

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE  
SCIENTIFIQUE  
UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE  
HOUARI BOUMEDIENE (U.S.T.H.B / ALGER)  
FACULTE DE PHYSIQUE



**MEMOIRE**

Présenté pour l'obtention du diplôme de :

**MAGISTER**

En Physique

Spécialité : Physique des Matériaux

Par

**MAGHLAOUI Nadir**

**ETUDE THEORIQUE ET EXPERIMENTALE DE LA  
PROPAGATION DES ONDES ULTRASONORES DANS  
LES SOLIDES POLYMERES**

Soutenu publiquement le : 12/04/2006, devant le jury composé de:

Mr- M. FELLAH, Professeur, USTHB.

Mr- H. DJELOUAH, Professeur, USTHB.

Mr- M. AZZAZ, Professeur, USTHB.

Mr- D. BRADAI, Professeur, USTHB.

Mr- M. SAIDI, Maitre de Conférences, USTHB.

Mr- T. BOUTKEDJIRT, Maitre de Conférences, USTHB.

Président

Directeur de thèse

Examineur

Examineur

Examineur

Examineur

## Remerciements

Ce travail a été accompli au sein de l'équipe de recherche de "physique des ultrasons" de l'université des Sciences et de la technologie Houari Boumediene sous la direction du Professeur H. Djelouah; au travers de discussions très enrichissantes j'ai pu apprécier ses qualités scientifiques et humaines; je souhaite lui exprimer toute ma gratitude, pour son accueil au sein de l'équipe de recherche, la confiance qu'il m'a témoignée et pour sa disponibilité.

Je tiens à remercier M. Fellah Professeur à l'U.S.T.H.B, qui m'a fait l'honneur de présider le jury de cette thèse.

Je tiens à remercier M. Azzaz Professeur à l'U.S.T.H.B pour avoir accepté de faire partie du jury.

Mes remerciements iront au Professeur D. Bradai et à Monsieur M. Saidi, Maître de Conférences à l'USTHB qui, riches de leurs connaissances et de leurs expériences, ont accepté de juger ce travail.

J'exprime ma reconnaissance à monsieur T. Boutkedjirt Maître de conférences à l'USTHB pour avoir accepté d'être dans le jury et pour son apport à cette thèse.

Mes remerciements s'adressent également à tous les membres de l'équipe "Physique des ultrasons", qui m'ont permis de travailler dans des conditions agréables. Merci à tous avec une mention très spéciale à mon ami Rafik.

Je remercie tous ceux qui m'ont soutenu, Hassane, Madjid, Abdelghani, Fayçal ainsi que les autres.

A mes parents, à mon frère et à toute ma famille qui ont su me supporter du début jusqu'à la fin, et qui par leurs sacrifices m'ont permis d'évoluer et d'être ce que je suis.

# Table des matières

<b>Liste des symboles</b>	<b>3</b>
<b>Introduction</b>	<b>3</b>
<b>1 Notions de physique des polymères</b>	<b>10</b>
1.1 Notion de macromolécule . . . . .	10
1.2 Synthèse des macromolécules . . . . .	11
1.2.1 Réactions de polycondensation . . . . .	11
1.2.2 Réactions de polymérisation en chaîne . . . . .	12
1.3 Classification des polymères . . . . .	13
1.4 Transition vitreuse . . . . .	16
1.4.1 Propriétés statiques . . . . .	17
1.4.2 Propriétés dynamiques . . . . .	18
1.4.3 Transitions secondaires . . . . .	19
1.5 Approche théorique de la transition vitreuse . . . . .	20
1.5.1 Différentes classes de théorie de la transition vitreuse . . . . .	21
1.5.2 Approche thermodynamique . . . . .	21
1.5.3 Volume libre . . . . .	22
1.6 Méthodes de mise en oeuvre . . . . .	23
1.7 Propriétés des polymères . . . . .	23
1.7.1 Comportement mécanique . . . . .	23
1.7.2 Comportement élastique des polymères . . . . .	25
1.7.3 Fonctions viscoélastiques . . . . .	26
1.8 Conclusion . . . . .	30
<b>2 Principe de causalité et propagation</b>	<b>31</b>
2.1 Introduction . . . . .	31
2.2 Causalité et relations de Kramers -Kronig . . . . .	32
2.2.1 Transformée de Hilbert . . . . .	32
2.2.2 Relations de Kramers-Krönig . . . . .	34

2.3	Phénomènes d'atténuation . . . . .	35
2.3.1	Coefficient de qualité . . . . .	35
2.3.2	Milieux non dispersifs . . . . .	36
2.3.3	Milieux dispersifs . . . . .	37
2.3.4	Cas où l'atténuation est proportionnelle à la fréquence . . . . .	37
2.3.5	Relaxation et causalité . . . . .	40
2.3.6	Théorème de Paley-Wiener . . . . .	41
2.4	Conclusion . . . . .	42
<b>3</b>	<b>Propagation des ondes ultrasonores dans les polymères</b>	<b>43</b>
3.1	Introduction . . . . .	43
3.2	Modélisation . . . . .	45
3.3	Résolution de l'équation d'onde . . . . .	49
3.4	Simulation numérique . . . . .	55
3.4.1	Influence de la distance de propagation . . . . .	56
3.4.2	Influence de la fréquence . . . . .	59
3.4.3	Influence du paramètre d'atténuation $A$ . . . . .	62
3.5	Conclusion . . . . .	67
<b>4</b>	<b>Etude expérimentale</b>	<b>68</b>
4.1	Introduction . . . . .	68
4.2	Chaîne de mesure ultrasonore . . . . .	69
4.2.1	Emetteur - Récepteur . . . . .	69
4.2.2	Acquisition des signaux . . . . .	71
4.3	Echantillons étudiés . . . . .	71
4.4	Mesure des vitesses . . . . .	73
4.4.1	Les techniques de mesures . . . . .	73
4.4.2	Résultats obtenus . . . . .	78
4.5	Mesure de l'atténuation . . . . .	80
4.5.1	Technique de mesure de l'atténuation . . . . .	82
4.5.2	Résultats . . . . .	85
4.6	Détermination des coefficients de viscoélasticité . . . . .	88
4.7	Simulation numérique des signaux expérimentaux . . . . .	89
4.7.1	Description de la méthode . . . . .	89
4.7.2	Résultats des simulations des signaux expérimentaux . . . . .	91
4.8	Conclusion . . . . .	93
	<b>Conclusion</b>	<b>95</b>

**Bibliographie**

**97**

## Liste des symboles

- $a$  : Coefficient de dilatation thermique.
- $\omega$  : Pulsation.
- $\alpha$  : Coefficient d'atténuation.
- $c$  : Vitesse de propagation.
- $C$  : Vitesse de propagation dans le cas où le milieu est non dispersif.
- $S_\ell$  : Entropie du milieu à l'état liquide.
- $S_c$  : Entropie du milieu à l'état solide.
- $\Delta S_f$  : Entropie de fusion.
- $\Delta C_p$  : Différence de capacité thermique entre les états liquide et solide.
- $T_f$  : Température de Fusion.
- $\eta$  : viscosité.
- $K$  : Constante élastique.
- $T_g$  : Température de transition vitreuse.
- $E$  : Module de Young.
- $\nu$  : Coefficient de Poisson.
- $G$  : Module de cisaillement.
- $G^*$  : Module de cisaillement complexe.
- $G'$  : Module de stockage.
- $G''$  : Module de pertes.
- $\tan \delta$  : Tangente de pertes.
- $C_p$  : Capacité thermique.
- $H$  : Enthalpie libre.
- $\varepsilon$  : Déformation.
- $\dot{\varepsilon}$  : Vitesse de déformation.
- $V_0$  : Taille moyenne des cages.
- $V_m$  : Taille moyenne des cages en absence d'agitation thermique.
- $V_{fm}$  : Volume libre moyen.
- $U$  : Energie potentielle moyenne des segments.
- $T_0$  : Température qui correspond à un point d'inflexion de l'énergie potentielle moyenne des segments.
- $\tau_R$  : Durée nécessaire pour que des réarrangements irréversibles se produisent.
- $\tau_0$  : Durée d'observation.

- $\sigma_{ij}$  : Tenseur des contraintes.  
 $\varepsilon_{kl}$  : Tenseur des déformations.  
 $C_{ijkl}$  : Tenseur des rigidités.  
 $s_{ij}$  : Tenseur des complaisances.  
 $K$  : Module de compression.  
 $E_{IJ}(t)$  : Module de relaxation.  
 $D(t)$  : Module de complaisance en fluage.  
 $H(\cdot)$  : Fonction échelon de Heaviside.  
 $\delta(\cdot)$  : Fonction delta de Dirac.  
 $J_n(\cdot)$  : Fonction de Bessel de première d'ordre  $n$ .  
 $I_n(\cdot)$  : Fonction de Bessel modifiée d'ordre  $n$ .  
 $\mathcal{K}$  : Vecteur d'onde.  
 $\mathcal{K}_0$  : Vecteur d'onde dans le cas d'un milieu non dispersif.  
 $k$  : Partie réelle du vecteur d'onde.  
 $\lambda$  : Longueur d'onde.  
 $Q$  : Coefficient de qualité.  
 $\omega_0$  : Fréquence de coupure pour laquelle le milieu est non dispersif.  
 $n$  : Indice de réfraction du milieu.  
 $Hi$  : Transformée de Hilbert.  
 $TF$  : Transformée de Fourier.  
 $sign$  : Représente la fonction signe.  
 $\alpha_0$  : Coefficient d'atténuation par unité de fréquence.  
 $c_{IJ}(t)$  : Représente la dérivée de la fonction de relaxation.  
 $A(\omega)$  : Amplitude spectrale.  
 $\alpha_0$  : Coefficient d'atténuation par unité de fréquence.  
 $m$  : Masse de la particule.  
 $\Sigma$  : Surface d'une section.  
 $A$  : Constante d'atténuation.  
 $\mathcal{L}$  : Transformée de Laplace.  
 $\mathcal{L}^{-1}$  : Transformée de Laplace inverse.  
 $\Pi$  : Transformée de Laplace du déplacement.  
 $C_{pq}$  : Fonction d'intercorrélacion entre deux signaux.  
 $\alpha_d$  : Atténuation due au phénomène de diffraction.  
 $\alpha_R$  : Atténuation due au phénomène de réflexion.  
 $\alpha_a$  : Atténuation due au phénomène d'absorption.  
 $Z$  : Impédance du milieu.  
 $R$  : Coefficient de réflexion.  
 $f$  : Fréquence.

# Introduction

Les polymères sont des matériaux très utilisés dans l'industrie. Ils se sont imposés par les avantages qu'ils offrent ( isolation, amortissement, etc.). De ce fait ils ont acquis une grande importance économique sur les marchés. Environ 40% des matières plastiques, sous forme de Polystyrène et Polyéthylène sont essentiellement consommées soit pour l'emballage des produits alimentaires à usage ménager, ou encore l'emballage de matériel fragile. Les autres secteurs d'utilisation sont le bâtiment (20% dont beaucoup de Polychlorure de vinyle), l'automobile (Polypropylène en majorité), l'électroménager (Polypropylène essentiellement), le marché des textiles et l'électricité. D'autres usage plus marginaux en volume, touchent des domaines aussi divers que les loisirs ou l'agriculture.

Aujourd'hui, les grands thermoplastiques sont arrivés à maturité avec une croissance limitée de l'ordre de 3 à 5% par an, à l'exception du Polypropylène qui est en progression constante (7 à 8% par an) comme matériau de substitution pour le Polychlorure de vinyle et dans le marché de l'automobile.

L'implantation des polymères dans pratiquement tous les secteurs industriels est le fruit de l'exploitation des avanatges de leurs caractéristiques spécifiques.

Les propriétés intéressantes des polymères sont conditionnées par leurs nature microscopique (nature chimique, configuration spatiale des chaînes). Les méthodes de mise en forme qui permettent l'orientation des Polymères constituent des facteurs qui influent sur le comportement du matériau lors d'une sollicitation mécanique.

Pour la détermination des caractéristiques mécaniques des polymères telles que le module de Young et le coefficient de viscosité, plusieurs techniques sont utilisées. Ce sont essentiellement les essais de traction, les essais de flexion, et les techniques ultrasonores.

Ces dernières offrent l'avantage d'être non destructives et de mise en oeuvre facile. Les méthodes de caractérisation ultrasonores reposent sur la modification des caractéristiques de propagation de ces ondes (vitesse de propagation et atténuation) dans les matériaux [Cha 1998, Dia 2003, Gor 1999, Gos 1978, Lee 1980, Pin 1999, Sel 1985, Sim 2004, Sza 2000, Win 2000, Zha 2004].

Le premier chapitre de cette thèse est consacré à la présentation de quelques notions sur les polymères et à la description des lois physiques qui régissent le comportement mécanique de ces matériaux [Cha 1970, Dar 1976, Eti 2002, Kau 2001, Ley 2002]. La relaxation qui est un

phénomène caractéristique des polymères est liée à leurs propriétés viscoélastiques. La connaissance de ces phénomènes est très utile dans l'étude du comportement des ondes ultrasonores, car l'atténuation de ces ondes dans les milieux polymères dépend du phénomène de relaxation [Ley 2002].

Le principe de causalité qui s'applique à tout phénomène physique est présenté et discuté dans le chapitre 2. Pour l'étude de ce principe, différentes démarches sont proposées dans la bibliographie [Hor 1981, Mob 2003, Odo 1978, Odo 1981, Puj 2003, Sus 2003, Win 2000]. Wintle [Win 2000] propose une approche du principe de causalité pour différents milieux correspondant à des atténuations proportionnelles au carré de la fréquence (dépendance quadratique), proportionnelles à la fréquence (dépendance linéaire). Lorsque l'atténuation est proportionnelle à une puissance non entière, la loi de dépendance de l'atténuation en fonction de la fréquence est qualifiée de fractionnaire. La méthode proposée par Wintle pour résoudre le problème consiste à considérer une large distribution du temps de relaxation, qui est comprise entre deux temps de coupures  $\tau_1 > 0$  et  $\tau_2 > \infty$ . Cette approche consiste à appliquer les relations de Kramers-Kronig à la susceptibilité et puis d'en déduire l'atténuation et la vitesse.

Suchilov et al. [Sus 2003] ont étudié la causalité dans le cas d'une atténuation linéaire. La méthode de résolution proposée par ces auteurs permet d'obtenir la résolution de l'équation de propagation et d'étudier les effets de diffraction dans le cas d'ouvertures de taille finie. Dans ce cas, les solutions caractérisant le champ sont calculées à l'aide de l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld.

O'donnell et al. ont appliqué le principe de causalité à la compressibilité dynamique. Ce qui a permis d'établir des relations entre l'atténuation et la dispersion [Odo 1981].

Futterman [Puj 2003] a proposé une approche dans le cas où l'atténuation est proportionnelle à la fréquence. Il a défini le coefficient de réfraction du milieu et appliqué les relations de Kramers-Kronig sur la partie réelle et imaginaire du coefficient de réfraction du milieu. Le résultat de cette approche est l'établissement d'une relation entre l'atténuation et la vitesse de propagation de l'onde.

L'approche utilisée dans ce chapitre est analogue à celle de Futterman [Puj 2003]. Nous commençons par définir le coefficient de réfraction du milieu puis nous appliquons les relations de Kramers-Kronig sur la partie réelle et imaginaire du coefficient de réfraction. Le résultat de cette approche est l'établissement d'une relation entre l'atténuation et la vitesse de propagation de l'onde. Ce résultat a été adapté au cas où le milieu est faiblement dispersif c'est-à-dire dans une gamme de fréquence allant de 1 à 15 MHz et dans le cas des transducteurs à bande étroite.

L'étude de la causalité nous a permis de mettre en évidence le critère de Paley-Wiener, nécessaire pour obtenir une fonction causale après inversion des transformations intégrales [Pal 1934, Pfa 1971].

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\alpha(\omega)}{1 + \omega^2} d\omega < \infty$$

Dans le troisième chapitre nous avons essayé de simuler numériquement les différents phénomènes qui influent sur la propagation des ondes ultrasonores dans les milieux polymères. Pour résoudre ce genre de problème une modélisation du phénomène de propagation a été proposée par différents auteurs [Cha 1995, Che 2003, Dia 2003, Jon 1986, Lee 1979, Lee 1980, Sza 2000]. Cette modélisation dépend de la dépendance en fréquence de l'atténuation et de la vitesse. Différentes approches sont utilisées, Leeman a proposé un modèle d'équation qui correspond à une atténuation proportionnelle à la fréquence [Lee 1979, Lee 1980]. Szabo a proposé un modèle qui correspond à une atténuation dépendant de la fréquence par une relation quadratique [Sza 2000]. Sushilov et al. ont étudié le phénomène de diffraction dans les trois cas (linéaire, quadratique, fractionnelle) [Sus 2003]. Diallo et al. ont utilisé le BISQ ( Biot/Squirt-flow model ) modèle pour estimer la vitesse et l'atténuation dans les milieux poreux [Dia 2003].

Les milieux polymères quant à eux, présentent une atténuation proportionnelle à la fréquence. Deux hypothèses tout à fait justifiées ont alors été énoncées :

- dépendance linéaire de l'atténuation en fonction de la fréquence
- absence de phénomène de dispersion (vitesse de phase constante).

Leeman a proposé un modèle d'équation de propagation d'onde ultrasonore dans les tissus humains. Ce modèle a été conforté par des résultats expérimentaux [Lee 1980]. L'analogie entre les polymères et les tissus humains est basée sur le fait que tous deux sont des milieux organiques. La différence entre le modèle de Leeman et celui utilisé dans cette thèse est que le premier tient compte du phénomène de dispersion tandis que le second, plus simple, considère que le phénomène de dispersion de vitesse peut être négligé dans la bande de fréquence utilisée.

Sur la base de ces hypothèses, il nous a été possible d'élaborer un modèle rhéologique permettant de représenter au mieux le comportement mécanique d'un matériau viscoélastique. Le modèle de Kelvin-Voigt s'est montré très efficace dans le cas des fluides visqueux, c'est-à-dire dans les milieux fluides présentant des atténuations variant en fonction de la fréquence selon une loi quadratique [Gur 2000, Sza 2000]. Dans le cas des milieux polymères, le modèle le plus adapté est celui de Zener ou bien du solide standard parce qu'il permet de décrire le fluage et la relaxation de contrainte [Cha 1995, Kau 2001]. Le modèle de Maxwell représente une bonne approximation du modèle de Zener dans le cas des fréquences ultrasonores [Kau 2001]. Cette démarche a permis d'établir l'équation de propagation d'une onde ultrasonore dans des matériaux non dispersifs présentant une atténuation linéaire [Dar 1976, Gab 1972, Gur 2000, Lee 1980].

Pour résoudre cette équation plusieurs méthodes efficaces peuvent être utilisées ; ce sont en particulier la méthode des différences finies, l'utilisation de transformations intégrales telles que la transformée de Fourier et la transformée de Laplace qui a été utilisée dans cette thèse [Guy 1986, Lee 1979, Lee 1980]. Dans ce formalisme, la solution de l'équation de propagation est exprimée sous la forme d'une intégrale de convolution [Lee 1980].

Les simulations numériques ont permis de mettre en évidence tous les phénomènes liés à la

propagation, en particulier l'atténuation des ondes ultrasonores dans les milieux polymères et l'influence des différents paramètres du modèle rhéologique de Maxwell. Différentes procédures de simulation ont été proposées par plusieurs auteurs. L'approche de Zhao et al. [Zha 2004] consiste à injecter un signal à l'entrée d'un milieu de propagation où l'atténuation et la vitesse sont exprimées par des relations linéaires en fonction des fréquences [Pin 2000]. Une deuxième approche de Ping consiste à simuler la propagation d'ondes ultrasonores large bande qui sont décomposées en des composantes à bandes assez étroites, puis les effets de l'atténuation et de la dispersion sont appliqués sur chaque composante [Pin 1998]. Il est important de remarquer que pour la simulation du phénomène de propagation, une démarche simpliste consisterait à introduire l'atténuation comme un filtre fréquentiel  $e^{-\alpha(\omega)x}$  dans le domaine fréquentiel puis à revenir au domaine temporel, par une transformée de Fourier inverse, pour obtenir l'onde après propagation. Malheureusement cette démarche est illicite puisqu'elle ne respecte pas le critère de Paley-Wiener. En effet, pour satisfaire ce critère il faudrait un argument exponentiel ayant une puissance inférieure à 1 [Pal 1934, Pfa 1971].

La démarche utilisée dans notre cas exprime directement la solution dans le domaine temporel et respecte le principe de causalité ainsi que le critère de Paley-Wiener. Notre approche consiste à injecter à l'entrée du milieu de propagation, une onde dont les différents paramètres sont la largeur de bande et la fréquence d'excitation, puis à effectuer une convolution avec la réponse impulsionnelle du milieu de propagation, afin d'obtenir une onde à la sortie qui a subi une atténuation et un retard.

Le quatrième chapitre est une étude expérimentale du phénomène de propagation des ondes ultrasonores dans les milieux polymères. Plusieurs techniques peuvent être utilisées [Cos 2004, Gor 1999, Gos 1978, Kum 1996, Lee 1990, Pet 2003, Pin 1998, Pin 1999, Pin 2000, Sim 2004, Tin 1978, Wan 2001]. La méthode par réflexion utilisée dans cette thèse permet la détermination des propriétés des ondes de volume ( vitesse de phase et atténuation ) liées aux propriétés mécaniques du milieu.

Des méthodes basées sur le traitement numérique des signaux ont permis le calcul des atténuations et des vitesses à l'aide de techniques telles que la division des spectres, la fonction d'intercorrélation et la transformée de Hilbert [Cha 1998, Ley 2002, Pet 2003]. Etant donné la taille finie des transducteurs, des termes correctifs ont été évalués afin de prendre en compte la présence du phénomène diffraction et de réflexion multiple [Kum 1996, Ler 2006, Odo 1983, Pap 1959]. L'estimation des vitesses de phase et des atténuations permettra de déterminer les constantes élastiques et les coefficients de viscosité [Gui 2003, Kum 1996, Lee 1990, Pet 2003, Pin 1998, Pin 1999, Pin 2000, Sim 2004].

# Chapitre 1

## Notions de physique des polymères

### 1.1 Notion de macromolécule

Les Polymères sont formés de plusieurs milliers de motifs structuraux appelés monomères, liés entre eux par des liaisons primaires (liaisons covalentes). A l'échelle d'une centaine de nanomètres, la plupart des macromolécules se présentent de façon semblable sous forme de fils longs et souples. Ces "ficelles" possèdent trois caractéristiques physiques fondamentales communes à toute macromolécule : une grande longueur, une grande anisotropie des segments et une souplesse moléculaire importante. Schématiquement, ces trois caractéristiques permettent d'expliquer tous les phénomènes physiques spécifiques aux matériaux polymères. Elles conditionnent aussi leurs propriétés uniques qui représentent leurs principaux atouts : facilité de mise en œuvre, adaptabilité et grande déformabilité,... [Kau 2001].

L'anisotropie des molécules est due au fait que la connexion le long de l'axe de la chaîne est assurée par des liaisons covalentes fortes, qui résultent du partage des électrons par le recouvrement des orbitales atomiques des éléments qui la composent, tandis que la cohésion latérale entre des segments moléculaires est assurée par des liaisons secondaires faibles, aussi appelées forces de van der Waals. Cette anisotropie conduit non seulement à une grande anisotropie de la résistance et de la rigidité lorsque les segments d'un polymère ont une orientation préférentielle, mais aussi à une anisotropie d'autres propriétés physiques, comme les propriétés optiques, diélectriques et thermiques [Kau 2001]. Malgré leur anisotropie, les Polymères dits semicristallins sont macroscopiquement isotropes.

La souplesse importante des chaînes résulte de la facilité avec laquelle les groupements et segments moléculaires peuvent effectuer des rotations autour des liaisons covalentes [Kau 2001].

Il a été constaté que les propriétés mécaniques des Polymères dépendent de la nature chimique du matériau ( stéréoisomérisation, nature des monomères) et de la configuration spatiale des chaînes ( linéarité, ramification, réticulation ).

Ce sont tous ces facteurs qui influent sur les propriétés mécaniques des Polymères.

De ce fait le phénomène de propagation des ondes élastiques dépendra de la nature microscopique des monomères et de l'orientation des chaînes [Cha 95, Hul 1996, Pic 1987, Pic 1989]. Pour une analyse des résultats obtenus lors de l'étude de la propagation des ondes ultrasonores dans les polymères, qui fait l'objet de cette thèse, il est nécessaire de décrire tous les processus d'élaboration des polymères afin de mettre en évidence leurs propriétés mécaniques (élastiques et viscoélastiques).

## 1.2 Synthèse des macromolécules

La synthèse a permis depuis une trentaine d'années de préparer un nombre considérable de composés macromoléculaires, plus précisément de macropolymères résultant de l'enchaînement de petites molécules.

On peut distinguer deux mécanismes entièrement différents pour la formation des polymères ; ce sont :

- Les réactions de polycondensation.
- Les réactions de polymérisation.

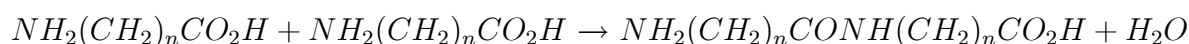
### 1.2.1 Réactions de polycondensation

Les réactions de polycondensation consistent en l'union de molécules polyfonctionnelles d'estérification, d'amidification ou d'anhydrification.

Les réactions de polycondensation ont un certain nombre de caractéristiques communes. Les réactions des groupements fonctionnels par étapes successives sont toutes identiques. Les espèces intermédiaires ont donc la même réactivité que les monomères eux-mêmes. Le poids moléculaire du produit formé relativement bas au début de la polycondensation, augmente progressivement lorsque ce processus se poursuit.

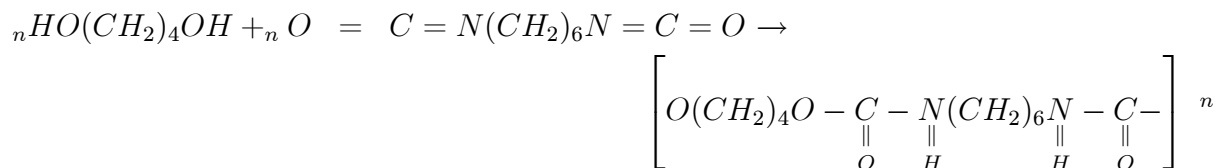
On peut distinguer deux types de réactions de polycondensation :

- Celles pour lesquelles la réaction s'effectue avec élimination d'un produit de condensation, comme dans la formation des Polyesters et des Polyamides :



- Celles pour lesquelles il n'y a pas formation d'un produit secondaire de la réaction, et donc aucune variation de composition stœchiométrique du système au cours de la polymérisation. On peut donner comme exemple la condensation des dialcools avec les diisocyanates,

qui donne les polyuréthanes :



Initialement, le terme de polycondensation avait été réservé par Carothers [Cha 1970] aux types de polymérisation par étapes successives dans lesquelles il y avait élimination d'un composé de bas poids moléculaire au cours de la formation du polymère. Mais des réactions sans élimination d'un composé comme celle de l'équation précédente ayant des caractéristiques analogues à celles des réactions de polycondensation avec élimination, doivent être classées dans la même famille.

Un type tout à fait particulier de réaction dont la cinétique se rapproche beaucoup des polycondensations est celui de la polymérisation par recombinaison des radicaux.

### 1.2.2 Réactions de polymérisation en chaîne

Elles consistent en l'union des molécules monomères identiques sans élimination d'un produit de réaction. L'aptitude à la polymérisation est commune à un grand nombre de molécules insaturées (Hydrocarbure Ethylénique ou Acétylénique ou à leurs dérivés) ou à des composés à doubles liaisons comme les Aldéhydes et les Cétones. Cette réaction se produit en trois phases :

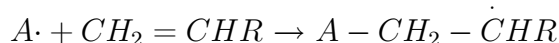
- Phase d'amorçage : La formation des molécules activées est relativement lente et nécessite une énergie d'activation assez élevée, de l'ordre de 20 000 à 30 000 calories/moles pour les dérivées Vinyliques.
- Phase de propagation : Elle correspond à la croissance des chaînes macromoléculaires ne mettant en jeu qu'une énergie d'activation environ 10 fois plus faible et de ce fait beaucoup plus rapide que la précédente.
- Phase d'interruption : Au cours de laquelle les chaînes macromoléculaires se désactivent et cessent de croître.

La caractéristique commune des réactions de polymérisation, qui les distingue des polycondensations, est la formation de centres actifs ne préexistant pas dans le monomère.

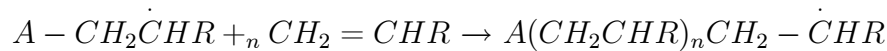
On peut distinguer d'après la nature des centres actifs, plusieurs types de réactions de polymérisation :

- Les polymérisations radicalaires

Les polymérisation radicalaires, pour lesquelles les centres actifs sont des radicaux qui se fixent sur l'un des carbones de la double liaison du monomère, le radical se formant sur le carbone voisin :

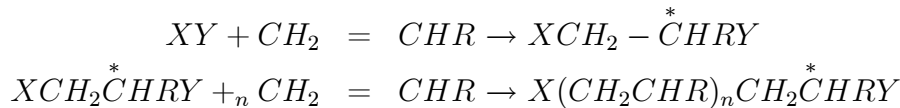


et ensuite :



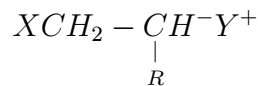
– Les polymérisations ioniques ou polaires

Les polymérisations ioniques ou polaires, dans lesquelles le monomère s'insère entre deux groupements plus ou moins ionisés ou polarisés :

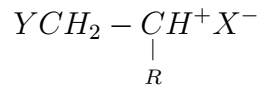


On peut distinguer

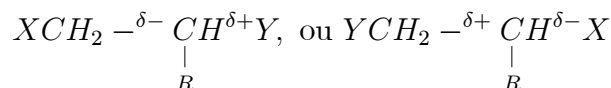
– les polymérisations anioniques, où le centre actif est polarisé négativement :



– les polymérisations cationiques, où il est polarisé positivement :



– les polymérisations polaires, dans lesquelles il n'y a pas formation de paires d'ions :



### 1.3 Classification des polymères

Cette classification se fait selon leur comportement mécanique. On distingue trois grandes classes de polymères : les thermoplastiques, les thermodurcissables et les élastomères.

