du concept des amplitudes finies.

Les recherches se tournèrent alors vers la résolution des équations d'Euler ⁽³⁾ (équations pour un fluide parfait) qui s'énoncent de la manière suivante :

$$\frac{D\rho}{Dt} + \rho \nabla \cdot \vec{u} = 0 \quad (3)$$

$$\rho \frac{D\vec{u}}{Dt} + \nabla P = \vec{F} \quad (4)$$

où $\vec{u}$ est la vitesse d'une particule dans le fluide, P la pression totale, $\vec{F}$ l'ensemble des forces externes au fluide et $\frac{D}{Dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla$.

Alors que l'équation (3) représente le principe de conservation de la masse, l'équation (4) est l'expression de l'équation de mouvement basée sur la deuxième loi de Newton. À ces deux équations s'ajoute une équation d'état, équation reliant la pression et la densité. Euler utilisa la loi de Boyle (équation (2)) et obtint en 1759 ⁽⁴⁾ (publié en 1766) l'équation de propagation suivante :

$$b^2 \frac{\partial^2 \xi}{\partial a^2} - \left(1 + \frac{\partial \xi}{\partial a}\right)^2 \frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2} = 0 \quad (5)$$

où ξ est le déplacement de la particule dans la direction de propagation, b la vitesse définie par l'équation (1) et a la coordonnée Lagrangienne ou matérielle.

De nombreux chercheurs tentèrent de redémontrer cette équation et d'en trouver une solution. Lagrange ⁽⁵⁾ fut l'un d'eux et malgré une équation de départ incorrecte, obtint une solution de l'équation (5) s'énonçant :

$$\xi = \psi(a - bt) + \frac{1}{4} bt [\psi(a - bt)]^2 \quad (6)$$

où ψ est une fonction arbitraire. Il démontra également que cette solution était un développement limité au second ordre de

$$\xi = \psi \left[a - \left(b + \frac{1}{4}u \right) t \right] \quad (7)$$

Il suggéra alors une interprétation aujourd'hui valide de cette expression, en énonçant que le terme $(b + 1/4u)$ représentait une vitesse de propagation. Malheureusement, il rejeta cette interprétation, puisque celle-ci sous-tendait que « la vitesse du son dépendrait d'une certaine manière de la nature des perturbations initiales ⁽⁵⁾ » ce qui était contraire aux résultats expérimentaux de l'époque.

Poisson ⁽⁶⁾ quant à lui, trouva une solution exacte du système d'équations d'Euler, exprimée en coordonnées spatiales par :

$$u = g[x - (u + b)t] \quad (8)$$

$$u = G[x - (u - b)t] \quad (9)$$

où g et G sont des fonctions arbitraires.

Alors que l'équation (8) représente une solution pour les ondes se propageant dans la direction des x croissants, l'équation (9) représente la solution pour les x décroissants. Encore une fois, il fut dans l'incapacité de donner une interprétation physique de ces équations.

Il fallut attendre 1848 pour que Stokes⁽⁷⁾, comprit ce que signifiaient les solutions de Lagrange et de Poisson. Il fut en effet le premier à voir que les équations (8) et (9) traduisaient le fait que dans un fluide, les points avec une vitesse de particule positive

voyageaient plus vite que les points ayant une vitesse de particule négative. Il démontra de ce fait, qu'au fur et à mesure que l'onde se propage, l'on assiste à une distorsion de l'onde, phénomène représenté de manière schématique sur la figure 1.1.

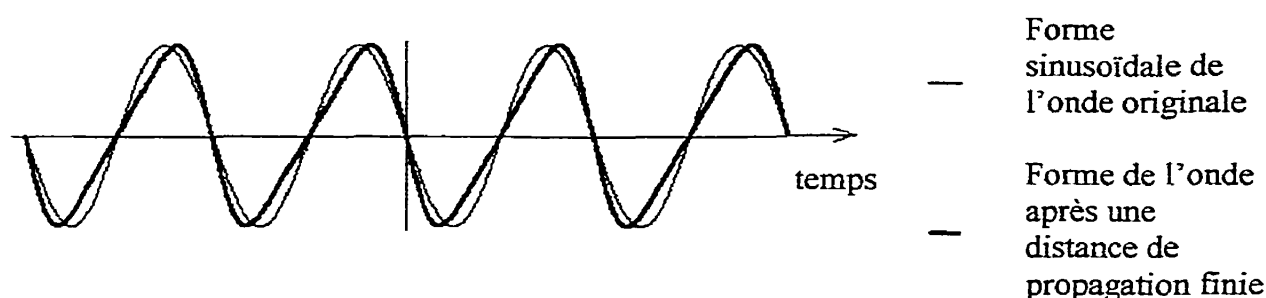


Figure 1.1: Distorsion de l'onde d'amplitude finie avec la distance de propagation

Il envisagea le fait que, la distorsion étant cumulative, il allait arriver un moment où une partie de la forme de l'onde allait être verticale, phénomène aujourd'hui appelé front d'onde, et associé à un choc. Malgré ces interprétations, Stokes fut dans l'impossibilité de décrire ce qui pouvait se passer au-delà du choc. Il eut pourtant l'intuition que les phénomènes de dissipation (viscosité et effets thermiques) allaient y jouer un rôle important.

Suite à ce développement fondamental, Airy ⁽⁸⁾ publia un article où il énonça une conséquence ou plutôt un autre point de vue sur la distorsion de l'onde. Il démontra en effet que, en utilisant la relation entre vitesse et la pression, si l'onde générée à l'origine par une quelconque source (un piston par exemple) était sinusoïdale, alors un second harmonique de la fréquence fondamentale se développait au cours de la propagation. Ce phénomène est aujourd'hui connu sous le terme d'approche spectrale, moyen de trouver

une solution à l'équation de propagation non linéaire par l'utilisation de la méthode de décomposition en séries de Fourier.

Physiquement parlant, l'on comprend qu'au fur et à mesure que l'onde se propage et se déforme, l'on assiste à un enrichissement en harmoniques, survenant grâce à un transfert d'énergie de la fréquence fondamentale vers les harmoniques de cette fréquence.

En 1860, Earnshaw⁽⁹⁾ s'intéressa de plus près au piston vibrant de manière arbitraire dans un gaz. Procédant par étapes en considérant d'abord, un gaz isotherme puis adiabatique, il trouva une solution analogue à celle de Poisson, mais pour le cas où la vitesse du piston est spécifiée à quelque temps t que ce soit alors que la solution de Poisson traduisait la vitesse de la particule quelle que soit sa localisation au temps $t=0$. La solution d'Earnshaw s'énonce :

$$u = U(\Phi) \quad t > \pm x / c_0 \quad (10)$$

$$\Phi = t - \frac{x - X(\Phi)}{\beta U(\Phi) \pm c_0} \quad (11)$$

où Φ représente le temps où un point de l'onde quitte la surface du piston, où c_0 représente la vitesse du son pour un gaz adiabatique et β un coefficient appelé plus tard coefficient de non linéarité.

Au cours de cette étude, Earnshaw leva enfin l'incompréhension qui planait sur la différence entre la vitesse du son b pour un gaz isotherme ou c_0 pour un gaz adiabatique et les vitesses mesurées. Il montra que cette différence provenait d'une part d'un phénomène de convection et d'autre part de phénomènes non linéaires. De l'équation (11), il est en effet possible d'obtenir

$$\left. \frac{dx}{dt} \right|_u = \beta u \pm c_0 \quad (12)$$

montrant que à la vitesse du son « petits signaux » s'ajoute un terme relatif à la non linéarité de la relation entre la pression et la densité.

En effet, pour un gaz où l'équation d'état est donnée par $P/P_0 = (\rho/\rho_0)^\gamma$, β s'exprime $\beta = (\gamma/2) (\gamma + 1)$ et donc le terme $\beta u = u + (\gamma/2) (\gamma - 1)u$. Le premier terme représente alors le terme convectif et le deuxième le terme non linéaire. Par ailleurs, si la relation P - ρ avait été linéaire (i.e. γ avait été égal à 1 (gaz adiabatique)), le second terme disparaîtrait ⁽¹⁰⁾. Cette dernière équation nous permet également de par son caractère récurrent, d'apprécier l'aspect cumulatif des phénomènes non linéaires.

Les développements qui suivirent furent essentiellement concentrés sur les ondes de chocs notamment grâce aux travaux d'Hugoniot ⁽¹¹⁾, qui donna l'expression de la distance nécessaire $\bar{x}$ à un choc pour se former et développa la théorie des chocs faibles, des travaux de Rayleigh ⁽¹²⁾ qui introduisit les phénomènes liés à la viscosité, et de Taylor ⁽¹³⁾ qui ajouta la conductivité thermique aux propriétés du fluide considéré. Pour autant, ces résultats découlèrent de calculs numériques ou d'approximation très restrictifs et non de la résolution des équations fondamentales incluant les effets dissipatifs précédemment mentionnés. Ces travaux, en dehors de leurs implications « au delà » du choc fournirent des éléments importants quant à la formation de ces chocs. En effet, outre le $\bar{x}$ de Hugoniot donné par

$$\bar{x} = \frac{c_0^2}{\beta u_0 \omega} \quad (13)$$

où ω est la fréquence angulaire de la source, une autre grandeur fut définie

$$l_0 = \frac{2 c_0^3}{\delta \omega^2} \quad (14)$$

où δ est la diffusivité acoustique, grandeur regroupant les effets de dissipation thermique et visqueuse. Ce l_0 révéla l'influence des effets thermiques et visqueux sur l'amplitude de l'onde se propageant dans un milieu dissipatif.

Selon les grandeurs relatives de ces variables, plusieurs cas se présentent :

- Si $\bar{x} < l_0$, le choc a le temps de se former avant que la dissipation ne réduise l'onde à l'état de signal d'amplitude infinitésimale.
- Si $\bar{x} > l_0$, l'onde est atténuée avant que les effets non linéaires ne puissent suffisamment s'accumuler afin de former un front d'onde et donc un choc.

Ceci illustre donc clairement les caractères concurrents des effets non linéaires et dissipatifs.

À ce point du développement, il est important de catégoriser ici les effets non linéaires, ces derniers étant de deux sortes : les effets non linéaires cumulatifs, dus à la variation de la vitesse de propagation et les effets non linéaires locaux tels que la différence entre coordonnées matérielles et spatiales ou le déplacement fini de la source vibrante.

Ces derniers effets sont dénommés locaux de par le fait qu'ils n'augmentent pas avec la propagation de l'onde. De ce fait, ils sont aujourd'hui dans la plupart des cas négligés⁽¹⁴⁾, fait qui n'était pourtant pas considéré dans les années 30 où de nouvelles découvertes furent effectuées. De ce fait, des équations suivantes datant de cette époque, seules les parties des solutions concernant les effets cumulatifs seront présentées, permettant une simplification de la compréhension des expressions mathématiques tout en respectant leur validité.

Les années 30 voient l'arrivée de solutions sous la forme de la décomposition de la vitesse de particule sous forme de série de Fourier. La forme générale de cette solution est donnée par :

$$u(x, \tau) = u_0 \sum_{n=1}^{\infty} B_n(x) \sin n\omega \tau \quad (15)$$

où u_0 est une amplitude de la fréquence fondamentale à la source, B_n est l'amplitude relative des harmoniques d'ordre n , ω est la fréquence angulaire de la source et $\tau = t - x/c_0$ est le temps retardé. Le but des solutions est donc d'exprimer $B_n(x)$.

Deux expressions furent trouvées dans des cas extrêmes par Fay ⁽¹⁵⁾ et Fubini ⁽¹⁶⁾.

La solution de Fay ⁽¹⁵⁾ s'exprime selon la formule suivante

$$B_n = \frac{2}{\Gamma \sinh[n(1+\sigma)/\Gamma]} \quad (16)$$

où Γ est le nombre de Goldberg défini par

$$\Gamma = \frac{\beta \varepsilon k}{\alpha} \quad (17)$$

avec $\alpha = \delta\omega^2 / 2c_0^3$ représentant l'atténuation « petits signaux » de la fréquence fondamentale et $\sigma = x/\bar{x}$, la distance relative à la distance de formation du choc.

Pour le cas d'une onde forte et à des distances relativement faibles, ou en d'autres termes pour $\Gamma \gg n(1+\sigma)$, l'équation (16) se réduit à

$$B_n = \frac{2}{n(1+\sigma)} \quad (18)$$

révélant une onde en forme de dent de scie. D'autre part, pour $\sigma \gg 1$, on obtient

$u_l = (4\alpha c_0 / \beta k) e^{-\alpha}$, où u_l est l'amplitude de l'onde après le choc et k le vecteur d'onde, valeur totalement indépendante de u_0 , signifiant physiquement qu'à une grande distance après la formation du choc, l'amplitude de l'onde ne dépend plus de son amplitude initiale.

Fubini⁽¹⁶⁾ pour sa part démontra pour un gaz parfait que :

$$B_n = \frac{2}{n\sigma} J_n(n\sigma) \quad (19)$$

où J_n est la fonction de Bessel d'ordre n . Le fait que cette solution s'applique à un gaz parfait, limite son domaine de validité dans des régions où les effets dissipatifs sont négligeables par rapport aux effets non linéaires, c'est à dire avant la formation du choc, ou encore pour $\sigma < 1$.

Fubini fut étonné de constater que sa solution n'équivalait pas à celle de Fay si l'on considérait une viscosité nulle. Nous savons aujourd'hui, que cela tient au domaine de validité de ces solutions, celle de Fay étant valable pour $\sigma \geq 3$ alors que celle de Fubini l'est pour $\sigma < 1$, Blackstock⁽¹⁷⁾ élaborant une solution pour le domaine $1 < \sigma \leq 3$.

De 1650 aux années 30, de nombreux chercheurs ont donc développé une théorie de l'acoustique non linéaire des ondes planes, en incorporant petit à petit les effets dissipatifs des milieux de propagation dans les équations de propagation. Il fut prouvé que la vitesse de propagation d'une onde d'amplitude finie n'équivalait pas à la vitesse du son, et ce à cause de la non linéarité du milieu dans lequel elle se propage. Il en découla que l'onde

d'amplitude finie se distordait lors de sa propagation jusqu'à former une onde de choc, cette dernière étant ensuite petit à petit atténuée, son amplitude ne dépendant plus de ses conditions initiales. Un corollaire à cette découverte fut que lors de sa propagation, l'onde d'amplitude finie opérait un transfert d'énergie de la fréquence fondamentale vers les harmoniques de cette fréquence.

Forts de ces découvertes, les recherches postérieures aux années 30 s'attachèrent alors à résoudre d'une manière générale le système d'équations différentielles (équations (3), (4) et équation d'état) en y incluant les facteurs dissipatifs.

1.2 L'ÉQUATION DE BURGERS DANS LES FLUIDES ET LES SOLIDES

Une des grandes aspirations des théoriciens en acoustique non linéaire après la deuxième guerre mondiale, fut d'élaborer une équation de propagation issue d'un système d'équations incorporant les effets non linéaires et dissipatifs d'un milieu de propagation. Bien que Burgers ⁽¹⁸⁾ découvrit cette équation en 1948, nous ne suivrons pas ici un traitement chronologique, mais plutôt un développement plus général et ce, afin de partir du système d'équations complet, incluant tous les termes dissipatifs, et valable pour tout type d'onde progressive. Il est à noter que ce développement suit celui de Hamilton ⁽¹⁰⁾ et sera divisé en deux parties, l'une pour les fluides et l'autre pour les solides, les équations de départ s'avérant différentes.

1.2.1 Equation de Burgers dans les fluides

1.2.1.1 Démonstration de l'équation de Burgers dans les fluides

Tout comme dans la première partie de ce chapitre, le point de départ de ce développement est constitué d'un système d'équations décrivant successivement la conservation de la masse, l'équation de mouvement, la conservation de l'énergie et une équation d'état

$$\frac{D\rho}{Dt} + \rho \nabla \cdot \vec{u} = 0 \quad (20)$$

$$\rho \frac{D\vec{u}}{Dt} + \nabla P = \mu \nabla^2 \vec{u} + \left(\mu_B + \frac{1}{3} \mu \right) \nabla \cdot (\nabla \cdot \vec{u}) \quad (21)$$

$$\rho T \frac{Ds}{Dt} = \kappa \nabla^2 T + \mu_B (\nabla \cdot \vec{u})^2 + \frac{1}{2} \mu \sum_{i,j=1,2,3} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_i} + \frac{\partial u_j}{\partial x_j} - \frac{2}{3} \delta_{ij} (\nabla \cdot \vec{u}) \right) \quad (22)$$

$$\frac{P}{P_0} = \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^\gamma \exp \left[\frac{(s - s_0)}{c_v} \right] \quad (23)$$

où μ et μ_B sont les coefficients de viscosité, κ la conductivité thermique, s l'entropie par unité de masse, δ_{ij} le symbole de Kronecker et c_v la capacité calorifique à volume constant.

La validité de ces équations repose sur l'hypothèse que les temps de relaxation des molécules sont très courts devant l'échelle de temps utilisée pour décrire la perturbation acoustique⁽¹⁰⁾.

Alors que le cas des ondes planes dans des fluides non dissipatifs ($\mu = \mu_B = \kappa = 0$) fut résolu par Riemann ⁽¹⁹⁾ en 1858, le cas des ondes planes en milieu dissipatif suit le développement suivant.

Il est tout d'abord nécessaire de se rendre compte qu'il est impossible de résoudre ce système d'équations de manière exacte et que des approximations doivent être effectuées. Notre but n'est pas ici de donner le détail des différentes étapes mathématiques régissant ces approximations, mais de décrire les conditions et la manière générale dont les calculs sont effectués afin d'aboutir à ces approximations. Pour obtenir chaque étape de la démonstration suivante, les lecteurs sont invités à se référer au chapitre 3 « Model Equations » de la référence (10).

Les procédures d'approximation se basent sur deux principes : des développements limités afin de simplifier les équations (20) et (23) et la prédominance d'un mode de vibration par rapport aux autres. D'une part, les développements limités s'effectueront par rapport aux grandeurs ε , le nombre de Mach et $\eta = \mu \omega / \rho_0 c_0^2$ représentant l'importance de la viscosité sur la fluctuation de la pression. Ces deux grandeurs sont en effet petites et du même ordre de grandeur. Ceci étant, seuls les termes jusqu'au deuxième ordre en $\tilde{\varepsilon}$, variable générique représentant indifféremment ε ou η ⁽²⁰⁾, seront retenus. D'autre part, en considérant des perturbations faibles par rapport à l'état d'équilibre, le mode acoustique devient prédominant sur les modes de vorticit  et thermique ⁽²¹⁾ pour ce qui est de la variable $\vec{u}$.

Ces conditions  tant appliqu es, le syst me d' quation (20)-(23) devient

$$\frac{\partial \rho'}{\partial t} + \rho_0 \nabla \cdot \vec{u} = -\rho' \nabla \cdot \vec{u} - \vec{u} \cdot \nabla \rho' \quad (24)$$

$$\rho_0 \frac{\partial \bar{u}}{\partial t} + \nabla P = \left(\mu_B + \frac{1}{3} \mu \right) \nabla^2 \bar{u} - \frac{1}{2} \rho_0 \nabla \bar{u}^2 - \rho' \frac{\partial \bar{u}}{\partial t} \quad (25)$$

$$\rho_0 T_0 \frac{\partial s'}{\partial t} = \kappa \nabla^2 T' \quad (26)$$

$$p = c_0^2 \rho' + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2} \right)_{s,0} \rho'^2 + \left(\frac{\partial P}{\partial s} \right)_{\rho,0} s' \quad (27)$$

où les variables prime indiquent les perturbations par rapport à l'état d'équilibre

$$(\rho' = \rho - \rho_0, T' = T - T_0, s' = s - s_0) \text{ et } p = P - P_0.$$

En remplaçant les termes du premier ordre en $\tilde{\varepsilon}$ de la partie gauche des équations (24) à (27) dans les termes du deuxième ordre en $\tilde{\varepsilon}^2$ dans les parties droites des équations (24) et (25), on obtient pour ces dernières ⁽²²⁾ :

$$\frac{\partial \rho'}{\partial t} + \rho_0 \nabla \cdot \bar{u} = \frac{1}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t} + \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial L}{\partial t} \quad (28)$$

$$\rho_0 \frac{\partial \bar{u}}{\partial t} + \nabla p = - \frac{1}{\rho_0 c_0^2} \left(\mu_B + \frac{4}{3} \mu \right) \nabla \frac{\partial p}{\partial t} - \nabla L \quad (29)$$

où L est le lagrangien de la densité au deuxième ordre défini par :

$$L = \frac{1}{2} \rho_0 u^2 - \frac{p^2}{2 \rho_0 c_0^2} \quad (30)$$

En éliminant s' par les équations (26) et (27), en éliminant la température en utilisant un développement de T en fonction de ρ' , puis en utilisant les relations thermodynamiques reliant température, pression et densité à entropie constante et enfin en éliminant ρ' , ⁽²²⁾ :

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) p + \frac{\delta}{c_0^4} \frac{\partial^3 p}{\partial t^3} = - \frac{\beta}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2} - \left(\nabla^2 + \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) L \quad (31)$$

où δ la diffusivité du son selon Lighthill ⁽²³⁾ donnée par :

$$\delta = \frac{1}{\rho_0} \left(\frac{1}{3} \mu + \mu_B \right) + \frac{\kappa}{\rho_0} \left(\frac{1}{c_v} - \frac{1}{c_p} \right) \quad (32)$$

Dans le cas d'ondes planes progressives, l'utilisation de $p = u \rho_0 c_0$ et $L = 0$ donne l'équation de Westervelt :

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) p + \frac{\delta}{c_0^4} \frac{\partial^3 p}{\partial t^3} = - \frac{\beta}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2} \quad (33)$$

Il est à noter que cette équation est en fait valide pour des ondes progressives quasi-planes, si l'on considère les effets non linéaires locaux négligeables par rapport aux effets non linéaires cumulatifs, ce qui est le cas lorsque la distance de propagation est très grande devant la longueur d'onde de la perturbation ⁽²⁴⁾.

Finalement, l'équation de Westervelt à une dimension s'exprimant :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) p + \frac{\delta}{c_0^4} \frac{\partial^3 p}{\partial t^3} = - \frac{\beta}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2} \quad (34)$$

en effectuant un changement de variables, à savoir $x_I = \tilde{\varepsilon} x$ et $\tau = t - x / c_0$, en supprimant les termes en $O(\tilde{\varepsilon}^3)$, intégrant par rapport à τ , en multipliant par $-\frac{1}{2} c_0^2$ et en effectuant le changement de variables inverse pour x_I , on obtient finalement l'équation de Burgers s'énonçant :

$$\frac{\partial p}{\partial x} - \frac{\delta}{2c_0^3} \frac{\partial^2 p}{\partial \tau^2} = \frac{\beta p}{\rho_0 c_0^3} \frac{\partial p}{\partial \tau} \quad (35)$$

Cette équation représente donc la manière la plus simple de définir la propagation d'une onde plane progressive en tenant compte des effets non linéaires et relatifs à l'atténuation dans un fluide.

Pour les ondes focalisées, la diffraction doit être ajoutée à cette équation et l'on obtient, si la direction de propagation est selon l'axe des z :

$$\frac{\partial^2 p}{\partial z \partial \tau} - \frac{c_0}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) p - \frac{\delta}{2c_0^3} \frac{\partial^3 p}{\partial \tau^3} = \frac{\beta}{2\rho_0 c_0^3} \frac{\partial^2 p^2}{\partial \tau^2} \quad (36)$$

appelée équation KZK, pour Khokhlov, Zabolostkaya, et Kuznetsov qui la démontrèrent^(25, 26). Dans cette équation, le deuxième terme représente la diffraction de l'onde : si l'onde est plane, ce deuxième terme est nul et une intégration par rapport au temps retardé nous redonne l'équation (35).

1.2.1.2 Solutions de l'équation de Burgers

Bien qu'il existe une solution générale à l'équation de Burgers, nous allons nous concentrer sur un cas précis correspondant à nos conditions expérimentales. Ce cas est celui d'une source monofréquentielle de forme $p(0,t) = p_0 \sin \omega t$. De plus, si l'on considère les variables suivantes, $\Pi = p/p_0$, $\theta = \omega \tau$, σ que nous rappelons ici comme étant $\sigma = x/\bar{x}$, et Γ le nombre de Goldberg, alors l'équation (35) devient :

$$\frac{\partial \Pi}{\partial \sigma} - \frac{1}{\Gamma} \frac{\partial^2 \Pi}{\partial \theta^2} = \Pi \frac{\partial \Pi}{\partial \theta} \quad (37)$$

Avec l'aide des fonctions de Green, il est possible d'obtenir la solution suivante^(27,28) :

$$p = p_0 \frac{4 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^{n+1} n I_n(\Gamma/2) e^{-n^2 \alpha x} \sin n \omega \tau}{\Gamma \left[I_0(\Gamma/2) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n I_n(\Gamma/2) e^{-n^2 \alpha x} \cos n \omega \tau \right]} \quad (38)$$

où I_n sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre n .

Bien qu'il soit impossible d'obtenir une expression explicite de l'équation (38), nous pouvons considérer deux cas extrêmes dans lesquels ceci est possible.

Le premier est le cas d'ondes de faibles amplitudes, ou en d'autre termes $\Gamma < 1$, ou encore que la distance nécessaire à la formation du choc est plus grande que la distance d'atténuation l_0 définie précédemment (équation (14)). Dans ce cas, on obtient, en développant en série de Taylor les fonctions de Bessel modifiées selon la méthode décrite par Blackstock⁽¹⁷⁾ :

$$p(x, \tau) = p_0 \left[\left(e^{-\alpha x} - \frac{1}{32} \Gamma^2 e^{-\alpha x} (1 - e^{-2\alpha x})^2 \right) \sin \omega \tau + \left(\frac{1}{4} \Gamma (e^{-2\alpha x} - e^{-4\alpha x}) \right) \sin 2\omega \tau + \dots \right] \quad (39)$$

ou solution de Keck-Beyer⁽²⁹⁾ (qu'ils obtinrent à l'origine par la méthode des perturbations à partir de l'équation (35)). Cette solution représente donc une solution spectrale qui dans le cas de fluides sans atténuation ou dans le cas d'observation à faible distance ($\alpha x \rightarrow 0$) revient à la solution de Fubini (équ. 19).

Si l'on se concentre sur le deuxième harmonique, on obtient :

$$p_2(x, \tau) = \frac{\beta p_0^2 \omega}{4 \rho_0 c_0^3 \alpha} (e^{-2\alpha x} - e^{-4\alpha x}) \sin 2\omega \tau \quad (40)$$

L'on peut donc remarquer que cet harmonique est proportionnel à l'amplitude de la fréquence fondamentale au carré et que le ratio de ces deux pressions est proportionnel au

coefficient de non linéarité. Si l'on peut donc mesurer ces deux pressions, et que l'on connaît le coefficient d'absorption et la vitesse du son du fluide, il est possible de déterminer son coefficient de non linéarité. C'est donc l'équation (40) qui conditionnera l'expérience visant la détermination de ce coefficient.

Le deuxième cas est celui des ondes de fortes amplitudes ou encore $\Gamma \gg 1$ et à assez grande distance de la formation du choc ($\sigma > 3$). Dans ce cas, en employant une relation asymptotique⁽¹⁴⁾ pour $I_n(\Gamma/2)$, on obtient :

$$p = p_0 \frac{2}{\Gamma} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin n\omega\tau}{\sinh[n(1+\sigma)/\Gamma]} \quad (41)$$

qui bien entendu correspond à la solution de Fay (équ. 16).

Au cours de cette partie, nous avons donc vu comment l'équation de Burgers pouvait être démontrée dans les fluides et quelles en étaient les solutions, du moins pour les cas d'ondes planes de faibles amplitudes et de fortes amplitudes. Pour le premier de ces cas, nous avons montré qu'il était possible de caractériser le coefficient de non linéarité du fluide en mesurant expérimentalement la pression relative au second harmonique et celle relative à la fréquence fondamentale. Cette expérience sera une des techniques expérimentales visant la détermination du coefficient de non linéarité présentées dans notre deuxième chapitre.

1.2.2 Equation de Burgers dans les solides

1.2.2.1 Démonstration de l'équation de Burgers dans les solides

Tout comme pour les fluides, il est possible d'obtenir une équation de Burgers pour les solides. Les équations de départ s'avèrent pour autant différentes : elles sont pour la plupart décrites en coordonnées matérielles (contrairement aux fluides où les équations (20)-(23) sont en coordonnées spatiales) et s'énoncent :

$$\rho dV = \rho_0 dV_0 \quad (42)$$

$$\rho \frac{\partial^2 \vec{U}}{\partial t^2} = \nabla_a \cdot \vec{P} \quad (43)$$

où $\vec{U} = \vec{x} - \vec{a}$, ∇_a représente la divergence en coordonnées matérielles et où $\vec{P}$ est le tenseur de Piola-Kirchoff ou autrement dit, le tenseur des contraintes en coordonnées matérielles.

En procédant de la même manière que pour les fluides, en prenant notamment le nombre de Mach comme paramètre d'ordre, et en ne considérant que les termes du second ordre en ε , on peut obtenir, dans le cas d'une onde longitudinale dans un solide isotrope⁽³⁰⁾ :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial a \partial \tau} - \frac{c_l}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial a_2^2} + \frac{\partial^2}{\partial a_3^2} \right) u - \frac{\delta}{2c_l^3} \frac{\partial^3 u}{\partial \tau^3} = \frac{\beta}{2c_l^3} \frac{\partial^2 u}{\partial \tau^2} \quad (44)$$

où $a=a_1$, a_2 et a_3 sont les coordonnées matérielles, $u = \frac{\partial U}{\partial a_1}$, c_l est la vitesse du son longitudinale, $\tau = t - a_1/c_l$ et $\delta = \rho_0^{-1} \left(\frac{4}{3} \eta + \xi + \chi \right)$, χ étant la contribution de la conductivité thermique à l'atténuation.

Cette équation a donc la forme d'une équation KZK pour les solides. Tout comme pour les fluides, si l'onde est plane, le deuxième terme est nul et une intégration par rapport à τ nous donne :

$$\frac{\partial u}{\partial a} - \frac{\delta}{2c_l^3} \frac{\partial^2 u}{\partial \tau^2} = \frac{\beta}{c_l^2} u \frac{\partial u}{\partial \tau} \quad (45)$$

, une équation analogue à l'équation de Burgers (35) pour les fluides. Cependant, il est à noter que l'équation (45) est exprimée en coordonnées matérielles et que la variable principale est la vitesse de déplacement dans la direction de propagation, alors que l'équation (35) est exprimée en coordonnées spatiales et en fonction de la pression.

1.2.2.2 Solution de l'équation de Burgers

En utilisant une méthode de perturbation sur l'équation (45) et en considérant une source telle que $U(0,t) = U_0 \sin \omega t$, on obtient⁽³¹⁾ :

$$U(a, \tau) = U_0 e^{-\alpha a} \sin n \omega \tau + \frac{\beta}{8\alpha} \left(\frac{\omega U_0}{c_l} \right)^2 (e^{-2\alpha a} - e^{-4\alpha a}) \cos 2\omega \tau + \dots \quad (46)$$

et donc pour le deuxième harmonique :

$$U_2(a, \tau) = \frac{\beta}{8\alpha} \left(\frac{\omega U_0}{c_l} \right)^2 (e^{-2\alpha a} - e^{-4\alpha a}) \cos 2\omega \tau \quad (47)$$

analogue à la solution donnée par l'équation (40). Cette relation conditionne également une technique expérimentale permettant de caractériser le coefficient de non linéarité dans les solides en mesurant les déplacements absolus relatifs à la fréquence fondamentale et au second harmonique.

Au cours de cette partie, nous avons vu comment aussi bien pour les fluides que pour les solides, une équation tenant compte des effets dissipatifs d'origine thermique et visqueuse ainsi que des effets non linéaires, équation appelée équation de Burgers pouvait être obtenue. Des solutions à cette équation furent énoncées dans le cas de choc faible et d'une source monofréquentielle pour les fluides et dans le cas d'une onde longitudinale pure provenant d'une source monofréquentielle pour les solides isotropes.

Nous avons pu remarquer au cours de cette partie, que les deux équations de Burgers (equ. 35 et 45) et leurs solutions respectives (equ. 40 et 47) comportaient le symbole β , à savoir le coefficient de non linéarité. Bien que nous en ayons aperçu quelques propriétés jusqu'à présent, nous allons poursuivre en s'attachant à détailler les expressions, les rôles et les modèles permettant de caractériser et prédire ce coefficient.

