université de BORDEAUX

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **Benoît TALLON**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : **Mécanique**

.....

Diffusion multiple résonante des ondes ultrasonores dans des milieux désordonnés

.....

Sous la direction de Christophe ARISTÉGUI et Thomas BRUNET

Après avis de :

M.	A. DERODE, Professeur à l'Université Paris VII	**Rapporteurs**
M.	V. TOURNAT, Directeur de recherche CNRS, LAUM	

Soutenue le 30/11/2017 devant la commission d'examen formée de :

M.	C. ARISTÉGUI, Professeur à l'Université de Bordeaux	**Directeur de thèse**
M.	T. BRUNET, Maître de conférences, Bordeaux INP	**Co-directeur**
M.	A. DERODE, Professeur à l'Université Paris VII	**Rapporteur**
M.	J. H. PAGE, Professeur émérite, University of Manitoba	**Invité**
M.	P. ROUX, Directeur de recherche CNRS, ISTerre	**Examinateur**
M.	V. TOURNAT, Directeur de recherche CNRS, LAUM	**Rapporteur**
M.	K. VYNCK, Chargé de recherche CNRS, LP2N	**Examinateur**

- 2017 -

Remerciements

Ces travaux de thèse ont été réalisés dans le département acoustique physique de l'Institut de Mécanique et d'Ingénierie de Bordeaux (I2M). Je remercie les directeurs successifs Éric ARQUIS et Jean-Christophe BATSALE de m'avoir accueilli dans le laboratoire. La collaboration avec John H. PAGE de l'université du Manitoba (Canada) a pu se développer grâce au soutien financier du LabEx AMADEus. Je l'en remercie.

Mes remerciements vont également à Arnaud DERODE et Vincent TOURNAT pour avoir examiné ce manuscrit, et à Philippe ROUX et Kevin VYNCK pour avoir participé au jury. J'ai été sensible à l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance envers Christophe ARISTÉGUI et Thomas BRUNET pour leur soutien indéfectible et pour avoir tout mis en œuvre pour que cette thèse se déroule dans mes meilleures conditions. Merci à Christophe de m'avoir donné le goût de la rigueur et de m'avoir guidé depuis de nombreuses années, et merci à Thomas de son investissement remarquable dans cette thèse et de ses précieux conseils sur tous les aspects du métier de la recherche. Merci également à Olivier PONCELET pour sa présence durant ces trois ans et son aide sur de nombreux points.

Je souhaite également remercier John H. PAGE d'avoir joué un rôle très important dans ces travaux par son aide considérable et sa grande disponibilité. Je suis très honoré d'avoir pu travailler avec John, dont l'intégrité et la bienveillance sont exceptionnelles. Merci également à tous les membres de l'*Ultrasonics Research Laboratory* pour leur accueil chaleureux lors de mes visites à Winnipeg.

J'adresse également mes remerciements à l'ensemble de mes collègues de l'I2M. Merci au personnel technique et administratif, ainsi qu'aux chercheurs permanents et non-permanents du bâtiment A4 pour leur aide et pour les nombreuses discussions ayant régulièrement apporté un regard neuf et utile sur mes travaux.

Enfin, je finis par une pensée à mes parents et à mes amis qui m'ont soutenu durant ces trois années.

Résumé :

La compréhension de phénomènes physiques complexes tels que la diffusion multiple résonante des ondes nécessite l'étude de systèmes modèles parfaitement contrôlés. Lors de ces travaux de thèse, nous proposons l'utilisation d'émulsions résonantes pour l'étude du transport des ondes ultrasonores en milieux désordonnés fortement diffusants. Les constituants de ces émulsions (gouttelettes d'huile fluorée dispersées dans un gel aqueux) ont été choisis pour leur caractère très faiblement absorbant et leur propension à engendrer de très fortes résonances de type-Mie. De plus, la nature fluide de ces systèmes autorise l'exploration in situ du champ acoustique dans le milieu.

Dans un premier temps, nous nous attachons à la description théorique de la propagation des ondes acoustiques dans des émulsions résonantes. Les modes de résonance d'une goutte isolée sont tout d'abord modélisés avant d'étudier la diffusion (simple et multiple) d'une onde acoustique par une population désordonnée d'objets identiques. Les techniques micro-fluidiques employées pour la synthèse de ces systèmes modèles sont ensuite décrites, de même que les dispositifs acoustiques mis en place pour la caractérisation des ondes cohérente et incohérente.

Pour des émulsions diluées, les résultats de ces caractérisations sont analysés dans le cadre d'hypothèses de diffusion indépendante, adaptées aux descriptions de la propagation balistique de l'onde cohérente et du transport diffusif de l'intensité incohérente moyenne. L'estimation expérimentale de la vitesse de l'énergie des ondes multiplement diffusées permet d'établir un lien original entre de précédents travaux menés en optique et en acoustique.

Enfin, lorsque la concentration en diffuseurs augmente, les approximations évoquées précédemment sont mises en défaut. Nous observons alors des phénomènes physiques plus complexes liés à l'interaction entre diffuseurs, comme le transport « sub-diffusif »de l'intensité moyenne laissant entrevoir des perspectives séduisantes quant à l'étude du phénomène de localisation d'Anderson.

Mots-clés : ondes ultrasonores, diffusion multiple résonante, onde cohérente, transport diffusif des ondes acoustiques, localisation des ondes acoustiques.

Abstract :

Complex physical phenomena study, such as resonant multiple scattering of waves, requires well calibrated model systems. During this study, we suggest the use of resonant emulsions to study ultrasonic waves transport in strongly resonant disordered media. Emulsions components (fluorinated oil droplets in a water-based gel) were selected for both their weak absorption and propensity to generate strong Mie-type resonances. Fluid kind of those systems allows furthermore in situ acoustic field probing.

First, we theoretically describe acoustic waves propagation in resonant emulsions. Droplets resonance modes are calculated just as multiple scattering of an acoustic wave by a disordered population of identical objects. Then, micro-fluidic technics used to make such model systems are described as well as acoustic devices designed for both coherent and incoherent waves characterization.

For diluted emulsions, our experimental observations of both the ballistic propagation of coherent wave and diffusive transport of averaged intensity are well described by independent scattering approximations. Energy velocity estimation of multiple scattered waves allows then an original link between pioneering works in optics and acoustics.

Finally, when scatterers concentration increases, previous approximations fail. We thus observe further complex phenomena, which arise from scatterers interactions, such as "sub-diffusive" transport of averaged intensity suggesting attractive prospects for Anderson localization study.

Keywords : ultrasonic waves, resonant multiple scattering, coherent wave, diffusive transport of acoustic waves, localization of acoustic waves.

Table des matières

Table des matières v

Table des figures vi

Introduction générale 1

Bibliographie . . . 3

Chapitre 1 Propagation acoustique en milieux complexes résonants 5

1.1 Diffusion d'une onde acoustique par un objet isolé . . . 6

1.1.1 Formalisme des champs acoustiques impliqués . . . 7

1.1.2 Analyse des champs de pression . . . 11

1.2 Diffusion d'une onde acoustique par une population d'objets . . . 13

1.2.1 Formalisation de la propagation de l'onde cohérente . . . 13

1.2.2 Formalisation du transport des ondes incohérentes . . . 16

1.3 Exemples de systèmes modèles résonants . . . 19

1.3.1 Forêts de tiges d'acier . . . 19

1.3.2 Suspensions de billes de verre . . . 20

1.3.3 Millieux bulleux . . . 22

1.3.4 Émulsions de gouttes d'huile fluorée . . . 23

1.4 Conclusion . . . 23

Bibliographie . . . 25

Chapitre 2 Méthodes et dispositifs expérimentaux 29

2.1 Fabrication d'émulsions résonantes monodisperses . . . 30

2.1.1 Propriétés acoustiques des constituants des émulsions . . . 31

2.1.2 Dispositif microfluidique pour la synthèse d'émulsions . . . 34

2.1.3 Analyse de la structure des émulsions . . . 35

2.2 Caractérisation des propriétés de l'onde cohérente . . . 37

2.2.1 Choix du dispositif expérimental . . . 38

2.2.2 Longueurs caractéristiques . . . 43

2.3 Caractérisation des propriétés de l'onde incohérente . . . 45

2.3.1 Choix du dispositif expérimental . . . 45

2.3.2 Délimitation des différents régimes de transport . . . 51

2.4 Conclusion . . . 52
Bibliographie . . . 54

Chapitre 3 Diffusion multiple dans des émulsions résonantes diluées 57
3.1 Caractérisation de l'onde cohérente . . . 58
3.1.1 Formalisation du nombre d'onde effectif . . . 59
3.1.2 Mesure du nombre d'onde effectif . . . 61
3.2 Caractérisation du champ incohérent . . . 65
3.2.1 Transport de l'intensité moyenne : l'approximation de diffusion . . . 66
3.2.2 Mesure du coefficient de diffusion et du temps caractéristique d'absorption 71
3.3 Confrontation des mesures sur les champs cohérent et incohérent . . . 75
3.3.1 Modélisation de la vitesse de transport . . . 76
3.3.2 Estimation expérimentale de la vitesse de transport . . . 80
3.4 Conclusion . . . 81
A.3 Annexes . . . 82
A.3.1 Calcul de la solution de l'équation de diffusion pour un milieu borné . . . 82
A.3.2 Calcul du coefficient de réflexion moyen . . . 84
A.3.3 Transport diffusif des ultrasons dans un milieu d'extensions latérales finies 85
A.3.4 Expression de la vitesse de transport à l'aide des coefficients A_n . . . 88
Bibliographie . . . 90

Chapitre 4 Diffusion multiple dans des émulsions résonantes concentrées 93
4.1 Propriétés effectives des émulsions concentrées . . . 94
4.1.1 Méthodes d'homogénéisation pour les fortes concentrations . . . 95
4.1.2 Mesure du nombre d'onde effectif pour des émulsions concentrées . . . 98
4.2 Transport de l'intensité moyenne dans des émulsions concentrées . . . 102
4.2.1 Diffusion anormale de l'intensité moyenne . . . 103
4.2.2 Observation expérimentale d'un régime de sub-diffusion . . . 105
4.2.3 Modélisation de la renormalisation de la diffusion . . . 111
4.3 Conclusion . . . 113
4.4 Perspectives . . . 114
4.4.1 Diffusion multiple dans des émulsions ordonnées . . . 114
4.4.2 Diffusion multiple par des suspensions de billes poreuses . . . 118
A.4 Annexes . . . 119
A.4.1 Calcul du nombre d'onde effectif dans le cadre du modèle de Linton & Martin . . . 119
A.4.2 Calcul des amplitudes modales dans le cadre de la GCPA . . . 120
Bibliographie . . . 122

Conclusion générale 125
Bibliographie . . . 127

Table des figures

1.1 Définition du système de coordonnées sphériques 7
1.2 Module $|A_n|$ et phase α_n des amplitudes modales A_n 8
1.3 Amplitude de diffusion $|f(\theta)|$ 9
1.4 Section efficace de diffusion d'une goutte d'huile FC40 immergée dans de l'eau . 10
1.5 Champs de pression impliqués dans la diffusion par un goutte d'huile FC40 . . . 12

2.1 Dispositif expérimental de caractérisation du gel aqueux et de l'huile fluorée . . . 31
2.2 Signal incident pour la caractérisation des constituants 32
2.3 Absorption et célérité du son du gel aqueux 33
2.4 Absorption et célérité du son de l'huile FC40 33
2.5 Dispositif de synthèse des émulsions résonantes 34
2.6 Photographies des émulsions quasi-périodique et aléatoire 35
2.7 Distribution en taille des gouttes d'huile de l'échantillon « test » 36
2.8 Deux cas limites de synthèse d'émulsions 37
2.9 Dispositif de caractérisation de l'onde cohérente. 39
2.10 Estimation expérimentale de l'onde cohérente 40
2.11 Performance de l'estimation de l'onde cohérente 41
2.12 Effets du filtrage numérique sur deux impulsions cohérentes 42
2.13 Corrections des effets de diffraction en champ proche 44
2.14 Dispositif expérimental utilisé dans le groupe de J. H. Page 46
2.15 Dispositif expérimental de caractérisation du champ incohérent 47
2.16 Détails du diaphragme réfléchissant utilisé. 48
2.17 Cartographies des intensités réalisées avec ou sans diaphragme 48
2.18 Impulsion gaussienne incidente pour la caractérisation du champ diffusé 49
2.19 Signal transmis pour une configuration du désordre et intensité moyennée 50
2.20 Critère balistique pour des signaux mesurés dans deux émulsions différentes . . . 51

3.1 Prédictions de l'atténuation et des célérités de l'onde cohérente 60
3.2 Prédictions de l'atténuation et des célérités de l'onde cohérente dans des émulsions polydisperses 62
3.3 Caractérisation du nombre d'onde k dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 5\,\%$ 63

3.4 Caractérisation du nombre d'onde k dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 7\,\%$ . . . 64
3.5 Caractérisation du nombre d'onde k dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 10\,\%$ . . . 65
3.6 Profils temporels de l'intensité moyenne mesurés dans une émulsion diluée 69
3.7 Profil temporel du flux rayonné à travers une surface à l'intérieur de l'échantillon 70
3.8 Effets de l'épaisseur L sur le rapport $J(\rho, z, t)/U(\rho, z, t)$ . . . 71
3.9 Cartographie du rapport $R(\rho, z, t)$ pour l'émulsion diluée $\phi = 5\ \%$ . . . 72
3.10 Extension latérale $w^2(t)$ du halo diffusif pour l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5\ \%$ . . . 73
3.11 Coefficient de diffusion mesuré dans l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5\ \%$ . . 74
3.12 Amplitude et temps caractéristique d'absorption, des courbes de temps de vol . . 75
3.13 Paramètres Δ_1, Δ_2 et Δ_{gr} calculés pour $\phi = 5\,\%$ . . . 78
3.14 Mesure de la célérité de groupe c_{gr} et estimation de la vitesse de transport v_{e} pour l'émulsion diluée . . . 80
3.15 Résultats de mesures acoustique et optique de la célérité de groupe c_{gr} et de la vitesse de transport v_{e} . . . 81
3.16 Extension latérale $w^2(t)$ du halo diffusif mesurée dans un milieu borné . . . 85
3.17 Discrétisation de l'espace en coordonnées cartésiennes et cylindriques . . . 86
3.18 Géométrie utilisée pour le calcul de la diffusion de la densité d'énergie . . . 87
3.19 Courbes de temps de vol et extension latérale $w^2(t)$ dans un milieu fini . . . 88

4.1 Comparaison des modèles de Llyod et Berry, Waterman et Truell et de l'ISA . . 96
4.2 Géométrie utilisée pour le calcul de la fonction de diffusion dans le cadre de la GCPA . . . 97
4.3 Fonction spectrale pour une émulsion de fraction volumique $\phi = 10\,\%$ . . . 98
4.4 Atténuation et célérité de phase calculées avec l'ISA et la GCPA . . . 99
4.5 Estimation de l'onde cohérente dans une émulsion concentrée . . . 100
4.6 Caractérisation du nombre d'onde k dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 25\%$ . . . 101
4.7 Fonction spectrale pour une émulsion de fraction volumique $\phi = 25\%$ . . . 102
4.8 Effets de l'absorption sur le calcul de la fonction spectrale . . . 103
4.9 Mesures (réalisées par le groupe de J. H. Page) de la saturation du halo diffusif . 105
4.10 Mesure du rapport $R(\rho, t)$ dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 30\,\%$ . . 106
4.11 Saturation anormale de l'extension latérale $w^2(t)$ du halo diffusif . . . 107
4.12 Mesure de l'extension latérale $w^2(t)$ dans un échantillon et de fraction volumique $\phi = 30\,\%$ . . . 108
4.13 Mesure de l'extension latérale $w^2(t)$ dans un échantillon et de fraction volumique $\phi = 40\,\%$ . . . 108
4.14 Coefficient de diffusion et temps caractéristique d'absorption en fonction de la fraction volumique ϕ . . . 109

4.15 Mesure de $w^2(t)$ dans un échantillon et de fraction volumique $\phi = 25\,\%$ 110
4.16 Ajustement de la SCT avec les mesures réalisées dans l'émulsion $\phi = 30\,\%$ 112
4.17 Injection test d'un plan ordonné de gouttes 115
4.18 Extensions latérales $w^2(t)$ mesurées dans des émulsions ordonnées 116
4.19 Caractérisation de l'anisotropie de l'émulsion ordonnée 116
4.20 Coefficient de diffusion et temps caractéristique d'absorption pour les émulsions ordonnées 117
4.21 *Codas* caractéristiques mesurées à travers deux systèmes modèles différents . . . 119

Introduction générale

Qu'il s'agisse de recherches appliquées ou fondamentales, le transport des ondes en milieux hétérogènes est un vaste domaine d'étude ayant bénéficié d'un regain d'intérêt au cours des vingt dernières années [1], en particulier sous l'impulsion de domaines émergents tels que les métamatériaux [2]. Dans un milieu homogène idéal (sans perte et non dispersif), une onde se propage de manière balistique et sa célérité est par exemple facilement mesurable par temps de vol si la distance parcourue par l'onde est parfaitement connue. En revanche, la détermination de la célérité (de phase ? de groupe ?) d'un signal se propageant au sein d'un milieu hétérogène fortement diffusant et dispersif est un problème classique posé depuis fort longtemps [3] et en partie résolu [4]. En effet, si ce signal se propage sur quelques longueurs d'onde, tout en résistant au désordre inhérent au milieu de propagation (onde cohérente), la forte interaction qu'il subit avec les nombreux diffuseurs rencontrés sur son chemin lui fait perdre peu à peu sa direction initiale et son énergie au profit d'ondes incohérentes, dites multiplement diffusées. Dans ce processus de diffusion, la vitesse de transport de celles-ci est alors à distinguer des célérités de phase et de groupe de l'onde cohérente évoquées précédemment.

Le problème de la diffusion (élastique) des ondes par des particules sphériques a été initialement traité en électromagnétisme par G. Mie en 1908 [5]. Dans le cas d'une population de particules de taille donnée, deux grands régimes de diffusion sont à distinguer selon la longueur d'onde de l'onde incidente. Lorsque cette dernière est bien plus grande que la taille caractéristique des hétérogénéités, le transport de ces ondes est dicté par la diffusion Rayleigh [1]. Pour ce régime, en considérant une population de diffuseurs ponctuels, l'approximation de Rayleigh conduit à une expression simplifiée de la puissance diffusée qui est inversement proportionnelle à la longueur d'onde à la puissance 4. Ce modèle de diffusion simplifié permet notamment de modéliser la diffusion des ondes lumineuses par les (petites) molécules de l'atmosphère donnant au ciel sa couleur bleue. En revanche, cette approximation n'est plus valide lorsque la longueur d'onde est plus petite que la taille des diffuseurs. C'est le cas par exemple de la diffusion (dite de Mie) des ondes lumineuses par des (grosses) gouttelettes d'eau qui confère aux nuages leur couleur blanche. Dans le régime intermédiaire, pour lequel la longueur d'onde est comparable à la taille des diffuseurs, la diffusion devient résonante et peut altérer très fortement le transport des ondes dans ces milieux hétérogènes. La fréquence et la nature de ces résonances, généralement très marquées, dépendent de la taille et des propriétés des diffuseurs. Il en résulte une description peu triviale de la dépendance fréquentielle des paramètres du transport des ondes dans ces milieux diffusants et résonants [6].

En acoustique, il est bien connu que le grand contraste de compressibilités entre l'air et l'eau entraîne de fortes résonances monopolaires (dites de Minnaert) dans les milieux bulleux. Les larges oscillations isotropes de ces bulles sont alors à l'origine d'une forte atténuation et d'une forte dispersion acoustique dans le milieu [7]. Pour une inclusion rigide et dense suspendue dans un matériau souple (une bille de plomb dans un élastomère par exemple [8]), le centre de masse de l'inclusion oscille selon un mode de vibration dipolaire. Il existe ainsi plusieurs types de résonances multipolaires en fonction des propriétés mécaniques des inclusions et du milieu environant. Bien que le point suivant ne soit pas (ou très peu) développé dans ce manuscrit, il est à noter que ces résonances, parfois qualifiées de « locales », sont essentielles à l'obtention de propriétés exotiques pour les métamatériaux (paramètres effectifs négatifs...) [9].

Sans pour autant rechercher de tels effets, la compréhension des phénomènes de diffusion multiple est essentielle pour de nombreux domaines de recherche et d'application. En acoustique, les interactions multiples d'une onde avec les hétérogénéités du milieu de propagation peuvent être exploitées pour l'imagerie médicale par exemple [10]. Ces interactions peuvent également s'avérer bénéfiques pour la caractérisation de milieux composites [11] ou de la structure terrestre [12]. En effet, contrairement à une propagation balistique, une onde ayant été multiplement diffusée a parcouru une distance beaucoup plus grande dans le milieu et transporte donc une plus grande quantité d'information sur celui-ci. Pour mieux appréhender le transport des ondes multiplement diffusées dans ces divers milieux fortement hétérogènes, il est nécessaire de développer des systèmes modèles calibrés pour l'étude de ces phénomènes complexes en laboratoire.

Bien que de nombreux systèmes modèles aient été rapportés dans la littérature, nous nous intéresserons dans ce travail à un système relativement simple : des émulsions de gouttes d'huile fluorée « lentes » suspendues dans un gel aqueux. Le fort contraste de propriétés acoustiques (en particulier de célérités) entre les deux phases fluides de l'émulsion conduit à l'émergence de fortes résonances multipolaires des gouttes, faisant de ce système un candidat idéal pour l'étude de la diffusion résonante des ultrasons. Dans ces travaux de thèse, il s'agira d'étudier l'influence des résonances sur le transport des ultrasons dans ces systèmes.

Pour cela, les formalismes de la diffusion multiple en acoustique seront détaillés dans la première partie du manuscrit. En particulier, le problème de diffusion d'une onde par un objet isolé permettra d'analyser les résonances d'une goutte d'huile fluorée et d'introduire les différentes quantités nécessaires à l'étude de la propagation en milieu hétérogène. La diffusion des ondes par une population désordonnée d'inclusions sera ensuite décrite. Les solutions de l'équation de propagation en milieu hétérogène étant récursives, nous détaillerons également les différentes approximations permettant d'obtenir une expression du nombre d'onde de l'onde cohérente d'une part (la moyenne d'ensemble de la variable aléatoire représentant le champ) et une équation gouvernant le transport de l'intensité moyenne du champ incohérent d'autre part (la variance de cette variable aléatoire).

Le deuxième chapitre sera consacré à la description des différents dispositifs expérimentaux développés lors de cette étude. Les propriétés acoustiques des deux phases fluides constituant nos émulsions seront tout d'abord caractérisées, puis nous exposerons le protocole microfluidique permettant la synthèse d'émulsions quasi-monodisperses. Enfin, nous détaillerons les deux

dispositifs expérimentaux inédits mis en place au laboratoire pour la caractérisation des ondes cohérente et incohérente.

Le transport des ultrasons dans des émulsions faiblement concentrées sera étudié dans le troisième chapitre. La validité des approximations établies dans le chapitre 1 pour les émulsions résonantes diluées sera testée. Nous observerons ainsi les effets des résonances sur la dispersion de l'onde cohérente et sur le transport des ondes multiplement diffusées. En particulier, la mesure du coefficient de diffusion nous donnera accès à la vitesse de transport de l'intensité des ondes multiplement diffusées pour différentes fréquences. Proche des fréquences de résonance, nous verrons que ces ondes acoustiques sont ralenties par les inclusions comme cela a déjà été prédit en électromagnétisme [13].

La dernière partie de l'étude sera consacrée à l'influence des fortes concentrations sur le transport des ultrasons. Les théories utilisées pour la modélisation de l'onde cohérente dans les systèmes diluées s'avèreront alors moins performantes. Lorsque la concentration augmente, les inclusions sont très proches les unes des autres et il nous faudra tenir compte des nombreuses interactions entre ces objets dans la modélisation du milieu global. Nous verrons également que ces interactions microscopiques auront aussi un effet sur le transport macroscopique de l'intensité moyenne. Aux fréquences de résonance, nous montrerons que le transport des ultrasons est considérablement ralenti aux temps longs par des effets de sub-diffusion. Nos résultats seront alors comparés à des mesures réalisées sur d'autres systèmes modèles fortement diffusants (milieux granulaires frittés), dans lesquels un arrêt total du transport diffusif a été mis en évidence [14]. Ce phénomène, qualifié de localisation d'Anderson [15], a été très largement étudié depuis plus de cinquante ans [16] mais suscite toujours autant d'intérêt, en particulier en optique [17]. Ainsi, depuis les travaux de S. John sur la localisation des ondes classiques [18], ce domaine de recherche reste très actif. L'observation de la sub-diffusion que nous rapporterons dans ce manuscrit laisse à penser que nos systèmes (émulsions résonantes), issus du monde de la matière molle, pourraient offrir des perspectives intéressantes pour l'étude de la localisation d'Anderson des ondes classiques, en particulier des ultrasons.

Bibliographie

[1] P. Sheng. *Introduction to wave scattering, localization and mesoscopic phenomena.* Springer Science & Business Media, 2006.

[2] N. Engheta and R. W. Ziolkowski. *Metamaterials : physics and engineering explorations.* John Wiley & Sons, 2006.

[3] L. Brillouin. *Wave Propagation and Group Velocity.* Academic Press, 1960.

[4] J. H. Page, P. Sheng, H. P. Schriemer, I. Jones, X. Jing, and D. A. Weitz. Group velocity in strongly scattering media. *Science*, **271** :634–637, 1996.

[5] H. C. van de Hulst. *Light scattering by small particles.* Dover, 1981.

[6] A. Lagendijk and B. A. van Tiggelen. Resonant multiple scattering of light. *Phys. Rep.*, **270** :143–215, 1996.

[7] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, and M. G. Scanlon. Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments. *J. Acoust. Soc. Am.*, **123** :1931–1940, 2008.

[8] G. Lepert. *Étude des interactions élasto-acoustiques dans des métamatériaux formés d'inclusions résonantes réparties aléatoirement.* Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, 2013.

[9] Z. Liu, X. Zhang, Y. Mao, Y. Zhu, Z. Yang, C. T. Chan, and P. Sheng. Locally resonant sonic materials. *Science*, **289** :1734–1736, 2000.

[10] R. F. Wagner, S. W. Smith, J. M. Sandrik, and H. Lopez. Statistics of speckle in ultrasound b-scans. *IEEE Trans. Sonics Ultrason.*, **30** :156–163, 1983.

[11] S. Shahjahan, A. Aubry, F. Rupin, B. Chassignole, and A. Derode. A random matrix approach to detect defects in a strongly scattering polycrystal : How the memory effect can help overcome multiple scattering. *Appl. Phys. Lett.*, **104** :234105, 2014.

[12] P. Boué, P. Poli, M. Campillo, H. Pedersen, X. Briand, and P. Roux. Teleseismic correlations of ambient seismic noise for deep global imaging of the earth. *Geophys. J. Int.*, **194** :844–848, 2013.

[13] M. P. van Albada, B. A. van Tiggelen, A. Lagendijk, and A. Tip. Speed of propagation of classical waves in strongly scattering media. *Phys. Rev. Lett.*, **66** :3132–3135, 1991.

[14] H. Hu, A. Strybulevych, J. H. Page, S. E. Skipetrov, and B. A. van Tiggelen. Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network. *Nat. Phys.*, **4** :945–948, 2008.

[15] P. W. Anderson. Absence of diffusion in certain random lattices. *Phys. Rev.*, **109** :1492–1505, 1958.

[16] A. Lagendijk, B. A. Van Tiggelen, and D. S. Wiersma. Fifty years of Anderson localization. *Phys. Today*, **62** :24–29, 2009.

[17] S. E. Skipetrov and J. H. Page. Red light for Anderson localization. *New J. Phys.*, **18** :021001, 2016.

[18] S. John, H. Sompolinsky, and M. J. Stephen. Localization in a disordered elastic medium near two dimensions. *Phys. Rev. B*, **27** :5592–5603, 1983.

Chapitre 1

Propagation acoustique en milieux complexes résonants

Sommaire

1.1 Diffusion d'une onde acoustique par un objet isolé 6

1.1.1 Formalisme des champs acoustiques impliqués 7

1.1.2 Analyse des champs de pression 11

1.2 Diffusion d'une onde acoustique par une population d'objets 13

1.2.1 Formalisation de la propagation de l'onde cohérente 13

1.2.2 Formalisation du transport des ondes incohérentes 16

1.3 Exemples de systèmes modèles résonants 19

1.3.1 Forêts de tiges d'acier 19

1.3.2 Suspensions de billes de verre 20

1.3.3 Millieux bulleux 22

1.3.4 Émulsions de gouttes d'huile fluorée 23

1.4 Conclusion 23

Bibliographie 25

Dans ce chapitre, nous définissons les généralités de la propagation des ondes acoustiques (scalaires) en milieux complexes résonants. Dans le contexte de cette étude, on définit un milieu complexe comme un milieu hétérogène discret (les inclusions constituent des discontinuités de propriétés mécaniques par rapport à la matrice environnante) et désordonné (les positions des inclusions ne présentent pas de corrélation apparente). Dans le régime intermédiaire (lorsque la longueur d'onde devient comparable à la taille des inclusions), les hétérogénéités sont susceptibles d'entrer en résonance et d'impacter fortement la propagation des ondes dans le milieu complexe.

L'étude des ondes se propageant dans de tels milieux peut s'avérer difficile. Il est donc nécessaire de s'affranchir de contraintes supplémentaires (telles que les incertitudes sur la taille ou la concentration des inclusions) en exploitant un système modèle dont les propriétés sont parfaitement connues et maîtrisées. Les émulsions de gouttes d'huile fluorée FC40 suspendues dans un gel aqueux vont se révéler être d'excellents systèmes modèles résonants aussi bien par la simplicité et la maîtrise de leur réalisation, que pour le caractère multipolaire de leurs résonances. Ces fortes résonances sont induites par le du contraste de propriétés acoustiques entre la matrice aqueuse (de célérité du son $c_0 = 1,48\,\mathrm{mm}.\mu\mathrm{s}^{-1}$ et de masse volumique $\rho_0^v = 1\,\mathrm{g.cm}^{-3}$) et les gouttes d'huile fluorée FC40 ($c_1 = 0,64\,\mathrm{mm}.\mu\mathrm{s}^{-1}$ et $\rho_1^v = 1,85\,\mathrm{g.cm}^{-3}$).

Pour décrire les résonances de ces gouttes d'huile fluorée, nous développons dans la première partie de ce chapitre, le formalisme utilisé pour la résolution du problème de diffusion d'une onde plane par un objet isolé. Ceci permettra alors d'introduire toutes les quantités décrivant les propriétés de diffusion d'une inclusion. L'interaction d'une onde avec une population désordonnée d'objets est ensuite détaillée, ainsi que les premières approximations permettant d'obtenir les équations décrivant la propagation de l'onde « cohérente » (qui subit l'impact des diffuseurs sur sa propagation, mais se propage de la même manière que dans un milieu homogène dispersif) et des ondes « incohérentes » (les ondes multiplement diffusées dont les directions de propagation sont analogues à un processus de marche aléatoire).

Enfin le choix des émulsions résonantes est appuyé par un bref état de l'art des systèmes modèles historiquement développés pour l'étude de la propagation des ultrasons en milieux complexes : les forêts de tiges d'acier, les suspensions de billes de verres et les milieux bulleux.

1.1 Diffusion d'une onde acoustique par un objet isolé

L'inclusion isolée étant la brique élémentaire du milieu complexe, nous étudions dans cette première partie, le cas de la diffusion d'une onde harmonique plane par un objet sphérique fluide immergé dans une matrice fluide (les calculs seront en particulier effectuées pour une goutte d'huile fluorée suspendue dans de l'eau). Nous identifierons ainsi les fréquences de résonance de cet objet, ainsi que les effets de ces résonances sur les propriétés de l'onde diffusée. Lors de la description de la diffusion d'une onde par une population d'objets, nous verrons que ces résonances modifient significativement les propriétés acoustiques effectives du milieu hétérogène.

1.1.1 Formalisme des champs acoustiques impliqués

Pour formaliser les champs acoustiques impliqués dans cette étude, nous décrivons tout d'abord la géométrie du problème. Nous considérons une onde plane, harmonique (de pulsation ω) et scalaire, se propageant (suivant l'axe $\vec{e}_z$) dans un milieu indicé 0. Cette onde interagit avec un objet sphérique de rayon a, indicé 1 (fig. 1.1). Dans l'optique de décrire la diffusion des ondes acoustiques par une population de gouttes sphériques, le formalisme est décrit dans cette partie dans un système de coordonnées sphériques (r, θ, φ).

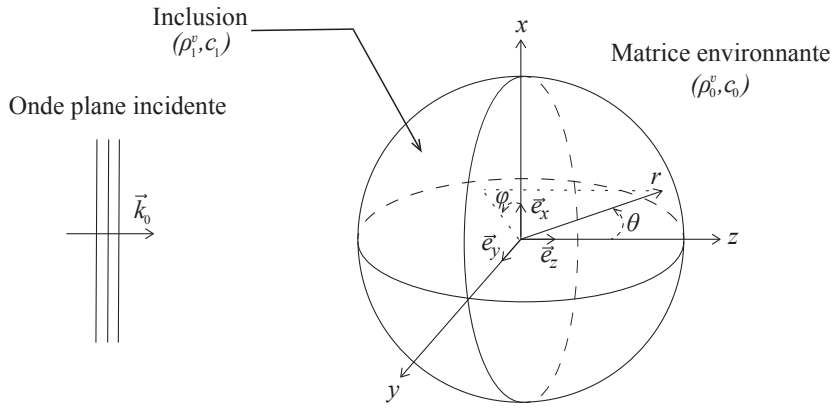

Fig. 1.1 – Système de coordonnées utilisé pour la description d'une onde plane acoustique diffusée par une inclusion sphérique. ρ_i^v et c_i désignent respectivement la masse volumique et la célérité du son du milieu indicé i.

Le choix d'une onde incidente scalaire et plane induit une invariance des champs selon l'angle azimutal φ. Par conséquent, les champs de pression incident P_i (d'amplitude unité), réfracté à l'intérieur de l'inclusion P_r et diffusé P_d, se décomposent sur une base d'harmoniques sphériques de la manière suivante [1] :

$$P_i(r,\theta,t) = \sum_{n=0}^{\infty} \mathrm{j}^n (2n+1) j_n(k_0 r) P_n(\cos\theta) \mathrm{e}^{-\mathrm{j}\omega t},$$

$$P_r(r,\theta,t) = \sum_{n=0}^{\infty} B_n \mathrm{j}^n (2n+1) j_n(k_1 r) P_n(\cos\theta) \mathrm{e}^{-\mathrm{j}\omega t}, \tag{1.1}$$

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

où j_n et h_n sont respectivement les fonctions de Bessel et de Hankel sphériques de première espèce et P_n les polynômes de Legendre. $k_\mathrm{i} = \omega / c_\mathrm{i}$ est le nombre d'onde de l'onde (de pulsation ω) se propageant dans la matrice (de célérité du son c_0) ou dans l'inclusion (de célérité du son c_1). Les nombres d'onde k_0 et k_1 peuvent être à valeurs complexes dans le cas de matériaux absorbants. Ainsi, en considérant α_0 et α_1 les absorptions intrinsèques respectives de la matrice et de l'inclusion, on a $k_0 = \omega/c_0 + \mathrm{j}\alpha_0$ et $k_1 = \omega/c_1 + \mathrm{j}\alpha_1$.

Le calcul des propriétés de diffusion d'une inclusion repose sur la détermination des amplitudes modales A_n et B_n de l'onde diffusée, éq. (1.1). Pour cela, il faut résoudre le problème de continuité des champs de vitesse [a] et de pression à l'interface inclusion/matrice environnante ($r = a$). Ainsi, les amplitudes modales A_n et B_n s'expriment de la manière suivante :

$$A_n = -\frac{q j_n'(k_0 a) j_n(k_1 a) - j_n(k_0 a) j_n'(k_1 a)}{q h_n'(k_0 a) j_n(k_1 a) - h_n(k_0 a) j_n'(k_1 a)}, \tag{1.2}$$

$$B_n = A_n \frac{h_n(k_0 a)}{j_n(k_1 a)} + \frac{j_n(k_0 a)}{j_n(k_1 a)}, \tag{1.3}$$

où l'exposant $'$ désigne la dérivée des fonctions $h_n(x)$ ou $j_n(x)$ par rapport à x. Ces amplitudes modales sont représentées sur la figure 1.2 dans le cas d'une goutte d'huile FC40 immergée dans de l'eau.

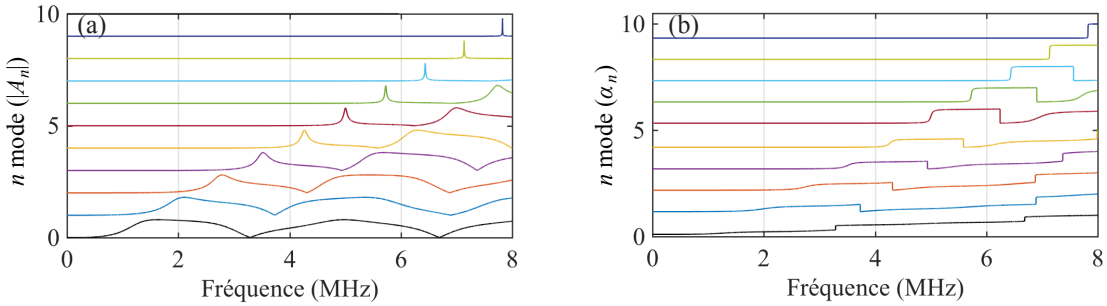

Fig. 1.2 – (a) Module $|A_n|$ et (b) phase α_n des coefficients A_n (pour $n \in [0, 9]$) en fonction de la fréquence d'excitation, pour une goutte d'huile FC40 de rayon $a = 0,170$ mm immergée dans de l'eau.

En notant $A_n = |A_n| e^{j\alpha_n}$, on observe alors des fréquences de résonance repérées par des maxima des amplitudes $|A_n|$ ou des fortes variations de phase α_n. Il s'agit en fait de fréquences particulières auxquelles sont excités différents modes volumiques de déformation de l'inclusion, induits par les contrastes de propriétés mécaniques entre l'inclusion et la matrice. Nous verrons par la suite que ces résonances sont de type de Mie par analogie avec l'optique [2].

En définissant le facteur de qualité Q_n de la résonance d'ordre n (quantifiant la résolution fréquentielle d'une résonance) :

$$Q_n = \frac{f_n}{\Delta f_n}, \tag{1.4}$$

avec f_n la fréquence de la résonance d'ordre n et Δf_n sa largeur à mi-hauteur, la figure 1.2 montre que Q_n augmente avec l'ordre n. Ainsi les résonances hautes fréquences sont plus marquées mais également plus difficiles à détecter expérimentalement (nous verrons que la distribution en taille d'une population d'objets affecte en priorité les résonances dont le facteur de qualité est grand). De plus, lorsque le matériau constituant l'inclusion est absorbant, le facteur de qualité de chaque résonance diminue (les résonances sont amorties). Néanmoins, nous verrons que les effets de la distribution en taille des gouttes ainsi que la dissipation acoustique des matériaux utilisés dans

a. Les champs de vitesse s'expriment également en fonction des amplitudes modales des champs de pression à l'aide de la relation d'Euler.

cette étude sont suffisamment faibles pour observer les six premiers modes de résonance des gouttes d'huile fluorée dans la réponse acoustique d'une population de gouttes d'huile.