Le terme thermoplastique signifie que l'échantillon devient plastique par chauffage. Les thermoplastiques sont constitués de chaînes plus ou moins linéaires liées entre elles par des forces de van der Waals. Selon la régularité de leurs chaînes, ces polymères peuvent cristalliser (thermoplastes semicristallins) ou non (thermoplastes amorphes) ; ils sont généralement solubles et formés de chaînes distinctes bien compactées, liées entre elles par des seules liaisons secondaires (forces de van der Waals ou dipolaires, liaisons Hydrogène, etc...). Ils peuvent être mis en forme (même de façon répétitive) par chauffage et refroidissement. En raison de la faiblesse des forces de van der Waals, la majorité des thermoplastes se ramollissent ou fondent dans une plage températures comprises entre 80°C et 225°C.

Par contre un thermodurcissable durcit et prend forme sous l'effet de la chaleur ou de la lumière. Les thermodurcissables sont infusibles et insolubles et forment un réseau tridimensionnel à partir de segments moléculaires liés entre eux par une densité élevée de liaisons primaires. Les thermodurcissables sont mis en forme de façon irréversible par réaction chimique des molécules d'un durcisseur avec les petites molécules d'une résine et/ou avec des chaînes linéaires. La distinction entre ces deux classes de polymères provient du fait que dans le premier cas, les macromolécules restent chimiquement séparées les unes des autres après la mise en œuvre, ce qui permet un remoulage à discrétion. Dans le deuxième cas, des petites molécules ou chaînes linéaires sont réticulées pendant le durcissement. Elles sont toutes reliées entre elles par des liaisons primaires et stables. L'échantillon forme ainsi une seule super-macromolécule et il ne peut plus être remoulé.

Les polymères de la troisième famille, celle des élastomères, se distinguent par les faibles valeurs des forces d'attraction entre les chaînes et de leurs modules élastiques (à température ambiante) et par leur capacité élevée de déformation (quelques centaines de %). Ils sont donc caoutchoutiques, souples et gonflables, formés de chaînes peu compactées et (à température ambiante) très mobiles. Pour assurer une stabilité de forme indispensable, diminuer leur propension au fluage et prévenir une souplesse excessive, les caoutchoucs sont généralement réticulés, c'est-à-dire que leurs chaînes sont liées entre elles par des liaisons primaires et stables [Kau 2001].

Les élastomères thermoplastiques sont des solides qui ont un comportement semblable à celui des élastomères et une formabilité semblable à celle des thermoplastiques. Ils sont formés de copolymères en bloc, qui réunissent au sein d'une même chaîne des segments d'un thermoplastique rigide (par exemple, du Polystyrène) et d'un élastomère (par exemple, du polybutadiène(PBD)) [Kau 2001].

Ces différentes classes ainsi que les polymères les plus courants sont résumés dans le tableau 1.1, et les structures chimiques de quelques polymères sont représentées sur la figure 1.1.

Nom du polymère	Symbole	Densité [ $g/cm^3$ ]	
		amorphe	cristalline
<b>Thermoplaste</b>			
Polyéthylène haute densité	PE	0.855	1.00
Polypropylène	PP	0.852	0.946
Polystyrène	PS	1.05	–
Polychlorure de vinyle	PVC	1.39	–
Polychlorure de vinylidène	PVDC	1.66	1.95
Polyfluorure de vinylidène	PVDF	1.67	1.91
Polyméthylacrylate de méthyle	PMMA	1.19	–
<b>Elastomère</b>			
Caoutchouc naturel	NR	0.93	–
Caoutchouc polybutadiène	PBD	0.94	–
Caoutchouc chloroprène	CR	1.25	–
Caoutchouc styréné/Butadiène	SBR	0.94	–
Caoutchouc acrylonitrile/Butadiène	NBR	1	–
Fluoroélastomère	FCM	1.85	–
Polydiméthylesiloxane	PDMS	1.25	–
<b>Elastomère thermoplastique</b>			
TPE styrénique	TPE-S	0.9-1.1	
TPE de polyuréthane	TPE-U	1.1-1.3	
<b>Thermodurcissable</b>			
Résine époxyde	EP	1.1-1.5	–
Phénoplaste	PF	1.25	–
Polyesters non saturés	UP	1.24	–

Tableau 1.1 : Tableau représentant les polymères synthétiques les plus courants [Kau, 2001]



conduisent à des valeurs de  $\eta$  relativement élevées à une température donnée [Kau 2001].

Nom du polymère	Symbole	$T_g$ [°C]
Caoutchouc Polybutadiène	PBD	-100
Polyéthylène haute densité	PE	-80
Caoutchouc naturel	NR	-73
Caoutchouc chloroprène	CR	-40
Polypropylène	PP	-20
Polytétrafluoroéthylène	PTFE	-20
Polyfluorure de vinylidène	PVDF	-18
Polyacrylate de méthyle	PMA	6
polychlorure de vinylidène	PVC	81
Polyalcool de vinyle	PVAI	85
Polystyrène	PS	100
Polyméthacrylate de méthyle	PMMA	105

Tableau 1.2 : Classement des principaux polymères par ordre croissant de leur température de transition vitreuse [Kau 2001].

### 1.4.1 Propriétés statiques

Une des manifestations les plus spectaculaires de la transition vitreuse est la variation des propriétés mécaniques qui survient aux environs de  $T_g$  (voir figure 1.2). Pour les polymères amorphes et pour de faibles déformations, on distingue trois régimes de comportement distincts :

- L'état vitreux à  $T < T_g$  est caractérisé par un module de Young  $E \approx 3GPa$ , un module de cisaillement  $G \approx 1GPa$  et un coefficient de Poisson  $\nu = 0,3$  à  $0,4$  [Kau 2001].
- Dans un régime de température allant de  $T_g - 20K$  à  $T_g + 20K$  environ,  $E$  et  $G$  diminuent de 2 à 4 ordres de grandeurs, et dépendent fortement de la vitesse de mesure ou de sa durée. Il s'en suit que la valeur de  $T_g$  elle même augmente avec la vitesse de mesure [Kau 2001].
- A  $T > T_g$  et pour de longues chaînes, on entre dans le plateau caoutchoutique caractérisé par des valeurs de  $E$  et  $G$  de l'ordre de quelques  $MPa$ , reflétant la libération de mouvements translationnels au sein du polymère. Par contre le module de compression  $K$ , qui dépend pas de ces mouvements translationnels, ne diminue que d'un facteur d'environ trois [Kau 2001].

Ceci est illustré par la figure 1.2.

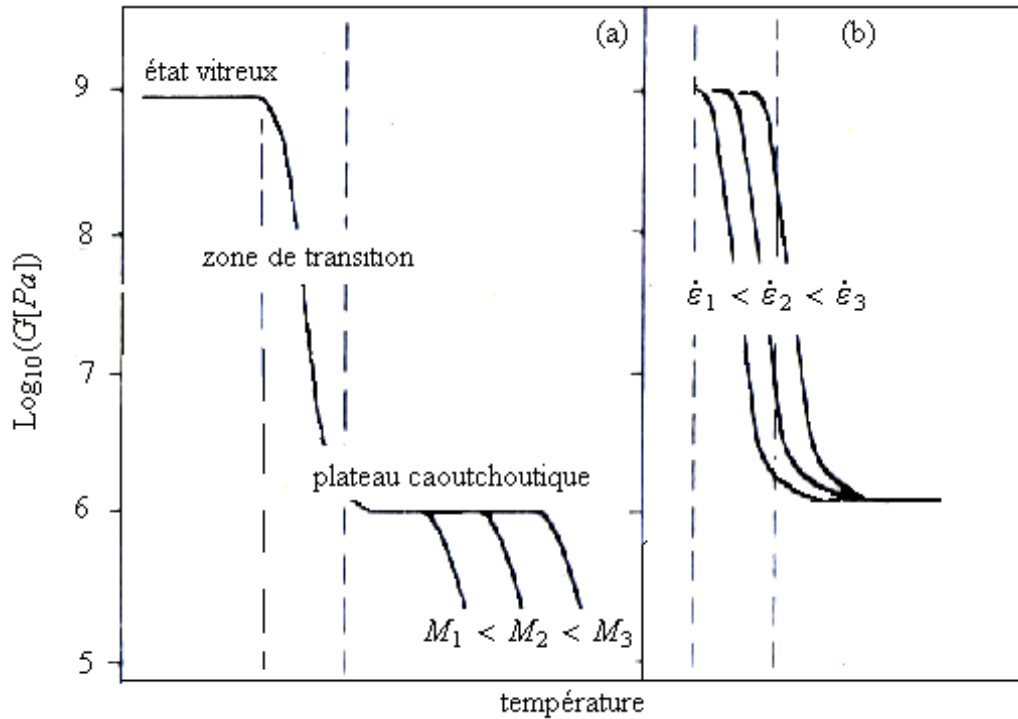


Figure 1.2 : (a) Représentation schématique de la variation du module de cisaillement en fonction de la température pour un polymère amorphe, (b) influence de la vitesse de mesure dans la gamme de températures correspondant à la zone de transition vitreuse [Han 2001, Ser 2002].

### 1.4.2 Propriétés dynamiques

Aux températures proches de  $T_g$ , les composantes élastique et dissipative de la déformation ont une importance comparable. Il en résulte que lorsqu'on sollicite le matériau par une contrainte cyclique, la déformation est en retard sur la contrainte. Lors d'une sollicitation sinusoïdale, dans les limites de la viscoélasticité linéaire, on peut définir un module de cisaillement complexe :

$$G^* = G' + iG''$$

Le module en phase,  $G'$  (appelé module de stockage), représente la composante élastique tandis que le module en quadrature,  $G''$  (appelé module de pertes) représente la composante visqueuse. On définit également la tangente de pertes,  $\tan \delta = G''/G'$ . Dans ce domaine de température, les deux composantes dépendent fortement de la fréquence. Le module en phase augmente avec la fréquence alors que le module de pertes présente un maximum à une fréquence qui dépend de la température. Aux basses fréquences et aux températures élevées, les

mouvements moléculaires qui contribuent à la transition sont libres, tandis qu'aux fréquences élevées et aux basses températures ils sont figés. Dans les deux cas la dissipation est faible [Kau 2001].

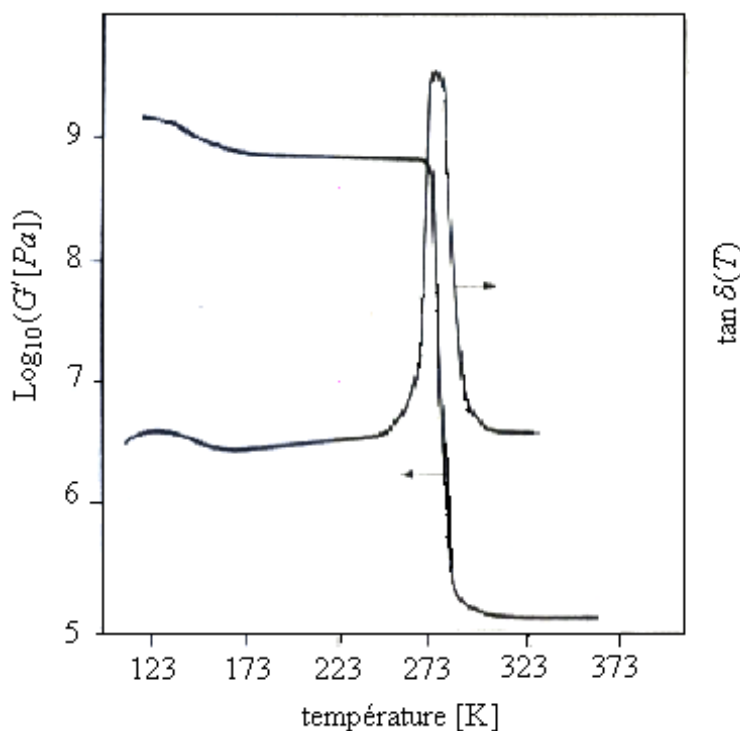


Figure 1.3 : Variation de module de stockage et de pertes pour un polymère amorphe en fonction de température [Kau 2001].

### 1.4.3 Transitions secondaires

La plupart des théories de la transition vitreuse sont essentiellement phénoménologiques, et ne fournissent pas d'indications sur les mécanismes moléculaires. En général on suppose que les mouvements liés à la transition vitreuse impliquent entre 20 et 60 monomères et qu'il s'agit de mouvements coopératifs. Ceci peut être mis en évidence dans des systèmes réticulés où l'on suppose que le nombre de monomères impliqué correspond à la longueur entre points de réticulation pour laquelle  $T_g$  cesse de dépendre du taux de réticulation.

Néanmoins si on continue de diminuer la température d'un polymère à l'état vitreux, plusieurs transitions secondaires associées à des mouvements plus localisés, peuvent se présenter. En général, pour un polymère amorphe et pour un essai dynamique où l'on associe la transition vitreuse à la transition  $\alpha$ , les transitions secondaires sont appelées  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\delta$  etc..., dans l'ordre de leur apparition lors d'un refroidissement, comme le montre l'exemple de la figure 1.3. Ces transitions correspondent à des mouvements relativement localisés, soit de la chaîne principale

( impliquant un nombre restreint de liaisons - par exemples 4 liaisons dans le Polyéthylène suffisent pour permettre une rotation de type "manivelle" autour de la chaîne principale ) ou de groupes latéraux. L'existence d'une certaine mobilité en dessous de  $T_g$  est d'une importance capitale pour les propriétés mécaniques des polymères vitreux, car il est considéré que ces mêmes mouvements activés par une sollicitation mécanique sont étroitement liés à la plasticité.

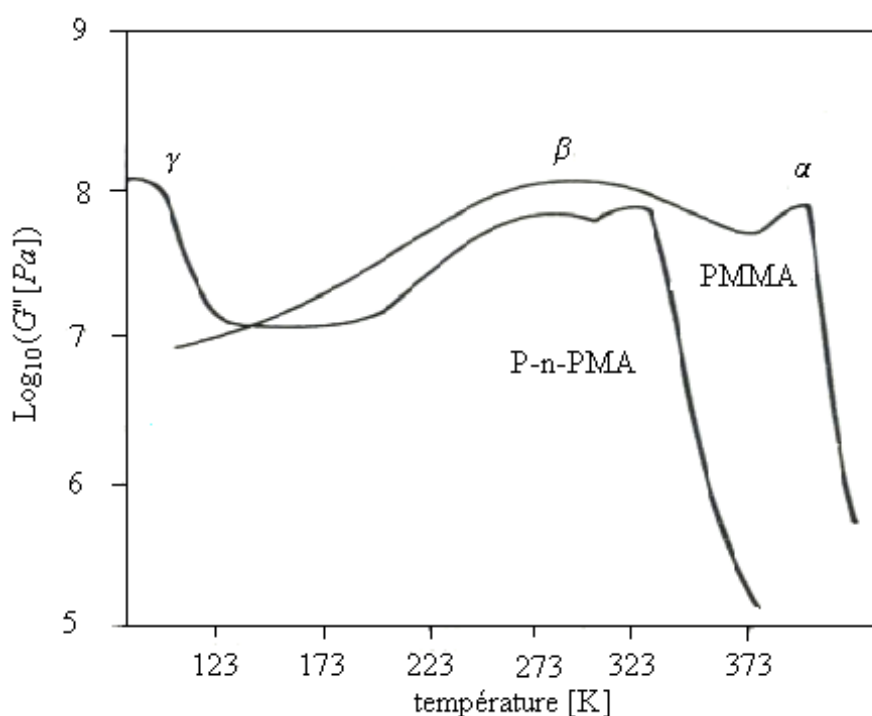


Figure 1.4 : Transitions secondaires dans le PMMA et polyméthacrylate de n-propyle (P-n-PMA) [Han 2001].

## 1.5 Approche théorique de la transition vitreuse

Il existe une certaine analogie entre le comportement du verre et des polymères et, malgré l'intérêt théorique porté aux verres depuis les années 1920, il n'existe pas encore de description théorique complète de la transition vitreuse [Kau 2001]. L'analyse théorique d'un verre est compliquée par le fait qu'il n'atteint jamais l'état d'équilibre, contrairement à un liquide qui est toujours dans un état d'équilibre local. Une analyse thermodynamique d'équilibre ne peut donc être appliquée directement, même si la transition vitreuse comporte certaines caractéristiques d'une transition thermodynamique du 2<sup>e</sup> ordre (continuité des quantités primaires telles que  $H$ , et discontinuité des propriétés du 2<sup>e</sup> ordre, telles que  $C_p = (dH/dT)_p$ ). Cependant, une transition vitreuse du second ordre ne serait pas compatible avec l'évolution de  $T_g$  avec l'échelle de temps de la mesure. Il est vrai qu'une transition du deuxième ordre peut montrer un certain

hystérésis lors des cycles de refroidissement et chauffage, mais ceci se manifeste toujours par un retard [Kau 2001].

### 1.5.1 Différentes classes de théorie de la transition vitreuse

Il existe deux principales classes d'approche théorique traitant de la mobilité d'un liquide en surfusion qui admettent l'existence d'une transition fondamentale, dont la température  $T_g$  serait une manifestation. Ce sont les théories thermodynamiques et les théories basées sur la notion de volume libre. Toutefois d'autres approches existent telle que celle de Perez qui décrit le comportement des polymères en termes de "défauts quasi ponctuels", une notion qui provient de la métallurgie physique. Il existe encore des théories dynamiques qui tentent de décrire le passage d'un polymère à l'état vitreux en termes cinétiques et qui n'impliquent pas forcément une véritable transition [Eti 2002, Kau 2001].

### 1.5.2 Approche thermodynamique

Les débuts de l'approche thermodynamique à  $T_g$  dans les polymères remontent à la publication en 1958 de la théorie de Gibbs et DiMarzio. L'idée d'une transition fondamentale a ses origines dans le paradoxe de Kauzmann. Etant donné une entropie de fusion  $\Delta S_f$ , pour une substance donnée, la différence d'entropie entre le cristal et la même substance à l'état liquide à une température en dessous de sa température de fusion,  $T_f$ , est

$$S_\ell - S_c = \Delta S_f - \int_T^{T_f} \Delta C_p d \ln T$$

où la différence de capacité thermique entre les deux états,  $\Delta C_p$ , est toujours positive. Il en découle qu'en diminuant suffisamment la température, on devrait toujours rencontrer un régime de températures  $0 < T < T_2$  où le liquide a moins d'entropie que le cristal, ce qui est contraire au troisième principe de la thermodynamique. L'entropie liquide deviendrait négative lorsque  $T$  s'approche de 0.  $T_2$  est parfois qualifiée de température de transition vitreuse calorimétrique idéale et elle représente la disparition de l'excès d'entropie associé au liquide en surfusion par rapport à l'état cristallin.

Des modèles de l'état liquide impliquant un mélange de trous et de sphères furent introduits par Eyring en 1941. Le calcul de l'entropie de complexion de Gibbs et DiMarzio consiste en l'application de l'approche de Flory-Huggins à un mélange de trous et de sous systèmes polymères. Selon ce modèle, si l'équilibre est maintenu, l'entropie de complexion disparaît à une température  $T_2 \approx T_g - 50 K$  où il y a une transition de 2<sup>e</sup> ordre que Gibbs et DiMarzio associèrent à la transition vitreuse [Kau 2001].

### 1.5.3 Volume libre

La théorie sur le volume libre est due à Flory [Kau 2001]. Cette théorie simple suppose que le polymère en phase liquide contient des trous dont la distribution et la taille moyenne évoluent avec la température, et que la transition vitreuse correspond à un état métastable où le volume libre ne suffit pas pour permettre les mouvements translationnels qui caractérisent un écoulement, et le matériau devient vitreux [Kau 2001].

La théorie originelle de Cohen et Turnbull [Kau 2001] s'applique à un assemblage condensé de sphères, représentant les segments dans le cas d'un polymère. Chaque sphère est piégée dans une cage qui représente ses interactions avec ses voisines. A basse température, la taille moyenne de ces cages,  $V_m$ , tend vers  $V_0$  (la taille qu'elles auraient en l'absence d'agitation thermique) [Kau 2001].

Lorsqu'on augmente la température, la taille moyenne des cages augmente sous l'influence des vibrations thermiques jusqu'à une température  $T_0$  où  $V_m$  correspond à un point d'inflexion de l'énergie potentielle moyenne  $U$  des segments. A cette température, une redistribution de volume peut avoir lieu sans changement de la valeur de  $U$ . Le résultat est un mélange de cages de volume  $V > V_m$  et de volume  $V < V_m$ , l'entropie de mélange fournissant la force motrice pour cette transition. En même temps il y a une brusque augmentation du coefficient de dilatation thermique,  $a$ , et la capacité calorifique,  $C_p$ , due à la libération de mouvements moléculaires [Kau 2001].

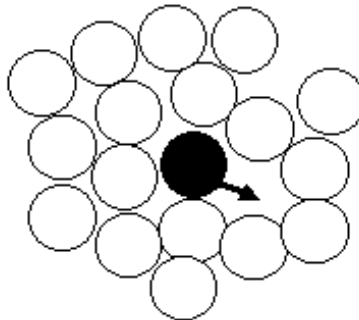


Figure 1.5 :Schéma en deux dimensions du déplacement d'un segment vers un trou de la même taille, envisagé dans la théorie de volume libre [Kau 2001].

On définit alors le volume libre moyen,  $V_{fm}$

$$\begin{aligned} V_{fm} &= 0 && \text{pour } T < T_0 \\ V_{fm} &= V_0(a_l - a_v)(T - T_0) && \text{pour } T > T_0 \end{aligned}$$

On admet ensuite que les mouvements moléculaires sont seulement permis lorsque  $V - V_0 = V_0$ , c'est-à-dire lorsqu'il existe un trou de la même taille que le volume minimum nécessaire pour accommoder un segment [Kau 2001], comme le montre la figure précédente.

## 1.6 Méthodes de mise en oeuvre

Etant donné leur faible conductivité thermique et leur grande viscosité, les Polymères sont mis en oeuvre par fusion ou par gélification puis mis sous pression suffisante pour pouvoir les forcer au travers des outillages de mise en forme. Pour cela il existe des machines d'extrusion, d'injection et à cylindre.

L'évolution des techniques de mise en oeuvre a permis de produire des orientations moléculaires conférant au matériaux finis des propriétés particulièrement intéressantes.

Dans l'orientation moléculaire, deux cas sont à considérer :

- Celui des Polymères qui sont orientés dans la phase cristalline par étirage juste en dessous du point de fusion puis soumis à un étirage monoaxial en appliquant une différence de vitesse à des cylindres successifs, ou biaxial en soumettant le Polymère à un étirage longitudinal et à un étirage transversal au moyen de pinces qui prennent la feuille et sont soumises à un écartement au moyen d'un dispositif mécanique [Kau 2001].
- Celui des Polymères qui sont orientés en phase amorphe, à la température du début du plateau caoutchoutique. Dans cet état, l'orientation provoque l'apparition d'interactions entropiques récupérables par réchauffage de l'objet fini au dessus de la température d'orientation. Dans la pratique, pour l'orientation des feuilles ou des plaques on utilise la technique des cylindres et du cadre. Pour l'orientation des bouteilles, le système passe soit par l'extrusion soufflage d'une préforme, soit par l'injection de celle ci. Cette préforme est conditionnée thermiquement, puis placée dans un équipement où elle est simultanément étirée longitudinalement et soufflée [Kau 2001].

L'orientation des chaînes aura une influence capitale sur le phénomène de propagation des ondes élastiques. En effet, cette dernière aura des répercussions sur les modes de propagation et donc sur les propriétés mécaniques des Polymères.

## 1.7 Propriétés des polymères

Ce paragraphe est consacré à une présentation des caractéristiques mécaniques et physiques des polymères ainsi que de leur comportement élastique et viscoélastique linéaire.

### 1.7.1 Comportement mécanique

Les polymères montrent un comportement élastique (qui domine aux basses températures et vitesses de sollicitation élevées) et visqueux (qui devient dominant dans les conditions contraires). Toutefois, dans une vaste gamme de température les matériaux polymères combinent ces deux aspects. Cette dualité du comportement est appelé viscoélasticité.

D'une manière générale, la contrainte, la déformation et la vitesse sont liées par une relation

appelée équation constitutive du matériau. Dans le cas d'un essai de traction aux températures inférieures à  $T_g$ , la déformation varie linéairement avec la contrainte [Eti 2002]. Le comportement est élastique, et la loi de comportement est la loi de Hooke :

$$\sigma = E \varepsilon \quad (1.6.1)$$

où  $E$  est le module de Young. En dessous de  $T_g$ , Le mouvement des chaînes principales et le glissement des segments sont bloqués. L'élasticité résulte de la déformabilité des monomères, donc de la facilité avec laquelle le squelette s'adapte aux contraintes et surtout par le déplacement local des groupes dans le potentiel des forces de Van der Waals.

Aux températures supérieures à  $T_g$ , lorsque les mouvements de la chaîne principale sont libres, deux cas peuvent se présenter selon que le polymère est réticulé ou non. S'il est réticulé, il a un comportement caoutchoutique, il s'agit d'une élasticité non linéaire qui ne dépend pas de la loi de Hooke. Si le polymère n'est pas réticulé, et si la masse molaire est suffisante, les enchevêtrements peuvent jouer un rôle similaire à celui des points de réticulation. Le comportement du réseau d'enchevêtrement est alors également caoutchoutique. Il s'agit toutefois d'un réseau temporaire, et aux températures suffisamment élevées ou aux longues durées, les chaînes peuvent glisser les unes par rapport aux autres.

Dans ce domaine, le polymère devient un fluide visqueux, il en est de même lorsque la masse molaire est suffisamment faible pour qu'il n'existe pas de réseau d'enchevêtrement. Le matériau se trouve alors dans le domaine de la transition terminale. Les effets élastiques deviennent moins importants ; autrement dit la contrainte n'est plus fonction de la déformation totale. L'équation constitutive est plutôt une relation entre la contrainte et la vitesse de déformation. Aux vitesses de déformation suffisamment faibles, cette relation s'exprime par la loi de Newton :

$$\sigma = \eta \dot{\varepsilon} \quad (1.6.2)$$

Les comportements élastiques (loi de Hooke) et visqueux (loi de Newton) sont les cas extrêmes se présentant lorsque la durée d'observation  $\tau_0$  est respectivement très courte ou très longue par rapport au temps  $\tau_R$  nécessaire pour que des réarrangements irréversibles du matériau se produisent. Le rapport  $\frac{\tau_R}{\tau_0}$  s'appelle nombre de Deborah, s'il est très grand le comportement est élastique ; s'il est très faible le comportement est visqueux. Lorsque le nombre de Deborah est de l'ordre de l'unité, les caractères visqueux et élastique se manifestent simultanément ; les composantes élastiques et visqueuses de la contrainte sont comparables et le matériau a un comportement intermédiaire entre les comportements élastiques et visqueux : il est visco-élastique [Kau 2001]. Cela se produit notamment au voisinage de la transition terminale ; mais également de la transition vitreuse. Aux températures inférieures à  $T_g$ , les déplacements relatifs des segments sont bloqués et le comportement est essentiellement élastique (élasticité d'origine enthalpique) [Kau 2001]. Au dessus de  $T_g$  les mouvements des segments de la chaîne sont libres

et le comportement est essentiellement élastique (élasticité d'origine entropique). Au voisinage de la transition ces mouvements sont possibles mais freinés, ils requièrent l'application d'une force et produisent une dissipation d'énergie : le comportement est viscoélastique [Kau 2001].

En présence de ce comportement, la contrainte agissant sur le matériau dépend de toute l'histoire de la déformation. Par analogie avec les lois de Hooke et de Newton, nous dirons que le comportement viscoélastique est linéaire si la réponse est proportionnelle à la sollicitation ; cela n'implique pas une relation linéaire entre la contrainte et la déformation [Kau 2001].

### 1.7.2 Comportement élastique des polymères

Le module d'Young des polymères est fortement anisotrope à l'échelle de la molécule. Cette anisotropie se manifeste à l'échelle macroscopique dès que le matériau est orienté. Dans la loi de Hooke la contrainte et la déformation sont toutes deux exprimées par des tenseurs du second ordre, et le module de Young est remplacé par un tenseur (du quatrième ordre) des modules ou de rigidité et la loi de Hooke s'écrit donc en général :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (1.6.3)$$

Le tenseur de rigidité comporte a priori 81 éléments. Toutefois, dans le cas où le système ne présente aucun élément de symétrie, la condition de symétrie des contraintes et des déformations (  $\sigma_{ij} \equiv \sigma_{ji}$  et  $\varepsilon_{ij} \equiv \varepsilon_{ji}$  ), et l'invariance de l'énergie de déformation élastique qui dépend du produit  $C_{ijkl} \varepsilon_{ij} \varepsilon_{kl}$ , réduisent le tenseur à 21 coefficients différents. Dans le cas d'une symétrie orthorhombique, comportant trois plans de symétries mutuellement perpendiculaires, le nombre de coefficients est de 9. Ce nombre est aussi réduit dans le cas axisymétrique. On peut montrer qu'il existe alors 5 coefficients indépendants. Les réductions du nombre de coefficients indépendants sont les mêmes en viscoélasticité linéaire qu'en élasticité, la viscoélasticité se manifestant simplement par une dépendance des coefficients par rapport au temps. Dans le cas axisymétrique le tenseur de complaisance s'écrit :

$$\begin{vmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{13} & 0 & 0 & 0 \\ S_{13} & S_{13} & S_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2(S_{11} - S_{12}) \end{vmatrix}$$

Ces cinq complaisances sont reliées aux modules et aux coefficients de Poisson par les relations suivantes :

- Module de young suivant l'axe de symétrie :

$$E_{33} = \sigma_3/\varepsilon_3 = 1/S_{33}$$

- Contraction maximale due à la contrainte  $\sigma_{33}$  :

$$\text{coefficient de poisson } \nu_{13} = -\varepsilon_1/\varepsilon_3 = -S_{13}/S_{33}$$

- Module de Young transversal :

$$E_{11} = E_{22} = 1/S_{11}$$

- Contraction provoquée par la contrainte  $\sigma_{11}$  dans la direction 3 :

$$\text{coefficient de poisson } \nu_{31} = -\varepsilon_3/\varepsilon_1 = S_{31}/S_{11}$$

Le nombre de complaisances indépendantes est réduit à deux pour un corps élastique isotrope ; en effet  $S_{11} = S_{22} = S_{33} = 1/E$  ;  $S_{12} = S_{13} = -\nu/E$  et  $S_{44} = 2(S_{11} - S_{12}) = 1/G$ . Les modules satisfont les relations classiques

$$G = \frac{E}{2(1 + \nu)} \quad (1.6.4.a)$$

$$K = \frac{E}{3(1 - 2\nu)} \quad (1.6.4.b)$$

### 1.7.3 Fonctions viscoélastiques

Dans ce qui suit on suppose que le comportement élastique des matériaux dépend du temps. L'étude des sollicitations permet de définir des fonctions viscoélastiques caractéristiques du matériau (module de relaxation, complaisance de fluage, module et complaisance complexes) [Kau 2001].