1.3 LE COEFFICIENT DE NON LINÉARITÉ β

Au cours des parties précédentes il fut montré que le coefficient de non linéarité β apparaissait au travers de plusieurs équations, et notamment dans l'équation (12) que nous rappelons ici :

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

Cette équation signifie que la vitesse de propagation d'une onde plane progressive n'est pas égale à la vitesse du son « petits signaux » mais est égale à cette dernière plus une vitesse supplémentaire donnée par le produit du coefficient de non linéarité β et de la vitesse de déplacement d'une particule appartenant au milieu. Cette équation traduit également l'aspect cumulatif des effets non linéaires propres au milieu.

Outre cette équation, la vitesse de propagation de l'onde se définit également par :

$$\left. \frac{dx}{dt} \right|_u = u + c \quad (48)$$

équation à l'origine démontrée par Earnshaw ⁽⁹⁾, où c est la vitesse du son dans un fluide isentropique (fluide où l'écoulement s'effectue sans variation d'entropie).

De ces deux équations, il découle :

$$c = c_0 + (\beta - 1)u \quad (49)$$

Cette équation lie la vitesse du son « petits signaux » à la vitesse du son mesurée dans un fluide isentropique soumis à une onde dont l'amplitude est finie. Nous allons donc nous

attacher dans cette partie à définir et caractériser β dans les liquides et les solides afin de relier l'équation (49) aux propriétés de ces milieux.

1.3.1 Le coefficient de non linéarité dans les liquides

Nous commencerons ici par rappeler l'équation d'état considérée pour les liquides (équation (23)) :

$$\frac{P}{P_0} = \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^\gamma \exp \left[\frac{(s - s_0)}{c_v} \right]$$

En effectuant un développement en série de Taylor, c'est-à-dire en considérant des variations faibles par rapport à l'état d'équilibre⁽³²⁾, on obtient :

$$P - P_0 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_{s,0} (\rho - \rho_0) + \frac{1}{2!} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2} \right)_{s,0} (\rho - \rho_0)^2 + \frac{1}{3!} \left(\frac{\partial^3 P}{\partial \rho^3} \right)_{s,0} (\rho - \rho_0)^3 + \dots \quad (50)$$

En considérant $p = P - P_0$, $\rho' = \rho - \rho_0$, cette équation peut se mettre sous la forme :

$$p = A \left(\frac{\rho'}{\rho_0} \right) + \frac{B}{2!} \left(\frac{\rho'}{\rho_0} \right)^2 + \frac{C}{3!} \left(\frac{\rho'}{\rho_0} \right)^3 + \dots \quad (51)$$

avec

$$A = \rho_0 \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_{s,0} \equiv \rho_0 c_0^2 \quad (52)$$

$$B = \rho_0^2 \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2} \right)_{s,0} \quad (53)$$

$$C = \rho_0^3 \left(\frac{\partial^3 P}{\partial \rho^3} \right)_{s,0} \quad (54)$$

Nous pouvons alors construire B/A , rapport du terme quadratique au terme linéaire ⁽³³⁾ du développement en série de Taylor et l'on obtient :

$$\frac{B}{A} = \frac{\rho_0}{c_0^2} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2} \right)_{s,0} \quad (55)$$

Ce quotient représente donc l'importance des propriétés non linéaires du milieu par rapport à ses propriétés linéaires. Par ailleurs, il est possible de démontrer que pour une onde d'amplitude infinitésimale, le deuxième terme et les termes d'ordres supérieurs dans l'équation (50) seront négligeables.

B/A est donc un autre moyen de caractériser les effets non linéaires relatifs à la propagation d'une onde d'amplitude finie et est appelé paramètre acoustique non linéaire, ou paramètre non linéaire, ou encore paramètre non linéaire de Beyer. Nous utiliserons la deuxième appellation dans ce qui suit.

Nous pouvons maintenant tenter d'élaborer un lien entre ce paramètre et le coefficient de non linéarité. Pour cela, il suffit de différencier l'équation (51) par rapport à la densité, et ce à entropie constante, et d'utiliser la définition de la vitesse du son à savoir :

$$c^2 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_s \quad (56)$$

pour obtenir

$$\frac{c^2}{c_0^2} = 1 + \frac{B}{A} \left(\frac{\rho'}{\rho_0} \right) + \dots \quad (57)$$

En prenant la racine carrée de cette expression et en effectuant un développement limité au premier ordre, on arrive à :

$$c = c_0 + \frac{B}{2A}u \quad (58)$$

$\frac{B}{2A}u$ représente donc la correction due à la non linéarité de la relation entre la pression et la densité de la vitesse du son à la vitesse du son « petits signaux ».

En utilisant l'équation (58) et l'équation (49), on obtient finalement :

$$\beta = 1 + \frac{B}{2A} \quad (59)$$

Le coefficient de non linéarité et le paramètre non linéaire sont donc reliés, chacun d'entre eux étant un moyen de caractériser la non linéarité du milieu de propagation. Dans cette équation, le deuxième terme provient de la non linéarité de la relation entre la pression et la densité, alors que le premier terme est relié à la convection qui dans le cas d'une onde plane provient exclusivement de la non linéarité de l'équation de continuité⁽³⁴⁾.

En outre, l'expression (58) n'est valable que si l'on ne tient compte que du premier terme dans l'équation (57). Même si cette approximation est tout à fait valable dans les liquides, il en va autrement dans des milieux extrêmement non linéaires, notamment pour les roches, où les termes C/A , D/A et les suivants ne sont plus négligeables et bien entendu rentrent dans la définition du coefficient de non linéarité⁽³⁵⁾.

De plus, dans le cas où il n'y a pas qu'une source d'onde plane mais deux, et de surcroît non colinéaires, Blackstock montra que β avait pour expression⁽³⁴⁾ :

$$\beta = \cos\theta + \frac{B}{2A} \quad (60)$$

où θ représente l'angle entre les deux ondes.

Afin de caractériser ou de mesurer B/A , il est nécessaire de proposer des alternatives à l'équation (55). En effet, pour les liquides, il est difficile de faire varier leur densité de manière adiabatique et d'en mesurer la pression, étant donné leur faible compressibilité⁽³⁶⁾. D'autres définitions furent donc données telles que^(33, 37).

$$\frac{B}{A} = 2\rho_0 c_0 \left(\frac{\partial c}{\partial P} \right)_{s,0} \quad (61)$$

ou encore

$$\frac{B}{A} = 2\rho_0 c_0 \left(\frac{\partial c}{\partial P} \right)_{T,0} + \frac{2\alpha_T c_0 T_0}{c_P} \left(\frac{\partial c}{\partial T} \right)_{P,0} \quad (62)$$

où α_T est le coefficient de dilatation thermique.

Cette dernière équation conditionne d'ailleurs la mesure du paramètre non linéaire par la méthode expérimentale dite thermodynamique (cf Chap 2 section 2.1.1.1).

Nous avons également vu au cours de la partie 1.2.1.2 que le coefficient de non linéarité était directement proportionnel au rapport de l'amplitude du second harmonique à l'amplitude de l'onde à sa fréquence fondamentale au carré. L'équation (40) nous permet donc de pressentir une autre manière de mesurer β et donc B/A , méthode appelée technique des amplitudes finies (cf. chapitre 2 section 2.1.1.4).

Outre les différentes expressions de B/A ouvrant des portes quant aux techniques expérimentales permettant de le caractériser, de nombreux chercheurs se sont attachés à élaborer des modèles permettant de prédire ce paramètre.

Les différents modèles se caractérisent en deux grandes familles : ceux se basant sur un potentiel intermoléculaire de type Lennard-Jones et ceux se basant sur une équation d'état différente de la relation pression-densité décrite précédemment.

La première catégorie regroupe des modèles ayant pour but d'exprimer B/A en fonction de variables thermodynamiques connues. Ils sont basés sur l'expression de B/A en fonction de γ , le rapport des capacités calorifiques à volume et pression constante.

Endo⁽³⁸⁾ parvint à montrer que :

$$\frac{B}{A} = (k-1) + (\gamma-1) \left[2k-1 - \frac{3}{\beta_s \beta_T} \left(\frac{\partial \beta_T}{\partial T} \right)_P \right] + (\gamma-1)^2 \left\{ k+1 + \frac{1}{\alpha} \left[\frac{1}{T} + \frac{3}{\alpha} \left(\frac{\partial \beta_s}{\partial T} \right)_P - \frac{3}{\beta_T} \left(\frac{\partial \beta_T}{\partial T} \right)_P - \frac{1}{c_P} \left(\frac{\partial c_P}{\partial T} \right)_P \right] \right\} \quad (63)$$

où

$$k = \left[\partial \left(\frac{1}{\beta_T} \right) / \partial P \right]_T \quad (64)$$

β_T étant la compressibilité isotherme et β_s la compressibilité adiabatique.

Dans le cas d'un potentiel de Lennard Jones de forme $\Phi = (Mr^{-d} - Nr^{-e})$ avec $d = 6$ et $e = 12$, on obtient $k = 8$. B/A est donc égal à 7 plus les termes en expansion de $(\gamma - 1)$.

Il fut démontré immédiatement après ⁽³⁹⁾ qu'à partir de relations empiriques se basant sur des travaux expérimentaux que nous verrons dans le deuxième chapitre, il était possible de calculer B/A même si la valeur de γ n'était pas connue.

Un autre modèle obtint des résultats similaires en considérant l'hypothèse selon laquelle le liquide était composé d'un système de sphères dures. Ceci permit d'utiliser la solution de l'équation de Percus-Yevick ^(40, 41, 42) d'où fut tirée la compressibilité isotherme :

$$\beta_T = \left(\frac{1}{\rho k_B T} \right) \left[\frac{(1-y)^4}{(1+2y)^2} \right] \quad (65)$$

où k_B est la constante de Boltzmann et y le paramètre de compacité pour une sphère de rayon R , défini par $y = (\pi \rho R^3)/6$. Il fut alors démontré que ⁽⁴³⁾ :

$$\frac{B}{A} = 1 + 4y \left(\frac{1}{1-y} + \frac{1}{1+2y} \right) + \frac{1}{T\alpha_T} \quad (66)$$

Une variante fut proposée à ce modèle ⁽⁴⁴⁾ en se basant sur une autre équation intégrale que celle de Percus-Yervick, développée par Martynov et Sarkisov ⁽⁴⁵⁾. Il est à noter que ces deux derniers modèles sont de plus adaptables à des systèmes composés de plusieurs liquides.

Après des efforts pionniers en la matière ⁽⁴⁶⁾, l'équation (63) fut également utilisée pour relier différents paramètres non linéaires ⁽⁴⁶⁻⁴⁸⁾, notamment entre les paramètres acoustiques K et K' de Rao ^(49, 50) et le paramètre thermodynamique de Gruneisen G ⁽⁵⁰⁻⁵⁵⁾ :

$$B/A = 2K + 2\gamma K'' \quad (67)$$

$$B/A = 2[K' + \gamma + G(1-n)/n] \quad (68)$$

avec n la constante moléculaire. Ces relations ont donc permis de calculer B/A de différentes manières selon les données disponibles dans la littérature ou par expérimentation, et d'établir une théorie générale des paramètres non linéaires dans les liquides.

Enfin, des modèles utilisant des potentiels intermoléculaires de Mie de forme $\Phi = (M'r^{-d'} - N'r^{-e'})$ où $d' > e'$ furent utilisés. Hartmann trouva ⁽⁴⁶⁾ , en considérant le

rapport des capacités calorifiques constant, que le potentiel intermoléculaire était un potentiel ne dépendant que de la distance r entre deux molécules, et que le deuxième terme de l'équation (62) pouvait être négligé donnant:

$$\frac{B}{A} = \frac{[d'(d'+e') - e'(e'+3)(V/V_0)^{-(d'-e')/3}]}{3[(d'+3) - (e'+3)(V/V_0)^{-(d'-e')/3}]} \quad (69)$$

où V_0 correspond à la séparation moléculaire où le potentiel intermoléculaire est minimum.

A la suite de cette expression, le même auteur développe également une formule tentant de justifier une formule empirique appelée loi de Ballou ⁽³⁷⁾ originalement trouvée pour les métaux liquides, et reliant B/A à l'inverse de la vitesse du son. Cette loi empirique s'énonce :

$$\frac{B}{A} = -0.5 + \frac{(1.2 \cdot 10^4)}{c} \quad (70)$$

alors que la loi trouvée par Hartmann, dérivant de l'équation (69) pour $d' = 9$ et $e' = 6$, et considérant que la valeur minimum du potentiel intermoléculaire Φ_0 était identique pour tout liquide appartenant à une même famille s'énonce :

$$\frac{B}{A} = 2 + \frac{1}{c} (96 \gamma \Phi_0)^{1/2} \quad (71)$$

Ce dernier résultat apporta une justification théorique à la loi empirique, et tout comme cette dernière, décrit une augmentation linéaire de B/A avec l'inverse de la vitesse du son. Bien qu'à l'origine cette loi fut établie pour les métaux liquides, elle fut généralisée à tous les matériaux. Pourtant aujourd'hui, cette généralisation apparaît douteuse, étant donnée la grande dispersion des points expérimentaux sur le graphe B/A en fonction de $1/c$.

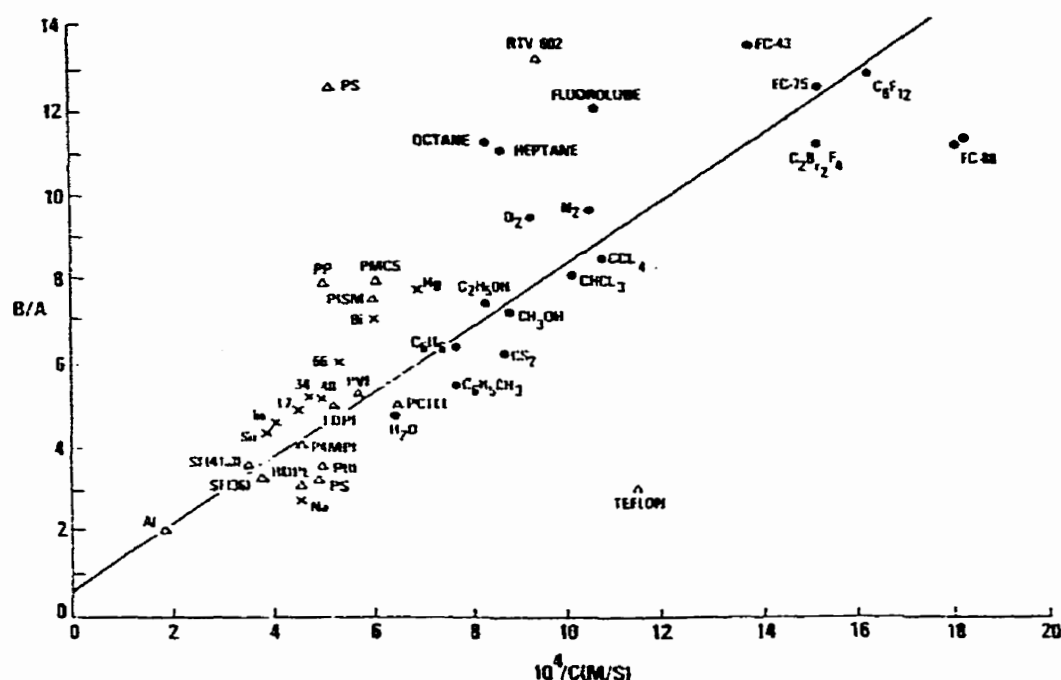


Figure 1.2: Variation du paramètre non linéaire avec l'inverse de la vitesse du son, avec l'aimable autorisation de W. Madigosky

De ce fait, des avenues de recherche furent lancées. D'une part, l'argument mentionnant qu'il faudrait une loi pour chaque famille de liquides fut renforcé, les propriétés physiques, structurales et chimiques étant si différentes d'une famille à l'autre qu'il paraissait peu probable qu'une loi unique puisse décrire universellement la dépendance de B/A avec l'inverse de la vitesse du son ^(56, 57).

D'autre part, la linéarité de la relation fut mise en cause et par calcul numérique, Frank et al. ⁽⁵⁶⁾, montrèrent que pour une famille de liquides, B/A exhibait plus une relation parabolique avec $1/c$ qu'une relation linéaire.

L'autre famille de modèles tentant de prédire le coefficient de non linéarité s'appuie sur une équation d'état différente de celle utilisée de manière conventionnelle.

Un de ces modèles se base sur une équation originellement établie pour des polymères ⁽⁵⁸⁾, équation qui reproduit de manière précise les courbes PVT de polymères fondus ⁽⁵⁹⁾ et de polymères vitreux semi-cristallins ⁽⁶⁰⁾. Dans ce modèle ⁽⁶¹⁾, des données expérimentales constituant les courbes PVT de liquides choisis (n-alcanes) sont utilisés afin de déterminer les trois paramètres ajustables de l'équation d'état. Avec l'aide de données publiées sur les capacités calorifiques de ces liquides, B/A put être calculé, ainsi que sa dépendance en fonction de la température, pression et longueur de chaîne. Nous reviendrons sur ces points dans nos discussions relatives aux liquides au chapitre 3.

Enfin, le dernier modèle se base sur une expression de la vitesse du son démontrée par Schaffs ⁽⁶²⁾, cette dernière se fondant sur l'équation de Van der Waals appliquée aux liquides. En effet, si cette dernière s'énonce :

$$\left[P + \left(w/V^2 \right) \right] (V - w') = RT \quad (72)$$

où P est la pression du liquide, w et w' des constantes, T la température absolue et R la constante de gaz parfait, alors si ^(62, 63)

$$\left(\frac{\partial w'}{\partial \rho} \right)_T = - \frac{2\rho V}{3\rho^2} \quad (73)$$

et

$$\left(\frac{\partial w}{\partial \rho} \right)_T = 0 \quad (74)$$

l'équation de Van der Waals est valable pour les liquides organiques à température ambiante et à la pression atmosphérique.

Dans ce cas, la vitesse du son s'exprime

$$c = \sqrt{\gamma RT \left(\frac{\rho V}{3(\rho V - \rho w')^2} - \frac{2}{\rho V - \rho w'} \right)} \quad (75)$$

En considérant le fluide comme un système de sphères dures⁽⁶⁴⁾ possédant un rayon moléculaire indépendant de la température, il est alors possible, en utilisant le fait que w' représente quatre fois le volume d'une molécule et que γ peut être considéré comme constant, d'exprimer les dérivées partielles de la vitesse du son par rapport à la température et à la pression en fonction de $1/w'$. Par utilisation des relations thermodynamiques classiques:

$$\frac{B}{A} = (\gamma - 1) \frac{1}{T \alpha_p} + \frac{2(3 - 2z)^2}{3(z - 1)(6 - 5z)} \quad (76)$$

où α_p est l'expansivité isobarique et $z = V/w'$.

Il apparaît donc possible, en connaissant les capacités calorifiques, l'expansivité isobarique et la constante w' , de calculer B/A .

Tous ces modèles, quels qu'ils soient définissent B/A en fonction de paramètres physiques ou thermodynamiques généralement connus. Ils obtiennent sans exception, des résultats possédant au plus 5% d'erreur sur les mesures expérimentales du paramètre non linéaire. En revanche, aucun d'entre eux n'est capable de décrire de manière satisfaisante certaines dépendances de B/A avec certaines grandeurs physiques (notamment la vitesse du son)

révélées par les résultats expérimentaux. Nous examinerons ce point plus en détail au cours du chapitre 3.

Il fut montré que pour les liquides, le coefficient de non linéarité possédait un terme issu de la convection et un terme issu de la non linéarité de la relation entre la pression et la densité. Ce dernier terme, B/A , appelé paramètre non linéaire, représente la contribution des effets non linéaires à la correction de la vitesse du son par rapport à la vitesse du son « petits signaux ». Ce paramètre étant d'importance pour caractériser un liquide, de nombreuses expressions et modèles furent développés, principalement pour des solutions ne comportant qu'un seul liquide (pour des systèmes comportant plusieurs liquides, se rapporter aux références 65 et 66). Sous le couvert de différentes hypothèses et démarches, ces modèles réussirent à prédire de manière convenable les valeurs de B/A pour des liquides purs, bien que certains comportements de ce paramètre n'aient pas jusqu'à présent trouvé de bases théoriques ou d'explications physiques.

1.3.2 Le coefficient de non linéarité dans les solides

Comme nous l'avons vu dans la section 1.2.2.1, il est possible d'obtenir une équation de Burgers pour la propagation d'une onde plane longitudinale dans les solides (équation 45), équation démontrée à l'origine par Goldberg⁽⁶⁷⁾, en coordonnées Eulériennes. En coordonnées Lagrangiennes, l'équation (45) peut se mettre sous la forme⁽⁶⁸⁾ :

$$\rho_0 \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - k_2 \frac{\partial^2 u}{\partial a^2} = (3K_2 + K_3) \frac{\partial u}{\partial a} \frac{\partial^2 u}{\partial a^2} \quad (77)$$

où K_2 et K_3 sont des combinaisons linéaires de constantes élastiques du deuxième et troisième ordres.

De ce fait, Breazeale⁽⁶⁸⁾ définit le coefficient de non linéarité pour les solides par analogie avec les liquides, comme étant le rapport négatif du coefficient non linéaire au coefficient linéaire:

$$\beta = -\frac{(3K_2 + K_3)}{K_2} \quad (78)$$

Par ailleurs, pour les ondes transverses, l'équation (77) s'énonce⁽⁶⁹⁾:

$$\rho_0 \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - K_2 \frac{\partial^2 u}{\partial a^2} = K_3 \frac{\partial u}{\partial a} \frac{\partial^2 u}{\partial a^2} \quad (79)$$

et donc

$$\beta = -\frac{K_3}{K_2} \quad (80)$$

D'une manière plus générale, aussi bien pour les ondes longitudinales que transverses, le coefficient de non linéarité peut se définir comme⁽⁷⁰⁾:

$$\beta_m = \frac{(C_{jlpq}\delta_{ik} + C_{ijql}\delta_{kp} + C_{jkql}\delta_{ip} + C_{ijklpq})N_j N_l N_q w_i w_k w_p}{C_{ijkl}N_j N_l w_j w_k} \quad (81)$$

où m est l'indice du mode de propagation, N_i les composantes en coordonnées cartésiennes du vecteur d'onde, w_i les composantes du vecteur de polarisation et les C_{ijkl} les constantes élastiques de Brugger⁽⁷¹⁾. L'on s'aperçoit donc qu'il est possible de définir un coefficient de non linéarité pour chaque mode de propagation.

Dans tous les cas, comme pour les liquides, β représente l'influence des effets non linéaires par rapport aux effets linéaires relatifs au milieu de propagation d'une onde. Encore une fois, par analogie avec les liquides, un paramètre non linéaire B/A peut donc être défini.

En effet, en réécrivant l'équation (77) en coordonnées Eulériennes ⁽⁷²⁾, on obtient

$$\rho_0 \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \left[K_2 + (3K_2 + K_3) \frac{\partial u}{\partial x} \right] \quad (82)$$

De plus, pour un solide non dissipatif, l'équation générale du mouvement s'énonce :

$$\rho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} = \frac{\partial T_{ij}}{\partial y_i} \quad (83)$$

où T_{ij} représente les composantes du tenseur de contraintes.

Après manipulation mathématique, l'utilisation du développement en série de Taylor de la relation entre la pression et la densité (équation (51)), et en considérant l'hypothèse d'une onde longitudinale pure ⁽⁷³⁾, on obtient

$$\rho_0 \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \left[1 - \left(2 + \frac{B}{A} \right) \frac{\partial u}{\partial x} \right] \quad (83)$$

En utilisant la définition du coefficient de non linéarité (équation (78)) et par comparaison avec l'équation (82), il en résulte ⁽⁷⁷⁾

$$\frac{B}{A} = \frac{B_s}{K_2} \left(\frac{\partial K_2}{\partial p} \right)_s \quad (85)$$

où B_s est le module de compressibilité, ou encore

$$\frac{B}{A} = 2 \left\{ \frac{1}{\beta_r} \left(\frac{\partial \ln c_t}{\partial p} \right)_r + (\gamma - 1) \left[\frac{1}{\beta_r} \left(\frac{\partial \ln c_t}{\partial p} \right)_r - \frac{1}{\alpha_r} \left(\frac{\partial \ln c_t}{\partial T} \right)_p \right] \right\} \quad (86)$$

montrant que B/A est mesurable par la variation de la vitesse longitudinale par rapport à la pression et la température.

Les dépendances du coefficient de non linéarité furent également démontrées, notamment en fonction de la température ⁽⁷⁴⁾, des contraintes et de la concentration en précipités ⁽⁷²⁾ ou en fonction de fractures ⁽⁷⁵⁾ présents dans les solides.

Pour les solides, le coefficient de non linéarité introduit dans l'équation de Burgers se définit donc par analogie au coefficient de non linéarité défini pour les fluides. De la même manière, un paramètre non linéaire peut être introduit en utilisant la non linéarité de la relation entre la pression et la densité. Cependant, ces variables non linéaires affichent des dépendances différentes de celles des liquides, inhérentes aux propriétés du milieu de propagation.

Au cours de ce chapitre, nous avons pu retracer l'évolution de l'acoustique non linéaire au cours du temps. Ce domaine de la physique a mis en lumière, et ce grâce aux recherches menées sur la différence entre les vitesses du son calculées et mesurées, les effets non linéaires cumulatifs menant à la distorsion d'une onde se propageant dans un milieu.

Trouvant leur origine principalement dans l'amplitude finie de l'onde se propageant et la non linéarité de la relation entre la pression et la densité de ce milieu, les chercheurs ont

pu développer une théorie incluant la résolution des équations fondamentales de conservation de la masse et des équations de mouvement.

Il fut alors proposé de définir un coefficient de non linéarité comprenant un paramètre de non linéarité, variable témoin de l'importance des effets non linéaires par rapport aux effets linéaires reliés à la propagation. S'affichant comme une caractéristique physique propre au milieu de propagation et dépendant de phénomènes résultant de propriétés physiques de ce milieu, le coefficient de non linéarité et plus précisément le paramètre non linéaire revêtent donc une grande importance quant à la possibilité qu'ils offrent de quantifier la non linéarité d'un matériau.

Nous allons donc examiner dans le chapitre suivant, quelles sont les techniques expérimentales qui furent mises au point afin de mesurer ces variables non linéaires et décrire par la suite, la technique que nous avons choisi ainsi que notre montage expérimental.

CHAPITRE 2 TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES

Au fur et à mesure que la théorie de l'acoustique non linéaire se développait, de nombreux chercheurs, jusqu'à aujourd'hui, mirent au point des techniques expérimentales tentant notamment de mesurer le coefficient et le paramètre non linéaires.

Outre leur rôle de paramètre caractéristique de chaque matériau, il fut découvert dans les années 80 que les variables représentaient un moyen de diagnostic médical ⁽⁷⁶⁾ ou de témoin de l'état structural des solides ^(77,78). Ces découvertes poussèrent donc le raffinement des techniques expérimentales afin d'obtenir une précision toujours plus grande. Au cours de ce chapitre, nous allons donc détailler les différentes techniques de mesure de ces variables, puis justifier le choix d'une de ces techniques pour notre travail et enfin décrire les éléments constitutifs de notre montage expérimental.

2.1 LES QUATRE FAMILLES DE TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES PROPRES À LA MESURE DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE

2.1.1 Techniques expérimentales dans les fluides

Les différentes méthodes expérimentales de caractérisation du paramètre non linéaire découlent généralement des différentes expressions ou phénomènes physiques liés à ce paramètre. Ces méthodes se divisent en quatre familles, que sont la méthode thermodynamique, la méthode optique, la méthode de distorsion d'onde et la méthode des amplitudes finies.

2.1.1.1 Méthode thermodynamique

Cette technique se base sur l'équation (62) que nous rappelons ici :

$$\frac{B}{A} = 2\rho_0 c_0 \left(\frac{\partial c}{\partial P} \right)_T + \frac{2c_0 T \alpha_T}{cP} \left(\frac{\partial c}{\partial T} \right)_P$$

Cette équation nous montre donc, qu'en connaissant certains paramètres thermodynamiques du milieu de propagation il est possible d'obtenir le paramètre non linéaire en mesurant les variations de la vitesse du son par rapport à la pression et à la température, respectivement à température et pression constante. Cette technique fut mise au point par Coppens et al. ⁽⁷⁹⁾, qui critiquait ouvertement les résultats obtenus auparavant pour B/A par des chercheurs ⁽³³⁾ utilisant une autre technique.

Pour ce faire, Coppens et al. utilisèrent un vélocimètre, c'est à dire une chambre hermétique, avec à chacune de ses extrémités, des transducteurs de quartz possédant une fréquence de résonance identique. Une onde générée par le premier transducteur se propageait alors dans le fluide à caractériser, cette onde étant reçue par le deuxième transducteur. En connaissant de manière précise la distance entre les deux transducteurs et en mesurant le temps de propagation de l'onde dans le milieu, ils purent donc mesurer la vitesse du son relative au fluide testé. Ces mesures furent effectuées pour différentes pressions et températures, ces deux paramètres étant modifiés à l'aide d'une pompe manuelle pour le premier, et grâce à la variation de la température du bain dans lequel était plongé la chambre pour le deuxième.

Grâce à cette technique, il fut démontré que B/A ne variait que peu sur l'ensemble des liquides organiques (de 9.03 à 10.72), et ne dépendait que peu de la température (le

deuxième terme de l'équation (62) est négatif et très petit devant le premier terme). De plus, B/A pour l'eau pure fut trouvé égal à 5.22.

D'autres chercheurs s'attachèrent par la suite à modifier cette technique nécessitant, a priori, la connaissance de paramètres thermodynamiques (notamment la capacité calorifique à volume constant). La possibilité d'effectuer des expériences se basant sur une équation différente de B/A comme celle donnée par l'équation (61) fut donc examinée.

Les premiers à emprunter cette voie furent Zhu et al. ⁽⁸⁰⁾, qui décidèrent de mesurer la vitesse du son à entropie constante, ceci étant réalisé en variant très faiblement la pression à l'intérieur d'une cellule de mesure. De cette manière, la variation de la vitesse du son mesurée par différence de temps entre les échos lors de la variation de la pression put être mesurée en ne faisant varier qu'un seul paramètre, ne dépendant donc plus de paramètres a priori connus. Une méthode similaire fut mise au point par Sehgal et al. ⁽⁷⁶⁾ transformant l'équation (61) en :

$$\frac{B}{A} = -\frac{2\rho_0 c_0^3}{L\omega} \left(\frac{\partial \Phi}{\partial p} \right)_{s,0} \quad (87)$$

où L est la longueur de l'échantillon dans lequel l'onde se propage et Φ la phase $2\pi n$, n étant le nombre de cycles acoustiques que l'échantillon peut contenir à une pression donnée. Ainsi en faisant varier la pression de manière rapide, la différence de phase put être mesurée (de manière à ce que aucun transfert de chaleur n'ait pas le temps de s'effectuer) et le paramètre B/A calculé. Il est à noter que ces expériences furent menées sur des tissus biologiques, possédant une compressibilité supérieure aux liquides, permettant ainsi de réunir les conditions nécessaires à un processus adiabatique.

Cette méthode thermodynamique s'avéra relativement précise offrant une incertitude de $\pm 3\%$ sur la détermination du paramètre non linéaire ⁽⁸⁰⁾.

2.1.1.2 Méthode optique

Cette méthode se base sur l'utilisation de l'onde acoustique comme réseau de diffraction pour une onde lumineuse ⁽⁸¹⁾. Il fut montré que l'intensité pour quelque ordre de diffraction que ce soit pouvait être reliée à B/A ^(82, 83) par :

$$I_n(Z) = \left| \sum_{k=-\infty}^{\infty} J_{n-2k}(Z) J_k(C_2 Z^2) \right|^2 \quad (88)$$

où J_n est la fonction de Bessel d'ordre n , Z est relié à la pression et C_2 est une constante proportionnelle au coefficient de non linéarité, les autres constantes rentrant dans cette dernière relation étant connues. En se servant de C_2 comme d'un paramètre ajustable, il fut possible de générer des courbes $J_n(Z)$ épousant la forme des courbes de diffraction expérimentales.

C_2 fut alors extraite de cette équation et β calculé, menant à des B/A affichant une erreur de 8% ⁽⁸⁴⁾ par rapport aux valeurs admises pour différents liquides. Il est à noter que cette technique nécessite un milieu de propagation parfaitement transparent, contrainte posant des problèmes pour des échantillons biologiques.