Les amplitudes modales A_n nous permettent dans un premier temps de calculer la fonction de diffusion $f(\theta)$ de l'onde diffusée en champ lointain ($P_d(r \gg \lambda_0, \theta) = f(\theta)\mathrm{e}^{\mathrm{j}k_0 r}/r$), en fonction de l'angle de diffusion θ :

$$f(\theta) = \frac{1}{\mathrm{j}k_0} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) A_n P_n(\cos\theta). \tag{1.5}$$

Cette fonction étant à valeurs complexes $f(\theta) = |f(\theta)|e^{\mathrm{j}\varphi(\theta)}$, $|f(\theta)|$ représente l'amplitude et $\varphi(\theta)$ le déphasage induit par l'inclusion sur l'onde diffusée selon la direction faisant un angle θ par rapport à la direction de propagation de l'onde incidente. Ainsi, la fonction $f(0)$ est associée à l'onde diffusée « vers l'avant » et $f(\pi)$ à l'onde rétrodiffusée. La figure 1.3 est une représentation

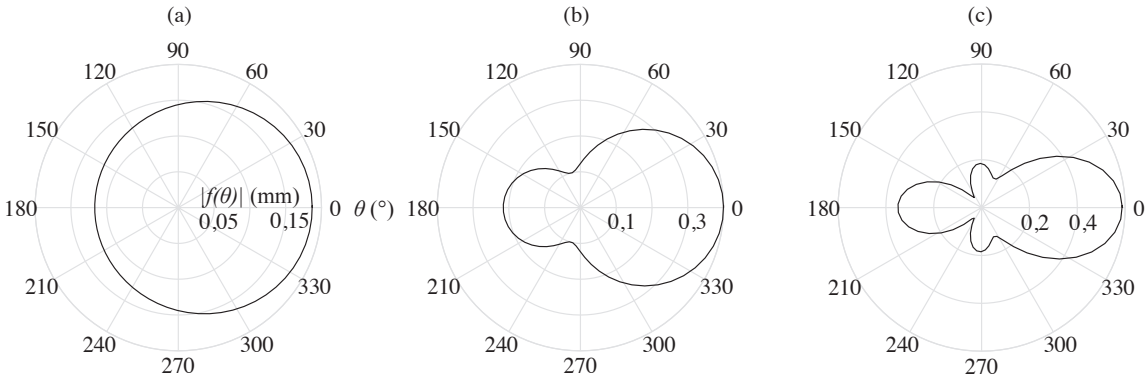

Fig. 1.3 – Représentation de l'amplitude de la fonction de diffusion $|f(\theta)|$ pour les fréquences correspondant aux résonances (a) $n = 0$ (b) $n = 1$ et (c) $n = 2$ pour une goutte d'huile FC40 de rayon $a = 0,170$ mm immergée dans de l'eau.

angulaire de l'amplitude de la fonction de diffusion $|f(\theta)|$ pour les trois premières fréquences de résonance. On remarque le caractère multipolaire des résonances de la goutte d'huile fluorée immergée dans de l'eau. La résonance $n = 0$ (fig. 1.3a) correspond au mode monopolaire. La diffusion est quasi-isotrope et correspond au mode de « respiration » de l'inclusion à l'instar de la réponse acoustique basse fréquence d'une bulle d'air dans de l'eau [3]. La faible anisotropie vers l'avant de $|f(\theta)|$ dans ce cas correspond à l'influence de la résonance dipolaire $n = 1$ dont l'effet commence à être visible à cette fréquence (fig. 1.2a). Les directions de diffusion privilégiées par la résonance $n = 1$ sont $\theta = 0$ et $\theta = \pi$ (fig. 1.3b). Il s'agit d'une résonance de type dipolaire, liée au déplacement du centre de masse de la goutte. Lorsque l'on augmente la fréquence d'excitation, les résonances deviennent plus complexes, mais il est intéressant de remarquer que la fonction de diffusion devient prépondérante pour la direction vers l'avant $\theta = 0$ (fig. 1.3c). L'anisotropie de la diffusion augmente alors avec la fréquence d'excitation.

À partir de cette fonction de diffusion, nous définissons maintenant plusieurs quantités utiles à la description de la propagation de l'onde diffusée.

Les sections efficaces de diffusion

La section efficace différentielle de diffusion $\sigma_d(\theta) = |f(\theta)|^2$ caractérise le pourvoir diffusant de l'inclusion dans la direction θ. On définit également la section efficace totale de diffusion comme l'intégrale sur l'angle solide de la section efficace différentielle σ_d :

$$\sigma_T = 2\pi \int_0^\pi \sin(\theta)|f(\theta)|^2 \mathrm{d}\theta. \tag{1.6}$$

σ_T est homogène à une surface et correspond au rapport de la puissance de l'onde diffusée sur la puissance par unité de surface de l'onde incidente.

La figure 1.4 est une représentation de la dépendance fréquentielle de la section efficace σ_T d'une goutte d'huile FC40 de rayon $a = 0,170\,\mathrm{mm}$ immergée dans de l'eau. Les résonances des inclusions sont marquées par des maxima de σ_T [b] (la diffusion est plus forte pour ces fréquences). L'approximation de grandes longueurs d'onde devant la taille des inclusions (diffusion de Rayleigh) $\sigma_T \propto \omega^4$ [5] est valable pour des fréquences inférieures à la première fréquence de résonance $f < 1,25\,\mathrm{MHz}$.

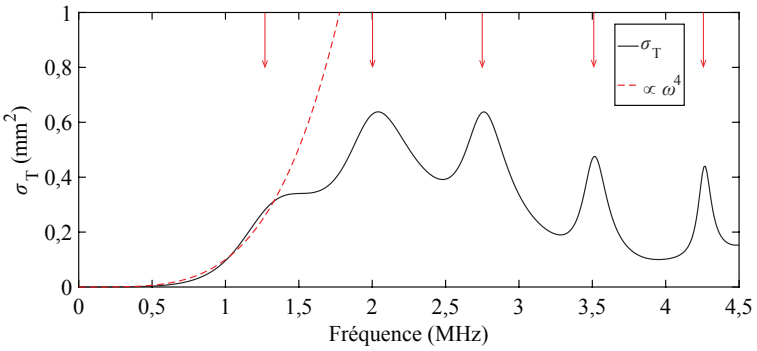

Fig. 1.4 – Section efficace totale de diffusion σ_T d'une goutte d'huile FC40 (dont les fréquences de résonance sont repérées par les flèches rouges) immergée dans de l'eau en fonction de la fréquence d'excitation (en ligne noire continue). L'approximation basse fréquence : $\sigma_T \propto \omega^4$ caractéristique du régime de diffusion de Rayleigh est représentée en ligne rouge discontinue.

Enfin, la section efficace totale de diffusion s'écrit simplement en fonction de la fonction de diffusion vers l'avant $f(0)$ du diffuseur, grâce au *théorème optique* [6] :

$$\sigma_T = \frac{4\pi}{k_0}\mathrm{Im}f(0). \tag{1.7}$$

Ce théorème permet entre autres d'exprimer la distance caractéristique d'atténuation (par diffusion) de l'onde cohérente se propageant dans un milieu homogène équivalent au milieu hétérogène (cf. sec. 3.1.1) : le libre parcours moyen élastique ℓ_e.

b. Cette remarque est vraie pour les résonances des gouttes d'huile FC40. Il existe d'autres types de diffuseurs exhibant certaines résonances marquées par des minima de σ_T [4].

La section efficace de transport

La section efficace de transport σ^* caractérise l'anisotropie de la diffusion. Elle est définie à partir du *cosinus moyen* $< \cos\theta >$ (ou facteur d'anisotropie) de la manière suivante :

$$\sigma^* = \sigma_T(1- < \cos\theta >), \tag{1.8}$$

avec :

$$< \cos\theta >= \frac{2\pi \int_0^\pi |f(\theta)|^2 \cos(\theta)\sin(\theta)\mathrm{d}\theta}{\sigma_T}. \tag{1.9}$$

On remarque que si la diffusion est isotrope (pour la résonance monopolaire de la goutte d'huile immergée), nous avons $|f(\theta)|^2 \rightarrow cste$ et $< \cos\theta > \rightarrow 0$. En revanche, si la diffusion est très marquée dans la direction $\theta = \theta_0$, nous avons $|f(\theta)|^2 \rightarrow \delta(\theta - \theta_0)$ et dans ce cas $< \cos\theta > \rightarrow \cos(\theta_0)$. On obtient ainsi pour la goutte d'huile fluorée dans de l'eau à haute fréquence : $\theta_0 = 0$ et $< \cos\theta > \rightarrow 1$. La section efficace de transport servira alors à déterminer la distance caractéristique après laquelle une onde se propageant dans un milieu hétérogène perd la mémoire de sa direction de propagation initiale : le libre parcours moyen de transport ℓ^*.

Le retard de diffusion

Les résonances impactent également la phase de l'onde diffusée, *via* la phase $\varphi(\theta)$ de la fonction de diffusion $f(\theta)$. Le retard subi par une impulsion [c] diffusée de pulsation centrale ω, est défini par [10] :

$$\delta_D = \frac{1}{\sigma_T}\left[\frac{2\pi}{k_0}\frac{\partial \mathrm{Re} f(0)}{\partial\omega} + 2\pi\int_0^\pi |f(\theta)|^2 \frac{\partial\varphi(\theta)}{\partial\omega}\sin(\theta)\mathrm{d}\theta\right]. \tag{1.10}$$

Nous verrons que dans le cas de gouttes d'huile FC40 immergées dans de l'eau, le contraste de célérités du son entre ces deux matériaux induit un temps de retard très important ayant pour effet de modifier significativement la vitesse de transport des ondes multiplement diffusées dans les émulsions, au voisinage des fréquences de résonance.

1.1.2 Analyse des champs de pression

Afin de mieux appréhender le comportement de la goutte d'huile FC40 au voisinage des fréquences de résonance, nous présentons dans ce paragraphe les calculs des champs de pression impliqués dans le problème de diffusion par un objet isolé, résultant d'une excitation plane monochromatique. Ces champs sont calculés dans le système de coordonnées sphériques (défini sur la figure 1.1) à partir des définitions de l'équation (1.1) et représentés dans le plan (x, z) sur la figure 1.5 (le problème étant indépendant de l'angle φ pour une excitation en onde plane), pour trois fréquences d'excitation correspondant aux trois premiers modes de résonance de la goutte. Sur cette représentation, l'échelle de couleurs correspond à l'amplitude de la pression en chaque point de l'espace, allant du bleu pour les dépressions acoustiques au jaune pour les surpressions.

Ce calcul permet de comprendre l'analogie entre les résonances de Mie pour les ondes lumineuses et les résonances multiplolaires des gouttes d'huile fluorée pour les ultrasons. En effet,

c. Ce retard de diffusion est une quantité dynamique qui n'est pas définie pour une onde monochromatique [7,8] à l'instar du temps de groupe en milieu homogène [9].

chaque résonance correspond à un multiple de la demi-longueur d'onde à l'intérieur de la goutte $\lambda_1/2$, induisant différents modes de déformation de l'inclusion. La fréquence de résonance est donc inversement proportionnelle au rayon de l'inclusion : si l'objet est plus grand, la longueur d'onde λ_1 doit également être plus grande pour exciter la résonance de celui-ci.

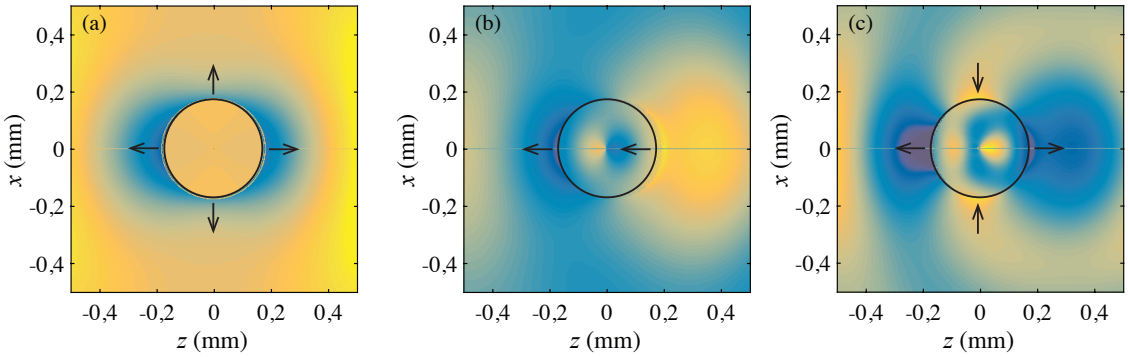

Fig. 1.5 – Champs de pression simulés pour les trois premiers modes de résonance d'une goutte d'huile FC40 immergée dans de l'eau : (a) monopolaire, (b) dipolaire et (c) quadripolaire. L'échelle de couleurs représente la pression par rapport à la pression ambiante (sans excitation) avec les surpressions en jaune et les dépressions en bleu. Les flèches noires indiquent les déplacements de la frontière de l'inclusion (en cercle noir).

Lorsque la demi-longueur d'onde de l'onde réfractée à l'intérieur de l'inclusion $\lambda_1/2$ correspond au diamètre $2a$ de la sphère (fig. 1.5a), le mode de résonance monopolaire (d'ordre $n = 0$) de l'inclusion est excité. Il s'agit d'une succession de compression/dilatation de la goutte d'huile sans déplacement de son centre de masse. Le contraste de compressibilités entre l'inclusion et le milieu environnant doit donc être important pour générer ce type de résonance (de manière analogue à la résonance de Minnaert pour une bulle d'air dans de l'eau).

La deuxième fréquence d'excitation, représentée sur la figure 1.5b, correspond à la résonance dipolaire ($n = 1$) de la goutte. Dans ce cas, la longueur d'onde λ_1 correspond au diamètre $2a$ de la sphère qui ne se déforme pas mais dont la position du centre de masse oscille. Le contraste de masses volumiques entre l'inclusion et la matrice est responsable de ce type de comportement, de la même manière que pour des billes de plomb dans une matrice élastomère [11].

Enfin la dernière représentation (fig. 1.5c) correspond à la résonance quadripolaire ($n = 2$) de la goutte. Il s'agit d'une déformation uni-axiale de la sphère (successivement suivant les axes x et z) se produisant lorsque $4 \times \lambda_1/2 = 2a$. La fonction de diffusion à cette fréquence de résonance présente alors quatre maxima locaux (fig. 1.3c).

Lorsque l'on augmente l'ordre n de la résonance (ou la fréquence d'excitation), les modes de déformation de la goutte deviennent plus complexes et la fonction de diffusion $f(\theta)$ devient prépondérante dans la direction $\theta = 0$. Ces résonances sont cependant difficiles à observer expérimentalement lors de la diffusion d'une onde par une population de gouttes. En effet, toutes les gouttes n'ont pas exactement la même taille et résonnent donc pour des fréquences

légèrement différentes. Ces résonances ont des facteurs de qualité Q_n très élevés et sont alors masquées.

1.2 Diffusion d'une onde acoustique par une population d'objets

Après avoir introduit les différentes quantités caractérisant les propriétés de diffusion d'un objet isolé, la propagation des ondes en milieux hétérogènes est modélisée dans cette section. Nous considérons pour cela une population désordonnée d'objets discrets suspendus dans une matrice de référence. La propagation d'une onde acoustique dans ce milieu de référence est décrite grâce à la fonction de Green G_0, solution de l'équation de Green en milieu homogène. Nous verrons alors que les fluctuations des propriétés mécaniques du milieu hétérogène, induites par les objets, conduisent à une expression récursive de la fonction de Green G en milieu hétérogène.

Le milieu étant désordonné, le champ acoustique en présence $\psi = G * \psi_0$ (ψ_0 dénotant le champ de pression incident et $*$ le produit de convolution) peut être vu comme une variable aléatoire :

$$\psi =< \psi > +\delta\psi, \tag{1.11}$$

où $< \psi >$ désigne la moyenne d'ensemble (sur les configurations du désordre) de ψ appelée champ cohérent. Le champ incohérent $\delta\psi$ décrit les fluctuations aléatoires du champ ψ ($< \delta\psi >= 0$). Décrivons les évolutions de $\delta\psi$ à l'aide de son intensité moyenne :

$$< |\delta\psi|^2 >=< |\psi|^2 > -| < \psi > |^2.$$

L'enjeu est maintenant d'établir les expressions de la fonction de Green moyenne $< G >$ et de l'autocorrélation de la fonction de Green [d] $< GG^* >$. Reprenons pour cela les développements établis par A. Tourin [12], qui conduisent à l'expression du nombre d'onde effectif k de l'onde cohérente et à l'équation du transfert radiatif gouvernant l'intensité spécifique I. Enfin, nous décrivons les travaux de A. Lagendijk et de ses collaborateurs [8, 10] pour prendre en compte dans la modélisation du champ incohérent, les retards induits par le contraste de célérités du son entre l'huile fluorée et le gel aqueux.

1.2.1 Formalisation de la propagation de l'onde cohérente

Propagation en milieu homogène

La propagation à la célérité c_0 d'une onde acoustique, de champ de pression $P_0(\vec{r}, t)$ en milieu homogène non absorbant est décrite au point $\vec{r}$ et à l'instant t par l'équation de propagation :

$$\Delta P_0(\vec{r}, t) - \frac{1}{c_0^2}\frac{\partial^2 P_0(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = 0. \tag{1.12}$$

Si l'onde considérée est monochromatique de pulsation ω ($P_0(\vec{r}, t) = \psi(\vec{r})\mathrm{e}^{-\mathrm{j}\omega t}$), l'équation (1.12) conduit à l'équation de Helmholtz :

$$\Delta\psi(\vec{r}) + k_0^2\psi(\vec{r}) = 0. \tag{1.13}$$

d. G^* représente le conjugué de la fonction de Green G.

La fonction de Green $G_0(\vec{r},\vec{r}_s,\omega)$ est la réponse impulsionnelle du milieu au point $\vec{r}$ pour une source ponctuelle placée en $\vec{r}_s$. Elle obéit alors à l'équation suivante :

$$\Delta G_0(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) + k_0^2 G_0(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) = \delta(\vec{r}-\vec{r}_s). \tag{1.14}$$

Dans l'espace de Fourier spatial (de variable $\vec{p}$), l'équation (1.14) conduit à l'expression suivante de la fonction de Green en milieu homogène :

$$\widetilde{G}_0(p,\omega) = \frac{1}{k_0^2 - p^2}, \tag{1.15}$$

où p désigne le module du vecteur $\vec{p}$. Les modes de propagation dans ce milieu homogène sont alors déterminés à l'aide de l'équation de dispersion $k_0^2 = p^2$. G_0 décrira la propagation des ondes n'ayant subi aucune interaction avec les inclusions ou encore la propagation entre deux objets.

Propagation en milieu hétérogène

Un milieu hétérogène peut être modélisé comme un milieu de propagation dont la célérité du son $c(\vec{r}) = 1/\sqrt{\rho^v(\vec{r})\chi(\vec{r})}$ dépend de l'espace (avec $\rho^v(\vec{r})$ la masse volumique et $\chi(\vec{r})$ la compressibilité du milieu au point $\vec{r}$). L'équation de Helmholtz (1.13) compte maintenant un terme source :

$$\Delta\psi(\vec{r}) + k_0^2\psi(\vec{r}) = k_0^2 V(\vec{r})\psi(\vec{r}), \tag{1.16}$$

où l'opérateur « potentiel » : $V(\vec{r}) = (1 - c_0^2/c(\vec{r})^2) + \frac{\nabla\rho^v}{\rho_0^v k_0^2}.\nabla$ caractérise l'hétérogénéité du milieu [12]. L'équation de Green correspondante s'écrit alors :

$$\Delta G(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) + k_0^2 G(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) = \delta(\vec{r}-\vec{r}_s) + k_0^2 V(\vec{r})G(\vec{r},\vec{r}_s,\omega). \tag{1.17}$$

La fonction de Green en milieu hétérogène, solution de cette équation, s'exprime de la manière suivante :

$$G(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) = G_0(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) + k_0^2 \int G_0(\vec{r},\vec{r}_1,\omega)V(\vec{r}_1)G(\vec{r}_1,\vec{r}_s,\omega)\mathrm{d}\vec{r}_1. \tag{1.18}$$

En d'autres termes, l'onde se propageant dans le milieu hétérogène dépend à la fois du champ non diffusé (représenté par G_0) et des hétérogénéités (représentées par V) affectant le champ acoustique en présence (modélisé par G). Cette écriture étant récursive, l'équation (1.18) s'écrit également sous la forme d'une série tenant compte de l'infinité des évènements de diffusion (développement de Born) :

$$\begin{aligned}
&G(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) = G_0(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) + \\
&k_0^2 \textstyle\int G_0(\vec{r},\vec{r}_1,\omega)V(\vec{r}_1)G_0(\vec{r}_1,\vec{r}_s,\omega)\mathrm{d}\vec{r}_1 + \\
&k_0^4 \textstyle\int G_0(\vec{r},\vec{r}_1,\omega)V(\vec{r}_1)G_0(\vec{r}_1,\vec{r}_2,\omega)V(\vec{r}_2)G_0(\vec{r}_2,\vec{r}_s,\omega)\mathrm{d}\vec{r}_1\mathrm{d}\vec{r}_2 + \\
&k_0^6 \textstyle\int G_0(\vec{r},\vec{r}_1,\omega)V(\vec{r}_1)G_0(\vec{r}_1,\vec{r}_2,\omega)V(\vec{r}_2)G_0(\vec{r}_2,\vec{r}_3,\omega)V(\vec{r}_3)G_0(\vec{r}_3,\vec{r}_s,\omega)\mathrm{d}\vec{r}_1\mathrm{d}\vec{r}_2\mathrm{d}\vec{r}_3 \ + \ ...
\end{aligned} \tag{1.19}$$

Le premier terme du membre de droite de ce développement représente la contribution de l'onde non diffusée et les lignes suivantes représentent respectivement les évènements de diffusion simple, double et triple. L'écriture de l'équation (1.19) sous forme d'opérateurs [13] :

$$\mathbf{G} = \mathbf{G_0} + \mathbf{G_0 V G_0} + \mathbf{G_0 V G_0 V G_0} + \mathbf{G_0 V G_0 V G_0 V G_0} + ... \tag{1.20}$$

présente l'intérêt d'être plus compacte. Les milieux étudiés étant inclusionnaires (discrets), l'opérateur $\mathbf{V}$ s'exprime en fonction de la somme des opérateurs propres à chaque objet i : $\mathbf{V} = \sum_i \mathbf{V}_i$ [12]. Ainsi, les termes de la forme $\sum_{i,j\neq i} \mathbf{G}_0\mathbf{V}_i\mathbf{G}_0\mathbf{V}_j\mathbf{G}_0$ représentent les évènements de diffusion indépendante entre les objets i et j, alors que les termes de la forme $\sum_{i,j\neq i} \mathbf{G}_0\mathbf{V}_i\mathbf{G}_0\mathbf{V}_j\mathbf{G}_0\mathbf{V}_i\mathbf{G}_0$ correspondent à des évènements de diffusion récurrente (ou boucle de diffusion) sur l'objet i.

En introduisant l'opérateur :

$$\mathbf{T} = \mathbf{V} + \mathbf{V}\mathbf{G}_0\mathbf{V} + \mathbf{V}\mathbf{G}_0\mathbf{V}\mathbf{G}_0\mathbf{V} + ..., \tag{1.21}$$

qui tient compte de l'infinité des évènements de diffusion, l'équation (1.20) s'écrit également sous la forme $\mathbf{G} = \mathbf{G}_0 + \mathbf{G}_0\mathbf{T}\mathbf{G}_0$. De la même manière que pour $\mathbf{V}$, on définit l'opérateur $\mathbf{T}_i = \mathbf{V}_i + \mathbf{V}_i\mathbf{G}_0\mathbf{V}_i + ...$ pour chaque objet isolé i. Il relie le champ diffusé $\psi_d(\vec{r})$ par l'objet i au champ incident ψ_0 :

$$\psi_d = \mathbf{G}_0\mathbf{T}_i\psi_0. \tag{1.22}$$

L'écriture dans le domaine de Fourier spatial (de variable $\vec{p}$) de l'opérateur élémentaire $\mathbf{T}_i$, conduit à : $\widetilde{T}_i(\vec{p},\vec{p}_s,\omega) = \frac{-1}{4\pi} f(\vec{p},\vec{p}_s,\omega)$, où f désigne la fonction de diffusion (1.5) et $\vec{p}_s$ la direction de l'onde incidente.

Calcul de la fonction de Green moyenne

Si les positions des objets sont indépendantes [e], la moyenne d'ensemble $<>$ de la fonction de Green $< \mathbf{G} >= \mathbf{G}_0 + \mathbf{G}_0 < \mathbf{T} > \mathbf{G}_0$ s'exprime sous la forme intégrale suivante :

$$< G(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) >= G_0(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) + \int G_0(\vec{r},\vec{r}_1,\omega)\Sigma(\vec{r}_1,\vec{r}_2,\omega) < G(\vec{r}_1,\vec{r}_s,\omega) > \mathrm{d}\vec{r}_1\mathrm{d}\vec{r}_2, \tag{1.23}$$

où apparaît l'*opérateur de masse* Σ. Si les paramètres du milieu hétérogène sont invariants par translation dans l'espace, $< G >$, G_0 et Σ ne dépendent que de la différence $(\vec{r}-\vec{r}_s)$, et l'équation (1.23) s'écrit comme suit dans le domaine de Fourier spatial de variable $\vec{p}$:

$$< \widetilde{G}(\vec{p},\omega) >= \widetilde{G}_0(\vec{p},\omega) + \widetilde{G}_0(\vec{p},\omega)\widetilde{\Sigma}(\vec{p},\omega) < \widetilde{G}(\vec{p},\omega) > . \tag{1.24}$$

En substituant la relation (1.15) dans l'expression (1.24), la fonction de Green moyenne en milieu hétérogène prend finalement la forme suivante :

$$< \widetilde{G}(\vec{p},\omega) >= \frac{1}{k_0(\omega)^2 - \widetilde{\Sigma}(\vec{p},\omega) - p^2}. \tag{1.25}$$

Si l'*opérateur de masse* Σ dépend faiblement de la variable $\vec{p}$, nous écrivons que $\widetilde{\Sigma}(\vec{p},\omega) \approx \widetilde{\Sigma}(\omega)$ (pour des diffuseurs ponctuels ou de très faibles concentrations en diffuseurs par exemple). Le milieu de propagation peut être vu comme un milieu effectif (milieu homogène équivalent au milieu inclusionnaire du point de vue acoustique). La fonction de Green moyenne (1.25) prend alors la même forme que $G_0(\vec{p},\omega)$ (éq. 1.15) : $< \widetilde{G}(\vec{p},\omega) >= 1/(k^2 - p^2)$, où k est le nombre d'onde effectif défini par la relation :

$$k(\omega)^2 = k_0(\omega)^2 - \widetilde{\Sigma}(\omega). \tag{1.26}$$

e. Si les opérateurs $\mathbf{T}_i$ sont indépendants, on écrit par exemple :
$\sum_{i,j} < \mathbf{T}_i\mathbf{G}_0\mathbf{T}_j >= \sum_{i,j} < \mathbf{T}_i > \mathbf{G}_0 < \mathbf{T}_j >$.

Ainsi la fonction de Green moyenne $< G >$ décrit la propagation de l'onde cohérente *via* le nombre d'onde effectif k. Les différentes modélisations du nombre d'onde k reposent sur le calcul de l'*opérateur de masse* $\widetilde{\Sigma}(\omega)$ sous certaines approximations comme l'*Independant Scattering Approximation* (ISA) pour des milieux dilués, approximation qui consiste à ne considérer que les évènements de diffusion indépendante (étudiés au chapitre 3) : $\widetilde{\Sigma}(\omega) = \eta \widetilde{T}_{\vec{p}\vec{p}(\omega)}$. Pour les milieux concentrés présentés au chapitre 4, l'opérateur Σ dépend de la variable $\vec{p}$. D'autres approches doivent alors être envisagées, telles que la détection des *quasi-modes* de propagation par le calcul de la fonction spectrale (liée à la partie imaginaire de la fonction de Green moyenne $< G >$) [5].

Enfin, le nombre d'onde effectif étant à valeurs complexes $k = k' + \mathrm{j}k''$, on définit la célérité de phase $c_{\mathrm{ph}} = \omega/k'$ et l'atténuation $\alpha = k''$ de l'onde cohérente. Les résonances des inclusions impacteront la dispersion et l'atténuation du milieu effectif.

1.2.2 Formalisation du transport des ondes incohérentes

L'Équation de Bethe-Salpeter

Dans cette sous section, nous décrivons le transport de l'intensité moyenne $< |\psi|^2 >$ en milieu hétérogène. De la même manière que pour le champ cohérent, calculons l'autocorrélation de la fonction de Green en milieu hétérogène : $< GG^* >$. L'équation gouvernant de manière exacte cette quantité est l'équation de *Bethe-Salpeter*, qui s'écrit sous une forme similaire à l'équation (1.23) pour la fonction de Green moyenne sous forme intégrale [5, 8, 12] :

$$\begin{aligned}
&< G(\vec{r},\vec{r}_s,\omega)G^*(\vec{\rho},\vec{\rho}_s,\omega) >= \\
&< G(\vec{r},\vec{r}_s,\omega) >< G^*(\vec{\rho},\vec{\rho}_s,\omega) > + \\
&\int < G(\vec{r},\vec{r}_1,\omega) >< G^*(\vec{\rho},\vec{\rho}_1,\omega) > \Gamma(\vec{r}_1,\vec{\rho}_1,\vec{r}_2,\vec{\rho}_2,\omega) < G(\vec{r}_2,\vec{r}_s,\omega)G^*(\vec{\rho}_2,\vec{\rho}_s,\omega) > \mathrm{d}\vec{r}_1\mathrm{d}\vec{r}_2\mathrm{d}\vec{\rho}_1\mathrm{d}\vec{\rho}_2,
\end{aligned} \tag{1.27}$$

où Γ est appelé *vertex irréductible*. Il s'agit de la quantité analogue à l'*opérateur de masse* Σ pour la description de $< GG^* >$. L'équation de *Bethe-Salpeter* est également récursive et prend en compte tous les évènements de diffusion entre $(\vec{r},\vec{r}_s)$ et $(\vec{\rho},\vec{\rho}_s)$. Le premier terme du membre de droite de l'équation (1.27) représente la contribution de l'intensité cohérente et le second terme, l'intensité incohérente. En considérant un paquet d'ondes avec la pulsation ω et le vecteur d'onde $\vec{p}$ relatifs à la porteuse, et la pulsation Ω et le vecteur d'onde $\vec{q}$ relatifs à l'enveloppe, l'équation de *Bethe-Salpeter* s'exprime de la manière suivante [12] :

$$\left[\frac{\mathrm{j}\omega\Omega}{c_0^2} - \mathrm{j}\vec{p}.\vec{q} + \Delta\widetilde{\Sigma}_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q})\right]\Phi_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q}) = \Delta\widetilde{G}_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q})\left[1 + \sum_{\vec{p}_s}\widetilde{\Gamma}_{\omega\vec{p}\vec{p}_s}(\Omega,\vec{q})\Phi_{\omega\vec{p}_s}(\Omega,\vec{q})\right], \tag{1.28}$$

avec :

$$\begin{aligned}
\Delta\widetilde{\Sigma}_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q}) &= \tfrac{1}{2\mathrm{j}}\left\{\widetilde{\Sigma}(\omega+\Omega/2,\vec{p}+\vec{q}/2) - \widetilde{\Sigma}(\omega-\Omega/2,\vec{p}-\vec{q}/2)\right\}, \\
\Delta\widetilde{G}_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q}) &= \tfrac{1}{2\mathrm{j}}\left\{\widetilde{G}(\omega+\Omega/2,\vec{p}+\vec{q}/2) - \widetilde{G}(\omega-\Omega/2,\vec{p}-\vec{q}/2)\right\},
\end{aligned} \tag{1.29}$$

et $\Phi_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q})$ désigne la transformée de Laplace relativement au temps et la transformée de Fourier relativement à l'espace, de $< GG^* >$. Cette nouvelle quantité correspond, à des constantes près [8], à l'intensité spécifique $I(\vec{r},\vec{u},t)$ soit la densité de puissance rayonnée à travers une surface de normale $\vec{u} = \vec{p}/||\vec{p}||$ par unité d'angle solide.

L'équation (1.28) peut s'interpréter comme une équation de transport pour la double transformée $\Phi_{\omega\vec{p}}$ [8, 12] : les deux premiers termes du membre de gauche correspondent à la dérivée particulaire $\partial/\partial t + c_0.\nabla$ de $\Phi_{\omega\vec{p}}$. Le troisième terme $\Delta\widetilde{\Sigma}_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q})\Phi_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q})$ représente l'extinction de l'onde cohérente (gouvernée par Σ). Le premier terme du membre de droite est un terme source et $\sum_{\vec{p}_s}\widetilde{\Gamma}_{\omega\vec{p}\vec{p}_s}(\Omega,\vec{q})\Phi_{\omega\vec{p}_s}(\Omega,\vec{q})$ représente les « gains » par diffusion (selon la direction $\vec{p}$, pour des sollicitations selon l'ensemble des directions $\vec{p}_s$). Cette équation ne peut être résolue de façon exacte (les quantités Σ et Γ tenant compte de tous les évènements de diffusion). Il existe cependant une approximation similaire à l'approximation de diffusion indépendante pour l'*opérateur de masse* Σ, appelée approximation de *Boltzmann* ou *Ladder Approximation*[f] conduisant au calcul du *vertex irréductible* :

$$\widetilde{\Gamma}_{\omega\vec{p}\vec{p}_s}(\Omega,\vec{q}) \approx \eta\widetilde{T}(\vec{p},\vec{p}_s,\omega+\Omega/2)\widetilde{T}^*(\vec{p},\vec{p}_s,\omega-\Omega/2). \tag{1.30}$$

Cette nouvelle approximation s'interprète de la manière suivante : l'intensité incohérente est uniquement issue de l'intensité de chaque séquence de diffusions, prise de manière indépendante (en négligeant les interactions entre les ondes multiplement diffusées et les séquences de diffusions récurrentes).

Au fur et à mesure de sa propagation et des évènements de diffusion, l'onde cohérente perd de l'énergie en faveur des ondes multiplement diffusées. Il existe alors une relation entre l'onde cohérente et les ondes incohérentes, et en particulier entre l'*opérateur de masse* Σ et le *vertex irréductible* Γ. Un telle relation, appelée *Identité de Ward*, est obtenue en intégrant l'équation (1.28) sur toutes les directions $\vec{p}$ sous l'hypothèse de régime stationnaire, c'est-à-dire $\Omega \approx 0$. Pour un tel régime, si les effets d'absorption sont négligés, l'extinction de l'onde cohérente correspond aux gains des ondes incohérentes. L'*Identité de Ward* devient [8] :

$$\Delta\widetilde{\Sigma}_{\omega\vec{p}}(\vec{q}) = \sum_{\vec{p}_s}\widetilde{G}_{\omega\vec{p}_s}(\vec{q})\widetilde{\Gamma}_{\omega\vec{p}_s\vec{p}}(\Omega,\vec{q}). \tag{1.31}$$

Dans l'espace $(\vec{r},t)$, les approximations (1.30) et (1.31) conduisent à l'équation du transfert radiatif gouvernant l'intensité spécifique (sans source et sans perte) :

$$\frac{1}{v_\mathrm{e}}\frac{\partial I(\vec{r},\vec{u},t)}{\partial t} + \vec{u}.\vec{\nabla}I(\vec{r},\vec{u},t) = -\frac{I(\vec{r},\vec{u},t)}{\ell_\mathrm{e}} + \eta\int d\theta_{u_s}\sigma_d(\vec{u},\vec{u}_s)I(\vec{r},\vec{u}_s,t), \tag{1.32}$$

où θ_{u_s} est l'angle solide autour du vecteur unitaire $\vec{u}_s = \vec{p}_s/||\vec{p}_s||$ et v_e la vitesse de transport de l'énergie (décrite dans le chapitre 3) égale à la célérité de phase c_ph de l'onde cohérente dans le cas d'inclusions non résonantes. Le libre parcours moyen élastique $\ell_e(=1/2\alpha)$ est la distance caractéristique d'atténuation de l'intensité de l'onde cohérente. La dérivée de l'intensité spécifique par rapport au temps (le premier terme du membre de gauche de l'équation 1.32) a été introduite pour compenser l'approximation $\Omega \approx 0$. L'interprétation de l'équation (1.32) est similaire à celle de l'équation (1.28) : les variations de l'intensité spécifique $I(\vec{r},t)$ à l'instant t, au point $\vec{r}$ et dans la direction $\vec{u}$ sont dues aux pertes par atténuation de l'intensité de l'onde cohérente, ainsi qu'aux gains par diffusion selon la direction $\vec{u}$ pour des sollicitations selon l'ensemble des directions $\vec{u}_s$.

f. La dénomination *Ladder Approximation* provient de l'écriture sous forme de « diagrammes en échelle » de cette approximation [12].

Nous verrons dans le chapitre 3 que cette dernière équation se réduit sous certaines approximations à une équation de diffusion (au sens diffusion de la chaleur) satisfaite par le coefficient de diffusion caractéristique D. Cette équation gouverne le comportement de la densité d'énergie U qui correspond à la quantité effectivement mesurée. En d'autres termes, si les ondes multiplement diffusées n'interagissent pas entre elles et ne subissent pas de retard de diffusion, le transport de l'intensité incohérente est analogue à un processus de marche aléatoire d'une particule, et suit en moyenne un processus diffusif. Lorsque les approximations de diffusion indépendante ne sont plus vérifiées, les interactions entre les ondes multiplement diffusées conduisent potentiellement au transport « sub-diffusif » de l'intensité moyenne.

Pour des inclusions fortement résonantes, le retard de diffusion affecte l'identité de Ward (1.31) (les pertes par diffusion n'alimentent plus directement les ondes incohérentes). Dans ce cas, il n'est plus raisonnable d'utiliser l'approximation de régime stationnaire $\Omega \approx 0$ (la dépendance temporelle de $\Phi_{\omega\vec{p}}$ est modifiée) et l'intégration de l'équation (1.28) dans le régime dynamique ($\Omega \neq 0$) donne [8] :

$$\begin{aligned} &\omega \sum_{\vec{p}} \Delta\widetilde{G}_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q}) = \mathrm{j}\Omega\widetilde{U}_{\omega}(\Omega,\vec{q}) - \mathrm{j}\vec{q}.\widetilde{J}_{\omega}(\Omega,\vec{q}) + \\ &\omega \sum_{\vec{p}} \left[\Delta\widetilde{\Sigma}(\Omega,\vec{q}) - \textstyle\sum_{\vec{p}_s} \Delta\widetilde{G}_{\omega\vec{p}_s}(\Omega,\vec{q})\widetilde{\Gamma}_{\omega,\vec{p}_s\vec{p}}(\Omega,\vec{q})\right] \Phi_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q}), \end{aligned} \tag{1.33}$$

avec $\widetilde{U}_{\omega}(\Omega,\vec{q}) = \frac{\omega}{c_0^2}\sum_{\vec{p}} \Phi_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q})$ et $\widetilde{J}_{\omega}(\Omega,\vec{q}) = \omega \sum_{\vec{p}} \vec{p}\Phi_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q})$.