#### Module de relaxation

Un échelon de déformation  $\varepsilon_0$  imposé au temps  $t = 0$  à un échantillon, provoque une contrainte  $\sigma(t)$ , constante si le comportement du matériau est parfaitement élastique, décroissante en présence d'une dissipation visqueuse. Le module de relaxation  $E(t, \varepsilon_0)$  est donné par le rapport  $\sigma(t)/\varepsilon_0$  (on utilise  $E(t, \varepsilon_0)$  en sollicitation uniaxiale et  $G(t, \gamma_0)$  lorsque la déformation est un cisaillement.) Dans le cadre de la viscoélasticité linéaire, le module de relaxation est indépendant de la déformation et se note  $G(t)$  ou  $E(t)$ . Ce module décroît dans le temps, on conçoit qu'en outre la relaxation contrainte est soit initialement rapide pour devenir ensuite de plus en plus lente à mesure que le système se rapproche d'un état stable [Kau 2001].

#### Complaisance en fluage

On définit de même la complaisance comme le rapport  $D(t, \sigma_0) = \varepsilon(t)/\sigma_0$  (ou  $J(t, \tau_0) = \gamma(t)/\sigma_0$  en cisaillement) de la réponse en déformation à un échelon de contrainte imposée en  $t = 0$ . Cette fonction est également indépendante du niveau de contrainte dans les limites de la

viscoélasticité linéaire. Il s'agit d'une fonction croissante : la déformation élastique instantanée est suivie par une déformation retardée ou anélastique. Comme pour le module, les dérivées successives doivent être de signes alternés [Kau 2001].

### Module et complaisance complexes

Un échantillon soumis à une contrainte sinusoïdale, subira dans les mêmes limites une déformation sinusoïdale en retard sur la contrainte. En notation complexe, on a :

$$\begin{aligned}\sigma &= \sigma_0 \exp(i\omega t) \\ \varepsilon &= \varepsilon_0 \exp\{i(\omega t - \delta)\} \\ E^* &= \sigma/\varepsilon = E_0 \exp(i\delta) = E' + iE'' \\ D^* &= \varepsilon/\sigma = D_0 \exp(-i\delta) = D' - iD''\end{aligned}$$

où  $E^*$  et  $D^*$  sont le module et la complaisance complexes, fonctions de la pulsation  $\omega$ . Les composantes en phase,  $E'$  et  $D'$ , correspondant à la composante élastique de la déformation et de la contrainte, sont appelées module (ou complaisance) de conservation, tandis que les composantes en quadrature  $E''$  et  $D''$ , correspondant à la dissipation visqueuse, sont appelées module (ou complaisance) de pertes. On définit encore la tangente de pertes (ou facteur de pertes) :

$$\tan \delta = E''/E' = D''/D'$$

### Réponse à une sollicitation quelconque - principe de superposition de Boltzmann

Dans les limites de la viscoélasticité linéaire on peut supposer que la réponse à une combinaison linéaire quelconque de sollicitations, sera donnée par une combinaison linéaire identique des réponses ; c'est le principe de superposition de Boltzmann [Kau 2001].

Dans le cas simple d'un essai de relaxation (figure 1.6), le tenseur des fonctions de relaxation est alors défini comme l'ensemble des fonctions  $E_{IJ}(t)$  telles que :

$$\sigma_I(t) = E_{IJ}(t - \tau)\varepsilon_J^{(0)} \quad (1.6.5)$$

où  $\sigma_I(t)$  est la contrainte réponse aux sollicitations de relaxation  $\varepsilon_J(t)$  définies par :

$$\varepsilon_J(t) = H(t - \tau)\varepsilon_J^{(0)} \quad (1.6.6)$$

$H(t)$  représentant la fonction d'Heaviside et  $\varepsilon_J^{(0)}$  étant une constante homogène à une déformation.

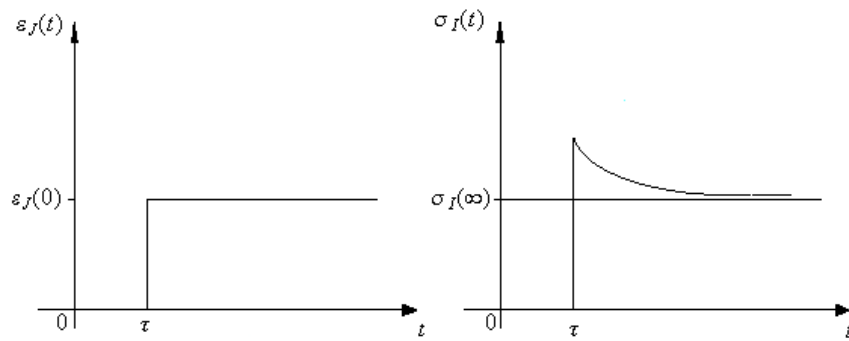


Figure 1.6 : Schéma représentant les déformations et les contraintes dans un matériau viscoélastique lors d'un d'un essai de relaxation [Ley 2002]

D'après le principe de superposition de Boltzmann défini précédemment l'effet provenant de différentes causes est la somme des effets individuels dus à chacune de ces causes (figure 1.7).

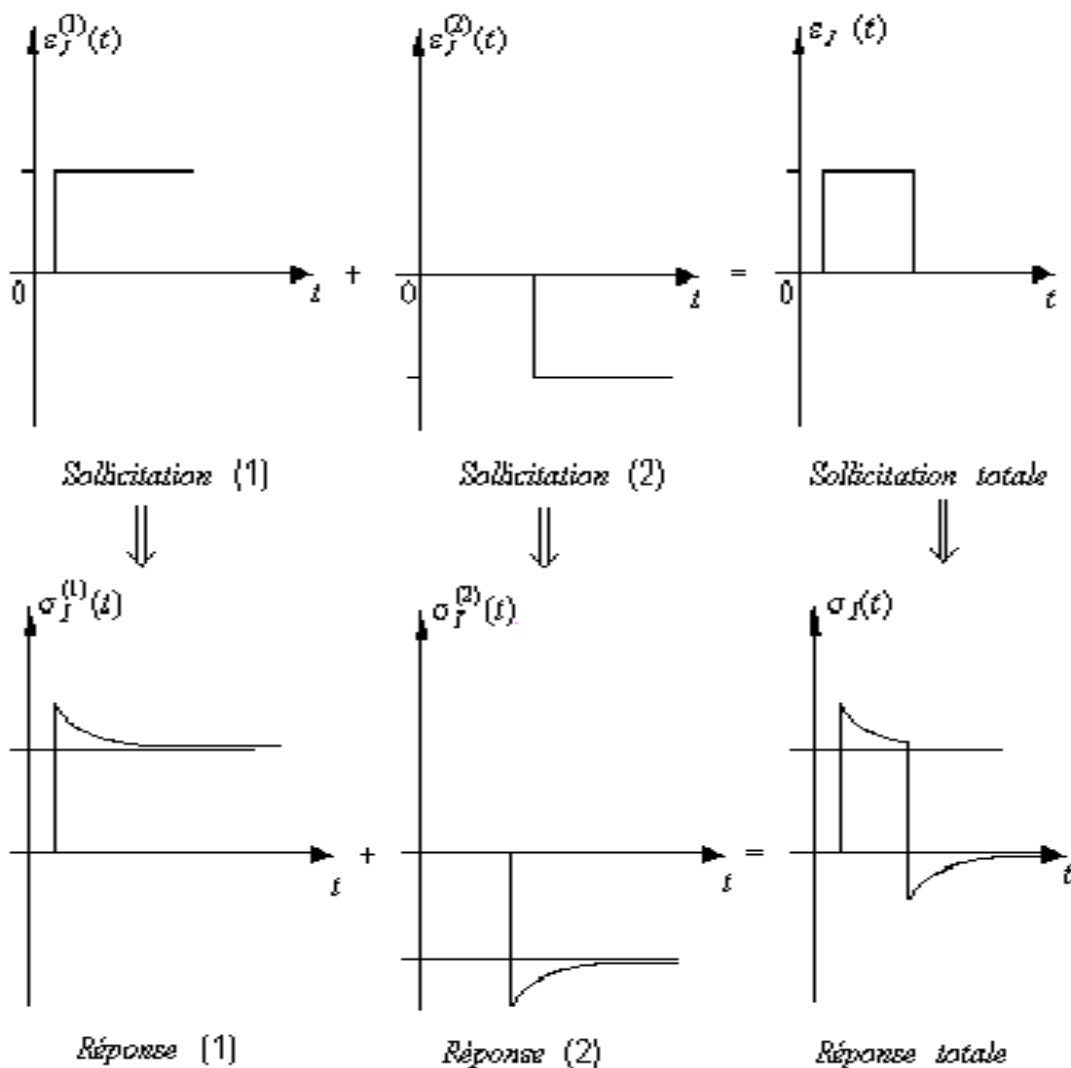


Figure 2.7 : Représentation du principe de superposition de Boltzmann [Ley 2002]

Ainsi en se servant de la relation 1.6.5, la contrainte  $\sigma_I(t)$  à un instant  $t$  peut être définie comme la somme des contraintes infinitésimales engendrées par l'histoire passée des déformations  $\varepsilon_J(\tau)$  avec  $\tau \in [0, t]$ . En écrivant cette somme d'événements continus par morceaux sous la forme d'une intégrale au sens de Stieljes[Ley 2002],

L'expression de  $\sigma_I(t)$  s'écrit :

$$\sigma_I(t) = \int_{\varepsilon_J(0)}^{\varepsilon_J(t)} E_{IJ}(t - \tau) d\varepsilon_J(\tau) \quad (1.6.7)$$

Les déformations étant supposées toutes continues et dérivables, les fonctions étant toutes causales, l'équation précédente s'écrit sous la forme d'un produit de convolution :

$$\sigma_I(t) = (E_{IJ} * \dot{\varepsilon}_J)(t) \quad (1.6.8)$$

où  $\dot{\varepsilon}_J(t)$  représente la dérivée temporelle de  $\varepsilon_J(t)$  au sens des distributions.

### Écriture fréquentielle

L'écriture fréquentielle est nécessaire dans la résolution de l'équation de propagation. Pour cela la transformée de Fourier nous permettra de passer du domaine temporel au domaine fréquentiel. La transformation de Fourier est un opérateur applicable à toute fonction  $y(t)$  d'énergie finie, telle que :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |y(t)|^2 dt < +\infty \quad (1.6.9)$$

Alors la transformée de Fourier de la fonction  $y(t)$  est définie par :

$$Y(\omega) = \hat{y}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} y(t) e^{-i\omega t} dt \quad (1.6.10)$$

où  $t$  représente le temps,  $\omega$  la pulsation égale à  $2\pi f$  et  $f$  la fréquence. L'application de la transformée de Fourier sera également étendue aux fonctions intégrables au sens des distributions telle que la fonction de dirac  $\delta(t)$  ou la fonction d'Heaviside  $H(t)$

Notons aussi que l'une des propriétés de la transformée de Fourier est que l'application de celle-ci au produit de convolution de deux fonctions  $(y * z)(t)$  n'est autre que le produit simple des deux transformées de Fourier  $Y(\omega)$  et  $Z(\omega)$  de ces deux fonctions :

$$(\hat{y * z})(\omega) = Y(\omega)Z(\omega) \quad (1.6.11)$$

Dès lors il nous est possible d'écrire la relation 1.6.8 dans le domaine fréquentiel. Notons que si les déformations et les contraintes sont à énergie finie, la fonction de relaxation  $E_{IJ}(t)$

ne l'est généralement pas, celle-ci tendant à l'infini vers une constante notée  $C_{IJ}^{(\infty)}$ . Par contre la dérivée de la fonction de relaxation, notée  $c_{IJ}(t)$  est une fonction nulle à l'infini. On obtient alors la relation :

$$\sigma_I(t) = (E_{IJ} * \varepsilon_J)(t) = (\dot{E}_{IJ} * \varepsilon_J)(t) = (c_{IJ} * \varepsilon_J)(t) \quad (1.6.12)$$

et d'après la relation 1.6.10, nous obtenons :

$$\hat{\sigma}_I(\omega) = C_{IJ}(\omega)\varepsilon_J(\omega) \quad (1.6.13)$$

où les  $C_{IJ}(\omega)$ , transformées de Fourier des  $c_{IJ}(t)$ , représentent les composantes complexes du tenseur des rigidités. Ces fonctions fréquentielles établissent ainsi des relations linéaires entre les contraintes et les déformations. La relation 1.6.13 montre que la réponse à une excitation harmonique est reliée linéairement par les coefficients complexes  $C_{IJ}(\omega)$  définissant les rigidités complexes du milieu à la fréquence  $\omega$ .

## 1.8 Conclusion

Les polymères sont des matériaux qui présentent des propriétés viscoélastiques qui dépendent de la température et de la fréquence de sollicitation. Dans le cas des fréquences ultrasonores et à température ambiante le mouvement des chaînes moléculaires est bloqué et le polymère est viscoélastique. Ces propriétés sont responsables du phénomène de relaxation qui influe sur le comportement des ondes ultrasonores dans les polymères. La relaxation est donc le seul phénomène responsable de l'atténuation du milieu. La relaxation est liée à la contrainte et à la déformation par une relation linéaire dans le domaine des fréquences.

De plus, l'orientation des chaînes moléculaires, la nature chimique des liaisons, la configuration spatiale des chaînes et la mise en forme influent sur le phénomène de propagation.

Bien que les polymères sont des matériaux par essence anisotropes à l'échelle microscopique, à l'état semicristallin ils sont macroscopiquement isotropes.

Les techniques de mise en oeuvre créant des orientations moléculaires privilégiées auront une influence capitale sur le phénomène de propagation d'onde. En particulier la propagation des ondes ultrasonores selon une direction parallèle aux chaînes moléculaires sera influencée par la faiblesse des liaisons de Van der Waals entre les chaînes.

La partie expérimentale de cette thèse sera essentiellement consacrée à l'étude de la propagation des ondes ultrasonores dans des thermoplastiques choisis en raison de leur disponibilité et de leur facilité d'usinage.

# Chapitre 2

## Principe de causalité et propagation

### 2.1 Introduction

Le principe de causalité, applicable à tout phénomène physique postule simplement qu'un effet ne peut précéder sa cause.

Ce chapitre est consacré à l'application de ce principe à l'étude de la propagation des ondes acoustiques dans des milieux où l'atténuation est proportionnelle à la fréquence. Certains polymères ou certains milieux biologiques sont des exemples de tels milieux.

Plusieurs travaux portant sur l'influence de l'atténuation et son lien avec le principe de causalité ont été réalisés par différents auteurs. Wintle [Win 2000] propose une approche de l'étude des atténuations dépendant de la fréquence selon une loi quadratique, linéaire ou fractionnaire. Cette approche consiste à appliquer les relations de Kramers-Kronig à la susceptibilité du milieu et d'en déduire l'atténuation et la vitesse de propagation de l'onde.

Suchilov et al. [Sus 2003] ont étudié la causalité dans le cas d'une atténuation proportionnelle à la fréquence. Dans cette étude, la solution de l'équation de propagation exprimée à l'aide de l'intégrale de Rayleigh-Sommerfield, permet de prendre en compte l'effet de diffraction résultant de la taille finie de la source acoustique.

Futterman [Puj 2003] a également proposé une approche dans le cas où l'atténuation est proportionnelle à la fréquence en appliquant les relations de Kramers-Kronig à la partie réelle et à la partie imaginaire du coefficient de réfraction du milieu. Le résultat de cette approche est l'établissement d'une relation entre l'atténuation et la vitesse de propagation de l'onde.

L'approche utilisée dans ce chapitre est analogue à celle de Futterman [Puj 2003]. Nous commençons par définir l'indice de réfraction du milieu puis nous appliquons les relations de Kramers-Kronig sur la partie réelle et imaginaire de l'indice de réfraction. Le résultat de cette approche est l'établissement d'une relation entre l'atténuation et la vitesse de propagation de l'onde. Ce résultat est ensuite adapté au cas où le milieu est faiblement dispersif dans une gamme de fréquences limitée.

Les relations de Kramers-Kronig seront aussi appliquées pour la partie réelle et la partie imaginaire du module de relaxation.

## 2.2 Causalité et relations de Kramers -Kronig

### 2.2.1 Transformée de Hilbert

Une fonction causale,  $s(t)$  est caractérisée par la propriété

$$s(t) = 0, \text{ pour } t < 0 \quad (2.1.1)$$

En utilisant la fonction unité de Heaviside, on peut écrire :

$$s(t) = H(t) s(t), \text{ pour tout } t \quad (2.1.2)$$

L'application de la transformée de Fourier à l'équation précédente et l'utilisation du théorème de convolution dans le domaine des fréquences donnent

$$S(\omega) = \frac{1}{2\pi} [\mathcal{H}(\omega) * S(\omega)] \quad (2.1.3)$$

où  $S(\omega)$  et  $\mathcal{H}(\omega)$  sont les transformées de Fourier de  $s(t)$  et  $H(t)$  respectivement.

Sachant que :

$$\mathcal{H}(\omega) = \pi\delta(\omega) - \frac{i}{\omega} \quad (2.1.4)$$

l'équation précédente devient :

$$S(\omega) = \frac{1}{2\pi} [\pi\delta(\omega) - \frac{i}{\omega}] * S(\omega) = \frac{1}{2}\delta(\omega) * S(\omega) - \frac{i}{2\pi\omega} * S(\omega) \quad (2.1.5)$$

Sachant que la fonction delta est l'élément neutre par rapport à la convolution, il découle de la relation (2.1.5) :

$$S(\omega) = -\frac{i}{\pi\omega} * S(\omega) \quad (2.1.6)$$

En général,  $S(\omega)$  est une fonction complexe, qui peut être écrite sous la forme suivante :

$$S(\omega) = R(\omega) + iI(\omega) \quad (2.1.7)$$

$R(\omega)$  et  $I(\omega)$  sont respectivement, la partie réelle et imaginaire de  $S(\omega)$ .

En injectant 2.1.7 dans la relation 2.1.6 nous obtenons :

$$R(\omega) + iI(\omega) = -\frac{i}{\pi\omega} * R(\omega) + \frac{1}{\pi\omega} * I(\omega) \quad (2.1.8)$$

En identifiant partie réelle et partie imaginaire, l'équation (2.1.8) donne :

$$R(\omega) = \frac{1}{\pi\omega} * I(\omega) \quad (2.1.9.a)$$

$$I(\omega) = -\frac{1}{\pi\omega} * R(\omega) \quad (2.1.9.b)$$

Ces deux équations montrent que la partie réelle et la partie imaginaire de la transformée de Fourier d'une fonction causale sont reliées entre elles par des relations intégrales définissant la transformée de Hilbert et sa transformée inverse.

La transformée de Hilbert d'une fonction arbitraire et réelle  $y(t)$  est notée  $Hi\{y(t)\}$ , elle est définie par :

$$Hi\{y(t)\} = \frac{-1}{\pi t} * y(t) = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{y(\tau)}{\tau - t} d\tau \quad (2.1.10)$$

où  $P$  représente la valeur principale de Cauchy.

La transformation de Fourier de (2.1.10) s'écrit :

$$F[Hi\{y(t)\}] = F\left\{-\frac{1}{\pi t}\right\} Y(\omega) = i \operatorname{sign}(\omega) Y(\omega) \quad (2.1.11)$$

où

$$F\{y(t)\} = Y(\omega) \quad (2.1.12)$$

Ces deux relations montrent que la transformée de Hilbert ne change pas l'amplitude du spectre de  $y(t)$ ; cependant, sa phase est modifiée car

$$i \operatorname{sign}(\omega) \begin{cases} i = e^{i\pi/2}; & \omega > 0 \\ 0; & \omega = 0 \\ -i = e^{-i\pi/2}; & \omega < 0 \end{cases} \quad (2.1.13)$$

De l'équation précédente, on obtient :

$$Hi\{y(t)\} = F^{-1}\{i \operatorname{sign}(\omega) Y(\omega)\} \quad (2.1.14)$$

Une autre conséquence de l'expression définissant  $F\{\hat{y}(t)\}$  est que

$$(i \operatorname{sign}(\omega))^2 = -1 \quad (2.1.15)$$

Le résultat de deux transformées de Hilbert successives correspond à une variation de phase

de  $\pi$ .

$$-\frac{1}{\pi t} * \left[ -\frac{1}{\pi t} * y(t) \right] = -\frac{1}{\pi t} * Hi \{y(t)\} = -y(t) \quad (2.1.16)$$

Ceci implique que :

$$y(t) = \frac{1}{\pi t} * Hi \{y(t)\} = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{Hi \{y(\tau)\}}{\tau - t} d\tau \quad (2.1.17)$$

Cette équation est la définition de la transformée de Hilbert inverse.

## 2.2.2 Relations de Kramers-Krönig

Soit  $s(t)$  une fonction causale et  $S(\omega)$  sa transformée de Fourier qui peut s'écrire sous la forme suivante :

$$S(\omega) = R(\omega) + iI(\omega) \quad (2.2.1)$$

Les parties réelle et imaginaire, sont reliées par la transformée directe et la transformée inverse de Hilbert :

$$R(\omega) = \frac{1}{\pi\omega} * I(\omega) = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{I(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \quad (2.2.2.a)$$

$$I(\omega) = -\frac{1}{\pi\omega} * R(\omega) = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{R(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \quad (2.2.2.b)$$

Ces équations sont obtenues pour  $\omega$  réelle. Parfois il est plus pratique de continuer l'analyse dans le plan complexe, avec  $\omega = R\{\omega\} + iI\{\omega\}$ . Cependant les relations qui nous intéressent ne sont définies que pour  $\omega = R\{\omega\}$ . Dans le domaine complexe les relations précédentes sont valables tant que  $S(\omega)$  est analytique et ne possède pas de pôle dans le demi plan inférieur. Si  $S(\omega)$  est analytique et n'a pas de pôle dans le demi plan supérieur, alors  $s(t) = 0$  pour  $t \geq 0$ . Si la fonction  $S(\omega)$  a un pôle en  $\omega = \omega_p$ , alors  $S(\omega_p) = \infty$ . Les relations précédentes prouvent aussi que dans le domaine complexe on obtient dans le demi plan inférieur :

$$\lim_{\omega \rightarrow \infty} |S(\omega)| = 0 \quad (2.2.3)$$

Si cette condition n'est pas satisfaite, alors les relations de Hilbert seront modifiées. Si  $\omega_0$  est un point appartenant à l'axe réel pour lequel  $S(\omega)$  est analytique alors :  $\frac{S(\omega) - S(\omega_0)}{\omega - \omega_0}$  n'est pas singulière en  $\omega = \omega_0$  ; elle est analytique et satisfait la condition (2.2.3). Les relations (2.2.2) deviennent alors :

$$R(\omega) = R(\omega_0) - \frac{1}{\pi}(\omega - \omega_0)P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{I(\omega')}{(\omega' - \omega)(\omega' - \omega_0)} d\omega' \quad (2.2.4.a)$$

$$I(\omega) = I(\omega_0) + \frac{1}{\pi}(\omega - \omega_0)P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{R(\omega')}{(\omega' - \omega)(\omega' - \omega_0)} d\omega' \quad (2.2.4.b)$$

Ces équations sont appelées les relations de dispersion avec soustraction.

## 2.3 Phénomènes d'atténuation

### 2.3.1 Coefficient de qualité

Au cours de sa propagation, une onde plane progressive et harmonique subit une diminution d'amplitude en raison du phénomène d'atténuation. Cette onde s'écrit sous la forme

$$U(x, \omega) = U_0 e^{-\alpha x} e^{i(\omega t - kx)} = U_0 e^{i(\omega t - Kx)} \quad (2.3.1)$$

avec :  $K = k - i\alpha$ , où  $\alpha$  représente l'atténuation,  $k$  est le vecteur d'onde et  $U_0$  l'amplitude de l'onde en  $x = 0$ . Cependant cette équation n'est généralement pas suffisante pour décrire complètement l'atténuation. Il est souvent nécessaire de définir un coefficient  $Q$  appelé coefficient de qualité spatial.

Soit  $x_m$  les distances pour lesquelles, à un instant  $t$  donné, les amplitudes sont maximales. Les points d'abscisse  $x_m$  sont distants d'un nombre entier de longueurs d'onde. Si  $\lambda$  est la longueur d'onde, le rapport de deux maxima consécutifs, à un instant  $t$  donné, est :

$$\frac{u(x_m + \lambda, t)}{u(x_m, t)} = e^{-\alpha\lambda} = e^{-\pi/Q} \quad (2.3.2)$$

d'où :

$$Q = \frac{\pi}{\alpha\lambda} = \frac{k}{2\alpha} \quad (2.3.3)$$

On remarque que le coefficient de qualité spatial est indépendant de la fréquence.

La vitesse de phase  $c$  est liée aux autres grandeurs par la relation de dispersion :

$$k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$$

### 2.3.2 Milieux non dispersifs

Pour une onde plane non harmonique, on peut considérer que  $u(x, t)$  représente la transformée de Fourier inverse de  $U(x, \omega)$ . Alors

$$u(x, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} U(x, \omega) e^{i\omega t} d\omega = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} U(0, \omega) e^{i[\omega t - K(\omega)x]} d\omega \quad (2.3.4.a)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} U(0, \omega) e^{-\alpha x} e^{i[\omega t - k(\omega)x]} d\omega \quad (2.3.4.b)$$

$u(x, \omega)$  et  $u(0, \omega)$  sont les transformées de Fourier respectives de  $u(x, t)$  et  $u(0, t)$ . Dans le cas où l'atténuation varie linéairement en fonction de la fréquence, elle s'écrit simplement :

$$\alpha = \frac{k}{2Q} = \frac{\omega}{2Qc} \text{ et } K = k - i\alpha \quad (2.3.5)$$

Si  $T$  représente le temps mis par l'onde pour parcourir une distance  $x$  et si on pose  $T = x/c$ , alors :

$$K(\omega)x = [k(\omega) - i\alpha(\omega)]x = \omega T - i\frac{\omega T}{2Q} \quad (2.3.6)$$

En introduisant (2.3.6) dans (2.3.4a) et en remplaçant  $u(0, \omega)$  dans  $A(\omega)$  nous obtenons

$$u(x, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} [A(\omega)(e^{-i\omega T} e^{-|\omega|T/2Q})] e^{i\omega t} d\omega \quad (2.3.7)$$

où la valeur absolue de  $\omega$  est utilisée pour assurer la décroissance exponentielle en fonction de  $\omega$ .

L'équation (2.3.4) montre que  $u(x, t)$  est égale à la transformée de Fourier inverse de la fonction entre accolade en (2.3.7) qui est égale au produit de convolution de deux fonctions :

$$\begin{aligned} u(x, t) &= TF^{-1} \{A(\omega)\} * TF^{-1} (e^{-i\omega T} e^{-|\omega|T/2Q}) \\ &= A(t) * \frac{1}{\pi} \frac{T/2Q}{(T/2Q)^2 + (t - T)^2} \end{aligned} \quad (2.3.8)$$

En raison de la causalité,  $A(t) = 0$  pour  $t < 0$  et l'onde  $u(x, t)$  qui se propage à une vitesse  $c$  constante devrait être nulle pour un temps  $T < x/c$ . Or, ce n'est pas le cas car le produit de convolution (2.3.8) n'est pas nul pour  $T < x/c$ .

On en déduit donc que les hypothèses linéarité, indépendance de  $c$  et  $Q$  par rapport à la fréquence ne peuvent pas être prises en compte simultanément, car la causalité ne serait pas respectée.

### 2.3.3 Milieux dispersifs

Si on suppose que  $c$  est fonction de la fréquence et que  $Q$  est constant,

$$e^{i(\omega t - Kx)} = e^{i\omega t} e^{-i[\omega/c(\omega)]x - \alpha(\omega)x} \equiv e^{i\omega t} F(\omega). \quad (2.3.9)$$

$f(t)$  est la transformée de Fourier inverse de  $F(\omega)$  qui respecte la causalité. En d'autres termes

$$\text{pour } t < \tau = x/c_\infty, \quad c_\infty = \lim_{\omega \rightarrow \infty} c(\omega) \quad (2.3.10)$$

En appliquant à la fonction  $f(t)$  une translation dans le temps d'une quantité  $\tau$ , nous obtenons

$$TF \{f(t + \tau)\} = e^{i\omega x/c_\infty} F(\omega) = e^{-i[\omega/c(\omega) - \omega/c_\infty - i\alpha(\omega)]x} = F_\tau(\omega) \quad (2.3.11)$$

### 2.3.4 Cas où l'atténuation est proportionnelle à la fréquence

Futterman [Puj 2003] a appliqué en 1962 la notion de causalité dans l'analyse des phénomènes d'atténuation en se basant sur l'hypothèse que l'atténuation  $\alpha(\omega)$  est une fonction de la fréquence croissante strictement linéaire, dans la gamme des fréquences utilisées.

Pour la suite des calculs, il est utile de définir l'indice de réfraction du milieu  $n(\omega)$  par :

$$n(\omega) = \frac{K(\omega)}{K_0(\omega)} \equiv R\{n(\omega)\} - iI\{n(\omega)\} \quad (2.3.12)$$

où  $K_0$  représente le vecteur d'onde  $K$  en absence de dispersion. Futterman a aussi supposé l'existence d'une fréquence de coupure basse  $\omega_0$ , caractéristique du matériau, au dessous de laquelle le milieu est non dispersif. Cette définition se traduit par :

$$K(\omega) = \frac{\omega}{C}, \quad \omega < \omega_0 \quad (2.3.13)$$

où  $C$  est la vitesse limite de  $c(\omega)$  vers les basses fréquences. Donc par définition :

$$K_0(\omega) = \frac{\omega}{C}; \quad \text{pour tout } \omega \quad (2.3.14)$$

Aussi pour les relations précédentes nous remarquons que

$$n(0) = 1. \quad (2.3.15)$$

En utilisant les relations (2.3.12) et (2.3.14),  $K(\omega)$  peut être écrit sous la forme

$$K(\omega) = \frac{\omega}{C} n(\omega) = \frac{\omega}{C} [R\{n(\omega)\} - iI\{n(\omega)\}] \quad (2.3.16)$$

Sachant que l'onde progressive s'écrit sous la forme

$$u(x, t) = A \exp \{i(\omega t - K(\omega)x)\} \quad (2.3.17)$$

avec

$$K(\omega) = k(\omega) - i\alpha(\omega) \quad (2.3.18)$$

nous obtenons les expressions de  $k(\omega)$  et  $\alpha(\omega)$

$$k(\omega) = \frac{\omega}{C} R \{n(\omega)\} \quad (2.3.19.a)$$

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega}{C} I \{n(\omega)\} \quad (2.3.19.b)$$

La vitesse de phase  $c(\omega)$  est égale à

$$c(\omega) = \frac{\omega}{k(\omega)} = \frac{C}{R \{n(\omega)\}} \quad (2.3.20)$$

Futterman (1962) a introduit également le coefficient de qualité  $Q_0$ , égal à

$$Q_0 = \frac{\omega}{2\alpha(\omega)C} \quad (2.3.21)$$

On remarque que  $Q_0$  est indépendant de la fréquence dans le cas où  $\alpha(\omega)$  est proportionnel à  $\omega$ .