2.1.1.3 Méthode de la distorsion d'onde

Comme nous l'avons vu au premier chapitre, lorsqu'une onde d'amplitude finie se propage dans un milieu non linéaire, elle se distord. Il fut alors démontré ⁽⁸⁵⁾ que le paramètre de « dent de scie » ν peut être défini comme le rapport de la distance entre les tangentes d'un demi cycle d'onde sinusoïdale, ou les tangentes d'un demi cycle d'onde distordue et la longueur d'onde sur 4. De même, ce paramètre ν peut être défini comme 2π fois la distance x_I entre les amplitudes maximums d'une onde sinusoïdale et d'une onde distordue divisé par la longueur d'onde (cf. fig 2.1).

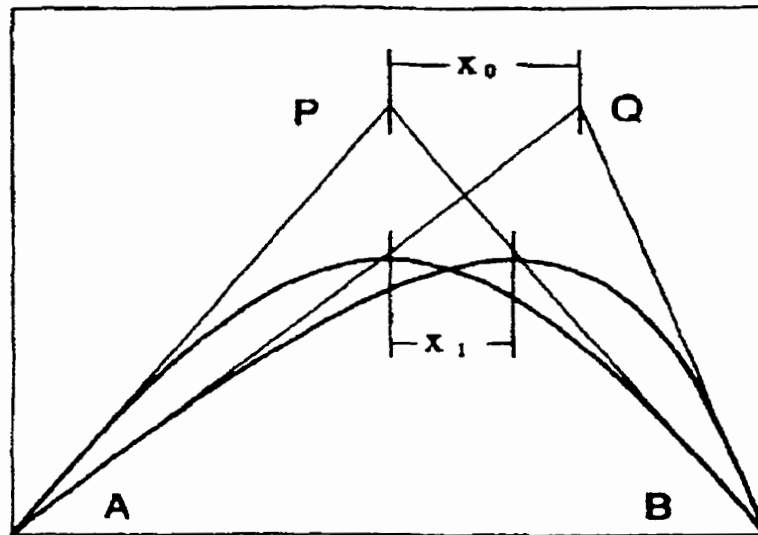


Figure 2.1: Méthode de la distorsion d'onde, avec l'aimable permission S. Takahashi

En utilisant ces relations, on obtient ⁽⁸⁶⁾ :

$$\frac{B}{A} = \frac{\nu \rho_0 c_0^3}{P_0 \pi f x} - 2 \quad (89)$$

où f est la fréquence et x la distance de propagation. Bien que cette technique fut simple à réaliser, nécessitant la seule présence d'un hydrophone pour la mesure de v , les résultats obtenus ⁽⁸⁷⁾ affichèrent une déviation relativement importante par rapport aux valeurs admises pour B/A (jusqu'à 15% pour certains liquides).

2.1.1.4 Méthode des amplitudes finies

Cette dernière méthode se base sur l'enrichissement en harmonique d'une onde d'amplitude finie se propageant dans un liquide. Il fut montré dans le premier chapitre (équation (40)) que dans le cas d'une onde plane, le paramètre non linéaire était directement proportionnel au rapport de la pression du second harmonique sur la pression de la fréquence fondamentale au carré.

De ce fait, des montages expérimentaux furent mis au point, utilisant deux transducteurs piezoélectriques, l'un produisant le signal acoustique à la fréquence fondamentale et l'autre recevant le second harmonique après son passage dans le milieu à caractériser ⁽³⁷⁾. Ces expériences s'effectuèrent dans des liquides mais aussi dans des échantillons biologiques ⁽⁸⁸⁾ en utilisant des ondes considérées planes produites par un transducteur assimilé à un piston. Cependant, une énergie considérable dut être utilisée afin de générer l'amplitude acoustique nécessaire à la génération du second harmonique afin que ce dernier pût être détecté par le transducteur récepteur.

Aussi, à la suite de travaux sur la microscopie acoustique, il fut découvert que l'utilisation d'une lentille acoustique focalisant l'onde interrogatrice pouvait concentrer l'énergie dans

la région focale et donc produire de forts effets non linéaires, en utilisant un signal de départ de relativement faible amplitude ^(89, 90). En utilisant cette technique, le transfert d'énergie de la fréquence fondamentale vers les harmoniques ⁽⁹¹⁾, la variation de l'intensité du second harmonique en fonction de la distance entre la lentille générant le signal et le transducteur récepteur ^(89, 90) furent montrés expérimentalement.

Ce dernier point fut également expliqué théoriquement au travers de la modélisation du champ acoustique généré par un agent focalisant ⁽⁹²⁻⁹⁴⁾, utilisant notamment une source Gaussienne et l'équation KZK (équation (36)).

Ceci mena aux expressions du second harmonique avec la distance de propagation x dans le cas d'une onde focalisée ^(95, 96), dépendance décrite sur la figure 2.2, où l'abscisse représente la distance entre la lentille acoustique et le transducteur de réception moins la distance focale de la lentille dans le liquide testé et l'ordonnée l'atténuation du second harmonique par rapport à l'amplitude maximum:

Sur cette figure, trois régions peuvent être observées. Premièrement pour une distance entre la lentille et le transducteur inférieure à la distance focale, ($x \ll 0$) la distance et la puissance de l'onde ne parviennent qu'à générer un second harmonique de très faible amplitude, et ce malgré la nature cumulative des effets non linéaires.

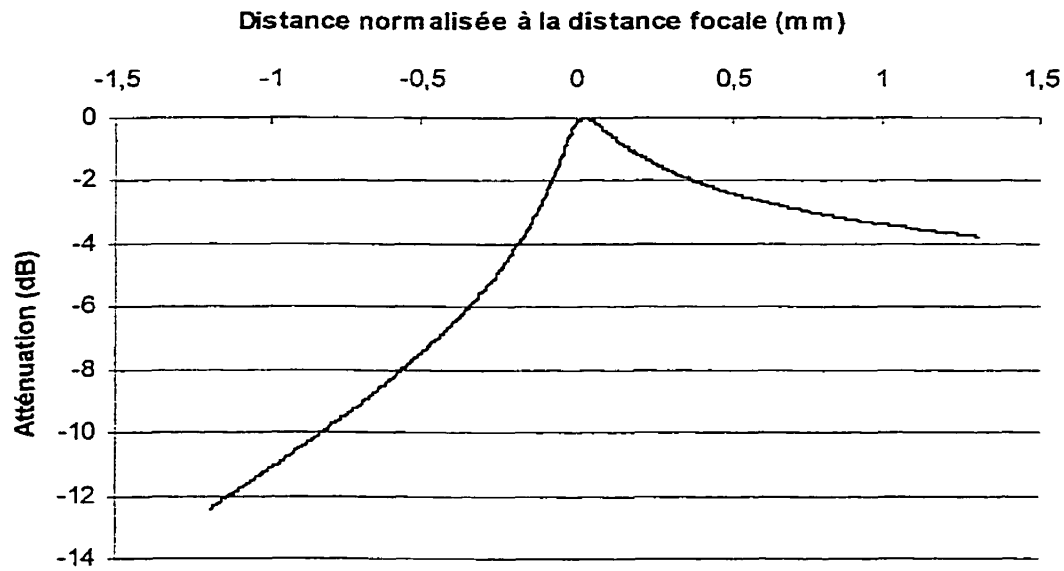


Figure 2.2: Dépendance du second harmonique avec la distance dans le cas d'une onde Gaussienne focalisée

Ensuite pour $x < 0$, l'amplitude du second harmonique augmente pour atteindre un maximum à la distance focale, montrant que les conditions de puissance et distance ne sont réunies que dans une région proche de la distance focale (distance pré focale ⁽⁹⁷⁾).

Dans la troisième région ($x > 0$), on assiste à une chute de l'amplitude du second harmonique, que l'on peut assimiler à un transfert inverse d'énergie du second harmonique vers la fréquence fondamentale. Ceci peut être expliqué par le fait que, bien que le second harmonique soit encore produit dans la région post-focale, devant donc normalement s'ajouter à l'amplitude de l'harmonique produit dans la région pré focale. Cependant, il est bien connu que pour des ondes sphériques focalisées, les surfaces équiphases subissent une inversion au point focal (multiplication par -1), menant à un changement de phase brutal égal à π ⁽⁹⁸⁾, et donc à des interférences destructives entre les

deux harmoniques produits dans les régions pré et post focales . De plus, le milieu de propagation possédant une atténuation acoustique certaine, une quantité plus faible de second harmonique est produit dans la région post focale que dans la région pré focale, si bien que la somme des deux ne résulte pas en un niveau de second harmonique nul.

Ainsi, à cause de ce comportement, de nombreux chercheurs ont utilisé le point focal comme point de mesure de l'amplitude ⁽⁹⁹⁾ ou l'amplitude complexe ^(100, 101) ou la phase ⁽⁸⁰⁾ du second harmonique pour calculer le paramètre non linéaire.

D'autres ont préféré utiliser deux ondes de fréquences différentes et mesurer l'amplitude de la somme ou la différence de ces deux fréquences pour calculer B/A ⁽¹⁰²⁾ ou encore une « triple transition » ⁽¹⁰³⁾, à savoir la mesure de l'amplitude de l'écho résultant de la réflexion de l'onde focalisée sur le transducteur récepteur, puis sur la lentille, et ce pour obtenir une plus grande amplitude du second harmonique.

Ces méthodes obtinrent des résultats divers au cours du temps, obtenant à force d'inclure de plus en plus de facteurs auparavant négligés, une excellente précision. Elles furent d'ailleurs comparées à d'autres techniques, obtenant une précision équivalente à la méthode thermodynamique ⁽¹⁰⁴⁾, et donnant de meilleurs résultats que la technique optique ⁽⁸⁴⁾.

Au cours de cette partie, les différentes techniques permettant d'obtenir expérimentalement le paramètre non linéaire furent explorées. Grâce à ces méthodes, des valeurs de B/A furent obtenues sur de nombreux liquides, organiques ou métalliques, sur des tissus biologiques, ces valeurs de B/A pouvant être retrouvées dans les références (37)

et (105-107). Bien que parmi ces références et beaucoup d'autres, une grande disparité existe entre les différentes valeurs trouvées pour un même liquide et donc qu'il apparaît difficile de fixer une valeur définitive de B/A pour chacun des liquides, la référence (37) représente la source la plus fréquemment citée comprenant donc les B/A admis comme valides.

2.1.2 Techniques expérimentales dans les solides

Pour ce qui est des solides, les techniques expérimentales se basent sur l'équation (46). La variable à mesurer va donc être la vitesse de déplacement de la face du solide opposée au transducteur émetteur et non plus la pression comme pour le cas des liquides.

Il est à noter que les techniques expérimentales dans le cas des solides n'utilisent que des ondes planes, et ce du fait de la forte anisotropie régnant de manière générale dans ces matériaux, et également du fait de la nécessité d'un contact parfait entre une lentille acoustique et le matériau testé dans le cas des ondes focalisées, chose difficilement réalisable pour les solides.

La première technique basée sur un récepteur capacitif fut mise au point par Gauster et al.⁽¹⁰⁸⁾. Pour ce faire, un échantillon, ses deux faces étant optiquement polies, possède un transducteur piézo-électrique collé sur une de ses faces. De l'autre côté du solide réside un espace de 5 μm constitué d'air en dessous duquel se trouve une électrode. Ainsi en mesurant la variation de la capacité du système formé de l'échantillon conducteur, de

l'espace d'air et de l'électrode, il est possible de calculer le déplacement absolu de la surface de l'échantillon en fonction du temps. Les deux amplitudes des déplacements correspondant à la fréquence fondamentale et au deuxième harmonique sont alors obtenus et le coefficient de non linéarité calculé d'après l'équation (47), ce qui dans le cas où l'on néglige l'atténuation donne :

$$\beta = \frac{8U_2}{U_1^2 k^2 L} \quad (90)$$

où $k=2\pi/\lambda$ et L est la longueur de l'échantillon.

Cette technique permet de mesurer des coefficients de non linéarité dans de nombreux solides et de déterminer des constantes élastiques d'ordre supérieur en fonction de la température ⁽¹⁰⁹⁻¹¹¹⁾, mais possède les inconvénients de requérir une lourde préparation d'échantillon et d'être quasiment impossible à réaliser sur des matériaux isolants ⁽¹¹²⁾.

Aussi, une autre méthode fut mise au point capable de palier les inconvénients de la méthode précédente en utilisant deux transducteurs piézo-électriques collés sur chacune des faces de l'échantillon solide. En utilisant les modèles de Sittig et Mason, Wu et al. ⁽¹¹³⁾ calculèrent la réponse en fréquence du transducteur récepteur leur permettant ainsi par déconvolution et transformée de Fourier d'obtenir le déplacement $U(t)$. Ensuite, avec l'aide de l'équation (46), ils tracèrent le $U(t)$ théorique puis l'ajustèrent pour se superposer au $U(t)$ expérimental en utilisant β comme paramètre ajustable. En tenant compte des corrections pour la diffraction et l'atténuation ultrasonore, β put être évalué pour différents polymères.

Ces deux techniques (et principalement la première) ont permis de mesurer un grand nombre de constantes élastiques et de paramètres non linéaires, bien que l'une et l'autre ne soient pas excessivement simple à mettre en œuvre. Nous allons dans la partie suivante justifier le choix de l'une de ces techniques pour réaliser notre travail et présenter notre dispositif expérimental.

2.1.3 Choix de technique expérimentale

Dans ce qui suit, la méthode utilisée sera celle des amplitudes finies en ondes focalisées, aussi bien pour les liquides que pour les solides, choix justifié par la simplicité du montage expérimental.

Pourtant, bien qu'utilisant des ondes focalisées, nous nous limiterons à une approximation d'ondes planes, tout du moins pour la région focale. Cela signifie que nous ne prendrons pas en compte les effets de diffraction. Bien que cela soit généralement une erreur appréciable dans le cas d'ondes focalisées, cela revêt moins d'importance dans notre cas, dans le sens où nous ne cherchons pas à déterminer la distribution du second harmonique en fonction de la distance de propagation, et où nos mesures se situeront extrêmement près du point focal.

D'une manière schématique, pour les liquides, un transducteur piézo-électrique fut collé à une lentille acoustique générant un pulse dans le liquide à tester. Un transducteur récepteur, situé à la distance focale par rapport à la cavité de la lentille, put recevoir le

signal harmonique pour l'envoyer à un récepteur-amplificateur puis à un oscilloscope. L'amplitude de ce signal fut alors mesurée et le paramètre non linéaire calculé. Pour les solides, le principe resta le même, insérant entre la lentille et le transducteur récepteur, la plaque de polymère à tester.

Ceci est un descriptif n'ayant pour seul but que de donner l'idée générale du fonctionnement de ce montage expérimental. Ce dernier va d'ailleurs constituer le sujet de notre prochaine partie, chaque élément du montage y étant décrit de manière plus complète.

2.2 DESCRIPTIF DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL

Le montage expérimental est représenté de manière schématique sur la figure suivante.

Un générateur de pulse rf constitue le premier élément de ce montage. Le modèle 6000 de la compagnie MATEC fut utilisé, générateur pouvant délivrer jusqu'à 1000 Watts de puissance sur une gamme de fréquence comprise entre 10 et 500 MHz. Cet appareil nous a permis de générer un pulse rf de 1 μ s répété à une fréquence de 50 Hz et centré autour de la fréquence de résonance du transducteur émetteur (cette dernière ayant auparavant été mesurée sur un analyseur de réseau, et la fréquence centrale du pulse ayant été ajustée à l'aide d'un analyseur de spectre). Il est à noter, que conformément aux conseils du fabricant, le MATEC fut utilisé à pleine puissance afin d'obtenir une meilleure stabilité du signal.

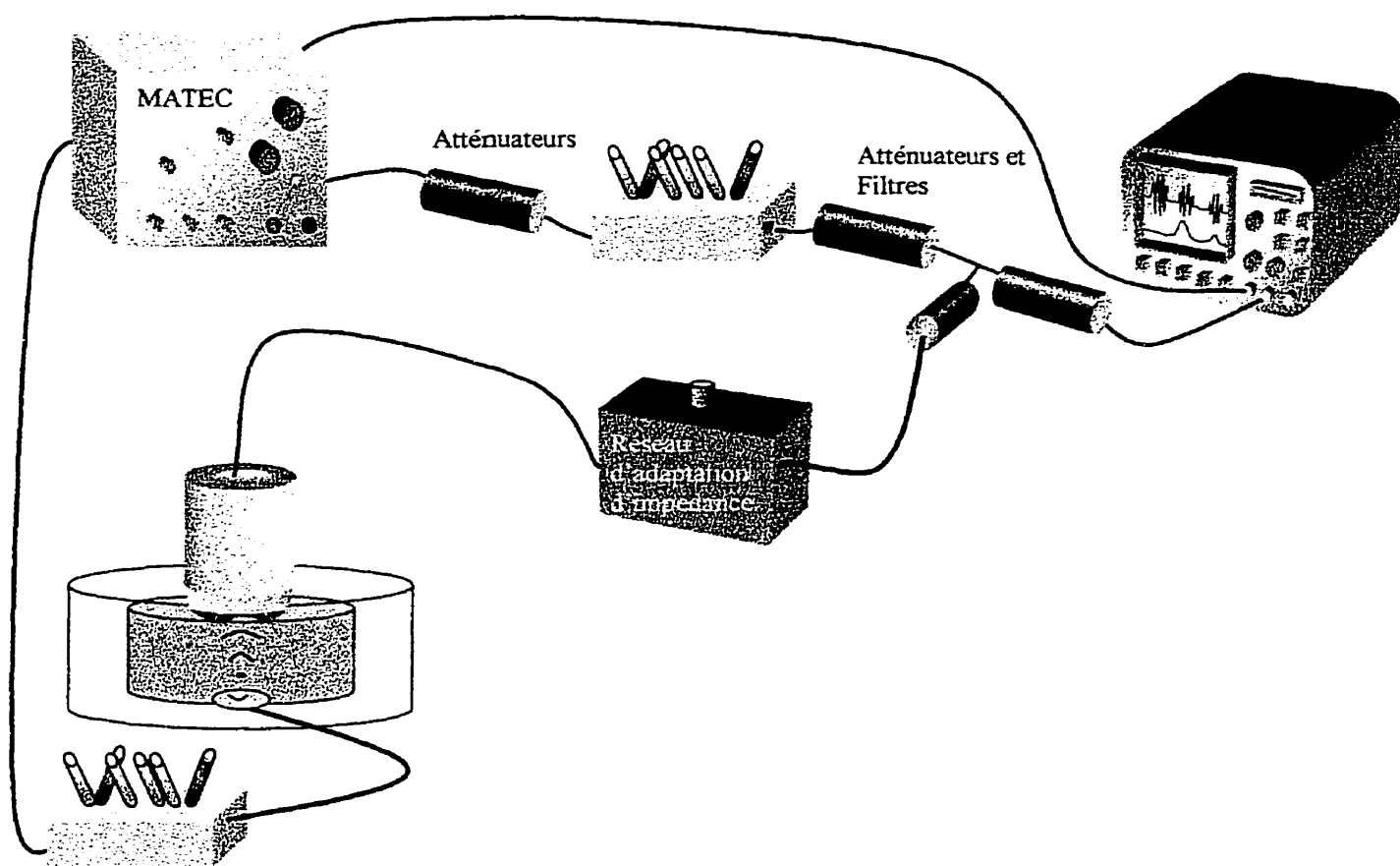


Figure 2.3: Montage expérimental

En contrepartie, deux atténuateurs fixes de respectivement 9 dB et 3 dB, dont le premier supportant des hautes puissances furent placés en série afin d'atténuer le signal provenant du MATEC et ne pas endommager le reste du circuit. Un atténuateur variable manuel, modèle 567 de la compagnie KAY ELEMETRICS, possédant une atténuation maximum de 22.1 dB et une précision de 0.1 dB, fut placé à la suite des atténuateurs fixes. Cet atténuateur manuel, appelé Att1, fut utilisé afin de modifier le voltage à l'entrée du

transducteur. En effet, l'expérience fut réalisée en tentant de garder la pression acoustique relative à la fréquence fondamentale, constante au point focal, et ce quels que soient les liquides testés. Étant données les différentes impédances acoustiques et les différents coefficients d'atténuation de ces liquides, il fallut, pour ce faire, varier le voltage à l'entrée du transducteur, fonction remplie par Att1 (cf. Chap 3 pour plus de détails sur le calcul du voltage).

Après être passé par cette chaîne d'atténuateurs, le signal fut filtré par un BLP-15 de chez Mini Circuits, filtre passe-bas possédant une fréquence de coupure à 15 MHz. Cet élément fut utilisé afin d'éliminer les éventuels harmoniques électroniques générés par le MATEC ou les atténuateurs, harmoniques pouvant être causés par l'action du haut voltage sur l'électronique de ces appareils.

Le signal fut alors séparé par un T en deux branches, chacune d'entre elles comportant un atténuateur fixe de 3dB de chez Mini-Circuits, assurant ainsi la symétrie en impédance de ces deux branches, et un autre BLP-15.

La première branche servit à véhiculer une partie du signal vers un canal de l'oscilloscope digital modèle 320 de la compagnie Tektronix. Cet oscilloscope, possédant un taux d'échantillonnage de 400 Mégacycles par seconde, fut utilisé afin de visualiser le signal généré par le MATEC, ainsi que les échos résultant des différentes réflexions provoquées par les différences d'impédance dans la partie acoustique du montage.

La deuxième branche du T servit à diriger le signal vers la partie acoustique de la chaîne expérimentale.

Cette partie se compose d'un transducteur piézo-électrique en Niobate de Lithium de la compagnie Valpey-Fisher, exhibant une fréquence de résonance de 14 MHz. Alors que son diamètre total est de 6 mm, la partie active du transducteur possède un diamètre de 3 mm, le reste du transducteur étant constitué d'électrodes coaxiales en or sur lesquelles furent soudées à froid des fils d'argent.

Afin de compenser le caractère principalement capacitif de ce transducteur, un réseau d'adaptation d'impédance, constitué d'une bobine à inductance variable fut placé en amont du transducteur. En ajustant la valeur de l'inductance de cette bobine, il fut alors possible de réduire l'argument de l'impédance complexe du système à 0 et par là-même, d'augmenter la perte d'insertion du transducteur, permettant ainsi une plus grande efficacité dans le transfert du signal électrique vers le signal acoustique.

L'élément suivant de ce montage consiste en une lentille acoustique que nous avons fabriquée à partir d'un cylindre en quartz de 1 cm de long et 1 cm de diamètre, poli optiquement des deux côtés provenant de la compagnie Boston Piezo-Optics. Pour ce faire, la face inférieure du cylindre fut biseautée à 45 degrés, laissant toutefois un cercle de 2.25 mm de diamètre intact. Au centre de ce cercle, situé sur l'axe de symétrie du cylindre, fut percé un pré-trou, d'une profondeur de 0.2 mm.

La pièce obtenue fut ensuite placée dans une polisseuse construite à l'Université de Sherbrooke. Cette machine consiste en une tête rotative à vitesse variable placée sur un bras articulé possédant un système de déplacement. Au bout de cette tête rotative, il est possible de placer des embouts qui contiennent des billes de polissage de différents diamètres (compagnie Small Parts). Dans notre cas, une bille de rubis synthétique d'un

diamètre de 3.244mm fut utilisée. La lentille, fut alors placée dans un réceptacle de manière à ce que la bille de rubis se niche dans le pré-trou et que l'axe de la tête rotative soit parfaitement vertical et aligné avec l'axe du cylindre de quartz. Le polissage fut effectué sous l'action de la rotation de la bille de rubis dans un agent abrasif constitué d'eau et de poudre d'alumine. Trois grosseurs ($14\mu\text{m}$, $9\mu\text{m}$, $3\mu\text{m}$) de poudre furent utilisées afin d'obtenir une cavité sphérique au diamètre et état de surface voulus. Le polissage fut arrêté lorsque le cercle originellement intact fut totalement consommé.

La caractérisation de la lentille fut effectuée à l'aide d'un microscope optique possédant une résolution focale de $1\mu\text{m}$. Le diamètre de la cavité fut évalué à 2.200 mm, son rayon de courbure à de 1.622 mm et que son profil ne possédait qu'une erreur maximum de $10\mu\text{m}$ sur la courbure théorique (ce qui représente 10% de la longueur d'onde dans l'eau à 14 MHz, et s'avère donc tout à fait acceptable).

La lentille obtenue, fut collée au transducteur émetteur par l'intermédiaire d'une cire, caractérisée par une température de fusion de 40°C . Pour ce faire, une goutte de cire fondue fut déposée sur la partie supérieure de la lentille, le transducteur placé et centré et une légère pression fut appliquée sur ce dernier pendant le temps de refroidissement de la cire afin de limiter l'épaisseur de la couche de liaison et chasser les éventuelles bulles d'air présentes dans cette couche.

L'ensemble transducteur-lentille, fut alors placé dans un tube d'aluminium (que nous appellerons désormais porte-lentille) de diamètre intérieur de 11 mm afin que la lentille puisse juste y coulisser. L'ensemble transducteur-lentille y fut glissé puis collé avec de la colle époxy et enfin des joints entre la paroi d'aluminium et la lentille furent réalisés en

silicone, afin d'assurer l'étanchéité de l'ensemble. Par une ouverture sur le côté du tube, les fils d'argent issus du transducteur furent soudés à un connecteur SMA, solidaire du tube. L'ouverture fut ensuite comblée avec du silicone afin d'obtenir un ensemble parfaitement hermétique.

Cet ensemble fut ensuite fixé sur un système de déplacement X-Y-Z contrôlé par ordinateur. Ce système de déplacement se constitue de trois tables de translation M426 et M436 de la compagnie Newport, commandées par des moteurs pas à pas 850F de la même compagnie. Ces moteurs possèdent une distance totale de parcours de 2 pouces pour l'axe des X et des Y, et de 1 pouce pour l'axe des Z, tous affichant une incertitude inférieure à 1.5 μm . Ces trois moteurs sont reliés à la carte MM2000 de la compagnie National Instruments, permettant de commander les moteurs sous DOS ou par l'intermédiaire du langage de programmation LabView. Les mouvements de la lentille furent donc contrôlés par ces moteurs et un programme LabView que nous avons écrit (les détails du fonctionnement de ce programme seront donnés au chapitre 3).

Le signal issu du transducteur fut donc transmis et focalisé par la lentille dans le liquide à tester, liquide contenu dans la cellule de mesure.

Cette cellule (fig. 2.4) se compose de deux parties cylindriques en aluminium s'emboîtant l'une dans l'autre de manière étanche grâce à un joint torique. La partie inférieure de la cellule est constituée d'un cylindre perforé possédant sur sa partie extérieure en faux-plat où un contact SMA est vissé, faux plat centré autour d'une gouttière menant au trou central. De plus, symétriquement à ce faux plat, le cylindre possède une cavité

cylindrique (A) percée de deux trous menant au trou central (B). Le plus gros de ces conduits, permet l'introduction de l'aiguille d'une seringue afin d'injecter le liquide à tester au centre de la cellule, l'autre trou servant d'évacuation d'air. La cavité cylindrique sert quant à elle de réservoir à ce liquide.

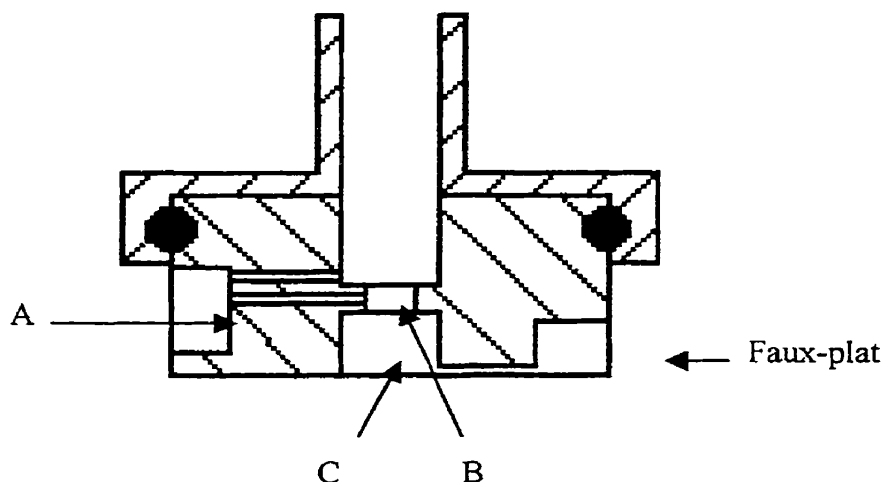


Figure 2.4 : Plan de la cellule de mesure

Par ailleurs, la face inférieure de ce cylindre possède un renflement (C) de diamètre supérieur au trou central permettant au transducteur d'y être placé. Le liquide se situe donc au dessus du transducteur, dans le trou central. Il est à noter que le diamètre de ce trou varie de 3 mm pour la face inférieure de cette partie (diamètre de la partie active du transducteur), à 13 mm, diamètre permettant au porte-lentille d'y coulisser. De plus, l'épaisseur de cette partie inférieure est telle que lorsque l'épaule du porte lentille accote le dessus de cette pièce, la cavité de la lentille ne touche pas le transducteur récepteur.

La partie supérieure de cette cellule de mesure se compose d'un autre cylindre perforé, évidé et possédant un épaulement. Cet épaulement est utilisé afin de recueillir l'excès de liquide ayant pu s'échapper de la cavité de mesure et le trou oblong situé à sa surface permet d'introduire une seringue afin d'aspirer cet excédent. La partie supérieure de l'épaulement dont le diamètre est de 13 mm est utilisé comme guide pour le porte-lentille. Il est donc nécessaire, lorsque les deux parties de cette cellule soit imbriquées, que les deux trous de 13 mm soient parfaitement alignés, tous deux servant de gaine coulissante.

Le transducteur de réception possède les mêmes caractéristiques que le transducteur émetteur, si ce n'est que sa fréquence de résonance se situe à 28 MHz. Il est cependant important de préciser que de nombreux transducteurs furent utilisés au cours de nos expériences affichant des fréquences de résonance variant entre 27.5 et 28.5 MHz.

Par ailleurs, les contacts du transducteur de réception furent effectués de la même manière que pour le transducteur émetteur, à l'aide de fils d'argent soudés à froid par de l'époxy à l'argent. Ces fils furent ensuite soudés au connecteur SMA localisé sur la surface externe de la cellule.

La fixation du transducteur à l'endos de la cavité de mesure, fut réalisé par collage, en plaçant la partie entièrement recouverte d'or dirigée vers la cavité de mesure et les électrodes vers le bas. Pour autant, au cours de nos expériences, plusieurs colles ont dû être utilisées, afin de s'adapter aux différentes propriétés chimiques des liquides testés.

En effet, nous nous sommes rendus compte que les cétones attaquaient l'époxy et provoquaient de ce fait un décollement partiel du transducteur par rapport à la cellule entraînant une fragilité de ce dernier, phénomène n'ayant pas cours pour les alcools et les esters. En fait, pour ces deux produits, l'époxy fut tout de même attaquée mais pas

suffisamment pour provoquer une fragilité du joint entre le transducteur et la cellule. Cette époxy (type Super Glue 3) fut donc utilisée pour coller le transducteur dans le cas des alcools et des esters, et une résine du type Carmount, résine utilisée en biologie pour coller les lames microscopiques, pour les cétones.

De plus, l'endos du transducteur fut renforcé avec de l'époxy, cette couche servant de « backing » pour le transducteur récepteur et d'isolation électrique pour les deux fils d'argent.

Par la suite, le signal provenant de la lentille a pu donc être focalisé dans le liquide à tester, puis reçu par le transducteur récepteur, où le signal acoustique fut à nouveau transformé en signal électrique. Ce dernier fut envoyé à un second atténuateur manuel Att2 identique à Att1 décrit précédemment.

Afin de décrire la fonction de cet atténuateur, rappelons ici que l'amplitude du second harmonique dépend de la distance de propagation, ou distance entre la lentille et le transducteur de réception (chapitre 1, figure 4). Au niveau du signal, cela signifie, dans le cas où la puissance à l'entrée du transducteur émetteur reste constante, que l'amplitude du second harmonique va donc, si la distance de propagation diminue, tout d'abord augmenter pour atteindre un maximum à la distance focale et ensuite diminuer. Afin de mesurer le signal réel de ce second harmonique et d'éviter l'éventuelle dépendance du gain du récepteur par rapport à l'amplitude du signal issu du transducteur, récepteur placé immédiatement après dans le circuit, Att2 est utilisé afin de garder constante l'amplitude du signal entrant dans le récepteur. La valeur lue sur Att2 représentera donc l'atténuation

nécessaire pour garder l'amplitude du second harmonique constante par rapport à une valeur préalablement choisie.