Si le dernier terme de l'équation (1.33) est proportionnel à $\mathrm{j}\Omega$ (et correspond donc à une dérivée temporelle), cette relation s'interprète comme une équation de bilan :

$$sources = \frac{\partial U}{\partial t} + \vec{\nabla}.\vec{J} + \frac{\partial(\delta\, U)}{\partial t}, \tag{1.34}$$

avec U la densité d'énergie (l'intégrale sur toutes les directions de l'espace de l'intensité spécifique) et $\vec{J}$ le vecteur courant (le flux d'énergie par unité de surface). Le facteur δ correspond à la correction de l'identité de Ward (1.31) dans le régime dynamique. Le produit $\delta\, U$ représente donc la densité d'énergie « stockée » dans les objets (ou encore la correction due au retard de diffusion aux résonances). Ainsi, si $\delta = 0$, on retrouve les résultats précédemment obtenus dans le régime stationnaire, éq. (1.31).

Le terme entre parenthèses dans l'équation (1.33) est par suite relié à $\mathrm{j}\Omega$ *via* le produit $\delta\,\omega/c_0^2$. On obtient alors :

$$\Delta\widetilde{\Sigma}_{\omega\vec{p}}(\vec{q}) - \sum_{\vec{p}_s} \Delta\widetilde{G}_{\omega\vec{p}_s}(\vec{q})\widetilde{\Gamma}_{\omega\vec{p}_s\vec{p}}(\Omega,\vec{q}) = \mathrm{j}\Omega\frac{\omega}{c_0^2}\delta. \tag{1.35}$$

Le calcul du paramètre δ est réalisé sous l'approximation de faible concentration η en inclusions, permettant d'exprimer les termes $\Delta\widetilde{\Sigma}$ et $\widetilde{U}$ sous les approximations de Boltzmann et de l'ISA :

$$\begin{aligned} \Delta\widetilde{\Sigma}_{\omega\vec{p}}(\Omega,\vec{q}) &\approx 2\Omega\eta\tfrac{\partial\widetilde{T}(\vec{p},\vec{p}_s,\omega)}{\partial\omega}, \\ \widetilde{\Gamma}_{\omega\vec{p}\vec{p}_s}(\Omega,\vec{q}) &= \eta|\widetilde{T}(\vec{p},\vec{p}_s,\omega)|^2\left(1+\mathrm{j}\Omega\tfrac{\partial\varphi(\vec{p},\vec{p}_s,\omega)}{\partial\omega}\right), \end{aligned} \tag{1.36}$$

avec $\widetilde{T}(\vec{p},\vec{p}_s,\omega) = |\widetilde{T}(\vec{p},\vec{p}_s,\omega)|e^{j\varphi(\vec{p},\vec{p}_s,\omega)}$. Avec les simplifications (1.36), B. A. van Tiggelen et ses collaborateurs [10] ont établi l'expression suivante :

$$\delta = \eta\left[-\frac{\partial \mathrm{Re}\widetilde{T}(\vec{p},\vec{p},\omega)}{\partial p^2} + \int \frac{|\widetilde{T}(\vec{p},\vec{p}_s,\omega)|^2}{(4\pi^2)}\frac{\partial\varphi(\vec{p},\vec{p}_s,\omega)}{\partial p}\mathrm{d}\theta_{u_s}\right], \tag{1.37}$$

à partir de l'équation (1.35).

Finalement, dans le cas de milieux désordonnés résonants (i. e. $\delta \neq 0$), l'équation du transfert radiatif (telle que présentée éq. 1.32) n'est pas adaptée à la description du transport des ondes multiplement diffusées. Dans ce cas, il faut veiller à prendre en compte l'énergie δU « stockée » dans l'objet. Nous verrons alors que la vitesse caractéristique des ondes multiplement diffusées ne correspond plus à la célérité de phase ou de groupe du milieu effectif mais doit intégrer le retard de diffusion au voisinage des fréquences de résonance modélisé par le paramètre δ.

1.3 Exemples de systèmes modèles résonants

Après avoir mis en place les outils nécessaires à l'étude, nous présentons différents systèmes modèles ayant été utilisés pour comprendre la propagation des ultrasons en milieux complexes. L'intérêt de ces systèmes modèles calibrés est d'en connaître et maîtriser les propriétés.

La première contrainte pour le choix d'un tel système concerne le procédé de fabrication. La synthèse du milieu désordonné doit être contrôlée afin de comporter le moins d'incertitudes possibles pour parfaire la connaissance préalable de l'échantillon et maîtriser ses paramètres structurels comme la concentration en diffuseurs η ou le rayon moyen des inclusions $< a >$. Nous verrons également dans le chapitre 3 que la faible dispersion en taille des diffuseurs préserve les effets des résonances sur les paramètres acoustiques effectifs de l'échantillon.

Pour justifier le choix de notre système modèle, nous commencerons par établir un bref état de l'art des principaux systèmes modèles acoustiques : les forêts de tiges d'acier, les suspensions de billes de verre et les milieux bulleux. Puis nous présenterons le système modèle privilégié dans cette étude : les émulsions de gouttes d'huile fluorée. Ces émulsions présentent deux intérêts majeurs. Le contraste élevé de propriétés mécaniques (célérité du son et masse volumique) entre les constituants du système permet d'amplifier les résonances des inclusions. De plus, la faible absorption intrinsèque des différents matériaux utilisés permet d'observer les fluctuations du champ incohérent sur des temps excédant de plusieurs ordres de grandeur, la durée caractéristique du paquet d'ondes incident.

1.3.1 Forêts de tiges d'acier

Le premier système étudié est constitué de tiges d'acier inoxydable (de célérité des ondes longitudinale $c_{L1} = 5,7\,\mathrm{mm}/\mu\mathrm{s}$ et transversale $c_{T1} = 3\,\mathrm{mm}/\mu\mathrm{s}$ pour une masse volumique $\rho_1^v = 7,85\,\mathrm{g/cm^3}$) plongées de façon désordonnée dans de l'eau [14]. Il s'agit d'un système à deux dimensions [g] d'inclusions solides résonantes initialement développé pour l'étude du retournement temporel dans les milieux hétérogènes (afin de refocaliser une source ponctuelle) [15].

g. Les tiges sont considérées infiniment longues, parallèles et orientées perpendiculairement à la direction de propagation de l'onde incidente.

Pour ce système, l'onde diffusée peut être décomposée en une contribution « rigide » pour un objet supposé parfaitement dur et une contribution « élastique » tenant compte les interactions solide/fluide [16]. Les résonances des tiges d'acier apparaissent lorsque les ondes circonférentielles se propageant à la surface du cylindre (la contribution élastique) sont en phase avec la contribution rigide. Pour une population désordonnée d'objets, les effets de ces résonances sont visibles car le système est calibré (avec une polydispersité de 2 %) [4]. Les expériences acoustiques dans ces systèmes ont permis d'accéder à un ensemble de quantités caractéristiques de la diffusion multiple (libre parcours moyen d'absorption, élastique ou de transport, retard de groupe...), en exploitant simultanément les mesures de l'onde cohérente et du transport de l'intensité moyenne [4, 17], ainsi que les effets de rétrodiffusion cohérente [18].

Les fractions surfaciques de tiges variant de 5 à 15 %, V. Mamou [16] a analysé notamment l'influence de la concentration sur la validité de différentes modélisations des propriétés acoustiques effectives. Les auteurs ont notamment mis en évidence l'influence de la corrélation entre inclusions, sur l'atténuation de l'onde cohérente. Les approximations de diffusion multiple classiques (telles que l'ISA) se sont révélées inadaptées, contrairement à une modélisation basée sur le développement de l'*opérateur de masse* Σ au second ordre [19].

Les caractérisations en régime impulsionnel du champ incohérent ont conduit à une mesure fréquentiellement résolue du coefficient de diffusion D, impactée par les résonances des tiges [16]. Ces mesures du coefficient D, associées à une estimation du libre parcours moyen de transport ℓ^*, ont permis une estimation de la vitesse de transport v_e des ondes multiplement diffusées. Le comportement fréquentiel de la vitesse v_e montre alors l'influence du retard de diffusion sur le transport de l'intensité incohérente moyenne $< |\delta\psi|^2 >$ aux fréquences de résonance des tiges [14].

Enfin, A. Bretagne et ses collaborateurs [20] ont observé la localisation transverse d'ultrasons se propageant dans une forêt désordonnée de tiges orientées parallèlement à la direction de propagation de l'onde incidente. L'impulsion se propageant dans ce « guide d'ondes désordonné » reste confinée spatialement et temporellement contrairement au cas où l'arrangement de tiges est ordonné, pour lequel l'onde guidée subie des effets de diffraction et de dispersion.

1.3.2 Suspensions de billes de verre

Le deuxième système modèle présenté dans cette section a été le support de travaux fondateurs sur la propagation ultrasonore en milieux hétérogènes. En 1995, J. H. Page et ses collaborateurs publient une preuve expérimentale du transport diffusif des ultrasons dans un milieu hétérogène à trois dimensions [21]. Ces échantillons sont constitués de billes de verre ($c_{L1} = 5,7\,\mathrm{mm}/\mu\mathrm{s}$, $c_{T1} = 3,4\,\mathrm{mm}/\mu\mathrm{s}$ et $\rho_1^v = 2,5\,\mathrm{g/cm}^3$) plongées dans de l'eau. La fraction volumique d'inclusions correspond principalement [h] au remplissage maximal pour un milieu désordonné : $\phi \sim 63\%$. La polydispersité est $P = 5\%$ [23]. Lors de cette étude de l'approximation de transport diffusif des ultrasons, les auteurs ont développé une méthode originale et largement réutilisée par la suite, de

h. Certaines expériences ont été réalisées avec des suspensions de billes de verre dans un mélange glycérol/eau afin d'augmenter la viscosité de la matrice et de ralentir la sédimentation des inclusions. La fraction volumique de billes de verre dans ces échantillons varie alors de $\phi = 21\%$ à $\phi = 61\%$ [22].

mesures fréquentiellement résolues du coefficient de diffusion D. Il s'agit de la première méthode de caractérisation du coefficient D, indépendante des effets d'absorption et des conditions aux limites des échantillons utilisés. Cette méthode, basée sur la caractérisation de la croissance du halo diffusif, sera exploitée lors de notre étude pour la mesure du coefficient de diffusion D dans les émulsions résonantes et l'observation du transport sub-diffusif des ultrasons.

Une nouvelle fois, les caractérisations simultanées des champs cohérent et incohérent dans ces échantillons fournissent les mesures des libres parcours moyens, du coefficient de diffusion D et de la célérité de groupe c_{gr}. La vitesse de transport v_{e}, déduite de D et ℓ^*, est alors confrontée à la célérité c_{gr} [24–26].

Dans ces systèmes, les auteurs ont déterminé non seulement la transition entre la propagation balistique et le transport diffusif des ondes (en faisant varier l'épaisseur des échantillons [27]), mais également l'origine de la différence entre les vitesses c_{gr} et v_{e} en confrontant leurs résultats expérimentaux à un modèle de la vitesse de transport tenant compte du retard de diffusion. Cependant, la célérité des ondes étant plus grande dans les billes de verre que dans la matrice environnante, le retard de diffusion et l'écart entre la célérité de groupe de l'onde cohérente et la vitesse de transport étaient assez faibles.

Dans l'équipe de J. H. Page, ce système mis en place pour l'étude du transport diffusif des ultrasons, est également précurseur d'autres études acoustiques sur les « bandes interdites d'hybridation » dans des suspensions de billes de PMMA [28] ou sur la localisation d'Anderson à trois dimensions des ondes ultrasonores dans des réseaux de billes d'aluminium frittées [29].

Dans ces milieux frittés les ondes se propagent le long d'un réseau de contacts entre billes. Il s'agit là d'un système « granulaire », pour lequel la diffusion de l'onde est générée par les contacts entre billes et non pas par des hétérogénéités comme dans les suspensions. Pour de grandes longueurs d'onde, il est possible de modéliser le granulaire comme un milieu effectif support de la propagation d'une onde cohérente, contrairement aux longueurs d'onde intermédiaires (comparables à la taille des billes) pour lesquelles les effets de diffusion multiple sont prépondérants.

D'autres systèmes de ce type ont été étudiés. Il a par exemple été montré que l'approximation de diffusion est valable pour un empilement dense et aléatoire de billes de verre (non frittées) dans l'air, auquel est appliqué une contrainte de confinement [30]. Dans ce dernier cas, le milieu est aléatoire et compact. La fraction volumique de diffuseurs est fixe ($\phi \approx 63\,\%$). Le pouvoir de diffusion de l'échantillon n'est plus piloté par la concentration en billes mais par la contrainte de confinement appliquée au granulaire qui modifie les contacts entre les billes [31]. Les ondes multiplement diffusées constituent alors un excellent outil pour sonder des propriétés microscopiques du milieu, telles que l'état des contacts entre les grains. Ainsi, pour une faible contrainte de confinement, le frottement entre les billes est grand et les ondes incohérentes sont très rapidement dissipées. Si la force appliquée sur le granulaire est au contraire importante, de nouveaux contacts entre billes sont créés et le frottement entre les billes diminue. Les fluctuations du champ incohérent perdurent alors sur des temps longs. De la même manière, le champ incohérent est très sensible à l'état de surface des billes [32] et à une très faible fraction volumique de fluide dans le milieu granulaire [30].

L'étude des systèmes granulaires a montré la sensibilité des ondes multiplement diffusées à de très faibles variations des propriétés mécaniques du milieu hétérogène. Ces observations présentent alors un grand intérêt pour différentes applications en contrôle non destructif [33] ou en sismologie [34] par exemple.

1.3.3 Millieux bulleux

Les systèmes de bulles d'air ($c_1 = 0,34\,\mathrm{mm}/\mu\mathrm{s}$ et $\rho_1^v = 1,2.10^{-3}\,\mathrm{g/cm^3}$) dans de l'eau apparaissent naturellement lors de la recherche de milieux complexes avec de forts contrastes de propriétés acoustiques. Ce mélange offre des propriétés acoustiques très intéressantes pour de très faibles fractions volumiques ϕ en bulles d'air. Pour $\phi < 1\%$, la célérité de phase c_{ph} de l'onde cohérente se propageant dans le milieu très faiblement bulleux devient inférieure à la célérité du son dans les deux phases [35].

Les bulles d'air sont intéressantes pour leur résonance de Minnaert. Il s'agit d'une résonance basse fréquence[i] due à la grande différence de compressibilités entre l'air et l'eau environnante, qui conduit à une importante déformation isotrope de la bulle (résonance monopolaire). Ainsi, une faible population de bulles a déjà un impact très fort sur les propriétés de l'onde cohérente. En développant une méthode de fabrication de type microfluidique, V. Leroy et ses collaborateurs ont créé un système modèle bulleux, puis mesuré un libre parcours moyen élastique environ 240 fois inférieur à la longueur d'onde dans l'eau pour une fraction volumique de bulles d'air de $\phi = 1\,\%$ [35].

Cette forte interaction entre les ultrasons et les bulles d'air est intéressante d'une part pour la caractérisation de matériaux bulleux (la caractérisation des bulles dans la pâte à pain par exemple [37]) et d'autre part pour la réalisation de métamatériaux (comme les *absorbers* acoustiques à partir d'un écran de bulles [38]).

Les propriétés effectives des matériaux bulleux sont donc très attrayantes et les fortes résonances monopolaires devraient conduire à l'apparition d'un champ incohérent après une très faible distance de propagation (la section efficace de transport σ^* étant très grande, l'onde incidente perd très vite la mémoire de sa direction incidente). Ces systèmes sont alors *a priori* adaptés à l'observation de divers régimes de transport tels que la sub-diffusion. Cependant, les pertes importantes observées dans les milieux bulleux tendent à masquer les effets de diffusion multiple à la résonance de Minnaert. Le champ incohérent est rapidement dissipé et les fluctuations acoustiques ne persistent pas sur des temps suffisants pour observer un régime de transport diffusif. O. Lombard et ses collaborateurs ont alors travaillé à des fréquences ultrasonores plus élevées que la résonance de Minnaert, leur permettant d'observer le transport diffusif des ondes et de mesurer un temps caractéristique de diffusion dans des milieux bulleux [3]. Cependant, la résonance d'une bulle n'étant plus exploitée dans ce cas, le système perd de son intérêt pour l'étude de régimes singuliers de transport des ultrasons.

i. La résonance de Minnaert est associée à une longueur d'onde dans l'eau 500 fois plus grande que la taille de la bulle d'air [36].

1.3.4 Émulsions de gouttes d'huile fluorée

Les émulsions résonantes constituées de gouttes d'huile fluorée FC40 suspendues dans un gel aqueux ont été utilisées dans un premier temps pour étudier les effets des résonances multipolaires et de la dispersion en taille des diffuseurs, sur la propagation de l'onde cohérente [39, 40]. Dans cette étude, les faibles valeurs de libre parcours moyen élastique ℓ_e relevées pour des échantillons très diluées ($\ell_e/\lambda \approx 0,74$ pour une fraction volumique de gouttes d'huile de $\phi = 5,8\,\%$), sont encourageantes pour l'observation de régimes de transport anormaux dans des échantillons plus concentrés (jusqu'à $\phi = 40\,\%$). Le système de fabrication des échantillons autorisant une synthèse des gouttes d'huile avec une très faible dispersion en taille, l'effet des résonances multipolaires sur les mesures de la propagation cohérente et du transport des ondes multiplement diffusées devrait être très marqué.

Pour ce système, le contraste de célérités du son entre la matrice et le diffuseur est moins important que pour les milieux bulleux. Cependant, les absorptions intrinsèques de l'huile FC40 et du gel aqueux sont très faibles et les fluctuations temporelles du signal transmis à travers un échantillon d'émulsion résonante s'étendent sur des temps supérieurs à 500 fois la durée de l'impulsion incidente. Cette observation est la signature d'effets de diffusion multiple très importants.

Un autre aspect important de la suspension de gouttes d'huile FC40 est sa structure entièrement fluide, qui autorise les mesures du champ multiplement diffusé directement à l'intérieur du milieu hétérogène. L'absence de polarisation (ondes scalaires) a permis de simplifier les modèles de transport des ondes. Cependant, nous verrons que cette structure fluide pose certaines difficultés techniques liées à sa stabilité dans le temps (évaporation des constituants).

Ces différents arguments nous ont conduit à exploiter les émulsions résonantes comme système modèle pour l'étude des ondes multiplement diffusées. Ceci a permis en particulier des analogies avec les systèmes optiques pour lesquels la célérité des ondes à l'intérieur des diffuseurs est également faible.

Le chapitre 3 sera consacré à l'étude des émulsions diluées. Ainsi le pouvoir de diffusion relativement faible de ces échantillons permettra de valider les approximations de diffusion indépendante utilisées (*ISA* et *Ladder Approximation*). La propagation dans les émulsions concentrées sera détaillée dans le chapitre 4, consacré aux régimes de transport anormaux lorsque le libre parcours moyen élastique ℓ_e devient significativement plus petit que la longueur d'onde dans la matrice λ_0.

1.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons développé les théories de base pour la description de la propagation des ultrasons en milieux complexes et en particulier dans les émulsions résonantes.

À partir de la formalisation de la diffusion d'une onde plane par un objet sphérique, les résonances de type Mie d'une goutte d'huile FC40 immergée dans de l'eau ont été identifiées ainsi que leurs effets sur les grandeurs caractéristiques nécessaires à cette étude (telles que les sections efficaces de diffusion et de transport ou le retard de diffusion). L'observation des champs

de pression pour une goutte isolée permet alors d'appréhender l'analogie avec la diffusion de Mie en optique.

Pour une population désordonnée d'objets, le champ acoustique en présence est décrit par une variable aléatoire ψ. La fonction de Green moyenne $< G >$ de ce champ donne accès au nombre d'onde k de l'onde cohérente $< \psi >$ (moyennée sur toutes les configurations du désordre), les ondes incohérentes $\delta\psi$ étant décrites d'autre part par l'autocorrélation de la fonction de Green $< GG^* >$. Le lien entre ces deux quantités est établi par une *identité de Ward* qui doit être modifiée lorsque le retard de diffusion affecte les équations de bilan. Dans ces deux cas, les équations décrivant $< G >$ et $< GG* >$ sont récursives afin de tenir compte de l'infinité des événements de diffusion et ne peuvent pas être résolues directement. Des approximations de faible concentration η permettent de ne retenir que les évènements de diffusion indépendants et d'obtenir une développement simple du nombre d'onde k de l'onde cohérente et de l'équation du transfert radiatif pour la description du transport de l'intensité moyenne.

Enfin pour justifier l'utilisation des émulsions résonantes dans cette étude, nous avons dressé un bref état de l'art des principaux systèmes modèles utilisés en acoustique. Les suspensions de gouttes d'huile FC40 apparaissent comme un excellent système modèle fluide à trois dimensions autorisant l'étude de l'impact des résonances sur la diffusion multiple des ultrasons.

Le chapitre 2 sera dédié aux aspects techniques de l'étude. La synthèse des émulsions résonantes ainsi que la caractérisation acoustique des constituants seront décrites. Nous verrons également comment estimer expérimentalement l'onde cohérente issue du concept de moyenne d'ensemble. Enfin, le dispositif expérimental original de mesure *in situ* de l'intensité moyenne sera également détaillé.

Bibliographie

[1] J. J. Faran. Sound scattering by solid cylinders and spheres. *J. Acoust. Soc. Am.*, **23** :405–418, 1951.

[2] H. C. van de Hulst. *Light scattering by small particles.* Dover, 1981.

[3] O. Lombard, N. Vierd, C. Barrière, and V. Leroy. Diffusion multiple dans un milieu bulleux aléatoire. *Congrés Français D'acoustique*, pages 499–505, 2014.

[4] A. Derode, A. Tourin, and M. Fink. Random multiple scattering of ultrasound. i. coherent and ballistic waves. *Phys. Rev. E*, **64** :036605, 2001.

[5] P. Sheng. *Introduction to wave scattering, localization and mesoscopic phenomena.* Springer Science & Business Media, 2006.

[6] A. Ishimaru. *Wave Propagation and Scattering in Random Media.* Academic Press, 1978.

[7] E. P. Wigner. Lower limit for the energy derivative of the scattering phase shift. *Phys. Rev.*, **98** :145–147, 1955.

[8] A. Lagendijk and B. A. van Tiggelen. Resonant multiple scattering of light. *Phys. Rep.*, **270** :143–215, 1996.

[9] L. Brillouin. *Wave Propagation and Group Velocity.* Academic Press, 1960.

[10] B. A. van Tiggelen and A. Lagendijk. Rigorous treatment of the speed of diffusing classical waves. *Europhys. Lett.*, **23** :311, 1993.

[11] G. Lepert. *Étude des interactions élasto-acoustiques dans des métamatériaux formés d'inclusions résonantes réparties aléatoirement.* Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, 2013.

[12] A. Tourin. *Diffusion multiple et renversement du temps des ondes ultrasonores.* Thèse de doctorat, Université Paris VII, 1999.

[13] W. K. Hildebrand. *Ultrasonic waves in strongly scattering disordered media : understanding complex systems through statistics and correlations of multiply scattered acoustic and elastic waves.* PhD thesis, University of Manitoba, 2015.

[14] N. Viard and A. Derode. Measurements of ultrasonic diffusivity and transport speed from coda waves in a resonant multiple scattering medium. *J. Acoust. Soc. Am.*, **138** :134–145, 2015.

[15] A. Derode, P. Roux, and M. Fink. Robust acoustic time reversal with high-order multiple scattering. *Phys. Rev. Lett.*, **75** :4206–4209, 1995.

[16] V. Mamou. *Caractérisation ultrasonore d'échantillons hétérogènes multiplement diffuseurs.* Thèse de doctorat, Université Paris 7, 2005.

[17] A. Tourin, A. Derode, A. Peyre, and M. Fink. Transport parameters for an ultrasonic pulsed wave propagating in a multiple scattering medium. *J. Acoust. Soc. Am.*, **108** :503–512, 2000.

[18] A. Tourin, A. Derode, P. Roux, B. A. van Tiggelen, and M. Fink. Time-dependent coherent backscattering of acoustic waves. *Phys. Rev. Lett.*, **79** :3637–3639, 1997.

[19] A. Derode, V. Mamou, and A. Tourin. Influence of correlations between scatterers on the attenuation of the coherent wave in a random medium. *Phys. Rev. E*, **74** :036606, 2006.

[20] A. Bretagne, M. Fink, and A. Tourin. Transverse localization of sound. *Phys. Rev. B*, **88** :100302, 2013.

[21] J. H. Page, H. P. Schriemer, A. E. Bailey, and D. A. Weitz. Experimental test of the diffusion approximation for multiply scattered sound. *Phys. Rev. E*, **52** :3106–3114, 1995.

[22] M. L. Cowan, K. Beaty, J. H. Page, Z. Liu, and P. Sheng. Group velocity of acoustic waves in strongly scattering media : Dependence on the volume fraction of scatterers. *Phys. Rev. E*, **58** :6626–6636, 1998.

[23] H. P. Schriemer. *Ballistic and Diffusive Transport of Acoustic Waves in Random Media.* PhD thesis, University of Manitoba, 1997.

[24] J. H. Page, P. Sheng, H. P. Schriemer, I. Jones, X. Jing, and D. A. Weitz. Group velocity in strongly scattering media. *Science*, **271** :634–637, 1996.

[25] J. H. Page, H. P. Schriemer, I. P. Jones, P. Sheng, and D. A. Weitz. Classical wave propagation in strongly scattering media. *Physica A*, **241** :64–71, 1997.

[26] H. P. Schriemer, M. L. Cowan, J. H. Page, P. Sheng, Z. Liu, and D. A. Weitz. Energy velocity of diffusing waves in strongly scattering media. *Phys. Rev. Lett.*, **79** :3166–3169, 1997.

[27] Z. Q. Zhang, I. P. Jones, H. P. Schriemer, J. H. Page, D. A. Weitz, and P. Sheng. Wave transport in random media : The ballistic to diffusive transition. *Phys. Rev. E*, **60** :4843–4850, 1999.

[28] M. L. Cowan, J. H. Page, and P. Sheng. Ultrasonic wave transport in a system of disordered resonant scatterers : Propagating resonant modes and hybridization gaps. *Phys. Rev. B*, **84** :094305, 2011.

[29] H. Hu, A. Strybulevych, J. H. Page, S. E. Skipetrov, and B. A. van Tiggelen. Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network. *Nat. Phys.*, **4** :945–948, 2008.

[30] X. Jia. Codalike multiple scattering of elastic waves in dense granular media. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :154303, 2004.

[31] V. Tournat and V. E. Gusev. Nonlinear effects for coda-type elastic waves in stressed granular media. *Phys. Rev. E*, **80** :011306, 2009.

[32] T. Brunet, X. Jia, and P. Mills. Mechanisms for acoustic absorption in dry and weakly wet granular media. *Phys. Rev. Lett.*, **101** :138001, 2008.

[33] F. Deroo, J. Kim, J. Qu, K. Sabra, and L. J. Jacobs. Detection of damage in concrete using diffuse ultrasound. *J. Acoust. Soc. Am.*, **127** :3315–3318, 2010.

[34] A. M. Dainty and M. N. Toksöz. Seismic codas on the earth and the moon : a comparison. *Phys. Earth Planet. Inter.*, **26** :250–260, 1981.

[35] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, and M. G. Scanlon. Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments. *J. Acoust. Soc. Am.*, **123** :1931–1940, 2008.

[36] Valentin Leroy. *Acoustique des bulles : du milieu bulleux a la mousse liquide.* Habilitation à diriger des recherches, Université Paris 7, 2016.

[37] V. Leroy, Y. Fan, A. Strybulevych, G. Bellido, J. H. Page, and M. Scanlon. Investigating the bubble size distribution in dough using ultrasound. *Bubbles in Food 2 : Novelty, Health and Luxury*, pages 51–60, 2008.

[38] V. Leroy, A. Strybulevych, M. Lanoy, F. Lemoult, A. Tourin, and J. H. Page. Superabsorption of acoustic waves with bubble metascreens. *Phys. Rev. B*, **91** :020301, 2015.

[39] T. Brunet, S. Raffy, B. Mascaro, J. Leng, R. Wunenburger, O. Mondain-Monval, O. Poncelet, and C. Aristégui. Sharp acoustic multipolar-resonances in highly monodisperse emulsions. *App. Phys. Lett.*, **101** :011913, 2012.

[40] B. Mascaro, T. Brunet, O. Poncelet, C. Aristégui, S. Raffy, O. Mondain-Monval, and J. Leng. Impact of polydispersity on multipolar resonant scattering in emulsions. *J. Acoust. Soc. Am.*, **133** :1996–2003, 2013.

Chapitre 2

Méthodes et dispositifs expérimentaux

Sommaire

2.1 Fabrication d'émulsions résonantes monodisperses 30

2.1.1 Propriétés acoustiques des constituants des émulsions 31

2.1.2 Dispositif microfluidique pour la synthèse d'émulsions 34

2.1.3 Analyse de la structure des émulsions 35

2.2 Caractérisation des propriétés de l'onde cohérente 37

2.2.1 Choix du dispositif expérimental 38

2.2.2 Longueurs caractéristiques 43

2.3 Caractérisation des propriétés de l'onde incohérente 45

2.3.1 Choix du dispositif expérimental 45

2.3.2 Délimitation des différents régimes de transport 51

2.4 Conclusion 52

Bibliographie 54

Les émulsions résonantes (composées de gouttes d'huile fluorée suspendues dans une matrice aqueuse) constituent un système modèle pour l'étude du transport diffusif des ondes acoustiques en milieux diffusants et fortement résonants. Nous nous attachons dans ce chapitre à la description des différents dispositifs expérimentaux utilisés pour synthétiser ces émulsions et en étudier leurs propriétés acoustiques. Dans un premier temps, nous caractérisons acoustiquement les deux phases fluides des émulsions afin de vérifier leur faible absorption intrinsèque et d'évaluer le contraste de célérités du son entre ces deux constituants. Nous verrons dans la suite de ce chapitre, comment synthétiser et contrôler la structure des émulsions afin de privilégier le régime de transport du champ acoustique en présence. L'outil microfluidique utilisé ici, permet de fabriquer des émulsions avec des fractions volumiques allant de 0 % à 40 %.

Le premier dispositif acoustique mis en place permet la caractérisation des propriétés de l'onde cohérente. Nous détaillons la démarche suivie pour estimer expérimentalement ce concept d'onde moyennée sur « toutes » les configurations du désordre. Le dispositif fournit une estimation des propriétés de l'onde cohérente telles que l'atténuation, la célérité de phase et celle de groupe, aussi bien pour des émulsions diluées que très concentrées. La connaissance précise de ces trois quantités est essentielle aussi bien pour corroborer les paramètres structurels de l'émulsion choisis lors de la fabrication, que pour définir des longueurs caractéristiques délimitant les régimes de transport du champ incohérent.

Le dispositif de mesure de l'onde incohérente, détaillé dans la troisième et dernière partie de ce chapitre, doit permettre la caractérisation de l'évolution du « halo diffusif » de l'intensité incohérente moyenne. La particularité de nos échantillons étant leur structure entièrement fluide, il est possible de sonder le champ acoustique multiplement diffusé directement au sein de ces milieux complexes. Ce choix ajoute des contraintes de conception supplémentaires au dispositif. De plus, le système étant très faiblement absorbant, la dynamique du transport diffusif sur des temps très longs peut être observée moyennant l'optimisation de la chaîne d'acquisition.

2.1 Fabrication d'émulsions résonantes monodisperses

La synthèse d'émulsions résonantes est un procédé relativement simple et maîtrisé depuis plusieurs années au laboratoire [1–3]. Il faut cependant adapter le procédé de fabrication des échantillons en vue de l'étude du champ multiplement diffusé. En effet, l'exploration de différents régimes de propagation n'est possible que si nous possédons une grande liberté dans le choix de la concentration des émulsions et de la taille des gouttes qui les constituent. Ainsi dans l'optique de synthétiser des émulsions très concentrées et monodisperses, il a fallu optimiser la taille des gouttes, la dilution du gel (afin d'obtenir la matrice aqueuse) et les paramètres d'injection.

Les propriétés structurelles des émulsions sont maîtrisées avec précision grâce à un procédé de microfluidique robotisé. De plus, la simplicité du système autorise la synthèse d'émulsions directement au laboratoire, quelques heures avant les mesures acoustiques. Nous verrons cependant que certaines limites existent du point de vue de leur concentration et de leur manipulation.

2.1.1 Propriétés acoustiques des constituants des émulsions

La célérité de phase des ondes dans les deux phases fluides de l'émulsion (notée c_0 pour la matrice et c_1 pour les inclusions) est une donnée à connaître avec précision afin de caractériser et modéliser les effets de résonance. De même, l'étude des effets de diffusion multiple nécessite l'observation de *codas* s'étendant sur des temps très longs. Il est donc nécessaire de vérifier la faible absorption des deux constituants de nos émulsions (α_0 et α_1). La principale difficulté de cette étude réside dans la caractérisation de ces très faibles niveaux d'absorption.

Les premiers tests ont été effectués par mesures différentielles avec l'eau qui est communément utilisée comme milieu de référence pour les ondes acoustiques. Cependant, les propriétés acoustiques du gel aqueux étant *a fortiori* proches de celles de l'eau, une telle mesure est délicate.

La solution choisie est une mesure différentielle sur le même matériau mais avec une différence de distances de propagation $\Delta z = z_2 - z_1$. Ce différentiel doit être suffisamment grand pour que les effets d'atténuation soient significatifs. Une méthode de division spectrale nous permet alors de déterminer le nombre d'onde de l'onde s'étant propagée sur les deux distances z_1 et z_2. Ce nombre d'onde étant à valeurs complexe, la mesure donne alors simultanément accès à la célérité de phase et à l'atténuation de l'onde. Il faut cependant être prudent quant aux effets éventuels de diffraction liés à la taille finie de la source pouvant polluer la mesure du nombre d'onde. En effet, en champ proche les effets de diffraction deviennent importants dès que la variation Δz est plus grande que la longueur d'onde [4]. Il faut donc placer la cellule de mesure suffisamment loin de l'émetteur afin que les fluctuations du champ acoustique soient les plus faibles possibles.

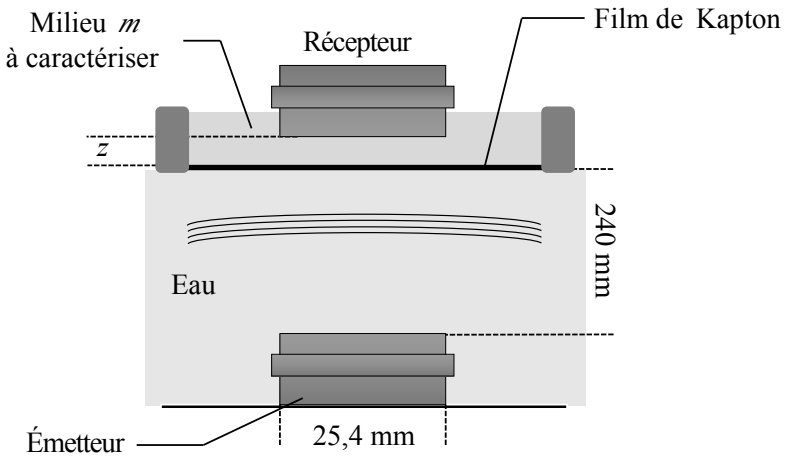

Fig. 2.1 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour caractériser les propriétés acoustiques du gel aqueux et de l'huile fluorée.

Les transducteurs utilisés (de rayon $R_{\text{cap}} = 12,7$ mm) sont conçus pour émettre des signaux centrés autour d'une fréquence centrale suffisamment élevée ($f_0 = 5$ MHz) afin d'accentuer les effets d'absorption qui sont *a priori* proportionnels au carré de la fréquence (f^2) [5, 6]. L'émetteur est placé au fond d'une cuve remplie d'eau de profondeur $H = 240$ mm de telle sorte à générer une onde plane à la surface libre de l'eau (fig. 2.1). Une cellule circulaire contenant

le matériau à caractériser ($\varnothing_{\text{cel}} = 94$ mm, fermée par le bas par un film de Kapton transparent aux fréquences étudiées) est placée à la surface de l'eau. Le récepteur, fixé sur une platine de translation verticale, est plongé dans le matériau fluide à caractériser. Ce dispositif permet de mesurer l'onde acoustique pour différentes distances de propagation z à l'intérieur du matériau. Une impulsion électrique de fréquence centrale 5 MHz est utilisée pour exciter l'émetteur et générer un signal acoustique large bande (fig. 2.2). Les signaux sont mesurés pour deux distances

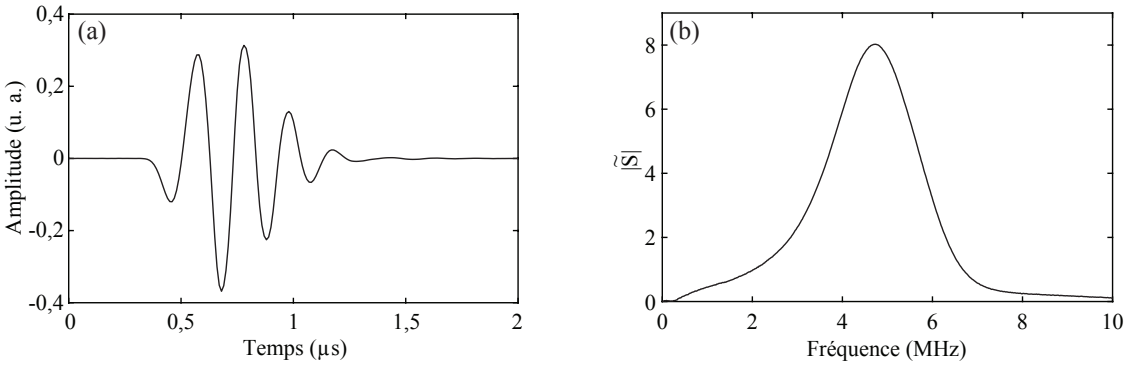

Fig. 2.2 – (a) Signal incident mesuré à l'entrée de la cellule ($z = 0$ mm). (b) Module de la transformée de Fourier correspondante.

de propagation différentes z_1 et z_2. Les transformées de Fourier des deux signaux correspondants $\tilde{S}_1$ et $\tilde{S}_2$ s'expriment de la manière suivante :

$$\tilde{S}_{\text{i}} = \mathrm{e}^{\mathrm{j}(k_{\text{m}} z_{\text{i}} - \omega t)} = |\tilde{S}_{\text{i}}| \mathrm{e}^{\mathrm{j}\varphi_{\text{i}}}, \quad \text{i} \in \{1, 2\}, \tag{2.1}$$

avec $k_{\text{m}} = \omega / c_{\text{m}} + \mathrm{j}\alpha_{\text{m}}$ le nombre d'onde de l'onde se propageant dans le milieu m à caractériser, et ω sa pulsation. La technique de division spectrale mentionnée ci-dessus nous permet alors de caractériser cette onde *via* sa célérité de phase c_{m} et son atténuation α_{m} tel que :

$$\begin{aligned} \alpha_{\text{m}} &= \ln\left(\frac{|\tilde{S}_1|}{|\tilde{S}_2|}\right) / (z_2 - z_1), \\ c_{\text{m}} &= \frac{\omega(z_2 - z_1)}{\varphi_1 - \varphi_2}. \end{aligned} \tag{2.2}$$

Pour la caractérisation des deux phases fluides, nous avons choisi une distance de propagation $z_1 = 3$ mm fixe et une distance z_2 variant de 5 à 15 mm par pas de 2 mm. Nous obtenons ainsi six mesures différentes des paramètres α_{m} et c_{m} qui nous donnent accès à une estimation des incertitudes de mesure. Ces résultats sont présentés sur la figure 2.3 pour la caractérisation du gel aqueux et sur la figure 2.4 pour celle de l'huile fluorée FC40. Pour la mesure de l'absorption, la fonction d'ajustement est dans les deux cas quadratique avec la fréquence ($\alpha_{\text{m}} = a_{\text{m}} f^2$), en accord avec les résultats communément admis pour l'absorption des ondes acoustiques dans les fluides newtoniens [5, 6].