Par définition, le coefficient de qualité s'écrit :

$$Q(\omega) = \frac{k(\omega)}{2\alpha(\omega)} = \frac{\omega}{2\alpha(\omega)c(\omega)} = \frac{CQ_0}{c(\omega)} = \frac{R \{n(\omega)\}}{2I \{n(\omega)\}} \quad (2.3.22)$$

Le résultat de base du travail de Futterman [Puj 2003] est constitué par les relations de Kramers-Kronig, qui relient les parties réelles et imaginaires de  $K(\omega)$ . Cependant,  $K(\omega)$  n'est pas une transformée de Fourier d'une fonction causale et pour établir les relations de Kramers-Kronig il est nécessaire de montrer que  $K(\omega)$  est analytique dans le demi plan inférieur et que la limite  $c_\infty$  existe [Puj 2003].

En utilisant l'égalité en (2.3.20),  $c_\infty$  peut être écrit comme

$$c_\infty = \lim_{\omega \rightarrow \infty} \frac{\omega}{k(\omega)} \quad (2.3.23)$$

L'existence de la limite  $c_\infty$  est essentielle dans la suite du calcul. De plus, pour que la limite  $c_\infty$  existe il faut que  $I \{n(\infty)\} = 0$  [Puj 2003]. Donc nous aurons

$$I \{n(\infty)\} = 0; \quad R \{n(\infty)\} = n(\infty) \quad (2.3.24)$$

En utilisant (2.3.13), (2.3.14), (2.3.18), et (2.3.6), l'exposant de la relation (2.1.8) devient :

$$\begin{aligned}
 h(\omega) &\equiv \frac{\omega}{c(\omega)} - \frac{\omega}{c_\infty} - i\alpha(\omega) \\
 &= \frac{\omega}{C} [R\{n(\omega)\} - R\{n(\infty)\} - i(I\{n(\omega)\} - I\{n(\infty)\})] \\
 &= \frac{\omega}{C} [n(\omega) - n(\infty)] \equiv \frac{\omega}{C} \Delta n(\omega)
 \end{aligned} \tag{2.3.25}$$

Par conséquent

$$\Delta n(\omega) = R\{\Delta n(\omega)\} - iI\{\Delta n(\omega)\} = C \frac{h(\omega)}{\omega} \tag{2.3.26}$$

Comme  $h(\omega)$  est une fonction analytique, l'équation (2.3.20) montre que  $\Delta n(\omega)$  est une fonction analytique dans le demi plan inférieur [Puj 2003]. Nous pouvons donc appliquer la transformée de Hilbert à  $\Delta n(\omega)$ , ce qui donne

$$R\{\Delta n(\omega)\} = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{I\{\Delta n(\omega')\}}{\omega' - \omega} d\omega' \tag{2.3.27}$$

et

$$I\{\Delta n(\omega)\} = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{R\{\Delta n(\omega')\}}{\omega' - \omega} d\omega' \tag{2.3.28}$$

Puis, en utilisant

$$P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{\omega' - \omega} = 0. \tag{2.3.29}$$

et (2.3.27) nous obtenons

$$R\{n(\omega) - n(\infty)\} = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{I\{n(\omega')\}}{\omega' - \omega} d\omega' \tag{2.3.30}$$

Cette relation est valable tant que  $I\{n(\omega)\}$  est borné. En appliquant cette relation à une fréquence nulle :

$$R\{n(0) - n(\infty)\} = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{I\{n(\omega')\}}{\omega'} d\omega' \tag{2.3.31}$$

En soustrayant (2.3.31) de (2.3.30) nous obtenons

$$R\{n(\omega) - n(0)\} = \frac{\omega}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{I\{n(\omega')\}}{\omega'(\omega' - \omega)} d\omega' \tag{2.3.32}$$

Finalement, en utilisant

$$I\{n(\omega)\} = -I\{n(-\omega)\} \tag{2.3.33}$$

nous obtenons

$$R\{n(\omega) - n(0)\} = R\{n(\omega)\} - 1 = \frac{2\omega^2}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{I\{n(\omega')\}}{\omega'(\omega'^2 - \omega^2)} d\omega' \tag{2.3.34}$$

Futterman a proposé trois expressions pour  $I\{n(\omega)\}$  qui permettent de calculer  $R\{n(\omega)\}$  en utilisant (2.3.34). Une de ces expressions est donnée par

$$I\{n(\omega)\} = \frac{1}{2\pi} (1 - e^{-\omega/\omega_0}), \quad \frac{\omega}{\omega_0} \geq 0 \quad (2.3.35)$$

En injectant cette expression dans la relation (2.3.34) nous trouvons que pour  $\omega > 6\omega_0$  :

$$R\{n(\omega)\} = 1 - \frac{1}{\pi Q_0} \ln \gamma \frac{\omega}{\omega_0} \quad (2.3.36)$$

En utilisant l'expression (2.3.20) nous obtenons

$$c(\omega) = C \left(1 - \frac{1}{\pi Q_0} \ln \gamma \frac{\omega}{\omega_0}\right)^{-1} \quad (2.3.37)$$

Quand  $\frac{\omega}{\omega_0} \gg \gamma$ , on peut faire l'approximation au premier ordre :

$$\ln \gamma \frac{\omega}{\omega_0} = \ln \frac{\omega}{\omega_0} + \ln \gamma \approx \ln \frac{\omega}{\omega_0} \quad (2.3.38)$$

Donc

$$c(\omega) = C \left(1 - \frac{1}{\pi Q_0} \ln \frac{\omega}{\omega_0}\right)^{-1} \quad (2.3.39)$$

ou encore

$$\frac{1}{c(\omega)} = \frac{1}{C} \left(1 - \frac{1}{\pi Q_0} \ln \frac{\omega}{\omega_0}\right) \quad (2.3.40)$$

Dans le cas où l'atténuation s'écrit sous la forme

$$\alpha = \alpha_0 \omega \quad (2.3.41)$$

et en tenant compte de l'expression (2.3.21) nous trouvons

$$\frac{1}{c(\omega)} = \frac{1}{C} - \frac{2}{\pi} \alpha_0 \ln \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right) \quad (2.3.42)$$

Cette expression prendra toute son importance dans la modélisation d'un milieu non dispersif, dans une bande de fréquences limitée autour de  $\omega_0$ , et dans laquelle l'atténuation augmente linéairement avec la fréquence.

### 2.3.5 Relaxation et causalité

Le principe de causalité est applicable à tout phénomène physique. De ce fait la fonction de relaxation ainsi que sa dérivée doivent être causales. Cette hypothèse implique que les parties réelle et imaginaire des  $C_{IJ}(\omega)$  soient reliées par les relations usuellement appelées relations de

Kramers-Kronig.

La fonction de relaxation peut être décomposée en deux fonctions causales :

$$E_{IJ}(t) = \tilde{E}_{IJ}(t) + C_{IJ}^{(\infty)}(t) \quad (2.3.43)$$

où  $\tilde{E}_{IJ}(t)$  est une fonction de  $L^2(R)$ . Par ailleurs il vient :

$$c_{IJ}(t) = \tilde{c}_{IJ}(t) + C_{IJ}^{\infty} \delta(t) \quad (2.3.44)$$

Comme il a été démontré auparavant qu'une fonction  $y(t)$  supposée causale implique que la partie réelle de la transformée de Fourier de  $y$ , notée  $Y'(\omega)$ , est reliée à la partie imaginaire de la transformée de Fourier de  $y$ , notée  $Y''(\omega)$ , par la relation :

$$Y'(\omega) = Hi \{Y''\}(\omega) \iff Y''(\omega) = -Hi \{Y'\}(\omega) \quad (2.3.45)$$

où  $Hi$  est la transformée de Hilbert. Les propriétés d'hermiticité de la transformée de Fourier d'une fonction réelle  $y(t)$  imposent les relations

$$Y'(\omega) = Y'(-\omega) \text{ et } Y''(\omega) = -Y''(-\omega) \quad (2.3.46)$$

Ainsi en appliquant les relations (2.3.45) et (2.3.46) à la fonction réelle causale  $\tilde{c}_{IJ}(t)$ , on obtient les relations de Kramers-Kronig :

$$C'_{IJ}(\omega) - C_{IJ}^{(\infty)} = \frac{2}{\pi} P \int_0^{+\infty} \frac{u C''(u)}{\omega^2 - u^2} du \quad (2.3.47.a)$$

$$C''_{IJ}(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} P \int_0^{+\infty} \frac{C'_{IJ}(u) - C_{IJ}^{(\infty)}}{\omega^2 - u^2} du \quad (2.3.47.b)$$

Dans l'approximation des faibles variations des  $C_{IJ}(\omega)$  en fonction de la fréquence, O'Donnell et al. [Ley 2002] proposent une formulation locale des relations précédentes, issue d'une approximation au premier ordre des  $C'_{IJ}(\omega)$ , sous la forme :

$$C''_{IJ}(\omega) = \frac{\pi}{2} |\omega| \frac{dC'_{IJ}(\omega)}{d\omega} \quad (2.3.48)$$

### 2.3.6 Théorème de Paley-Wiener

Une autre conséquence du principe de causalité est le théorème de Paley-Wiener. Ce dernier permet d'établir la classe d'atténuation compatible avec le principe de causalité [Pal 1934, Pfa 1971].

Soit  $F(\omega)$  la transformée de Fourier d'une onde causale  $f(t)$  et  $|F(\omega)| = A(\omega)$ .

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{|\ln A(\omega)|}{1 + \omega^2} d\omega < \infty \quad (2.3.49)$$

En se référant à l'équation 2.3.1 nous obtenons :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\alpha(\omega)}{1 + \omega^2} d\omega < \infty \quad (2.3.50)$$

Cette condition est satisfaite si :

$$\alpha(\omega) \propto \omega^n; \quad n < 1 \quad (2.3.51)$$

Dans le cas général, la plupart des matériaux présentent une atténuation dont l'exposant est supérieur ou égal à 1 ; c'est le cas des milieux biologiques, poreux et les fluides visqueux. Szabo a démontré que dans le cas d'une dispersion anormale le principe de causalité était respecté pour un exposant  $n \geq 1$  [Sza 1995].

## 2.4 Conclusion

L'étude du principe de causalité nous a permis d'établir des relations entre la vitesse et l'atténuation. Ces relations dépendent de la nature de la dépendance (linéaire) de l'atténuation en fonction de la fréquence. Cette étude a démontré que pour respecter le principe de causalité, la dispersion de vitesse ne peut être omise. Ce qui nous a mené à supposer que les milieux de propagation ne peuvent être considérés comme non dispersifs que dans une bande de fréquences limitée ; cette remarque se justifie expérimentalement car les transducteurs ultrasonores utilisés sont de bande passante limitée.

Comme le phénomène d'atténuation implique l'existence d'un phénomène de relaxation nous sommes intéressés à l'influence du principe de causalité sur le phénomène de relaxation, ce qui nous a permis d'établir des relations entre la partie réelle et la partie imaginaire de la transformée de Fourier de la dérivée de la fonction de relaxation.

L'étude de la causalité nous a permis d'établir le théorème de Paley-Wiener dont la prise en compte est essentielle dans le chapitre suivant.

# Chapitre 3

## Propagation des ondes ultrasonores dans les polymères

### 3.1 Introduction

Dans ce chapitre nous allons essayer d'analyser le phénomène de propagation des ondes ultrasonores dans les milieux polymères à travers une modélisation du phénomène de propagation, similaire à celle qui a été proposée par différents auteurs [Cha 1995, Dia 2003, Lee 1980, Sza 2000]. Cette modélisation prend en compte la loi de dépendance de l'atténuation et de la vitesse en fonction de la fréquence.

Il existe plusieurs formes de dépendance de l'atténuation en fonction de la fréquence : linéaire comme dans les tissus biologiques, quadratique comme dans les fluides visqueux, fractionnaire dans d'autres milieux tels que les milieux poreux ou gélatineux. Différentes approches ont été utilisées par plusieurs auteurs. Leeman a proposé une équation de propagation qui correspond à une atténuation linéaire [Lee 1980]. Un autre modèle proposé par Szabo permet l'étude de la propagation dans les milieux où l'atténuation varie selon une loi quadratique en fonction de la fréquence [Sza 2000]. Le phénomène de diffraction est pris en compte dans les travaux de Sushilov et al. qui ont étudié l'effet de diffraction pour trois formes de dépendance de l'atténuation en fonction de la fréquence (linéaire, quadratique, fractionnelle) [Sus 2003]. Diallo et al. ont utilisé le modèle BISQ ( Biot/Squirt-flow model ) pour l'étude la vitesse de propagation et de l'atténuation dans les milieux poreux [Dia 2003].

Le modèle rhéologique de Kelvin-Voigt s'est montré très efficace dans le cas des fluides visqueux, c'est-à-dire dans les milieux représentant des atténuations obéissant à une loi quadratique [ Dar 1976, Gur 2000, Sza 2000]. Dans le cas des milieux polymères plusieurs modèles ont été utilisés : modèle de Zener [Cha 1995] ou de Maxwell [Dar 1976, Gab 1972, Gur 2000]. Challis et al. se sont basés sur le modèle rhéologique de Zener, dit du solide standard, qui représente convenablement le comportement viscoélastique des solides [Cha 1995].

Une étude expérimentale préalable a montré que les milieux polymères que nous nous proposons d'étudier (plexiglas et Polyamide) présentent une atténuation proportionnelle à la fréquence et que la vitesse de propagation ne dépend pas de la fréquence (absence de dispersion). Pour développer un modèle théorique de la propagation des ondes ultrasonores dans ces milieux, deux hypothèses tout à fait justifiées par les résultats expérimentaux ont alors été énoncées : dépendance linéaire de l'atténuation en fonction de la fréquence, absence de dispersion (vitesse de phase constante).

Leeman a proposé un modèle d'équation de propagation d'onde ultrasonore dans les tissus humains. Ce modèle a été conforté par les résultats expérimentaux [Lee 1980]. L'analogie entre les polymères et les tissus humains est basée sur le fait que tous deux présentent le même comportement dans une gamme de fréquences allant de 1 à 15 MHz. Pour ces raisons, nous utilisons une forme simplifiée du modèle rhéologique de Zener dit du solide standard pour établir l'équation de propagation. Dans le cas des fréquences ultrasonores le modèle de Maxwell représente une bonne approximation du modèle de Zener. L'équation d'onde obtenue est similaire au résultat de Leeman dans lequel le terme de dispersion a été négligé. Cette absence de dispersion a été justifiée a posteriori par l'étude expérimentale de la propagation d'ondes ultrasonores, de fréquences allant de 1 à 15 MHz, dans les polymères tels que le Plexiglas et le Polyamide.

Plusieurs méthodes efficaces ont été utilisées pour la résolution de l'équation de propagation : numériques (méthode des différences finies par exemple) ou analytiques (basées sur la transformée de Fourier et la transformée de Laplace [Guy 1986 ,Lee 1980]). Pour la résolution de l'équation de propagation obtenue à partir du modèle rhéologique de Maxwell, nous avons pour notre part utilisé la transformée de Laplace. Dans ce formalisme la solution de l'équation de propagation est exprimée sous la forme d'une intégrale de convolution, facile à simuler numériquement [Lee 1980].

Les simulations numériques permettent de mettre en évidence l'influence de tous les paramètres liés à la propagation. Différentes procédures ont été proposées par plusieurs auteurs. L'approche de Zhao et al. [Zha 2004] consiste à injecter une onde à l'entrée du milieu de propagation dont l'atténuation et la vitesse de propagation sont données par des relations linéaires en fonction des fréquences conformément aux travaux antérieurs de Ping. H [Pin 2000]. Une deuxième approche proposée par Ping Hee, consiste à simuler la propagation d'ondes ultrasonores large bande par décomposition en plusieurs composantes à bandes assez étroites, puis les effets de l'atténuation et de la dispersion sont appliqués sur chaque composante fréquentielle [Pin 1998].

Notre approche, consiste à appliquer à l'entrée du milieu de propagation, une vibration dont les différents paramètres sont la largeur de bande et la fréquence d'excitation, puis à effectuer une convolution avec la réponse impulsionnelle du milieu de propagation, afin d'obtenir la forme de l'onde après propagation dans le milieu.

Notons que pour la simulation du phénomène de propagation, une démarche simpliste consi-

terait à introduire l'atténuation comme un filtre fréquentiel  $e^{-\alpha(\omega)x}$ , puis à revenir dans le temps par une transformée de Fourier inverse, pour obtenir l'onde après propagation. Malheureusement cette démarche est illicite puisqu'elle ne respecte pas le critère de Paley-Wiener décrit dans le chapitre précédent et qui est nécessaire pour obtenir une fonction causale après inversion [Pal 1934, Pfa 1971] :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\alpha(\omega)}{1 + \omega^2} d\omega < \infty$$

En effet, pour satisfaire ce critère il faudrait un argument exponentiel ayant une puissance inférieure à 1.

La démarche utilisée dans notre cas exprime directement la solution dans le domaine temporel et respecte le principe de causalité ainsi que le critère de Paley-Wiener.

## 3.2 Modélisation

Les modèles rhéologiques permettent de représenter le comportement mécanique d'un matériau viscoélastique sous une forme condensée et imagée, et permettent à ce titre de visualiser plus facilement le comportement du matériau du point de vue phénoménologique.

Le comportement mécanique d'un milieu viscoélastique peut être modélisé par un système mécanique composé d'une succession de ressorts, de masses et d'amortisseurs [Dar 1976, Gab 1972, Gur 2000].

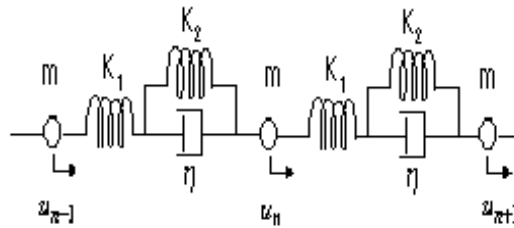


Figure 3.1 : Représentation schématique du modèle de mécanique Maxwell.

Pour établir l'équation de propagation d'une onde élastique dans ce milieu discret, considérons la déformation  $\varepsilon$  de la branche  $n - 1 \longleftrightarrow n$ .

La contrainte  $\sigma$  qui lui est associée est donnée par la relation suivante :

$$\sigma = K_1 \varepsilon_1 = K_2 \varepsilon_2 + \eta \dot{\varepsilon}_2 \quad (3.1.1)$$

et la déformation  $\varepsilon$  est égale à la somme des deux déformations  $\varepsilon_1$  et  $\varepsilon_2$

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 \quad (3.1.2)$$

En éliminant  $\varepsilon_1$  et  $\varepsilon_2$ , nous obtenons :

$$\frac{K_1 + K_2}{K_1} \sigma + \frac{\eta}{K_1} \frac{d\sigma}{dt} = K_2 \varepsilon + \eta \frac{d\varepsilon}{dt} \quad (3.1.3)$$

Posons :

$$K_0 = K_1 \quad (3.1.4)$$

et

$$K_3 = \frac{K_1 K_2}{K_1 + K_2} \quad (3.1.5)$$

Nous obtenons :

$$\sigma + \frac{\eta(K_0 - K_3)}{K_0^2} \frac{d\sigma}{dt} = K_3 \left( \varepsilon + \frac{\eta(K_0 - K_3)}{K_0 K_3} \frac{d\varepsilon}{dt} \right) \quad (3.1.6)$$

Les conditions initiales sont :  $\sigma(0) = \varepsilon(0) = 0$ .

L'utilisation de la transformation de Laplace permet d'obtenir l'équation différentielle satisfaite par le déplacement de particule. Par définition la Transformée de Laplace temporelle  $F(s)$  d'une fonction  $f(t)$ , s'écrit sous la forme suivante :

$$F(s) = \int_0^{+\infty} f(t) e^{-st} dt \quad (3.1.7)$$

La transformée de Laplace de l'équation précédente nous donne :

$$\hat{\sigma} + \frac{\eta(K_0 - K_3)}{K_0^2} \hat{\sigma} s = K_3 \left( \hat{\varepsilon} + \frac{\eta(K_0 - K_3)}{K_0 K_3} \hat{\varepsilon} s \right) \quad (3.1.8)$$

où  $\hat{\sigma}$  et  $\hat{\varepsilon}$  sont respectivement les transformées de Laplace de la contrainte et de la déformation.

Cette équation nous permet de trouver une relation entre la contrainte et la déformation.

$$\hat{\sigma} = \hat{\varepsilon} K_0 \left( \frac{K_0 K_3 + \eta s (K_0 - K_3)}{K_0^2 + \eta s (K_0 - K_3)} \right) \quad (3.1.9)$$

La relation entre la contrainte et la déformation sur la deuxième branche est donnée par la relation suivante :

$$\hat{\sigma}' = \hat{\varepsilon}' K_0 \left( \frac{K_0 K_3 + \eta s (K_0 - K_3)}{K_0^2 + \eta s (K_0 - K_3)} \right) \quad (3.1.10)$$

Dans le cas où les sollicitations sont rapides, ou dans le cas des hautes fréquences, l'influence du terme  $K_3$  est considérée comme négligeable ( $K_3 = 0$ ) et le modèle de Zener peut être remplacé par le modèle de Maxwell (figure 3.2).

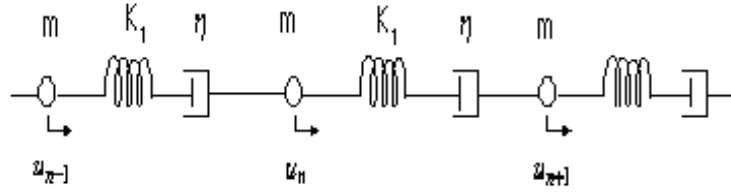


Figure 3.2 : Représentation schématique du modèle de mécanique Maxwell.

Les contraintes  $\sigma$  et  $\sigma'$  agissent sur la particule  $n$  et d'après la relation fondamentale de la dynamique :

$$m \frac{\partial^2 u_n}{\partial t^2} = (\sigma + \sigma') \Sigma \quad (3.1.11)$$

$\Sigma$  est la surface d'une section.

En appliquant la transformée de Laplace sur l'équation précédente et sachant que  $u(0) = 0$ , nous avons :

$$\begin{aligned} m s^2 \hat{u}_n &= (\hat{\sigma} + \hat{\sigma}') \Sigma \\ &= \frac{K_1 \eta s}{K_1 + \eta s} (\hat{\varepsilon} + \hat{\varepsilon}') \Sigma \end{aligned} \quad (3.1.12)$$

où  $\hat{\varepsilon} + \hat{\varepsilon}'$  représentent la transformée de Laplace de la déformation relative totale elle est donnée par :

$$\varepsilon + \varepsilon' = \frac{u_{n+1} + u_{n-1} - 2u_n}{a} \quad (3.1.13)$$

$a$  représente la longueur d'une branche en absence de déformation.

En appliquant la transformée de Laplace sur l'équation précédente nous obtenons :

$$\hat{\varepsilon} + \hat{\varepsilon}' = \frac{\hat{u}_{n+1} + \hat{u}_{n-1} - 2\hat{u}_n}{a} \quad (3.1.14)$$

En injectant dans l'équation 3.1.12 nous trouvons :

$$\begin{aligned} m s^2 \hat{u}_n &= (\hat{\sigma} + \hat{\sigma}') \Sigma \\ &= \frac{K_1 \eta s}{K_1 + \eta s} \left( \frac{\hat{u}_{n+1} + \hat{u}_{n-1} - 2\hat{u}_n}{a} \right) \Sigma \end{aligned} \quad (3.1.15)$$

Si maintenant on désire passer de ce modèle théorique discret à une théorie continue , il suffira de considérer la distance  $a$  comme un infiniment petit en posant  $a = \Delta x$ ,  $\Delta x$  étant un élément différentiel infiniment petit.  $m$  sera alors la masse d'un segment de longueur  $\Delta x$ ,  $\rho$  étant sa masse volumique et  $\Sigma$  la surface d'une section, nous aurons :  $m = \rho \Sigma \Delta x$  et le mouvement en  $x$  peut être décrit par une fonction continue  $u(x, t)$ . En faisant le développement au premier ordre suivant :

$$u_{n+1} = u_n + \frac{\partial u(x + dx)}{\partial x} \quad (3.1.16a)$$

$$u_{n-1} = u_n - \frac{\partial u(x)}{\partial x} \quad (3.1.16b)$$

L'équation 3.1.15 devient :

$$m s u(x, s) = \frac{K_1 \eta}{K_1 + \eta s} \left( \frac{\partial^2 u(x, s)}{\partial x^2} \right) \Sigma \Delta x \quad (3.1.17)$$

Ce qui nous ramène à :

$$\eta m s^2 u(x, s) = K_1 \eta \left( \frac{\partial^2 u(x, s)}{\partial x^2} \right) \Sigma \Delta x - K_1 m s u(x, s) \quad (3.1.18)$$

En appliquant la transformée de Laplace inverse sur l'équation précédente nous trouvons :

$$\eta m \frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial t^2} = K_1 \eta \left( \frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial x^2} \right) \Sigma \Delta x - K_1 m \frac{\partial u(x, t)}{\partial t} \quad (3.1.19)$$

nous obtenons :

$$\frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial x^2} - \frac{\rho}{K_1} \frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial t^2} - \frac{\rho}{\eta} \frac{\partial u(x, t)}{\partial t} = 0 \quad (3.1.20)$$

Cette équation peut se mettre sous la forme suivante :

$$\frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial x^2} - \frac{1}{C^2} \frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial t^2} - \frac{K_1}{C^2 \eta} \frac{\partial u(x, t)}{\partial t} = 0 \quad (3.1.21)$$

où  $C$  représente la vitesse de propagation et est définie par :

$$C = \sqrt{\frac{K_1}{\rho}}$$

### 3.3 Résolution de l'équation d'onde

En généralisant l'expression précédente, on peut considérer que l'équation de propagation des ondes ultrasonores dans ces milieux s'écrit sous la forme :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} - \frac{1}{C^2} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - 2A \frac{\partial u}{\partial t} = 0 \quad (3.2.1)$$

La solution donnée par le déplacement de particules  $u(x, t)$  doit satisfaire les conditions aux frontières suivantes :

- $u(0, t) = \phi(t)$
- $u(x, 0) = \frac{\partial u}{\partial x}(t = 0) = 0$

Ce problème d'équation aux dérivées partielles, peut être résolu en faisant appel à la transformation de Laplace temporelle définie précédemment ( équation 3.1.7 ).

L'utilisation de la transformée de Laplace permet de transformer l'équation (3.2.1) en équation différentielle du second ordre à coefficients constants :

$$\frac{d^2 \Pi}{dx^2} - \frac{s^2}{C^2} \Pi - 2As \Pi = 0 \quad (3.2.2)$$

où  $\Pi(x; s)$  est la transformée de Laplace de  $u(x, t)$ . En recherchant une solution particulière sous la forme  $e^{rx}$ , on obtient l'équation caractéristique qui est une équation du second degré de la forme

$$r^2 - \left(\frac{s^2}{C^2} + 2As\right) = 0 \quad (3.2.3)$$

dont les racines sont :

$$\begin{aligned} r_1 &= -\sqrt{\left(\frac{s^2}{C^2} + 2As\right)} \\ r_2 &= +\sqrt{\left(\frac{s^2}{C^2} + 2As\right)} \end{aligned}$$

La solution  $\Pi(x; s)$  est donc de la forme

$$\Pi(x; s) = \Phi_1(s)e^{r_1x} + \Phi_2(s)e^{r_2x} \quad (3.2.4)$$

Comme le milieu est atténuant, on doit avoir  $\Pi(x; s) = 0$  à l'infini. Donc  $\Phi_2(s) = 0$ . Par conséquent

$$\Pi(x, s) = \Phi_1(s)e^{r_1x}$$

Pour des commodités de notation, posons  $r_1 = -\Omega$  et  $\Phi_1(s) = \Phi(s)$ ; nous obtenons ainsi :

$$\Pi(x; s) = \Phi(s)e^{-(\Omega x)} \quad (3.2.5)$$

avec  $\Omega = \sqrt{\left(\frac{s^2}{C^2} + 2As\right)}$ .