Le récepteur dans lequel le signal du second harmonique pénètre est un récepteur 960 de la compagnie MATEC et est couplé au générateur de pulse décrit précédemment. Possédant une gamme de réception comprise entre 10 et 310 MHz, il permet à l'aide d'un potentiomètre de sélectionner la fréquence du signal qui va être amplifié, et ce de manière totalement indépendante de la fréquence émise par le générateur. Il est donc possible de recevoir et amplifier le signal du second harmonique en sélectionnant la fréquence adéquate sur le récepteur. Après avoir été amplifié, et ce grâce à un gain variable, le signal est rectifié puis intégré pour donner un signal de type vidéo. Ce signal est envoyé vers un canal de l'oscilloscope Tektronix décrit précédemment. Après avoir sélectionné un moyennage de 256 fois, l'amplitude du signal est donc mesurée grâce aux curseurs verticaux de l'oscilloscope et l'atténuation nécessaire à garder cette amplitude constante à chaque valeur de la distance de propagation lue sur Att2. C'est cette atténuation qui nous permettra de calculer le coefficient de non linéarité β (cf. chap 3).

Le montage relatif aux solides s'avère identique à celui décrit précédemment, si ce n'est que la cellule de mesure est remplacée par un parallélépipède d'aluminium perforé sur lequel est collé le transducteur de réception. Ce collage à l'époxy est réalisé de manière à ce que la face recouverte d'or du transducteur de réception soit exactement au même niveau que le reste du bloc d'aluminium. La plaque de polymère est alors placée sur le

transducteur, le contact étant créé par une fine couche de liquide de couplage (gel Aquasonic 100 de la compagnie Parker Laboratories). L'ensemble est alors positionné sous la lentille de manière à ce que la cavité de la lentille soit au dessus du transducteur de réception et le couplage entre la lentille et la plaque de polymère créée grâce à une injection d'eau entre les deux éléments. Le principe expérimental est alors identique à celui décrit précédemment pour les liquides.

Avant d'effectuer les expériences permettant de mesurer le coefficient de non linéarité les vérifications concernant d'une part la qualité de la lentille et d'autre part l'efficacité de notre système à éliminer les éventuels harmoniques électroniques furent effectuées.

Tout d'abord, la qualité de la lentille fut testée, en effectuant une expérience de pulse-écho, sur le transducteur de réception utilisé comme réflecteur parfait. Ainsi, les échos de cavité et les échos focaux purent être identifiés. Ensuite, en immobilisant la lentille à une distance fixe par rapport au transducteur de réception, puis en observant l'amplitude du second harmonique sur l'oscilloscope lors d'une rotation de la cellule de mesure, la symétrie cylindrique de la lentille ainsi que l'alignement de l'axe de la lentille avec le centre du transducteur de réception purent être vérifiés. Une variation maximum de 1 % sur l'amplitude du signal visualisé sur l'oscilloscope fut observée au cours d'une rotation complète de la cellule, montrant un bon alignement de la lentille avec la cellule et le transducteur de réception.

Nous avons enfin voulu savoir si notre montage s'avérait capable de filtrer les éventuels harmoniques électroniques, possiblement générés par différents éléments du circuit. En préambule, il est nécessaire de noter que le montage avait été construit afin de posséder

cette propriété, notamment par l'utilisation des transducteurs de transmission et de réception exhibant des fréquences fondamentales multiples.

En effet, le fait d'employer un transducteur piézo-électrique possédant une fréquence fondamentale à 14 MHz permet bien évidemment de maximiser la transmission du signal émis par le générateur de pulse vers la lentille, mais aussi de servir de filtre. Ce dernier point s'explique par le fait que, de par leur épaisseur, les transducteurs piézo-électriques ne sont capables que de résonner à des fréquences multiples impaires de leur fréquence fondamentale. L'harmonique nous intéressant étant le second, le transducteur émetteur possède une réponse en fréquence « plate » à cette fréquence, et joue donc le rôle de filtre pour les éventuels harmoniques générés électroniquement dans les parties antérieures du circuit.

Cependant, ces précautions étant prises, rien ne nous confirmait de manière définitive que des harmoniques générés électroniquement ne pouvaient pas se retrouver dans le liquide à tester.

Une expérience fut donc réalisée afin de vérifier si les filtres successifs et la réponse en fréquence du transducteur de réception étaient suffisants pour bloquer les éventuels harmoniques créés par l'électronique du circuit. Pour ce faire, un signal centré sur le second harmonique de la fréquence fondamentale utilisée dans les expériences fut envoyé dans le transducteur émetteur, et ce avec le même voltage que le signal centré sur la fréquence fondamentale. En d'autres termes, la pire situation fut envisagée, situation où la génération d'harmoniques électroniques pouvaient égaler en puissance le signal à la fréquence fondamentale. Malgré cette situation exigeante, aucun signal ne fut détecté par

le transducteur de réception, montrant donc l'efficacité des différents filtres électroniques ou piézo-électriques placés dans le circuit.

Ensuite, toujours afin de vérifier les origines non linéaires acoustiques du second harmonique reçu, une dernière expérience fut réalisée. Cette dernière se base sur le fait que si la chaîne acoustique génère des harmoniques uniquement dans le liquide à tester, une atténuation de la puissance de l'onde incidente ne devrait pas correspondre à la même atténuation pour l'harmonique. En revanche, si les harmoniques proviennent de l'électronique, le signal est atténué de manière identique dans toute la chaîne de mesure, et donc les deux valeurs d'atténuation devraient être identiques.

Cette expérience fut réalisée en modifiant la valeur de Att1, et en réajustant Att2 de manière à garder l'amplitude du signal constant sur l'écran de l'oscilloscope. Il fut alors observé que la variation de la valeur de Att2 ne fut jamais égale à celle de Att1, confirmant l'origine purement acoustique de l'harmonique reçu.

Enfin, les éventuels harmoniques générés par le collage entre le transducteur et la lentille, le transducteur et la cellule de mesure, les backing des transducteurs ou la propagation de l'onde dans la lentille de quartz, seront éliminés par la soustraction des valeurs d'atténuation maximales obtenues pour le liquide testé et pour l'eau (chapitre 3).

Dans ce chapitre, les différentes techniques expérimentales ayant été élaborées afin de mesurer le coefficient de non linéarité ou le paramètre non linéaire furent décrites, nous amenant à énoncer le choix de notre technique expérimentale. Par la suite, les différents

éléments constitutifs du montage expérimental permettant d'obtenir le coefficient de non linéarité par mesure du second harmonique généré par une onde focalisée dans les liquides ou les solides furent décrits. Certaines vérifications furent effectuées, afin d'assurer l'origine acoustique et non électronique de l'harmonique reçu. Ces tests s'étant avérés positifs, le montage expérimental fut donc considéré adapté à la mesure du paramètre non linéaire dans les matériaux choisis.

Dans le prochain chapitre, les corrections théoriques nécessaires au calcul du coefficient de non linéarité à partir de l'atténuation Att_2 mesurée, ainsi que la méthodologie expérimentale seront décrites. Les résultats obtenus, ainsi que les interprétations qui peuvent en être faites et les conclusions qui peuvent en être tirées y seront également présentés.

CHAPITRE 3 B/A DANS LES FLUIDES

Cette partie aura pour but de couvrir quelles sont les corrections nécessaires au calcul de B/A suite au développement théorique du chapitre 1, de décrire la méthodologie expérimentale relative à la mesure de l'amplitude du second harmonique, puis de présenter les valeurs de B/A obtenues ainsi que ses dépendances avec la longueur de chaîne et la vitesse du son. Finalement, un modèle résultant d'une modification d'un modèle existant pouvant décrire la variation du paramètre non linéaire avec l'inverse de la vitesse du son sera présenté pour les alcanols.

3.1 CORRECTIONS THÉORIQUES ET EXPÉRIMENTALES

Nous commencerons ici par rappeler l'expression du second harmonique décrite par l'équation (40) :

$$p_2(x, \tau) = \frac{\beta p_0^2 \omega}{4 \rho_0 c_0^3 \alpha} (e^{-2\alpha x} - e^{-4\alpha x}) \sin n\omega \tau$$

où l'indice 0 concerne les variables relatives au liquide au point focal. Si nous considérons α_1 , le coefficient d'atténuation pour la fréquence fondamentale et α_2 , celui du second harmonique, on obtient alors l'expression démontrée par Thuras ⁽¹¹⁴⁾ (pour des raisons de clarté, nous appellerons désormais p_1 l'amplitude indépendante du temps relative à l'onde à la fréquence fondamentale).

$$p_2(x) = \frac{\beta p_1^2 \omega}{4 \rho_0 c_0^3} \frac{e^{-2\alpha_1 x} - e^{-\alpha_2 x}}{\alpha_2 - 2\alpha_1} \quad (91)$$

Si $(\alpha_2 - 2\alpha_1)x$ est petit ⁽⁸⁸⁾, ce qui est le cas lorsque la distance de propagation est très faible par rapport à la distance de formation du choc et $\omega = 2\pi f_l$, f_l étant la fréquence fondamentale :

$$p_2(x) = \frac{\beta \pi f_l p_1^2}{\rho_0 c_0^3} x \exp\left[-\left(\alpha_1 + \frac{\alpha_2}{2}\right)x\right] \quad (92)$$

Etant donné la symétrie cylindrique du faisceau et en considérant ⁽⁹⁹⁾ que les harmoniques ne sont générés que dans une région où la puissance de l'onde est au plus inférieure de 3 dB à la puissance maximale au point focal, la région considérée sera un cylindre dont la longueur d_z et diamètre d_r sont donnés par la profondeur de focalisation de la lentille ⁽⁹⁷⁾

$$d_z = 7.1 \left(\frac{c_0}{f_l}\right) F^2 \quad (93)$$

$$d_r(3dB) = 1.02 \left(\frac{c_0}{f_l}\right) F \quad (94)$$

où F est le rapport de la distance focale dans le liquide à tester au diamètre de la cavité de la lentille. De plus, si dans ce cylindre, ces ondes sont approximées par des ondes planes (le rayon de courbure étant très grand dans la région focal et infini au point focal), alors :

$$\frac{P_2}{P_1^2} = 194 \pi \frac{\beta^2 f_l^2}{\rho_0 c_0^5} F^2 \exp\left[-7.1 \frac{c_0 F^2}{f_l} (2\alpha_1 + \alpha_2)\right] \quad (95)$$

Dans cette expression, P_1 et P_2 représentent respectivement les puissances relatives à la fréquence fondamentale et au second harmonique.

Il est à noter, que le rapport de ces puissances ne dépend que des propriétés du liquide au point focal (densité, vitesse du son, coefficient d'atténuation) et des dimensions géométriques de la lentille (F), et ce pour une fréquence fixe. La procédure de calcul du paramètre non linéaire revient donc à mesurer les puissances P_I et P_2 expérimentalement, de caractériser ou de prélever dans la littérature les valeurs relatives au liquide et à la lentille et de résoudre l'équation (95) pour trouver le coefficient de non linéarité et par conséquent le paramètre non linéaire.

Pour autant, certaines modifications doivent être encore effectuées. En effet, l'équation (95) nécessite la mesure des puissances au foyer de la lentille dans le liquide testé. Ceci peut être réalisé à l'aide d'un hydrophone, mais cette technique reste relativement difficile à mettre en œuvre. Nous nous proposons plutôt de résoudre ce problème en effectuant des corrections adaptées à nos conditions expérimentales.

D'une part, pour chaque expérience, deux liquides seront considérés: l'eau qui sera utilisée comme référence, son coefficient de non linéarité étant bien connu, et le liquide à tester. Dans ce qui suivra, l'indice L se référera au liquide testé et $\mathcal{W}$ à l'eau.

D'autre part, le voltage d'entrée du transducteur émetteur sera modifié pour chaque expérience afin que la puissance relative à la fréquence fondamentale soit, au point focal, identique pour l'eau et le liquide. Ceci se traduit par :

$$P_{IL} = P_{I\mathcal{W}} \quad (96)$$

De plus, ces puissances peuvent être exprimées par :

$$P_{IL} = kV_{0L}^2 T_{TQ} T_{QL} \exp(-\alpha_{IL} d_L) \quad (97)$$

$$P_{1W} = kV_{0W}^2 T_{TQ} T_{QW} \exp(-\alpha_{1W} d_{1W}) \quad (98)$$

où k est une constante relative aux caractéristiques du transducteur émetteur, les V_0 sont les voltages d'entrée du transducteur émetteur, T_{TQ} le coefficient de transmission entre le transducteur et la lentille en quartz, T_{QW} et T_{QL} les coefficients de transmission entre la lentille et l'eau et entre la lentille et le liquide et d_i la distance focale dans le liquide i .

En utilisant l'équation (96), on obtient :

$$V_{0L} = \sqrt{\frac{T_{QW}}{T_{QL}}} \exp(-\alpha_{1W} d_{1W} + \alpha_{1L} d_{1L}) V_{0W} \quad (99)$$

Une fois V_{0W} fixé, il sera donc possible d'obtenir la même puissance de la fondamentale au foyer dans l'eau et dans le liquide à tester, et ce en modifiant le voltage d'entrée du transducteur émetteur V_{0L} selon l'équation (99).

De ce fait, on obtient à l'aide de l'équation (96) :

$$\frac{P_{2L}}{P_{1L}^2} \bigg/ \frac{P_{2W}}{P_{1W}^2} = \frac{P_{2L}}{P_{2W}} \quad (100)$$

Enfin, les puissances du second harmonique restent à être exprimées en fonction de celles que nous mesurons. Ceci peut être traduit par :

$$P_{2mL} = k' P_{2L} T_{LS} \exp(-\alpha_{2L} d_{2L}) \quad (101)$$

$$P_{2mW} = k' P_{2W} T_{WS} \exp(-\alpha_{2W} d_{2W}) \quad (102)$$

où k' représente une constante relative aux caractéristiques du transducteur récepteur, où l'indice m signifie mesuré, T_{LS} et T_{WS} sont les coefficients de transmission entre le liquide ou l'eau et le transducteur récepteur et d_{2L} et d_{2W} les distances entre les points focaux respectifs du liquide et de l'eau et le transducteur récepteur.

De plus, l'atténuation $\Delta Att2$ différence entre l'atténuation maximum pour le liquide à tester et l'atténuation maximum pour l'eau, peut être reliée aux puissances mesurées par :

$$\frac{P_{2mL}}{P_{2mW}} = 10^{\Delta Att2/10} \quad (103)$$

si $\Delta Att2$ est en dB.

En conjuguant les équations (101), (102) et (103) on obtient :

$$\frac{P_{2L}}{P_{2W}} = 10^{\Delta Att2/10} \frac{T_{WS}}{T_{LS}} \exp(\alpha_{2L}d_{2L} - \alpha_{2W}d_{2W}) \quad (104)$$

En égalant l'équation (104) et l'équation (95), et en utilisant le résultat de l'équation (100), on obtient :

$$\left(\frac{\beta_L}{\beta_W} \right) = \sqrt{10^{\Delta Att2/10} \frac{T_{WS}}{T_{LS}} \exp(\alpha_{2L}d_{2L} - \alpha_{2W}d_{2W}) \frac{F_W^2 \rho_L c_L^5}{F_L^2 \rho_W c_W^5 \exp \left[-\frac{7.1}{f_1} [c_L F_L^2 (2\alpha_{2L} + \alpha_{2L}) - c_W F_W^2 (2\alpha_{2W} + \alpha_{2W})] \right]}} \quad (105)$$

Finalement, connaissant β_W , β_L et donc le paramètre non linéaire pour le liquide $(B/A)_L$ peuvent être déterminés en utilisant l'équation (59).

Au cours de cette partie, nous avons donc considéré en faisant l'hypothèse de limiter la génération d'harmoniques à une région proche du foyer de la lentille, que les ondes pouvaient être assimilées à des ondes planes dans cette même région. Fort de cette hypothèse, nous avons vu qu'il était possible, en s'imposant la contrainte d'une puissance

de la fréquence fondamentale constante au point focal quel que soit le liquide, d'obtenir le paramètre non linéaire du liquide à tester.

Ces corrections étant faites, il nous reste maintenant à décrire les procédures expérimentales permettant de mesurer la variable ΔAtt^2 .

3.2 MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE

En examinant l'équation (105) il apparaît que les vitesses du son c_L et c_H constituent les termes dominants de cette expression, les termes en exponentielles restant mineurs étant donné les faibles distances focales et faibles coefficients d'atténuation (le terme correctif relatif à l'atténuation est pour nos liquides de l'ordre de 0.999). De ce fait, il nous parut crucial de mesurer les vitesses du son des différents liquides à tester, afin d'obtenir une précision maximum sur le paramètre non linéaire.

3.2.1 *Mesure de la vitesse du son*

Pour ce faire, le montage expérimental décrit dans le chapitre 2 fut utilisé, à quelques modifications près. En effet, le générateur de pulse MATEC 6000 et son récepteur furent remplacés par un RITEC RAM-10000, permettant d'obtenir un pulse plus court qu'avec

le MATEC. Le premier atténuateur manuel fut ôté du circuit afin d'obtenir une plus grande quantité de signal et les filtres passe-bas retirés.

La lentille et la cellule de mesure furent alors placés horizontalement, permettant au réservoir de la cellule de retenir l'excédent du liquide. Le centrage de la cellule fut réalisé puis la cellule maintenue par un cercle contenant 3 vis situées à 120° , cercle monté sur un pied vissé à un banc optique, de manière à ce que la lentille fixée sur le système de déplacement XYZ puisse coulisser sans problème dans la cellule.

La cellule fut alors remplie de liquide (eau ou solvants) à l'aide d'une seringue grâce au trou central du réservoir de la cellule. Afin de ne pas créer de bulles d'air sur le transducteur récepteur, l'orifice de l'aiguille de la seringue fut placé faisant face à ce dernier.

De plus, la lentille fut ajustée de manière à ce que l'épaule du porte lentille touche la surface de la partie inférieure de la cellule (zéro de la lentille), ne permettant ainsi qu'à une faible quantité du liquide injecté de s'échapper de la cavité de mesure. La lentille fut ensuite reculée de manière à dégager le deuxième trou du réservoir, et le reste du liquide injecté jusqu'à ce que le réservoir de la cellule soit rempli.

Toujours dans le but d'éliminer les éventuelles bulles d'air à l'intérieur de la cavité de mesure, une séquence de pompage incluse dans le programme LabView chargé de commander les moteurs fut lancée. Cette séquence permet après avoir défini une distance x et un nombre de cycles n , d'effectuer un va-et-vient de la lentille autour de sa position originale et ce n fois sur une distance de parcours x . Ainsi, le liquide dans le réservoir put

être aspiré, puis rejeté et les bulles prisonnières de la cavité expulsées par les trous du réservoir.

Une fois cette procédure complétée, la lentille fut ramenée à son « zéro » puis reculée de 3.500 mm et enfin réavancée de 500 μm . Cette procédure permet de situer la lentille à 3.000 mm, en compensant le jeu de position dû à la viscosité de liquide testé que cette dernière pourrait avoir lors d'un changement de direction.

Le RITEC fut alors mis en route, lançant un paquet d'onde centré autour de 14MHz et son récepteur utilisé pour amplifier le signal reçu par le transducteur récepteur. En effet, bien que le transducteur de réception possède une fréquence de résonance de 28 MHz, ce dernier peut détecter néanmoins de manière extrêmement faible un signal de 14 MHz si celui-ci est de grande amplitude. D'autre part, Il est à noter que le RAM-10000 possède un récepteur de type super hétérodyne, se réglant automatiquement sur la fréquence du générateur.

Le signal à 14 MHz lancé par le RITEC fut donc focalisé par la lentille dans le liquide, puis reçu par le transducteur récepteur, amplifié par le RITEC et visualisé sur l'oscilloscope. La différence de temps Δt entre le pulse du RITEC et le signal reçu put alors être mesurée avec une précision de 0.01 μs et notée.

La lentille fut alors avancée de 500 μm et un nouveau Δt mesuré. Cette séquence fut reproduite jusqu'à atteindre le zéro de la lentille, obtenant ainsi pour chaque liquide 7 distances et leurs Δt respectifs. Ce processus fut alors répété 4 fois pour chaque liquide,

afin d'obtenir une valeur moyenne de chaque Δt . Un graphe $distance = f(\Delta t)$ fut alors tracé et une régression linéaire effectuée, la pente de la droite donnant la vitesse du son.

3.2.2 *Mesure de la quantité $Att2$ et détermination de $\Delta Att2$*

Une fois la vitesse du son déterminée, il est alors possible de passer à la mesure de la puissance du second harmonique grâce à la mesure de la valeur $Att2$. Bien que la méthode expérimentale ait été brièvement décrite dans le chapitre 2, celle-ci sera rappelée ici, en en détaillant certains points.

Tout d'abord, la cavité de mesure fut remplie d'eau, en suivant le même processus que pour la mesure des vitesses du son. La séquence de pompage fut alors lancée puis la lentille reculée de 3.000 mm. L'inductance du réseau d'adaptation d'impédance fut alors ajustée de manière à ce que l'argument de l'indépendance du système transducteur-lentille soit égal à zéro à 14MHz, ceci étant réalisé en visualisant l'impédance sur un analyseur de réseau.

Le MATEC fut alors réglé par l'intermédiaire d'un analyseur de spectre sur 14 MHz, puis connecté au reste du circuit, contenant cette fois ci le premier atténuateur manuel, ainsi que tous les filtres passe-bas. Une atténuation arbitraire de cet premier atténuateur manuel fut ajoutée à la valeur des atténuateurs fixes situés en amont, afin de fixer la valeur V_{OW} du voltage à l'entrée du transducteur émetteur. V_{OW} put alors être lue sur l'oscilloscope par l'intermédiaire d'une des branches du T situé après l'atténuateur manuel.

Par la suite, le potentiomètre du MATEC servant à la sélection de la fréquence de réception fut ajusté afin d'obtenir le maximum de signal sur le deuxième canal de l'oscilloscope, signal provenant du transducteur récepteur par l'intermédiaire de l'amplificateur du MATEC.

Une atténuation $Att2$ arbitraire fut alors fixée et l'amplitude du signal du second harmonique obtenue notée.

La valeur de $Att2$ fut alors rentrée dans la séquence « Mesures » du programme Labview, séquence qui en plus de collecter ces données, fait automatiquement avancer la lentille par incréments de 20, 50, ou 100 μm , ceci restant au choix de l'expérimentateur et trace le graphe $Att2 = f(x)$.

Par la suite, pour chaque nouvelle distance x par rapport au zéro de la lentille, la valeur de $Att2$ fut ajustée de sorte que le signal issu du transducteur récepteur visualisé sur l'oscilloscope demeure constant. Une fois que la lentille eut atteint son zéro, les valeurs de d et $Att2$ furent enregistrées sur un fichier, transférable sur Excel, ceci permettant de retracer la courbe $Att2 = f(x)$.

Une fois cette courbe obtenue, la cellule fut rincée (généralement à l'éthanol, sauf pour les esters où l'on utilise l'acétone) et nettoyée, la lentille reculée à 3.000 mm de son zéro et un liquide à tester (solvant) injecté dans la cavité de mesure.

L'inductance du réseau d'adaptation d'indépendance fut alors réajustée afin d'obtenir pour ce nouveau liquide, l'argument de l'impédance du système transducteur lentille égal à zéro à la fréquence d'émission du MATEC.

Par la suite, le voltage V_{oL} à imposer au transducteur émetteur pour obtenir une puissance de la fondamentale identique au foyer quelque soit le liquide, fut déterminé grâce à l'équation (99). Pour ce faire, les coefficients de transmissions furent calculés en utilisant les densités données par les fabricants des solvants et les vitesses du son mesurées précédemment, les coefficients d'atténuation pris dans la littérature⁽¹¹⁵⁻¹¹⁷⁾ et les distances focales calculées par la formule :

$$d_L = \frac{R}{1 - \frac{c_L}{c_Q}} \quad (106)$$

où R est le rayon de la cavité de la lentille, c_L les vitesses mesurées dans les liquides et c_Q la vitesse dans la lentille mesurée par une technique pulse-écho.

Le premier atténuateur manuel fut donc ajusté de manière à obtenir une pulse d'amplitude V_{oL} sur l'oscilloscope.

Att2 fut alors modifiée afin que l'amplitude du signal émanant du transducteur récepteur reste égale à celle obtenue pour l'eau. La séquence « mesure » du programme LabView fut alors lancée, les distances et valeurs de *Att2* enregistrées et la courbe $Att2 = f(x)$ tracée pour le solvant.

Il est à noter que, aussi bien pour l'eau que pour les solvants, au minimum trois expériences furent effectuées, afin d'assurer la reproductibilité des mesures et de constater les variations possibles de x ou *Att2*.

Une fois cette étape effectuée, les courbes $Att2 = f(x)$ pour l'eau et pour le solvant furent tracées sur le même graphe en normalisant la distance à celle de la distance focale dans l'eau, et en normalisant l'atténuation au maximum de l'atténuation de l'eau. En d'autres termes, l'origine des abscisses du graphe $Att2 = f(x)$ représente la distance focale de l'eau, alors que l'origine des ordonnées représente le maximum d'atténuation $Att2_{max}$ pour l'eau. La figure 3.1 montre un exemple de ce tracé pour l'éthanol.

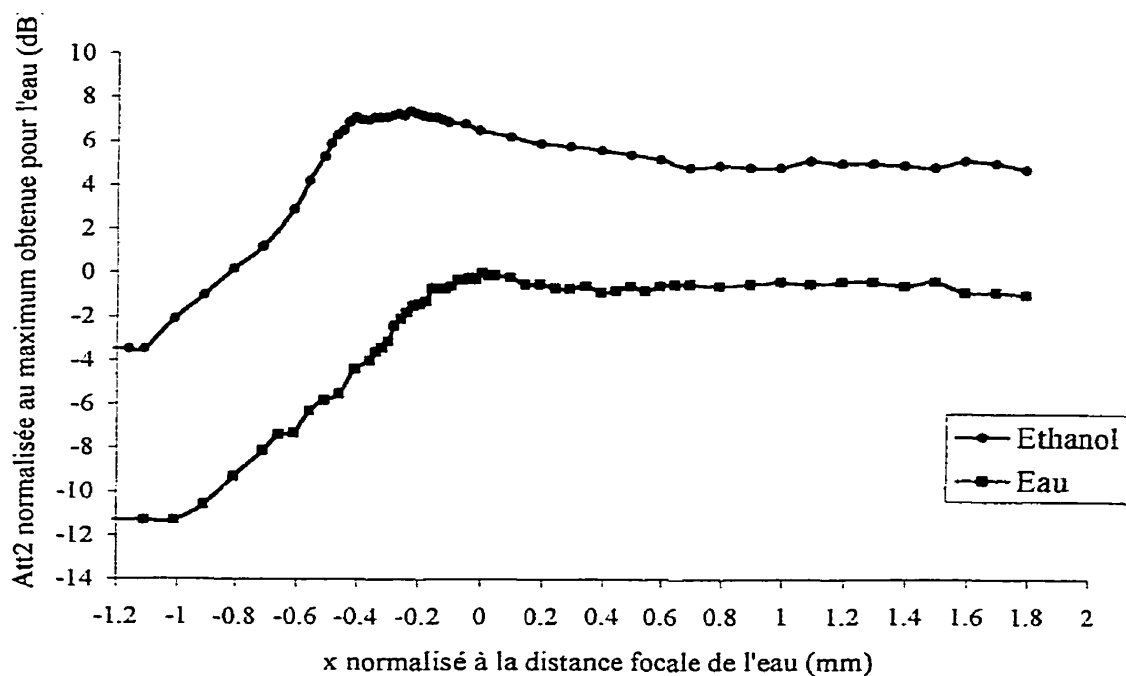


Figure 3.1: Courbes $Att2 = f(x)$ pour l'eau et l'éthanol

De ces courbes est déduite $\Delta Att2$, valeur de l'atténuation maximum de l'éthanol sur le graphe, ou encore différence entre les atténuations au point focaux de l'éthanol et de

l'eau. Cette valeur obtenu est alors substituée dans l'équation (105), permettant de calculer β_L puis $(B/A)_L$ pour le solvant, $(B/A)_{H_2O}$ étant connu et égal à 5⁽³⁷⁾.

Il est à noter que pour ces deux expériences, à savoir celle de la vitesse du son et celle de la mesure de l'atténuation Att_2 , le taux de répétition du pulse initial fut gardé à une valeur égale à 50 Hz. Ce faible taux nous permet de considérer, quelque soit le liquide situé dans la cavité de mesure, que la température de ce liquide reste constante et égale à la température de la pièce (20°C).

3.3 RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Dans cette partie, les différents résultats expérimentaux obtenus pour les vitesses du son et les paramètres non linéaires en utilisant les techniques décrites précédemment seront présentés.

Ces mesures furent réalisées sur l'eau et sur trois familles de solvants à savoir les alcanols, les cétones et les esters. De manière plus précise, les alcanols testés furent le méthanol^(a), l'éthanol^(b), le 1-propanol^(c), le 1-butanol^(b), le 1-pentanol^(b), le 1-hexanol^(d), le 1-heptanol^(b), le 1-octanol^(d), le 1-nonanol^(b) et le 1-décanol^(e). La famille des cétones se composa de l'acétone^(b), du méthyl-éthyl cétone^(b), du méthyl-butyl cétone^(b), du méthyl-propyl cétone^(b), du méthyl-pentyl cétone^(b) et du méthyl-hexyl cétone^(b). Enfin les esters testés furent l'acétate d'éthyle^(f), l'acétate de propyle^(g), l'acétate de butyle^(g),

l'acétate de pentyle ^(e), l'acétate d'hexyle ^(g) et finalement l'acétate d'octyle ^(e). Les exposants ^(a) représentent des produits provenant de la compagnie J.T. Baker, ^(b) de la compagnie Aldrich, ^(c) de la compagnie Caledon, ^(d) de la compagnie ACP, ^(e) de la compagnie A&C, ^(f) de la compagnie BDH et ^(g) de la compagnie Fluka (cf. Annexe 1 pour les références plus précises concernant ces solvants).

Nous rappelons ici que ces liquides furent choisis de manière à pouvoir obtenir facilement de manière commerciale le plus grand nombre de membres d'une même famille chimique, et d'autre part (notamment pour les alcanols) de bénéficier d'une importante littérature sur les propriétés physiques et chimiques des premiers membres de chaque famille, ceci nous permettant d'évaluer la validité et la précision de nos techniques.

3.3.1 Résultats concernant la vitesse du son

Le premier liquide testé à l'aide de la technique décrite à la section 3.2.1 fut l'eau. Une vitesse de 1497 m/s fut trouvée, résultat en excellent accord avec la valeur généralement donnée dans la littérature de 1495 m/s à 20⁰C. Notre mesure n'affiche donc qu'une erreur de 0.13%, permettant d'espérer quant à la validité de notre technique expérimentale.

En se basant sur ce résultat encourageant, les vitesses du son furent mesurées pour les solvants. Les résultats concernant les alcanols sont présentés dans le tableau 3-1, ceux pour les cétones dans le tableau 3-2 et ceux pour les esters dans le tableau 3-3. A chaque vitesse mesurée est associée une vitesse du son issue de la littérature (choisie car résultant

également d'une étude systématique) ainsi que le pourcentage d'erreur entre notre mesure et cette valeur.

Produits	C_L expérience (m/s)	C_L littérature (m/s)	Erreur (%)
Méthanol	1144	1123 ^(a)	1.87
Éthanol	1209	1165 ^(a)	3.78
1-Propanol	1229	1223 ^(a)	0.49
1-Butanol	1262	1268 ^(a)	0.47
1-Pentanol	1296	1294 ^(a)	0.15
1-Hexanol	1330	1322 ^(a)	0.15
1-Heptanol	1363	1341 ^(a)	1.64
1-Octanol	1379	1358 ^(a)	1.54
1-Nonanol	1396	1391 ^(a)	0.36
1-Décanol	1410	1402 ^(a)	0.57

^(a) Ref. 115

Tableau 3-1: Vitesses du son obtenues en comparaison à celles issues de la littérature

Produits	C_L expérience (m/s)	C_L littérature (m/s)	Erreur (%)
Acétone	1199	1189 ^(c)	0.84
Méthyl-Ethyl Cétone	1220	1211 ^(c)	0.74
Méthyl-Propyl Cétone	1237	-	-
Méthyl-Butyl Cétone	1265	1265 ^(d)	0
Méthyl-Pentyl Cétone	1287	-	-
Méthyl-Hexyl Cétone	1309	1303 ^(c)	0.46

^(c) Ref. 118

^(d) Ref. 119

Tableau 3-2: Vitesses du son obtenues pour les cétones en comparaison à celles issues de la littérature

Produits	C_L expérience (m/s)	C_L littérature (m/s)	Erreur (%)
Acétate d'éthyle	1170	1164 ^(a)	0.51
Acétate de propyle	1200	1129 ^(a)	0.92
Acétate de butyle	1235	1213 ^(a)	1.81
Acétate de pentyle	1257	1239 ^(a)	1.45
Acétate d'hexyle	1291	1260 ^(a)	2.46
Acétate d'octyle	1301	-	-

^(a) Ref. 121 : Les valeurs ont été corrigées pour donner la vitesse du son à 20°C en utilisant le coefficient de variation de la vitesse du son avec la température issue de la même référence.