La caractérisation du gel aqueux confirme sa très faible absorption intrinsèque $\alpha_0 = (5 \pm 1).10^{-5}$ MHz^{-2}.mm^{-1} (fig. 2.3a) et sa célérité de phase $c_0 = (1{,}493 \pm 2.10^{-4})$ mm.μs^{-1} proche

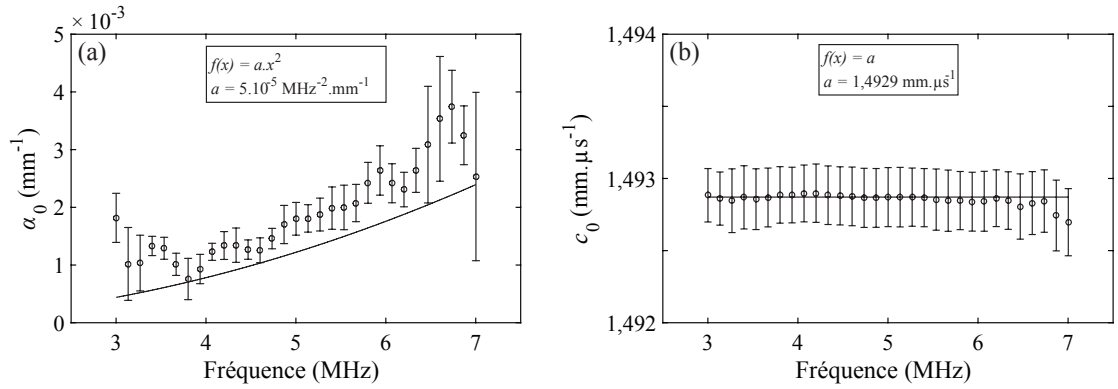

Fig. 2.3 – Résultats de la caractérisation acoustique du gel aqueux : (a) absorption intrinsèque α_0 (la ligne continue représente l'ajustement quadratique utilisé) et (b) célérité de phase c_0.

de celle de l'eau [a] (fig. 2.3b). Les résultats de la caractérisation de l'huile FC40 montrent de même une très faible absorption intrinsèque avec $\alpha_1 = (1\pm0{,}2).10^{-3}$ MHz^{-2}.mm^{-1} (fig. 2.4a) et confirment le contraste de célérités du son attendu avec $c_1 = (0{,}646\pm2.10^{-4})$ mm.μs^{-1} (fig. 2.4b). Bien que $\alpha_1 = 20\alpha_0$, les pertes par absorption acoustique dans l'huile restent très faibles et les émulsions seront toujours constituées majoritairement de gel avec $\phi \in [5, 25]$ % (ϕ étant la fraction volumique de gouttes d'huile dans l'émulsion). Ainsi, nous comparerons par la suite l'atténuation caractéristique des ondes multiplement diffusées à l'absorption α_0 du gel pur.

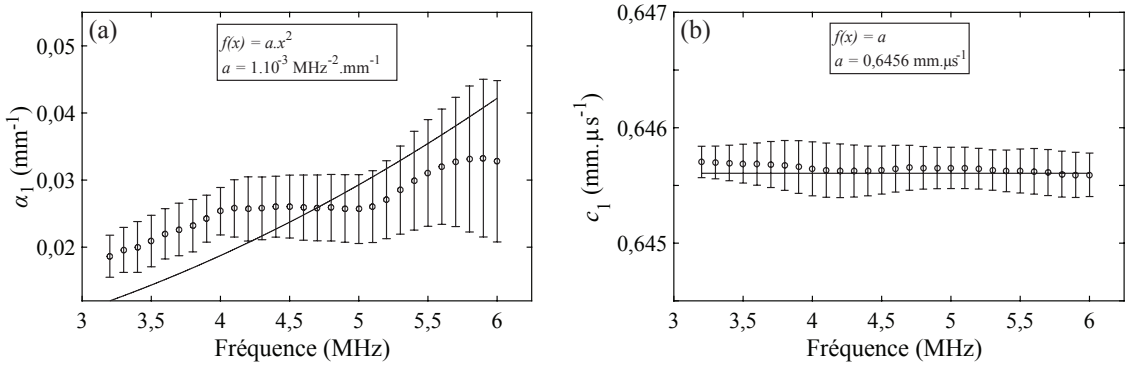

Fig. 2.4 – Résultats de la caractérisation acoustique de l'huile fluorée FC40 : (a) absorption intrinsèque α_1 (la ligne continue représente l'ajustement quadratique utilisé) et (b) célérité de phase c_1.

Enfin, les expériences de diffusion multiple nécessitent de nombreuses acquisitions et peuvent durer plusieurs jours. Le dispositif expérimental n'étant pas immergé (cf. sec. 2.3.1), le gel aqueux subit les effets de l'évaporation. Dans l'optique de vérifier l'effet du séchage du gel sur ses propriétés acoustiques, le même type de caractérisation a été effectué sur un échantillon de gel aqueux laissé à l'air libre pendant 24 heures. La caractérisation de ce gel séché donne $\alpha_{24h} = (2\pm1).10^{-5}$ MHz^{-2}.mm^{-1} pour l'absorption intrinsèque de ce nouvel échantillon et une

a. Les incertitudes de ces mesures sont estimées à partir des résidus des ajustements de l'absorption et de la célérité du son.

célérité du son de $c_{24\mathrm{h}} = (1{,}491 \pm 1.10^{-4})$ mm.μs^{-1}. Cette mesure confirme la stabilité des propriétés acoustiques du gel : la faible variation de célérité du son peut être expliquée par une légère variation de la température ambiante et l'absorption diminue faiblement ($\alpha_{24h} = \alpha_0/2,5$) contrairement à l'idée selon laquelle le séchage augmente la viscosité du gel.

2.1.2 Dispositif microfluidique pour la synthèse d'émulsions

La méthode employée pour la fabrication des émulsions fait appel à un dispositif microfluidique [1, 3] initialement utilisé pour la synthèse de milieux bulleux [7]. Ce procédé permet de fabriquer des émulsions résonantes très monodisperses (avec une polydispersité P de l'ordre de 3 %).

La première étape de la synthèse des échantillons est la dilution d'un gel à seuil commercial. Cette dilution est une phase cruciale qui gouverne la qualité de l'émulsion, notamment sur la contrainte seuil du gel qui permet de maintenir les gouttes en suspension. En accord avec les études précédentes [3], la concentration massique optimale en gel ($m_{\mathrm{gel}}/(m_{\mathrm{eau}} + m_{\mathrm{gel}})$) trouvée est de 30 %. Cette concentration permet d'éviter la sédimentation des diffuseurs et augmente la stabilité des émulsions. De plus, la dilution du gel est suffisante pour la manipulation de l'échantillon et autorise la relaxation des gouttes vers une forme sphérique. Ce gel dilué est ensuite dégazé par centrifugation afin d'éviter la présence de micro-bulles d'air dans l'émulsion.

Le dispositif de fabrication (fig. 2.5) est composé d'un système robotique trois axes, piloté par le logiciel Labview. La cellule de fabrication contenant le gel dilué est placée sur le plateau de translation horizontale (x, y) de ce système. Une aiguille non-biseautée de diamètre interne 0,26 mm est fixée sur l'axe de translation vertical (z) et est reliée à une seringue contenant l'huile fluorée à injecter. Cette aiguille est plongée dans le gel et injecte l'huile avec un débit Q constant contrôlé par un pousse-seringue électronique. Par translation à vitesse v constante, la tête d'injection décroche alors des lignes de gouttes d'huile dans le gel aqueux suivant l'axe (x). Par décalages successifs suivant l'axe (y), un plan de gouttes est alors créé. En déplaçant verticalement l'aiguille, nous pouvons superposer les plans de gouttes et remplir ainsi la cellule. La structure pseudo-périodique ainsi créée est ensuite rendue aléatoire par le transfert de l'émulsion de la cellule de fabrication vers les autres cellules servant aux mesures acoustiques (fig. 2.6).

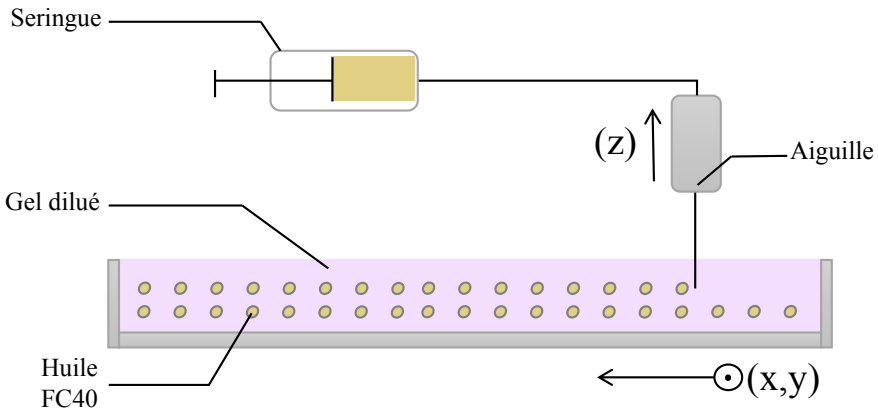

Fig. 2.5 – Dispositif d'injection de gouttes d'huile fluorée en suspension dans le gel aqueux.

Les valeurs de la vitesse de déplacement v de l'aiguille et du débit Q d'injection influent sur le rayon a des gouttes. Les pas dy entre deux lignes et dz entre deux plans, sont modifiés pour obtenir la concentration $\eta = \phi/(4\pi a^3)$ en gouttes d'huile. ϕ représente ici la fraction volumique de gouttes d'huile $\phi = V_{\text{huile}}/(V_{\text{huile}} + V_{\text{gel}})$, V désignant le volume des différents constituants.

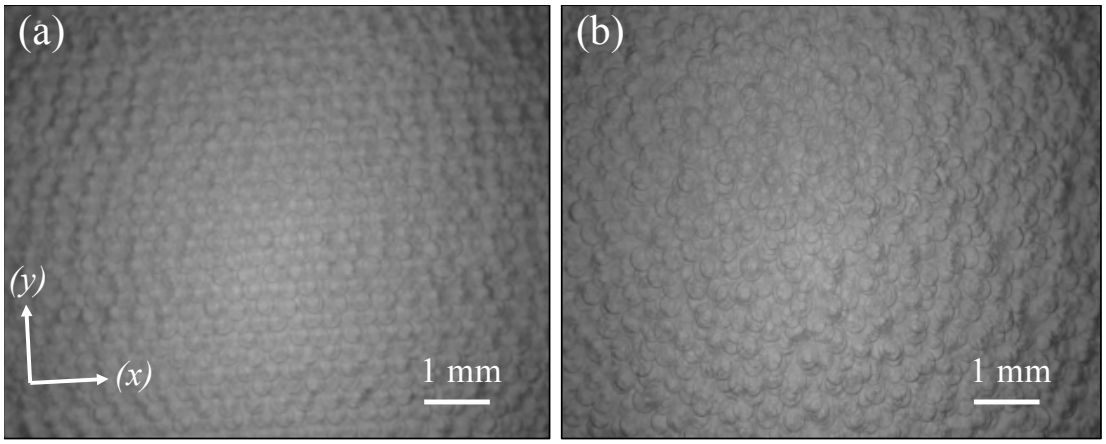

Fig. 2.6 – (a) Photographie (×50) de l'émulsion « pseudo-périodique » dans la cellule d'injection (ϕ = 30 %). (b) Émulsion aléatoire après transfert dans la cellule de caractérisation acoustique.

2.1.3 Analyse de la structure des émulsions

Cette méthode de fabrication, simple et robuste, nous laisse une grande liberté quant à la structure des émulsions. Dans notre cas de diffuseurs sphériques, nous pouvons aisément jouer sur la concentration et la taille des diffuseurs. Il existe cependant certaines limitations intrinsèques au dispositif. Il est par exemple très difficile d'injecter des gouttes très petites ($a < 0,130$ mm) sans changer le diamètre interne de l'aiguille et en gardant une faible polydispersité. Une loi empirique a été précédemment établie pour prévoir la taille des gouttes en fonction des paramètres d'injection v et Q [3]. Nous fixerons dans ce travail $v = 30$ mm.s^{-1} et $Q = 30$ μL.min^{-1} générant des gouttes avec un rayon moyen $< a >$ de l'ordre de $0,170$ mm. La dispersion en taille des gouttes est mesurée optiquement avec un grossissement de $\times$ 50. Cependant, comme le montre la figure 2.6, le contraste optique entre l'huile et le gel est très faible et cette mesure est très difficile à automatiser à l'aide de méthodes de traitement d'image classiques. Ainsi, pour des échantillons concentrés ou dès lors que plusieurs plans de gouttes sont superposés, la détection des contours des gouttes n'est pas fiable. Nous pouvons cependant mesurer la distribution en taille sur une injection test diluée. La figure 2.7 présente une telle distribution mesurée sur environ 200 gouttes.

En supposant que la distribution en taille des gouttes est gaussienne, nous pouvons estimer la moyenne $< a >$ et l'écart-type σ du rayon des gouttes de cet échantillon à l'aide d'une fonction d'ajustement gaussienne. Ces deux quantités donnent accès à la polydispersité P de l'échantillon :

$$P = \frac{\sigma}{< a >}. \tag{2.3}$$

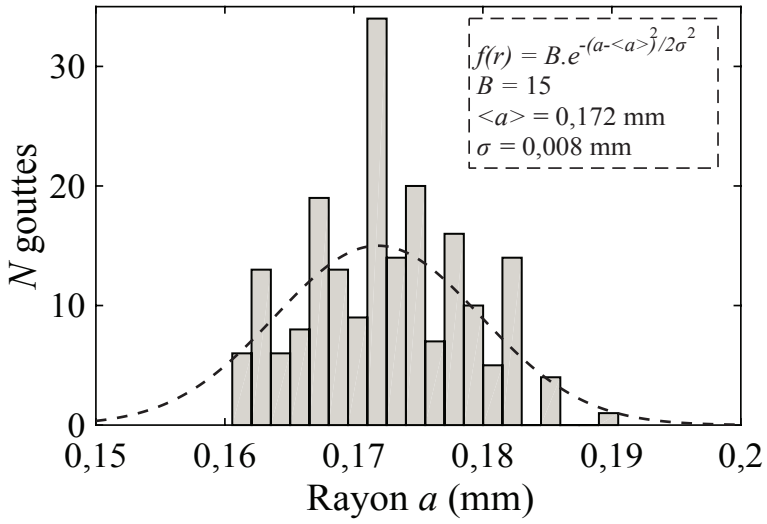

Fig. 2.7 – Distribution en taille de l'échantillon « test » mesurée optiquement sur environ 200 gouttes. L'ajustement gaussien (en trait discontinu) permet d'estimer la moyenne $< a >$ et l'écart-type σ du rayon des gouttes de cet échantillon.

Pour cet échantillon, nous avons mesuré $< a >= 0,172\,\text{mm}$ et $P = 4,7\ \%$. Ces résultats seront par la suite confirmés par mesures acoustiques dans le chapitre 3. Les échantillons les plus monodisperses sont obtenus pour de faibles fractions volumiques. En effet, plus l'écart entre deux gouttes est grand, plus l'échantillon est stable. Nous pouvons quantifier la distance inter-gouttes b, entre les centres de deux gouttes dans une émulsion de fraction volumique ϕ grâce à la relation $b = 2a/\phi^{1/3}$. Pour de grandes fractions volumiques ($b \sim 0,5$ mm), les gouttes peuvent coalescer lors de la manipulation de l'émulsion. De plus, le ralentissement de la tête d'injection en bout de ligne augmente la polydispersité en générant de plus grosses gouttes. Ces gouttes sont alors supprimées manuellement à la fin de l'injection afin de réduire la polydispersité. Nos tests et les résultats acoustiques (chaps. 3 et 4) démontreront que cette étape supplémentaire n'a aucun effet sur la fraction volumique totale de l'échantillon.

Le deuxième paramètre structurel des émulsions facilement contrôlable est la fraction volumique ϕ. Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, la principale difficulté est de produire des émulsions concentrées et monodisperses. Dans notre cas, la limite haute en fraction volumique est $\phi = 40\,\%$. Une telle concentration est atteinte en doublant le passage de l'aiguille sur la première rangée de gouttes. La contrainte seuil du gel permet aux gouttes de se réarranger sans être endommagées (fig. 2.8a) lors du second passage de l'aiguille. Cependant, compte tenu de sa faible distance inter-gouttes ($b \sim 0,46$ mm), la durée de vie de cet échantillon n'excède pas quelques heures et sa manipulation est très difficile.

Enfin, il est possible de profiter du caractère déterministe de l'injection pour créer des systèmes pseudo-périodiques. L'étape de « mélange » de l'émulsion est supprimée en réalisant l'injection directement dans la cellule de mesure (fig. 2.8b). Les résultats de la caractérisation acoustique seront présentés dans le chapitre 4 mais il est dès à présent possible de constater la difficulté de réaliser des « cristaux phononiques » avec de telles émulsions. En effet, la position de

chaque ligne et de chaque plan est parfaitement connue car elle dépend de la position de l'aiguille dans le gel. Cependant, la position de la première goutte décrochée en début de chaque rangée n'est pas contrôlée. Le système alors obtenu est périodique suivant les directions y et z mais aléatoire suivant la troisième x. Il est possible de limiter cette incertitude sous certaines conditions contraignantes pour l'utilisation expérimentale du système (gel très peu dilué et diffuseurs très espacés, $\phi \leq 5$ %).

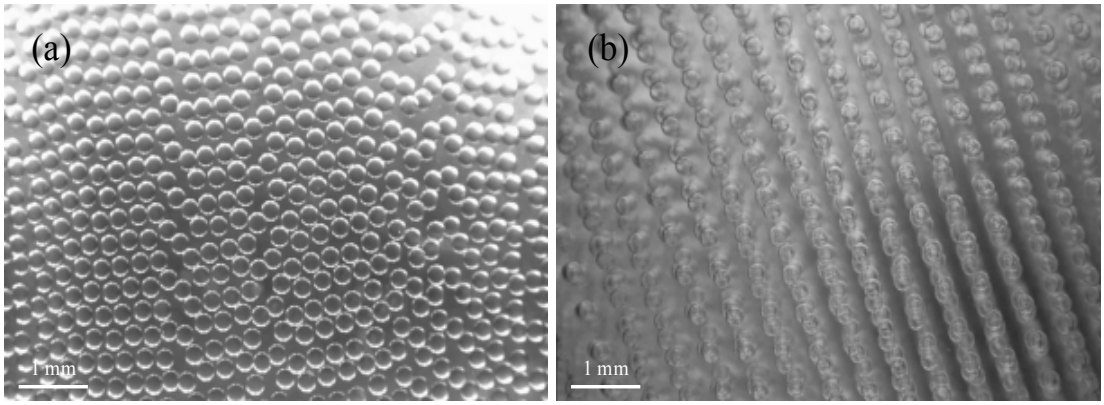

Fig. 2.8 – Deux cas limites de la synthèse d'émulsions : (a) plan unique de gouttes très serrées (en doublant le passage de l'aiguille) en vue de synthétiser une émulsion très concentrée ($\phi = 40$ %) et (b) réseau pseudo-périodique ($\phi = 5$ %).

2.2 Caractérisation des propriétés de l'onde cohérente

La première partie de l'étude acoustique est la mesure de l'onde cohérente s'étant propagée dans nos émulsions. Nous définissons ici l'onde cohérente comme étant l'onde ayant résisté à la moyenne d'ensemble sur la position des diffuseurs. Cette onde (qui préserve la mémoire de sa direction de propagation) est à différencier de l'onde balistique définie comme la première arrivée sur une réalisation du désordre [8]. Si les fluctuations du champ sont faibles, la mesure de l'onde balistique peut suffire à estimer l'onde cohérente. Ce cas de figure n'est que rarement vérifié dans les émulsions résonantes et une estimation de la moyenne configurationnelle devient nécessaire.

Il existe plusieurs manières d'estimer cette moyenne. Il faut pour cela faire appel à la notion d'ergodicité de la variable aléatoire ψ, qui stipule que la moyenne sur les réalisations du désordre peut être remplacée par une moyenne temporelle (dans le cas de particules en mouvement [9]), fréquentielle ou spatiale. Cette dernière méthode est la plus utilisée en acoustique pour des milieux aléatoires (statistiquement homogènes) et de grandes dimensions devant la longueur d'onde. Le champ est moyenné sur des acquisitions réalisées en différents points de l'échantillon [8,10,11]. Si ces différents points sont espacés d'une distance supérieure à la longueur de corrélation du champ transmis, le dispositif « voit » différentes configurations du désordre et la moyenne a un sens. Dans le cas de la mesure de l'onde cohérente dans nos émulsions, cette moyenne spatiale est réalisée sur une seule acquisition. En effet, le signal mesuré étant l'intégrale du champ de

pression sur la face active du transducteur, le champ cohérent est bien estimé si la taille du récepteur est grande devant la longueur de corrélation du champ. Ce processus de moyennage spatial nous permettra de caractériser les propriétés effectives des émulsions *via* la mesure du nombre d'onde de l'onde cohérente $k = \omega/c_{\text{ph}} + \text{j}\alpha$. Nous aurons ainsi accès à la célérité de phase $c_{\text{ph}} = \omega/k'$ et à la longueur caractéristique d'extinction $\ell_{\text{ext}} = 1/2\alpha$ (qui inclue les effets de diffusion et d'absorption).

2.2.1 Choix du dispositif expérimental

La littérature fait état de plusieurs méthodes de caractérisation de l'onde cohérente. Quelques-unes d'entre elles sont détaillées ci-dessous pour justifier le choix de notre dispositif expérimental.

La première méthode [7] a été développée pour la caractérisation de milieux bulleux. Le dispositif expérimental est constitué d'un écran contenant le milieu à caractériser, placé dans une cuve remplie d'eau entre deux transducteurs. Par comparaison des spectres des signaux mesurés avec et sans écran, il est possible de mesurer le nombre d'onde de l'onde cohérente. L'avantage de ce dispositif est de placer l'échantillon dans le champ lointain de l'émetteur et de s'affranchir ainsi des effets de diffraction. De plus, la moyenne spatiale est réalisée par simple translation de l'échantillon. Cependant, l'information apportée par l'onde transmise (le coefficient de transmission global de l'écran) englobe les propriétés effectives de l'échantillon et les coefficients de transmission aux interfaces eau/échantillon. La prise en compte de ces interfaces nécessite la connaissance de l'impédance acoustique effective de l'échantillon Z_{eff} et le problème comporte alors deux inconnues, Z_{eff} et k. Les auteurs ont donc développé une méthode itérative adaptée aux milieux très atténuants, pour limiter l'erreur sur la mesure du nombre d'onde k.

La deuxième méthode considérée est appelée « spectroscopie ultrasonore multi-écho » [12]. En plaçant l'échantillon dans une cellule à parois épaisses, la caractérisation est réalisée en mesurant l'onde acoustique réfléchie par ce dispositif [2]. Les informations complémentaires sont donc apportées par les différents échos à l'intérieur du dispositif (entre les parois et l'émulsion). La mesure de référence, effectuée en remplissant le dispositif avec de l'eau, permet d'apporter les dernières informations sur la cellule. La comparaison des spectres des différents échos donne un système d'équations portant sur les différents coefficients de transmission/réflexion entre les parois de la cellule et l'émulsion. Le paramètre commun à tous ces coefficients est le nombre d'onde k de l'onde cohérente qui est ainsi directement déterminé. La précision de la mesure du nombre d'onde k provient du caractère « inamovible » du dispositif (aucune incertitude n'est induite par une quelconque modification du montage). Dans le cadre de ce travail, ce point constitue cependant le principal obstacle au choix de la spectrographie multi-écho. En effet, dans l'optique de mesures sur plusieurs émulsions de différentes fractions volumiques, il est nécessaire de pouvoir modifier les distances de propagation facilement. Ainsi, les émulsions concentrées nécessitent de courtes distances de propagation pour préserver la cohérence de l'onde et de grandes distances de propagation pour séparer les différents échos dans les émulsions diluées.

La flexibilité des distances de propagation est également la raison pour laquelle la méthode utilisée précédemment pour la caractérisation des constituants (sec. 2.1.1), n'est pas retenue

pour l'étude du champ cohérent. Pour certains échantillons, le libre parcours moyen élastique ℓ_e devient comparable à la longueur d'onde λ_0. Dans ce cas, la mesure sur un différentiel de distance de propagation Δz est alors inévitablement polluée soit par les échos entre les transducteurs, soit par la perte de cohérence de l'onde transmise.

La troisième méthode de mesure de l'onde cohérente, s'est avérée plus appropriée. Elle repose sur la mesure différentielle entre une première onde s'étant propagée dans le milieu à caractériser et une seconde dans le milieu de référence (pour la même distance de propagation z dans les deux cas). En effectuant la mesure directement au contact du milieu de référence (l'eau dans notre cas) puis de l'émulsion à caractériser, le choix de la distance de propagation n'est plus contraint par la variation Δz. La division spectrale est alors performante même pour de grandes concentrations de gouttes d'huile (la cohérence de l'onde étant préservée en réduisant la distance de propagation). Le dispositif de caractérisation mis en place (fig. 2.9) est constitué d'un transducteur émetteur sur lequel est fixée une bague en PVC pouvant contenir l'échantillon à caractériser. Le récepteur est fixé sur un axe de translation vertical et plongé directement dans le fluide à caractériser à une distance z de l'émetteur.

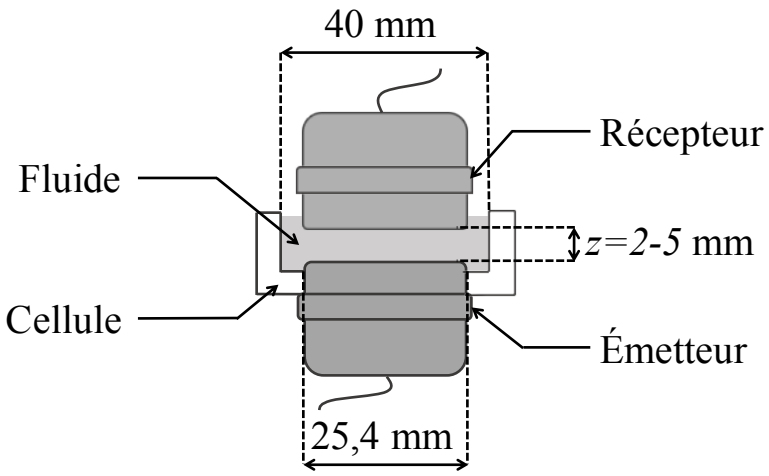

Fig. 2.9 – Dispositif de caractérisation de l'onde cohérente.

Pour les faibles distances de propagation considérées ici, le diamètre de la cellule importe peu en supposant que le faisceau acoustique émis reste « collimaté ». Si les effets de dispersion dans l'émulsion ne sont pas trop importants, la mesure de référence permet alors de s'affranchir des effets de champ proche (qui restent négligeables d'après les prédictions numériques présentées section 2.2.2). De plus, nous pouvons raisonnablement supposer que les propriétés effectives du matériau hétérogène sont sondées dès lors que pour une propagation sur $z = 2$ mm, l'onde transmise a interagi avec une population d'environ 2 500 diffuseurs dans le cas dilué ($\phi = 5$ %) et 12 000 diffuseurs pour les émulsions concentrées ($\phi = 25$ %).

Les capteurs utilisés (de rayon $R_{\text{cap}} = 12,7$ mm) sont excités par une impulsion électrique centrée sur $f_0 = 5$ MHz. Le signal de référence (mesuré dans l'eau) et l'estimation de l'onde cohérente résultante, ainsi que les modules de leur transformée de Fourier sont présentés sur la

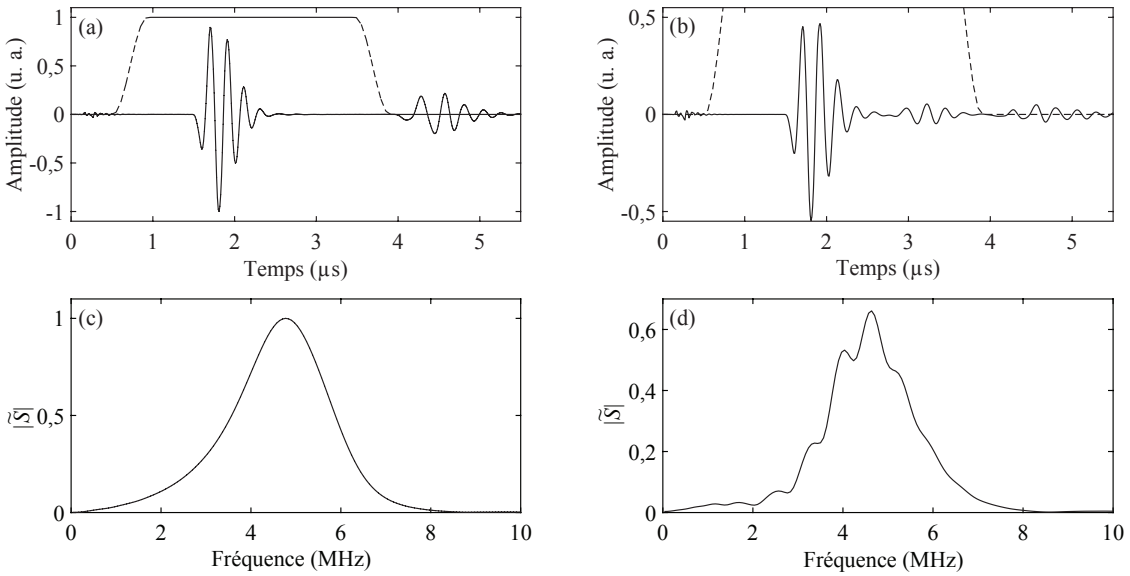

Fig. 2.10 – (a) Signal de référence (propagation à travers 2 mm d'eau). (b) Estimation de l'onde cohérente mesurée à travers 2 mm d'émulsion (avec $\phi = 5$ %). Les lignes discontinues représentent les fenêtres rectangulaires apodisées appliquées. Les modules des transformées de Fourier correspondantes sont représentés dans les cadres (c) et (d) (pour la référence et l'onde cohérente respectivement).

figure 2.10. Le signal lié au couplage électromagnétique (présent aux temps courts, $t \leq 0{,}5$ μs) et les échos entre les transducteurs (vers $t = 4$ μs, figs. 2.10a et b) sont supprimés *a posteriori* par application d'une fenêtre rectangulaire apodisée. Cette fenêtre permet de ne pas atténuer artificiellement les effets de la dispersion (seconde impulsion autour de $t = 3$ μs, fig. 2.10b) tout en limitant l'influence de ce fenêtrage dans le domaine fréquentiel (apparition de lobes secondaires). La largeur fréquentielle du signal généré est suffisante pour exciter plusieurs résonances des gouttes d'huile. En effet le spectre $\widetilde{S}$ de l'onde cohérente (fig. 2.10d) montre des minima à certaines fréquences liés aux pics d'atténuation causés par les résonances des gouttes.

Pour vérifier la performance de l'estimation de l'onde cohérente (par moyenne spatiale sur la surface du récepteur), nous avons réalisé le même type de mesure sur plusieurs échantillons. Un grand volume d'émulsion a été synthétisé dans la cellule d'injection avec $\phi = 5$ %. Huit prélèvements d'émulsion ont été effectués dans cette cellule afin d'obtenir huit réalisations du désordre différentes. Les signaux transmis à travers ces huit prélèvements sont représentés sur la figure 2.11 pour $z = 2$ et 5 mm. Pour ces deux distances de propagation, l'estimation de l'onde cohérente reste très bonne dès lors que les signaux sont très similaires en phase et en amplitude. La faible variation entre les signaux (principalement en amplitude) est certainement due à l'incertitude sur la concentration de chaque prélèvement d'émulsion (seule la concentration de l'injection globale est connue avec précision). Cette mesure nous confirme également que la présence de la seconde impulsion autour de $t = 3$ μs est due aux effets de dispersion.

Des tests similaires ont été effectués sur plusieurs injections réalisées indépendamment pour lever cette incertitude sur la concentration. Cependant, les conditions d'injection ne pouvant être

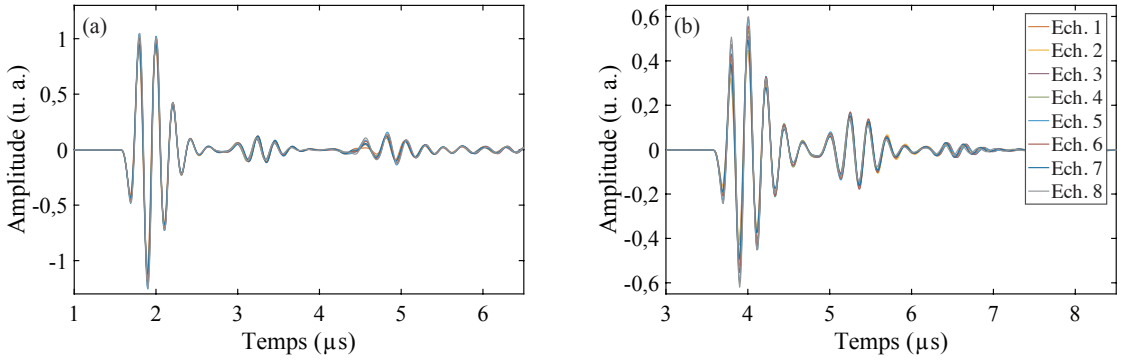

Fig. 2.11 – Comparaison des signaux transmis à travers huit échantillons d'une émulsion de fraction volumique $\phi = 5$ %. La mesure a été effectuée pour deux distances de propagation : (a) $z = 2$ mm et (b) $z = 5$ mm.

parfaitement reproductibles, une variation de quelques microns sur le rayon moyen des gouttes cause un déphasage invalidant tout jugement sur la présence de champ incohérent.

La méthode de post-traitement fait appel à la division spectrale mentionnée dans la section 2.1.1. En notant $k_{\text{ref}} = \omega/c_{\text{ref}}$, le nombre d'onde de l'onde se propageant dans le milieu de référence (supposé à valeurs réelles pour l'eau) et $\widetilde{S}_{\text{ref}}$ sa transformée de Fourier, nous avons :

$$\begin{aligned} \alpha &= \ln\left(\frac{|\widetilde{S}_{\text{ref}}|}{|\widetilde{S}|}\right)\frac{1}{z} = \frac{1}{2\ell_{\text{ext}}}, \\ c_{\text{ph}} &= \left[\frac{\varphi_{\text{ref}}-\varphi}{\omega z} + \frac{1}{c_{\text{ref}}}\right]^{-1}, \end{aligned} \tag{2.4}$$

avec φ_{ref} et φ représentant respectivement les phases des transformées de Fourier du signal de référence et de l'onde cohérente. Cette technique permet la caractérisation précise de l'onde cohérente et donne accès aux caractéristiques de l'émulsion (les incertitudes relatives [b] sont de l'ordre de $0,1$ % sur les mesures de l'atténuation et de la célérité de phase). En effet, comme nous le verrons dans le chapitre 3, les modèles de diffusion multiple que nous confronterons à ces mesures, font appel à la dispersion en taille des gouttes et aux propriétés acoustiques des constituants.

Comme mesure additionnelle, il est aussi possible de caractériser la célérité de groupe de l'onde cohérente c_{gr} en fonction de la fréquence. C'est une quantité délicate à mesurer dès lors qu'elle peut prendre certaines valeurs anormales autour des fréquences de résonance [13, 14]. En effet, c_{gr} est définie comme la dérivée de la pulsation ω par rapport à la partie réelle k' du nombre d'onde,

$$c_{\text{gr}} = \frac{\partial\omega}{\partial k'}. \tag{2.5}$$

Les résonances très marquées peuvent alors conduire à des valeurs très grandes ou négatives de la célérité de groupe. Certaines précautions sont à prendre pour mesurer avec précision cette quantité dans les milieux très dispersifs. En gardant le même dispositif d'estimation de l'onde

b. Ces incertitudes sont estimées à partir de la fréquence d'échantillonnage des signaux ($f_e = 50$ MHz) et de la précision du dispositif expérimental sur la distance de propagation ($\sim 1\,\mu$m). La transformée de Fourier du niveau de bruit permet également de prendre en compte l'erreur commise sur les modules et les phases des transformées de Fourier $\widetilde{S}_{\text{ref}}$ et $\widetilde{S}$.

cohérente (fig. 2.9), nous utilisons la méthode mise en place par M. Cowan et ses collaborateurs [15] consistant à mesurer le retard de groupe d'impulsions gaussiennes. Les estimations de l'onde cohérente obtenues précédemment (fig. 2.10b) sont numériquement filtrées avec un filtre gaussien de largeur de bande $df = 200$ kHz (définie ici comme la largeur à mi-hauteur du filtre). Ce filtre est suffisamment sélectif pour ne pas moyenner différents effets fréquentiels. Par ailleurs, la largeur de bande doit être suffisamment grande pour ne pas obtenir de signal continu pour lequel une célérité de groupe serait impossible à définir. Cet effet du filtre numérique est décrit sur la figure 2.12 pour deux distances de propagation ($z = 2$ et 4 mm) et deux bandes-passantes du filtre ($df = 500$ et 200 kHz) et une fréquence centrale $f_0 = 2{,}6$ MHz. Autour de cette

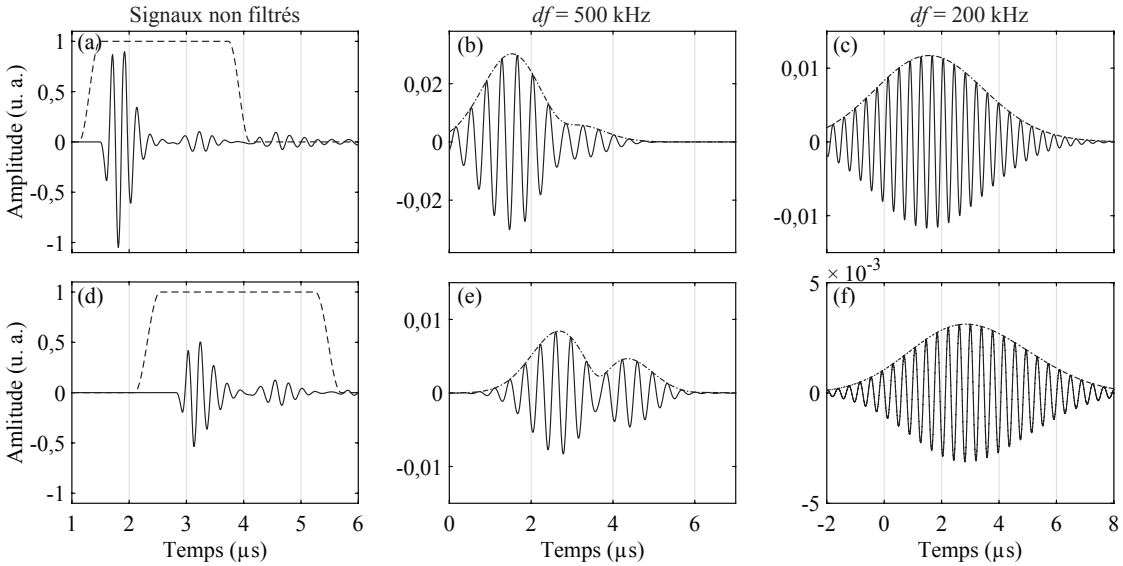

Fig. 2.12 – Effets du filtrage numérique pour deux impulsions cohérentes s'étant propagées sur $z = 2\,mm$ (a, b et c) et $z = 4\,mm$ (d, e et f) dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 5\,\%$. Les figures de gauche (a et d) montrent les signaux cohérents bruts et la fenêtre appliquée (en ligne discontinue). Les figures du milieux (b et e) et de droite (c et f) représentent ces signaux filtrés à $f_0 = 2,6\,MHz$ avec des bandes-passantes $df = 500$ et 200 kHz respectivement. Les tracés discontinus mixtes représentent l'enveloppe de ces signaux.

fréquence (correspondant à la résonance quadripolaire des gouttes), les effets de dispersion sont très importants. En effet, la figure 2.12b montre l'apparition de deux impulsions distinctes se séparant d'autant plus lorsque l'on augmente la distance de propagation (comme le montre la figure 2.12e avec $z = 4$ mm). Cet effet est dû au facteur de qualité élevé des résonances. En effet pour ces deux signaux, le filtrage n'est pas assez sélectif et tout se passe comme si l'on détectait deux impulsions se propageant à deux célérités de groupe différentes. La détection du temps de groupe est alors modifiée (d'un temps δt) par les interférences entre ces deux paquets d'ondes. La largeur du filtre est donc réduite à $df = 200$ kHz afin de limiter ces interférences et ainsi obtenir une modulation gaussienne de l'impulsion (figs. 2.12c et f). Les arrivées aux temps négatifs proviennent de la non-causalité du filtre utilisé. Cet artefact numérique n'a aucune incidence sur

la mesure de la célérité de groupe car nous nous intéressons uniquement au temps d'arrivée du maximum $t_{\max}$ de l'enveloppe du signal.