L'étape suivante consiste à calculer la transformée de Laplace inverse afin de déterminer  $u(x, t)$ . En tenant compte du théorème de convolution, on obtient :

$$\mathcal{L}^{-1}[\Pi(x; s)] = \Phi(t) * \mathcal{L}^{-1}[e^{-(\Omega x)}] \quad (3.2.6)$$

où

$$\Omega = +\sqrt{\left(\frac{s^2}{C^2} + 2As\right)}$$

$$h(x, t) = \mathcal{L}^{-1}\left[e^{-x\left[\sqrt{\left(\frac{s^2}{C^2} + 2As\right)}\right]}\right] \quad (3.2.7)$$

Pour le calcul de  $h(x, t)$ , nous remarquons que :

$$\frac{s^2}{C^2} + 2As = \left(\frac{s}{C} + CA\right)^2 - C^2A^2 \quad (3.2.8)$$

posons

$$CA = a \quad (3.2.9)$$

$$\left(\frac{s}{C} + a\right) = u \quad (3.2.10)$$

on obtient alors l'expression :

$$\left(\frac{s}{C} + CA\right)^2 - C^2A^2 = u^2 - a^2 \quad (3.2.11)$$

et

$$s = Cu - C^2A \implies ds = C du \quad (3.2.12)$$

En effectuant ces changements de variables l'expression (3.2.7) devient

$$h(x, t) = \frac{1}{2\pi i} \int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty} e^{-x\sqrt{u^2-a^2}} e^{[Cu - C^2A]t} C du \quad (3.2.13)$$

$$h(x, t) = C e^{-C^2At} \frac{1}{2\pi i} \int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty} e^{-x\sqrt{u^2-a^2}} e^{Cu t} du \quad (3.2.14)$$

posons :  $\tau = Ct$ , d'où :

$$h(x, \tau) = C e^{-CA\tau} \frac{1}{2\pi i} \int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty} e^{-x\sqrt{u^2-a^2}} e^{u\tau} du \quad (3.2.15)$$

ou bien

$$h(x, \tau) = C e^{-CA\tau} \mathcal{L}^{-1} \left[ e^{-x\sqrt{s^2-a^2}} \right] \quad (3.2.16)$$

Soit  $g(x, \tau)$  l'intégrale de  $h(x, \tau)$ , on écrit alors

$$g(x, \tau) = \int_0^x h(\Psi, \tau) d\Psi \quad (3.2.17)$$

En remplaçant  $h(x, \tau)$  par son expression en (3.2.15) dans (3.2.17), on obtient

$$g(x, \tau) = \int_0^x C e^{-bA\tau} \frac{1}{2\pi i} \int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty} e^{-\Psi\sqrt{u^2-a^2}} e^{u\tau} du d\Psi \quad (3.2.18)$$

En intervertissant l'ordre des intégrales, cette expression devient

$$g(x, \tau) = C e^{-CA\tau} \frac{1}{2\pi i} \int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty} \left[ \int_0^x e^{-\Psi\sqrt{u^2-a^2}} d\Psi \right] e^{u\tau} du \quad (3.2.19)$$

Le calcul du terme  $\int_0^x e^{-\eta\sqrt{u^2-a^2}} d\eta$  donne :

$$\int_0^x e^{-\Psi\sqrt{u^2-a^2}} d\Psi = \left[ \frac{e^{-\Psi\sqrt{u^2-a^2}}}{\sqrt{u^2-a^2}} \right]_0^x = \frac{1}{\sqrt{u^2-a^2}} - \frac{e^{-x\sqrt{u^2-a^2}}}{\sqrt{u^2-a^2}} \quad (3.2.20)$$

En remplaçant (3.2.20) dans l'expression de  $g(x, \tau)$  et en utilisant la propriété de linéarité de la transformée de Laplace, on aboutit à

$$g(x, \tau) = C e^{-CA\tau} \mathcal{L}^{-1} \left[ \frac{1}{\sqrt{u^2 - a^2}} \right] - C e^{-CA\tau} \mathcal{L}^{-1} \left[ \frac{e^{-x\sqrt{u^2 - a^2}}}{\sqrt{u^2 - a^2}} \right] \quad (3.2.21)$$

Comme le premier terme est indépendant de  $x$ , sa dérivée par rapport à cette variable est nulle.

Pour calculer le second terme, il nous faut déterminer

$$\mathcal{L}^{-1} \left[ \frac{e^{-x\sqrt{u^2 - a^2}}}{\sqrt{u^2 - a^2}} \right] = \frac{1}{2\pi i} \int_0^\infty \frac{e^{-x\sqrt{u^2 - a^2}}}{\sqrt{u^2 - a^2}} e^{u\tau} du \quad (3.2.22)$$

Cette intégrale est évaluée dans le plan complexe. L'intégrande possède 2 points de branchement  $u = \pm a$ .

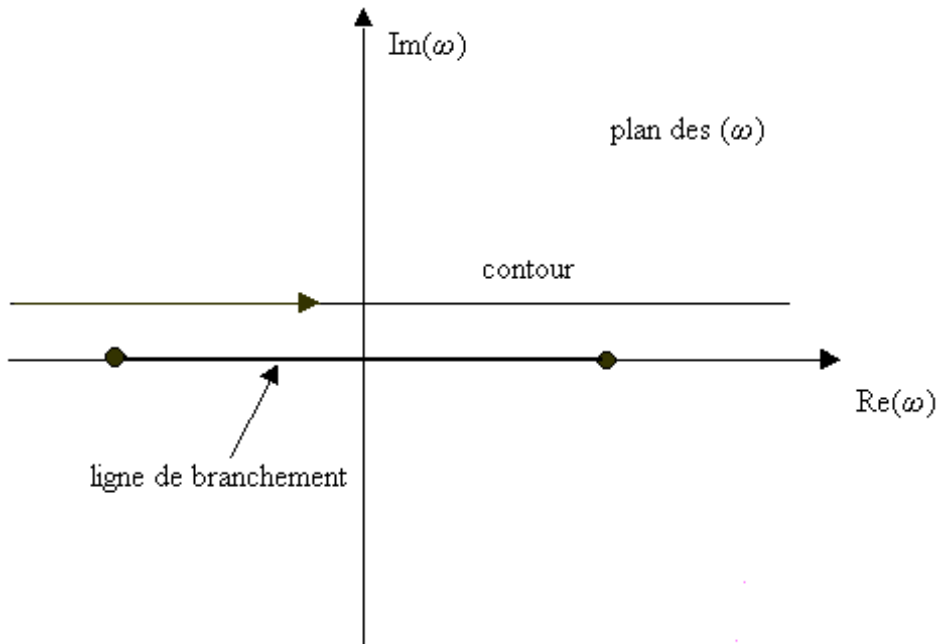


Figure 3.3 : Représentation schématique du contour d'intégration.

Remarquons d'abord que cette fonction est nulle pour  $\tau > x$ .

Posons

$$u = a \cosh(y) \quad (3.2.23)$$

et

$$\tau = \left| \sqrt{\tau^2 - x^2} \right| \cosh(\theta) \quad (3.2.24)$$

L'expression (3.2.22) devient :

$$\frac{1}{2\pi i} \int_{0+\frac{3}{2}i\pi}^{\infty-\frac{1}{2}i\pi} \exp \left[ -i(ia \left| \sqrt{\tau^2 - x^2} \right|) \cosh(y - \theta) \right] dx \quad (3.2.25)$$

Finalement, posons  $y - \theta = i\xi$ , alors

$$\frac{1}{2\pi} \int_{0+\frac{3}{2}\pi}^{-\frac{1}{2}\pi-i\infty} \exp \left[ -i(ia \left| \sqrt{\tau^2 - x^2} \right|) \cos \xi \right] d\xi = J_0 \left[ ia\sqrt{\tau^2 - x^2} \right] H(\tau - x) \quad (3.2.26)$$

où  $J_0(\cdot)$  est la fonction de Bessel d'ordre 0, et  $H(\cdot)$  la fonction échelon d'Heaviside.

En injectant (3.2.26) dans (3.2.21) on trouve :

$$g(x, \tau) = Ce^{-CA\tau} \mathcal{L}^{-1} \left[ \frac{1}{\sqrt{u^2 - a^2}} \right] - Ce^{-CA\tau} J_0 \left[ ia\sqrt{\tau^2 - x^2} \right] H(\tau - x) \quad (3.2.27)$$

Comme

$$h(x, \tau) = \frac{\partial g(x, \tau)}{\partial x} \quad (3.2.28)$$

Alors

$$h(x, \tau) = Ce^{-CA\tau} J_0 \left[ ia\sqrt{\tau^2 - x^2} \right] \delta(\tau - x) - Ce^{-CA\tau} \left( \frac{\partial J_0 \left[ ia\sqrt{\tau^2 - x^2} \right]}{\partial x} \right) H(\tau - x) \quad (3.2.29)$$

En utilisant la propriété d'échantillonnage liée à la fonction impulsion de Dirac et exprimée par :

$$\delta(t - t_0)F(t) = \delta(t - t_0)F(t_0) \quad (3.2.30)$$

et le fait que la fonction de Bessel soit paire, alors

$$h(x, \tau) = Ce^{-CAz} J_0(0)\delta(\tau - x) - Ce^{-CA\tau} \frac{\partial J_0 \left[ -ia\sqrt{\tau^2 - x^2} \right]}{\partial x} H(\tau - x) \quad (3.2.31)$$

Comme

$$J_0(0) = 1 \quad (3.2.32)$$

et

$$\frac{\partial J_0 [-ia\sqrt{\tau^2 - x^2}]}{\partial x} = ia x \frac{J_1 [-ia\sqrt{\tau^2 - x^2}]}{\sqrt{\tau^2 - x^2}} \quad (3.2.33)$$

$$h(x, \tau) = C e^{-CAx} \delta(\tau - x) - iaCx e^{-CA\tau} \left( \frac{J_1 [-ia\sqrt{\tau^2 - x^2}]}{\sqrt{\tau^2 - x^2}} \right) H(\tau - x)$$

Un autre propriété utile des fonctions de Bessel est :

$$J_1(ix) = iI_1(x) \quad (3.2.34)$$

En utilisant la propriété de similitude de la fonction impulsion de Dirac, exprimée par :

$$\delta(\tau - x) = \delta(Ct - x) = \frac{1}{C} \delta\left(t - \frac{x}{C}\right) \quad (3.2.35)$$

On trouve

$$h(x, t) = e^{-ACx} \delta\left(t - \frac{x}{C}\right) + aCxe^{-AC^2t} \left( \frac{I_1 \left[ a\sqrt{(Ct)^2 - x^2} \right]}{\sqrt{(Ct)^2 - x^2}} \right) H(Ct - x) \quad (3.2.36)$$

$$h(x, t) = e^{-ACx} \delta\left(t - \frac{x}{C}\right) + ACxe^{-AC^2t} \left\{ \frac{I_1 \left[ AC^2 \sqrt{t^2 - \frac{x^2}{C^2}} \right]}{\sqrt{t^2 - \frac{x^2}{C^2}}} \right\} H\left(t - \frac{x}{C}\right) \quad (3.2.37)$$

$h(x, t)$  représente la réponse impulsionnelle du milieu de propagation.

La réponse impulsionnelle correspond au déplacement obtenu en un point d'abscisse  $x$  pour un déplacement parfaitement impulsif en  $x = 0$  ( $u(0, t) = \delta(t)$ ).

La réponse impulsionnelle respecte le principe de causalité en raison des propriétés de la fonction échelon d'Heaviside et de la fonction impulsion de Dirac.

Dans le cas d'un milieu atténuant, l'impulsion de Dirac exprimant le retard dû à la propa-

gation est suivie par "une trainée" en  $\frac{I_1 \left[ AC^2 \sqrt{t^2 - \frac{x^2}{C^2}} \right]}{\sqrt{t^2 - \frac{x^2}{C^2}}}$ .

Cette trainée correspond au fait que les ondes de fréquences élevées sont déformées dans un milieu présentant une atténuation linéaire en fonction de la fréquence [Guy 1986].

On remarque que pour une atténuation nulle ( $A = 0$ ), nous obtenons la solution d'une équation de propagation d'onde dans un milieu non atténuant.

### 3.4 Simulation numérique

Dans ce paragraphe quelques simulations numériques permettent d'expliciter le phénomène de propagation dans des milieux où l'atténuation est proportionnelle à la fréquence.

La démarche utilisée consiste à injecter à l'entrée du milieu de propagation une vibration sinusoïdale dont l'amplitude est modulée par une gaussienne

$$u(t) = \frac{\exp\{-(t - t_0)^2/4B\}}{\sqrt{4\pi B}} \sin(2\pi f_0 t) \quad (3.3.1)$$

où  $B$  est la largeur de bande à 50% de l'amplitude c'est-à-dire à -6 dB, autour de la fréquence nominale du transducteur  $f_0$  qui est de l'ordre de quelques mégahertz. Le déplacement obtenu à la sortie est calculé en faisant la convolution de  $u(0, t)$  et de la réponse impulsionnelle du filtre de propagation.

Les différentes fonctions intervenant dans la procédure du calcul numérique sont représentées par la figure 3.4

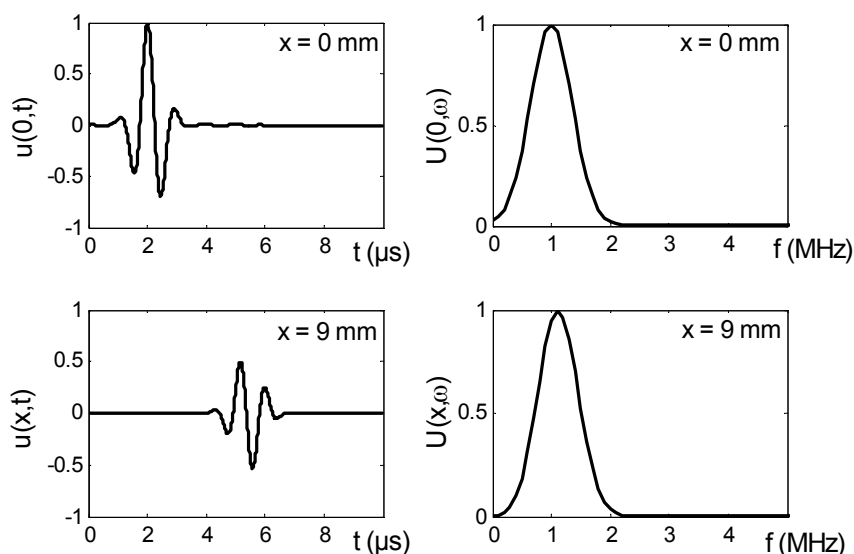


Figure 3.4 : Représentation graphique des différentes fonctions ( onde d'entrée d'amplitude normalisée, de fréquence  $f = 1\text{MHz}$  et onde de sortie ) ainsi que les spectres correspondants, pour un paramètre d'atténuation  $A = 0.1 \mu\text{s}/\text{mm}^2$  et une distance de propagation  $x = 9\text{mm}$

Nous remarquons que le phénomène de propagation se traduit par un certain retard de l'onde en sortie à celle injectée à l'entrée.

Nous remarquons aussi la présence de phénomène d'atténuation qui se manifeste par une diminution de l'amplitude.

### 3.4.1 Influence de la distance de propagation

Les figures 3.5 et 3.6 montrent l'évolution de l'onde et de son spectre en fonction de la distance de propagation pour une fréquence de  $f = 1 \text{ MHz}$  et un paramètre d'atténuation  $A = 0.1 \mu\text{s}/\text{mm}^2$ .

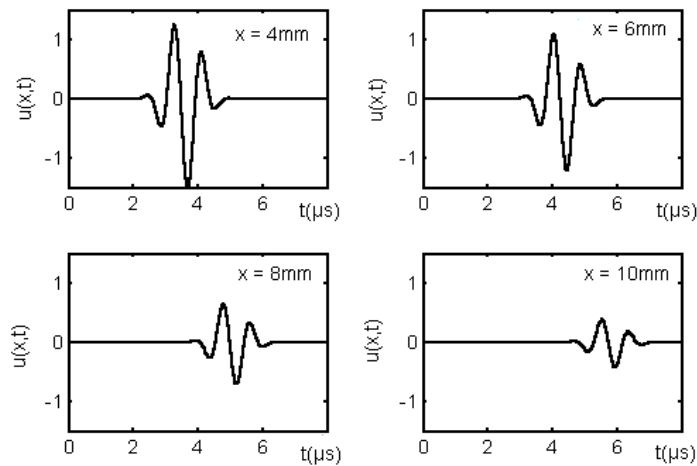


Figure 3.5 : Représentation graphique de l'évolution des amplitudes en fonction de la distance de propagation pour une fréquence de  $f = 1 \text{ MHz}$  et un paramètre d'atténuation  $A = 0.1 \mu\text{s}/\text{mm}^2$ .

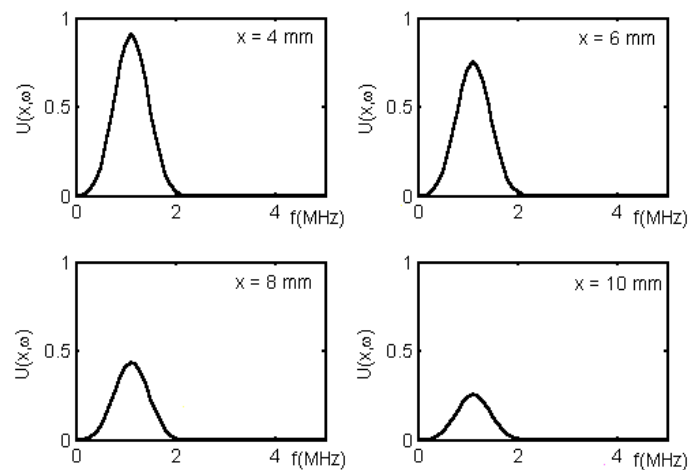


Figure 3.6 : Représentation de l'évolution du spectres en fonction de la distance de propagation, pour une fréquence  $f = 1 \text{ MHz}$  et un paramètre d'atténuation  $A = 0.1 \mu\text{s}/\text{mm}^2$

Nous remarquons une diminution d'amplitude dans le domaine temporel et fréquentiel. En raison du phénomène d'atténuation, cette diminution d'amplitude devient plus importante

lorsque la distance de propagation augmente. Nous remarquons aussi que les instants d'arrivée des signaux temporels augmentent en fonction de la distance de propagation.

Notons, à partir d'une certaine distance, l'apparition d'une composante basse fréquence qui devient relativement importante. Ce phénomène appelé "grondement" par Leeman, a été signalé par différents auteurs ; c'est une caractéristique typique des milieux présentant une atténuation proportionnelle à la fréquence [Lee 1980, Guy 1986]. Ce grondement qui se propage à une vitesse  $C$  augmente au fur et à mesure que la distance de propagation devient importante. L'influence de ce grondement sur la réponse impulsionnelle est illustré dans la figure 3.7. Ce grondement déforme l'onde ainsi que son spectre.

Son amplitude importante dans ces simulations ne représente toutefois pas parfaitement la réalité. Ceci peut être expliqué par la contribution prépondérante de la fonction de Bessel modifiée d'ordre 1 qui apparaît dans le second terme de la réponse impulsionnelle, en comparaison avec le premier terme qui contient l'impulsion de Dirac. Afin de résoudre ce problème de divergence numérique, nous avons pris la précaution de réaliser uniquement des simulations pour de faibles distances de propagation et d'atténuation  $A$ . Enfin, l'utilisation d'une fenêtre de Hanning a permis dans certains cas de limiter la contribution anormalement élevée de ce "grondement".

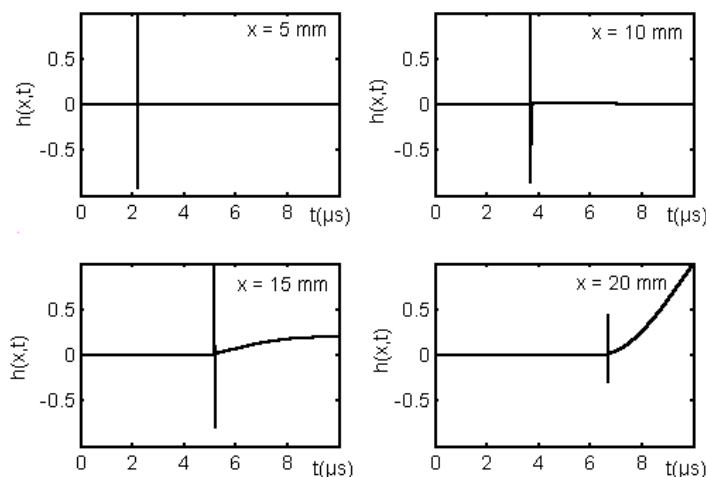


Figure 3.7 : Représentation graphique de l'évolution de la réponse impulsionnelle  $h(x, t)$  en fonction de la distance de propagation  $x$  pour un paramètre d'atténuation  $A = 0.4 (\mu\text{s}/\text{mm}^2)$

Dans les figure 3.8 et 3.9, nous avons représenté l'influence de la distance de propagation sur la fréquence centrale et sur la bande passante de l'onde. Nous remarquons que ces deux paramètres sont constants ; donc il n'y a pas de déformation et le coefficient de qualité du milieu de propagation est constant.

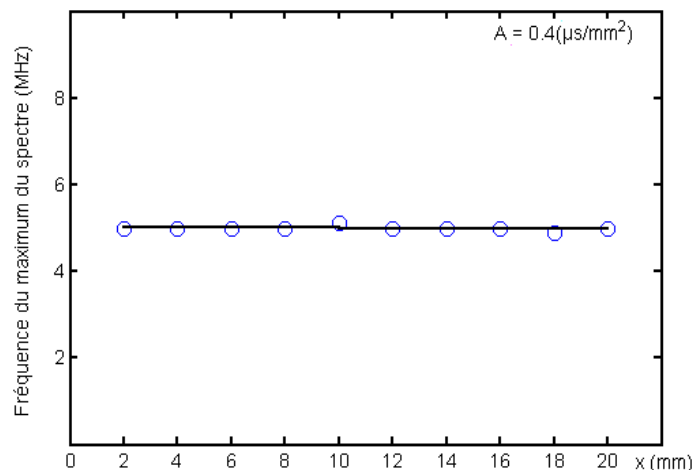


Figure 3.8 : Représentation graphique de l'influence de la distance de propagation  $x$  en mm sur la fréquence du maximum du spectre pour un paramètre d'atténuation  $A = 0.4 \mu\text{s}/\text{mm}^2$ , et une fréquence de 5 MHz.

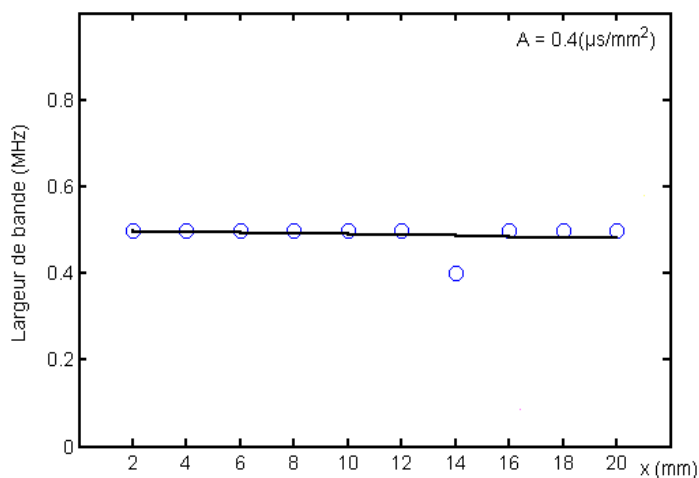


Figure 3.9 : Illustration graphique de l'influence de la distance de propagation  $x$  en mm sur la largeur de bande pour un paramètre d'atténuation  $A = 0.4 (\mu\text{s}/\text{mm}^2)$ , et une fréquence de 5 MHz.

### 3.4.2 Influence de la fréquence

Les figure 3.10 et 3.11 représentent l'évolution de l'impulsion ultrasonore ainsi que de son spectre en fonction de la fréquence nominale (ou centrale) du signal d'excitation et pour une distance de propagation constante.

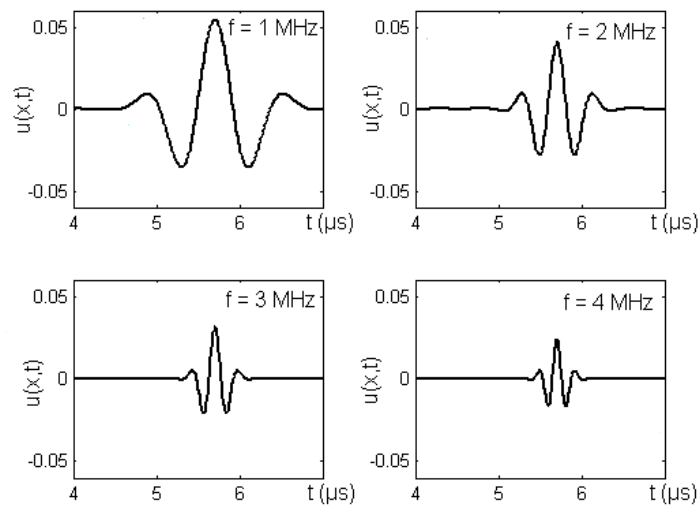


Figure 3.10 : Représentation graphique de l'évolution de l'onde en fonction de la fréquence centrale et pour une distance de propagation  $x = 10$  mm et un paramètre d'atténuation  $A = 0.01 \mu\text{s}/\text{mm}^2$ .

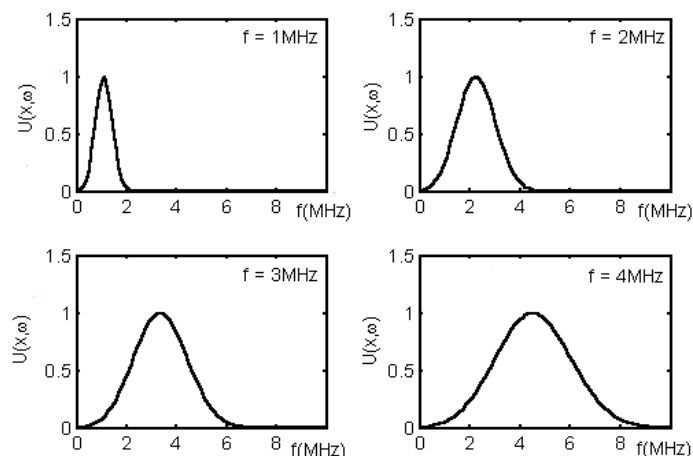


Figure 3.11 : Représentation graphique de l'évolution du spectre en fonction de la fréquence centrale pour une distance de propagation  $x = 10$  mm, et un paramètre d'atténuation  $A = 0.01 \mu\text{s}/\text{mm}^2$ .

Nous remarquons que les spectres atteignent un maximum pour la fréquence d'excitation, et nous constatons aussi une diminution d'amplitude ainsi qu'une compression dans le domaine temporel lorsque la fréquence augmente. Cela est tout à fait justifié car l'atténuation est proportionnelle à la fréquence et qu'une augmentation de la fréquence implique une compression dans le domaine temporel. Cette compression se traduit par un étalement dans le domaine fréquentiel.

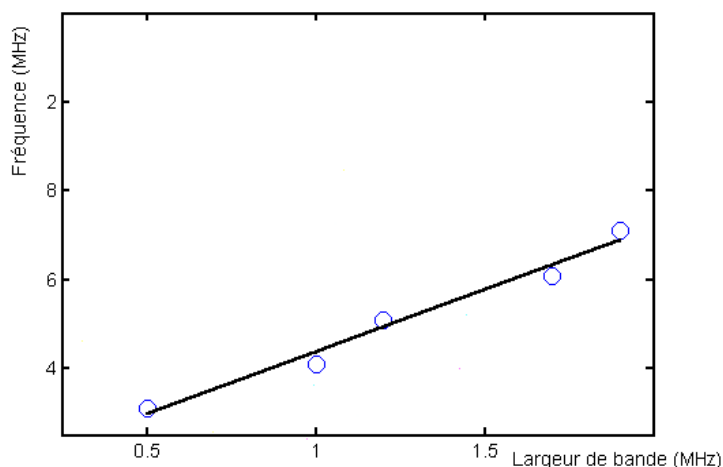


Figure 3.12 : Représentation graphique de l'évolution de la fréquence du maximum du spectre en fonction de la largeur de bande pour une distance de propagation  $x = 10$  mm et un paramètre d'atténuation  $A = 0.01 \mu\text{s}/\text{mm}^2$ .

L'étude de la variation de la fréquence maximale en fonction de la bande passante est illustrée dans la figure 3.12. Cette étude nous a permis de déterminer le coefficient de qualité du filtre propagatif. Nous vérifions aussi que ce coefficient est constant ( $Q = 1.1$ ) conformément aux prédictions du modèle théorique, caractéristiques d'un milieu non dispersif où l'atténuation varie linéairement en fonction de la fréquence.

L'étude de l'influence de la fréquence sur le phénomène de propagation nous a permis de déduire l'absence du phénomène de dispersion et une dépendance linéaire de l'atténuation en fonction de la fréquence.

### 3.4.3 Influence du paramètre d'atténuation $A$

Les figures 3.13 et 3.14 représentent l'évolution des trains d'onde ainsi que de leurs spectres en fonction du paramètre d'atténuation pour des fréquences d'excitation et des distances de propagation constantes.

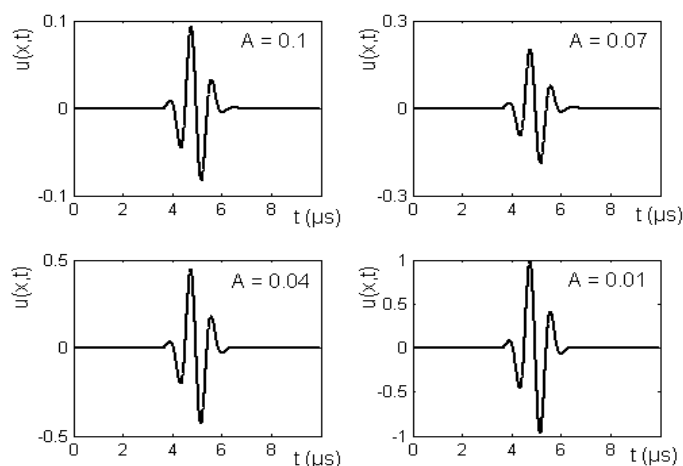


Figure 3.13 : Représentation graphique de l'évolution du signal en fonction du paramètre d'atténuation  $A$  en  $\mu\text{s}/\text{mm}^2$ , sachant que la distance de propagation  $x = 10$  mm, et que la fréquence d'excitation  $f = 1$  MHz

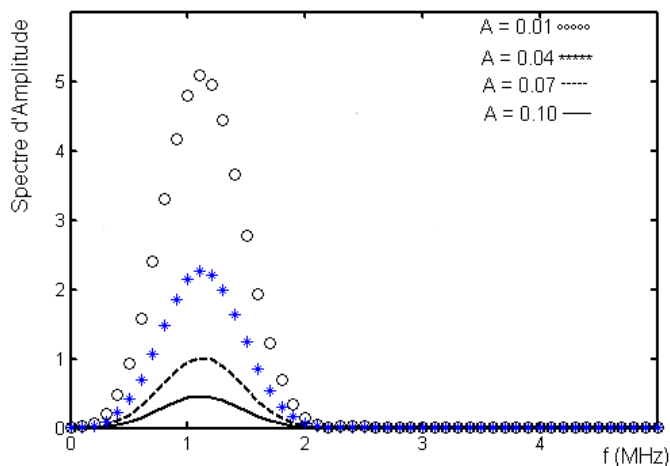


Figure 3.14 : Représentation graphique de l'évolution du spectre en fonction du paramètre d'atténuation  $A$  en  $\mu\text{s}/\text{mm}^2$ , sachant que la distance de propagation  $x = 10$  mm et que la fréquence d'excitation  $f = 1$  MHz

Les figures 3.13 et 3.14 montrent que les amplitudes diminuent lorsque le paramètre d'atténuation  $A$  augmente et que la forme des trains d'onde sont invariables. Nous remarquons aussi qu'il n'y a pas d'étalement dans le domaine fréquentiel et que les maxima d'amplitude spectrale sont obtenus pour la fréquence d'excitation. Donc pour ces valeurs d'atténuation  $A$  nous ne remarquons ni phénomène de dispersion ni phénomène de filtrage.