Tableau 3-3: Vitesses du son obtenues pour les esters en comparaison à celles issues de la littérature

Ces résultats sont dans l'ensemble en excellent accord avec les valeurs de référence, l'erreur moyenne étant de 1.22% , ce qui représente une erreur tout à fait acceptable. Il est à noter que pour les deux tiers de ces liquides, l'erreur sur c_L est inférieure à 1%. Par ailleurs, l'incertitude expérimentale sur ces mesures fut évaluée à 1.2% ($\pm 0.6\%$) en considérant une incertitude de 0.01 μ s sur le plus petit temps de vol observé (1 μ s) et une incertitude de 1 μ m sur la plus petite distance mesurée à savoir 500 μ m. Cette incertitude sur la vitesse du son représente donc l'incertitude maximum sur les valeurs présentées dans les tableaux précédents. Ces résultats nous permirent donc de calculer B/A en toute confiance.

3.3.2 Résultats concernant les paramètres non linéaires dans les solvants

Afin de calculer les paramètres non linéaires pour chacun des solvants nous dûmes vérifier si notre technique expérimentale et les approximations nécessaires à l'établissement de l'équation (105) nous permettaient d'obtenir des valeurs de B/A compatibles avec celles trouvées par d'autres chercheurs pour des liquides connus. Les premières expériences furent donc effectuées sur les alcools primaires (du méthanol au 1-pentanol) richement documentés dans la littérature. $Att2$ fut donc mesurée à différentes distances pour ces 5 liquides, obtenant des courbes similaires à la figure 3.1.

La figure 3.2 présente les courbes $Att2 = f(x)$ pour les cinq premiers alcanols seulement, utilisant comme variable pour les ordonnées la différence entre l'atténuation mesurée pour le liquide et le rapport au maximum d'atténuation pour l'eau et pour l'axe des abscisses, la différence entre la distance focale du liquide et la distance focale de l'eau.

Il est à noter que plusieurs décisions furent prises afin de faciliter la lecture de ces figures. Ces décisions seront d'ailleurs applicables aux figures 3.3 à 3.5 qui suivront, représentant les courbes $Att2 = f(x)$ pour le reste des alcanols, les cétones et les esters.

Tout d'abord, une seule courbe $Att2 = f(x)$ fut sélectionnée pour chaque liquide, parmi les plusieurs effectuées afin de vérifier la reproductibilité et d'effectuer une moyenne de la valeur $\Delta Att2$.

Ensuite, certaines de ces courbes furent tronquées afin de bénéficier d'une échelle des ordonnées optimale permettant une différenciation visuelle de chacune des courbes.

Enfin, la courbe $Att2 = f(x)$ relative à l'eau ne fut pas rapportée sur ces figures, et ce afin de bénéficier de l'échelle optimale pour les valeurs d'atténuation.

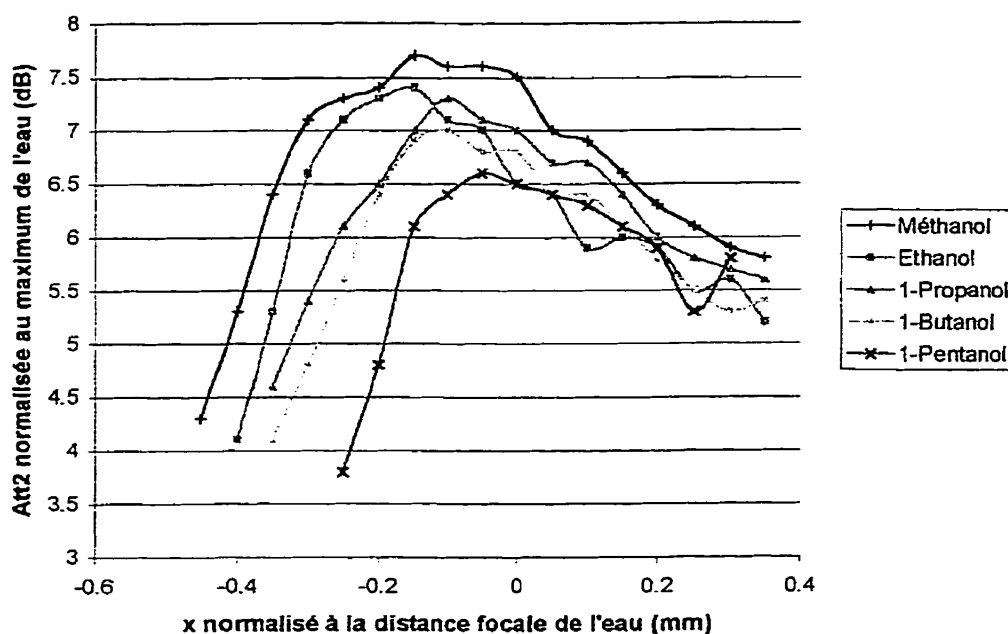


Figure 3.2: Courbes $Att2 = f(x)$ pour les cinq premiers alcanols du Méthanol au 1-Pentanol

Ces courbes nous permirent alors d'extraire $\Delta Att2$, puis en utilisant les vitesses du son précédemment mesurées, les coefficients d'atténuation issus de la littérature et la loi de proportionnalité entre le coefficient d'atténuation et la fréquence au carré, en calculant les nombres F et en prenant les densités des liquides donnés par le fabricant, les B/A purent être calculés grâce à l'équation (105) pour ces 5 liquides. Ces résultats sont présentés en comparaison avec des valeurs issues de la littérature dans le tableau 3.4 (il est à noter que toutes les valeurs utilisées pour les paramètres nécessaires aux calculs et les calculs intermédiaires sont présentés en Annexe 2).

Liquide	B/A	B/A issu de la littérature
Méthanol	8.6	6.6 ^d , 9.6 ^a , 10.0 ^b
Ethanol	9.3	7.5 ^d , 10.5 ^a
1-Propanol	9.5	10.7 ^a , 11.1 ^c
1-Butanol	9.7	8.2 ^d , 10.7 ^a
1-Pentanol	10.0	11.6 ^e

^a Ref. 83.^d Ref. 45.^b Ref. 105.^c K.L. Narayana, K.M. Swamy, *Acustica*, **47**, 51 (1980).^e Ref. 106.

Tableau 3-4 : Comparaison entre les résultats expérimentaux et les valeurs issues de la littérature pour le paramètre non linéaire sur les cinq premiers alcanols

Les résultats obtenus apparaissent compris dans l'intervalle défini par les valeurs issues de la littérature et environ 10% plus basses que les valeurs admises pour ces liquides ⁽⁸³⁾, résultats cependant acceptables pour ce paramètre, étant donnée la vaste étendue de valeurs traditionnellement observables pour ce paramètre pour un liquide donné.

Ces résultats nous permirent donc de valider notre technique, nos hypothèses théoriques ainsi que leurs corrections et d'étendre les processus aux liquides ne possédant pas à ce jour de valeur de B/A . Les courbes $Att2 = f(x)$ sont présentées pour le reste des alcanols sur la figure 3.3, pour les cétones sur la figure 3.4 et pour les esters sur la figure 3.5.

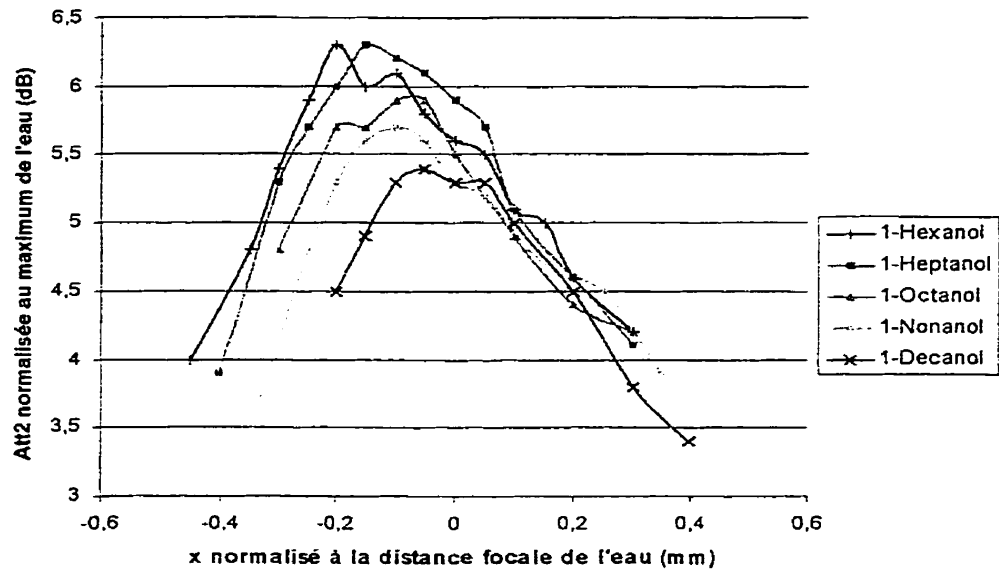


Figure 3.3 : Courbes $Att2 = f(x)$ pour les alcools du 1-Hexanol au 1-Décanol

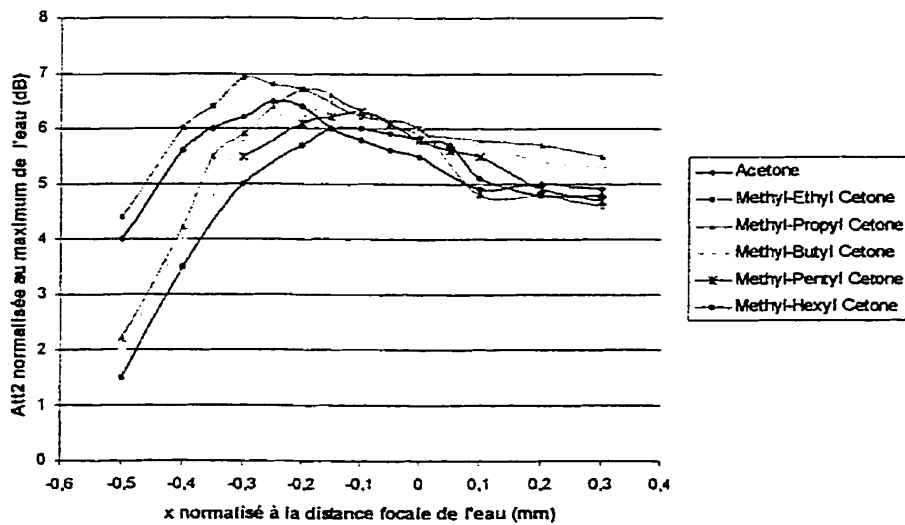


Figure 3.4: Courbes $Att2 = f(x)$ pour les cétones

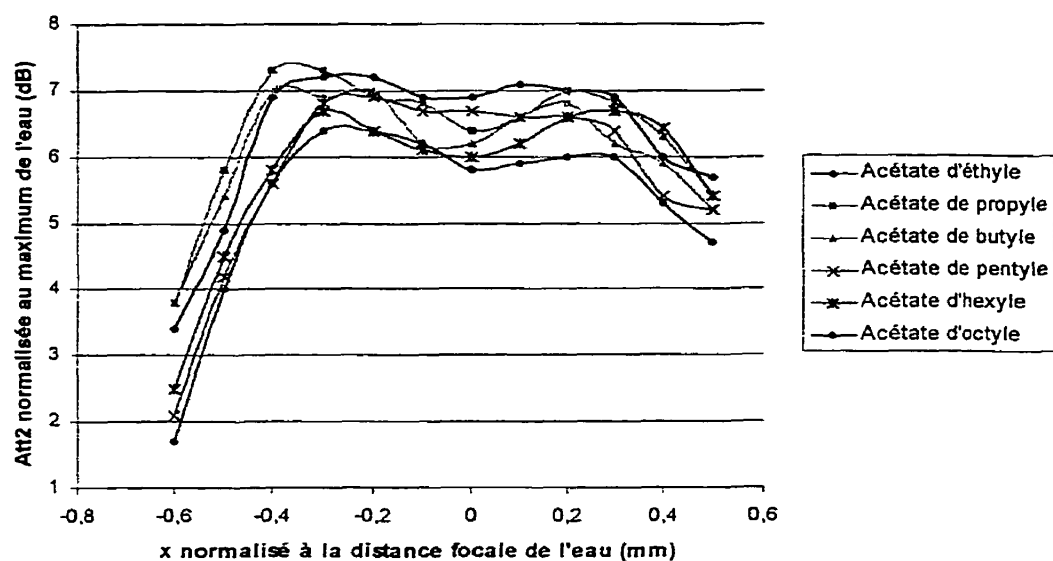


Figure 3.5: Courbes $Att2 = f(x)$ pour les esters

Toujours d'après ces courbes furent extraites les valeurs de $\Delta Att2$, menant aux calculs de B/A (Annexe 2) dont les valeurs sont présentées dans le tableau 3.5, tableau récapitulatif de l'ensemble des valeurs des paramètres non linéaires obtenus.

Liquide	B/A	B/A issu de la littérature	Liquide	B/A	B/A issu de la littérature	Liquide	B/A
Méthanol	8.6	6.6 ^d , 9.6 ^a , 10.0 ^b	Acétone	8.0	9.2 ^a	Acétate d'éthyle	8.7
Ethanol	9.3	7.5 ^d , 10.5 ^a	Methyl Ethyl Cétone	8.8		Acétate de propyle	9.0
1-Propanol	9.5	10.7 ^a , 11.1 ^e	Methyl Propyl Cétone	8.8		Acétate de butyle	9.2
1-Butanol	9.7	8.2 ^d , 10.7 ^a	Methyl Butyl Cétone	9.0		Acétate de pentyle	9.6
1-Pentanol	10.0	11.6 ^e	Methyl Pentyl Cétone	9.0		Acétate d'hexyle	9.9
1-Hexanol	10.2		Methyl Hexyl Cétone	9.1		Acétate d'octyle	9.8
1-Heptanol	10.6						
1-Octanol	10.7						
1-Nonanol	10.8						
1-Décanol	10.7						

^a Ref. 83.^d Ref. 45.^b Ref. 105.^e K.L. Narayana, K.M. Swamy, *Acustica* 47, 51-52, (1980).^c Ref. 106.

Tableau 3-5: Comparaison entre les B/A obtenus et les valeurs issues de la littérature

Il est à noter que ni les graphes, ni les tableaux ne mentionnent de pourcentage d'erreur ou d'incertitude expérimentale, et ce dans un unique but de clarté. Cependant, ces pourcentages ont été calculés et les détails de ces calculs peuvent être retrouvés en Annexe 3. Pour ce faire, nous avons considérés les points suivants.

Tout d'abord, pour les paramètres entrant dans la formule (105) que nous avons tirés de la littérature (les densités, les impédances acoustiques et les coefficients d'absorption), l'incertitude fut établie comme étant égale à la variation de leur dernier chiffre significatif.

Ensuite, pour les autres paramètres, pour chaque erreur relative, la plus importante variation de chaque paramètre fut choisie parmi les liquides testés (pour la plupart des erreurs, il s'agit de celles relatives au 1-décanol), afin de calculer une erreur relative maximum. Les erreurs relatives propres à chaque liquide ne furent donc pas calculées individuellement, l'erreur relative maximum devenant applicable à tous les liquides testés.

Enfin, étant donné l'excellent résultat obtenu sur la vitesse du son dans l'eau, les erreurs relatives à ce liquide furent calculées en utilisant la variation des paramètres expérimentaux par rapport aux paramètres issus de la littérature, et non les variations dues aux incertitudes expérimentales.

En se basant sur ces trois hypothèses, il apparaît clairement que les incertitudes reliées à la mesure de la vitesse du son représentent le facteur dominant de l'erreur relative du paramètre non linéaire, entrant dans différentes variables de l'équation (105). En trouvant 1.2% d'erreur relative sur c_L , l'erreur relative maximum sur le paramètre non linéaire

s'avère être de 7.7%. Cela signifie que les résultats présentés dans le tableau 3.5 peuvent au maximum varier de $\pm 3.8\%$ autour de la valeur affichée, et ce à cause des incertitudes expérimentales.

3.4 DISCUSSION

3.4.1 Atténuation en fonction de la distance

Au premier abord, la figure 3.1 et les figures 3.2-3.5 semblent exhiber le comportement attendu quant à la variation de la valeur de *Att2* (indirectement l'amplitude du second harmonique) avec la distance, conformément à la figure 2.2.

Afin de confirmer cette impression des simulations de ces courbes ont été calculées à partir de l'expression de Rugar⁽⁹⁵⁾ pour le deuxième harmonique dans l'eau et l'éthanol. Ces courbes furent ensuite normalisées au maximum d'atténuation obtenu, transcrites en échelle logarithmique pour les ordonnées et décalées de manière à ce que le 0 des abscisses corresponde à la distance focale du liquide concerné.

Les courbes simulées représentent donc l'atténuation de l'amplitude du second harmonique en fonction de la distance et sont présentées en comparaison avec les résultats expérimentaux obtenus pour l'eau et l'éthanol sur les figures 3.6 et 3.7 (pour le détail du calcul des courbes de simulations, voir Annexe 4).

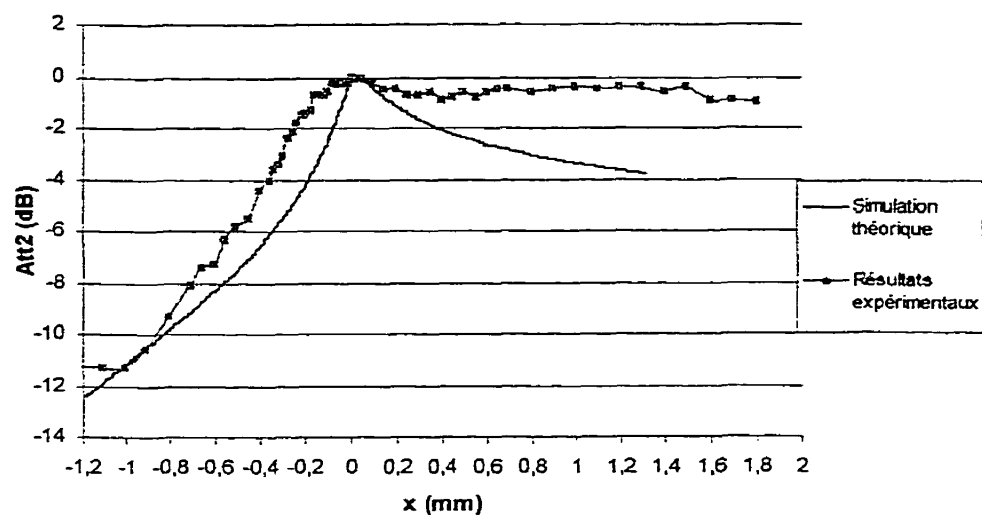


Figure 3.6 : Comparaison entre les simulations théoriques et la courbe expérimentale de $Att2 = f(x)$ pour l'eau

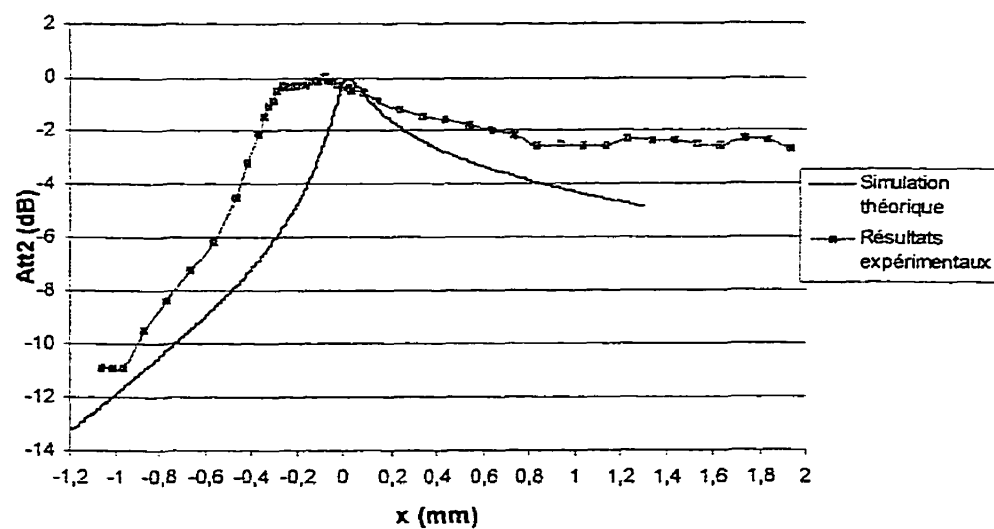


Figure 3.7: Comparaison entre les simulations théoriques et la courbe expérimentale $Att2 = f(x)$ pour l'éthanol

Les courbes expérimentales apparaissent différentes des courbes simulées par plusieurs facteurs : une atténuation moins importante pour les x positifs (donc supérieurs à la distance focale), un léger déplacement en distance du maximum d'atténuation et une atténuation moins importante pour les x négatifs (donc inférieurs à la distance focale).

Le premier et le dernier point peuvent s'expliquer de la même manière. Pour les courbes expérimentales, ce ne sont probablement pas les atténuations dans ces régions qui s'avèrent trop faibles, mais plutôt l'atténuation maximum qui est trop forte. En effet, les courbes étant tracées de manière relative par rapport au maximum d'atténuation, il se peut très bien que la valeur maximum d'atténuation soit trop importante provoquant ainsi une translation verticale de la courbe expérimentale vers le haut.

Ceci serait une conséquence, selon nous, de la déficience de la lentille à focaliser l'onde issue du transducteur en un seul point et ce du aux différentes aberrations de la cavité sphérique dans la région focale. Dans ce cas, la concentration de l'énergie au point focal serait moins grande que celle prévue théoriquement provoquant donc une génération d'harmoniques plus faible que celle attendue.

Cette explication est corroborée par le manque de résolution spatiale de la lentille phénomène visible sur les figures 3.6 et 3.7 dans la région focale. En effet, aussi bien pour l'eau que pour l'éthanol, la largeur du pic autour du maximum d'atténuation est beaucoup plus importante pour les résultats expérimentaux que pour les prédictions théoriques, ces dernières considérant que tous les rayons de la cavité convergent en un seul et unique point. De ce fait, tous les facteurs tels que le manque de sphéricité de la cavité, les effets de bord, l'apodisation et autres aberrations géométriques contribuent à

diminuer la résolution spatiale de la lentille, soit à augmenter le volume de la région focale et donc limiter la concentration de l'énergie au point focal.

Enfin, le transducteur récepteur possédant un diamètre fini, le signal reçu issu de la région focale est alors moyenné, ceci contribuant également à l'élargissement des pics par rapport à la simulation, cette dernière considérant le point focal comme étant situé sur l'axe de symétrie de la lentille. Ces facteurs induisent donc que l'amplitude des harmoniques (et en particulier du second) seront plus faibles que celles prévues théoriquement, phénomène que nous retrouvons sur les figures précédentes.

De plus, ceci pourrait également constituer la cause de la différence entre nos valeurs de B/A et celles admises dans la littérature.

En effet, d'après l'équation (105), le paramètre non linéaire est directement proportionnel au terme $10^{\Delta Att 2,10}$.

Or force est de constater sur les courbes simulées présentées sur les figures 3.6 et 3.7 que le pic d'atténuation maximum est plus prononcé pour l'éthanol que pour l'eau. En d'autres termes, cela signifie que le second harmonique est généré, relativement aux autres régions de manière plus importante dans la région focale pour l'éthanol que pour l'eau.

On pourrait donc concevoir que l'incapacité de la lentille à focaliser l'onde en un seul point influencerait de manière plus prononcée sur la valeur de l'atténuation maximum pour l'éthanol que pour l'eau. Si cela était le cas, le $\Delta Att 2$ que nous avons mesuré serait trop faible, ceci pouvant expliquer nos résultats inférieurs de 10 % aux valeurs admises pour le paramètre non linéaire.

Le deuxième point à savoir le décalage entre la position du maximum d'atténuation pour les résultats expérimentaux et les simulations peut être expliqué par deux facteurs.

Il convient tout d'abord de remarquer que les résultats pour l'eau (concernant la position du maximum d'atténuation) étant exceptionnellement bons l'hypothèse du non parallélisme entre l'axe de la lentille et du transducteur récepteur ne peut être évoqué.

Le premier facteur consiste en une incertitude reliée à la position affichée par le programme Labview. En effet, bien que les moteurs possèdent une précision de $1\mu\text{m}$, la valeur de la position affichée peut être différente de la position réelle, si de la friction entre le porte lentille et la cellule, ou entre le liquide et le porte lentille existe. Dans le cas des solvants, ces produits étant dégraissants, la friction et le grippage entre le porte lentille en aluminium et la cellule elle-même en aluminium sont favorisés, menant à une erreur estimée à $\pm 25\mu\text{m}$, soit la valeur d'un incrément lors de l'expérience.

Deuxièmement, la courbe de simulation utilisant la vitesse du son mesurée, subit l'erreur relative à la mesure de ce paramètre. Il est à noter que si la courbe de simulation est calculée avec la vitesse du son issue de la littérature pour l'éthanol, alors le point d'atténuation maximum est décalé de $20\mu\text{m}$ vers la gauche.

De plus, ces explications sont confortées par le fait que sur la figure 3.6 relative à l'eau, le décalage entre les deux maximums est quasiment nul, phénomène justifié par l'aspect « lubrifiant » de l'eau minimisant les erreurs liées au déplacement et à la très faible erreur sur la mesure de sa vitesse du son minimisant la deuxième interprétation.

Afin de vérifier si pour tous les liquides, le maximum d'atténuation était raisonnablement situé, des courbes représentant le maximum d'atténuation $Att2$ en fonction de la distance décalée de la valeur de la distance focale de l'eau furent tracées et sont présentées sur les figures 3.8 à 3.10, où des abréviations sont utilisées afin d'identifier les différents produits.

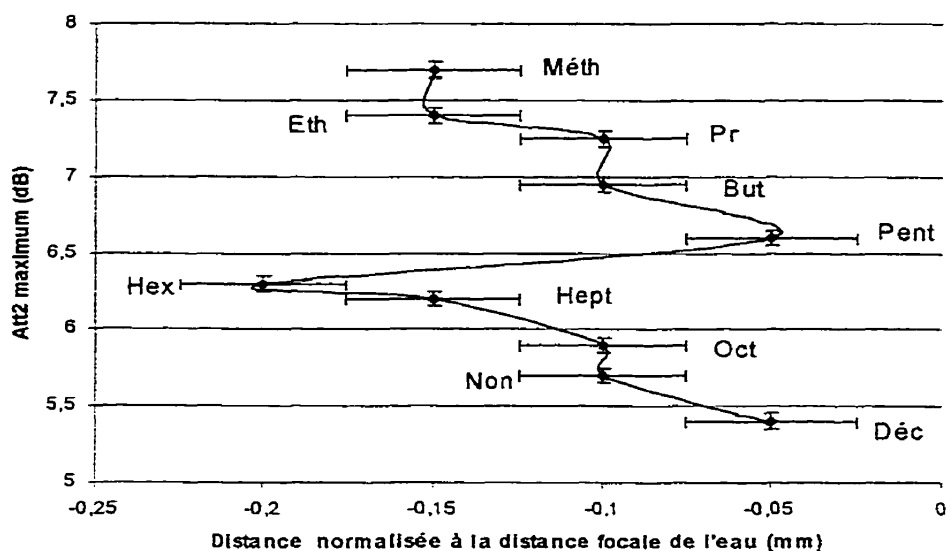


Figure 3.8: Position du maximum d'atténuation en fonction de la distance normalisée à la distance focale de l'eau pour les alcanols

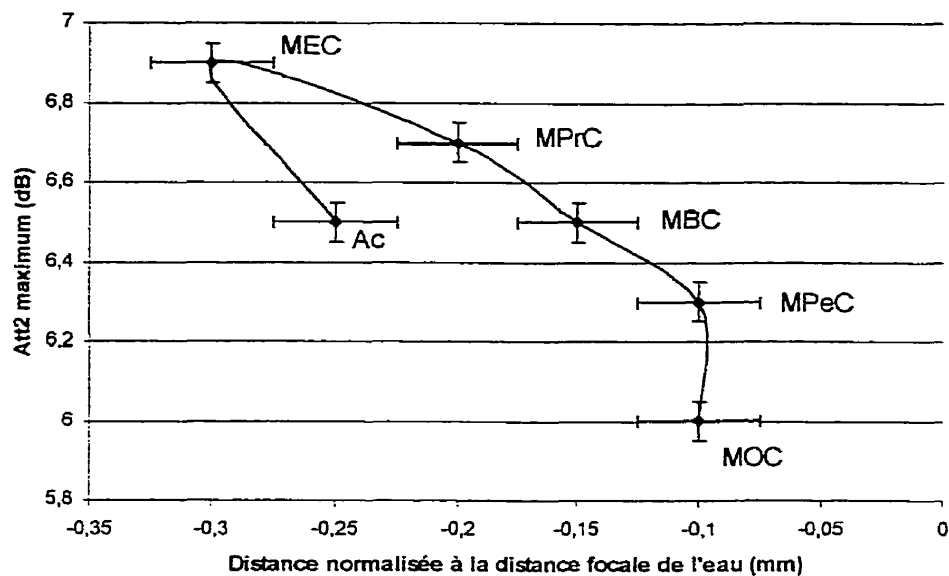


Figure 3.9: Position du maximum d'atténuation en fonction de la distance normalisée à la distance focale de l'eau pour les cétones

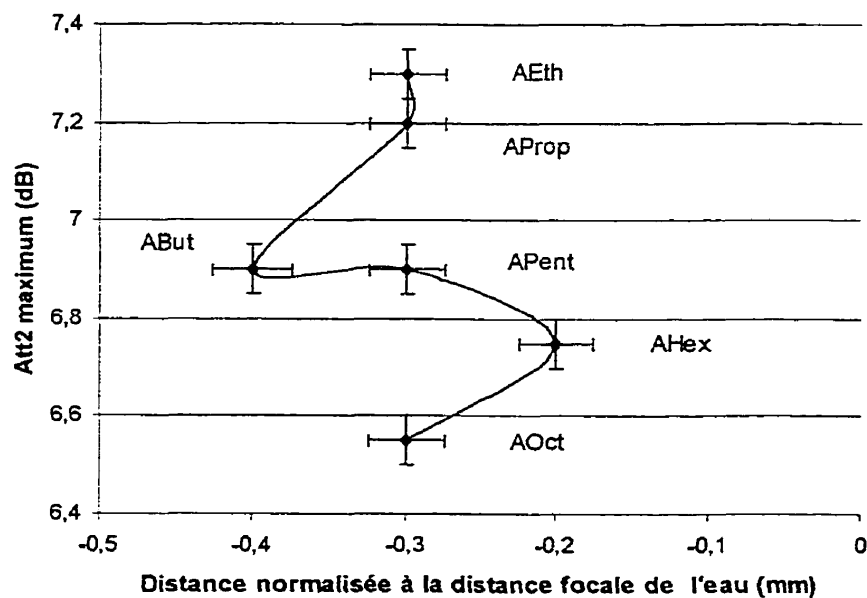


Figure 3.10: Position du maximum d'atténuation en fonction de la distance normalisée à la distance focale de l'eau pour les esters

Ces figures affichent deux tendances générales. D'une part, pour un nombre de carbones croissant, l'atténuation maximum a tendance à diminuer. D'autre part, la position du maximum d'atténuation se rapproche de la valeur de la distance focale de l'eau au fur et à mesure que le nombre de carbones augmente.

Bien que la première tendance reste difficilement explicable, la deuxième peut être justifiée. En effet, d'après l'équation (106), il est clair que la distance focale augmente avec la vitesse du son du liquide. Nous avons déjà pu remarquer dans les tableaux 3-1 à 3-3 que la vitesse du son augmentait avec le nombre de carbones (cette constatation sera justifiée ultérieurement). Il apparaît donc logique et cohérent que la distance focale de ces liquides augmente avec leur nombre de carbones.