La célérité de groupe $c_{\mathrm{gr}} = (z_2 - z_1)/(t_{\max 2} - t_{\max 1})$ est déterminée, avec une incertitude relative [c] de l'ordre de 5 %, à partir de la mesure des deux temps d'arrivée, $t_{\max 1}$ et $t_{\max 2}$, associés à deux distances de propagation z_1 et z_2. Cette opération permet de compenser les incertitudes δt sur $t_{\max 1}$ et $t_{\max 2}$ dues aux effets de dispersion. En effet, il est également possible d'effectuer cette mesure grâce à un temps de groupe de référence t_{ref} (mesuré dans l'eau). Dans ce cas, la célérité de groupe est donnée par : $c_{\mathrm{gr}} = c_{\mathrm{ref}} t_{\mathrm{ref}}/t_{\max}$. Cependant, le milieu de référence n'étant pas dispersif ($\delta t_{\mathrm{ref}} = 0$), le filtrage doit être très sélectif afin de réduire l'incertitude δt.

2.2.2 Longueurs caractéristiques

Nous nous sommes ici focalisés sur la caractérisation de l'onde cohérente à travers la mesure de son nombre d'onde et de sa célérité de groupe. Cependant notre dispositif de mesure au contact de l'émulsion est à utiliser avec précaution dès lors que les distances de propagation z restent relativement faibles devant la longueur d'onde λ ($z \approx [1 - 10]\,\lambda$). Pour de telles distances, il faut tout d'abord tenir compte des effets des échos entre les deux transducteurs. Si deux échos sont enregistrés et séparés d'un temps $t_{\text{écho}}$, ils peuvent induire dans le spectre du signal des « pics artificiels » à des fréquences séparées de $1/t_{\text{écho}}$. La détection des fréquences de résonance est alors polluée par ces fluctuations artificielles. Dans les cas d'émulsions diluées étudiées précédemment (fig. 2.10), la séparation des échos est aisée par simple fenêtrage temporel du signal. Les cas les plus problématiques apparaissent pour les concentrations plus élevées étudiées au chapitre 4 ($\phi > 25$ %). Dans ce cas, les échos peuvent être masqués par les arrivées d'impulsions secondaires d'amplitude élevée causées par la forte dispersion. Cependant, les calculs basés sur les théories de diffusion multiple (détaillés chapitres 3 et 4) montrent que pour $\phi = 25\,\%$, le libre parcours moyen élastique ℓ_{e} est toujours inférieur à 1 mm pour des fréquences comprises entre 1 et 4 MHz. Sur cette gamme de fréquences, la forte atténuation réduit d'un facteur 10^3 l'amplitude de l'écho ayant parcouru l'aller-retour entre les deux transducteurs ($z_{\mathrm{echo}} = 4$ mm).

Dans cette configuration expérimentale, où le récepteur est très proche de l'émetteur, les effets de diffraction peuvent influencer la mesure. Cependant, pour corriger la diffraction il faut connaître *a priori* la longueur d'onde et l'atténuation de l'onde dans le milieu (soit les deux quantités que nous cherchons à mesurer). De plus, l'atténuation et le déphasage induits par les phénomènes de diffusion multiple sont très importants en comparaison à l'erreur induite par la diffraction. Ceci est d'autant plus vérifié que la fraction volumique de gouttes d'huile est grande, comme nous l'avons vérifié par des calculs numériques. Ces prédictions sont issues de travaux sur la caractérisation des propriétés acoustiques de l'eau [4]. Dans cette étude, la modification de la distance de propagation associée à la connaissance des propriétés acoustiques de l'eau ont permis de mesurer les conséquences de la diffraction de la source sur les mesures de l'atténuation

c. Cette incertitude est estimée à partir de la fréquence d'échantillonnage et l'erreur commise sur la connaissance de la distance de propagation (de la même manière que pour la mesure de l'atténuation et de la célérité de phase). Dans ce cas, les résidus d'ajustements gaussiens des impulsions transmises sont également pris en compte dans le calcul de l'incertitude.

et de la célérité de phase. Lorsque deux transducteurs circulaires (de rayon $R_{\text{cap}} > 7\lambda$), émettant une impulsion large bande, sont espacés d'une distance z inférieure à la moitié de la distance de Fresnel ($z < R_{\text{cap}}^2/2\lambda$), le champ de pression $P(z)$ transmis doit être corrigé d'un facteur $D(z)$:

$$\begin{aligned} P(z) &= \mathrm{e}^{\mathrm{j}(k_{\text{m}} z - \omega t)} D(z), \\ D(z) &= 1 - \frac{1}{R_{\text{cap}}} \sqrt{\frac{z}{\pi k_{\text{m}}}} (1 - \mathrm{j}), \end{aligned} \tag{2.6}$$

avec k_{m} le nombre d'onde de l'impulsion s'étant propagée dans le fluide m à caractériser. Cette méthode nécessite la connaissance préalable de k_{m}. Dans le cas du dispositif expérimental au contact (fig. 2.9), nous avons estimé l'influence de la diffraction sur les mesures de l'atténuation et de la célérité de phase dans le cas particulier d'une propagation dans le gel pur (dont nous connaissons avec précision les propriétés acoustiques α_0 et c_0). Les corrections α_{diff} et c_{diff} à appliquer sur l'atténuation et la célérité de phase pour compenser les effets de champ proche sont calculées et présentées sur la figure 2.13 pour plusieurs distances de propagation z [4].

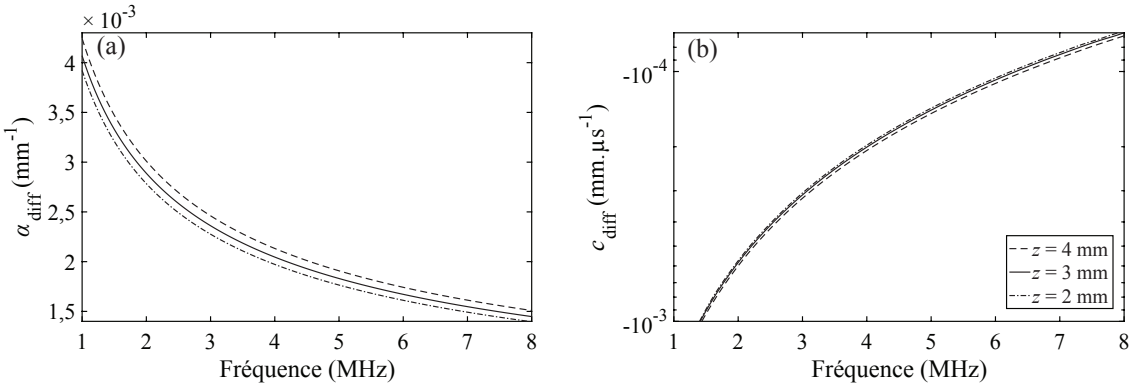

Fig. 2.13 – Corrections α_{diff} et c_{diff} à appliquer aux mesures de : (a) l'atténuation et (b) la célérité de phase pour compenser les effets de diffraction en champ proche. Ces résultats sont présentés pour trois distances de propagation z = 2, 3 et 4 mm.

Ces corrections sont négligeables devant les niveaux d'atténuation dus à la diffusion multiple (de l'ordre de 1 mm^{-1}) et les variations de célérité de phase (de l'ordre de 0,1 mm.μs^{-1}) autour des résonances. Pour nous assurer que les effets de diffraction restent négligeables dans le cas d'une propagation dans les émulsions résonantes, le même calcul a été effectué en simulant les propriétés acoustiques effectives d'une émulsion concentrée ($\phi = 25$ %) et parfaitement monodisperse ($P = 0$ %). Ce dernier calcul montre que les corrections de la diffraction α_{diff} et c_{diff} dans l'émulsion, sont sensiblement égales (à 5 % près) à celle de la figure 2.13 dans le cas d'une propagation dans le gel pur.

Enfin, la caractérisation de l'atténuation α de l'onde cohérente inclut l'atténuation par diffusion multiple (transfert d'énergie vers le champ incohérent) et les mécanismes d'absorption inélastique des constituants [16] (estimés dans la partie 2.1.1). Par la suite, ces différentes notions seront décrites à l'aide de longueurs caractéristiques. Ainsi, le libre parcours moyen d'extinction $\ell_{\text{ext}} = 1/2\alpha$ correspond à la distance après laquelle l'intensité de l'onde cohérente a été réduite d'un facteur exp(1). Cette quantité inclut les pertes par diffusion (caractérisées par le

libre parcours moyen élastique ℓ_e) et par absorption (quantifiées par la longueur caractéristique d'absorption $\ell_a \approx \ell_0 = 1/2\alpha_0$) [d] :

$$\frac{1}{\ell_{ext}} = \frac{1}{\ell_e} + \frac{1}{\ell_a}. \tag{2.7}$$

La caractérisation de l'atténuation dans la matrice nous montre que $\ell_a \approx 500$ mm à 5 MHz alors que le libre parcours moyen élastique ℓ_e varie de 1 mm pour les échantillons dilués, à 0,2 mm pour les fractions volumiques optimales (qui ne sont pas nécessairement les plus élevées, cf. chap. 4). L'atténuation de l'intensité cohérente est donc majoritairement due aux effets de diffusion multiple. Cependant, bien que la quantité directement mesurée soit le libre parcours moyen d'extinction ℓ_{ext} (l'onde transmise ayant subi les effets de diffusion et d'absorption), il n'est pas toujours nécessaire d'effectuer l'approximation $\ell_{ext} \sim \ell_e$. En effet, la faible absorption intrinsèque de chaque constituant est connue et prise en compte dans la modélisation du nombre d'onde k. Ainsi, nous avons expérimentalement accès au libre parcours moyen élastique ℓ_e découplé des effets de l'absorption.

2.3 Caractérisation des propriétés de l'onde incohérente

Le deuxième dispositif expérimental décrit dans ce chapitre permet la caractérisation des ondes incohérentes et en particulier celle de l'intensité moyenne de la variance $\delta\psi$ du champ acoustique (éq. 1.11). Par conséquent, on ne cherche plus à moyenner le champ acoustique sur les réalisations du désordre. Le dispositif expérimental doit être sensible aux fluctuations spatiales du champ. De plus la détection du champ incohérent nécessite la propagation de l'onde sur des distances supérieures au libre parcours moyen élastique (afin d'obtenir un transfert d'énergie de l'onde cohérente vers l'onde incohérente). Si ces conditions sont réunies, le signal transmis résulte de la somme d'un grand nombre d'événements de diffusion (ou de très longs « chemins » de diffusion). Ce signal s'étend alors sur des temps très longs (jusqu'à 1000 fois la largeur temporelle de l'impulsion incidente dans les émulsions). Un tel signal communément appelé *coda*, est porteur d'une grande quantité d'informations [17, 18] sur le milieu hétérogène mais nécessite un dispositif expérimental adapté à l'observation de signaux de très faible amplitude sur des temps suffisamment longs. En effet, les signaux arrivant aux temps très longs correspondent aux ondes multiplement diffusées ayant parcouru les plus grands « chemins » de diffusion. Ainsi, malgré leur très faible valeur, les absorptions intrinsèques α_0 et α_1 jouent un rôle prépondérant sur la décroissance de la *coda* aux temps longs. Pour éviter les biais dans l'interprétation de la diffusion multiple aux temps longs, le dispositif doit s'affranchir des effets de l'absorption.

2.3.1 Choix du dispositif expérimental

L'onde incohérente peut être caractérisée à l'aide de descriptions statistiques de ses fluctuations spatiales ou temporelles [17, 19]. Nous nous intéressons cependant ici à la caractérisation

d. Nous verrons dans le chapitre 3 que l'absorption globale ℓ_a des ondes se propageant dans les émulsions ne provient pas uniquement de l'absorption de la matrice mais aussi d'un effet de « couplage » visqueux entre les gouttes d'huile et le gel aqueux. Cependant pour les ordres de grandeur discutés ici, l'approximation $\ell_a \approx \ell_0$ reste valable.

de la moyenne de l'intensité incohérente $< |\delta\psi|^2 >$, classiquement obtenue en moyennant sur le désordre les intensités des *codas* mesurées. Les notions de phases temporelle et spatiale ne sont alors plus pertinentes dans ce cas. Sous certaines conditions [8, 20, 21], la description du champ n'est plus réalisée à l'aide de théories de propagation mais de diffusion (au sens de la diffusion de la chaleur). Le transport de l'intensité diffuse est alors décrit par la vitesse de transport v_e et le coefficient de diffusion D.

La méthode de mesure du coefficient D utilisée se base sur la caractérisation de l'évolution transverse du « halo diffusif » généré par un point source (la largeur spatiale de ce halo évoluant temporellement en $\sqrt{Dt}$). L'idée originale [20] a été développée pour la mesure du coefficient de diffusion D dans des suspensions de billes de verre suspendues dans de l'eau (ou plus récemment [19] dans des réseaux de billes d'aluminium frittées). Ce dispositif (entièrement immergé dans l'eau) est constitué d'un transducteur focalisé générant une source acoustique ponctuelle sur une face de la cellule contenant l'échantillon (les aberrations de la focalisation étant supprimées par un cône réfléchissant). Le champ transmis à travers la face opposée de l'échantillon, est sondé à l'aide d'un hydrophone pouvant se déplacer parallèlement à la paroi de la cellule d'une distance transverse ρ (fig. 2.14). La moyenne sur les réalisations du désordre est réalisée en déplaçant l'échantillon. Ainsi, il est possible de mesurer, en transmission, l'expansion latérale du halo diffusif [22].

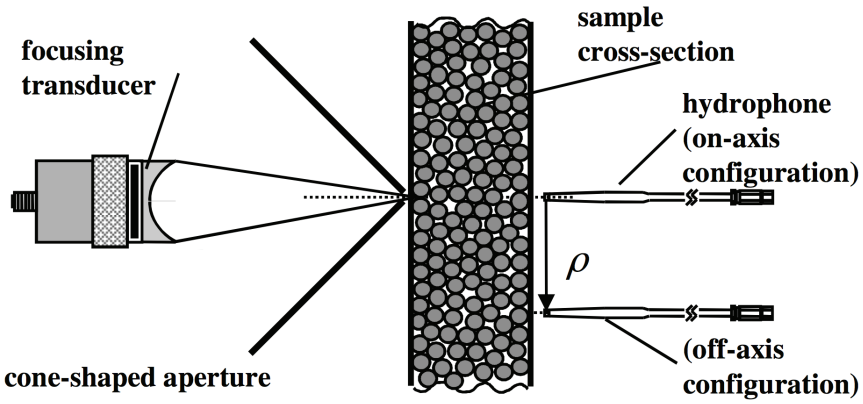

Fig. 2.14 – Dispositif expérimental (extrait de [22]) utilisé dans le groupe de J. H. Page [19, 20] pour la caractérisation du halo diffusif dans un réseau de billes d'aluminium frittées.

Nous adaptons ce dispositif au cas des émulsions résonantes, avec une contrainte supplémentaire qui est de sonder le champ, non-plus sur la face opposée de l'échantillon, mais en tous points à l'intérieur du milieu hétérogène. Le dispositif n'est donc plus immergé : une face de l'échantillon est libre afin de pouvoir y plonger l'hydrophone.

Le point source est réalisé avec un transducteur focalisé de fréquence centrale $f_0 = 2{,}25\,\text{MHz}$, de rayon $R_{\text{cap}} = 38{,}1$ mm et de distance focale $F = 76{,}2$ mm. Ainsi, dans le plan focal, la largeur à mi-hauteur de la tache focale est $l_{\text{-6dB}} = \lambda_0 F/(2R_{\text{cap}}) \approx 1{,}3$ mm à la fréquence centrale du transducteur. La cellule de mesure contenant l'émulsion est placée dans le plan

focal du transducteur à l'aide d'une « ligne à retard » remplie d'eau (fig. 2.15). Cette cellule est constituée d'une bague cylindrique en PVC, de hauteur $L = 26$ mm et de 94 mm de diamètre, fermée au fond par un film de Kapton de 20 μm d'épaisseur (acoustiquement transparent aux longueurs d'onde étudiées).

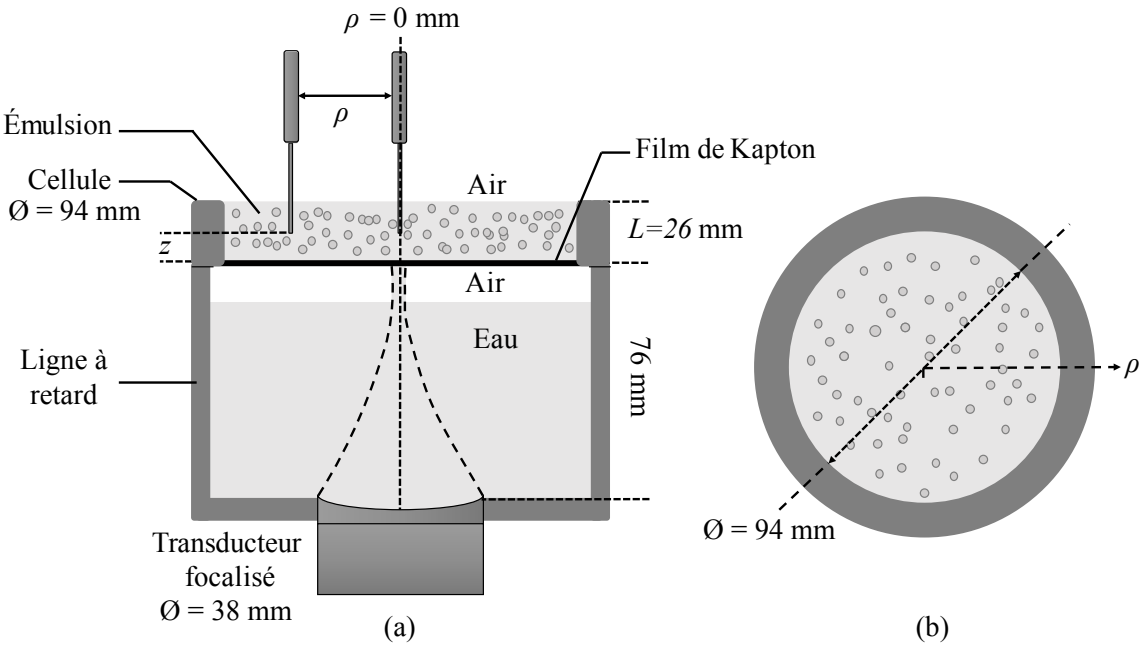

Fig. 2.15 – Vues en coupe (a) et du dessus (b) du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation du champ incohérent dans les émulsions résonantes.

Le processus de focalisation induit l'apparition de lobes secondaires autour de la tache focale due à la diffraction par les bords du capteur. Nous introduisons donc un « diaphragme acoustique » à l'entrée de la cellule de mesure pour atténuer ces lobes qui ont pour effet de générer des sources secondaires en $\rho \neq 0$ mm.

La solution retenue a été de placer un diaphragme parfaitement réfléchissant constitué d'une lame d'air entre la ligne à retard et l'échantillon (les conditions aux limites en $z = 0$ mm et $z = L$ sont donc symétriques, fig. 2.15a). Le principal inconvénient de cette méthode est sa difficulté de mise en œuvre. En effet, la réalisation d'un lien eau/émulsion (l'ouverture du diaphragme) adapté en impédance et stable n'est pas aisée dès lors que les meilleurs candidats sont des matériaux fluides. Plusieurs matériaux ont été testés pour réaliser ce « pont acoustique ». Les hydrogels sont bien adaptés en impédance ($Z_{\text{hydrogels}} \sim Z_{\text{eau}}$) mais ils se déforment une fois plongés dans l'eau quelle que soit leur concentration en polymère. La solution a été de créer un cylindre de PDMS (de 5 mm de diamètre et 4 mm de hauteur) collé sous le film de Kapton, le PDMS étant beaucoup plus rigide que les hydrogels. De plus les expériences durant plusieurs jours, l'intégrité de la lame d'air est mise à mal par la condensation de gouttes d'eau sous le Kapton (qui forment alors des ponts capillaires entre l'eau et l'émulsion). Une mince couche d'huile d'olive est alors déposée à la surface de l'eau. Le diaphragme ainsi obtenu est détaillé sur la figure 2.16.

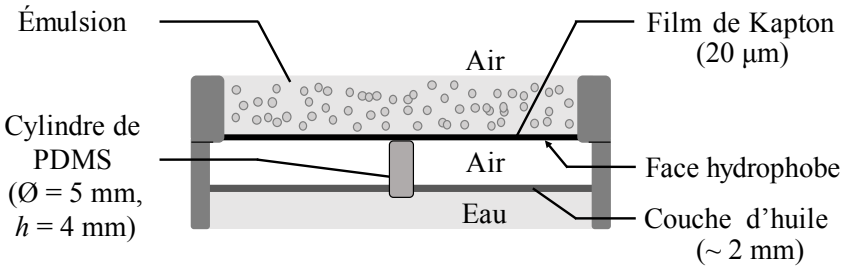

Fig. 2.16 – Détails du diaphragme réfléchissant utilisé.

En remplaçant l'émulsion contenue dans la cellule par de l'eau, nous testons l'efficacité de notre diaphragme. Les cartographies du champ, réalisées très proche de la source ($z \sim 0$ mm) en fonction de la distance ρ et du temps t, sont présentées sur la figure 2.17. Cette mesure permet d'apprécier les performances du dispositif. En effet, sans aucun diaphragme (fig. 2.17a) la source est spatialement étendue causant des sources secondaires d'amplitude non négligeable (entre -20 et -40 dB). Le diaphragme (fig. 2.17b) coupe totalement les lobes secondaires (aucune énergie acoustique n'est transmise à travers la lame d'air au-delà du niveau de bruit).

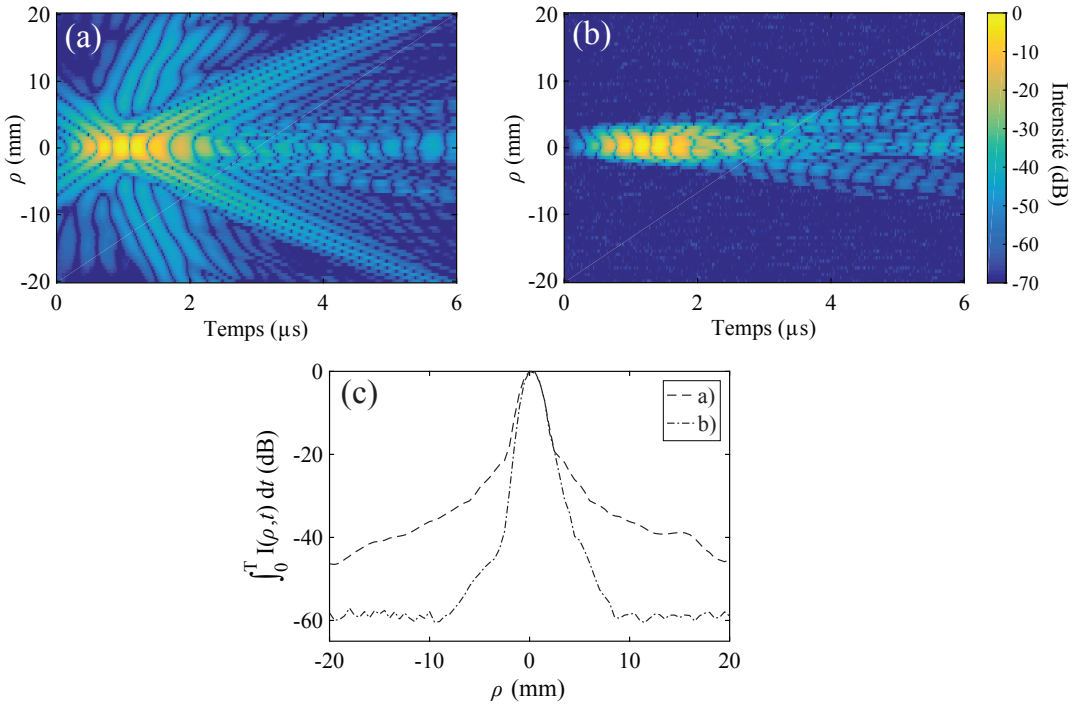

Fig. 2.17 – Cartographies des intensités instantanées réalisées : (a) sans diaphragme et (b) avec le diaphragme réfléchissant (lame d'air). Les échelles de couleur sont les même pour ces figures. (c) Intensité instantanée intégrée sur la gamme de temps affichée ($t \in [0, 6]$ µs) pour les deux cas de figure précédents (a et b).

Le diaphragme présenté ici, a une ouverture de 5 mm ($\sim$ 7,5 λ à 2,25 MHz). Les résultats des cartographies montrent une tache focale légèrement plus grosse (fig. 2.17d), conséquence de

la diffraction de l'ouverture aux temps longs dès lors que le champ acoustique n'est pas tout à fait sondé à $z = 0$ mm mais pour une distance légèrement plus grande ($\sim$ 0,5 mm). L'ouverture du diaphragme réfléchissant final est réduite par la suite à 3 mm ($\sim$ 4,5 λ), ce qui permet de se rapprocher d'une source ponctuelle et d'injecter suffisamment d'énergie dans le système sans diminuer fortement le rapport signal sur bruit. L'optimisation de ce dernier paramètre est en effet essentielle pour la caractérisation d'ondes multiplement diffusées de très faible amplitude.

Le coefficient de diffusion D est un paramètre dynamique [23, 24] nécessitant des mesures résolues en temps. En d'autres termes, l'émission d'un signal continu ne permet pas l'observation de l'évolution du halo diffusif. Le signal émis lors de nos expériences est alors une impulsion gaussienne (6 cycles) centrée sur $f_0 = 2{,}5$ MHz. Sa composition fréquentielle permet de sonder les effets des résonances les plus fortes (dipolaire et quadripolaire) tout en optimisant le rapport signal sur bruit (l'énergie étant concentrée sur une gamme de fréquences assez étroite comprise entre 2 et 3 MHz). Ce signal est créé par un générateur de fonctions puis amplifié par un amplificateur de puissance ayant un gain de 50 dB. Le signal mesuré par l'hydrophone aiguille est ensuite ré-amplifié à la réception avec un gain de 25 dB. Le signal incident et le module de son spectre sont reportés sur la figure 2.18. La faible seconde harmonique (caractéristique de phénomènes non-linéaires) observée autour de 5 MHz n'a aucune influence sur la mesure du champ diffusé et sera supprimée lors de l'étape de filtrage des signaux acquis. Le signal transmis

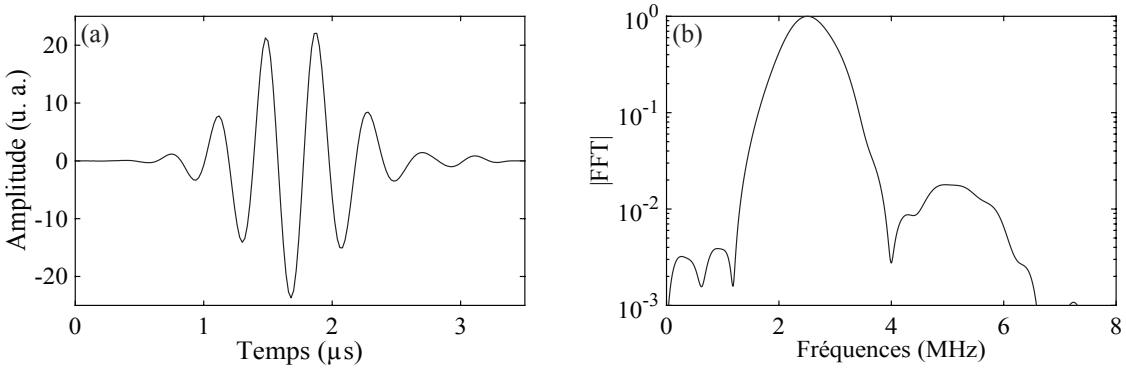

Fig. 2.18 – (a) Impulsion gaussienne incidente utilisée pour la caractérisation du champ diffusé et (b) module de la transformée de Fourier correspondante.

à travers une émulsion de fraction volumique $\phi = 5\,\%$ est alors une *coda* s'étendant sur des temps supérieurs à 1000 fois la largeur temporelle du signal incident (fig. 2.19a). L'ensemble du dispositif est monté sur un système de platines de translations trois axes piloté par Labview. Il est alors possible de sonder le champ en tous points (ρ, θ, z) à l'intérieur de l'émulsion. Les *codas* sont acquises pour plusieurs distances transverses ρ. Le moyennage sur les configurations est encore une fois effectué par moyennage spatial sur l'angle θ en tirant avantage de la symétrie cylindrique du dispositif. Pour une profondeur z, l'acquisition est effectuée en « étoile » : après avoir sondé le champ radialement en plusieurs points ρ, le dispositif effectue une rotation $d\theta$ et répète la même étape. Pour une distance ρ, nous avons ainsi environ 400 acquisitions.

Afin d'obtenir une caractérisation du halo diffusif résolue en fréquence, les *codas* obtenues sont numériquement filtrées avec un filtre gaussien. La moyenne du champ est soustraite à ces *codas* dans le but de ne garder que le champ incohérent. Les enveloppes de ces signaux sont ensuite élevées au carré puis moyennées sur le désordre. Le niveau de bruit est estimé sur les temps négatifs (avant l'émission du signal) puis soustrait à l'intensité moyenne pour éviter toute décroissance anormale (non-exponentielle) de cette intensité. Le résultat obtenu (l'intensité incohérente moyenne $< |\delta\psi|^2 >$) est représenté sur la figure 2.19b pour une fréquence de filtrage $f = 2{,}7$ MHz.

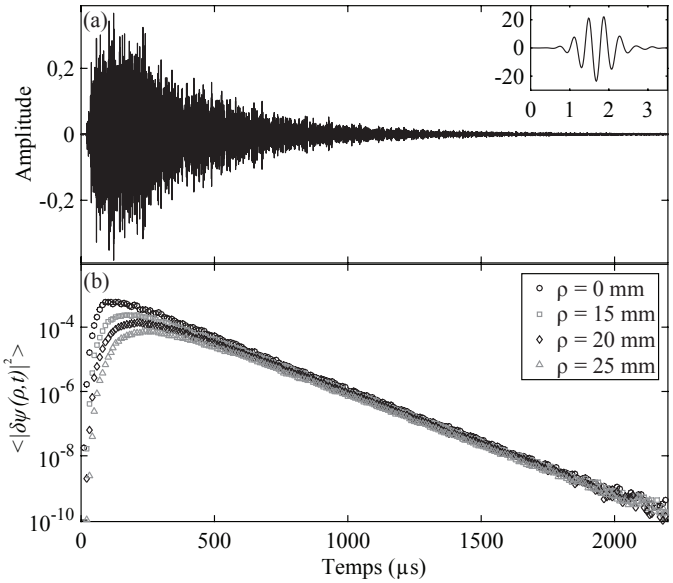

Fig. 2.19 – (a) Signal transmis pour une configuration du désordre à $z = 20$ mm et $\rho = 0$ mm à travers une émulsion concentrée à $\phi = 5$ % en gouttes d'huile (le signal incident est représenté dans l'encart). (b) Carrés des enveloppes de ces signaux moyennés sur le désordre pour plusieurs distances ρ.

L'inconvénient de ce type de dispositif est que le processus de moyennage est *a priori* moins performant pour les faibles distances ρ, du fait de la faible longueur de l'arc $\rho d\theta$ pour ces points situés au centre de la cellule. En effet, si $\rho d\theta$ est inférieur à la longueur de corrélation du champ, le moyennage est inefficace. La qualité de la moyenne peut être évaluée par le « critère balistique » [19]. Pour des acquisitions $\psi(\rho, t)$ sur N configurations du désordre différentes, le critère balistique CB s'écrit :

$$CB = \frac{| < \psi(\rho,t) > |^2}{< |\psi(\rho,t)|^2 >}. \tag{2.8}$$

Lorsque $CB = 1$, les acquisitions sont parfaitement corrélées et le champ est cohérent. Si le champ est parfaitement incohérent, ce critère est égal à l'inverse du nombre de configurations du désordre utilisées pour l'estimation de la moyenne d'ensemble ($CB = 1/\mathrm{N}$). Le critère balistique représenté figure 2.20a est calculé pour les données expérimentales de la figure 2.19. Ce résultat montre que les différentes acquisitions sont effectivement plus corrélées aux temps courts au centre de l'échantillon ($\rho = 0\,\mathrm{mm}$) qu'aux grandes distances ($\rho = 25$ mm). Aux temps longs, le

champ est totalement aléatoire avec $CB \approx 1/N$ (la parfaite corrélation pour $t \approx 0$ μs provient de l'impulsion liée au couplage électromagnétique entre les appareils de mesure qui reste la même pour toutes les acquisitions). Cependant, la corrélation aux temps courts de la figure 2.20a

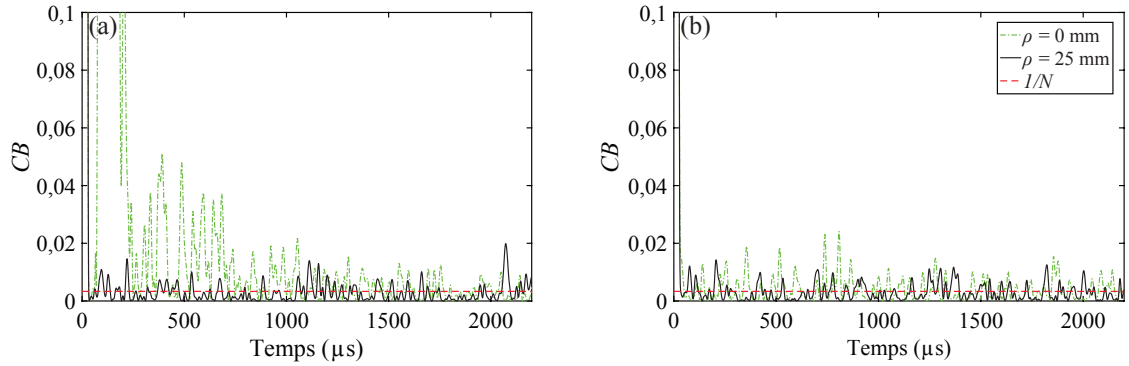

Fig. 2.20 – Critère balistique CB pour des signaux mesurés à deux distances $\rho = 0$ et 25 mm et filtrés à une fréquence $f = 2{,}7$ MHz ($df = 50$ kHz de bande-passante). CB est ici représenté pour deux échantillons : (a) émulsion diluée ($\phi = 5$ %) et (b) émulsion concentrée ($\phi = 25$ %).

($t < 1000\,\mu$s) n'est pas due à une mauvaise estimation de la moyenne au centre de l'échantillon mais au résidu balistique dans le signal sondé. En effet, pour $\phi = 5$ %, l'onde émise a parcouru $29\ell_{\text{ext}}$ pour $z = 20$ mm à la fréquence considérée. Il est donc possible que l'onde cohérente ne soit pas totalement atténuée dans ce cas. Si l'on augmente la concentration ($\phi = 25$ % sur la figure 2.20b), l'onde parcours $105\ell_{\text{ext}}$ sur la même distance et CB n'est jamais significativement supérieur à $1/N$ sur toute la gamme temporelle. Nos craintes sur la mauvaise estimation de la moyenne d'ensemble pour les petites distances ρ sont donc infondées. Cependant l'étape de soustraction de l'onde cohérente mentionnée précédemment ($\delta\psi = \psi - < \psi >$) reste essentielle pour éviter toute influence du champ balistique sur la mesure du champ incohérent [8].

2.3.2 Délimitation des différents régimes de transport

Comme nous l'avons précisé dans la partie 2.3.1, la gamme de fréquences utilisée est suffisamment étroite ($f \in [2, 3]$ MHz) pour optimiser le compromis, « largeur fréquentielle sondée »/« dynamique du signal transmis ». Dans la matrice pure, cette gamme fréquentielle correspond à des longueurs d'onde comprises entre $\lambda_{\text{min}} = 0{,}50$ mm et $\lambda_{\text{max}} = 0{,}75$ mm. De plus, nous avons vu que, les libres parcours moyens d'extinction varient de $\ell_{\text{ext}} = 1$ mm pour les émulsions diluées à $\ell_{\text{ext}} = 0{,}2$ mm pour les émulsions concentrées. Sous l'approximation $\ell_{\text{ext}} \sim \ell_{\text{e}}$, nous évaluons le produit $k'\ell_{\text{e}}$ pour les différents échantillons. Ce produit gouverne le critère de Ioffe-Regel [25] différenciant le régime diffusif ($k'\ell_{\text{e}} \gg 1$) du régime sub-diffusif ($k'\ell_{\text{e}} \sim 1$).

Ainsi dans le chapitre 3, pour les émulsions avec $\phi = 5$ %, nous obtiendrons $k'\ell_{\text{e}} \sim 7{,}5$ pour $f = 2{,}7$ MHz, correspondant à la résonance la plus marquée. Cette quantité nous permet alors d'affirmer dans ce cas que nous observerons un régime purement diffusif. Ce cas de figure n'est plus vérifié dans le chapitre 4 où $k'\ell_{\text{e}} \sim 1{,}9$ dans les émulsions de fraction volumique $\phi =$

25 %. Le transport de l'intensité moyenne n'est alors plus totalement diffusif (mais sub-diffusif). Cependant, ce critère n'est pas suffisant pour proclamer l'émergence d'effets de localisation d'Anderson dans les cas où $k'\ell_e \sim 1$.