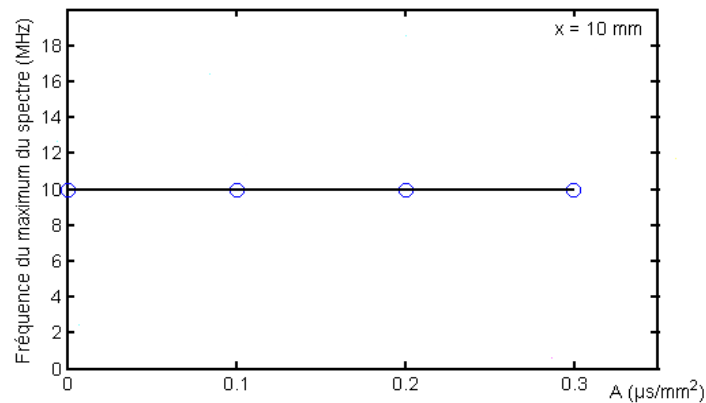


Figure 3.15 : Représentation graphique de l'évolution de la fréquence du maximum du spectre en (MHz) en fonction du paramètre d'atténuation  $A$  en ( $\mu\text{s}/\text{mm}^2$ ) pour une distance de propagation  $x = 10$  mm, et une fréquence  $f = 10$  MHz

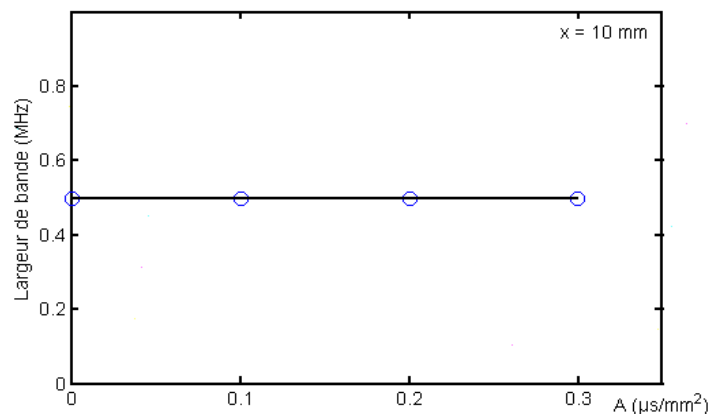


Figure 3.16 : Représentation graphique de l'évolution de la largeur de bande en (MHz) en fonction du paramètre d'atténuation  $A$  en ( $\mu\text{s}/\text{mm}^2$ ) pour une distance de propagation  $x = 10$  mm, et une fréquence  $f = 10$  MHz

Les figures 3.15 et 3.16 représentent l'évolution de la fréquence du maximum spectral et de sa largeur de bande en fonction du paramètre d'atténuation  $A$ . Ces dernières montrent qu'il n'y

a pas d'influence dans une gamme allant de 0 à  $0.3 \mu\text{s}/\text{mm}^2$  et que les fréquences sont celles de l'excitation.

La figure 3.17 représente l'évolution de la fréquence du maximum du spectre pour un paramètre d'atténuation allant de  $0.50$  à  $0.66 \mu\text{s}/\text{mm}^2$ . Cette figure montre une légère variation par rapport à la fréquence d'excitation, ceci peut être considéré comme le résultat de l'influence du grondement basse fréquence qui déforme le spectre. Donc le phénomène de "grondement" devient plus important pour les valeurs élevées de paramètre d'atténuation l'est aussi. Cela est dû au fait que les trains d'onde ainsi que les spectres correspondant se déforment.

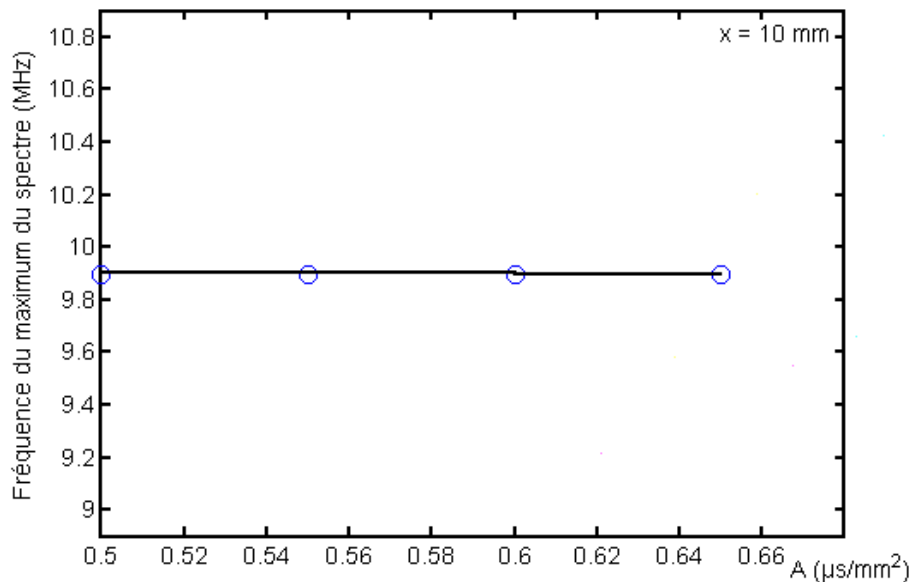


Figure 3.17 : Représentation graphique de l'évolution de la largeur de bande en (MHz) en fonction du paramètre d'atténuation  $A$  en ( $\mu\text{s}/\text{mm}^2$ ) pour une distance de propagation  $x = 10$  mm, et une fréquence  $f = 10$  MHz

Nous remarquons que l'évolution de l'atténuation en fonction de la fréquence est linéaire dans une gamme de fréquences avoisinant la fréquence d'excitation.

Ceci est tout à fait représentatif d'un milieu non dispersif et donc justifie les hypothèses émises au début du chapitre 3 ( atténuation proportionnelle à la fréquence et milieu non dispersif ).

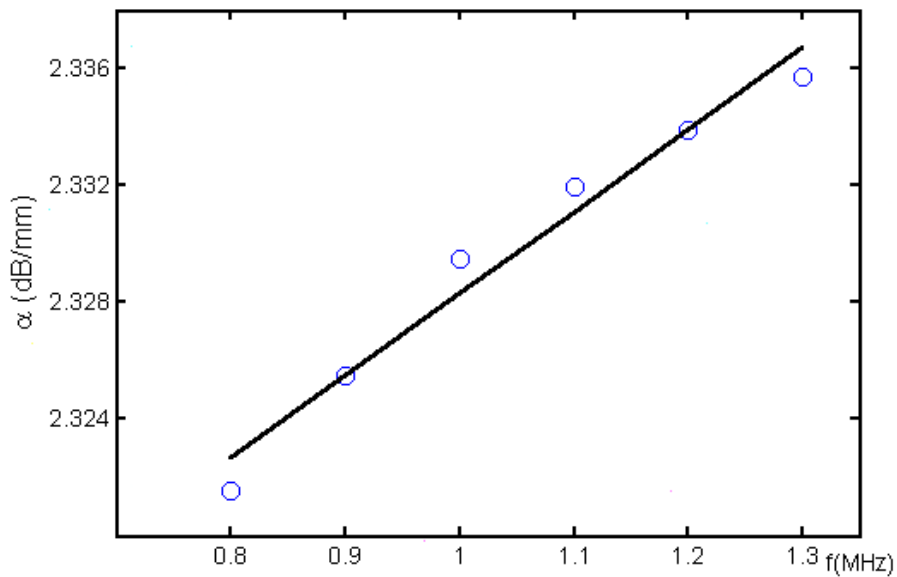


Figure 3.18 : Représentation graphique de l'évolution de l'atténuation en fonction de la fréquence pour une fréquence nominale  $f = 1$  MHz et un paramètre d'atténuation  $A = 0.1$  ( $\mu\text{s}/\text{mm}^2$ ).

Les figures 3.19 et 3.20 représentent respectivement l'évolution de la phase et de la vitesse de phase en fonction de la fréquence. La détermination de ces deux paramètres a été obtenue à l'aide de la fonction d'intercorrélation [Ley 2002]. Nous constatons que la phase varie linéairement et que la vitesse de phase est constante, ce qui confirme le fait que les milieux étudiés peuvent être considérés comme non dispersifs dans la gamme de fréquence du MHz.

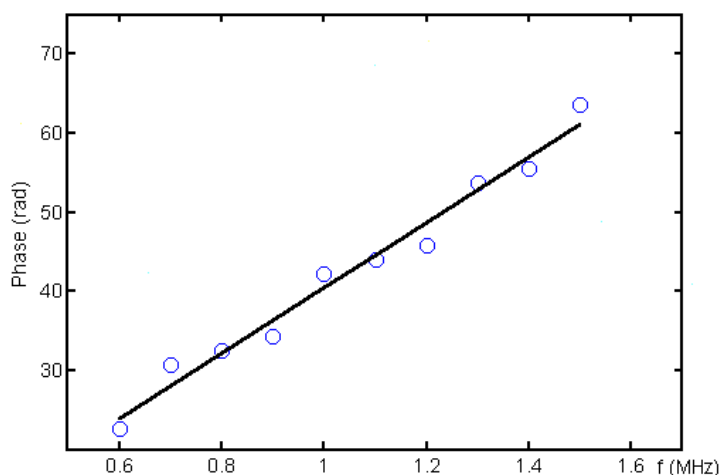


Figure 3.19 : Représentation graphique de l'évolution de la phase en fonction des fréquences pour une fréquence nominale  $f = 1$  MHz, et un paramètre d'atténuation  $A = 0.1$  ( $\mu\text{s}/\text{mm}^2$ ).

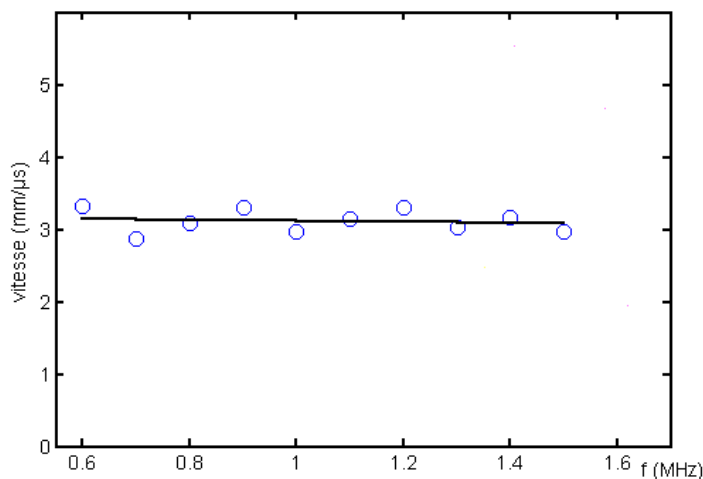


Figure 3.20 : Représentation graphique de l'évolution de l'atténuation en fonction des fréquences pour une fréquence nominale  $f = 1$  MHz, et un paramètre d'atténuation  $A = 0.1$  ( $\mu\text{s}/\text{mm}^2$ ).

## 3.5 Conclusion

Les différentes hypothèses émises dans ce chapitre ont permis l'élaboration d'un modèle et le calcul de la réponse impulsionnelle du milieu de propagation. Cette réponse est la somme de deux fonctions causales dont l'une contient une fonction de Bessel modifiée d'ordre 1, qui apparaît sous la forme d'un grondement basse fréquence. La conséquence de ce grondement est une distorsion des formes d'ondes et des spectres correspondant.

Pour surmonter le problème lié à la programmation pour le calcul numérique de cette réponse impulsionnelle, des précautions ont été prises (faibles distances de propagation, utilisation du filtre de Hanning et faibles valeurs de  $A$ ).

Dans cette simulation nous avons mis en évidence les phénomènes de propagation ainsi que l'influence de différents paramètres tels que la distance de propagation, le paramètre d'atténuation, et la fréquence.

Les résultats de ces simulations nous ont permis de justifier le choix du modèle rhéologique et de conforter les hypothèses de départ qui sont l'atténuation linéaire en fonction de la fréquence et le milieu non dispersif. Les limites de ce modèle sont liés essentiellement à l'apparition d'un bruit basse fréquence.

# Chapitre 4

## Etude expérimentale

### 4.1 Introduction

Pour la détermination des caractéristiques mécaniques des polymères, plusieurs techniques sont utilisées : les essais de traction, les essais de flexion, et les techniques ultrasonores.

Les ultrasons constituent un puissant moyen de caractérisation, ils ont l'avantage d'être non destructifs et de mise en oeuvre relativement aisée. Le principe des méthodes de caractérisation ultrasonore consiste à générer des ondes ultrasonores dans le milieu à étudier et à détecter les signaux réfléchis ou diffusés. Les méthodes impulsionnelles offrent l'avantage d'être rapides, souples et efficaces, car, contrairement aux méthodes harmoniques, une seule mesure permet d'exploiter une large gamme de fréquences.

Les techniques utilisées sont la transmission et la réflexion. La technique par transmission utilise deux transducteurs placés sur deux faces parallèles du matériau à étudier tandis que la méthode par réflexion n'utilise qu'un seul transducteur qui joue le rôle d'un émetteur -récepteur [Kum 1996, Lee 1990, Pet 2003, Pin 1999, Pin 2000, Sim 2004].

La méthode par réflexion a été choisie car elle offre les avantages suivants :

- L'utilisation d'une seule face de l'échantillon.
- Il n'y a pas de problème d'alignement pouvant entraîner une difficulté particulière d'alignement des transducteurs.
- Elle est de mise en oeuvre plus facile.

Cette méthode permet la détermination des caractéristiques de propagation des ondes de volume ( vitesse de phase et atténuation ) liées aux propriétés mécaniques du milieu. La mesure de la vitesses de phase et de l'atténuation permet de déduire les propriétés mécaniques du milieu de propagation telle que le module de Young, le coefficient de Poisson, ainsi que le coefficient viscoélastique.

Deux méthodes de mesures sont généralement utilisées : les méthodes dites par contact, dans lesquelles l'onde est générée et réceptionnée par un transducteur mis au contact de l'échantillon

à travers une fine couche de couplant ; la seconde méthode dite par immersion dans laquelle un milieu fluide ( souvent de l'eau ) d'épaisseur importante est utilisé comme couplant [Kum 1996, Lee 1990, Pet 2003, Pin 1998, Pin 1999, Pin 2000, Sim 2004]. Dans notre étude, les mesures ont été faites par contact, étant donné la facilité de mise en œuvre mais également en raison de la non disponibilité d'un équipement de contrôle par immersion au sein du laboratoire.

La chaîne ultrasonore se compose d'un émetteur- récepteur à ultrasons dans lequel la partie émission est constituée d'un générateur électrique qui délivre des impulsions électriques de courte durée et de grande amplitude. Un câble coaxial relie ce générateur à un transducteur ultrasonore où le signal électrique se transforme en une déformation mécanique par effet piézo-électrique. Ce transducteur est mis au contact du milieu à caractériser à travers une couche de couplant (glycérine).

Les échantillons étudiés sont constitués de disques de Plexiglas et de Polyamide, de différentes épaisseurs. Les signaux résultant des réflexions multiples à l'intérieur des échantillons sont traités par la partie récepteur de l'appareil à ultrasons ; ils sont ensuite échantillonnés et visualisés sur un oscilloscope numérique contrôlé par un micro ordinateur à travers un bus GPIB. Des programmes développés sous MATLAB, permettent par la suite la détermination des atténuations et des vitesses à l'aide de techniques telles que la division des spectres et la fonction d'intercorrélacion [ Ley 2002, Pet 2003]. La méthode par division des spectres offre l'avantage de donner des mesures dans une gamme de fréquences. La méthode d'intercorrélacion est très efficace dans les milieux non dispersifs présentant un seul mode de propagation. Les corrections nécessaires ont été prises pour tenir compte des effets de diffraction et de réflexion-transmission [Kum 1996, Odo 1983, Pap 1959].

Enfin, pour valider le modèle théorique, une simulation numérique des signaux expérimentaux a été réalisée.

## 4.2 Chaîne de mesure ultrasonore

### 4.2.1 Emetteur - Récepteur

L'émetteur récepteur à ultrasons est un appareil qui permet non seulement l'excitation électrique du transducteur émetteur, mais aussi le traitement des signaux captés par le transducteur récepteur. Il se compose de deux parties :

- Emetteur
- Récepteur

#### **Emetteur**

La partie émetteur se compose essentiellement d'un générateur d'impulsions électriques. Ce dernier est constitué d'un circuit de commutation électrique qui commande la charge et

la décharge d'un condensateur. La rapidité de commutation est obtenue grâce à une série de transistors fonctionnant en avalanche et déclenchés par des impulsions délivrées par un circuit de commutation piloté par une horloge.

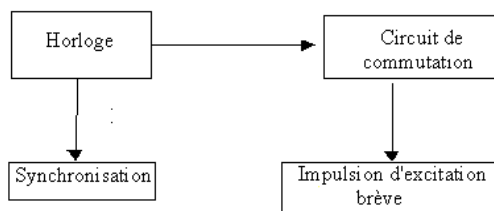


Figure 4.1 : Schéma synoptique d'un émetteur d'impulsions électriques

## Récepteur

La seconde partie qui permet la mise en forme des signaux fournis par le transducteur récepteur se divise en cinq étages :

- Ecrêteur : Sa fonction est d'assurer la limitation d'amplitude des signaux reçus. Les impulsions électriques correspondant aux ondes ultrasonores sont faibles, il faut les amplifier afin de les exploiter. Cependant le signal reçu est partiellement constitué par l'excitation électrique qui est de très grande amplitude et qui risque donc d'endommager la chaîne d'amplification, si son amplitude n'est pas limitée ("écrêtée").
- Atténuateur : L'amplitude des signaux à analyser peut varier d'une fraction à quelques centaines de millivolts. Dans ce dernier cas l'utilisation d'un atténuateur est plus que nécessaire afin de diminuer l'amplitude d'un signal qui, dans le cas d'amplitudes trop élevées, pourrait provoquer la saturation de l'amplificateur.
- Amplificateur à gain fixe : Il tient une place très importante dans l'appareil car il permet l'exploitation des impulsions détectées par le capteur.
- Amplificateur de courant : L'amplificateur à gain fixe est caractérisé par une résistance d'entrée de grande valeur et par une faible résistance de sortie, d'où la nécessité de faire appel à un étage adaptateur (Buffer).
- Filtre : Il permet d'éliminer les oscillations basses fréquences qui subsisteraient après l'excitation du transducteur. Ces composantes basses fréquences sont souvent le résultat de vibrations radiales du transducteur ultrasonore. De plus, lorsque le signal traverse l'étage amplificateur, il peut être accompagné d'un bruit haute fréquence, d'où la nécessité de faire appel à un filtre passe bande pour ne laisser passer que la gamme de fréquences utile.

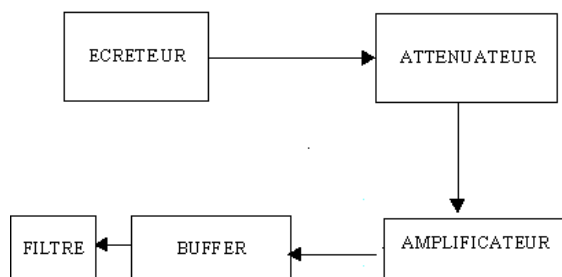


Figure 4.2 : Schéma synoptique d'un récepteur d'impulsions électriques

### 4.2.2 Acquisition des signaux

Un oscilloscope numérique contrôlé par un micro ordinateur permet de visualiser et d'échantillonner les différents échos qui seront traités ultérieurement.

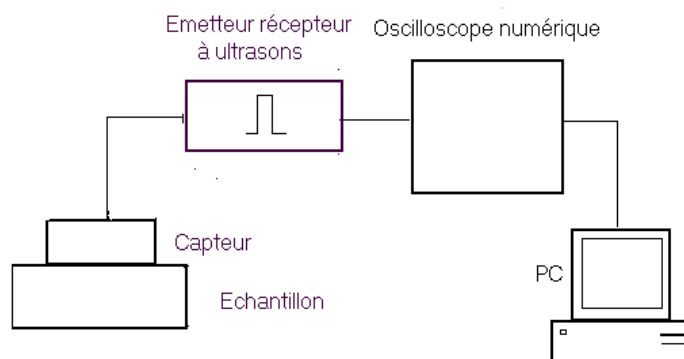


Figure 4.3 : Dispositif expérimental

Transducteurs	T1	T2	T3	T4	T5
fréquences (MHz)	1	2.25	5	10	15
diamètres (mm)	19.05	19.05	19.05	19.05	19.05

Tableau 4.1 : Références des transducteurs.

## 4.3 Echantillons étudiés

Les échantillons utilisés sont deux polymères : le Plexiglas et le Polyamide. Ces deux polymères font partie de la famille des thermoplastiques à l'état vitreux. Le choix s'est porté sur ces échantillons en raison de leur facilité de mise en oeuvre et de leur disponibilité.

Les échantillons qui ont servi à cette étude ont été découpés dans des rondins cylindriques de Plexiglas et de Polyamide. Les épaisseurs des différents échantillons sont données dans le tableau suivant.

Echantillons	Plexiglas	Polyamide
1	5.02 mm	5.30 mm
2	9.70 mm	10.11 mm
3	19.70 mm	20.05 mm
4	29.60 mm	29.97 mm

Tableau 4.2 : Tableau représentant les épaisseurs des différents échantillons.

Ces échantillons sont homogènes et macroscopiquement isotropes, cela a été vérifié en faisant des mesures de vitesse de propagation d'ondes ultrasonores suivant trois directions perpendiculaires dans un échantillon de forme parallélépipédique.

La figure 4.4 montre l'évolution des échos en fonction de la distance de propagation  $x = 19.40; 39.40$  et  $59.20\text{mm}$  et pour une fréquence d'excitation  $f = 2.25\text{ MHz}$ .

La diminution d'amplitude en fonction de l'épaisseur est significative de la présence d'un phénomène d'atténuation. Cette atténuation est relativement importante car, pour des échantillons dépassant une certaine épaisseur, les signaux ultrasonores sont difficilement observables.

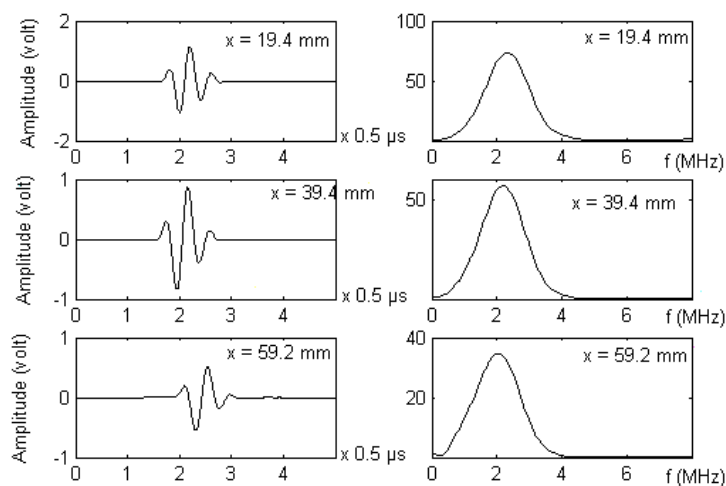


Figure 4.4 : Evolution de l'écho en fonction des distances de propagations  $x = 19.4, 39.4$  et  $59.2\text{ mm}$  dans un échantillon de Plexiglas

## 4.4 Mesure des vitesses

### 4.4.1 Les techniques de mesures

Lors de sa propagation, l'impulsion ultrasonore subit des réflexions multiples aux extrémités de l'échantillon.

En mode impulsionnel la vitesse est obtenue à partir de :

$$v = \frac{2e}{\Delta t} \quad (4.3.1)$$

$e$  : épaisseur de l'échantillon.

$\Delta t$  : temps mis par l'onde pour parcourir un aller-retour dans cette épaisseur.

Pour minimiser les incertitudes dans l'estimation de la vitesse de propagation, un certain nombre de précautions expérimentales doivent être prises :

- Préparation des échantillons : les échantillons doivent avoir des faces parallèles avec un très bon état de surface. La mesure des épaisseurs des échantillons est réalisée à l'aide d'un palmer, et une vérification de la planéité est obtenue par une mesure de l'épaisseur en différents points.
- Choisir la méthode de mesure la plus précise du temps de propagation. Les épaisseurs des échantillons sont suffisamment élevées pour que les échos résultant des réflexions multiples soient séparés dans le temps. Pour cette raison les méthodes temporelles sont plus adaptées que les méthodes dites spectrales (spectroscopie ultrasonore).

Les trois méthodes utilisées pour mesurer les vitesses sont :

- Mesure de l'intervalle de temps par lecture directe des instants d'arrivée des différents échos.
- Utilisation de la méthode d'intercorrélacion entre deux signaux ayant effectué des trajets différents.
- Utilisation de la transformée de Hilbert.

### Mesure du temps de propagation par lecture directe du temps de vol

Elle consiste à mesurer l'intervalle de temps séparant deux échos successifs. Cette opération est réalisée sur les signaux échantillonnés, par une translation de l'écho le plus éloigné pour obtenir une superposition avec les échos qui le précédent. La relation permettant d'obtenir la vitesse de propagation est :

$$v = \frac{\Delta d}{\Delta t}$$

où  $\Delta d$  désigne la différence entre les distances parcourues par les deux échos, et  $\Delta t$  le temps correspondant.

### La méthode d'intercorrélation

L'utilisation des propriétés de la fonction d'intercorrélation  $C_{pq}$  entre deux signaux constitue une méthode classique de mesure du décalage temporel entre ces deux signaux.

Soit deux signaux réels dépendant du temps  $p(t)$  et  $q(t)$ . La fonction d'intercorrélation, notée  $C_{pq}(t)$ , est définie par :

$$C_{pq}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} p(u) q(u+t) du \quad (4.3.2)$$

En tenant compte des propriétés de la transformée de Fourier, nous obtenons la relation suivante :

$$TF \{C_{pq}(t)\} = TF \{p(t)\} TF^* \{q(t)\} \quad (4.3.3)$$

où le symbole  $*$  désigne le complexe conjugué.

Lorsque  $q(t)$  est identique à  $p(t)$ , on définit la fonction d'autocorrélation

$$C_{pp}(t) = C_p(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} p(u) p(u+t) du \Leftrightarrow TF \{C_{pp}(t)\} = \|TF \{p(t)\}\|^2 \quad (4.3.4)$$

Lorsque le signal  $q(t)$  est une translation pure de  $p(t)$ , d'une quantité  $\tau$  qui, dans le cas des phénomènes de propagation, correspond au temps de propagation,  $q(t) = p(t - \tau)$ .

La fonction d'intercorrélation s'écrit alors :

$$C_{pq}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} p^*(u) p(u+t-\tau) du \quad (4.3.5)$$

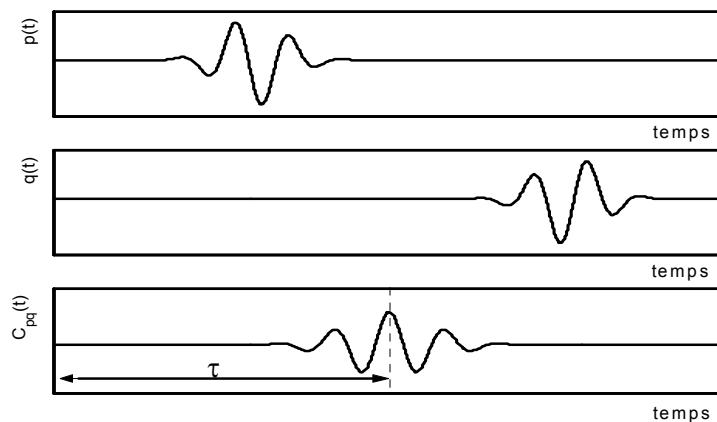


Figure 4.5 : Représentation de la méthode d'intercorrélation. (a) Signal  $p(t)$ ; Signal  $q(t)$ ; (c) Fonction d'interorrélation.

Le maximum de cette fonction est atteint pour un temps  $t$  égal à  $\tau$  (figure 4.5). Ce maximum donne une mesure très précise du temps de retard entre deux signaux de contenu spectral similaire.

Cette technique de mesure de temps de vol d'ondes ultrasonores est très efficace pour des matériaux faiblement viscoélastiques ou pour des signaux à bande fréquentielle étroite. Cependant, cette méthode de mesure présente quelques désavantages pour les signaux multimodaux ou fortement dispersifs dans lesquels la variation de la vitesse de propagation en fonction de la fréquence, devient significative [Ley 2002].

### La transformée de Hilbert

Pour mesurer le temps de retard entre deux signaux on peut également utiliser une autre technique basée sur la transformée de Hilbert.

Dans le cas d'un retard pur entre deux signaux de valeur  $\tau$ , la réponse impulsionnelle  $h(t)$  est de la forme :  $h(t) = \delta(t - \tau)$ . Par conséquent, la transformée de Hilbert de  $h(t)$  n'est autre que :

$$Hi\{h(t)\} = \frac{1}{\pi(t - \tau)} \quad (4.3.6)$$

La transformation de Hilbert possède la propriété intéressante de traduire un retard pur en une branche hyperbolique d'une branche d'asymptote facilement repérable (figure 4.6). Le temps de retard  $\tau$  correspond à l'intersection de la courbe  $Hi\{h(t)\}$  avec l'axe des temps [Ley 2002].

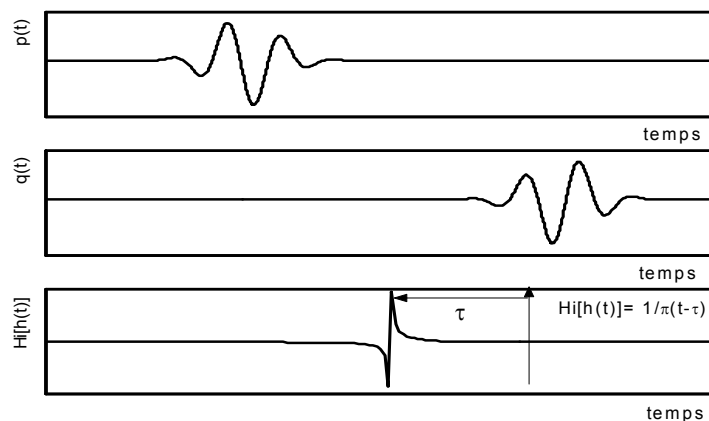


Figure 4.6 : Représentation de la transformation de Hilbert. (a) Signal  $p(t)$  ; (b) Signal  $q(t)$  ; (c) Transformation de Hilbert.