Par ailleurs, l'eau est parmi l'ensemble des produits testés, le liquide possédant la vitesse du son la plus grande et donc la distance focale la plus grande. Il est donc clair, qu'au fur et à mesure que le nombre de carbones augmente dans chacune des familles de liquides, leur distance focale augmente en tendant vers celle de l'eau représentée par le 0 de l'axe des abscisses sur les figures 3.8 à 3.10.

Enfin, pour ce qui est des anomalies (abrupte déplacement pour les alcools entre le pentanol et l'hexanol et forme de « S » pour les esters), nous suggérons qu'elles pourraient provenir de phénomènes expérimentaux tels que des déplacements de la lentille par rapport au transducteur récepteur du à la viscosité des solvants ou aux frottements générés par ces solvants entre le porte lentille et son guide. Cette question

reste néanmoins ouverte, et dans tous les cas, n'influence en aucun cas les résultats concernant l'évaluation du paramètre non linéaire dans les liquides testés.

Dans cette partie, nous avons pu montrer que les différences existant entre les résultats théoriques et expérimentaux mises en lumière par les courbes $Att2 = f(x)$ pouvaient être expliquées en terme d'une non ponctualité du point focal du aux aberrations de la lentille en ce qui à trait à l'atténuation, et en terme d'erreurs sur la position réelle de la lentille par rapport au transducteur récepteur du à la viscosité des solvants provoquant des frictions entre le porte lentille et la cellule en ce qui à trait à la position du maximum d'atténuation. Il n'en reste pas moins que les résultats obtenus à l'aide de ces courbes, bien qu'inférieurs aux valeurs de B/A admises dans la littérature, se retrouvent à l'intérieur de l'intervalle défini par les valeurs issues de la littérature, et nous permettent donc de valider notre technique expérimentale.

3.4.2 Dépendance du paramètre non linéaire avec le nombre de carbones

En observant le tableau récapitulatif des paramètres non linéaires pour l'ensemble des liquides testés, il est possible d'observer une augmentation des B/A avec le nombre de carbones présents dans la chaîne. La figure 3.11 présente cette variation pour chacune des familles, l'échelle des ordonnées étant sélectionnée afin optimiser la lecture du graphe.

Par ailleurs, il est à noter que les barres d'erreurs ont été fixées à $\pm 3.8\%$, valeur discutée dans la section 3.3.2 et calculée en Annexe 4, et ne sont présentées que pour les alcanols, toujours dans le but de faciliter la lecture de ce graphe.

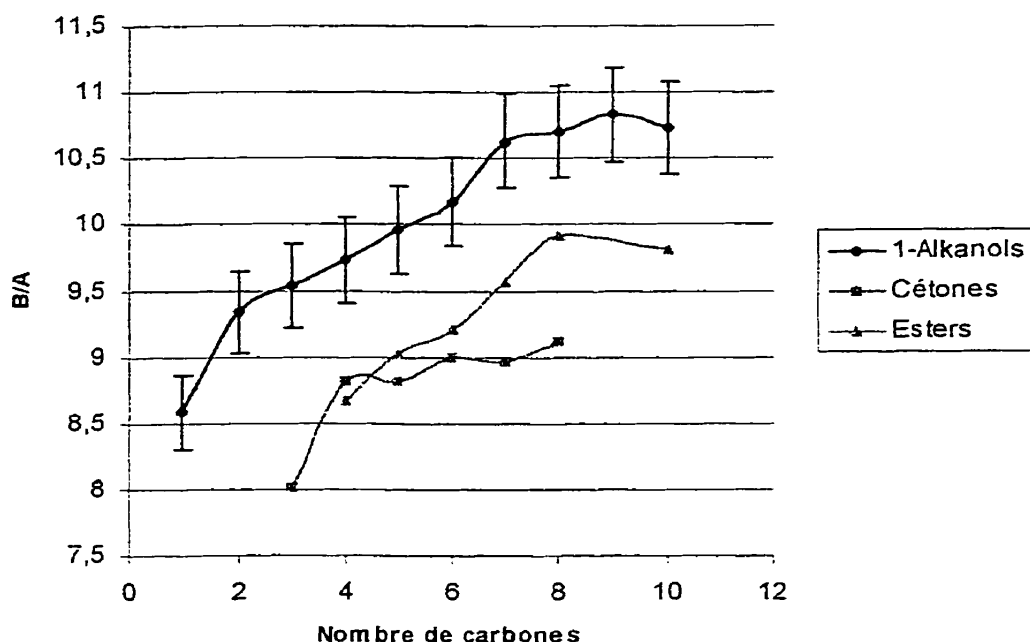


Figure 3.11: Variation de B/A avec le nombre de carbones

La première remarque que nous pouvons faire sur cette figure réside dans la proximité des différentes valeurs du paramètre non linéaire. Tous les solvants testés possèdent en effet un B/A compris entre 8 et 11, ceci étant en accord avec les résultats présentés dans les articles de synthèse, regroupant notamment les valeurs de paramètres non linéaires pour des liquides organiques ^(37, 105, 107).

Deuxièmement, même en considérant l'erreur expérimentale liée principalement à l'erreur sur la mesure de la vitesse du son, il est indéniable que B/A augmente avec le nombre de carbones.

De plus, ayant choisi les liquides de telle sorte à ce que l'ajout d'un carbone représente effectivement, l'ajout d'un même groupe $-CH_2$ par rapport au liquide précédent, l'on peut donc considérer que l'incrément d'un carbone représente également une extension de la longueur de la chaîne carbonée et ce, par un incrément constant.

Par ailleurs, l'augmentation de B/A avec la longueur de chaîne, nous apparaît tout à fait justifiée par rapport aux conditions nécessaires à sa validité énoncées par Hartmann ⁽⁶¹⁾.

Ce dernier affirme en effet qu'étant donnée la dépendance non monotone de B/A avec la pression et la température, la dépendance de B/A avec la longueur de chaîne ne peut être clairement énoncée.

Or, dans notre cas, notre principe expérimental fut bâti sur la possibilité d'obtenir une puissance de la fréquence fondamentale au foyer de la lentille identique quel que soit le liquide testé. La variation de la pression étant donc inexistante (ou du moins très limitée) au point focal dans notre expérience, nous pouvons affirmer que la première des dépendances de Hartmann peut être éliminée.

Par ailleurs, notre expérience fut effectuée à un taux de répétition du pulse initial faible (50Hz), de manière à éviter une variation significative (même locale) de la température du liquide. Il fut en effet estimé que 50Hz serait suffisamment bas pour permettre à l'éventuelle chaleur créée à l'intérieur du liquide, de se dissiper avant l'arrivée du pulse

suivant. Cette supposition fut confirmée lors de nos mesures de $Att2$ où pendant la durée de l'expérience (chaque point prenant en moyenne 2 minutes), aucune variation du au « temps d'exposition » du liquide au pulse et donc à la variation de température, ne fut plus importante que 0.1 dB, valeur considérée dans le calcul de l'erreur expérimentale de B/A . Nous pouvons donc affirmer que la seconde dépendance de Hartmann peut également être éliminée ou du moins que son éventuelle influence a été prise en compte dans notre calcul d'erreur expérimentale.

Suite à ces considérations, nous pouvons donc affirmer sans ambiguïté que le paramètre non linéaire dépend de la longueur de chaîne et plus précisément que B/A a tendance à augmenter avec la longueur de la chaîne pour ces solvants. Il est à noter que ces résultats sont d'ailleurs contraires aux résultats théoriques obtenus par Hartmann, où pour les alcanes, B/A avait tendance à décroître avec la longueur de chaîne ⁽⁶¹⁾.

Des éléments d'interprétation peuvent être donnés à la variation exhibée par nos résultats. En effet, nous savons que la vitesse du son s'avère être le terme dominant dans notre calcul de B/A utilisant l'équation (105). Or, grâce au tableaux 3.1, 3.2 et 3.3, il est possible d'observer une augmentation de la vitesse du son avec la longueur de chaîne.

Ceci proviendrait du fait que pour les molécules courtes, la propagation du son s'opérerait avant tout par les chocs entre molécules, utilisant les interactions intermoléculaires alors que pour les molécules de longueur plus importante, la vibration se propagerait avant tout à l'intérieur de la molécule, utilisant les liaisons intramoléculaires.

Or, ces dernières s'avérant beaucoup plus fortes et rigides que les interactions intermoléculaires, induiraient une compressibilité plus faible pour les liquides possédant une longue chaîne que pour ceux possédant une chaîne plus courte. La vitesse du son étant inversement proportionnelle à la racine carrée de la compressibilité, une vitesse du son plus importante serait alors obtenue pour les liquides à chaîne longue que pour les liquides à chaîne courte.

L'augmentation de B/A pourrait donc être induite par l'augmentation de la vitesse du son avec la longueur de chaîne. En d'autres termes, cela signifierait que la correction de la vitesse du son par rapport à la vitesse du son « petits signaux » due aux effets non linéaires, serait plus importante pour les liquides à chaîne longue que pour les liquides à chaîne courte.

Nous suggérons ici, en utilisant le même argument que celui décrit précédemment qu'à amplitude infinitésimale, la propagation de l'onde s'opérerait essentiellement par interactions intermoléculaires, l'amplitude n'étant pas assez importante pour impliquer les liaisons intramoléculaires.

Cependant, à amplitude finie, alors que pour les chaînes courtes, le processus décrit précédemment demeurerait valide, les liaisons intramoléculaires seraient de plus en plus sollicitées pour les chaînes longues, modifiant donc grandement la vitesse du son, et ce, proportionnellement à la rigidité de la molécule. Ceci expliquerait donc une augmentation de la correction de la vitesse du son par rapport à la vitesse « petits signaux » et donc l'augmentation de B/A avec la longueur de chaîne.

Même ce mécanisme pourrait justifier l'augmentation de B/A avec la longueur de chaîne, certaines nuances doivent être apportées, en regard des résultats présentés sur la figure 3.11.

D'une part, pour les cétones, même si globalement, le paramètre non linéaire semble augmenter avec la longueur de chaîne, l'accroissement semble beaucoup plus hésitant que pour les deux autres familles. L'on assiste, à partir du méthyl-éthyl cétone plus à une « oscillation » du paramètre B/A plutôt qu'à une franche croissance. En tenant compte de l'erreur expérimentale, il apparaît difficile de pouvoir énoncer de manière indéniable que B/A augmente avec la longueur de chaîne pour les cétones.

D'autre part, les deux autres familles exhibent plus ou moins tôt (au niveau de 7 carbones pour les alcanols, 8 carbones pour les esters) une saturation ou un plafonnement de la valeur du paramètre non linéaire. Pour le décanol et l'acétate d'octyle, une faible décroissance de B/A se fait même sentir, phénomène d'ailleurs déjà observé sur les seules autres études systématiques effectuées sur une famille de liquides, à savoir les alcanes (120,121).

Nous avons jusqu'à présent souligné que le paramètre non linéaire avait tendance à augmenter avec le nombre de carbones ou en d'autres termes avec la longueur de chaîne. Si cette tendance apparaît clairement pour les alcanols et les esters, elle semble un peu moins convaincante pour les cétones. De plus, un phénomène de saturation voire même de décroissance semble se manifester pour les chaînes plus longues, suggérant la mesure de B/A pour des solvants possédant un nombre de carbones supérieur à 12.

3.4.3 Dépendance du paramètre non linéaire avec la vitesse du son

Suite à la discussion dans la partie précédente, il nous a paru pertinent d'examiner de plus près la variation du paramètre non linéaire par rapport à la vitesse du son.

Dans le premier chapitre (fin de la section 1.3.1), la loi de Ballou, loi empirique établie à l'origine pour les métaux liquides et reliant le paramètre non linéaire à l'inverse de la vitesse du son fut présentée. Cette loi (équation (70)) que nous rappelons ici, s'énonce :

$$\frac{B}{A} = -0.5 + \frac{(1.2 \cdot 10^4)}{c}$$

Selon cette équation, le paramètre non linéaire devrait donc, exhiber une dépendance linéaire inversement proportionnelle à la vitesse du son.

Cette loi fut tracée et est reproduite sur la figure 3.12, aux côtés des résultats expérimentaux obtenus pour les alcanols, cétones et esters, ainsi que ceux obtenus pour les alcanes ^(120, 121).

Encore une fois, les barres d'erreurs ne sont pas mentionnées sur le graphique dans un seul but de lisibilité, mais l'erreur sur B/A est de $\pm 3.8 \%$ et celle sur c est de $\pm 0.6 \%$ conformément aux erreurs calculées en Annexe 4.

Deux commentaires s'imposent dès le premier coup d'œil. D'une part les résultats expérimentaux apparaissent en totale contradiction avec la loi, B/A augmentant avec la vitesse du son et ce quelle soit la famille de liquides. D'autre part, certains points se retrouvent extrêmement éloignés de la loi, questionnant sa représentativité.

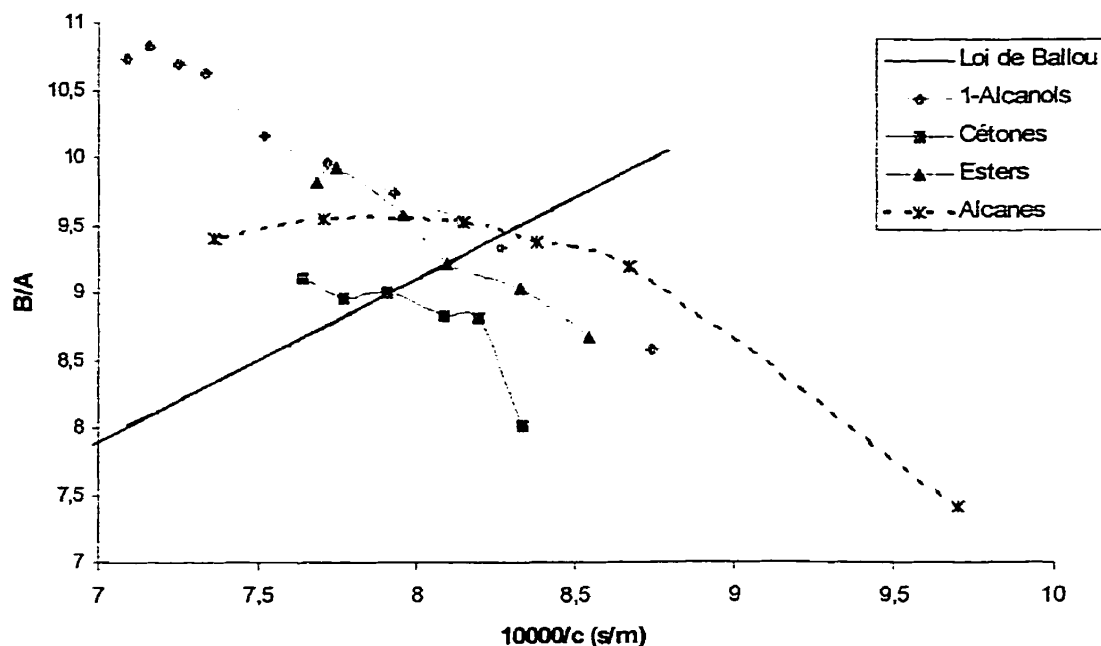


Figure 3.12: Comparaison entre la loi de Ballou et les résultats expérimentaux pour les solvants et les alcanes

Pour reprendre le premier point, conformément à l'explication donnée dans la partie précédente (section 3.4.2), il apparaîtrait justifié que le paramètre non linéaire augmente lorsque l'inverse de la vitesse du son augmente.

Pourtant, Hartmann ⁽⁴⁶⁾ avait apporté un fondement théorique à la loi de Ballou, obtenant une expression de B/A donnée par l'équation (71), confortant donc une variation inverse à celle exhibée par nos résultats. Il faut néanmoins préciser ici, que cette justification théorique s'appuyait sur une hypothèse de symétrie sphérique des molécules, ce qui est loin d'être le cas pour la plupart de nos liquides.

Il se peut donc que la justification théorique et la loi de Ballou ne puissent pas correctement prédire la valeur de B/A pour des molécules non sphériques, et donc à fortiori soit dans l'incapacité de décrire la dépendance du paramètre non linéaire à la vitesse du son pour ces mêmes molécules.

Deuxièmement, il est possible d'observer sur la figure 3.12, une distance relativement importante entre certains points expérimentaux et la loi de Ballou. Ces points peuvent se scinder en deux catégories : ceux relatifs aux molécules possédant une chaîne longue (coin supérieur gauche du graphique) et les autres relatifs aux liquides dont les molécules sont courtes (coin inférieur droit du graphique). Si l'éloignement de la première catégorie de points par rapport à la loi peut s'expliquer par l'argument précédent, il en va autrement pour la deuxième catégorie.

En effet, les molécules les plus courtes (à savoir le méthanol et l'acétate d'éthyle) sont celles étant les plus proches d'une symétrie sphérique. Les valeurs de B/A pour ces liquides devraient donc être relativement bien décrites par la loi de Ballou, ce qui n'est de toute évidence pas le cas. Il est toutefois vrai que si les valeurs admises de B/A pour les deux premiers liquides citées sont considérées, celles-ci se retrouvent plus proches de la droite générée par la loi de Ballou ⁽¹⁰⁵⁾. Cependant, l'hélium liquide à 2K, constitué de molécules sphériques s'il en est et bien qu'il ne soit pas tracé sur la figure 3.12, représente probablement avec un B/A de 4.5 ⁽¹⁰⁶⁾ et une abscisse de 44.05, le point le plus éloigné de la loi de Ballou, remettant en cause sa validité.

De ces deux points, il ressort que la loi de Ballou a peut-être eu tort d'être généralisée à l'ensemble des liquides (et solides) comme moyen de prédiction de la valeur du paramètre non linéaire, la vitesse du son étant connue. Même si, en considérant les valeurs admises de B/A pour les liquides et les gaz, elle semble mieux fonctionner pour les fluides possédant des molécules à symétrie sphérique, elle ne décrit pas de manière convenable la variation du paramètre non linéaire avec la vitesse du son, ni ne prédit des valeurs acceptables de ce paramètre pour les solvants testés, et peut-être plus généralement pour des fluides possédant des molécules non sphériques.

Elle reste néanmoins un outil pour déterminer de manière grossière l'ordre de grandeur du paramètre non linéaire d'un matériau, sa vitesse du son étant connue.

Plus que la validité de cette loi, c'est sans doute son universalité qui est à remettre en cause, étant donnée l'immense variété de propriétés structurales, physiques et chimiques des différents matériaux présents dans la nature. Aussi nous suggérons, comme certains chercheurs l'ont déjà fait ⁽⁵⁶⁾, qu'à chaque famille de liquide corresponde un équivalent de la loi de Ballou élaborée en tenant compte de ses caractéristiques propres, et non une loi unique pour l'ensemble des matériaux.

3.4.4 Modélisation des dépendances de B/A avec le nombre de carbones et avec la vitesse du son.

Étant donné l'incapacité de la loi de Ballou à décrire l'évolution de B/A avec la vitesse du son, et les succès mitigés qu'obtinrent différents modèles pour prédire ce paramètre, du

moins en ce qui concerne les molécules non sphériques, il nous parut intéressant d'essayer d'élaborer un modèle capable de palier ces carences.

Ce modèle se base sur celui de Tong et al. ⁽⁶⁴⁾ déjà décrit au chapitre 1 (Section 1.3.1), dont nous rappelons ici les principales caractéristiques.

Les auteurs se basèrent sur une expression de la vitesse du son obtenue par Schaffs ^(62, 63) en appliquant la loi de Van der Waals aux liquides sous certaines conditions (équations (73) et (74)). Considérant qu'un fluide était constitué de sphères dures, ils purent exprimer et calculer w' , le covolume ou volume réel d'une molécule en fonction du rayon de la molécule. En obtenant les expressions des dérivées partielles de la vitesse du son par rapport à la température et à la pression, respectivement à pression et température constante, ils purent, toujours grâce à la formule de Schaffs, en y substituant w' calculer B/A par l'intermédiaire de l'équation (61). Ils obtinrent l'équation (76) que nous rappelons ici :

$$\frac{B}{A} = (\gamma - 1) \frac{1}{T\alpha_p} + \frac{2(3 - 2z)^2}{3(z - 1)(6 - 5z)}$$

où γ est le ratio des capacités calorifiques, α_p l'expansivité isobarique définie par $(\partial V / \partial T)_p / V$ et z le ratio du volume molaire à la constante w' .

Il est extrêmement important de noter que la formule de la vitesse du son de Schaffs (équation 75) ne repose sur l'hypothèse de sphéricité des molécules que par l'intermédiaire de l'équation de Van der Waals, et que par conséquent les expressions des

dérivées partielles et de B/A obtenues par Tong et al. n'incluent pas l'évaluation du rayon moyen de la molécule pour le calcul de w' . Ils obtinrent notamment :

$$\left(\frac{\partial c}{\partial T}\right)_p = \frac{c\alpha_p}{2} \left(\frac{1}{T\alpha_p} - J(z) \right) \quad (107)$$

avec

$$J(z) = \frac{2(3-2z)^2}{3(z-1)(6-5z)} \quad (108)$$

Les résultats de ce modèle appliqué à nos alcanols sont présentés en figure 3.13 en comparaison avec nos résultats expérimentaux, en fonction du nombre de carbones.

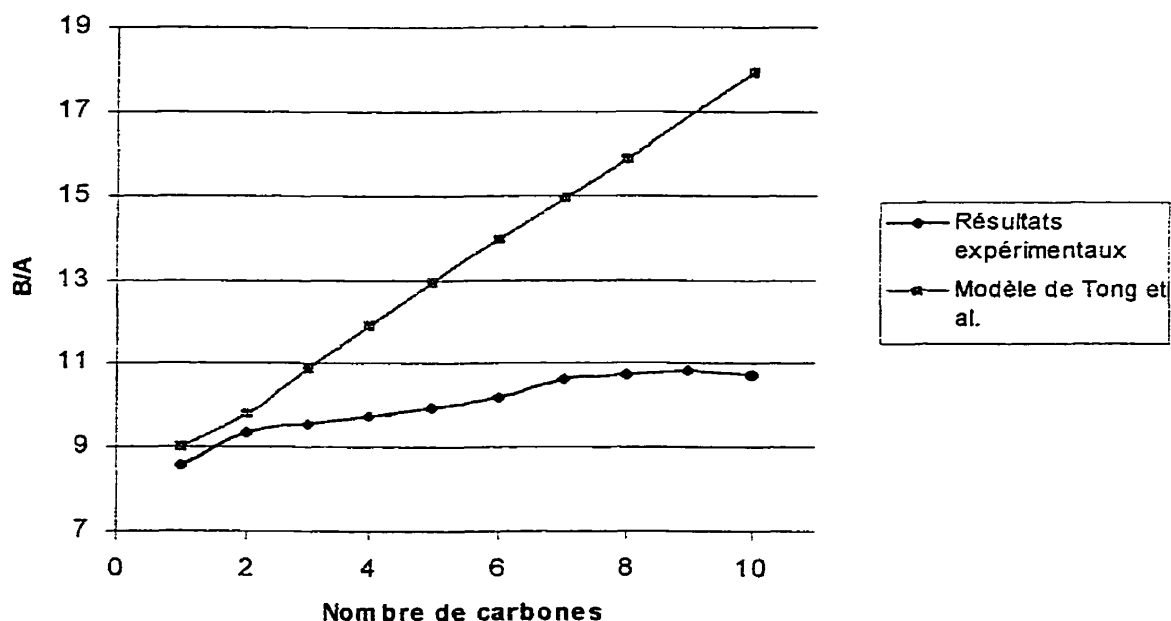


Figure 3.13: Comparaison entre les résultats expérimentaux et les prédictions théoriques du paramètre non linéaire selon le modèle de Tong et al. pour les alcanols en fonction du nombre de carbones

En observant cette figure, il est possible d'affirmer que, même si ce modèle affiche des résultats satisfaisants pour les petites molécules, il en va autrement pour les molécules

possédant une chaîne plus longue, molécules s'éloignant donc de la symétrie sphérique. L'échec de ce modèle pour les molécules à chaîne longue pourrait provenir de la surestimation du rayon de ces molécules, conséquence directe de l'évaluation de w' à l'aide de l'hypothèse de symétrie sphérique.

Afin de palier cet inconvénient, nous nous proposons de modifier ce modèle en le transformant en modèle hybride. Pour ce faire, nous allons nous appuyer sur le fait mentionné plus haut, que hormis l'équation de Van der Waals, l'hypothèse des sphères dures n'intervenait que dans le calcul de w' , donc de z et donc de $J(z)$.

Aussi, les valeurs de $(\partial c/\partial T)_p$ étant disponibles dans la littérature pour les alcanols, nous nous proposons d'évaluer $J(z)$ grâce à l'équation (107) et de le substituer dans l'équation permettant de calculer B/A (équation (71)), évitant ainsi l'hypothèse de symétrie sphérique pour l'évaluation de $J(z)$.

Parmi les paramètres rentrant dans les évaluations de $J(z)$ et de B/A , les valeurs de $(\partial c/\partial T)_p$ furent issues des références (115) et (122), les valeurs de α_p des références (123) à (126) et les vitesses du son issues de nos mesures. La figure 3.14 montre les résultats obtenus par ce modèle hybride en comparaison avec nos résultats expérimentaux en fonction du nombre de carbones.

Ce modèle hybride, contrairement au modèle original démontre une bonne concordance avec les résultats expérimentaux obtenus pour les alcanols. Bien que les petites molécules semblent être moins bien décrites qu'en utilisant le modèle original (différence de -7%

pour le méthanol et de +6 et +7% pour le propanol et le butanol), les résultats pour les chaînes longues s'avèrent excellents.

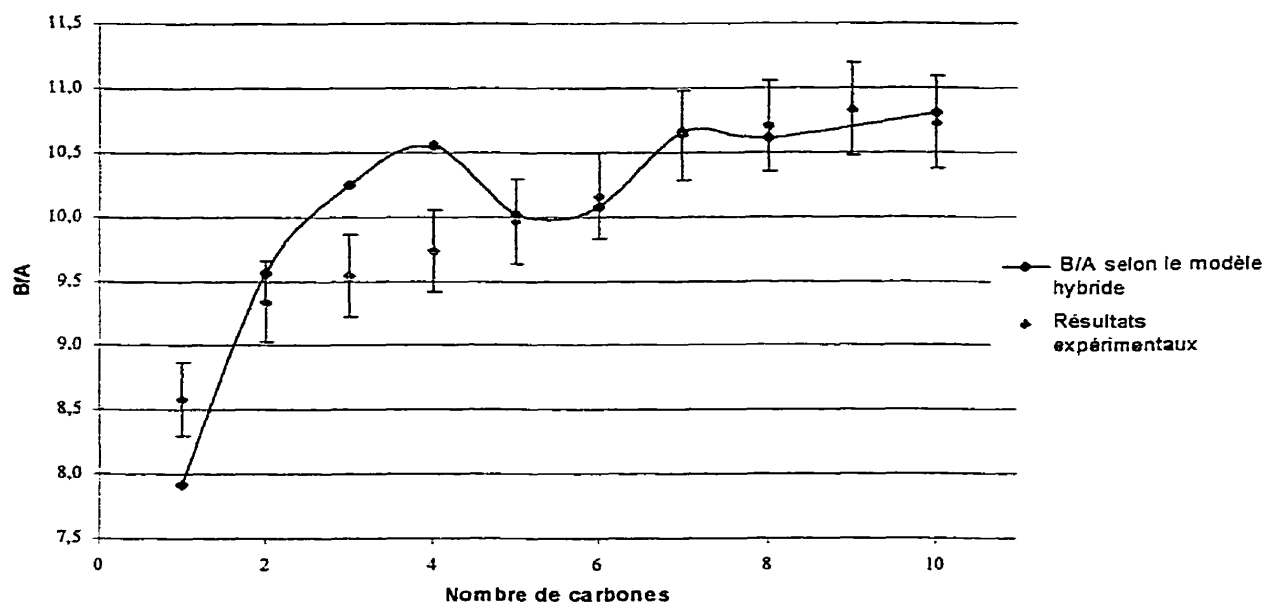


Figure 3.14: Comparaison entre les résultats expérimentaux et les prédictions du paramètre non linéaire par le modèle hybride pour les alcanols en fonction du nombre de carbones

Avant d'expliquer les raisons concernant les différences de résultats pour les petites molécules, nous pouvons d'ores et déjà conclure que l'évaluation de w' grâce à l'hypothèse des sphères dures et donc la surrestimation du rayon moyen de la molécule représentaient très certainement les raisons pour lesquelles le modèle original devenait déficient pour les molécules longues.

Les différences observées entre le modèle hybride et les résultats expérimentaux pour les premier, troisième et quatrième point proviennent du fait que les valeurs des dérivées partielles issues de la littérature ⁽¹¹⁵⁾, sont en réalité une moyenne de ces variables sur une gamme de température assez large (entre 10 et 30 degrés Celcius), alors que celle de

l'éthanol fut prise dans une source où cette dérivée partielle fut évaluée précisément à 25 degrés Celcius ⁽¹²²⁾.

Il serait alors possible que pour les molécules courtes exhibant une forte variation de la vitesse du son en fonction de la température, cette moyenne soit peu représentative de la valeur exacte de la dérivée à la température ambiante à laquelle ont été effectuées les expériences. Afin de palier cet inconvénient, il faudrait donc mesurer les valeurs de $(\partial C/\partial T)_p$ à la température ambiante.

Par ailleurs, il nous fut malheureusement impossible de tracer ces courbes pour les cétones et les esters, la littérature faisant défaut en ce qui concerne les valeurs de α_p et γ pour ces produits.

Enfin, nous avons voulu vérifier la capacité de ce modèle à décrire la dépendance de B/A avec la vitesse du son. Ces résultats sont présentés sur la figure 3.15.

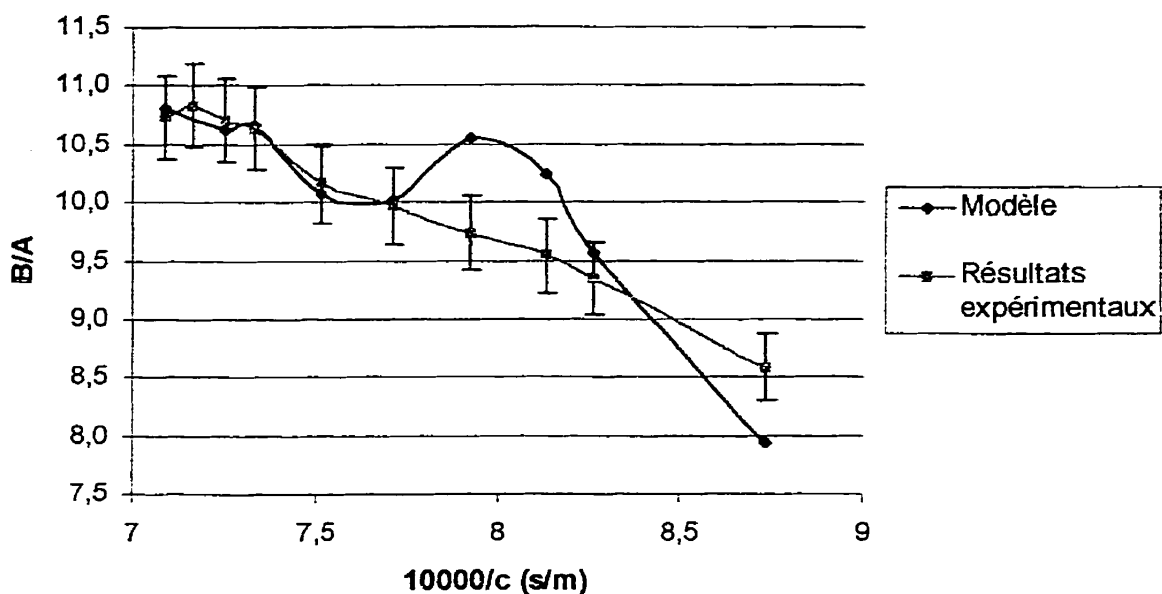


Figure 3.15: Comparaison entre les résultats obtenus pour le modèle hybride et les résultats expérimentaux pour les alcanols concernant la variation B/A avec la vitesse du son

Comme escompté, le modèle décrit convenablement la variation de B/A avec la vitesse du son, représentant à notre connaissance le premier succès théorique quant à ce comportement.

Là encore, les résultats concernant le méthanol, propanol et butanol ne s'avèrent pas excellents, et ce encore une fois probablement à cause du moyennage des valeurs de la dérivée partielle de la vitesse du son par rapport à la température.