Le pouvoir diffusant de l'échantillon n'est pas la seule condition pour l'observation de régime diffusif. L'intensité moyenne doit être transportée sur une distance suffisante pour que le halo diffusif puisse être étudié. Pour quantifier cette distance, nous utilisons le libre parcours moyen de transport ℓ^* qui définit la distance après laquelle l'onde incidente a perdu la mémoire de sa direction initiale. Bien que ℓ^* ne soit pas rigoureusement considéré comme une longueur caractéristique du transport des ondes multiplement diffusées [25], le rapport L/ℓ^* indique l'émergence du régime diffusif [8, 21]. Les expériences dont les résultats seront présentés dans ce manuscrit ont été effectuées sur des épaisseurs L comprises entre $\sim 15\ \ell^*$ et $\sim 80\ \ell^*$. Le régime diffusif sera alors toujours atteint quel que soit l'échantillon utilisé.

2.4 Conclusion

Ce chapitre a été l'occasion d'établir le cadre purement technique de l'étude expérimentale. Un dispositif original a été mis en place grâce à l'adaptation d'une méthode de caractérisation, répandue dans le domaine de la diffusion multiple [20], à l'étude de systèmes modèles fluides initialement utilisés pour l'analyse des effets de fortes résonances sur la propagation de l'onde cohérente [1, 26].

Un protocole de fabrication des émulsions a été établi afin de ne conserver que la fraction volumique ϕ comme paramètre gouvernant le pouvoir de diffusion des émulsions. Le libre parcours moyen élastique ainsi que les célérités de phase et de groupe de ces différentes émulsions peuvent être déterminés sur une large gamme de fréquences grâce à la mesure de l'onde cohérente. Le dispositif utilisé est simple et permet de s'adapter aux différentes fractions volumiques considérées. Des prédictions numériques nous permettent d'affirmer que ces mesures ne sont que faiblement impactées par les effets de champs proches inhérents à cette configuration expérimentale.

Enfin, le dernier dispositif acoustique complète l'étude par la caractérisation *in situ* du champ incohérent. La « suspension » dans l'air de la cellule contenant l'échantillon, nous a conduit à une étude technique pour caractériser le halo diffusif dans les meilleures conditions (génération d'un point source à travers la lame d'air et moyenne spatiale performante). Les mesures des *codas* transmises conduiront à l'extraction du coefficient de diffusion D en fonction de la fréquence dans le prochain chapitre.

L'ensemble de ces dispositifs constitue une configuration expérimentale originale visant à étudier plus simplement des phénomènes acoustiques complexes, tels que le transport diffusif. Le système est adapté aux hypothèses que nous ferons dans les différentes théories développées par la suite (faible absorption, systèmes dilués, réflexions parfaites). Par la modification d'un seul paramètre expérimental (la fraction volumique ϕ), nous choisirons alors le régime de transport sondé. La comparaison des différentes longueurs caractéristiques discutées dans ce chapitre est réalisée dans le tableau 2.1. Ces longueurs sont mesurées à la fréquence de résonance dipolaire (qui est la résonance la plus marquée) pour plusieurs échantillons de fractions volumiques ϕ

ϕ (%)	ℓ_e(mm)	ℓ^*(mm)	λ_0(mm)	ℓ_a(mm)	ℓ_0(mm)
5	0,66	1,32	0,73	183±1	$(1\pm 0{,}2\ ).10^4$
10	0,27	0,55	0,60	173±1	$(1\pm 0{,}2\ ).10^4$
25	0,18	0,37	0,60	135±1	$(1\pm 0{,}2\ ).10^4$

Tab. 2.1 – Tableau récapitulatif des différentes longueurs caractéristiques mesurées pour plusieurs fractions volumiques ϕ et à la fréquence de résonance dipolaire. Les incertitudes sur les valeurs des libres parcours moyens ℓ_e et ℓ^* proviennent de l'erreur commise sur la mesure de l'atténuation de l'onde cohérente et sont de l'ordre de $1\,\mu m$. De plus, les incertitudes sur les distances caractéristiques ℓ_a et ℓ_0 proviennent respectivement des résidus des ajustements de l'intensité incohérente moyenne (c.f. chap. 3) et de l'absorption du gel (fig. 2.3).

différentes. Les longueurs d'onde dans la matrice λ_0, à cette fréquence de résonance, sont également reportées car celles-ci peuvent varier d'une échantillon à l'autre en fonction de la taille des gouttes d'huile injectées (si les gouttes sont plus grosses, la résonance dipolaire se décale vers les basses fréquences). Enfin, cette comparaison fait apparaître la valeur « réelle » de la longueur d'absorption ℓ_a (qui inclut tous les effets d'absorption et plus seulement l'absorption de la matrice : $\ell_a < \ell_0$) mesurée à partir de la décroissance temporelle du champ incohérent (cf. chaps. 3 et 4).

Bibliographie

[1] T. Brunet, S. Raffy, B. Mascaro, J. Leng, R. Wunenburger, O. Mondain-Monval, O. Poncelet, and C. Aristégui. Sharp acoustic multipolar-resonances in highly monodisperse emulsions. *App. Phys. Lett.*, **101** :011913, 2012.

[2] B. Mascaro, T. Brunet, O. Poncelet, C. Aristégui, S. Raffy, O. Mondain-Monval, and J. Leng. Impact of polydispersity on multipolar resonant scattering in emulsions. *J. Acoust. Soc. Am.*, **133** :1996–2003, 2013.

[3] S. Raffy. *Synthèse de métamatériaux acoustiques par voie microfluidique*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2014.

[4] G. Lévêque, E. Rosenkrantz, and D. Laux. Correction of diffraction effects in sound velocity and absorption measurements. *Meas. Sci. Technol.*, **18** :3458–3462, 2007.

[5] J. M. M. Pinkerton. The absorption of ultrasonic waves in liquids and its relation to molecular constitution. *Proc. Phys. Soc. B*, **62** :129–141, 1949.

[6] J. J. Markham, R. T Beyer, and R. B. Lindsay. Absorption of sound in fluids. *Rev. Mod. Phys.*, **23** :353–411, 1951.

[7] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, and M. G. Scanlon. Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments. *J. Acoust. Soc. Am.*, **123** :1931–1940, 2008.

[8] A. Derode, A. Tourin, and M. Fink. Random multiple scattering of ultrasound. I. Coherent and ballistic waves. *Phys. Rev. E*, **64** :036605, 2001.

[9] E. L. Carstensen and L. L. Foldy. Propagation of sound through a liquid containing bubbles. *J. Acoust. Soc. Am.*, **19** :481–501, 1947.

[10] J. H. Page, H. P. Schriemer, I. P. Jones, P. Sheng, and D. A. Weitz. Classical wave propagation in strongly scattering media. *Physica A*, **241** :64–71, 1997.

[11] V. Tournat, V. Pagneux, D. Lafarge, and L. Jaouen. Multiple scattering of acoustic waves and porous absorbing media. *Phys. Rev. E*, **70** :026609, 2004.

[12] T. Norisuye, S. Sasa, K. Takeda, M. Kohyama, and Q. Tran-Cong-Miyata. Simultaneous evaluation of ultrasound velocity, attenuation and density of polymer solutions observed by multi-echo ultrasound spectroscopy. *Ultrasonics*, **51** :215–222, 2011.

[13] J. Mobley and R. E. Heithaus. Ultrasonic properties of a suspension of microspheres supporting negative group velocities. *Phys. Rev. Lett.*, **99** :124301, 2007.

[14] J. Mobley. The time-domain signature of negative acoustic group velocity in microsphere suspensions. *J. Acoust. Soc. Am.*, **122** :EL8–EL14, 2007.

[15] M. L. Cowan, K. Beaty, J. H. Page, Z. Liu, and P. Sheng. Group velocity of acoustic waves in strongly scattering media : Dependence on the volume fraction of scatterers. *Phys. Rev. E*, **58** :6626–6636, 1998.

[16] D. J. McClements and M. J. W. Povey. Scattering of ultrasound by emulsions. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **22** :38, 1989.

[17] M. L. Cowan, I. P. Jones, J. H. Page, and D. A. Weitz. Diffusing acoustic wave spectroscopy. *Phys. Rev. E*, **65** :066605, 2002.

[18] F. Deroo, J. Kim, J. Qu, K. Sabra, and L. J. Jacobs. Detection of damage in concrete using diffuse ultrasound. *J. Acoust. Soc. Am.*, **127** :3315–3318, 2010.

[19] W. K. Hildebrand. *Ultrasonic waves in strongly scattering disordered media : understanding complex systems through statistics and correlations of multiply scattered acoustic and elastic waves*. PhD thesis, University of Manitoba, 2015.

[20] J. H. Page, H. P. Schriemer, A. E. Bailey, and D. A. Weitz. Experimental test of the diffusion approximation for multiply scattered sound. *Phys. Rev. E*, **52** :3106–3114, 1995.

[21] Z. Q. Zhang, I. P. Jones, H. P. Schriemer, J. H. Page, D. A. Weitz, and P. Sheng. Wave transport in random media : The ballistic to diffusive transition. *Phys. Rev. E*, **60** :4843–4850, 1999.

[22] J. H. Page. Anderson localization of ultrasound in three dimensions. *Proceedings of the International School of Physics Enrico Fermi*, pages 95–114, 2011.

[23] M. P. van Albada, B. A. van Tiggelen, A. Lagendijk, and A. Tip. Speed of propagation of classical waves in strongly scattering media. *Phys. Rev. Lett.*, **66** :3132–3135, 1991.

[24] N. Viard and A. Derode. Measurements of ultrasonic diffusivity and transport speed from coda waves in a resonant multiple scattering medium. *J. Acoust. Soc. Am.*, **138** :134–145, 2015.

[25] A. Lagendijk and B. A. van Tiggelen. Resonant multiple scattering of light. *Phys. Rep.*, **270** :143–215, 1996.

[26] T. Brunet, J. Leng, and O. Mondain-Monval. Soft acoustic metamaterials. *Science*, **342** :323–324, 2013.

Chapitre 3

Diffusion multiple dans des émulsions résonantes diluées

Sommaire

3.1 Caractérisation de l'onde cohérente 58

3.1.1 Formalisation du nombre d'onde effectif 59

3.1.2 Mesure du nombre d'onde effectif 61

3.2 Caractérisation du champ incohérent 65

3.2.1 Transport de l'intensité moyenne : l'approximation de diffusion 66

3.2.2 Mesure du coefficient de diffusion et du temps caractéristique d'absorption 71

3.3 Confrontation des mesures sur les champs cohérent et incohérent . 75

3.3.1 Modélisation de la vitesse de transport 76

3.3.2 Estimation expérimentale de la vitesse de transport 80

3.4 Conclusion 81

A.3 Annexes 82

A.3.1 Calcul de la solution de l'équation de diffusion pour un milieu borné . . 82

A.3.2 Calcul du coefficient de réflexion moyen 84

A.3.3 Transport diffusif des ultrasons dans un milieu d'extensions latérales finies 85

A.3.4 Expression de la vitesse de transport à l'aide des coefficients A_n 88

Bibliographie 90

Le transport des ondes multiplement diffusées dans les milieux désordonnés est un sujet très largement traité dans la littérature en optique et en acoustique [1, 2]. Dans ce chapitre, nous étudions la propagation des ondes acoustiques (scalaires) dans des systèmes faiblement concentrés. Leur nature fortement résonante et faiblement absorbante, permet d'observer les effets de diffusion multiple pour des faibles fractions volumiques de l'ordre de $\phi = 5\,\%$.

Il est crucial de considérer des systèmes dilués qui satisfont les hypothèses de faible concentration utilisées pour modéliser transport diffusif des ondes. Dans le cadre de cette étude, pour un échantillon contenant 5 % de diffuseurs, le critère $k'\ell_e$ représentatif du pouvoir de diffusion du milieu vaut 7,5 autour des plus fortes résonances. Ces valeurs, obtenues à partir de la mesure des propriétés de l'onde cohérente, nous indiquent que le transport diffusif des ondes peut être observé pour des distances de propagation très faibles ($\sim 5\,\mathrm{mm}$) et sur des gammes de temps très grandes (~ 500 fois la durée de l'impulsion incidente).

Dans un premier temps, nous détaillons l'expression du nombre d'onde effectif dans le cadre de l'*Independant Scattering Approximation* (ISA) [3]. Cette modélisation est alors confrontée aux mesures de l'atténuation α et des célérités de phase c_{ph} et de groupe c_{gr} de l'onde cohérente.

Nous étudierons ensuite le transport diffusif de l'intensité incohérente. À partir de l'équation du transfert radiatif, nous établirons l'équation de diffusion à laquelle obéit la densité locale d'énergie U. En prenant en compte la géométrie finie de l'échantillon, cette modélisation est confrontée aux mesures de l'intensité incohérente moyenne, qui conduisent également au flux d'énergie J usuellement déterminé dans les expériences ultrasonores [4,5]. L'étude est ainsi complétée avec les mesures des deux quantités d'importance J et U pour le régime diffusif. L'utilisation d'une méthode de caractérisation indépendante des effets d'absorption [4] donne alors accès à une mesure fréquentiellement résolue du coefficient de diffusion D et à une estimation de la vitesse de transport v_e.

Enfin, nous pourrons établir le lien entre la propagation « balistique » de l'onde cohérente et le transport diffusif de l'intensité incohérente, à travers une comparaison expérimentale de la célérité de groupe c_{gr} et de la vitesse de transport v_e. L'exploitation d'une modélisation de la vitesse de transport établie en optique [6] permet d'appréhender la différence de comportement entre c_{gr} et v_e autour des résonances. Ainsi, nous verrons que les résultats précédemment obtenus dans les systèmes acoustiques et optiques ne sont pas contradictoires, et qu'il est nécessaire de distinguer les vitesses caractéristiques du transport balistique et du transport diffusif dans le cas de la diffusion résonante.

3.1 Caractérisation de l'onde cohérente

La mesure de l'onde cohérente présente un double intérêt. Celle-ci permet d'une part de mesurer les propriétés acoustiques effectives de l'émulsion, et la comparaison avec les modèles appropriés offre d'autre part une identification des paramètres structurels de l'échantillon tels que la fraction volumique ϕ, le rayon moyen des gouttes $< a >$ et la polydispersité P.

Pour les faibles concentrations étudiées ici, la distance inter-gouttes est d'environ deux longueurs d'onde ($b \sim 2\lambda_0 = 0,6\,\mathrm{mm}$ dans la matrice pure à 2,5 MHz). Il paraît alors raisonnable

d'utiliser des théories telles que l'ISA en négligeant les effets de diffusion récurrente (i. e. les boucles de diffusion).

3.1.1 Formalisation du nombre d'onde effectif : l'*Independent Scattering Approximation*

L'expression de la fonction de Green moyenne (éq. 1.25) est nécessairement récursive pour tenir compte de l'infinité d'événements de diffusion. La théorie développée par Foldy [7] permet de tronquer cette récursivité grâce à l'approximation :

$$< \psi(\vec{r}_\mathrm{j}) >=< \psi^\mathrm{j}(\vec{r}_\mathrm{j}) >_\mathrm{j}, \tag{3.1}$$

où $< \psi(\vec{r}_\mathrm{j}) >$ est le champ moyen au point $\vec{r}_\mathrm{j}$ (sans diffuseur au point $\vec{r}_\mathrm{j}$) et $< \psi^\mathrm{j}(\vec{r}_\mathrm{j}) >_\mathrm{j}$ est le champ moyen agissant sur l'objet j placé en $\vec{r}_\mathrm{j}$. Ainsi, le champ moyen agissant sur le diffuseur j n'est pas influencé par la présence de ce même objet. Ce modèle néglige donc les événements de diffusion récurrente. Foldy exprime alors le nombre d'onde effectif à l'aide d'une correction (du premier ordre en concentration η) du nombre d'onde k_0 dans la matrice pure :

$$k^2 = (k' + \mathrm{j}\alpha)^2 = k_0^2 + 4\pi\eta f_\mathrm{iso}, \tag{3.2}$$

où f_iso est la fonction de diffusion considérée comme isotrope.

Dans ce chapitre, nous exploitons une version de ce modèle généralisée à la diffusion anisotrope : l'*Independant Scattering Approximation* [3] (*ISA* ou parfois appelée approximation de *Foldy-Lax*). Pour une population de N diffuseurs, cette approximation consiste à ne garder que le premier ordre de l'*opérateur de masse* (1.23) [8] :

$$\Sigma(\omega, \vec{r}_\mathrm{i}; \vec{r}_\mathrm{j}) = \sum_{\alpha=1}^{N} < T_\alpha >. \tag{3.3}$$

Cette approximation s'interprète de la manière suivante : l'ensemble des événements de diffusion (exprimé par Σ) se réduit à la somme « indépendante » des matrices de diffusion T_α de chaque diffuseur α, moyennées sur toutes les configurations du désordre. En d'autres termes, chaque diffuseur n'agit au maximum qu'une fois dans le processus de diffusion. Les évènements de diffusion récurrente ne sont donc pas pris en compte, comme dans le cas de l'approximation de Foldy (3.1)

Exprimons maintenant l'équation (3.3) dans le domaine de Fourier (de variable $\vec{p}$) :

$$\tilde{\Sigma}(\omega, \vec{p}) = \eta \tilde{T}_{\vec{p}\vec{p}}(\omega) = -4\pi\eta f(\omega, \theta = 0), \tag{3.4}$$

où $f(\omega, \theta = 0)$ (noté $f(0)$ par la suite) est la fonction de diffusion « vers l'avant », c'est-à-dire dans la direction de l'onde incidente. En substituant cette expression dans l'équation (1.26), le nombre d'onde effectif s'exprime tel que :

$$k^2 = (k' + \mathrm{j}\alpha)^2 = k_0^2 + 4\pi\eta f(0), \tag{3.5}$$

où, d'après l'équation (1.5) :

$$f(0) = \frac{1}{\mathrm{j}k_0} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) A_n. \tag{3.6}$$

Pour une goutte isolée à symétrie sphérique, la correction du nombre d'onde k_0 est dans ce cas, une combinaison de tous les modes de vibration d'une goutte isolée. L'*ISA* est appropriée au cas des émulsions fluides diluées [9], et nous permet d'évaluer numériquement [a] la célérité de phase $c_{\text{ph}} = \omega/k'$ et l'atténuation α de l'onde cohérente. Le résultat de ce calcul est présenté sur la figure 3.1 dans le cas d'une émulsion de fraction volumique $\phi = 5\,\%$ composée de gouttes de rayon $a = 0{,}170$ mm. Les fréquences de résonance repérées par les maxima des modules des amplitudes $|A_n|$ ou encore les variations brusques de phase α_n des modes de vibration d'une goutte (fig. 1.2), correspondent à des maxima d'atténuation α et de célérité de groupe c_{gr}, ou à des variations rapides de célérité de phase c_{ph}.

Le facteur de qualité Q_n de la résonance d'ordre n (éq. 1.5), augmentant avec l'ordre n de la résonance, il apparaît alors à haute fréquence des pics d'atténuation très étroits et de brusques variations de la célérité de phase c_{ph}. Ces sauts de célérité ($\partial c_{\text{ph}}/\partial\omega \to \infty$), présents même pour de faibles concentrations, sont liés aux grandes variations de k' et sont donc à l'origine des valeurs étonnantes prises par la célérité de groupe, éq. (2.5) (fig. 3.1c).

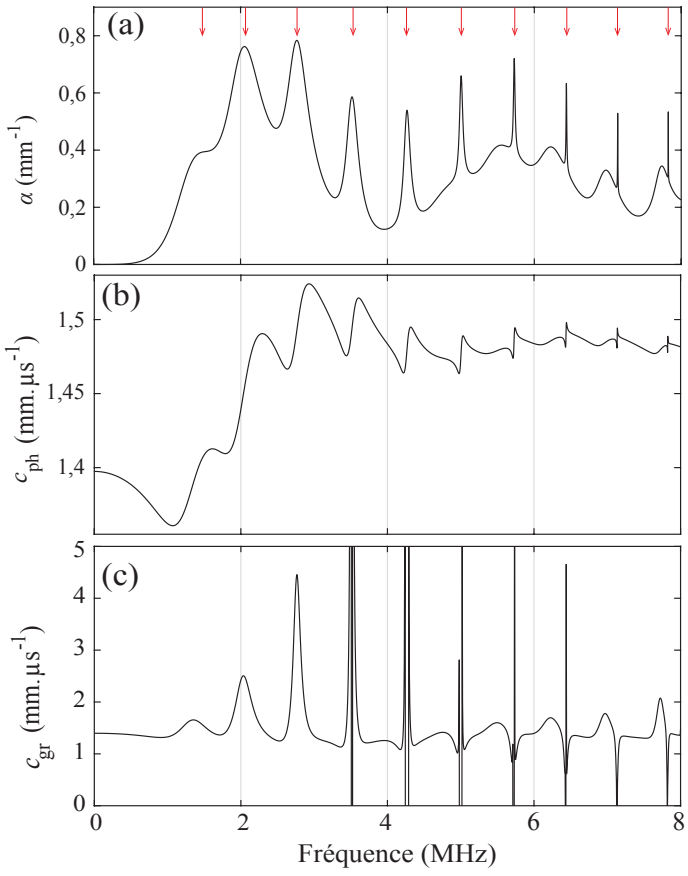

Fig. 3.1 – Prédictions de l'atténuation (a) et des célérités de phase (b) et de groupe (c) de l'onde cohérente calculées pour $\phi = 5\,\%$ et $a = 0,170\,mm$, à l'aide de l'équation (3.5). Les flèches rouges indiquent les fréquences de résonance.

a. Les expressions des quantités c_{ph} et α peuvent être simplifiées *via* la linéarisation de k^2 : $k \approx k_0(1 + 2\pi\eta f(0)/k_0^2)$. Si $k_0 \approx Re\{k_0\}$, on a alors $c_0/c_{\text{ph}} = 1 + 2\pi\eta k_0^{-2}\sum_n(2n+1)\text{Im}\{A_n\}$ et $\alpha = -2\pi\eta k_0^{-2}\sum_n(2n+1)\text{Re}\{A_n\}$.

Cependant, la polydispersité (même très faible) de nos échantillons rend difficile l'observation expérimentale de telles valeurs exotiques de la célérité de groupe c_{gr}. Nous intégrons alors ces effets de polydispersité dans l'*ISA*. Il s'agit ici de considérer une concentration η_a dépendante du rayon a des gouttes [10]. Cette distribution gaussienne s'exprime de la manière suivante :

$$\eta_{\mathrm{a}} = \frac{\eta}{\sqrt{2\pi}\sigma} \mathrm{e}^{-(a-<a>)^2/2\sigma^2}, \tag{3.7}$$

où σ est l'écart type de la distribution et η est le nombre total de diffuseurs par unité de volume (sans considération sur la taille des gouttes), défini par :

$$\eta = \frac{\phi}{\int_a \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \mathrm{e}^{-(a-<a>)^2/2\sigma^2} \frac{4}{3}\pi a^3 \mathrm{d}a}. \tag{3.8}$$

Cette distribution de concentration η_a va pondérer la moyenne sur les rayons a, de la correction du nombre d'onde effectif :

$$k^2 = (k' + \mathrm{j}\alpha)^2 = k_0^2 + \int_a 4\pi\eta_a f_a(0)\mathrm{d}a. \tag{3.9}$$

Les effets de la polydispersité P se résument donc, dans le cadre de l'*ISA*, à une moyenne des nombres d'onde k calculés indépendamment pour chaque rayon de goutte. La figure 3.2 présente les résultats des prédictions numériques de l'atténuation α et des célérités de phase c_{ph} et de groupe c_{gr} pour plusieurs valeurs de polydispersité P.

Le facteur de qualité Q_{n} des résonances diminue avec la polydispersité. En effet, les fréquences de résonance étant inversement proportionnelles à la taille des objets, la moyenne du nombre d'onde k sur les tailles de gouttes a pour effet de « lisser » les résonances. Ainsi en définissant le facteur de qualité $Q_{\mathrm{PSD}} =< a > /\sigma$ de la distribution en taille d'objets, chaque résonance n du nombre d'onde k ne sera résolue que si $Q_{\mathrm{PSD}} > Q_n$ [10]. Dans le cas de modèles plus sophistiqués que l'ISA [11, 12], ces interprétations simples sur l'effet de la polydispersité P ne sont plus valides.

La compréhension et la prise en compte de ces effets sont essentielles pour la confrontation des modèles aux résultats expérimentaux. En effet, nous avons vu que même pour de très faibles polydispersités P, les valeurs anormales prises par les paramètres effectifs disparaissent. L'identification de la polydispersité P à partir de la confrontation théorie/expérience est également un bon estimateur de la qualité de l'émulsion (la polydispersité augmentant radicalement pour des échantillons abîmés ou instables). Le paragraphe suivant est consacré à la mesure de ces paramètres acoustiques effectifs.

3.1.2 Mesure du nombre d'onde effectif

Les premières mesures du nombre d'onde effectif sont réalisées sur un émulsion de fraction volumique $\phi = 5$ %. La méthode de caractérisation décrite dans la section 2.2.1 est appliquée à une émulsion de polydispersité $P = 3\,\%$. Les signaux sont reportés sur la figure 2.10 et les résultats de cette expérience sont représentés sur la figure 3.3. Le caractère multipolaire des résonances est manifeste sur cette mesure où les six premières résonances sont visibles grâce à la faible polydispersité de l'échantillon. Les fluctuations des paramètres effectifs pour de plus

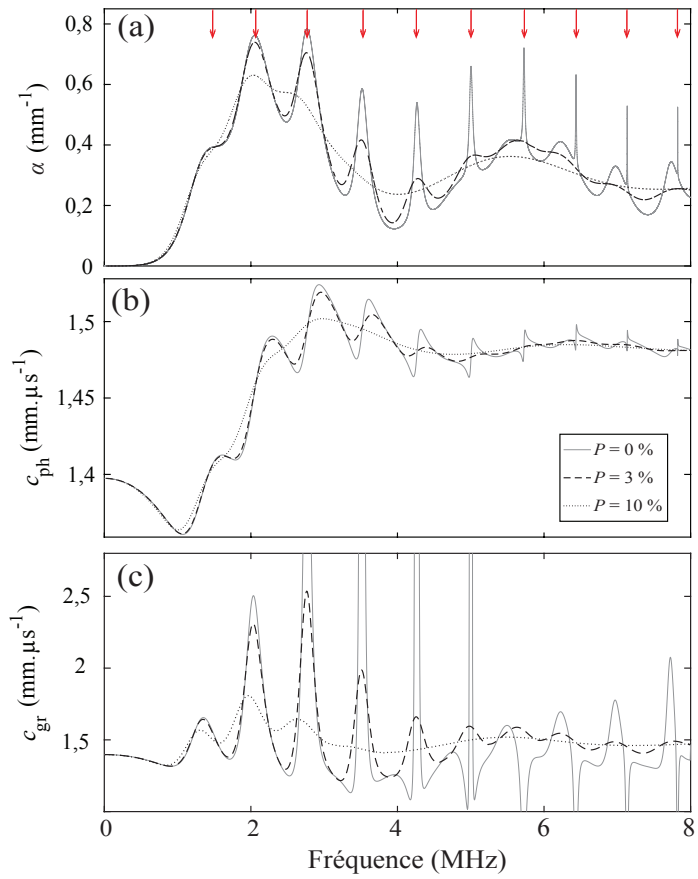

Fig. 3.2 – Prédictions de l'atténuation (a) et des célérités de phase (b) et de groupe (c) de l'onde cohérente dans le cas où $\phi = 5$ % et $< a >= 0,170\,mm$. Les calculs sont réalisés à l'aide de l'équation (3.9) pour trois valeurs de la polydispersité P : 0 % en trait plein, 3 % en trait discontinu et 10 % en pointillés.

hautes fréquences ($f > 5$ MHz) ne sont pas liées aux modes $n > 6$ mais aux secondes harmoniques des résonances basses fréquences (observables sur la simulation des modes de vibration d'une goutte de la figure 1.2). Autour des résonances les plus fortes (dipolaire et quadripolaire), la forte dispersion du milieu effectif accroît les valeurs de la célérité de groupe (fig. 3.3c) qui atteint 1,7 fois la valeur de la célérité de phase dans la matrice c_0.

Pour cet échantillon, l'accord avec les prédictions numériques est excellent pour les mesures de l'atténuation, de la célérité de phase et de la célérité de groupe. Ceci permet alors de caractériser les propriétés de l'émulsion et d'identifier les caractéristiques des constituants. Ces identifications sont appropriées dès lors que les variables d'entrée du modèle ont des effets découplés sur l'évaluation du nombre d'onde effectif. Ainsi la valeur du rayon moyen $< a >$ est déterminée à partir des positions des fréquences de résonance, la polydispersité P à partir de leur facteur de qualité et ϕ à l'aide du niveau moyen de l'atténuation. Notons à haute fréquence, que la célérité c_{ph} tend vers la célérité du son dans la matrice c_0, et que le niveau d'atténuation α dépend de l'absorption α_0. Cependant, la sensibilité de l'atténuation α à l'absorption α_0 reste faible (un facteur 10 sur l'absorption α_0 est nécessaire pour observer une variation de l'atténuation α de 1 % à 8 MHz).

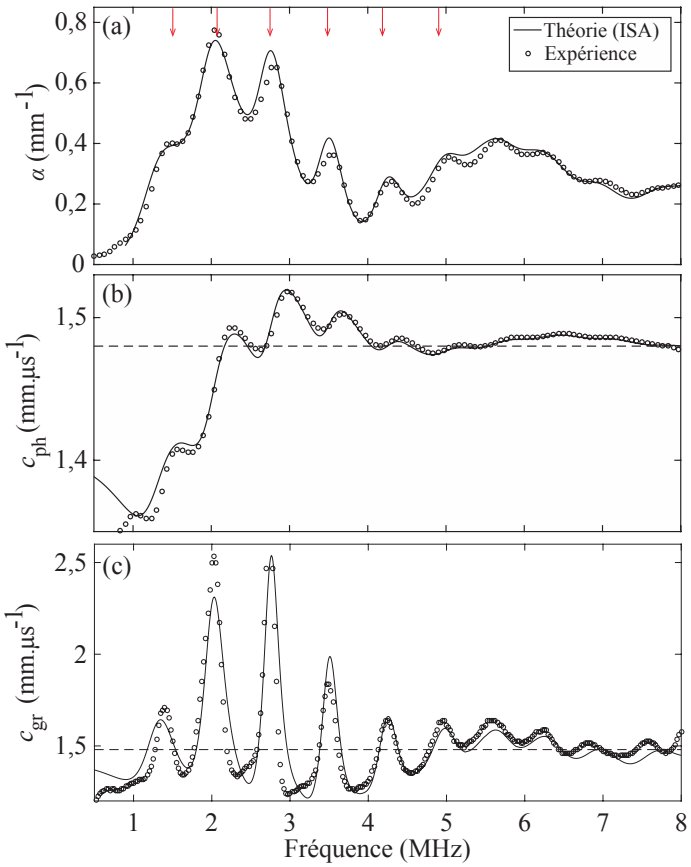

Fig. 3.3 – Mesures (o) de l'atténuation (a), de la célérité de phase (b) et de la célérité de groupe (c) de l'onde cohérente dans l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5$ %, de polydispersité $P = 3$ % et de rayon moyen des gouttes $< a >= 0,17$ mm. La ligne discontinue représente la célérité du son dans la matrice pure c_0 et la ligne continue, les prédictions du modèle (3.9). Les flèches rouges indiquent les fréquences de résonance.

Nous retrouvons dans ce cas les paramètres structurels de l'émulsion imposés lors du processus de fabrication : $\phi = 5$ %, $< a >= 0{,}170$ mm et $P = 3$ %. Les mesures des paramètres effectifs c_{ph} et α conduisent à des valeurs de propriétés de la matrice ($c_0 = 1{,}48$ mm.μs^{-1} ; $\alpha_0 = 5{,}8.10^{-5}$ mm^{-1}MHz^{-2}) légèrement différentes de celles mesurées dans la section 2.1.1 [b]. Ces résultats permettent de plus d'identifier la gamme de fréquences la plus propice à l'observation d'un régime diffusif : entre 1,5 et 3 MHz, le libre parcours moyen d'extinction ($\ell_{\text{ext}} = 1/2\alpha$) varie de 1,25 mm à 0,65 mm.

Nous souhaitons ensuite estimer le domaine de validité de l'*ISA* pour les émulsions résonantes. Pour cela nous caractérisons les propriétés de l'onde cohérente dans deux échantillons de fraction volumique plus élevée. Les résultats des comparaisons prédictions/mesures sont présentés sur les figures 3.4 et 3.5 pour $\phi = 7$ % et 10 % respectivement. Ces mesures complémentaires sont réalisées dans les mêmes conditions que celles des mesures reportées sur la figure 3.3 (distance de propagation $z = 2$ mm). Pour $\phi = 7$ % (fig. 3.4), l'ISA semble à peu près valide malgré les

b. $c_0 = 1{,}49$ mm.μs^{-1} et $\alpha_0 = 5{,}5.10^{-5}$ mm^{-1}MHz^{-2}.

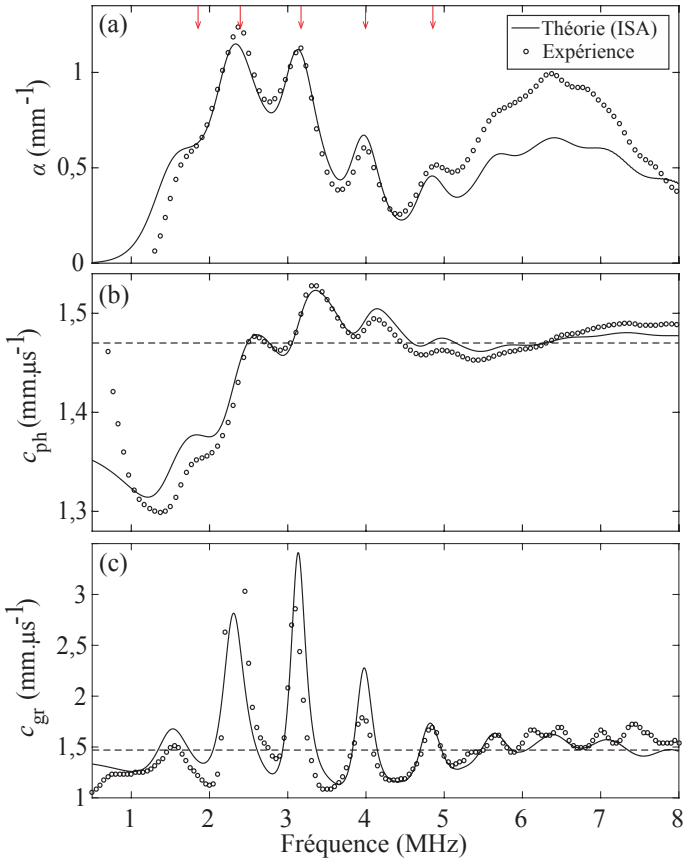

Fig. 3.4 – Mesures (o) de l'atténuation (a), de la célérité de phase (b) et de la célérité de groupe (c) de l'onde cohérente dans l'émulsion de fraction volumique $\phi = 7$ %, de polydispersité $P = 3\,\%$ et de rayon moyen des gouttes $< a >= 0,15\,mm$. La ligne discontinue représente la célérité du son dans la matrice pure c_0 et la ligne continue, les prédictions du modèle (3.9). Les flèches rouges indiquent les fréquences de résonance.

écarts apparaissant à haute fréquence sur l'atténuation α et la célérité de groupe $c_{\rm gr}$. Le modèle (3.9) n'est plus valide pour l'échantillon le plus concentré, $\phi = 10$ % (fig. 3.5).

En dépit de la mauvaise estimation de l'onde cohérente autour des résonances les plus fortes ($z/\ell_{\rm ext} \approx 7$ pour $f = 2{,}5$ MHz), l'ISA semble surestimer les quantités α et $c_{\rm ph}$ autour de la résonance monopolaire (figs. 3.5a et b). Cette observation sera confirmée dans le chapitre 4 lors des mesures de l'onde cohérente dans les émulsions concentrées pour lesquelles les couplages entre diffuseurs jouent un rôle significatif. La célérité de groupe (fig. 3.5c) est mal estimée pour cet échantillon où la dispersion est très forte. La difficulté de mesurer les fortes variations de la célérité $c_{\rm gr}$, en particulier autour des résonances dipolaire et quadripolaire, peut expliquer les écarts entre le modèle et les mesures.

Enfin, notons que l'émulsion faiblement concentrée ($\phi = 5\,\%$) a été retenue pour l'étude du champ incohérent réalisée dans la section suivante. Cet échantillon possède en effet les propriétés effectives les mieux caractérisées (fig. 3.3), et est le plus à même de satisfaire les approximations de faible concentration utilisées dans les modèles à venir. Malgré sa faible fraction volumique, cette émulsion offre un libre parcours moyen d'extinction $\ell_{\rm ext}$ assez faible pour pouvoir obser-

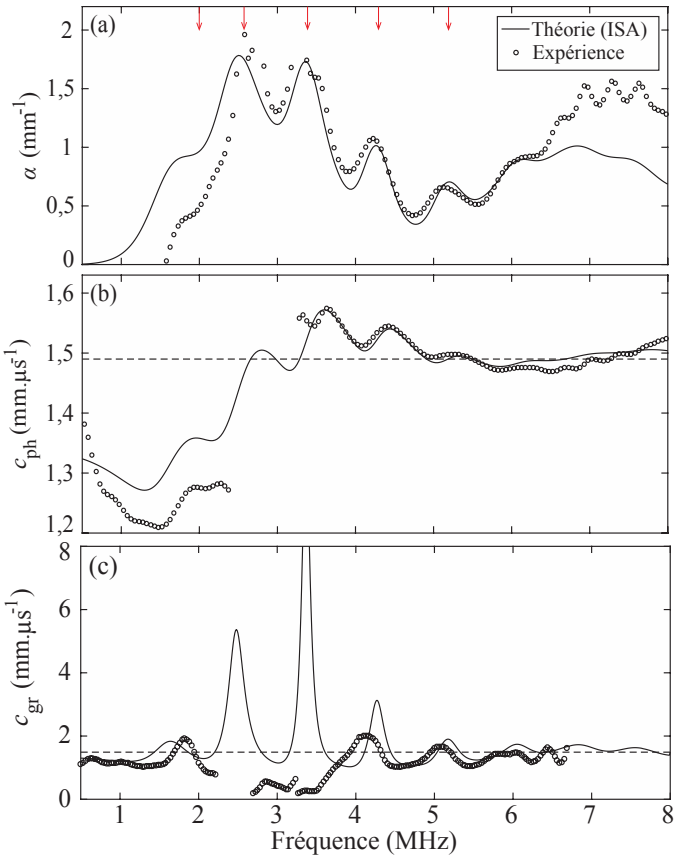

Fig. 3.5 – Mesures (o) de l'atténuation (a), de la célérité de phase (b) et de la célérité de groupe (c) de l'onde cohérente dans l'émulsion de fraction volumique $\phi = 10$ %, de polydispersité $P = 3\,\%$ et de rayon moyen des gouttes $< a >= 0,14\,mm$. La ligne discontinue représente la célérité du son dans la matrice pure c_0 et la ligne continue, les prédictions du modèle (3.9). Les flèches rouges indiquent les fréquences de résonance

ver un régime diffusif sur des longueurs caractéristiques raisonnables (après quelques longueurs d'onde).