Les figures 4.7, 4.8 et 4.9 résument les trois méthodes décrites précédemment dans le calcul de la vitesse de propagations. Les signaux ont été observé dans des échantillons de Plexiglas et à des distances de propagation  $x = 19.4 \text{ mm}$  et  $38.8 \text{ mm}$ .

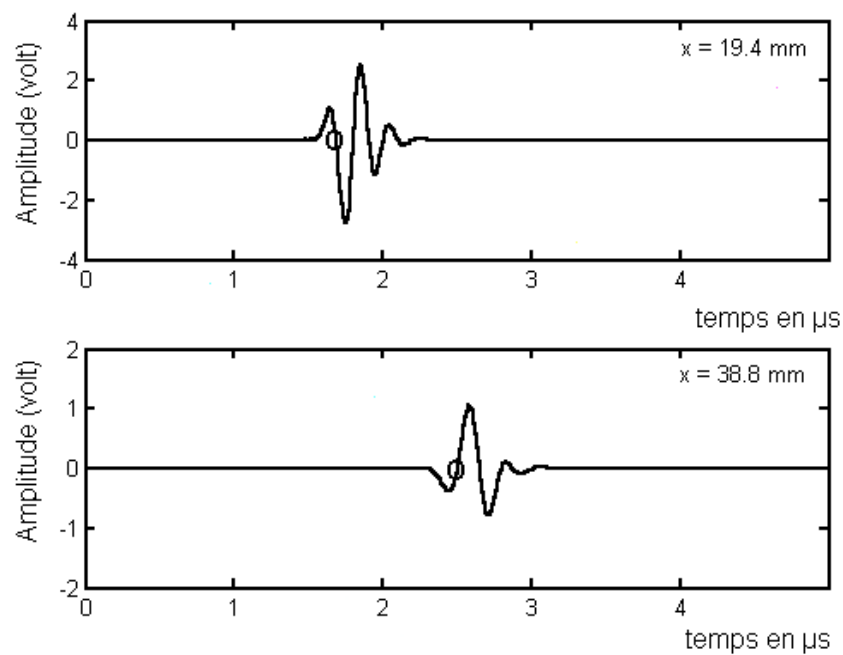


Figure 4.7 : Deux échos résultant de 2 réflexions successives :  $\Delta d = 19.4 \text{ mm}$ .

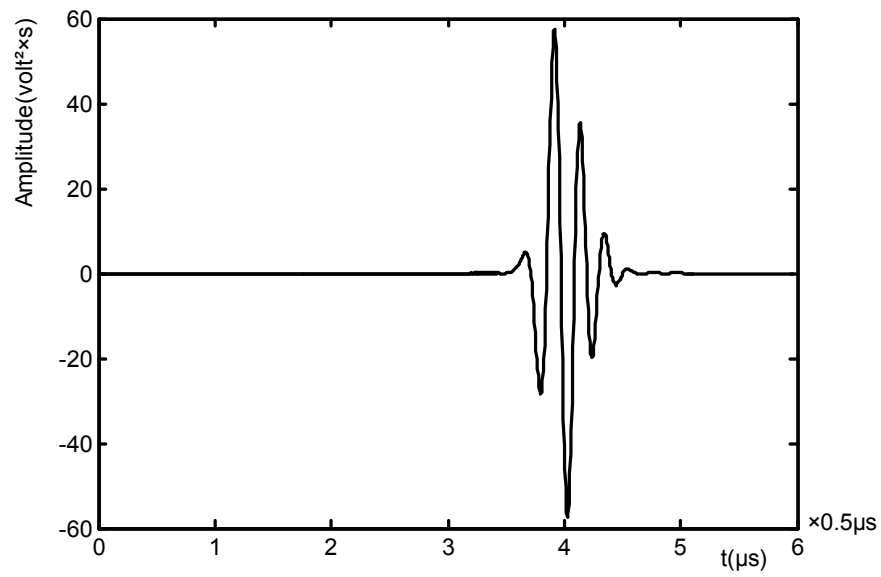


Figure 4.8 : Courbe représentant la fonction d'intercorrélation entre deux signaux réels ayant parcouru des distances  $x = 19.40$  et  $39.40$  mm.

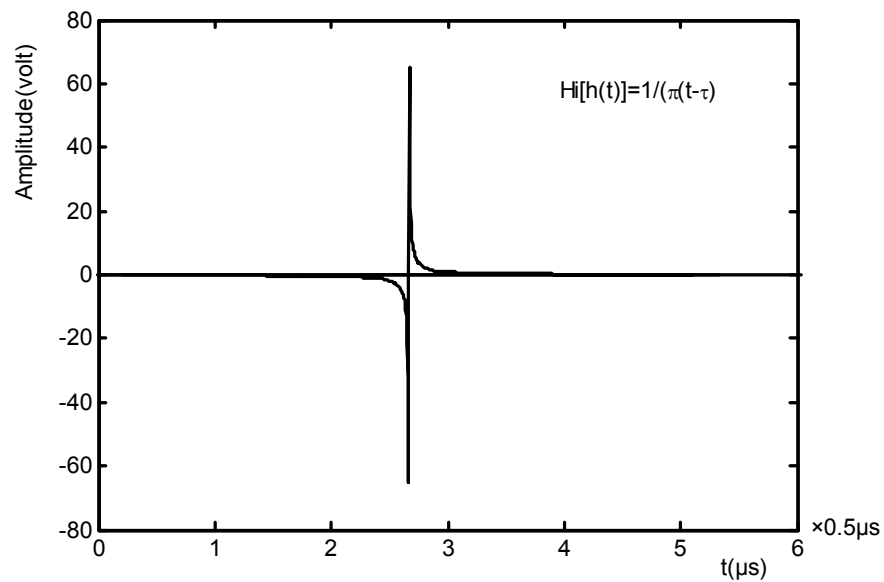


Figure 4.9 : Courbe représentant la transformée de Hilbert de deux échos ayant parcouru des distances  $x = 19.40$  et  $39.40$  mm.

### 4.4.2 Résultats obtenus

La vitesse a été déterminée par les trois méthodes : Mesure directe du retard par translation temporelle des signaux, intercorrélacion et transformée de Hilbert. Les résultats sont résumés dans les tableaux 4.3 et 4.4 :

#### Pour le Plexiglas

/	Intercorrélacion	Translation	Transformée de Hilbert	référence [Sel 1985]
1MHz	$2.62 \pm 0.10$	$2.64 \pm 0.07$	$2.61 \pm 0.08$	
2.25MHz	$2.71 \pm 0.06$	$2.72 \pm 0.06$	$2.71 \pm 0.06$	
5MHz	$2.70 \pm 0.09$	$2.72 \pm 0.09$	$2.70 \pm 0.10$	2.69
10MHz	$2.68 \pm 0.09$	$2.69 \pm 0.09$	$2.71 \pm 0.07$	
15MHz	$2.70 \pm 0.09$	$2.77 \pm 0.08$	$2.75 \pm 0.05$	

Tableau 4.3 : Vitesses de propagation en  $mm/\mu s$  en fonction des fréquences.

#### Pour le Polyamide

/	Intercorrélacion	Translation	Transformée de Hilbert	référence [Sel 1985]
1MHz	$2.56 \pm 0.07$	$2.61 \pm 0.07$	$2.58 \pm 0.07$	
2.25MHz	$2.63 \pm 0.06$	$2.66 \pm 0.03$	$2.64 \pm 0.06$	
5MHz	$2.65 \pm 0.04$	$2.68 \pm 0.06$	$2.64 \pm 0.04$	2.2-2.6
10MHz	$2.68 \pm 0.08$	$2.70 \pm 0.08$	$2.66 \pm 0.06$	
15MHz	$2.62 \pm 0.08$	$2.68 \pm 0.08$	$2.63 \pm 0.08$	

Tableau 4.4 : Vitesses de propagation en  $mm/\mu s$  en fonction des fréquences.

Ces résultats sont comparables aux valeurs obtenues par différents auteurs.

Les différentes méthodes utilisées donnent des résultats presque identiques. Cependant celles utilisant la fonction d'intercorrélacion et la transformée de Hilbert semblent plus précises que la méthode de lecture directe par translation temporelle des signaux. Ceci est dû au fait que le milieu à étudier est non dispersif et que les signaux ne présentent qu'un seul mode de propagation.

Les vitesses obtenues nous ont permis de tracer les courbes de variation de la vitesse de propagation en fonction de la fréquence dans le Plexiglas et le Polyamide. Nous remarquons que dans la gamme de fréquences utilisée, ces milieux sont non dispersifs (figure 4.10). Ces résultats valident donc l'hypothèse du modèle théorique développée dans le chapitre 3.

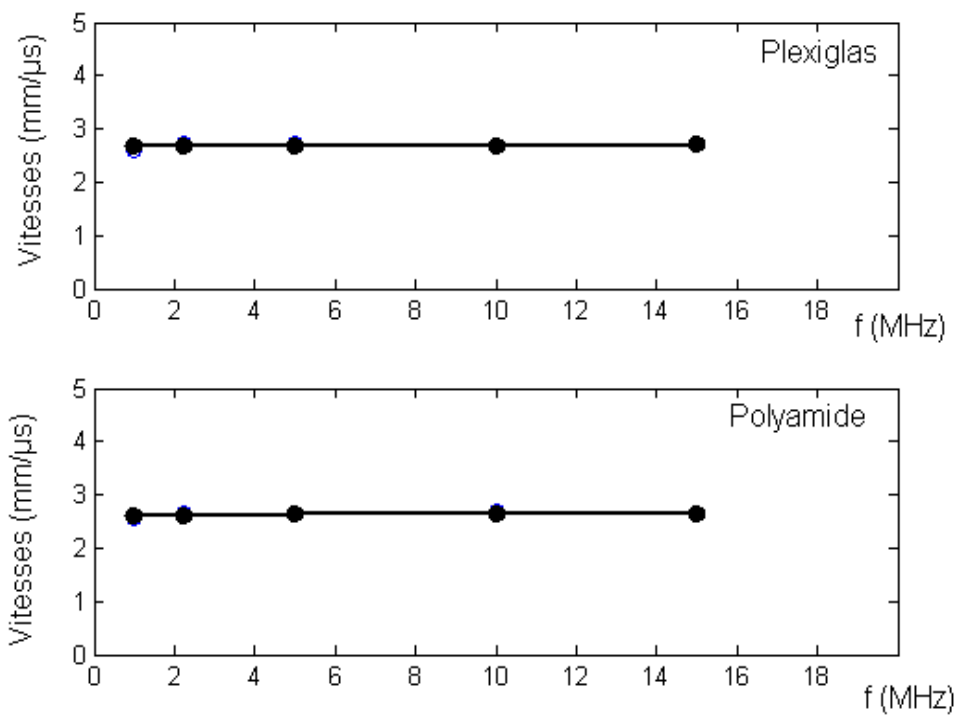


Figure 4.10 : Courbe représentant les vitesses de propagation en fonction des fréquences nominales des transducteurs pour les échantillons de Plexiglas et de Polyamide

## 4.5 Mesure de l'atténuation

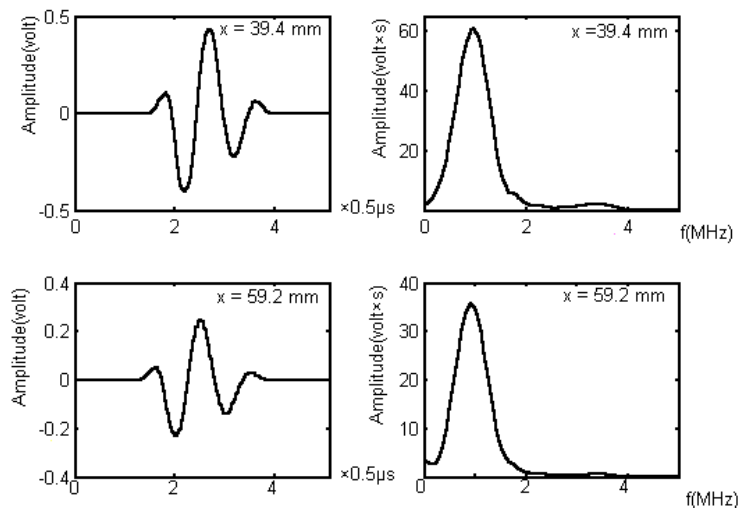


Figure 4.11 : Courbe représentant l'évolution de l'écho en fonction de la distance de propagation  $x = 39.40$  et  $59.2$  mm dans le cas d'un transducteur de  $1$  MHz dans le Plexiglas

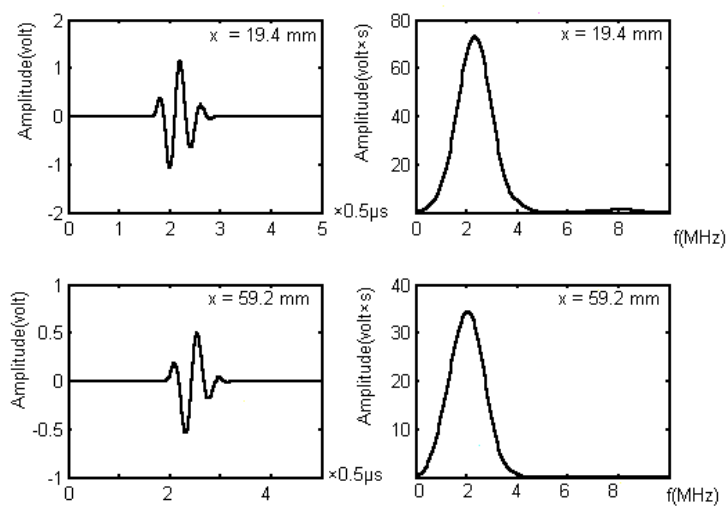


Figure 4.12 : Courbe représentant l'évolution de l'écho en fonction de la distance de propagation  $x = 19.40$  et  $59.2$  mm dans le cas d'un transducteur de  $2.25$  MHz dans le Plexiglas

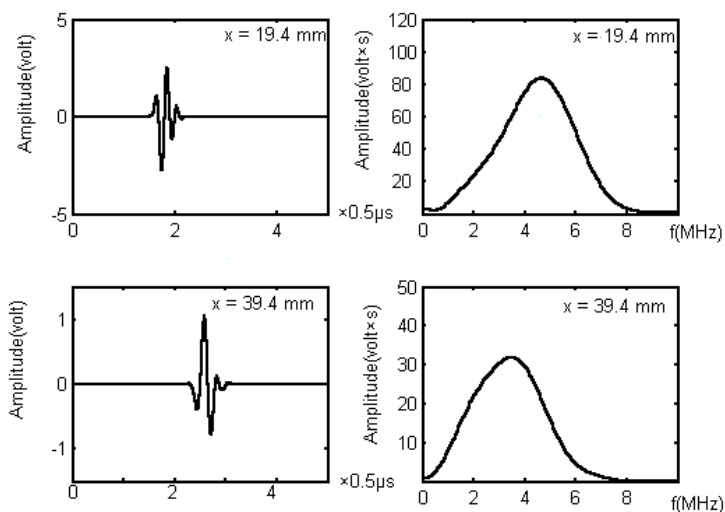


Figure 4.13 : Courbe représentant l'évolution de l'écho en fonction de la distance de propagation  $x = 19.40$  et  $39.40$  mm dans le cas d'un transducteur de 5 MHz dans le Plexiglas

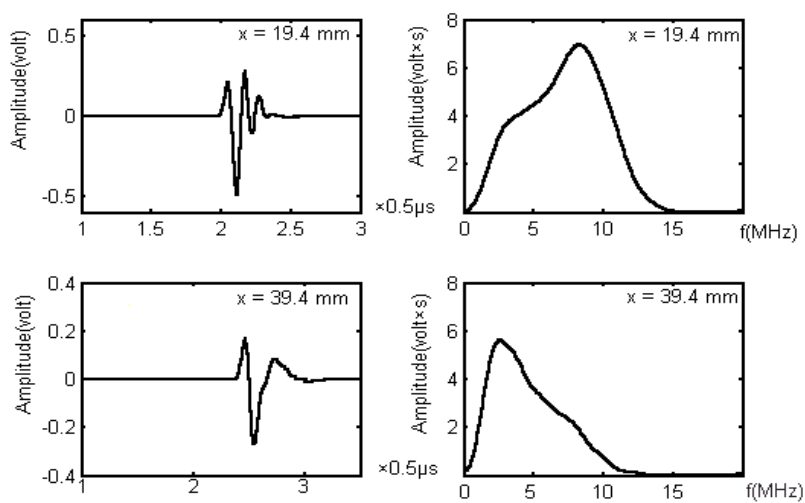


Figure 4.14 : Courbe représentant l'évolution de l'écho en fonction de la distance de propagation  $x = 19.40$  et  $39.40$  mm dans le cas d'un transducteur de 10 MHz dans le Plexiglas

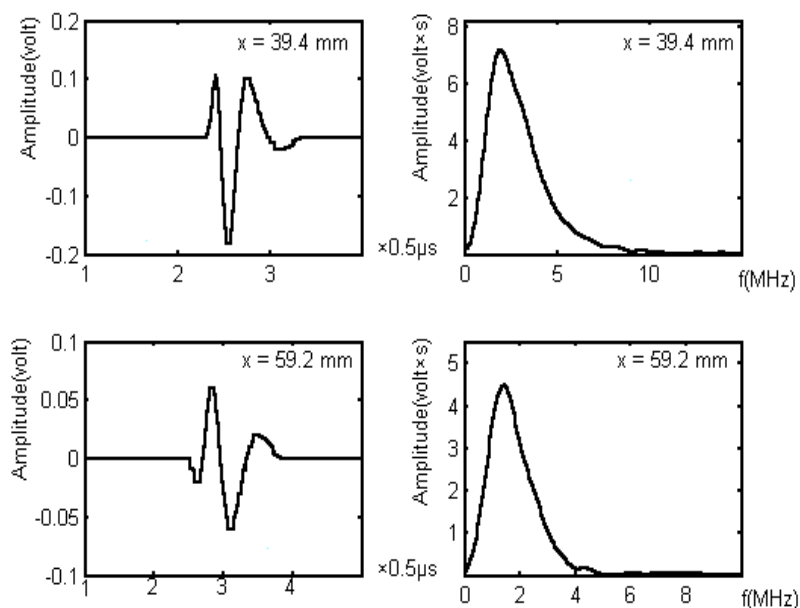


Figure 4.15 : Courbe représentant l'évolution de l'écho en fonction de la distance de propagation  $x = 39.40$  et  $59.20$  mm dans le cas d'un transducteur de  $15$  MHz dans le Plexiglas

Les figures 4.11, 4.12, 4.13, 4.14 et 4.15 représentent l'évolution des échos et des spectres en fonction de la distance de propagation et pour différentes fréquences. Elles nous permettent de faire les remarques suivantes :

- Diminution d'amplitude en fonction de la distance de propagation et de la fréquence. Ceci met en évidence une atténuation dépendant de la fréquence.
- Les échantillons agissent comme des filtres qui ne laissent passer que les basses fréquences.
- Les échos ont tendance à s'étaler dans le temps lorsque la distance augmente et lorsque la fréquence diminue, ce qui provoque une compression dans le domaine des fréquences.

#### 4.5.1 Technique de mesure de l'atténuation

L'atténuation des ondes ultrasonores a été mesurée par deux méthodes : division des spectres d'amplitudes et division d'amplitude du signal temporel.

##### Division des spectres

Cette méthode consiste à calculer les spectres de deux échos puis à faire leur division. Elle permet d'obtenir les atténuations dans une gamme de fréquence au voisinage de la fréquence nominale du transducteur.

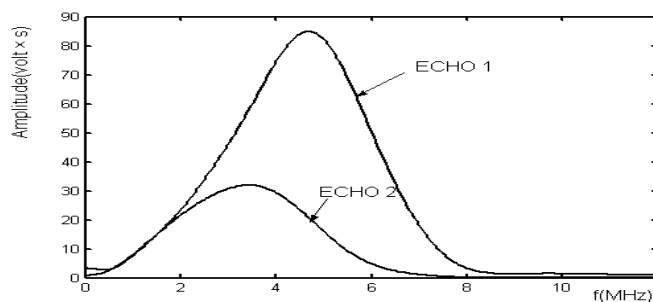


Figure 4.16 : Courbes représentant deux spectres correspondant à deux échos successifs ayant parcouru des distances de propagation  $x = 19.40$  et  $38.80$  mm

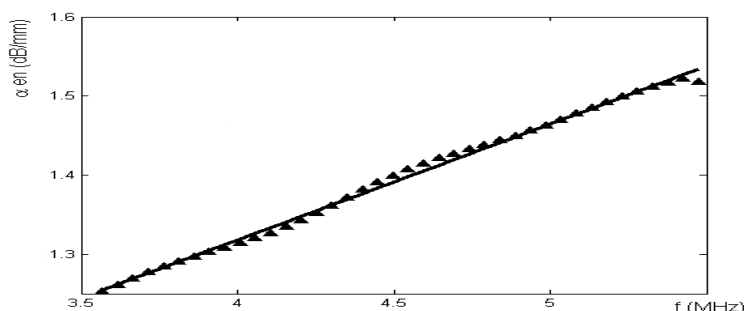


Figure 4.17 : Courbe représentant la variation de l'atténuation en fonction de la fréquence dans le cas de deux échos successifs ayant parcouru des distances de propagation  $x = 19.40$  et  $38.80$  mm dans un échantillon de Plexiglas.

### Division des amplitudes

Elle est basée sur l'étude de l'évolution des amplitudes en fonction des épaisseurs des échantillons en utilisant des transducteurs de différentes fréquences nominales. Cette méthode, contrairement à celle de la division des spectres, nous donne des mesures pour une seule fréquence, qui est différente de la fréquence nominale du transducteur dans le cas de phénomène de filtrage.

### Termes correctifs

La principale difficulté des mesures d'atténuation résulte du fait que l'atténuation mesurée est souvent très supérieure à la valeur de l'atténuation correspondant au phénomène d'absorption. En effet, l'atténuation des ondes lors de leur propagation peut avoir différentes causes :

- Diminution d'amplitude résultant de la réflexion-transmission aux interfaces.
- Diminution d'amplitude résultant de la diffraction causée par la taille finie des transducteurs.
- Diminution d'amplitude résultant du manque de parallélisme entre les faces des échantillons.

Si ce dernier effet peut être minimisé lors de l'usinage, les conditions expérimentales nous obligent à tenir compte des deux autres effets en introduisant des termes correctifs correspondant respectivement à la diffraction et à la réflexion des ondes à l'interface milieu - couplant - transducteur.

- L'atténuation mesurée peut être considérée comme la somme de trois termes (absorption, diffraction et réflexion partielle) :

$$\alpha_T = \alpha_d + \alpha_R + \alpha_a \quad (4.3.7)$$

où :  $\alpha_d$  représente l'atténuation due à la diffraction,  $\alpha_R$  à la réflexion et  $\alpha_a$  à l'absorption. Alors :

$$\alpha_a = \alpha_T - \alpha_d - \alpha_R \quad (4.3.8)$$

Ainsi, on obtient l'atténuation due à l'absorption en retranchant de l'atténuation mesurée, la contribution de la diffraction et de la réflexion.

**La diffraction** Elle résulte du fait que le transducteur utilisé peut être assimilé à une ouverture circulaire ayant un certain diamètre. Dans le modèle qui permet de prendre en compte les effets de diffraction, le transducteur est assimilé à un piston circulaire qui émet des ondes dans un milieu semi infini supposé fluide en raison de la nature des ondes (longitudinales).

La détermination de la pression moyenne sur la surface sensible du transducteur, nécessite deux intégrations de surface : la première sur la surface de la source émettrice, et la seconde sur la surface sensible du récepteur. Le résultat de ces calculs est utilisé pour déterminer les corrections nécessaires.

L'atténuation due à la diffraction est [Tru 1969] :

$$\alpha_d = \frac{1.8}{1.05a^2/\lambda} (dB/cm) \text{ ou } \alpha_d = 1.7 \frac{v}{a^2 f} \quad (4.3.9)$$

### La réflexion-transmission aux interfaces

Sachant que le coefficient de réflexion à l'interface glycérine échantillon est donné par :

$$R = \frac{Z_{\text{glycérine}} - Z_{\text{échantillon}}}{Z_{\text{glycérine}} + Z_{\text{échantillon}}} \quad (4.3.10)$$

Le terme correctif est donné par la formule suivante :

$$\alpha_R = \frac{20 \text{Log}(R)^{n-1}}{d}$$

$d$  représente la distance de propagation et  $n$  l'ordre de l'écho.

Nous avons pris la précaution de choisir les deux premiers échos pour minimiser les effets de réflexion.

Il convient de remarquer qu'en toute rigueur, le coefficient de réflexion devrait prendre en compte les réflexions multiples à l'intérieur de l'épaisseur de couplant et devrait de ce fait dépendre de la fréquence. Toutefois en raison des dispositions expérimentales (très faibles épaisseurs de couplant), nous avons considéré que les fréquences de résonance de l'épaisseur du liquide de couplage étaient très grandes devant les fréquences nominales des transducteurs utilisés et que de ce fait les effets de résonance du couplant pouvaient être négligés.

## 4.5.2 Résultats

### Par division des spectres

/	Plexiglas	Polyamide
Sans correction	$0.15 \pm 0.01$	$0.34 \pm 0.07$
Avec correction	$0.15 \pm 0.01$	$0.35 \pm 0.02$

Tableau 4.5 : Atténuations en  $dB/mmMHz$

Pour le plexiglas l'atténuation est égale à :  $0.20 dB/(mmMHz)$  [Sel 1985].

Pour le Polyamide l'atténuation est égale à :  $0.29 dB/(mmMHz)$  [Sel 1985].

Du tableau précédent nous remarquons que, dans le cas du Plexiglas, l'effet des termes correctifs est négligeable. Toutefois, dans le cas du Polyamide nous observons une légère variation qui peut s'expliquer par une contribution plus importante du terme correctif dû au phénomène de réflexion. Par contre la contribution de la diffraction n'est pas très importante.

Les résultats obtenus montrent que l'évolution de l'atténuation en fonction de la fréquence est linéaire. Ce qui conforte le modèle théorique proposé dans les chapitres précédents.

### En utilisant la division des amplitudes

**Pour le plexiglas** Les résultats obtenus par cette méthode sont résumés dans le tableau 4.6. Nous remarquons que l'influence de la diffraction et de la réflexion est plus apparente, et qu'elle engendre des corrections allant jusqu'à 15%.

1MHz	$0.34 \pm 0.01$
2.25MHz	$0.29 \pm 0.06$
5MHz	$0.60 \pm 0.03$
10MHz	$0.76 \pm 0.03$
15MHz	$0.72 \pm 0.06$

Tableau 4.6 : Atténuations en  $dB/mm$  en fonction des fréquences.

Des résultats donnés dans le tableau précédent nous pouvons étudier l'atténuation en fonction des fréquences nominales. Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau suivant :

pende( $dB/mmMHz$ )	$0.06 \pm 0.02$
ordonnée à l'origine( $dB/mm$ )	$0.22 \pm 0.06$

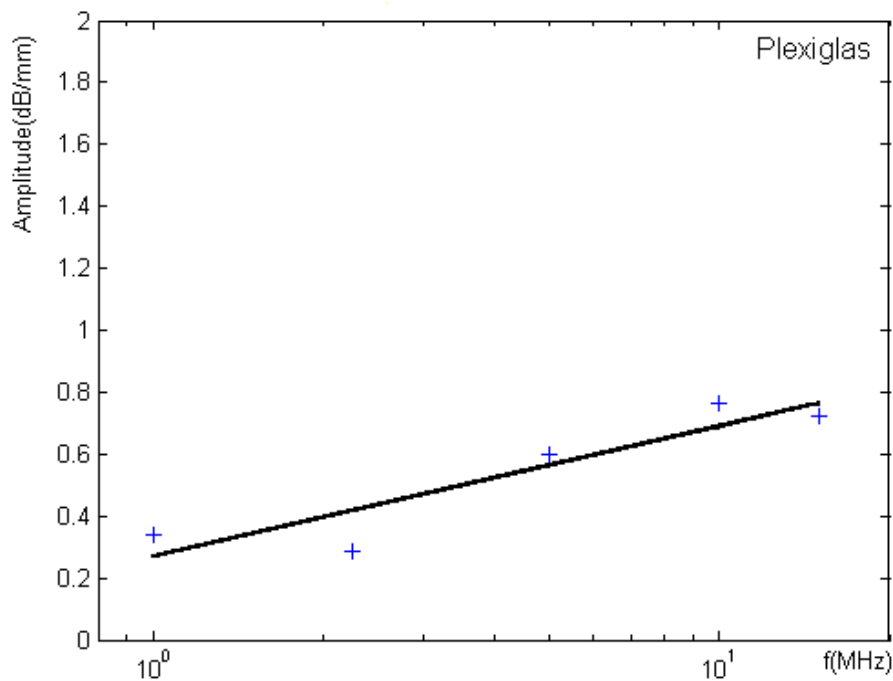
Tableau 4.7 : Atténuations en  $dB/mm$  et en  $dB/mm MHz$ 

Figure 4.18 : Variation de l'amplitude en échelle log en fonction du log de la fréquence dans un échantillon de Plexiglas.

**Pour le Polyamide** Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau 4.8.

1MHz	$0.1552 \pm 0.01$
2.25MHz	$0.45 \pm 0.05$
5MHz	$0.61 \pm 0.02$
10MHz	$0.65 \pm 0.04$
15MHz	$0.57 \pm 0.02$

Tableau 4.8 : Atténuations en  $dB/mm$  en fonction des fréquences

Les résultats du tableau précédent nous permettent d'étudier l'évolution des atténuations en fonction des fréquences. Nous obtenons les pentes suivantes :

pende( $dB/mmMHz$ )	$0.023 \pm 0.009$
ordonnée à l'origine( $dB/mm$ )	$0.44 \pm 0.03$

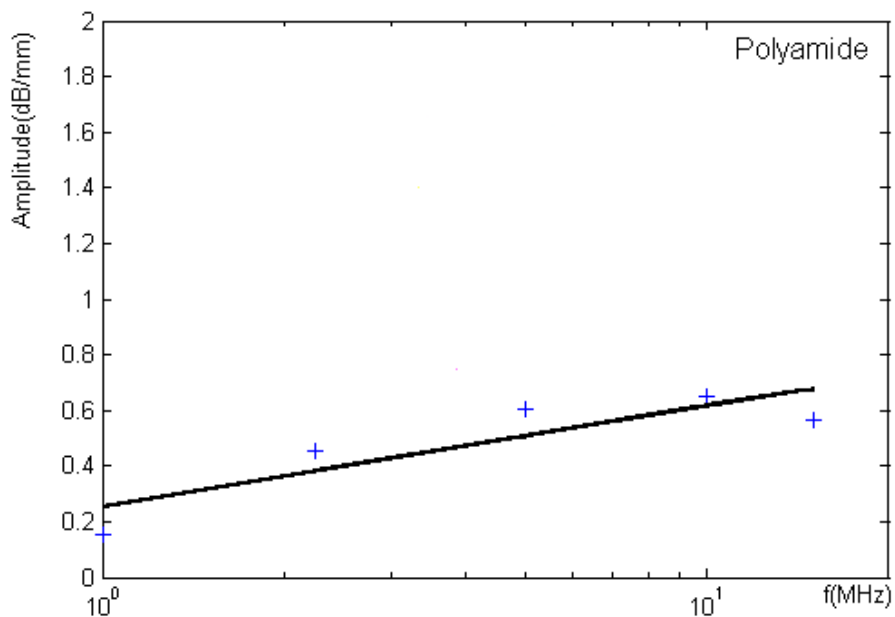
Tableau 4.9 : Atténuations en  $dB/mm$  et en  $dB/mmMHz$ 

Figure 4.19 : Variation de l'amplitude en échelle log en fonction du log de la fréquence dans un échantillon de Polyamide.