Ce modèle provenant d'une modification du modèle de Tong et al. visant à éviter la surestimation du rayon moyen des molécules, s'avère donc adapté à la prédiction de la valeur du paramètre non linéaire pour les alcanols ainsi qu'à la description des dépendances de B/A avec le nombre de carbones et avec la vitesse du son pour ces mêmes

produits. Il resterait cependant à vérifier la validité et la précision de ce modèle pour d'autres familles de liquides, en particulier pour les cétones et les esters, lorsque les α_p et γ manquants deviendront disponibles.

Au cours de ce chapitre, nous avons démontré que les courbes d'atténuation $Att2$ en fonction de la distance exhibaient une différence par rapport aux prédictions théoriques, notamment à cause d'une incapacité de la lentille à focaliser l'onde provenant du transducteur émetteur en un seul point. Il fut également montré que la position du maximum d'atténuation ne se situait pas toujours à la position escomptée, et ce à cause de la friction entre le porte-lentille et la cellule et de l'erreur sur la mesure de la vitesse du son. Malgré ces erreurs, nos résultats concernant le paramètre non linéaire s'avèrent valables et satisfaisants.

De plus, il fut constaté que nos résultats exhibaient une tendance contraire à celle prédite par le loi de Ballou, en ce qui concerne la dépendance de B/A par rapport à l'inverse de la vitesse du son, remettant en cause la pertinence, mais plus encore l'universalité de cette loi, supposément applicable à l'ensemble des matériaux.

Enfin, une hybridation d'un modèle existant nous permit d'obtenir pour la première fois, une description de la variation de B/A avec le nombre de carbones et avec la vitesse du son, et ce de manière fidèle à nos résultats. Ce modèle, limitant l'hypothèse de symétrie sphérique à l'équation de Van der Waals, s'avère efficace, même si certaines erreurs dues à une imprécision des données issues de la littérature restent présentes.

CHAPITRE 4 B/A DANS LES POLYMÈRES

A la vue des résultats obtenus dans le chapitre 3, nous avons voulu tester l'applicabilité de notre technique à la caractérisation du paramètre non linéaire dans les solides. Ceci fut réalisé sur deux polymères à savoir le polystyrène et le polyméthylmétacrylate (PMMA). Dans cette partie, la description du montage expérimental ainsi que les corrections nécessaires par rapport à la théorie seront présentées tout comme la méthodologie expérimentale et les résultats obtenus sur les deux polymères.

4.1 DESCRIPTION DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL

Le montage expérimental utilisé dut avant tout permettre l'application de l'analyse théorique relative au liquide. Pour ce faire, au contraire des techniques présentées au chapitre 2 où le déplacement était la variable permettant la détermination de B/A , la pression dut être la variable à mesurer. Il fallut alors trouver un moyen de transformer la vibration du polymère produite par l'onde (déplacement) en variation de pression. Ceci put être obtenu grâce à la présence d'une fine couche de liquide entre la plaque de polymère et le transducteur récepteur (fig 4.1).

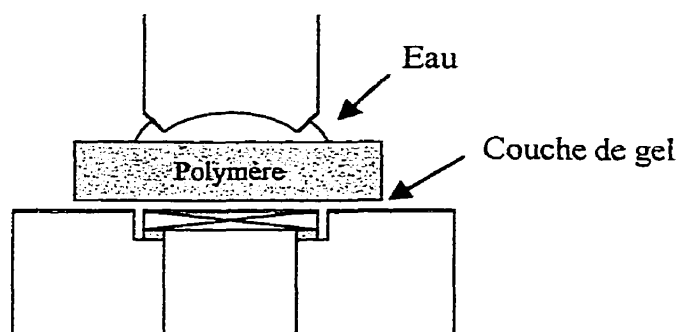


Figure 4.1: Partie acoustique du montage expérimental relatif à la mesure de l'atténuation dans les polymères

Dans ce montage, le signal émis par la lentille placée verticalement put se focaliser dans une mince couche d'eau utilisée comme liquide de couplage entre la lentille et le polymère. Toutefois, l'épaisseur de cette dernière fut gardée faible afin d'y limiter l'éventuelle génération d'harmonique. Par la suite, une fois le signal transmis au polymère, les harmoniques générés dans la plaque dans la région focale, permirent la vibration et donc le déplacement de la face inférieure de la plaque. Celle-ci put transmettre ce signal sous forme de variation de pression au transducteur récepteur par l'intermédiaire d'une fine couche de liquide couplage, composée d'un gel ultrasonore (gel Aquasonic 100 de la compagnie Parker Laboratories Inc.) placée en sandwich entre la plaque de polymère et le transducteur récepteur. L'utilisation d'un gel ne pourmit donc d'avoir un montage semi-permanent, et de réeffectuer l'expérience à divers endroits de la plaque de polymère, sans risquer d'endommager le transducteur. Ce dernier fut collé par ses arrêtes à un bloc d'aluminium percé avec de l'époxy, de manière à ce que sa face supérieure (partie faisant face au gel) soit exactement au même niveau que la surface

du bloc, permettant ainsi une uniformité de l'épaisseur de la couche de gel. Le signal reçu par le transducteur récepteur fut ainsi un signal issu d'un liquide, et donc d'une nature identique à celui du chapitre 3, nous permettant donc d'utiliser la même démarche théorique que dans ce chapitre. De plus les polymères utilisés sont isotropes, renforçant donc l'idée d'analogie avec les liquides.

Pour le reste du montage, aucun élément ne fut modifié, permettant de conserver les attributs du montage relatif aux liquides (présence de filtres pour bloquer les harmoniques électroniques, atténuateur variable pour garder le signal harmonique constant, ou encore utilisation d'un matériau référence).

4.2 CORRECTIONS THÉORIQUES

L'expérience sur les polymères étant analogue à celle menée sur les liquides, les deux concepts propres à l'expérience menée dans ces fluides furent conservés : l'égalité de la pression relative à la fréquence fondamentale au point focal quel que soit le matériau testé, et l'approximation des ondes planes dans la région focale.

Pour autant, la situation fut différente quant à la possibilité d'obtenir le point focal de l'onde, le plus proche possible du transducteur récepteur. En effet, l'utilisation obligatoire d'un liquide pour effectuer le couplage acoustique entre la lentille et la plaque de polymère modifia la position du point focal.

Grossièrement (les calculs exacts seront détaillés par la suite), si la plaque de polymère avait parfaitement épousé la forme de la cavité sphérique de la lentille, les distances focale dans le polystyrène et dans le PMMA auraient été de l'ordre de 3 mm. Ne pouvant pas adopter la forme des plaques à la cavité de la lentille et ne disposant de plus que de plaques de polymère d'épaisseur fixe, l'eau du être utilisée afin de réaliser la transition entre le quartz et les matériaux testés. Cette utilisation modifia considérablement la position du point focal, donnant après le passage de l'onde dans l'eau, de nouvelles « distances focales » de l'ordre du mm. Des plaques d'épaisseur proche du mm auraient donc du être employées afin d'obtenir le point focal le plus proche possible de la face inférieure de ces plaques. Cependant, possédant un pulse de 1 μ s, et les vitesses des ondes longitudinales dans ces deux polymères étant approximativement de 2500m/s, le temps de propagation du signal dans les polymères aurait été de l'ordre de 0.4 μ s, provoquant des interférences, un élargissement en temps du signal harmonique et donc une difficulté quant à la mesure de l'amplitude du second harmonique.

Un compromis dut donc être réalisé : afin d'éviter le problème d'interférences, des plaques d'environ 2mm d'épaisseur furent choisies imposant de ce fait, une position de point focal au milieu de la plaque et non sur la face inférieure de cette dernière.

De manière générale, le calcul de la localisation du point focal s'énonce comme suit :
(figure 4.2)

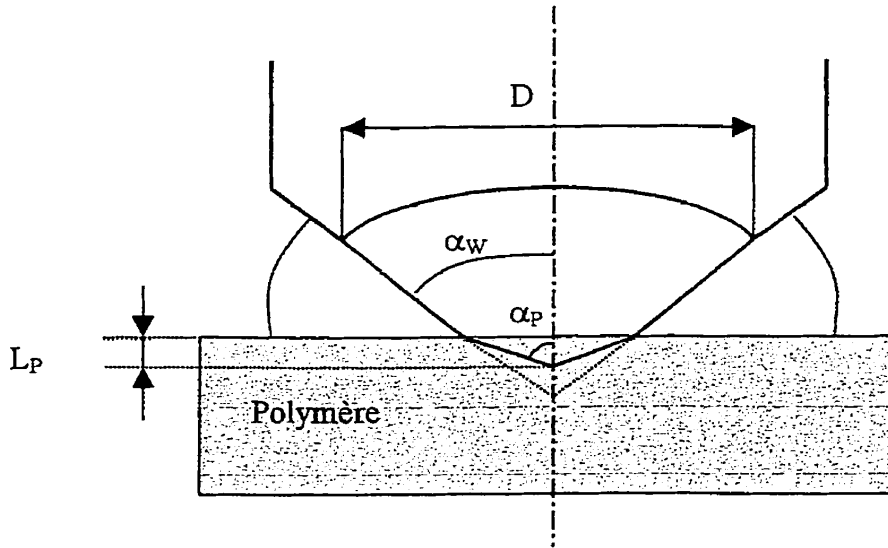


Figure 4.2: Calcul de la localisation du point focal dans le polymère

Si d_W est la distance focale de l'eau, D le diamètre de la cavité de la lentille, alors α_W , l'angle maximum d'incidence de l'onde dans l'eau s'énonce alors:

$$\alpha_W = \tan^{-1} \left(\frac{D/2}{d_W} \right) \quad (109)$$

En utilisant la loi de Descartes α_P , angle maximum d'incidence dans le polymère s'écrit:

$$\alpha_P = \sin^{-1} \left(\frac{c_P}{c_W} \sin \alpha_W \right) \quad (110)$$

où c_P et c_W sont les vitesses du son dans le polymère et l'eau respectivement. En considérant l'épaisseur de la couche d'eau comme négligeable (environ $200\mu\text{m}$ dans notre cas), L_P , position du point focal dans le polymère est donc obtenue par :

$$L_P = \frac{D/2}{\tan \alpha_p} \quad (111)$$

De ce fait, L_P représentant la position du point focal dans le polymère par rapport à sa face supérieure, sera désormais utilisé comme analogue à la distance focale calculée pour les liquides.

Il est alors maintenant possible de procéder aux corrections énoncées au début de cette sous-partie.

Pour ce qui est de l'égalité de la puissance de la fondamentale au point focal, il est possible de définir P_{1P_1} , puissance dans le polymère 1 référence et P_{1P_2} , puissance dans le polymère 2 par :

$$P_{1P_1} = kV_{0P_1}^2 T_{TQ} T_{QW} T_{WP_1} \exp(-\alpha_{1P_1} L_{P_1}) \quad (112)$$

$$P_{1P_2} = kV_{0P_2}^2 T_{TQ} T_{QW} T_{WP_2} \exp(-\alpha_{1P_2} L_{P_2}) \quad (113)$$

où l'atténuation dans la couche d'eau a été négligée, étant donnée sa faible épaisseur.

Dans ces formules, k est la constante relative aux caractéristiques du transducteur émetteur, les V_0 sont les voltages d'entrée, T_{TQ} , T_{QW} et T_{WP_i} , respectivement les coefficients de transmission du transducteur émetteur vers la lentille, de la lentille vers l'eau et de l'eau vers le polymère i , et les α_{1P_i} , les coefficients d'atténuation relatifs à la fréquence fondamentale dans le polymère i .

La condition sur les voltages d'entrée afin d'obtenir une pression relative à la fondamentale identique quel que soit le polymère s'énonce donc :

$$V_{0P_2} = V_{0P_1} \sqrt{\frac{T_{WP_1}}{T_{WP_2}}} \exp(-\alpha_{1P_1} L_{P_1} + \alpha_{1P_2} L_{P_2}) \quad (114)$$

équation analogue à l'équation (99) pour les liquides.

Encore une fois de manière identique aux liquides, les puissances mesurées P_{2mP_1} et P_{2mP_2} relatives au second harmonique s'énoncent :

$$P_{2mP_1} = k' P_{2P_1} T_{P_1G} T_{GT} \exp(-\alpha_{2P_1} (e_{P_1} - L_{P_1})) \quad (115)$$

$$P_{2mP_2} = k' P_{2P_2} T_{P_2G} T_{GT} \exp(-\alpha_{2P_2} (e_{P_2} - L_{P_2})) \quad (116)$$

où k' est une constante relative aux caractéristiques du transducteur récepteur, les P_{2P_i} sont les puissances du second harmonique au foyer, les T_{P_iG} et les T_{GT} les coefficients de transmission du polymère i au gel et du gel au transducteur, les α_{2P_i} les coefficients d'atténuation relatifs au second harmonique dans les polymères i et les e_{P_i} , les épaisseurs des plaques de polymère i . Encore une fois, les atténuations dans les couches d'eau et de gel ont été négligées, étant donné leur faible épaisseur.

En conservant la même démarche que pour les liquides, et considérant le nouveau F défini par $F_{P_i} = L_{P_i} / D$, l'analogie de l'équation (105) s'énonce :

$$\left(\frac{\beta_{P_2}}{\beta_{P_1}}\right) = \sqrt{10^{\Delta Att2/10} \frac{T_{P_2G}}{T_{P_1G}} \exp(\alpha_{2P_2}(e_{P_2} - L_{P_2}) - \alpha_{2P_1}(e_{P_1} - L_{P_1}))} \cdot \sqrt{\frac{F_{P_1}^2 \rho_{P_2} c_{P_2}^5}{F_{P_2}^2 \rho_{P_1} c_{P_1}^5 \exp\left[-\frac{7.1}{\Phi} [c_{P_2} F_{P_2}^2 (2\alpha_{1P_2} + \alpha_{2P_2}) - c_{P_1} F_{P_1}^2 (2\alpha_{1P_1} + \alpha_{2P_1})]\right]}} \quad (117)$$

les effets des couches d'eau et de gel en ce qui concerne l'atténuation ayant été négligés. Nous rappelons que $\Delta Att2$ est la différence d'atténuation entre les deux polymères afin d'obtenir un signal relatif au second harmonique constant, que les ρ_i sont les densités, les c_i les vitesses du son et Φ la fréquence fondamentale.

Cette équation nous permettra donc de calculer le paramètre non linéaire d'un polymère P_2 par rapport à un polymère P_1 dont le B/A est connu, et qui nous servira donc de référence.

Ceci fut effectué grâce au montage expérimental décrit précédemment et réalisé en utilisant la méthodologie expérimentale suivante.

4.3 MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE

Tout comme pour les liquides, la vitesse du son et la mesure de $\Delta Att2$ furent effectuées.

4.3.1 *Mesure de la vitesse du son*

Les épaisseurs des plaques de polymère étant fixes, la méthode de variation du temps de vol en fonction de la distance utilisée pour les liquides ne put être employée. Dans le cas des polymères, la vitesse du son fut également mesurée par une méthode « pitch-catch » mais cette fois-ci en réflexion.

Pour ce faire, un transducteur émettant uniquement des ondes longitudinales, possédant une fréquence de résonance centrée autour de 10 MHz et un diamètre de 2.5 cm de la compagnie MATEC fut utilisé afin de générer le signal acoustique.

Ce dernier fut immergé dans un réservoir contenant de l'eau, dans lequel se trouvait un support en aluminium percé d'un trou et au-dessus duquel fut placée la plaque de polymère testée. Dans un premier temps, le transducteur fut amené à la surface de la plaque de polymère, et le parallélisme du transducteur par rapport à la plaque, optimisé grâce à une platine ajustable sur laquelle reposait le bain d'eau. Le transducteur fut ensuite remonté de 2 cm de manière à bien distinguer le pulse initial lancé par le RITEC et les échos issus des réflexions des faces supérieures et inférieures de la plaque de polymère. Ces signaux furent visualisés sur le même oscilloscope que celui utilisé pour les liquides, et le temps de vol entre l'écho issu de la réflexion par la face supérieure et l'écho issu de la réflexion par la face inférieure du polymère mesuré. Cinq mesures furent effectuées à divers endroits de la plaque de polymère afin d'obtenir une moyenne $\Delta \bar{t}$ sur les temps de vol.

L'épaisseur e_i de chaque plaque fut alors mesurée en utilisant un pied à coulisse digital encore une fois à cinq endroits afin d'obtenir $\bar{e}_i$.

La vitesse du son peut être alors calculée par :

$$c_i = \frac{2\bar{e}_i}{\Delta t} \quad (118)$$

4.3.2 Mesure de la quantité $Att2$ et détermination de $\Delta Att2$

Contrairement aux liquides, la réalisation d'une courbe $Att2 = f(x)$ ne put pas être la méthode adéquate afin de mesurer la différence d'atténuation entre le polymère testé et la référence. En effet, de par les contraintes mentionnées plus haut, il fut impossible d'obtenir le point focal positionné sur la face inférieure des plaques de polymères, point où la génération d'harmoniques est la plus importante, et donc point où le signal relatif au second harmonique est maximum. Ceci ne nous a donc pas permis d'obtenir une courbe $Att2 = f(x)$ avec un point d'atténuation maximum d'où $\Delta Att2$ aurait pu être extrait. Le choix d'une plaque d'épaisseur supérieure aux L_p , nous contraignit donc à mesurer $Att2$ lorsque le point focal fut grossièrement situé au milieu de la plaque, et à ne la mesurer qu'en un seul point. De plus, afin de limiter la génération d'harmoniques dans l'eau, la position de la lentille dut se trouver très proche de la plaque de polymère, mais aussi suffisamment loin pour que l'onde put « voir » l'eau.

Ceci fut donc réalisé de la manière suivante. Tout d'abord, la lentille montée sur le système de déplacement fut amenée à la surface du bloc d'aluminium et entre les deux

éléments assurés, grâce à la même platine que celle utilisée pour la mesure de la vitesse du son. La lentille fut ensuite éloignée de la surface du bloc d'une distance égale à l'épaisseur de la plaque à tester, plus 200 μm , cette dernière distance représentant l'épaisseur de la couche d'eau. Cette grandeur fut choisie car elle est suffisamment faible pour y négliger l'absorption (le facteur $e^{-\alpha_1 x}$ étant de 0.999 à 15MHz) et la génération d'harmonique, et suffisamment importante (2 longueurs d'onde) pour que l'eau soit « vue » par l'onde incidente.

Une noisette de gel fut alors placée sur le transducteur récepteur et la plaque de polymère posée par dessus. Une pression sur la plaque fut exercée et un mouvement circulaire effectué jusqu'à ce qu'une résistance soit sentie, ces actions permettant de réduire l'épaisseur de la couche de gel, d'éliminer les bulles d'air pouvant exister dans cette couche, et d'assurer un contact maximum entre le polymère et la lentille.

La lentille fut alors amenée par translation horizontale à l'aplomb du transducteur récepteur et l'eau injectée entre la lentille et le polymère grâce à une seringue. Cette procédure fut effectuée tout d'abord sur le polymère référence (polystyrène) puis sur le polymère testé (PMMA).

La plaque de polystyrène étant en place, et la lentille adéquatement positionnée, le MATEC fut allumé, délivrant comme pour les liquides un pulse de 1 μs centrée à 15 MHz. Une valeur *Att1* sur le premier atténuateur manuel fut appliquée arbitrairement de manière à obtenir le voltage d'entrée V_{OPS} et la position de la lentille ajustée latéralement afin de maximiser l'amplitude du signal harmonique. Une valeur d'atténuation *Att2* fut alors choisie arbitrairement afin d'obtenir une certaine amplitude du signal relatif au second harmonique sur l'oscilloscope. Une fois cette mesure notée, la lentille fut décalée

latéralement, la plaque enlevée et le tout nettoyé. La totalité du processus postérieur au positionnement vertical de la lentille (application du gel, de la plaque de polymère, et positionnement de la lentille à l'aplomb du transducteur et maximisation du signal harmonique) fut alors réeffectué 4 fois puis $Att2$ mesurée afin d'obtenir avec le même V_{OPS} un signal issu du second harmonique constant. Cinq valeurs de $Att2$ pour le polystyrène furent donc recueillies.

La même procédure fut employée avec le PMMA en positionnant toutefois la lentille à une distance égale à l'épaisseur de la plaque de PMMA plus $200\mu\text{m}$, en ajustant le voltage d'entrée à V_{OPMMA} , calculé à l'aide de l'équation (114) en modifiant la valeur $Att1$ et en réglant à chaque fois $Att2$ de manière à obtenir la même amplitude du signal harmonique que pour le polystyrène. Là également cinq mesures furent effectuées, afin d'obtenir une moyenne sur les atténuations $Att2$ pour le PMMA.

La différence entre les moyennes de $Att2$ pour le polystyrène et le PMMA fut alors calculée, donnant $\Delta Att2$, puis introduite dans l'équation (117) pour finalement obtenir le B/A du PMMA.

Il est à noter, que dans cette formule, outre $\Delta Att2$ et les vitesses du son, les autres paramètres furent pris dans la littérature, les densités provenant du fabricant des plaques, et les coefficients d'atténuation de la référence (122), alors que le B/A du polystyrène fut tiré de la référence (112).

4.4 RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET DISCUSSION

4.4.1 Résultats concernant la vitesse du son

Les épaisseurs $\bar{e}_i$, les temps de vol $\Delta \bar{t}$ et les vitesses obtenues pour le polystyrène et le PMMA sont présentées dans le tableau 4.1 en comparaison avec des valeurs trouvées dans la littérature :

Polymère	Épaisseur (mm)	Temps de vol (μ s)	Vitesse (m/s)	Vitesses issues de la littérature (m/s)
PS	1.974	1.64	2407	2308 ^(a) , 2400 ^(b)
PMMA	1.760	1.32	2667	2748 ^(a) , 2610 ^(b)

(a) Ref. 112

(b) www.ultrasonic.com

Tableau 4-1: Vitesses du son obtenues dans le polystyrène et le PMMA comparées à des valeurs issues de la littérature

Comme on peut le constater, nos vitesses du son possèdent le bon ordre de grandeur par rapport à celles trouvées dans la littérature. Cependant, étant donné la large gamme de polystyrènes et PMMA présents sur le marché, induisant une large gamme de vitesse du son, il nous est difficile de conclure à une erreur par rapport à la valeur correspondant à nos polymères en particulier. Dans la suite de nos calculs, nos valeurs seront donc utilisées.

De plus, force est de constater que la méthode employée pour la détermination de la vitesse du son dans les polymères possède plus d'incertitudes expérimentales que celle employée pour les liquides. En effet, outre les incertitudes relatives à la précision des curseurs de l'oscilloscope et relatives à la mesure de l'épaisseur des plaques, s'ajoute celle du possible non parallélisme du transducteur par rapport à la plaque, aux possibilités de décalage des temps d'arrivées du aux effets de diffraction, et surtout au fait que la mesure ne put être effectuée que pour une seule distance de propagation dans le milieu à caractériser.

En considérant 0.005 mm d'incertitude pour l'épaisseur des plaques, $0.01\mu\text{s}$ pour l'incertitude des curseurs et $0.02\mu\text{s}$ pour le non parallélisme et les effets de diffraction, on obtient une incertitude de 2.1% pour le polystyrène et de 2.5% pour le PMMA.

Les vitesses obtenues s'expriment donc :

$$c_{\text{PS}} = 2400 \pm 25 \text{ m/s}$$

$$c_{\text{PMMA}} = 2670 \pm 33 \text{ m/s}$$

4.4.2 Résultats concernant la mesure du paramètre non linéaire

Le résultat obtenu pour la valeur de ΔAtt_2 entre le polystyrène et le PMMA fut de -3.18 dB, moyenne obtenue par la différence de la moyenne des 5 mesures de l'atténuation relative au polystyrène et de la moyenne des 5 mesures de l'atténuation relative au PMMA.

Il est à noter que les valeurs individuelles d'atténuation ne varièrent pas plus de 0.1 dB pour chacun des matériaux, témoignant de l'homogénéité de ces derniers et de la reproductibilité de la qualité et de l'épaisseur du joint de gel entre la plaque de polymère et le transducteur récepteur.

Le paramètre non linéaire sur le PMMA put alors être calculé, en substituant la valeur de $\Delta Att2$ dans l'équation (177). Il est à noter que les coefficients d'atténuation à 15 MHz utilisés dans cette équation furent calculés à partir de ceux issus de la référence (127) donnés à 5 MHz, en considérant un comportement linéaire de l'atténuation par rapport à la fréquence.

En prenant la valeur de 7.4 pour le paramètre non linéaire du polystyrène ⁽¹¹²⁾, une valeur de 9.7 fut trouvée pour le B/A du PMMA, soit 4.9% inférieur à la valeur de 10.2 issue de cette même référence (toutes ces valeurs ainsi que le détail des calculs sont donnés en annexe 5).

L'incertitude expérimentale sur ce résultat put être calculée, en utilisant la même démarche que pour les liquides, notamment considérant l'incertitude quant aux valeurs des densités, des coefficients d'atténuation et à la vitesse du son du gel égale à la variation de leur dernier chiffre significatif, 0.03 dB pour l'incertitude sur $\Delta Att2$, 0.01 mm sur l'épaisseur des plaques, 0.005 pour L_P , l'incertitude calculée précédemment sur les vitesses du son et les écarts maximums pour les autres facteurs de l'équation. De cette

manière, une incertitude expérimentale de $\pm 10\%$ fut obtenue. Le résultat du paramètre non linéaire pour le PMMA s'énonce donc :

$$\left(\frac{B}{A}\right)_{PMMA} = 9.7 \pm 1.0$$

4.4.3 Discussion

Au cours de cette partie, nous avons pu constater qu'une modification de la technique expérimentale utilisée pour les liquides pouvait être mise en place afin de caractériser le paramètre non linéaire dans les polymères. En utilisant le polystyrène comme référence, il fut alors possible de calculer B/A pour le PMMA grâce à la mesure de l'atténuation relative au second harmonique généré dans les polymères. Le résultat obtenu se compare à la valeur mentionnée dans la littérature, pouvant donc laisser envisager une application de cette technique pour caractériser les paramètres non linéaires dans les liquides.

Pour autant, l'incertitude expérimentale relative à la mesure de B/A apparaît très importante. Ceci provient principalement du fait de l'incertitude présente sur les vitesses du son dans ces deux polymères, incertitude étant reliée à la méthode de mesure.

Nous pouvons donc affirmer que la technique expérimentale afin de mesurer le paramètre non linéaire dans les polymères s'avère valable, mais que si des précisions plus

importantes sont requises, une autre technique de mesure de vitesse du son devrait être utilisée.

CONCLUSION

Aussi bien dans les liquides que dans les solides, le développement de la théorie non linéaire aboutit à une équation, nommée équation de Burgers, permettant de décrire le plus simplement possible la propagation d'une onde dans un milieu non linéaire en tenant compte des phénomènes d'absorption relatifs au milieu de propagation. Les solutions de cette équation firent apparaître une grandeur, appelée paramètre non linéaire, caractéristique de la non linéarité du milieu de propagation. Ce paramètre, appelé également B/A devint alors un facteur propre à chaque matériau, et de ce fait créa l'engouement des chercheurs pour l'élaboration de techniques expérimentales visant sa mesure.

Parmi ces techniques, figure celle dite des amplitudes finies, où la mesure de l'amplitude du second harmonique généré par la non linéarité du matériau permet le calcul de B/A .

Au cours de cette étude, le principe de cette technique fut utilisé, la génération du second harmonique étant provoquée par la focalisation d'une onde ultrasonore à l'aide d'une lentille acoustique.

Les mesures de B/A furent menées sur trois familles de solvants, à savoir les 1-alkanols, les cétones et les esters. Dans un premier temps, des valeurs de B/A furent obtenues sur les membres de ces familles dont le paramètre non linéaire était connu, nous permettant de valider notre technique par comparaison avec les valeurs présentes dans la littérature. Dans un deuxième temps, la caractérisation fut étendue à la détermination du paramètre non linéaire dans les autres membres de ces familles.

Grâce à cette étude systématique, il fut montré que le paramètre non linéaire augmentait avec la longueur de chaîne et qu'une « saturation » était observée pour les liquides possédant de longues molécules (typiquement 9 carbones et plus).

Par ailleurs les valeurs obtenues nous permirent de montrer que B/A augmentait avec la vitesse du son. Ce résultat s'avéra en totale contradiction avec la loi de Ballou, loi dont la validité mais surtout la généralisation à l'ensemble des matériaux fut remise en cause. Une alternative s'appuyant sur une modification d'un modèle basé sur l'équation de Van der Waals fut proposée, obtenant une bonne corrélation avec nos résultats expérimentaux.

Enfin, le même principe de mesure fut testé sur un polymère, afin de vérifier son applicabilité à la mesure du paramètre non linéaire dans les solides. Bien que la valeur obtenue de B/A pour le polymère considéré soit satisfaisante par rapport aux valeurs présentes dans la littérature, l'incertitude expérimentale liée à ce paramètre reste trop importante pour pouvoir affirmer de manière définitive la validité de cette technique.

Bien que les résultats obtenus soient probants, certaines améliorations pourraient être apportées afin de limiter les incertitudes expérimentales et la différence existant entre les valeurs de B/A trouvées et celles présentes dans la littérature.

Tout d'abord, l'utilisation d'un modèle théorique incluant les effets de diffraction ou en d'autres termes basé sur l'équation KZK, serait à considérer. Afin d'appliquer ce modèle, une connaissance du champ déplacement de la surface de la lentille serait nécessaire. En effectuant une cartographie du champ de pression dans le liquide, il serait alors possible de connaître les valeurs exactes des amplitudes du second harmonique dans le milieu de

propagation. La mesure du paramètre non linéaire pourrait alors s'effectuer de manière absolue et non de manière relative comme avec notre technique.

Ensuite, des expériences supplémentaires sur des liquides possédant une longueur de chaîne importante seraient nécessaires afin de confirmer le phénomène de saturation de B/A avec la longueur de chaîne. Cependant, ceci requerrait la mesure de tous les paramètres nécessaires au calcul de B/A étant donné le manque de valeurs relatives à ces paramètres dans la littérature, et donc la mise en place de techniques expérimentales appropriées pour la détermination de chacun de ces paramètres.

Enfin, afin d'améliorer la précision sur les valeurs de B/A dans les polymères, une technique de mesure de vitesse du son devrait être élaborée, possédant idéalement une incertitude expérimentale de moins de 0.5%. Ceci pourrait être réalisé grâce aux techniques utilisant une lentille cylindrique, visant la mesure de la vitesse du son des ondes de surface. En connaissant le coefficient de Poisson pour le matériau considéré, il serait alors possible d'obtenir les vitesses du son longitudinales avec une excellente précision.

Une fois cette technique améliorée, il serait alors possible de l'appliquer à l'imagerie du paramètre B/A , en réalisant un balayage de l'onde sonore dans l'ensemble du matériau testé (échantillons biologiques ou matériaux industriels) et en mesurant simultanément et localement l'atténuation, la vitesse du son et l'amplitude du second harmonique. Ceci pourrait être excessivement utile au contrôle de la qualité ou à la caractérisation de propriétés structurales de matériaux, la génération d'harmoniques étant notamment accentuée aux interfaces ou lors de la présence d'hétérogénéités locales.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) A. Kircher, *Musurgia universalis* (1650), quoted in *Nonlinear Acoustics*, M.F. Hamilton et D.T. Blackstock eds. (Academic Press, New York, 1998).
- (2) I. Newton, *Principia Mathematica*, sec VIII. Of motion propagated through fluids. English Translation by Andrew Motte, 1729 (1686).
- (3) L. Euler, *Mem. Acad. Sci. Berlin*, **11**, 315 (1757).
- (4) L. Euler, *Mem. Acad. Sci. Berlin*, **21**, 363 (1767).
- (5) J.L. Lagrange, *Œuvres de Lagrange*. (Gauthier-Villars, Paris, 1867).
- (6) S.D. Poisson, *J. L'école polytechnique (Paris)*, **7**, sec 24-25, 365 (1808).
- (7) G. G. Stokes, *Phil Mag (series 3)*, **33**, 349 (1848).
- (8) G. B. Airy, *Phil Mag (series 3)*, **34**, 401 (1849).
- (9) S.Earnshaw, *Adv. Sci. Report of the 28th meeting, Notices and Abstracts*, Brit Assn., sec 34-35 (1860).
- (10) M. F. Hamilton and D. T. Blackstock. *Nonlinear Acoustics*. (Academic Press, New York, 1998).
- (11) H. Hugoniot, *J. l'École Polytechnique (Paris)*, **58**, 1 (1889).
- (12) Lord Rayleigh, *Proc. Roy. Soc.*, **A84**, 247 (1910).
- (13) G. I. Taylor, *Proc. Roy. Soc.*, **A84**, 371 (1910).
- (14) D. T. Blackstock, *J. Acoust. Soc. Am.*, **36**, 534 (1962).
- (15) R. D. Fay, *J. Acoust. Soc. Am.*, **3**, 222 (1931).
- (16) E. Fubini, *Alta Frequenza*, **4**, 530 (1935).
- (17) D. T. Blackstock, *J. Acoust. Soc. Am.*, **39**, 1019 (1966).