3.2 Caractérisation du champ incohérent

Le libre parcours moyen élastique ℓ_e décrit l'atténuation de l'onde cohérente par transfert d'énergie vers le champ incohérent. La description microscopique de ces ondes multiplement diffusées est traitée de manière analogue à un processus de marche aléatoire [1]. D'autre part, la description macroscopique du champ incohérent moyen est réalisée par l'équation de la chaleur (régime diffusif). Ce régime est alors gouverné par deux paramètres caractéristiques, le coefficient de diffusion D et la vitesse de transport v_e des ondes multiplement diffusées.

Dans cette partie, nous exploitons le dispositif expérimental décrit dans la section 2.3 pour la caractérisation du transport de l'intensité moyenne $< |\psi|^2 >$ dans des émulsions diluées. La mesure du coefficient de diffusion D et l'estimation du libre parcours moyen de transport ℓ^*, nous permettent alors de déterminer la vitesse de transport grâce à la relation $v_e = 3D/\ell^*$ [13]. Il

est alors intéressant d'étudier le comportement fréquentiel de la vitesse v_e autour des résonances les plus marquées ($n = 0$, 1 et 2), où les célérités c_{ph} et c_{gr} vont s'avérer ne plus être pertinentes pour décrire le transport des ondes multiplement diffusées.

3.2.1 Transport de l'intensité moyenne : l'approximation de diffusion

Nous avons vu dans le chapitre 1 que dans l'approximation de Boltzmann (valable pour de faibles concentrations en diffuseurs), l'intensité spécifique $I(\vec{r}, \vec{u}, t)$ obéit à l'équation du transfert radiatif sans source (ETR) (éq. 1.32) [8, 14].

Après un grand nombre de diffusions, il est possible de simplifier cette équation grâce à l'approximation de diffusion. Il est alors nécessaire d'introduire deux nouvelles quantités : la densité locale d'énergie $U(\vec{r}, t)$ et le vecteur courant $\vec{J}(\vec{r}, t)$ qui sont définis respectivement par :

$$U(\vec{r}, t) = \frac{1}{v_e} \int I(\vec{r}, \vec{u}, t) d\theta_{\vec{u}}, \tag{3.10}$$

et :

$$\vec{J}(\vec{r}, t) = \int I(\vec{r}, \vec{u}, t) \vec{u} d\theta_{\vec{u}}. \tag{3.11}$$

L'utilisation de ces définitions et de l'intégrale de l'ETR sur toutes les directions $\vec{u}$ permet d'obtenir la loi conservation de la densité locale d'énergie reliant $U(\vec{r}, t)$ et $\vec{J}(\vec{r}, t)$:

$$\frac{\partial U(\vec{r}, t)}{\partial t} + \vec{\nabla}.\vec{J}(\vec{r}, t) = 0. \tag{3.12}$$

Dans le cadre de l'approximation de diffusion, on considère que les événements de diffusion successifs ont globalement fait perdre la dépendance angulaire de l'intensité spécifique I. Cependant, avec une répartition totalement isotrope de $I(\vec{r}, \vec{u}, t)$, le vecteur courant $\vec{J}$ serait nul et le phénomène diffusif stationnaire (éq. 3.12). L'intensité spécifique est alors développée en deux termes, un terme isotrope auquel on ajoute un terme correctif introduisant l'anisotropie de la distribution angulaire [1] :

$$I(\vec{r}, \vec{u}, t) \approx \alpha U(\vec{r}, t) + \beta \vec{J}(\vec{r}, t).\vec{u}, \tag{3.13}$$

où les inconnues $\alpha = c/4\pi$ et $\beta = 3/4\pi$ sont déterminées en substituant l'approximation (3.13) dans les définitions (3.10) et (3.11). Cette expression simplifiée de l'intensité spécifique I est ensuite utilisée pour calculer l'intégrale de l'équation (1.32) pondérée par les directions $\vec{u}$: $\int \mathrm{ETR}.\vec{u} d\theta_{\vec{u}}$, qui conduit à la loi de Fick :

$$\vec{J}(\vec{r}, t) = -\frac{v_e \ell^*}{3} \vec{\nabla} U(\vec{r}, t). \tag{3.14}$$

Les équations (3.12) et (3.14) amènent alors à l'équation de diffusion gouvernant le transport de la densité locale d'énergie :

$$\frac{\partial U(\vec{r}, t)}{\partial t} - D \Delta U(\vec{r}, t) = 0, \tag{3.15}$$

avec :

$$D = v_e \ell^* / 3. \tag{3.16}$$

Le libre parcours moyen de transport ℓ^* qui définit la distance caractéristique après laquelle l'onde incidente a totalement perdu la mémoire de sa direction initiale, s'exprime de la manière suivante [1] :

$$\ell^* = \frac{\ell_e}{1 - < \cos\theta >}, \tag{3.17}$$

où le cosinus moyen $< \cos\theta >$, souvent appelé « facteur d'anisotropie », dépend (en trois dimensions) de la fonction de diffusion $f(\theta)$ de la manière suivante :

$$< \cos\theta >= \frac{\int_0^\pi |f(\theta)|^2 \cos(\theta)\sin(\theta)\mathrm{d}\theta}{\int_0^\pi |f(\theta)|^2 \sin(\theta)\mathrm{d}\theta}.$$

Pour une diffusion parfaitement isotrope comme celle de la résonance monopolaire ($< \cos\theta > \to 0$), le libre parcours moyen de transport est alors proche du libre parcours moyen élastique ℓ_e (tab. 2.1). Ceci n'est plus vrai pour les résonances d'ordre supérieur pour lesquelles l'anisotropie de diffusion est plus importante. Nous avons alors $< \cos\theta > \to 1$ lorsque la diffusion vers l'avant est prédominante et la direction de propagation devient aléatoire après une plus grande distance de propagation ($\ell^* \to \infty$).

La vitesse de transport v_e, qui intervient dans l'équation de diffusion (3.15) *via* le coefficient D (éq. 3.16), est définie comme le rapport du module du vecteur courant sur la densité locale d'énergie :

$$v_e = \frac{J(\vec{r},t)}{U(\vec{r},t)}. \tag{3.18}$$

Cette notion sera étudiée plus en détail dans la dernière partie du chapitre. Nous montrerons que dans le cas où les ondes multiplement diffusées subissent un retard important [6, 8], par exemple au voisinage des fréquences de résonance, la célérité de groupe (2.5) et la vitesse de transport (3.18) diffèrent. Notons qu'il existe d'autres configurations où ces deux quantités sont similaires [13].

La solution de l'équation de diffusion (3.15) sans absorption, en milieu infini et pour une source ponctuelle d'énergie initiale U_0 en $\vec{r} = \vec{0}$ et $t = 0$, est [15] :

$$U(\vec{r},t) = \frac{U_0}{(4\pi Dt)^{3/2}} \mathrm{e}^{-r^2/(4Dt)}. \tag{3.19}$$

La densité locale d'énergie U est ainsi représentée spatialement par une fonction gaussienne (ou « halo diffusif ») dont l'écart type évolue dans le temps proportionnellement à $\sqrt{Dt}$. Notons que la solution de l'équation de diffusion (3.15) a de la même manière été établie pour plusieurs types de conditions aux limites [15].

Pour nous rapprocher des conditions expérimentales, nous nous intéressons dans un premier temps à la diffusion d'un point source situé proche de la base d'un cylindre d'épaisseur L et d'extension latérale infinie [4]. La source n'est pas exactement placée en $z = 0$ mais en $z = \ell^*$, distance après laquelle le champ incident commence à être diffus. Les réflexions internes aux parois de cette géométrie sont prises en compte en imposant un flux incident aux limites $z = 0$ et $z = L$ [16]. Les effets de l'absorption sont modélisés par τ_a, le temps caractéristique d'absorption de l'intensité incohérente moyenne. En coordonnées cylindriques ($\vec{r} = \rho\vec{e_\rho} + z\vec{e_z}$), la solution de l'équation de diffusion (3.15) munie de ces nouvelles conditions, prend la forme (3.19) de

la solution $U(\rho, t)$ en milieu infini, modulée par l'expression tenant compte des conditions aux parois (le développement conduisant à cette solution est détaillé en annexe A3.1) :

$$U(\rho, z, t) = \frac{U_0}{2\pi Dt} \mathrm{e}^{-\rho^2/(4Dt)} \mathrm{e}^{-t/\tau_\mathrm{a}} \sum_{n=1}^{\infty} K_n(z) \mathrm{e}^{-D\alpha_n^2 t/L^2}, \tag{3.20}$$

avec :

$$K_n(z) = \frac{(\alpha_n z_0 \cos(\alpha_n z/L) + \sin(\alpha_n z/L))(\alpha_n z_0 \cos(\alpha_n z_0/L) + \sin(\alpha_n z_0/L))}{\alpha_n^2 z_0^2 + 1 + 2z_0}.$$

Les coefficients α_n sont déterminés grâce à la relation :

$$\tan(\alpha_n) = \frac{2\alpha_n z_0}{z_0^2 \alpha_n^2 - 1},$$

où le paramètre z_0 est la « distance d'extrapolation » normalisée par l'épaisseur L du cylindre :

$$z_0 = \frac{2\ell^*}{3L} \frac{1 + R^M}{1 - R^M}, \tag{3.21}$$

faisant intervenir R^M, le coefficient de réflexion moyenné sur l'angle d'incidence [c] [16, 17]. Son expression est détaillée en annexe A.3.2.

La figure 3.6 montre la confrontation des prédictions issues du modèle (3.20) aux mesures de l'intensité incohérente moyenne $< |\delta\psi|^2 >$ présentées figure 2.19. Les variables d'ajustement du modèle sont l'énergie initiale $U_0 = 74\,\mathrm{J}$ et le temps caractéristique d'absorption $\tau_a = 164\,\mu\mathrm{s}$. Ses paramètres d'entrée sont le coefficient de diffusion $D = 0,402\,\mathrm{mm}^2/\mu s$ (mesuré grâce à la méthode présentée dans la prochaine section) et le libre parcours moyen de transport $\ell^* = 1{,}38$ mm dont la valeur provient de la mesure du libre parcours moyen d'extinction $\ell_\mathrm{ext} = 1/2\alpha$ (fig. 3.3) pondérée par la valeur du cosinus moyen $< \cos\theta >$ calculée pour une goutte dont la taille correspond au rayon moyen $< a >$ (éq. 3.17). L'évaluation de ℓ^* ne résulte donc pas d'une mesure directe [4, 18], mais reste tout de même adaptée à l'identification des paramètres U_0 et τ_a, *via* l'inversion du modèle (3.20) qui est faiblement dépendant du libre parcours moyen de transport ℓ^*.

Les coefficients de réflexion R^M à l'interface émulsion/air (cf. annexe A.3.2) font intervenir les célérités de phase et les masses volumiques de l'air et de l'émulsion, la masse volumique dynamique effective de l'émulsion ρ^v étant calculée à partir d'une correction de la masse volumique de la matrice ρ_0 grâce à la relation [19] :

$$\rho^v = \rho_0^v \left(1 + \frac{2\pi\eta}{k_0^2}(f(0) - f(\pi))\right).$$

Sur toute la gamme de fréquences étudiée, le coefficient de réflexion R^M reste toujours supérieur à 0,999 (la différence d'impédances acoustiques entre l'air et l'émulsion étant très grande). Cette réflexion quasi-totale conduit à des valeurs de distance d'extrapolation z_0 de l'ordre du mètre

c. La direction de propagation des ondes dans le milieu étant aléatoire, l'angle d'incidence à la surface émulsion/air l'est aussi. Dans ce cas, on doit considérer un coefficient de réflexion « global » moyenné sur les angles d'incidence.

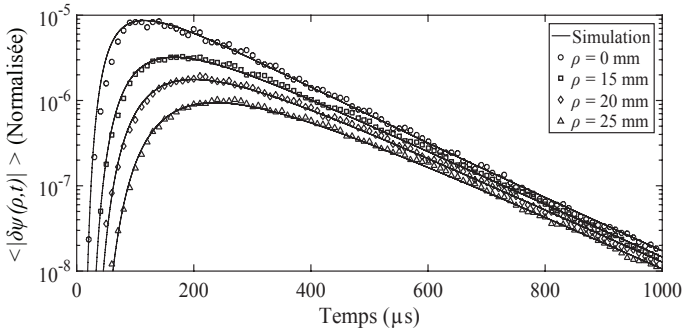

Fig. 3.6 – Profils temporels de l'intensité moyenne (courbes de temps de vol) mesurés dans une émulsion diluée (ϕ = 5 %, $< a >$ = 0,17 mm et L = 26 mm) à z = 20 mm et pour plusieurs distances ρ. Les tracés continus représentent le résultat du calcul de la densité locale d'énergie normalisée $U(\rho,t)/U_0$ avec $\tau_a = 164\,\mu s$, $D = 0,40\,mm^2/\mu s$ et $\ell^* = 1,38\,mm$ (éq. 3.20).

($z_0 = 3{,}8.10^3$ mm dans l'exemple présenté fig. 3.6). De la même manière, le temps caractéristique de diffusion τ_D, défini par la relation :

$$\tau_D = \frac{(L+2z_0)^2}{\pi^2 D}, \tag{3.22}$$

est de l'ordre de la seconde ($\tau_D \sim 14$ s dans l'exemple traité ici). On introduit alors un temps caractéristique τ de décroissance de la densité d'énergie U (aux temps longs) [20] :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_D} + \frac{1}{\tau_a}. \tag{3.23}$$

Cette équation s'interprète de la manière suivante : la décroissance temporelle de la densité d'énergie U en un point de l'espace, est due aux effets de diffusion (l'énergie se « répartit » progressivement dans l'espace) et d'absorption (l'énergie acoustique se transforme en énergie thermique).

Les ordres de grandeur des temps caractéristiques τ_a et τ_D exposés précédemment nous montrent que, bien qu'étant très faibles, les effets d'absorption sont prépondérants dans la décroissance de l'intensité moyenne $< |\delta\psi|^2 >$ aux temps longs. En effet, le coefficient R^M étant proche de 1, sans absorption l'énergie resterait « confinée » dans la cellule et le régime stationnaire ($\partial U/\partial t \to 0$) serait atteint aux temps longs.

Après nous être intéressés à la densité d'énergie U, focalisons-nous sur le vecteur courant $\vec{J}$ (éq. 3.11). Le rayonnement à travers les interfaces $z = 0$ et $z = L$ est caractérisé par le module $J(\rho,z,t)$ du vecteur courant $\vec{J}(\rho,z,t)$. C'est la quantité d'intérêt de la majorité des expérimentations portant sur le transport diffusif des ultrasons, le champ étant sondé à l'extérieur de l'échantillon [4,5]. Le flux transmis à travers la surface $z = L$ de l'échantillon s'exprime de la manière suivante :

$$J(\rho, z=L, t) = -D\left.\frac{\partial U(\rho,z,t)}{\partial z}\right|_{z=L} = D\frac{U(\rho,L,t)}{z_0 L}. \tag{3.24}$$

En mesurant $U(\rho,z,t)$, il est également possible d'accéder au flux $J(\rho,z,t)$ rayonné à travers la surface de profondeur z quelconque :

$$J(\rho,z,t) = -D\frac{\partial U(\rho,z,t)}{\partial z}. \tag{3.25}$$

La mesure de la densité d'énergie U étant réalisée pour plusieurs profondeurs z, sa dérivée est approximée comme suit :

$$\frac{\partial U(\rho,z,t)}{\partial z} \approx \frac{U(\rho,z+\Delta z/2,t)-U(\rho,z-\Delta z/2,t)}{\Delta z}. \tag{3.26}$$

Nous déterminons ainsi le flux $J(\rho,z,t)$ à la profondeur $z = 20$ mm grâce aux mesures de $U(\rho,z=15\text{ mm},t)$ et $U(\rho,z=25\text{ mm},t)$, figure 3.7. Les paramètres d'entrée de la simulation (U_0, τ_a, D et ℓ^*) proviennent de l'ajustement du modèle (3.20) à partir des mesures de la densité locale d'énergie U à $z = 20\,\text{mm}$ (fig. 3.6). Bien que la différentiation (3.26) diminue

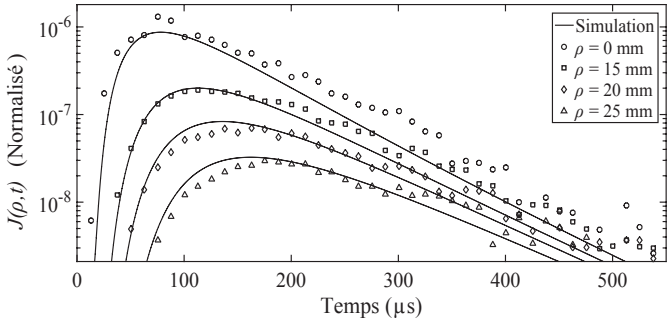

Fig. 3.7 – Profils temporels du flux rayonné à travers la surface située en $z = 20\,mm$ à l'intérieur de l'échantillon. Les traits continus représentent le résultat du calcul du flux $J(\rho,t)$ (éq. 3.20).

significativement la qualité de la mesure (par rapport à la mesure directe de U), le bon accord entre les simulations et les mesures du flux J (fig. 3.7) confirme la bonne identification des paramètres U_0, τ_a, D et ℓ^*.

La faible sensibilité des paramètres U et J à la quantité d'intérêt ℓ^*, nous amène à envisager une autre mesure du libre parcours moyen de transport ℓ^*. Notre dispositif expérimental ne permettant pas de caractériser le cône de rétrodiffusion cohérente, les méthodes basées sur cette mesure [18] ne peuvent pas être mises en œuvre.

Dans ce contexte, nous proposons d'exploiter le rapport $J(\rho,z,t)/U(\rho,z,t)$ pour une profondeur z fixe, qui dépend uniquement du libre parcours moyen de transport ℓ^* (lorsque les quantités L, R^M et D sont connues par ailleurs). Dans notre cas, la connaissance de l'épaisseur de l'échantillon fluide L n'est cependant pas parfaite. L'évaporation de l'émulsion provoque une baisse continue de l'épaisseur L. Cette variation ΔL reste relativement faible ($\Delta L/L \sim 3\,\%$), mais les prédictions numériques (fig. 3.8a) montrent qu'une faible incertitude ΔL affecte fortement le rapport $J(\rho,z,t)/U(\rho,z,t)$ et induit une erreur non acceptable sur la mesure du libre parcours moyen de transport ℓ^* (fig. 3.8b).

La rapport $J(\rho,z,t)/U(\rho,z,t)$ est mesuré pour $z = 20\,\text{mm}$ (fig. 3.8). Ce rapport étant indépendant de la distance ρ, les mesures sont moyennées sur les acquisitions effectuées pour trois distances ρ différentes. Il apparaît alors, à partir des résultats de la figure 3.8, que la valeur de l'épaisseur L prise en compte dans le modèle (fig. 3.8c) est plus faible que celle de l'épaisseur de la cellule (26 mm). Cette mauvaise connaissance de L, ne permet donc pas de mesurer le libre parcours moyen de transport ℓ^* à partir de l'analyse du rapport $J(\rho,z,t)/U(\rho,z,t)$.

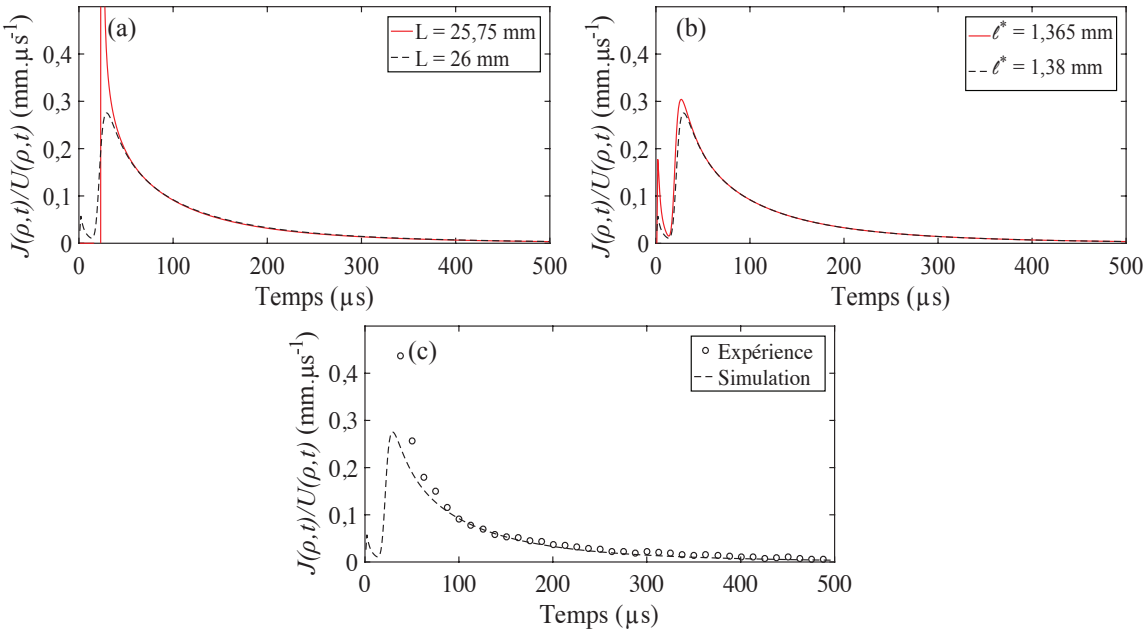

Fig. 3.8 – Rapport $J(\rho,z,t)/U(\rho,z,t)$ calculé à partir des paramètres d'entrée de la modélisation de la figure 3.6 (en tracé noir discontinu avec en particulier $L = 26$ mm). Les tracés continus rouges des figures (a) et (b) représentent le résultat du calcul pour un écart relatif de 1 % sur ℓ^* et L respectivement. La mesure de $J(\rho,z,t)/U(\rho,z,t)$ est représentée dans la figure (c).

3.2.2 Mesure du coefficient de diffusion et du temps caractéristique d'absorption

L'intérêt de la mesure de la densité locale d'énergie U est d'en extraire le coefficient de diffusion D. Cependant, l'inversion du modèle (3.20) dépend de trop de paramètres (D, R^M, ℓ^* et τ_a) pour fournir une mesure fiable du coefficient D. J. H. Page et ses collaborateurs ont alors développé une méthode robuste pour sa mesure, se basant sur la caractérisation transverse du halo diffusif [4]. En mesurant l'intensité moyenne $<|\delta\psi|^2>$ à une profondeur z donnée et pour plusieurs distances ρ, nous pouvons calculer le rapport entre la densité locale d'énergie sur l'axe $U(0,z,t)$ et la densité locale d'énergie hors-axe $U(\rho,z,t)$:

$$R(\rho,z,t) = \frac{U(\rho,z,t)}{U(0,z,t)} = \mathrm{e}^{-\rho^2/w^2(t)}. \tag{3.27}$$

Le profil transverse du halo diffusif $R(\rho,z,t)$ correspond à une gaussienne d'écart-type proportionnel à $w(t) = 2\sqrt{Dt}$. Nous remarquons que l'expression (3.27) est indépendante des effets d'absorption et de réflexion en $z = 0$ et $z = L$. Les expériences et simulations numériques exposés dans l'annexe A.3.3 montrent cependant que pour des temps suffisamment longs ($t > 1$ ms pour l'exemple considéré fig. 3.6), l'évolution du halo diffusif est affectée par les parois latérales de la cellule. L'expression (3.27) n'est alors plus appropriée dès lors que les coefficients de réflexion latéraux ont une influence sur le rapport $R(\rho,z,t)$. Par conséquent, nous nous focalisons en premier lieu sur la fenêtre temporelle $\Delta t \in [50, 500]$ μs (temps courts) afin d'évaluer le coefficient D de la manière la plus précise possible. Les bornes de Δt sont déterminées empiriquement : $t =$

50 μs correspond au temps auquel l'intensité atteint le récepteur pour la plus grande distance ρ (et des plus petits coefficients de diffusion) et $t = 500$ μs est le temps pour lequel les premiers effets des parois latérales de la cellule sont observés (pour de grands coefficients de diffusion).

Le rapport $R(\rho, z, t)$ est mesuré dans l'émulsion diluée $\phi = 5$ % et représenté pour la fenêtre temporelle $\Delta t \in [50, 500]$ μs sur la figure 3.9. Ce résultat illustre la croissance du halo diffusif, proportionnelle à $\sqrt{Dt}$. Les larges fluctuations de la limite expérimentale $R(\rho, z, t) = 0{,}5$ sont ici dues à une moyenne effectuée sur un trop faible nombre de configurations. Cette cartographie nécessite en effet une mesure bien résolue en distance ρ, au détriment du nombre de configurations du désordre considérées.

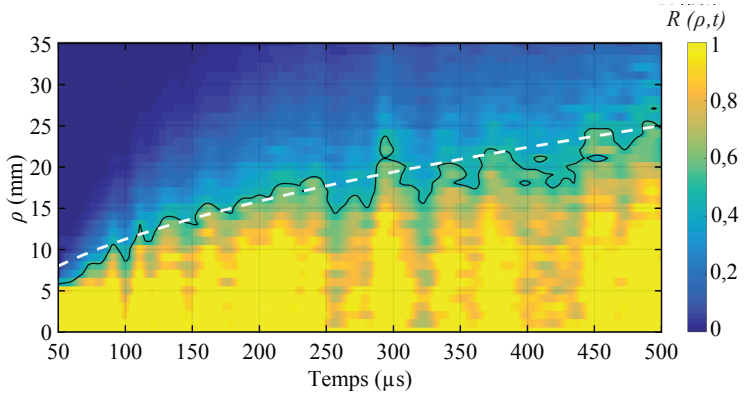

Fig. 3.9 – Cartographie du rapport $R(\rho, z, t)$ pour l'émulsion diluée $\phi = 5$ %. La ligne noire continue représente la limite expérimentale $R(\rho, z, t) = 0{,}5$. La ligne blanche discontinue représente la même limite calculée ($\rho = 2\sqrt{ln(2)Dt}$) pour $D = (0{,}45 \pm 0{,}03)$ mm.μs^{-1}.

La caractérisation du coefficient de diffusion est réalisée grâce à la mesure de « l'extension latérale » $w^2(t)$ $(= -\rho^2/\ln(R(\rho, z, t)))$ du halo diffusif. La mesure du rapport $R(\rho, z, t)$ conduit alors au coefficient de diffusion *via* la relation :

$$\frac{-\rho^2}{\ln(R(\rho, z, t))} = 4Dt. \tag{3.28}$$

Pour une émulsion avec $\phi = 5$ %, cette quantité est représentée sur la figure 3.10 pour la mesure de l'intensité $< |\psi|^2 >$ avec une fréquence de filtrage $f_f = 2{,}7$ MHz (de bande-passante $df = 50$ kHz). L'évolution de $w^2(t)$ est alors linéaire et ses mesures se superposent pour les différentes distances ρ. Ces deux observations nous confirment que le régime de transport de l'intensité moyenne est bien diffusif : le halo évolue temporellement en $\sqrt{t}$ et son profil spatial est effectivement gaussien avec $w^2(t)$ indépendant de ρ. Nous verrons dans le chapitre 4 que lorsque le régime n'est plus diffusif, le profil transverse du halo diffusif n'est plus gaussien, et que l'extension $w^2(t)$ dépend de la distance ρ. Dans ce cas particulier, un ralentissement (ou arrêt total) du processus de diffusion caractérisé par une évolution non-linéaire de l'extension $w^2(t)$, peut être observé [21].

Il est possible de tenir compte de la taille finie w_0 de la source grâce à la relation $w^2(t) = 4Dt + w_0^2$, obtenue par convolution de la densité d'énergie $U(\rho, z, t)$ avec l'apodisation (supposée gaussienne) de la source [5]. En supposant gaussienne la forme de la source (fig. 2.17c), la taille

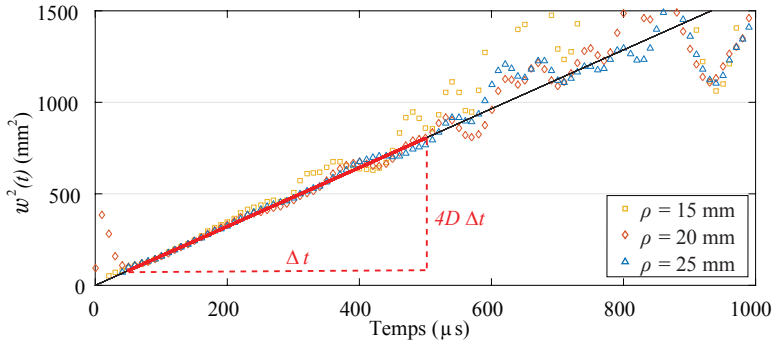

Fig. 3.10 – Extension latérale $w^2(t)$ du halo diffusif pour l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5$ % et une fréquence de filtrage $f_f = 2{,}7$ MHz. La mesure est réalisée pour une distance de propagation $z = 20$ mm. La ligne rouge représente la fonction d'ajustement utilisée pour la détermination du coefficient de diffusion $D = (0{,}40 \pm 0{,}01)$ mm^2.µs^{-1}. La ligne noire représente l'extension $w^2(t)$ obtenue à partir des simulations représentées sur la figure 3.6.

w_0^2 a pu être identifiée ($= 0{,}41$ mm^2). Bien que cette largeur de source soit négligeable devant les valeurs prises par $w^2(t)$, w_0^2 est systématiquement soustrait à l'extension $w^2(t)$ dans cette étude afin de mesurer le coefficient de diffusion D.

La mesure du coefficient de diffusion D a été présentée jusqu'à présent après application d'un seul filtre numérique de fréquence centrale, $f_f = 2{,}7$ MHz. Nous répétons maintenant cette mesure pour des fréquences allant de 1 à 3,7 MHz avec un filtre de bande-passante $df = 50$ kHz. Le coefficient de diffusion mesuré dans l'émulsion avec $\phi = 5$ % est représenté sur la figure 3.11 pour trois profondeurs z. Il est intéressant de remarquer que le coefficient D semble indépendant de la profondeur z, confirmant une fois de plus le caractère purement diffusif du transport des ondes multiplement diffusées [22]. Les incertitudes (affichées ici uniquement pour $z = 20$ mm pour des raisons de clarté) sont estimées à partir des résidus de l'ajustement linéaire ($4Dt$) des valeurs prises par l'extension $w^2(t)$ ($= -\rho^2/\ln R(\rho, z, t)$, cf. éq. 3.28). Elles sont importantes aux fréquences pour lesquelles le coefficient de diffusion D est grand. En effet, à ces fréquences, la croissance du halo diffusif est plus rapide (le rapport $R(\rho, z, t) = U(\rho, z, t)/U(0, t)$ tend vers 1 plus rapidement), rendant la mesure de l'extension $w^2(t)$ ($\to \infty$) erronée. Bien que le coefficient de diffusion D soit relativement faible à la fréquence f_f, ce comportement peut être observé sur la figure 3.10 aux temps longs ($t > 600\,\mu s$), où l'écart au modèle linéaire ($w^2(t) = 4Dt$) est manifeste.

La mesure du coefficient D est maintenant confrontée avec succès aux résultats de la modélisation $D = v_e \ell^*/3$, pour les trois profondeurs z et sur toute la gamme de fréquences inspectée, figure 3.11. La distribution en taille de gouttes est introduite dans les prédictions des quantités ℓ^* et v_e. Détaillons ici l'impact de cette distribution sur le calcul du libre parcours moyen de transport ℓ^*, équation (3.17) (le cas de la vitesse de transport v_e est traité dans la section 3.3). Donnons en premier lieu une expression plus explicite du libre parcours moyen élastique ℓ_e, qui dépend explicitement de la concentration. Pour cela, nous effectuons un développement limité

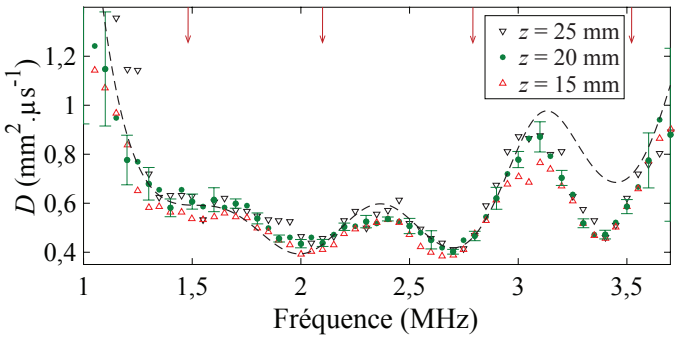

Fig. 3.11 – Coefficient de diffusion D mesuré dans l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5$ % pour trois profondeurs différentes z. La ligne noire discontinue représente le calcul de $D = v_e\ell^*/3$ à l'aide de l'équation (3.31) avec les paramètres optimaux $\phi = 4{,}8$ %, $< a >= 0{,}168$ mm et $P = 5$ %.

en $4\pi\eta f(0)/k_0^2 \to 0$ de k^2, traduisant la faible dispersion du milieu effectif :

$$k \approx k_0 \left(1 + \frac{2\pi\eta f(0)}{k_0^2}\right). \tag{3.29}$$

En supposant de plus que l'atténuation de la matrice est négligeable ($\mathrm{Im}k_0 \sim 0$), nous obtenons une expression simplifiée du libre parcours moyen élastique :

$$\ell_\mathrm{e} = \frac{k_0}{4\pi\eta \mathrm{Im} f(0)}, \tag{3.30}$$

défini ici pour un seul rayon de goutte. En pondérant les contributions de toutes les tailles de gouttes par leur concentration associée η_a, le libre parcours moyen de transport ℓ^* s'écrit alors :

$$\ell^* = \left[\frac{4\pi}{k_0}\int_a \eta_a \mathrm{Im} f_a(0)(1- < \cos\theta >_a)\mathrm{d}a\right]^{-1}. \tag{3.31}$$

Le recalage du modèle ainsi établi sur les mesures du coefficient D, figure 3.11 conduit à déterminer les paramètres optimaux suivants : $\phi = 4{,}8$ %, $< a >= 0{,}168$ mm et $P = 5$ %. On notera que ces résultats sont très proches de ceux établis par caractérisation de l'onde cohérente [d], cf. sec. 3.1.2. Enfin, l'identification des fréquences de résonance pour les trois premiers modes ($f_1 = 1,48$ MHz, $f_2 = 2,10$ MHz et $f_3 = 2,79$ MHz) montre que les résonances des gouttes correspondent à des minima du coefficient de diffusion D mais également à des pics de la célérité de groupe c_gr [e]. Les raisons du ralentissement du transport diffusif aux résonances (alors que c_gr y est maximale) seront données dans la section 3.3 lors de l'estimation expérimentale de la vitesse de transport.

Intéressons-nous maintenant à l'estimation de l'absorption des ondes multiplement diffusées *via* la mesure du temps caractéristique d'absorption τ_a. Maintenant que le coefficient de diffusion D est connu et que le libre parcours moyen de transport ℓ^* est estimé à partir de la mesure du libre parcours moyen élastique, l'amplitude U_0 et le temps caractéristique τ_a peuvent être extraits des courbes de temps de vol ($U(\rho, z, t)$). Cet ajustement à deux paramètres est acceptable : τ_a a

d. $\phi = 5\,\%$, $< a >= 0,170\,\mathrm{mm}$, $P = 3\,\%$.
e. Il n'est pas possible d'utiliser l'approximation $v_\mathrm{e} \sim c_\mathrm{gr}$ dans le cas des émulsions résonantes.

un effet sur la décroissance aux temps longs des courbes de temps de vol, alors que U_0 gouverne le niveau moyen de la densité d'énergie $U(\rho, z, t)$. Ainsi, l'ajustement des courbes de temps de vol pour les différentes fréquences de filtrage permet d'obtenir les mesures de τ_a et de U_0 dans l'émulsion avec $\phi = 5$ % pour les trois profondeurs d'observation z (fig. 3.12).

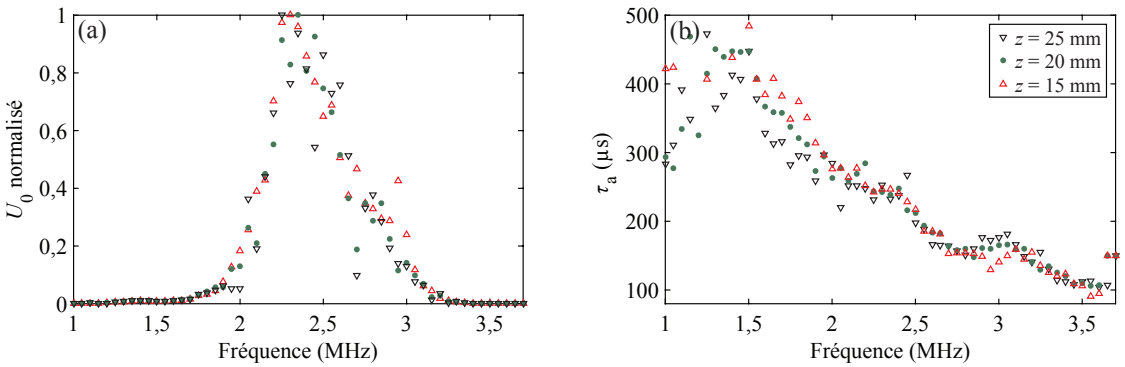

Fig. 3.12 – Amplitude U_0 (a) et temps caractéristique d'absorption τ_a (b) mesurés en ajustant, avec l'équation (3.20), les courbes de temps de vol mesurées en $\rho = 0$ mm à différentes profondeurs z.

L'amplitude U_0 (fig. 3.12a) présente un profil fréquentiel gaussien similaire au spectre du signal incident (fig. 2.18b). La mesure du temps caractéristique d'absorption τ_a (fig. 3.12b) montre une croissance de l'absorption en fonction de la fréquence, similaire au comportement de l'absorption mesurée dans les constituants (figs. 2.3a et 2.4a). Cependant, en définissant un temps caractéristique d'absorption de l'intensité de l'onde se propageant dans la matrice pure $\tau_0 = c_0/2\alpha_0$, on remarque que $\tau_0 \sim 5\tau_\mathrm{a}$. L'absorption des ondes multiplement diffusées n'est donc pas uniquement due à la dissipation dans le gel mais à d'autres mécanismes de dissipation tels que les pertes visqueuses à l'interface goutte/gel [23]. Cette hypothèse est par exemple appuyée par la présence d'un minimum local de τ_a autour de la résonance quadripolaire ($f = 2{,}75$ MHz) pour les trois profondeurs z. À la résonance, les déformations de la goutte étant accrues, les dissipations visqueuses sont susceptibles de croître et par suite d'induire une augmentation de l'absorption.

3.3 Confrontation des mesures sur les champs cohérent et incohérent

Dans la partie précédente, nous avons caractérisé le transport diffusif des ondes dans une émulsion diluée à l'aide de la mesure et de la modélisation du coefficient de diffusion D. L'objectif du chapitre est d'établir le lien entre la propagation de l'onde cohérente et le transport de l'intensité incohérente. Il faut pour cela trouver une vitesse caractéristique du transport des ondes multiplement diffusées, jusqu'ici caractérisée par le seul coefficient D, qui peut être défini par le rapport entre le vecteur courant $\vec{J}$ et le gradient de la densité locale d'énergie $\vec{\nabla}U$ (éq.