En comparant les résultats obtenus, nous constatons que la méthode par division des spectres est plus efficace que celle de la division des amplitudes.

La méthode par division des spectres nous donne directement l'atténuation dans une gamme de fréquences.

## 4.6 Détermination des coefficients de viscoélasticité

Les résultats obtenus lors de la mesure des vitesses et des atténuations nous ont permis de déterminer les coefficients d'élasticité ( $K$ ) et de viscosité ( $\eta$ ) dans le Plexiglas et le Polyamide.

Ces coefficients sont résumés dans le tableau suivant :

	Plexiglas	Polyamide
$K(N \times m^{-2})$	$(3.95 \pm 0.07) \times 10^9$	$(3.41 \pm 0.07) \times 10^9$
$\eta(Pa \times s)$	$(1.52 \pm 0.01) \times 10^3$	$(1.46 \pm 0.02) \times 10^3$

Tableau 4.10 : Tableau représentant les coefficients viscoélastiques du Plexiglas et du Polyamide.

Ces deux coefficients ont été calculés en utilisant les relations suivantes :

$$K = \frac{\rho(1 + \nu)(1 - 2\nu)}{(1 - \nu)} c^2 \quad (4.3.11)$$

et

$$\eta = \frac{\rho}{2A} = \frac{\rho c}{2\alpha} \quad (4.3.12)$$

$\nu$  : Représente le coefficient de Poisson.

Ces résultats ont été comparés avec ceux trouvés dans la bibliographie et les méthodes ultrasonores ont prouvé leur efficacité [Dor 1986].

Dans le cas du Plexiglas  $K$  varie de 2.24 à 3.24  $N \times m^{-2}$ .

Dans le cas du Polyamide  $K$  varie de 1.59 à 3.79  $N \times m^{-2}$ .

Cela conforte le modèle rhéologique de Maxwell et donc les hypothèses de travail utilisées dans le chapitre 3 ( atténuation proportionnelle à la fréquence et milieu non dispersif ).

## 4.7 Simulation numérique des signaux expérimentaux

Afin de valider le modèle théorique, nous avons simulé le parcours du signal ultrasonore depuis sa génération jusqu'à son acquisition. Puis nous avons confronté les résultats expérimentaux aux résultats théoriques en faisant appel aux techniques décrites précédemment, telles que la division des spectres pour les atténuations et l'intercorrélation pour les vitesses.

### 4.7.1 Description de la méthode

La chaîne électroacoustique peut être considérée comme un système linéaire invariant et peut donc être schématisée par la figure suivante :

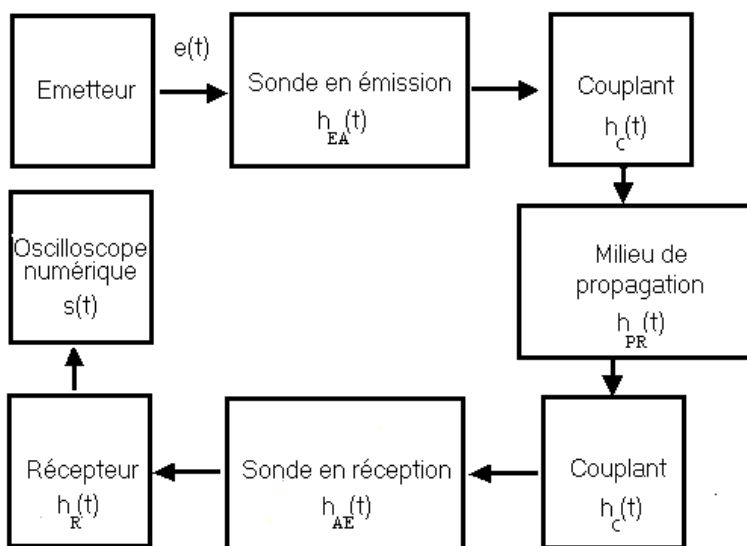


Figure 4.20 : Schéma synoptique de la chaîne électroacoustique

Dans le cas où chaque élément de la chaîne de mesure est considéré comme un filtre linéaire, le signal visualisé sur l'oscilloscope s'exprime en fonction des réponses impulsionnelles de ces éléments par :

$$s(x_1, t) = e(t) * h_{EA}(t) * h_{CE}(t) * h_{PR}(x_1, t) * h_{CR}(t) * h_{AE}(t) * h_R(t) \quad (4.3.13)$$

où  $e(t)$  est le signal électrique appliqué à l'entrée du transducteur.

$h_{EA}(t)$  est la réponse impulsionnelle électroacoustique du transducteur.

$h_{CE}(t)$  est la réponse impulsionnelle du couplant en émission.

$h_{PR}(x_1, t)$  est la réponse impulsionnelle du milieu de propagation en écho mode pour un signal ayant parcouru une distance  $x_1$ .

$h_{CR}(t)$  est la réponse impulsionnelle du couplant en réception.

$h_{AE}(t)$  est la réponse impulsionnelle acoustoélectrique du transducteur.

$h_R(t)$  est la réponse impulsionnelle de l'étage récepteur.

$s(x_1, t)$  est le signal visualisé sur l'oscilloscope à un instant  $t$  et pour une distance de propagation  $x_1$ .

Dans le domaine fréquentiel l'expression précédente s'écrirait sous la forme suivante :

$$S(x_1, f) = E(f) H_{EA}(f) H_{CE}(f) H_{PR}(x_1, f) H_{CR}(f) H_{AE}(f) H_R(f) \quad (4.3.14)$$

Un autre signal obtenu à une distance de propagation  $x_2$ , s'écrirait de la manière suivante :

$$S(x_2, f) = E(f) H_{EA}(f) H_{CE}(f) H_{PR}(x_2, f) H_{CR}(f) H_{AE}(f) H_R(f) \quad (4.3.15)$$

En faisant le rapport des deux expressions, nous obtenons :

$$\frac{S(x_2, f)}{S(x_1, f)} = \frac{H_{PR}(x_2, f)}{H_{PR}(x_1, f)} \quad (4.3.16)$$

Dans le cas où la distance  $x_1$  est faible, on peut considérer que les effets de l'atténuation ne se sont pas encore manifestés de manière notable et on peut donc dire que  $H_{PR}(x_1, f) = 1$  et correspond à une translation dans le domaine temporel. Dans ce cas, la relation précédente se met sous la forme suivante :

$$\frac{S(x_2, f)}{S(x_1, f)} = H_{PR}(x_2, f) \quad (4.3.17)$$

d'où

$$S(x_2, f) = S(x_1, f) H_{PR}(x_2, f) \quad (4.3.18)$$

et dans le domaine temporel

$$s(x_2, t) = s(x_1, t) * h_{PR}(x_2, t) \quad (4.3.19)$$

La forme d'onde à la position  $x_2$  peut être obtenue par convolution du signal obtenu pour une faible épaisseur avec la réponse impulsionnelle du filtre de propagation à la position  $x_2$ .

### 4.7.2 Résultats des simulations des signaux expérimentaux

La figure 4.21 représente une comparaison entre un signal expérimental et un signal théorique, pour une fréquence de  $2.25 \text{ MHz}$  et une distance de propagation de  $40 \text{ mm}$ . Nous remarquons que les signaux sont comparables par leurs amplitudes et par leurs instants d'arrivées.

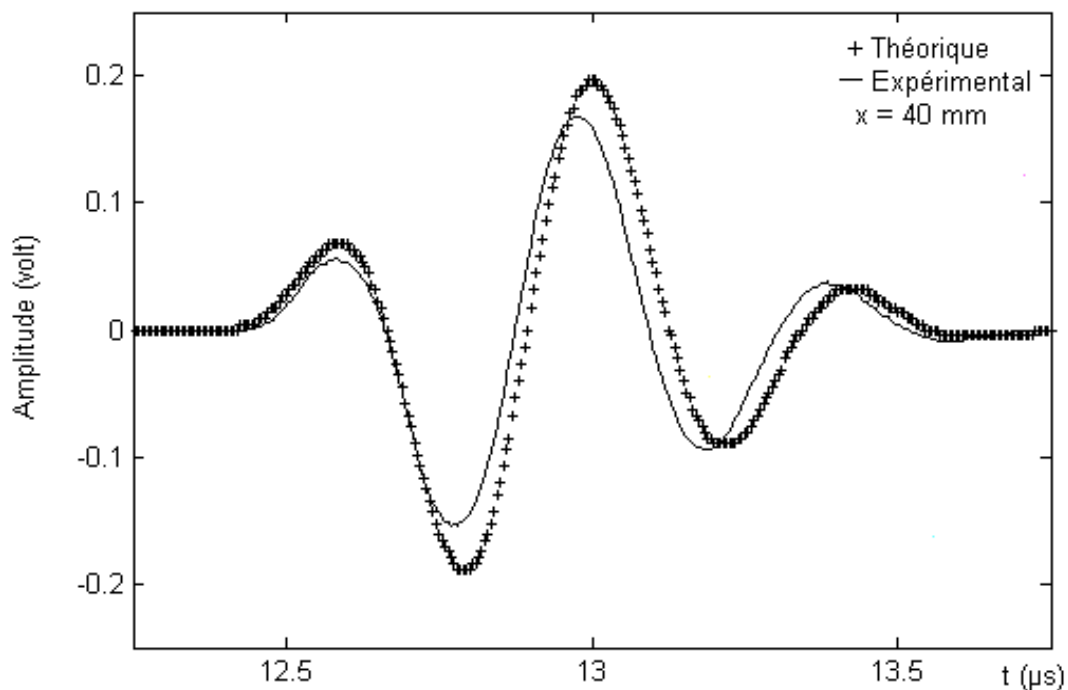


Figure 4.21 : Comparaison entre un signal expérimental et un signal théorique pour une fréquence  $f = 2.25 \text{ MHz}$  et une profondeur de  $z = 40 \text{ mm}$

Dans les figures 4.22 et 4.23, nous avons respectivement comparé les atténuations dans le cas du plexiglas en fonction des fréquences.

Ces atténuations ont été calculées par la division des spectres. Les résultats théoriques et expérimentaux donnent des pentes identiques et égales à  $0.14 \text{ dBmm}^{-1} \text{ MHz}^{-1}$ . Ces résultats confirment la dépendance linéaire de l'atténuation en fonction de la fréquence.

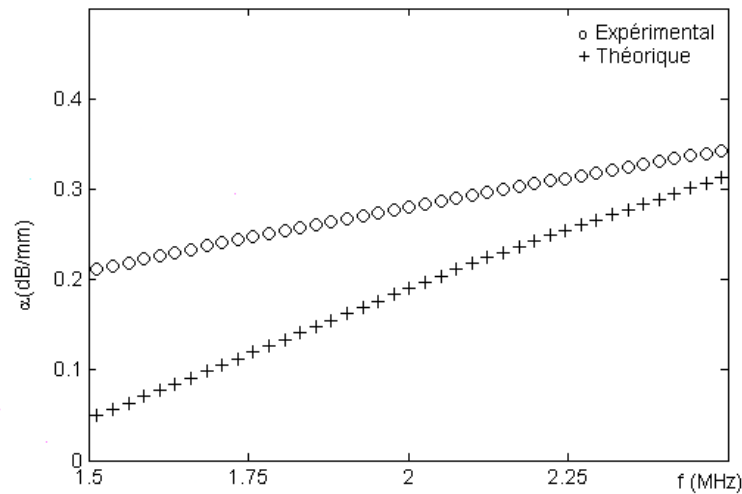


Figure 4.22 : Comparaison de l'évolution de l'atténuation en fonction de la fréquence obtenue expérimentalement et théoriquement pour une fréquence  $f = 2.25 \text{ MHz}$ , et une distance de propagation  $x = 40 \text{ mm}$ .

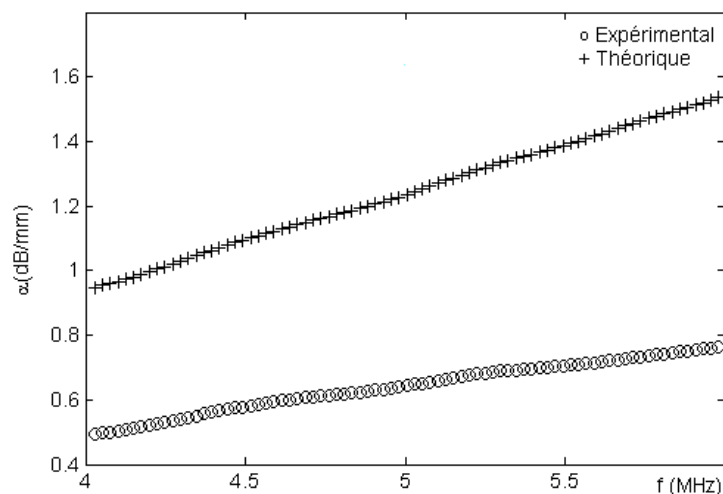


Figure 4.23 : Comparaison de l'évolution de l'atténuation en fonction de la fréquence obtenue expérimentalement et théoriquement pour une fréquence  $f = 5 \text{ MHz}$ , et une distance de propagation  $x = 40 \text{ mm}$ .

La figure 4.24 est une comparaison entre les vitesses simulées et expérimentales. Ces vitesses ont été calculées par la méthode d'intercorrélation. La figure montre que les vitesses expérimentales et simulées sont comparables et que l'approximation d'un milieu non dispersif est confirmée.

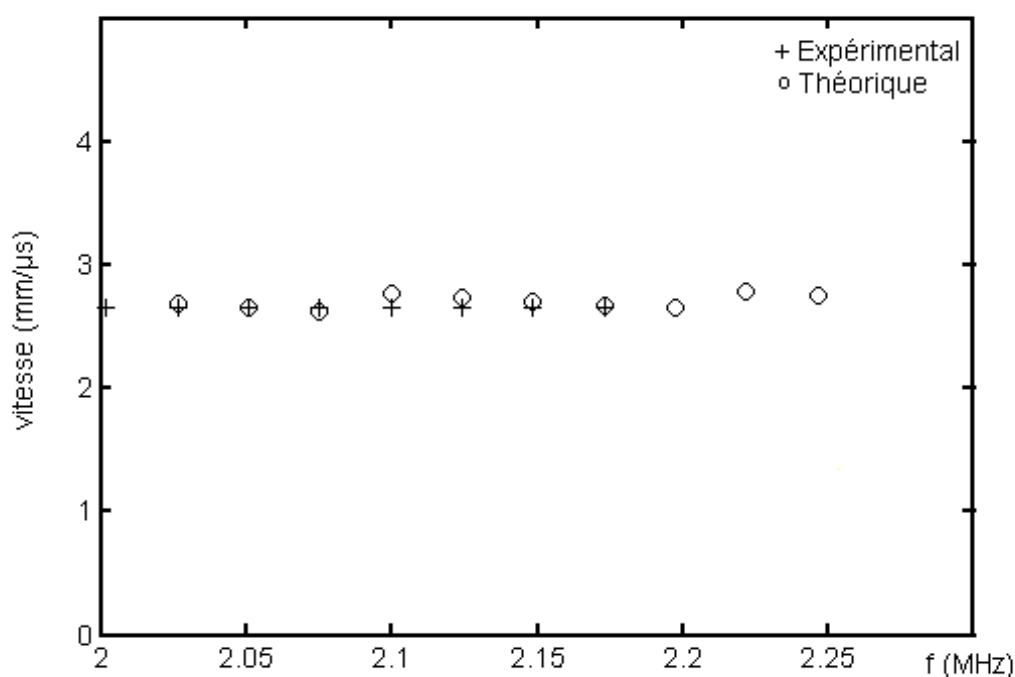


Figure 4.24 : Comparaison entre vitesses théoriques et expérimentales pour une fréquence  $f = 2.25$  MHz, et une distance de propagation  $x = 40$  mm.

## 4.8 Conclusion

L'étude expérimentale nous a permis de déterminer les propriétés des ondes ultrasonores (atténuation, vitesse de phase) dans la gamme de 1 à 15 MHz dans deux polymères thermoplastiques, le Plexiglas et le Polyamide. Cela a été réalisé en utilisant des techniques de traitement de signal telles que la fonction d'intercorrélation, la transformée de Hilbert et la division des spectres. Les vitesses et les atténuations nous ont permis aussi de déterminer les constantes élastiques et les coefficients de viscosité. Ces résultats ont été comparés avec ceux trouvés dans

la bibliographie Cette étude nous a permis également de vérifier la précision du modèle théorique et donc de vérifier deux hypothèses, qui sont la dépendance linéaire de l'atténuation en fonction de la fréquence et la non dispersion du milieu de propagation.

## Conclusion

Dans cette thèse nous avons effectué une étude théorique et expérimentale du phénomène de propagation des ondes ultrasonores dans les polymères solides.

Les polymères se distinguent par leurs propriétés de viscoélasticité, dont l'un des effets est l'absorption des ondes ultrasonores lors de leurs propagations, résultant essentiellement du phénomène de relaxation .

La relaxation étant un phénomène physique qui doit obéir au principe de causalité, nous avons établi les relations entre l'atténuation et la vitesse de propagation pour satisfaire ce principe ; ces relations ont été complétées par le critère de Paley-Wiener.

Dans ce cadre, la modélisation proposée est basée sur deux hypothèses : évolution linéaire de l'atténuation en fonction de la fréquence et milieu non dispersif. Le modèle rhéologique de Zener et son approximation dans le cas des fréquences ultrasonores ( Modèle de Maxwell ), nous a permis d'établir l'équation de propagation des ondes ultrasonores dans les solides viscoélastiques. La résolution de l'équation de propagation à l'aide de la transformée de Laplace nous a permis de calculer la réponse impulsionnelle du milieu de propagation qui respecte le principe de causalité et le critère de Paley Wiener.

Par le biais de cette méthode, nous avons simulé le phénomène de propagation des ondes ultrasonores dans les solides viscoélastiques et mis en évidence l'influence des différents paramètres du modèle de Maxwell et également l'influence de la distance de propagation, du paramètre d'atténuation, et de la fréquence. Cela nous a permis aussi, de prédire le comportement des ondes ultrasonores lors de leur propagation dans les solides viscoélastiques.

Dans l'étude expérimentale basée sur des méthodes impulsionnelles, nous avons déterminé les caractéristiques de la propagation des ondes ultrasonores dans deux polymères qui sont le Plexiglas et le Polyamide, en utilisant des techniques spectrales telles que la division des spectres, l'intercorrélacion, la transformée de Hilbert dans une gamme de fréquences allant de 1 à 15 MHz. Les réflexions multiples et le phénomène de diffraction peuvent influencer de manière sensible sur les mesures. Leur effet a été pris en compte à travers des termes correctifs. La mesure des vitesses et des atténuations nous a permis de déterminer les constantes élastiques et les coefficients de viscosité. La simulation numérique des signaux expérimentaux a permis de comparer des signaux théoriques avec des signaux expérimentaux et ainsi de valider les hypothèses du modèle théorique ( évolution linéaire de l'atténuation en fonction de la fréquence, milieu non dispersif ).

Cependant ce modèle théorique présente des limites liées aux hypothèses assez restrictives qui sont dues aux différentes hypothèses ; il ne constitue donc qu'une très bonne approximation valable pour les faibles distances de propagation et les faibles atténuations.

Le développement de modèles théoriques plus généraux, adaptés aussi bien aux milieux fortement atténuants ou régis par des lois de dépendance de l'atténuation en fonction de la fréquence plus complexes pourrait constituer un prolongement de la partie théorique de cette thèse. De même, une étude expérimentale utilisant d'autres gammes de fréquences, des ondes de natures différentes (ondes de cisaillement, ondes de Rayleigh ou encore ondes de Lamb) pourrait être envisagée. L'étude des effets non linéaires, générés par l'utilisation d'ondes ultrasonores de forte amplitude ou par des effets acoustoélastiques (propagation dans des polymères soumis à des charges mécaniques statiques) serait également un excellent thème de recherche à approfondir.

# Bibliographie

- [Abr 1972] Abramowitz. M, Stegun. I. A, " Handbook of mathematical functions ", Dover publications Inc., New York, 1972.
- [Cha 1970] Champetier. G, " Chimie macromoléculaire I ", édition Hermann Paris, 1970, 43-49.
- [Cha 1995] Challis. R. E, Cocker. R. P, " Ultrasonic compression wave propagation in adhesive polymers described as a signal process ", *Ultrasonics*, Vol. 33, 1995, 311-319.
- [Cha 1998] Chamani. R, McClements. J, " Ultrasonic attenuation of edible oils ", *JAOCS*, Vol. 75, 1998, 1447-1448.
- [Che 2003] Chen. W, Holm. S, " Modified Szabo's wave equation models for lossy media obeying frequency power law ", *J. Acoust. Soc. Am.* 114 (5), Nov 2003. 2570-2574.
- [Cos 2004] Da Costa-Felix. R. P. B, Machado. J. C, " Broadband ultrasonic attenuation measurements using coded sweep excitations ", *IEEE International ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 2004, 1066-1069.
- [Dar 1976] Darwin. H. W, " Phénomènes de vibration et de propagation ", Edition Eyrolles, 1976, 410-412.
- [Dia 2003] Diallo. M. S, Prasad. M, Appel. E, " Comparison between experimental results and theoretical predictions for P-Wave velocity and attenuation at ultrasonic frequency ", *Wave Motion* 37, 2003, 1-16.
- [Eti 2002] Etienne. S, David. L, " Introduction à la physique des polymères ", Dunod, 2002, 138-163.
- [Dor 1986] Dorlot. J. M, Baillon. J. P, Massounave. J " Des matériaux ", Ecole polytechnique de Montréal, Presses internationales polytechniques, 1986, 353-379.
- [Gab 1972] R.Gabillard, " Vibrations et phénomènes de propagation ", Dunod, 1972, 410-413.
- [Gos 1978] Gos. S. A, Frizzell. L. A, Dunn. F, " Frequency dependence of ultrasonic absorption in mammalian testis ", *J. Acoust. Soc. Am.* 63 (4), Apr 1978, 1226-1229.
- [Gor 1999] Gordon. G. A, " Measuring the frequency dependent attenuation in lossy material using large time-bandwidth-product ultrasonic signals", *SPIE conference on ultrasonic transducer engineering*, Feb 1999, 1-11.

- [Gui 2003] Guillot. F. M, Trivett. D. H, " A dynamic young's modulus measurement system for highly compliant polymers ", *J. Acoust. Soc. Am*, 114 (3), Sep 2003, 1334-1345.
- [Gur 2000] Guran. A, Bostrom. A, Leroy. O, Maze. G, " Acoustic interactions with submerged elastic structures ", World scientific publishing Co. Pte. Ltd, 2000, 97-110.
- [Guy 1986] Guyomar. D, " Théorie et méthodes de la diffraction impulsionnelle dans les milieux sans perte et dans les milieux atténuants ", Thèse de Doctorat en Physique, Université de Paris 7, 1986, chapitre 4.
- [Hor 1981] Horton. C. W, " Comment on Kramers-Kronig relationship between ultrasonic attenuation and phase velocity ", *J. Acoust. Soc. Am*, 70 (4), oct 1981, 1182-1188.
- [Hul 1996] Hull. J. B, Langton. C. M, Barker. S, Jones. A. R, " Identification and characterisation of materials by broadband ultrasonic attenuation analysis ", *Journal of materials processing technology*, Vol 56, 1996, 148-157.
- [Jon 1986] Jongen.H. A. H, Thijssen. J. M, Van den Aarsen. M, Verhoef. W. A, " A general model for the absorption of ultrasound by biological tissues and experimental verification ", *J. Acoust. Soc. Am*, 79 (2), Feb 1986, 535-540.
- [Kau 2001] Kausch. H. H, Plummer. C. J, Heymans. N, Decroly. P, " *Traité des matériaux polymères propriétés mécaniques et physiques* ", Presses polytechniques et universitaires romandes, 2001, 195-273.
- [Kum 1996] Kumar. B, Kumar. A, " Evaluation of ultrasonic attenuation without invoking the diffraction correction separately ", *Ultrasonics*, Vol 34, 1996, 847-853.
- [Lee 1979] Leeman. S, Hutchins. L, Jones. J. P, " Bounded pulse propagation ", University of California Irvine, 1979, 427-435.
- [Lee 1980] Leeman. S, " Ultrasound pulse propagation in dispersive media ". *Phys. Med Biol.*, 1980, Vol. 25. No, 481-488. Printed in Great Britain.
- [Lee 1990] Lee. C. C, Lahham. M, B. G. Martin, " Experimental verification of the Kramers-Kronig relationship for acoustic waves ", *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, Vol 37, 1990, 286-294.
- [Ler 2005] Lerche. P. T, Cepel. R, Neal. S. P, " Attenuation coefficient estimation using experimental diffraction corrections with multiple interface reflections ", *Ultrasonics*, Vol 44, 2006, 83-92.
- [Ley 2002] Leymarie. N, " Analyse de comportement viscoélastique de matériaux anisotropes par reconstruction de formes d'ondes ", Thèse de Doctorat en mécanique, Université de Bordeaux 1, 2002.
- [Mur 1985] Spiegel. M.R, "Transformées de Laplace, cours et problèmes", Série Schaum, 1985.
- [Odo 1978] O'Donnell. M, Jaynes. E. T, Miller. J. G, " General relationships between ultrasonic attenuation and dispersion ", *J. Acoust. Soc. Am*, 69(3), 1981, 697-701.

- [Odo 1981] O'Donnell. M, Jaynes. E. T, Miller. J. G, " Kramers-Kronig relationship between ultrasonic attenuation and phase velocity ", *J. Acoust. Soc. Am*, 69(3), 1981, 697-701.
- [Mob 2003] Mobley. J, Waters. K. R, Miller. J. G. " Finite bandwidth effects on the causal prediction of ultrasonic attenuation of the power-law form ", *J. Acoust. Soc. Am*. 114 (5), Nov 2003. 2782-2790.
- [Odo 1983] O'Donnell. M, " Effects of diffraction on measurements of the frequency dependent ultrasonic attenuation ", *IEEE Transactions on Biomedical Engineering*, Vol 30, 1983, 320-326.
- [Pal 1934] Paley. R. E. A. C, Wiener. N, " Fourier transforms in the complex domain ", *Amer. Math. Soc, Coll, Pub*, Vol 19, 1934.
- [Pap 1959] Papadakis. E. P, " Correction for diffraction losses in the ultrasonic field of a piston source ", *J. Acoust. Soc. Am*, Vol 31, 1959, 150-152.
- [Pet 2003] Peters. F, Petit. L, " A broad band spectroscopy method for ultrasound wave velocity and attenuation measurement in dispersive media ", *Ultrasonics*, 41, 2003, 357-363.
- [Pfa 1971] Pfaffelhuber. E, " Generalized impulse response and causality ", *IEEE Transaction on Circuit Theory*, Vol 18, 1971, 218-223.
- [Pic 1987] Piché. L, Massines. F, Lessard. G, Hamel. A, " Ultrasonic characterization of polymers as function of temperature, pressure and frequency ", *IEEE Ultrasonics Symposium*, 1987, 1125-1130.
- [Pic 1989] Piché. L, " Phenomena related to the propagation of ultrasound in polymers ", *IEEE Ultrasonics Symposium*, 1989, 599-608.
- [Pin 1998] Ping. H, " Simulation of ultrasound pulse propagation in lossy media obeying a frequency power law ", *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, Vol. 45, 1998, 114-125.
- [Pin 1999] Ping He, " Experimental verification of models for determining dispersion from attenuation ", *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, Vol. 46, 1999, 706-714.
- [Pin 2000] Ping He, " Measurement of acoustic dispersion using both transmitted and reflected pulses, *J. Acoust. Soc. Am*. 107 (2), 2000, 801-807.
- [Puj 2003] Pujol. J, " Elastic Wave propagation and generation in seismology ", Printed in the United Kingdom at the University Press, 2003, 357-389.
- [Sel 1985] Selfridge. A. R, " Approximate material properties in isotropic materials ", *IEEE transactions on sonics and ultrasonics*, Vol SU-32, No 3, May 1985, 381-392.
- [Sim 2004] Simonetti. F, Cawley. P, " Ultrasonic interferometry for the measurement of shear velocity and attenuation in viscoelastic solids ", *J. Acoust. Soc. Am*, 2004, 157-164.

- [Sus 2003] Sushilov. N. V, Cobbold. R. S. C. , " Wave propagation in media whose attenuation is proportional to frequency ", *Wave motion* 38, 2003, 207-219.
- [Sza 1995] Szabo. T, " Causal theories and data for acoustic attenuation obeying a frequency-power law ", *J. Acoust. Soc. Am*, 97 (1), 1995, 14-24.
- [Sza 2000] Szabo. T, Wu.J , " A model for longitudinal and shear wave propagation in viscoelastic media", *J. Acoust. Soc. Am*, 107 (5), 2000, 2437-2446.
- [Tin 1978] Ting. C. S, Sachse. W, " Measurement of ultrasonic dispersion by phase comparison of continuous harmonic waves ", *J. Acoust. Soc. Am*, 64 (3), Sep 1978, 852-857.
- [Tru 1969] Truell. R, Elbaum. C, Chick. B.B, " Ultrasonic Methods in Solid State Physics ", Academic Press 1969, 89-107.
- [Win 2000] Wintle. H. J, "Power law absorption in polymers and other systems", *J. Acoust. Soc. Am*. 107 (3), March 2000, 1770-1773.
- [Zha 2004] Zhao. B, Basir. O. A, Mittal. G. S., " Estimation of ultrasound attenuation and dispersion using short time Fourier transform ", *Ultrasonics* 43, 2005, 375-381.