- (18) J. M. Burgers, 1948. A mathematical model illustrating the theory of turbulence. In *Advances in Applied mechanics*, vol.1, P. von Mises and T. von Karman eds. (Academic, Paris, New York, 1948).
- (19) B. Riemann, 1953. *Abban. Ges. Wiss. Göttingen Math-physik*, **8**, 43, (1858), Reprinted in *The Collected Works of Bernard Riemann*. (Dover, New York, 1953).
- (20) M. J. Lighthill, Viscosity effects in sound waves of finite amplitude. In *Surveys of mechanics*, G. K. Batchelor and R. M. Davies, eds. (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1956).
- (21) A. D. Pierce, *Acoustics*. (Acoustical Society of America, New York, 1989).
- (22) S. I. Aanonsen, J. Naze Tjøtta et S. Tjøtta, *J. Acoust. Soc. Am.*, **75**, 749 (1984).
- (23) M. J. Lighthill, *Waves in fluids*. (Cambridge press university, Cambridge, England, 1980).
- (24) M. F. Hamilton and C. L. Morley, Model Equations. In *Nonlinear Acoustics*, M. F. Hamilton and D.T. Blackstock eds. (Academic Press, New York, 1998).
- (25) E. A. Zabolostkaya et R. V. Khokhlov, *Sov. Phys. Acoust.*, **15**, 35 (1969).
- (26) V. P. Kuznetsov, *Sov. Phys. Acoust.*, **16**, 467 (1971).
- (27) J. D. Cole, *Q.Appl. Math.*, **9**, 225 (1951).
- (28) J.S. Mendousse, *J. Acoust. Soc. Am.*, **25**, 51 (1953).
- (29) W. Keck and R. T. Beyer, *Phys. Fluids.*, **3**, 346 (1960).
- (30) E. A. Zabolostkaya, *Sov. Phys. Acoust.*, **32**, 296 (1986).
- (31) L. K. Zarembo and V. A. Krasilnikov, *Sov. Phys. Usp.*, **13**, 778 (1971).

- (32) L. Bjørmo, Nonlinear Acoustics. In *Acoustics and Vibration progress. Vol 2*, R. W. B. Stephens and H. G. Leventhall eds. (Chapman & Hall, London, 1976).
- (33) R. T. Beyer, *J. Acoust. Soc. Am.*, **32**, 719 (1960).
- (34) M. F. Hamilton and D. T. Blackstock., *J. Acoust. Soc. Am.*, **83**, 74 (1988).
- (35) Y. A. Basin et V. M. Kryachko, *Sov. Phys. Acoust.*, **31**, 255 (1985).
- (36) R. T. Beyer, The parameter B/A. In *Nonlinear Acoustics*, M. F. Hamilton and D. T. Blackstock eds. (Academics Press, New York, 1998).
- (37) R. T. Beyer, *Nonlinear Acoustics*, Navy Sea Systems. (Cammound, Washington DC, 1974).
- (38) H. Endo, *J. Acoust. Soc. Am.*, **71**, 330 (1982).
- (39) H. Endo, *J. Acoust. Soc. Am.*, **72**, 235 (1982).
- (40) J. K. Percus and G. J. Yevick, *Phys. Rev.*, **110**, 1 (1958).
- (41) E. Thiche, *J. Chem. Phys.*, **39**, 474 (1963).
- (42) M. S. Werthein, *Phys. Rev. Lett.*, **10**, 321 (1963).
- (43) H. Endo, *J. Acoust. Soc. Am.*, **83**, 2043 (1988).
- (44) G. N. Sarkisov and D. A. Tikhonov, *Acoust. Phys.*, **39**, 283 (1993).
- (45) G. A. Martynov and G. N. Sarkisov, *Mol. Phys.*, **49**, 1495 (1983).
- (46) B. Hartmann, *J. Acoust. Soc. Am.*, **65**, 1392 (1979).
- (47) B. K. Sharma, *Acustica*, **67**, 52 (1988).
- (48) B. K. Sharma, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **149**, 567 (1995).
- (49) M. R. Rao, *J. Chem. Phys.*, **9**, 652 (1941).
- (50) E. H. Carnavale and T. A. Littovitz, *J. Acoust. Soc. Am.*, **27**, 547 (1955).
- (51) B. K. Sharma, *Indian J. Pure Appl. Phys.*, **23**, 247 (1985).

- (52) B. K. Sharma, *Indian J. Pure Appl. Phys.*, **25**, 262 (1987).
- (53) B. K. Sharma, *Indian J. Pure Appl. Phys.*, **29**, 279 (1991).
- (54) B. K. Sharma, *Arch. Acoust.*, **11**, 183 (1986).
- (55) B. K. Sharma, *J. Acoust. Soc. India*, **12**, 20 (1984).
- (56) B. Frank and J. D. N. Cheeke, *J. Acoust. Soc. Am.*, **101**, 1184 (1997).
- (57) J. Banchet and J. D. N. Cheeke, *J. Acoust. Soc. Am.*, in preparation.
- (58) B. Hartmann, *Proceedings of the twenty-second Canadian high polymer forum, Waterloo, Ontario*, 20 (1983).
- (59) B. Hartmann and M. A. Haque, *J. Appl. Polym. Sci.*, **30**, 1553 (1985).
- (60) B. Hartmann and M. A. Haque, *J. Appl. Phys.*, **58**, 2831 (1985).
- (61) B. Hartmann and E. Balizer, *J. Acoust. Soc. Am.*, **82**, 614 (1987).
- (62) W. Schaffs, *Z. Phys.*, **114**, 110 (1939).
- (63) W. Schaffs, *Z. Phys.*, **115**, 69 (1940).
- (64) J. Tong, Y. Dong and T. Tang, *J. Acoust. Soc. Am.*, **93**, 291 (1993).
- (65) R. E. Apfel, *J. Acoust. Soc. Am.*, **74**, 1866 (1983).
- (66) V. Vyas, *International conference and Exhibition on Ultrasonics (ICEU 99)*, New Delhi, December 2-4 (1999).
- (67) Z. A. Goldberg, *Akus. Zhu.*, **6**, 307 (1999).
- (68) M. A. Breazeale and J. Philip, in *Physical Acoustics*, vol XVII, W. P. Mason et R. N. Thurston eds. (Academic, New York , 1981).
- (69) W. H. Jiang, L. Li and G. H. Du, *1995 IEEE Ultrasonic Symposium Transactions*, 679 (1995).
- (70) J. H. Cantrell, *1990 Ultrasonic Symposium Transactions*, 1255 (1990).

- (71) K. Bugger, *Phys. Rev.*, **133**, A 1611 (1964).
- (72) J. H. Cantrell and W. T. Yost, *J. Appl. Phys.*, **81**, 2957 (1997).
- (73) M. C. Wu, *Ph. D. Dissertation*, College of William and Mary, 99p. (1989).
- (74) W. Jiang and M. A. Breazeale, *J. Appl. Phys.*, **68**, 5472 (1990).
- (75) V. E. Nazarov and A. M. Sutin, *J. Acoust. Soc. Am.*, **102**, 3349 (1997).
- (76) C.H. Sehgal, R.C. Bahn, J.F. Greenleaf, *J. Acoust. Soc. Am.*, **76**, 1023 (1984).
- (77) O. Buck, et G.A. Alers, in *Fatigue and Microstructure* (American Society for Metals, Metals Park, Ohio, 1979).
- (78) J.H. Cantrell et W.T. Yost, dans *Review of Progress in Quantitative Nondestructive Evaluation, Vol 9* (Plenum Press, New York, 1990).
- (79) A.B. Coppens, R.T. Beyer, M.B. Seiden, J. Donohue, F. Guepin, R.H. Hodson et C. Townsend, *J. Acoust. Soc. Am.*, **38**, 797 (1965).
- (80) Z. Zhu, M.S. Roos, W.N. Cobb et K. Jensen, *J. Acoust. Soc. Am.*, **74**, 1518 (1983).
- (81) E.A. Hiedenan et K.J. Zankel, *Acustica*, **11**, 213 (1961) et références citées dans cet article.
- (82) G.W. Willard, *J. Acoust. Soc. Am.*, **21**, 101 (1949).
- (83) L.E. Hargrove et K. Achyuthan, *Physical Acoustics. Vol II*, W.P. Mason et R.N. Thurston eds. (Academic, New York, 1965).
- (84) H.A Kashkooli, P. J. Dolan et C.W. Smith, *J. Acoust. Soc. Am.*, **82**, 2086 (1987).
- (85) L.G. Mikhaïlkov et V.A. Shutilov, *Sov. Phys. Acoust.*, **6**, 340 (1961).
- (86) O. Nomoto et K. Negishi, *Acustica*, **15**, 223 (1985).
- (87) S. Takahashi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, 2790 (1995).

- (88) F. Dunn, W.K. Law, et L.A. Frizzel, *1981 IEEE Ultrasonic Symposium Transactions*, 527 (1981).
- (89) R. Kompfer et R.A. Lemons, *Appl. Phys. Lett.*, **28**, 295 (1976).
- (90) D. Rugar, *J. Appl. Phys.*, **56**, 1338 (1984).
- (91) L. Germain et J.D.N. Cheeke, *J. Acoust. Soc. Am.*, **83**, 942 (1988).
- (92) B.G. Lucas et T.G. Muir, *J. Acoust. Soc. Am.*, **72**, 1289 (1982).
- (93) B.G. Lucas et T.G. Muir, *J. Acoust. Soc. Am.*, **74**, 1522 (1983).
- (94) G. Du et M.A. Breazeale, *J. Acoust. Soc. Am.*, **78**, 2083 (1985).
- (95) W.N. Cobb, *J. Acoust. Soc. Am.*, **73**, 1525 (1983).
- (96) S.Saito et B.C. Kim, *J. Acoust. Soc. Am.*, **82**, 621 (1987).
- (97) G.S. Kino, *Acoustic Waves : Devices, Imaging and Analog Signal Processing* (Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1987).
- (98) M. Born et E. Wolf, *Principles of Optics*, 6^{ème} édition, p440-449 (Pergamon Press, Oxford, New York, 1980)
- (99) L. Germain, R. Jacques et J.D.N. Cheeke, *J. Acoust. Soc. Am.*, **86**, 1560 (1989).
- (100) S. Saito, *J. Acoust. Soc. Am.*, **93**, 162 (1993).
- (101) S. Saito, *J. Acoust. Soc. Jpn. (E)*, **16**, 293 (1995).
- (102) A. Cain, H. Nishiyama et K. Katakura, *J. Acoust. Soc. Am.*, **80**, 685 (1986).
- (103) D. Din, Y. Shin et D. Zhang, *Transactions of 1993 IEEE Ultrasonics Symposium*, 575 (1993).
- (104) W.K. Law, L.A. Frizzel et F. Dunn, *J. Acoust. Soc. Am.*, **74**, 1295 (1983).
- (105) W.M. Madigosky, I. Rosenbaum et R. Lucas, *J. Acoust. Soc. Am.*, **69**, 1639 (1981).

- (106) C. Everbach, Chap. 20 : Parameters of nonlinearity of Acoustic Media. Dans *Encyclopedia of Acoustics* (John Wiley, New York , 1997), p219.
- (107) O. Nomoto, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **21**, 569 (1966).
- (108) B. Gauster et M.A. Breazeale, *Rev. Sci. Instrum.*, **37**, 1544 (1966).
- (109) J.A. Bains et M.A. Breazeale, *Phys. Rev. B*, **13**, 3623 (1976).
- (110) W.Cao, G. Barsh, W. Jiang et M.A. Breazeale, *Phys. Rev. B*, **35**, 10244 (1988).
- (111) S.L.Lambade, G.G. Sahasrabudhe et S. Rajagopalan, *J. Appl. Phys.*, **78**, 6825 (1995).
- (112) M-C. Wu et W.P. Winfree, *Transactions of 1989 IEEE Ultrasonics Symposium*, 1241 (1989).
- (113) M-C Wu et W.P. Winfree, *Transactions of 1987 IEEE Ultrasonics Symposium*, 1147 (1987).
- (114) A.L. Thuras, K.T. Jenkins et H.T. O'Neil, *J. Acoust. Soc. Am.*, **6**, 173 (1935).
- (115) Landolt-Bornstein, *Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik, Gruppe II : Atom und Molekularphysik, Band 5 Molekularakustik* (Springer-Verlag, Berlin, 1967).
- (116) I.A. Mamedov, *Russ. Jour. Phys. Chem.*, **46**, 1448 (1972).
- (117) V.A. Atoyan, *Russ. Jour. Phys. Chem.*, **67**, 2062 (1993).
- (118) V.A. Atoyan et I.A. Mamedov, *Russ. Jour. Phys. Chem.*, **64**, 856 (1980).
- (119) V.A. Atoyan, *Russ. Jour. Phys. Chem.*, **53**, 2784 (1979).
- (120) K.L. Narayana et K.M. Swamy, *Acustica*, **49**, 336 (1981).
- (121) S. Prakash, S.K. Kor et C.L. Singh, *Acustica*, **27**, 28 (1972).
- (122) *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (Cleveland, Ohio 1985).

- (123) B. Garcia, F.J. Francisco, R. Alcada et J.O. Leal, *Can. J. Chem.*, **74**, 121 (1996).
- (124) J.A. Riddick, *Organic solvents : physical properties and methods of purification* (Wiley, New York, 1986).
- (125) R.C. Wilhoit, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **2**, suppl. 1 (1973).
- (126) N.A. Lange, *Lange's Handbook of Chemistry*, 13^{ème} ed. (McGraw-Hill, New York, 1985).
- (127) J. Tatubouët, Institut des Matériaux Industriels, NRC, communication privée.

ANNEXE 1 : COMPLÉMENTS D'INFORMATION SUR LES SOLVANTS UTILISÉS

Produit	Pureté	Compagnie	Code Produit
Méthanol	Absolu	J.T. Baker	9069-03
Ethanol	99.5%+	Aldrich	45954-4
1-Propnaol	99% min.	Caledon	8500-1
1-Butanol	99.4%	Aldrich	36046-5
1-Pentanol	99%+	Aldrich	39826-8
1-Hexanol	99%+	ACP	H-4540
1-Heptanol	98%	Aldrich	H280-5
1-Octanol	98%	ACP	O-1904
1-Nonanol	98%	Aldrich	13121-0
1-Décanol	99%+	American Chemicals	D-023
Acétone	99.9%	Aldrich	27072-5
Methyl-Ethyl Cétone	99%+	Aldrich	36047-3
Methyl-Propyl Cétone	97%	Aldrich	P810-6
Methyl-Butyl Cétone	98%	Aldrich	10300-4
Methyl-Pentyl Cétone	98%	Aldrich	12336-6
Methyl-Hexyl Cétone	98%	Aldrich	O470-9
Acétate d'éthyle	99.5%	BDH	
Acétate de propyle	98%, purum	Fluka	46050
Acétate de butyle	99%	Fluka	45860
Acétate de pentyle	99%	American Chemicals	P-1155
Acétate d'hexyle	99%	Fluka	45900
Acétate d'octyle	99%	American Chemicals	O-1134

ANNEXE 2 : TABLEAUX DE CALCUL DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE DANS LES SOLVANTS UTILISÉS.

Tableau de calcul pour les esters

Fréquence fl (MHz)	14,5	14,5	14,5	14,5	14,5	14,5	14,5
Zt (Mrayl)	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20
Zl (lentille) (Mrayl)	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10
Vitesse du son lentille (m/s)	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596
Rayon de la cavité (mm)	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622
Diamètre de la cavité D (mm)	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200
	Eau	Acé d'Ethyle	Acé de Propyle	Acé de Butyle	Acé de Pentyle	Acé d'Hexyle	Acé d'Octyle
Vitesse du son liquide (m/s)	1497	1170	1200	1235	1257	1291	1301
Densité (kg/m ³)	998	900	889	878	871	864	870,5
Impédance (Mrayl)	1,49400	1,053	1,0668	1,0843	1,0948	1,1154	1,1325
Coeff transm / lentille	0,3913	0,2946	0,2978	0,3019	0,3044	0,3091	0,313
Coeff transm. / transducteur	0,16041	0,1159	0,1173	0,1191	0,1202	0,1223	0,1241
Coeff att.(s ² /m)	2,20E-14	6,00E-14	6,20E-14	6,30E-14	6,46E-14	6,30E-14	6,30E-14
Coeff att. à fréq. fond (/m)	4,6255	12,615	13,0355	13,2457	13,5821	13,2457	13,2457
Coeff att. au 2ème harm.(/m)	18,5020	50,4600	52,1420	52,9830	54,3286	52,9830	52,9830
Distance focale (mm)	2,2144	2,0508	2,0648	2,0813	2,0919	2,10841	2,1133
d ₂ (mm)	0	0	0	0	0	0	0
Nombre F	1,0065	0,9322	0,9385	0,9461	0,9508	0,9584	0,9606
V0liq/V0water	1	1,1615	1,1558	1,1483	1,1442	1,1351	1,1280
Voltage d'entrée (V)	25,4	29,50	29,36	29,17	29,06	28,83	28,65
Att2		7,3	7,2	6,9	6,9	6,75	6,55
Béta(liquide)/béta(eau)	1	1,5225	1,5754	1,6019	1,6536	1,7026	1,6871
B/A liquide	5	8,6578	9,0276	9,2137	9,5751	9,9183	9,8098
B/A théorique	-	9,1					
Erreur (%)	-	4,8595					

Tableau de calcul pour les cétones

Fréquence fl (MHz)	13,56	13,56	13,56	13,56	13,56	13,56	13,56
Zt (Mrayl)	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20
Zl (lentille) (Mrayl)	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10
Vitesse du son lentille (m/s)	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596
Rayon de la cavité (mm)	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622
Diamètre de la cavité D (mm)	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200
	Eau	Acétone	MEthyl Cétone	MPropyl Cétone	MButyl Cétone	MPentyl Cétone	Mhexyl Cétone
Vitesse du son liquide (m/s)	1497	1199	1220	1237	1265	1287	1309
Densité (kg/m ³)	998	804	805	812	812	821	819
Impédance (Mrayl)	1,4940	0,9640	0,9821	1,0044	1,0272	1,0566	1,0721
Coeef. transm./ lentille	0,3913	0,2734	0,2777	0,2831	0,2885	0,2954	0,2991
Coeff. transm./ transducteur	0,1604	0,1067	0,1085	0,1109	0,1132	0,1163	0,1179
Coeff att.(s ² /m)	2,20E-14	2,61E-14	2,56E-14	2,48E-14	2,62E-14	2,68E-14	4,72E-14
Coeff att à fréq. fond (/m)	4,0430	4,7964	4,7046	4,5575	4,8148	4,9251	8,6740
Coeff att au 2ème harm.(/m)	16,1719	19,1858	18,8182	18,2302	19,2593	19,7003	34,6961
Distance focale (mm)	2,2144	2,0643	2,0742	2,0823	2,0958	2,1065	2,1173
d ₂ (mm)	0	0	0	0	0	0	0
Nombre-F	1,0065	0,9383	0,9428	0,9465	0,9526	0,9575	0,9624
V0liq/V0water	1	1,1969	1,1874	1,1760	1,1653	1,1517	1,1493
Voltage d'entrée (V)	25	29,92	29,68	29,40	29,13	28,79	28,73
Att2	0	6,5	6,9	6,7	6,5	6,2	6
Béta(liquide)/béta(eau)	1	1,4304	1,5442	1,5462	1,5722	1,5662	1,5876
B/A liquide	5	8,01	8,81	8,82	9,01	8,96	9,11
B/A théorique		9,1	-	-	-	-	-
Erreur (%)		11,95					

Tableau de calcul pour les Alcanols

Fréquence f1 (MHz)	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14
Zt (Mrayl)	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20	34,20
Zl (lentille) (Mrayl)	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10	12,10
Vitesse son lentille (m/s)	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596	5596
Rayon de la cavité (mm)	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622	1,622
Diamètre de la cavité D (mm)	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200	2,200
Eau																	
Vitesse son liquide (m/s)	1497	1144	0,9049	0,9551	1209	790	804	1229	1262	1296	811	820	1330	1363	1379	1396	1410
Densité (kg/m ³)	998	791															
Impédance (Mrayl)	1,4940	0,9049	0,9049	0,9551	1209	790	804	1229	1262	1296	811	820	1330	1363	1379	1396	1410
Coeff Transm. / lentille	0,3913	0,2590	0,2590	0,2712	0,2712	0,2712	0,2792	0,2792	0,2873	0,2941	0,2941	0,3034	0,3034	0,3103	0,3142	0,3181	0,3213
Coeff Transm. / transduc.	0,1604	0,1005	0,1005	0,1057	0,1057	0,1057	0,1092	0,1092	0,1127	0,1157	0,1157	0,1198	0,1198	0,1229	0,1246	0,1264	0,1278
Coeff att. (s ² /m)	2,20E-14	3,02E-14	3,02E-14	4,80E-14	4,80E-14	4,80E-14	6,45E-14	6,45E-14	7,43E-14	1,10E-13	1,10E-13	1,22E-13	1,22E-13	1,35E-13	1,83E-13	2,10E-13	2,30E-13
Coeff att. fréq. fond (/m)	4,3120	5,9192	5,9192	9,4080	9,4080	9,4080	12,6420	12,6420	14,5628	21,5600	21,5600	23,9120	23,9120	26,4600	35,8680	41,1600	45,0800
Coeff att. 2 ^{ème} harm. (/m)	17,2480	23,6768	23,6768	37,6320	37,6320	37,6320	50,5680	50,5680	58,2512	86,2400	86,2400	95,6480	95,6480	105,8400	143,4720	164,6400	180,3200
Distance focale (mm)	2,2144	2,0388	2,0388	2,0690	2,0690	2,0690	2,0785	2,0785	2,0943	2,1109	2,1109	2,1277	2,1277	2,1443	2,1524	2,1611	2,1683
d ₂ (mm)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
F-number	1,0065	0,9267	0,9267	0,9405	0,9405	0,9405	0,9448	0,9448	0,9520	0,9595	0,9595	0,9671	0,9671	0,9747	0,9784	0,9823	0,9856
V0liq/V0water	1	1,2308	1,2308	1,2071	1,2071	1,2071	1,1938	1,1938	1,1793	1,1743	1,1743	1,1594	1,1594	1,1498	1,1543	1,1541	1,1533
Voltage d'entrée (V)	25	30,77	30,77	37,14	37,14	37,14	29,84	29,84	29,48	29,36	29,36	28,98	28,98	28,75	28,86	28,85	28,83
Att2	0	7,7	7,7	7,4	7,4	7,4	7,25	7,25	6,95	6,6	6,6	6,3	6,3	6,2	5,9	5,7	5,4
Béta(liquide)/béta(eau)	1	1,5121	1,5121	1,6204	1,6204	1,6204	1,6493	1,6493	1,6761	1,7093	1,7093	1,7378	1,7378	1,8041	1,8139	1,8326	1,8181
B/A liquide	5	8,58	8,58	9,34	9,34	9,34	9,55	9,55	9,73	9,96	9,96	10,16	10,16	10,63	10,70	10,83	10,73
B/A théorique	5	9,6	9,6	10,4	10,4	10,4	10,7	10,7	10,7	11,6	11,6	-	-	-	-	-	-
Erreur (%)	-	10,58	10,58	10,17	10,17	10,17	10,79	10,79	9,04	14,10	14,10	-	-	-	-	-	-

ANNEXE 3 : CALCUL DE L'INCERTITUDE EXPERIMENTALE SUR B/A

Ce calcul fut effectué en fragmentant les différents éléments de l'équation (105), et en en calculant les incertitudes pour chacun de ces termes.

Conformément à ce qui fut énoncé, les erreurs relatives aux éléments issus de la littérature furent évaluées en considérant une variation provenant de leur dernier chiffre significatif. De ce fait :

$$\frac{\Delta\beta_W}{\beta_W} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\Delta\rho_W}{\rho_W} = 0.1\% \quad (2)$$

$$\frac{\Delta\rho_L}{\rho_L} = 0.13 \quad (3)$$

Les autres termes donnent :

$$\frac{\Delta(10^{\Delta Att2/10})}{10^{\Delta Att2/10}} = 2.4\% \quad (4), \text{ en considérant } 0.1 \text{ dB d'incertitude sur } \Delta Att2$$

$$\frac{\Delta c_L}{c_L} = \frac{\Delta d}{d} + \frac{\Delta t}{t} = \frac{1\mu m}{500\mu m} + \frac{0.01\mu s}{1\mu s} = 1.2\% \quad (5)$$

$$\frac{\Delta c_W}{c_W} = 0.13\% \quad (6)$$

$$\frac{\Delta T_{LS}}{T_{LS}} = \frac{\Delta\rho_L}{\rho_L} + \frac{\Delta c_L}{c_L} + \frac{\Delta\rho_S}{\rho_S} + \frac{\Delta c_S}{c_S} + 2 \frac{\Delta(\rho_L c_L + \rho_S c_S)}{\rho_L c_L + \rho_S c_S} = 0 + 1.2 + 0 + 0 + 0.04 = 1.61\% \quad (7)$$

$$\frac{\Delta T_{WS}}{T_{WS}} \approx 0\% \quad (8), \text{ en considérant l'incertitude sur } c_W \text{ définie par (6)}$$

$$\frac{\Delta[\exp(\alpha_2 d_{2L} - \alpha_2 d_{2W})]}{\exp(\alpha_2 d_{2L} - \alpha_2 d_{2W})} = 0.7\% \quad (9), \quad \text{considérant le } \alpha_2 \text{ le plus élevé (acétate d'octyle) et } 0.2\text{mm pour } d_{2L}$$

$$\frac{\Delta F_W}{F_W} = \frac{\Delta R}{R} + \frac{\Delta D}{D} + \frac{\Delta(1 - c_W/c_Q)}{(1 - c_W/c_Q)} = \frac{0.001}{1.622} + \frac{0.001}{2.200} + \frac{\Delta(1 - c_W/c_Q)}{(1 - c_W/c_Q)} = 0.06 + 0.045 + 0.05 = 0.15\% \quad (10)$$

$$\frac{\Delta F_L}{F_L} = \frac{\Delta R}{R} + \frac{\Delta D}{D} + \frac{\Delta(1 - c_L/c_Q)}{(1 - c_L/c_Q)} = \frac{0.001}{1.622} + \frac{0.001}{2.200} + \frac{\Delta(1 - c_L/c_Q)}{(1 - c_L/c_Q)} = 0.06 + 0.045 + 0.4 = 0.5\% \quad (11)$$

$$\frac{\Delta \left[\exp \left(-\frac{7.1}{f_1} (c_L F_L^2 (2\alpha_{1L} + \alpha_{2L}) - c_W F_W^2 (2\alpha_{1W} + \alpha_{2W})) \right) \right]}{\exp \left(-\frac{7.1}{f_1} (c_L F_L^2 (2\alpha_{1L} + \alpha_{2L}) - c_W F_W^2 (2\alpha_{1W} + \alpha_{2W})) \right)} = 1.2\% \quad (12)$$

sachant que les plus importantes valeurs de coefficients d'atténuation furent utilisées, à savoir pour le décanol, et que les incertitudes sur la vitesse du son du liquide et de l'eau utilisées furent celles calculées auparavant.

Finalement l'incertitude sur $(B/A)_L$ s'énonce :

$$\frac{\Delta(B/A)_L}{(B/A)_L} = (1) + (2) + (3) + \frac{1}{2}(4) + \frac{5}{2}(5) + \frac{5}{2}(6) + \frac{1}{2}(7) + \frac{1}{2}(8) + \frac{1}{2}(9) + (10) + (11) + (12) = 7.7\%$$

L'incertitude expérimentale sur le paramètre non linéaire pour les liquides peut donc être estimée à $\pm 3.8\%$.

ANNEXE 4 : CODE MAPLEV POUR LE CALCUL DES COURBES DE SIMULATION $ATT2 = F(X)$

Code MapleV pour les courbes de simulation relatives à l'eau :

```
f:=1.622*(1/(1-1497/5596));
lambda :=proc(frq) 1497E3/frq end;
w0 :=proc(frq) 0.55*lambda(frq) end;
k1 :=proc(frq) 2*3.141159/lambda(frq);
b :=proc(frq) w0(frq)^2*k1(frq) end;
alpha1 :=proc(frq) 25E-18*(freq^2);
alpha2 :=proc(frq) 25E-118*((2*freq)^2);

F2 :=proc(z,frq)
    int((exp((-2*alpha1(frq)+alpha2(frq)*z0))*(2*(z0-f)/b(frq))/(1+(2*(z0-
    f)/b(frq))^2), z0=-1.198..z) end;
end

F1 :=proc(z,frq)
    int((exp((-2*alpha1(frq)+alpha2(frq)*z0))/(1+(2*(z0-f)/b(frq))^2, z0=-1.198..z)
    end;
end

F :=proc(z,frq) exp(-alpha2(frq)*(z))*(F1(z,frq)-I*F2(z,frq)) end;

SF :=proc(z,frq) (abs(F(z,frq))^2) end;

SFn30 :=proc(z) 10*log[10](SF(z,28E6)/SF(2.238, 28E6)) end;

B :=array(1..500,1..2);
For i to 500 do
    B[i,1] :=((f-1.198)+(i/200)) :
    B[i,2] :=SFn30((f-1.198)+(i/200))
od;
writedata(P2vsfowt,b,float);
fclose(P2vsfowt);
```

Les points générés dans le fichier P2vsfocwt furent alors transférés sur Excel et décalés de la valeur de la distance focale de l'eau

Code MapleV pour les courbes de simulation relatives à l'éthanol :

```
f:=1.622*(1/(1-1209/5596));
lambda:=proc(frq) 1209E3/frq end;
w0:=proc(frq) 0.55*lambda(frq) end;
k1:=proc(frq) 2*3.141159/lambda(frq);
b:=proc(frq) w0(frq)^2*k1(frq) end;
alpha1:=proc(frq) 48.5E-18*(freq^2);
alpha2:=proc(frq) 48.5E-118*((2*freq)^2);

F2:=proc(z,frq)
  int((exp((-2*alpha1(frq)+alpha2(frq)*z0))*(2*(z0-f)/b(frq))/(1+(2*(z0-
f)/b(frq))^2), z0=-1.015..z) end;
end

F1:=proc(z,frq)
  int((exp((-2*alpha1(frq)+alpha2(frq))*z0))/(1+(2*(z0-f)/b(frq))^2, z0=-1.015..z)
  end;
end

F:=proc(z,frq) exp(-alpha2(frq)*(z))*(F1(z,frq)-I*F2(z,frq)) end;

SF:=proc(z,frq) (abs(F(z,frq))^2) end;

SFn30:=proc(z) 10*log[10](SF(z,28.2E6))/SF(2.087, 28.2E6)) end;

B:=array(1..500,1..2);
For i to 500 do
  B[i,1]:=((f-1.015)+(i/200)):
  B[i,2]:=SFn30((f-1.015)+(i/200))
od;
writedata(P2vsfoeth,b,float);
fclose(P2vsfoeth);
```


Les points générés dans le fichier P2vsfoceth furent alors transférés sur Excel et décalés de la valeur de la distance focale de l'éthanol

ANNEXE 5 : TABLEAU DE CALCUL DU PARAMÈTRE NON LINÉAIRE DANS LES POLYMÈRES

	Polystyrène	PMMA
Vitesse du son (m/s)	2407	2667
Densité (kg/m ³)	1050	1190
Impédance (Mrayl)	2,52735	3,17373
Coeff. Transm. eau/pol	0,93396947	0,870502
Coeff. Transm. pol/gel	0,94951705	0,891321
Coeff. Att @5MHz (dB/mm)	0,19	0,325
Coeff. Att. @15MHz (/mm)	0,13124735	0,224502
Coeff. Att. @ Fréq Fond. (/mm)	0,13124735	0,224502
Coeff. Att. @ second harm. (/mm)	0,2624947	0,449004
Localisation du point focal (mm)	1,074	0,847
Épaisseur - loc. point focal (mm)	0,9	0,9125
F	0,48818182	0,385
V0PMMA/V0PS	1	1,061607
Voltage d'entrée (V)	40	42,46427
Delta(Att2)	0	-3,18
betaPMMA/betaPS	1	1,248661
B/A	7,4	9,737412
B/A littérature	Wu	10,2
Erreur (%)		-4,75063