3.14). Nous travaillons alors sur la vitesse de transport v_e que nous comparerons à la célérité de groupe c_{gr} de l'onde cohérente.

La vitesse de transport en milieu infini (éq. 3.18) [8, 24] s'interprète dans notre cas, comme la vitesse moyenne de transport de l'intensité acoustique multiplement diffusée. Cette vitesse n'a *a priori* aucun lien avec les célérités de phase et de groupe de l'onde cohérente, quantités intrinsèques à la propagation dans un milieu effectif modèle.

En acoustique, il est cependant possible de modéliser la vitesse de transport v_e à l'aide d'une renormalisation de la célérité de groupe c_{gr} incluant un retard lié au changement de phase, dû à la diffusion par un objet [13]. Les précédentes études menées sur des systèmes acoustiques [13] montrent que ce retard de diffusion reliant les vitesses c_{gr} et v_e reste faible, et que ces quantités sont alors similaires. Pour les émulsions résonantes, nous verrons que le contraste de célérités du son entre l'huile fluorée et le gel aqueux provoque un retard de diffusion remarquablement important. Dans ce cas, les résonances induisent des effets opposés sur c_{gr} et v_e, de façon similaire aux systèmes optiques déjà étudiés [6]. Nos émulsions nous permettent alors d'établir un lien entre les résultats obtenus en optique et en acoustique, grâce aux résonances des gouttes d'huile fluorée qui constituent un excellent analogue acoustique des résonances de Mie rencontrées en optique [25].

3.3.1 Modélisation de la vitesse de transport

En présence de diffusion faiblement résonante, la description des ondes multiplement diffusées peut être réalisée, en première approximation, par la célérité de phase c_{ph} ou de groupe c_{gr} de l'onde cohérente [14]. En effet, l'impact du diffuseur sur la propagation d'une impulsion est faible dans ce cas.

En présence de diffusion résonante, le milieu effectif devient fortement dispersif et la célérité de groupe de l'onde cohérente prend potentiellement des valeurs anormales près des fréquences de résonance [26, 27]. D'autre part, les fluctuations aléatoires du champ sont perturbées par le retard induit par la diffusion des hétérogénéités [28, 29]. Les vitesses caractéristiques des champs cohérent et incohérent sont alors différentes. Lorsque la célérité des ondes à l'intérieur du diffuseur est plus grande que celle dans le milieu environnant, ce retard est faible de même que la différence entre les vitesses c_{gr} et v_e. C'est cette configuration que l'on retrouve généralement dans les systèmes acoustiques utilisés pour la mesure de la vitesse de transport [5, 13], où l'indice de réfraction [f] n_{ac} est inférieur à 1. En optique la matrice des systèmes étudiés étant le vide ou l'air, l'indice de réfraction n_{op} est toujours supérieur à 1. Le retard subi par les ondes multiplement diffusées devient alors significatif et les comportements des vitesses c_{gr}, c_{ph} et v_e autour des résonances sont radicalement différents [6, 30].

f. Contrairement aux ondes lumineuses (où l'indice de réfraction est défini par rapport à une célérité absolue qui est celle de la lumière dans le vide) il n'existe pas de milieu de référence pour les ondes élastiques ou acoustiques. Cependant, la majorité des expériences ultrasonores discutées dans cette étude traitent de milieux hétérogènes ayant pour matrice l'eau. Nous définissons ainsi l'indice de réfraction acoustique $n_{ac} = c_{eau}/c_m$ du milieu m, « relatif » à la célérité du son dans l'eau pour les ondes acoustiques.

Nous avons vu dans le chapitre 1 que l'intégration de l'équation de transport sur $\vec{p}$ en régime stationnaire ($\Omega = 0$), conduit à une *identité de Ward*. Cette relation décrit la perte d'énergie de l'onde cohérente en faveur de l'intensité des ondes multiplement diffusées. L'utilisation de cette identité dans l'équation de transport conduit alors à l'équation du transfert radiatif. En régime dynamique, vient s'ajouter à cette équation une dérivée temporelle conduisant à l'*ETR* (éq. 1.32).

En présence de résonances et donc de retard de diffusion, l'étude en régime stationnaire et son adaptation au cas dynamique ne sont plus possibles. Une méthode alternative proposée par van Albada et ses collaborateurs [6,8] pour la diffusion de la lumière par des particules de TiO_2 dans l'air, est maintenant présentée à partir de l'équation (1.34) (sans terme source) :

$$\frac{\partial U(\vec{r},t)(1+\delta)}{\partial t} + \vec{\nabla}.\vec{J}(\vec{r},t) = 0. \tag{3.32}$$

En comparaison avec l'équation de bilan obtenue dans le cas stationnaire (éq. 3.12), il apparaît que la densité locale d'énergie U' se décompose en deux contributions : $U' = U + \delta\, U$. La vitesse de transport dans le régime dynamique s'exprime alors :

$$v_e = \frac{J}{U'} = \frac{J}{U}\frac{1}{1+\delta}. \tag{3.33}$$

Dans le cas stationnaire ($\Omega = 0$ et par suite $\delta = 0$), les retards de diffusion sont nuls et la vitesse de transport v_e ($= J/U$) est donc décrite par la célérité de groupe de l'onde cohérente. Nous avons alors $J/U = c_{gr}$. Dans le cas de diffusion faiblement résonante ($\partial f(0)/\partial\omega \ll 1$), on montre que $c_{gr} = c_0^2/c_{ph}$ [8]. À partir de ces observations, la vitesse de transport (éq. 3.33) devient alors :

$$v_e = \frac{c_0^2/c_{ph}}{1+\delta}. \tag{3.34}$$

Le paramètre δ est calculé grâce à l'*identité de Ward* dans le cadre de l'approximation de Boltzmann et de l'ISA et la vitesse de transport devient [8] :

$$v_e = \frac{c_0^2/c_{ph}}{1+\Delta_1+\Delta_2}, \tag{3.35}$$

avec :

$$\Delta_1 = 2\pi\eta c_{gr}\frac{c_{ph}}{\omega}\frac{\partial \mathrm{Re}f(0)}{\partial\omega} \quad \text{et} \quad \Delta_2 = 2\pi\eta c_{gr}\int_0^\pi \sin(\theta)|f(\theta)|^2\frac{\partial\varphi(\theta)}{\partial\omega}\mathrm{d}\theta, \tag{3.36}$$

où φ est la phase de la matrice $\tilde{T}_{\vec{p}\vec{p}_s} = |\tilde{T}_{\vec{p}\vec{p}_s}|e^{j\varphi(\theta)} = -4\pi\eta f(\theta)$.

Dans l'expression (3.35) de la vitesse de transport v_e, le terme Δ_2 (souvent appelé la « contribution collisionelle » [31]) représente la contribution du retard angulairement dépendant $\partial\varphi(\theta)/\partial\omega$ subi par l'onde diffusée.

Déterminons maintenant la signification physique de terme Δ_1. Pour cela, réécrivons la célérité de groupe en terme de retard de groupe Δ_{gr}. À partir de l'*ISA* (et de l'hypothèse $k_0 \sim \mathrm{Re}(k_0)$), nous obtenons :

$$\frac{\partial k'^2}{\partial\omega} = \frac{2k'}{c_{gr}} = \frac{\partial}{\partial\omega}\left[k_0^2\left(1+\frac{4\pi\eta\mathrm{Re}f(0)}{k_0^2}+\frac{1}{2}\frac{1}{(k'\ell_e)^2}\right)\right]. \tag{3.37}$$

Dans le cadre du régime diffusif étudié dans ce chapitre [g], le dernier terme de l'équation (3.37) peut être négligé ($1/(k'\ell_e)^2 \ll 1$). Dans ce cas, la célérité de groupe est réécrite de la manière suivante :

$$c_{gr} = \frac{c_0^2/c_{ph}}{1+\Delta_{gr}}, \tag{3.38}$$

avec :

$$\Delta_{gr} = 2\pi\eta\frac{c_0^2}{\omega}.\frac{\partial \mathrm{Re}f(0)}{\partial\omega}. \tag{3.39}$$

Pour les milieux faiblement résonants ($f(0)$ faiblement dépendant de la pulsation ω et par suite $\Delta_{gr} = 0$), l'équation (3.38) se réduit naturellement à l'égalité $c_{gr} = c_0^2/c_{ph}$. Focalisons-nous sur l'expression de la vitesse v_e lorsque Δ_2 est nul. À partir des équations (3.36) et (3.39), on remarque que $\Delta_1 \sim \Delta_{gr}$ lorsque $c_{gr} = c_0^2/c_{ph}$ en dehors des fréquences de résonance. Les équations (3.35) et (3.38) avec $\Delta_2 = 0$ conduisent alors à $v_e \sim c_{gr}$, qui montre que Δ_1 représente la contribution de la célérité de groupe en présence de diffusion faiblement résonante.

Illustrons les significations physiques des termes Δ_1 et Δ_2 données précédemment, en les calculant pour deux émulsions avec $\phi = 5\,\%$ et $< a >= 0{,}170\,\mathrm{mm}$ dans le cas monodisperse (fig. 3.13a) et polydisperse [h] $P = 5\,\%$ (fig. 3.13b).

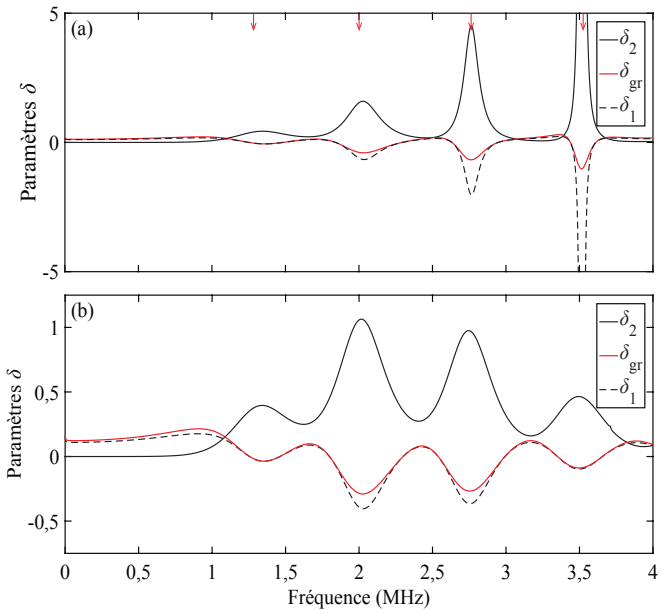

Fig. 3.13 – Paramètres Δ_1, Δ_2 et Δ_{gr} calculés à partir des équations (3.36) et (3.39) pour $\phi = 5\,\%$ et $< a >= 0{,}170\,\mathrm{mm}$ dans les cas monodisperse (a) et polydisperse $P = 5\%$ (b). Les flèches rouges représentent les fréquences de résonance.

g. Le régime diffusif, obtenu pour les faibles concentrations étudiées dans ce chapitre, est caractérisé par le critère $k'\ell_e \gg 1$ [32].

h. La prise en compte de la polydispersité est réalisée de la même manière que pour le calcul du nombre d'onde k dans le cadre de l'*ISA*. La fonction de diffusion d'une goutte est moyennée sur les rayons a : $\eta f(\theta) \int \eta_a f_a(\theta)\mathrm{d}a$. L'utilisation de théories de diffusion indépendante pour le calcul de la vitesse v_e motive ce choix de modification de la fonction de diffusion d'un diffuseur isolé (les récurrences entre diffuseurs de taille différente étant négligées).

- Les termes Δ_{gr} et Δ_1 sont semblables en dehors des fréquences de résonance. Δ_1 représente donc la contribution de la célérité c_{gr} dans le transport de l'intensité incohérente. La polydispersité réduit la dépendance fréquentielle de $f(0)$ et par conséquent l'écart entre Δ_{gr} et Δ_1.

- Les variations du terme Δ_2 compensent celles de Δ_1. De plus, nous avons $\Delta_2 > \Delta_1$ aux résonances, cette inégalité étant expliquée par le choix de gouttes « lentes ». Ces fréquences seront donc marquées par des minima de la vitesse v_{e} caractéristiques du « ralentissement » du transport diffusif.

- Aux fréquences de résonance, nous avons $\Delta_{\text{gr}} < 0$. Ces fréquences seront donc marquées par des maxima de la célérité de groupe c_{gr}.

Dans la description macroscopique des propriétés acoustiques du milieu, la dispersion du milieu effectif provoque alors une avance de l'enveloppe de l'impulsion transmise (correspondant à un maximum de la célérité c_{gr}) alors que la description microscopique montre un ralentissement de l'impulsion diffusée (correspondant à un minimum de la vitesse v_{e}). La confrontation de ces deux descriptions permet alors de comprendre la différence entre la célérité de groupe et la vitesse de transport, et de montrer la nécessité de décrire la diffusion résonance en régime dynamique ($\Omega \neq 0$).

Enfin, pour établir des liens avec les travaux existants sur le sujet, nous relions l'expression (3.35) à deux écritures simplifiées habituellement mises en avant dans la littérature.

La première écriture, présente un avantage technique de facilité d'implémentation grâce à son lien direct avec les amplitudes modales A_n et leur phase α_n. Cette expression, majoritairement utilisée pour l'étude des ondes électromagnétiques [29,31] s'écrit dans le cas acoustique (scalaire) :

$$v_{\text{e}} = \frac{c_0^2}{c_{\text{ph}}}\left[1 + \frac{2\pi\eta c_{\text{gr}}}{k_0^2}\sum_{n=0}^{\infty}(2n+1)\left(\frac{\partial\alpha_n}{\partial\omega} - \frac{\text{Im}A_n}{\omega}\right)\right]^{-1}. \tag{3.40}$$

Les étapes de calcul conduisant à cette équation (données en annexe A.3.4) montrent qu'il n'est pas évident d'établir un lien direct entre les termes de cette expression et le retard de diffusion Δ_2 ou le terme Δ_1.

La deuxième écriture alternative de la vitesse v_{e} est plus intuitive et référencée plus fréquemment dans les travaux sur les ondes acoustiques [5,13,33]. Nous avons vu que dans le cas de faible dépendance fréquentielle de la fonction $f(0)$, nous pouvons écrire que $\Delta_1 \sim \Delta_{\text{gr}}$ ou encore :

$$\frac{1}{v_{\text{e}}} \approx \frac{1}{c_{\text{gr}}} + 2\pi\eta\int_0^{\pi}\sin(\theta)|f(\theta)|^2\frac{\partial\varphi(\theta)}{\partial\omega}\text{d}\theta. \tag{3.41}$$

À l'aide de cette expression et en définissant le temps de diffusion moyen :

$$\Delta t_{\text{ave}} = \frac{\int_0^{\pi}\sin(\theta)|f(\theta)|^2\partial\varphi(\theta)/\partial\omega\text{d}\theta}{\int_0^{\pi}\sin(\theta)|f(\theta)|^2\text{d}\theta}, \tag{3.42}$$

puis en invoquant le théorème optique [2], nous obtenons finalement l'expression « simplifiée » de la vitesse de transport :

$$\frac{1}{v_{\text{e}}} \approx \frac{1}{c_{\text{gr}}} + \frac{\Delta t_{\text{ave}}}{\ell_{\text{e}}}. \tag{3.43}$$

Cette dernière expression permet de comprendre l'influence du retard de diffusion Δt_{ave} sur la relation entre la célérité de groupe et la vitesse de transport. Cependant, bien que cette expression soit utilisée pour les expériences aux fréquences ultrasonores, l'hypothèse de faible dépendance fréquentielle de la fonction $f(0)$ est trop forte dans notre cas. Pour ces raisons, nous garderons par la suite l'expression (3.35) (plus appropriée à notre cas d'étude) pour la description de la vitesse de transport.

3.3.2 Estimation expérimentale de la vitesse de transport

Les mesures du coefficient de diffusion D et du libre parcours moyen élastique ℓ_{e} conduisent à une estimation expérimentale de la vitesse de transport $v_{\text{e}}(= 3D/\ell^*)$, *via* le calcul du libre parcours moyen de transport ℓ^*, éq. (3.31). La mesure de la célérité de groupe c_{gr} et l'estimation expérimentale de la vitesse v_{e} dans l'émulsion de concentration $\phi = 5\,\%$ avec $< a >= 0,170\,\text{mm}$ et $P = 3\,\%$ sont confrontées respectivement aux prédictions issues des modèles (3.35) et (2.5), fig. 3.14.

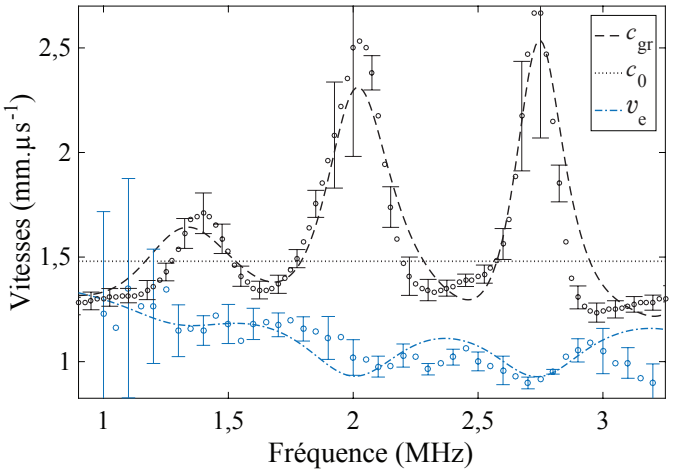

Fig. 3.14 – Mesure de la célérité de groupe (en carrés noirs) et estimation de la vitesse de transport (en cercles bleus) pour l'émulsion diluée. Ces deux mesures sont comparées aux modélisations de la célérité de groupe c_{gr} ligne discontinue noire) et de la vitesse v_e (en tracé mixte bleu), ainsi qu'à la célérité du son dans la matrice pure c_0 (en pointillés noirs).

Les incertitudes sur la vitesse v_{e} (relativement élevées en dehors de la bande-passante du signal transmis $f \in [1,3]$ MHz) sont estimées à partir des mesures aux trois profondeurs z différentes. Le très bon accord modèle/expérience pour les vitesses c_{gr} [i] et v_{e}, montre autour des résonances des « creux » de vitesse de transport lorsque la célérité de groupe est maximale (tout en restant bien définie). Cet effet a déjà été expliqué en optique pour de hautes valeurs de l'indice de réfraction des diffuseurs [6] (fig. 3.15a). Toutefois, des résultats discordants ont été obtenus en acoustique pour des diffuseurs aux indices de réfraction relatifs plus faibles [13] (fig.

i. Les barres d'erreur affichées sur la mesure de la célérité c_{gr} proviennent de l'estimation de l'incertitude sur la mesure de c_{gr} décrite dans le chapitre 2.

3.15b). La valeur de l'indice relatif des gouttes d'huile fluorée étant importante ($n_{\text{ac}} = 2,3$), nos résultats sont comparables à ceux acquis en optique. Au voisinage des fréquences de résonance, le ralentissement des ondes multiplement diffusées est dû au contraste de célérités entre le diffuseur et le milieu environnant.

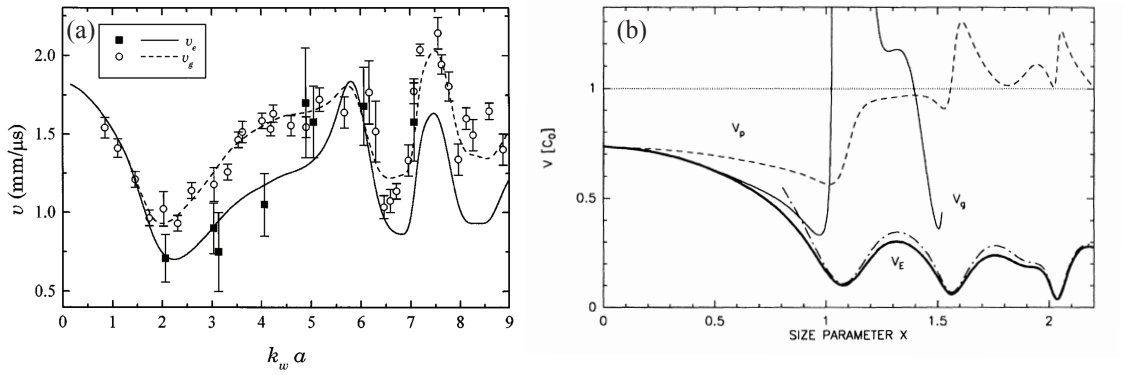

Fig. 3.15 – Résultats de travaux réalisés en acoustique et en optique, sur la comparaison entre la célérité de groupe et la vitesse de transport. (a) Cas de la diffusion des ondes acoustiques par des billes de verre ($n_{ac} = 0,3$) dans de l'eau [13] et (b) de la diffusion de la lumière par des particules de TiO_2 ($n_{op} = 2,5$) dans l'air [6].

Comme interprétation supplémentaire, il est possible d'appréhender les fréquences de résonance comme étant les fréquences particulières pour lesquelles la longueur d'onde dans la goutte d'huile λ_1 est un multiple du diamètre de la goutte : $\lambda_1/2 \propto 2a$. Le retard subi par l'onde diffusée peut être alors vu comme la conséquence de la création d'une « onde stationnaire » à l'intérieur du diffuseur [31,34]. Par conséquent, il est aussi fréquent d'interpréter la contribution δU (éq. 3.32) à la densité locale d'énergie U comme étant une énergie potentielle stockée dans le diffuseur [8]. Cette énergie est ensuite progressivement rayonnée dans le milieu environnant avec un certain retard dépendant de l'indice du diffuseur. Cette interprétation est séduisante mais ambiguë pour le cas des émulsions résonantes pour lesquelles le contraste d'impédances acoustiques entre les deux fluides est faible. L'énergie n'est donc pas exactement « stockée » dans le diffuseur.

3.4 Conclusion

L'ensemble des résultats de ce chapitre traite du cas idéal du transport des ondes scalaires en milieux « dilués ». La mesure des paramètres effectifs de l'onde cohérente et leur confrontation aux prédictions issues du modèle de l'*ISA* nous permettent d'avancer que les hypothèses de faible concentration seront valables pour des émulsions de fraction volumique $\phi \sim 5\,\%$. Cependant, le contraste de célérités du son entre les gouttes d'huile et le gel aqueux offre à ces émulsions diluées un pouvoir diffusant suffisant pour observer le transport diffusif de l'intensité incohérente.

La faible polydispersité des échantillons permet de détecter les effets des résonances, repérés par des minima du coefficient de diffusion D. Le critère pour l'émergence d'effets de localisation

($k'\ell_e \sim 10 \gg 1$) n'étant pas respecté dans ce chapitre, le ralentissement de diffusion ne peut être imputé à une renormalisation du libre parcours moyen de transport ℓ^* [35].

L'estimation expérimentale de la vitesse de transport montre que le ralentissement du transport diffusif au voisinage des résonances est dû au large retard subi par l'onde diffusée par les gouttes d'huile « lentes ». Il n'est donc plus approprié de décrire le transport de l'intensité incohérente par la propagation d'une impulsion entre deux diffuseurs (en négligeant l'effet de ces derniers) ou par la propagation de l'onde cohérente dans le milieu effectif. Ce comportement est modélisé par une théorie établie en optique, tenant compte du retard de diffusion au voisinage des résonances (pouvant aussi être interprété comme une énergie potentielle stockée dans les diffuseurs puis rayonnée progressivement).

L'ensemble des calculs et mesures des célérité de groupe c_{gr} et vitesse de transport v_e, ainsi que la comparaison avec les travaux existants, réconcilie les travaux en optique et en acoustique, et clarifie la nécessité d'une redéfinition de la vitesse de transport de l'énergie v_e dans les cas de diffusion résonante (éq. 3.35).

L'étude pourrait être améliorée en utilisant une mesure indépendante du libre parcours moyen de transport ℓ^*. De telles méthodes existent (basées sur la transmission à travers l'échantillon [4] ou en caractérisant le cône de rétrodiffusion cohérente [18]), mais sont difficilement adaptables au dispositif expérimental présenté ici.

Les différents modèles étudiés ont été développées sous des hypothèses plus ou moins restrictives mais toujours dans le cadre de faibles concentrations en diffuseurs. Dans le prochain chapitre, nous nous intéresserons au cas où cette hypothèse n'est plus vérifiée, en particulier pour des fractions volumiques supérieures à 10 %. La modélisation des propriétés effectives tient alors compte des interactions entre gouttes (situées dans le champ proche des diffuseurs voisins). De la même manière, le transport de l'intensité incohérente est modifié par les interférences entre les ondes multiplement diffusées, mettant à mal les hypothèses de l'approximation de diffusion.

A.3 Annexes

A.3.1 Calcul de la solution de l'équation de diffusion pour un milieu à trois dimensions borné en $z = 0$ et $z = L$

Dans cette annexe, nous développons les calculs conduisant à la solution de l'équation de diffusion dans un milieu borné aux interfaces $z = 0$ et $z = L$. Posons le problème pour la diffusion unidimensionnelle d'un point source avec conditions aux limites en $\widetilde{z} = 0$ et $\widetilde{z} = 1$. Dans ce cas, l'équation de diffusion devient :

$$\partial_t U(z,t) - \frac{D}{L^2}\partial^2_{\widetilde{z}\widetilde{z}} U(z,t) = 0 \text{ pour } \widetilde{z} \in [0,1]\,, \tag{A3.1}$$

où $\widetilde{z}$ désigne la distance adimensionnée $\widetilde{z} = z/L$. Les conditions initiales et aux limites associées à ce problème sont :

$$\begin{cases} U - z_0^e \partial_{\widetilde{z}} U = 0 \quad \text{en } \widetilde{z} = 0, \\ U + z_L^e \partial_{\widetilde{z}} U = 0 \quad \text{en } \widetilde{z} = 1, \\ U = \delta(\widetilde{z} - \widetilde{z_s}) \quad \text{en } t = 0, \end{cases} \tag{A3.2}$$

avec z_0^e et z_L^e les distances d'extrapolation normalisées par L en $\widetilde{z} = 0$, $\widetilde{z} = 1$ et $\widetilde{z_s} = \ell^*/L$ associée à la position du point source. La solution de l'équation A3.1 est de la forme :

$$U(\widetilde{z}, t) = e^{-Dt\alpha^2/L^2}(K \cos \alpha\widetilde{z} + H \sin \alpha\widetilde{z}). \tag{A3.3}$$

Les conditions aux limites (A.3.2) permettent d'établir des équations satisfaites par les coefficients K, H et α :

$$\begin{aligned} \tfrac{K}{H} &= z_0^e \alpha, \\ \tan \alpha &= \tfrac{\alpha(z_0^e + z_L^e)}{z_0^e z_L^e \alpha - 1}. \end{aligned} \tag{A3.4}$$

La densité d'énergie $U(\widetilde{z}, t)$ correspond alors à la somme discrète des solutions de l'équation A.3.4 :

$$U(\widetilde{z}, t) = \sum_{n=1}^{\infty} e^{-Dt\alpha_n^2/L^2} K_n (\cos \alpha_n \widetilde{z} + \frac{1}{z_0^e \alpha_n} \sin \alpha_n \widetilde{z}). \tag{A3.5}$$

En utilisant maintenant la condition initiale, on obtient :

$$\delta(\widetilde{z} - \widetilde{z_0}) = \sum_{n=1}^{\infty} K_n Z_n(\widetilde{z}), \tag{A3.6}$$

avec $Z_n(\widetilde{z}) = (\cos \alpha_n \widetilde{z} + \frac{1}{z_0^e \alpha_n} \sin \alpha_n \widetilde{z})$. En sommant sur m l'équation A3.6 multipliée par $Z_m(\widetilde{z})$ puis en l'intégrant sur $\widetilde{z}$, il vient :

$$\sum_{m=1}^{\infty} Z_m(\widetilde{z_0}) = \int_0^1 \sum_{n,m=1}^{\infty} K_n Z_n(\widetilde{z}) Z_m(\widetilde{z}) \mathrm{d}\widetilde{z}. \tag{A3.7}$$

Or, on peut montrer que $\int_0^1 K_n Z_n(\widetilde{z}) Z_m(\widetilde{z}) \mathrm{d}\widetilde{z} = 0$ si $m \neq n$ [15], ce qui permet d'exprimer l'équation A3.7 comme l'égalité de deux séries. Les coefficients de ces deux séries sont alors égaux terme à terme, conduisant à l'expression des coefficients :

$$K_n = \frac{Z_n(\widetilde{z_s})}{\int_0^1 Z_n(\widetilde{z})^2 \mathrm{d}\widetilde{z}}. \tag{A3.8}$$

Le calcul du dénominateur du membre de droite de cette équation donne :

$$\int_0^1 Z_n(\widetilde{z})^2 \mathrm{d}\widetilde{z} = \frac{1}{2\alpha_n^2} \left[\alpha_n^2 + \frac{1}{z_0^{e2}} + \frac{\alpha_n^2 (2 z_L^e + z_0^{e2} z_L^e \alpha_n^2) + z_L^e / z_0^{e2}}{\alpha_n^2 (z_0^{e2} + z_L^{e2} + z_0^{e2} z_L^{e2} \alpha_n^2) + 1} + \frac{1}{z_0^e} \right]. \tag{A3.9}$$

Dans le cas particulier où les conditions aux limites en $\widetilde{z}=0$ et $\widetilde{z}=1$ sont identiques ($z_0^e = z_L^e = z^e$), l'équation A3.9 devient :

$$\int_0^1 Z_n(\widetilde{z})^2 \mathrm{d}\widetilde{z} = \frac{\alpha_n^2 z^{e2} + 2z^e + 1}{2\alpha_n^2 z^{e2}}. \tag{A3.10}$$

Finalement, en introduisant la solution de l'équation de diffusion axisymétrique, $U(\rho,t) = \mathrm{e}^{-\rho^2/4Dt}/4\pi Dt$, on obtient l'expression de la densité locale d'énergie U à trois dimensions avec les conditions aux limites haute ($\widetilde{z}=0$) et basse ($\widetilde{z}=1$) :

$$U(\rho,z,t) = \frac{\mathrm{e}^{-\rho^2/4Dt}}{2\pi Dt} \sum_{n=1}^{\infty} e^{-Dt\alpha_n^2/L^2} K_n(z), \tag{A3.11}$$

avec :

$$K_n(z) = \frac{\alpha_n z^e (\alpha_n z^e \cos(\alpha_n z/L) + \sin(\alpha_n z/L))(\alpha_n z^e \cos(\alpha_n z_s/L) + \sin(\alpha_n z_s/L))}{\alpha_n^2 z^{e2} + 2z^e + 1}. \tag{A3.12}$$

A.3.2 Coefficient de réflexion moyen à une interface milieu complexe/milieu homogène

Pour la modélisation du transport diffusif de l'intensité moyenne en milieu borné, il est nécéssaire de définir un coefficient de réflexion R^M adapté à ce régime de transport et permettant de calculer la distance d'extrapolation z^e :

$$z^e = \frac{2\ell^*}{3L} \frac{1+R^M}{1-R^M}. \tag{A3.13}$$

Nous détaillons pour cela les calculs effectués par H. Schiemer dans ses travaux de thèse [17]. La direction de propagation des ondes multiplement diffusée étant aléatoire, calculons un coefficient de réflexion moyenné sur l'angle d'incidence. La géométrie considérée est une interface entre deux fluides, de normale $\vec{u}$ (les paramètres indicés 1 étant relatifs au milieu complexe et 2 au milieu homogène situé de l'autre côté de l'interface). Les ondes considérées sont scalaires et il n'y a pas de conversion de modes à l'interface. Une onde incidente dans le milieu 1 avec une angle θ par rapport à la normale $\vec{u}$ est réfléchie avec le coefficient de réflexion suivant :

$$R(\theta) = \left(\frac{\rho_2^v c_2 \cos\theta - \rho_1^v \sqrt{c_1^2 - c_2^2 \sin^2\theta}}{\rho_2^v c_2 \cos\theta + \rho_1^v \sqrt{c_1^2 - c_1^2 \sin^2\theta}} \right)^2. \tag{A3.14}$$

Dans le cadre de cette étude, les paramètres ρ_1^v et c_1 sont respectivement la masse volumique et la célérité de phase effectives du milieu complexe (sous l'approximation de l'ISA), et ρ_2^v et c_2 la masse volumique et la célérité du son de l'air (ou du PVC dans le cadre de la prise en compte des parois latérales de la cellule de mesure, cf. annexe A.3.3).

Le coefficient de réflexion moyen R^M s'exprime alors de la manière suivante :

$$R^M = \frac{3C_2 + 2C_1}{3C_2 - 2C_1 + 2}, \tag{A3.15}$$

avec :

$$C_1 = \int_0^{\pi/2} R(\theta) \sin\theta\cos\theta \mathrm{d}\theta \qquad \text{et} \qquad C_2 = \int_0^{\pi/2} R(\theta) \sin\theta\cos^2\theta \mathrm{d}\theta. \tag{A3.16}$$

A.3.3 Mesures et simulations numériques du transport diffusif des ultrasons dans un milieu d'extensions latérales finies

Dans cette annexe, nous présentons les résultats des mesures et des simulations de l'effet des dimensions finies (en z et ρ) de l'échantillon sur l'évolution du halo diffusif.

Dans les émulsions diluées ($\phi = 5\,\%$), l'observation de l'extension latérale du halo diffusif $w^2(t)$ sur des temps supérieurs à $t = 1000\,\mu$s montre une brutale saturation (fig. 3.16). Cet effet ne peut pas être imputé au transport sub-difusif de l'intensité moyenne au vu du faible pouvoir diffusant de l'échantillon dilué étudié ici ($k'\ell_e \sim 7,5$ à la fréquence $f = 2,7\,$MHz). De plus pour les échantillons dont le pouvoir diffusant est plus important (la diffusion est plus lente), cet effet disparaît.

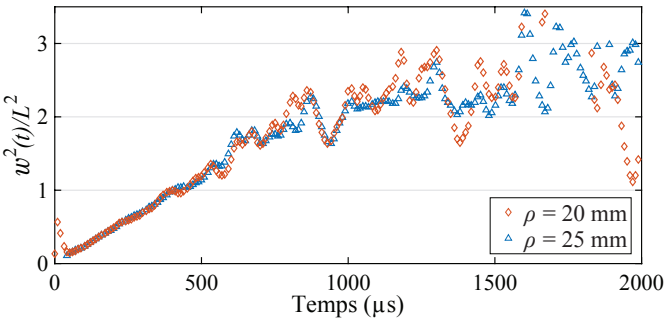

Fig. 3.16 – Extension latérale $w^2(t)$ du halo diffusif (normalisée par L^2) mesurée pour une fréquence $f = 2,7\,MHz$ dans l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5\,\%$ (correspond aux résultats présentées sur la figure 3.11 pour des temps plus longs) pour un échantillon d'épaisseur $L = 26\,mm$.

Cette étrange saturation de $w^2(t)$ semble être liée aux parois latérales de la cellule forçant le confinement de l'énergie aux temps longs. Cette hypothèse est appuyée par l'observation de cet effet uniquement pour les coefficients de diffusion les plus grands (l'énergie « sature » la cellule plus rapidement). Pour les plus grandes concentrations étudiées dans le chapitre 4, la diffusion est plus lente et un tel effet n'est jamais observé avant que l'amplitude du signal n'atteigne le niveau de bruit.

Pour confirmer cette hypothèse, nous calculons la diffusion d'un point source de la même manière que dans le paragraphe dédié à la résolution de l'équation de diffusion pour un milieu d'extension latérale infinie (éq. 3.20) mais en ajoutant les conditions aux limites latérales (en $\rho = R$ avec R le rayon de la cellule de mesure). La solution analytique d'un tel système n'est pas triviale.

Pour simplifier l'étude, nous discrétisons les dérivées de l'équation de diffusion :

$$\begin{aligned} \left.\frac{\partial U(x)}{\partial x}\right|_{x_j} &\approx \frac{U(x_j+\Delta x/2)-U(x_j-\Delta x/2)}{2\Delta x}, \\ \left.\frac{\partial^2 U(x)}{\partial x^2}\right|_{x_j} &\approx \frac{U(x_j+\Delta x/2)+U(x_j-\Delta x/2)-2U(x_j)}{\Delta x^2}, \end{aligned} \tag{A3.17}$$

avec x la variable de temps ou d'espace considérée et Δx le pas de discrétisation correspondant.

Le dispositif étant circulaire, la discrétisation en coordonnées cartésiennes (fig. 3.17a) semble inadaptée et l'équation de diffusion est exprimée en coordonnées cylindriques (ρ, θ, z) :

$$\frac{\partial^2 U}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial U}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2}\frac{\partial^2 U}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} = \frac{1}{D}\frac{\partial U}{\partial t}. \tag{A3.18}$$

Cependant, la discrétisation de l'espace à trois dimensions dans ce système de coordonnées oblige à créer un système d'échantillonnage variable de l'espace (le pas $\Delta\theta$ variant avec la distance ρ, fig. 3.17b).

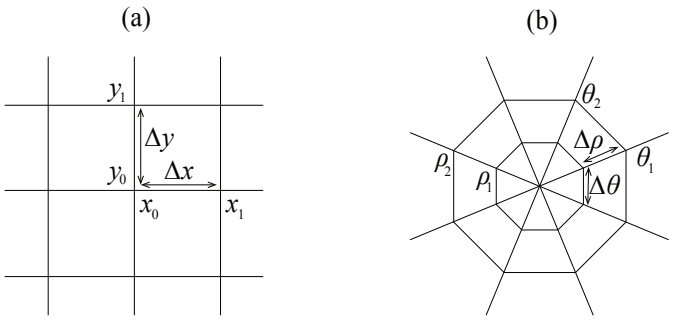

Fig. 3.17 – Discrétisation de l'espace en coordonnées cartésiennes (a) et cylindriques (b) pour le calcul des solutions de l'équation de diffusion par la méthode des différences finies. Les pas Δx et Δy sont invariants dans le cas (a) alors que le pas $\Delta\theta$ augmente avec la distance ρ dans le cas (b). La discrétisation dans la troisième direction z se fait en superposant de tels plans dans les deux cas.

Nous cherchons à observer les effets des parois latérales de la cellule (pour les grandes valeurs de ρ), le nombre de points doit alors être très important dans le cas de la figure 3.17b pour que la discrétisation soit précise pour ces distances importantes. Ce type de modélisation est donc trop complexe et demande trop de ressources de calcul pour notre étude. Pour optimiser les simulations, nous profitons du caractère axisymétrique du dispositif (impliquant $\partial/\partial\theta = 0$). L'équation de diffusion à discrétiser (A3.18) devient alors :

$$\frac{\partial^2 U}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial U}{\partial \rho} + \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} = \frac{1}{D}\frac{\partial U}{\partial t}. \tag{A3.19}$$

On réduit ainsi le problème de trois à deux dimensions et l'utilisation d'une discrétisation cartésienne (fig. 3.17a) en (ρ, z) est possible. Pour respecter la symétrie du dispositif, il faut ajouter une condition de continuité de la densité d'énergie U en $\rho = 0$. Le système est alors assorti de

quatre conditions aux limites :

$$\begin{aligned} U(\rho, z=0, t) - z_0^e \frac{\partial U}{\partial z}\Big|_{z=0} &= 0, \\ U(\rho, z=L, t) + z_L^e \frac{\partial U}{\partial z}\Big|_{z=L} &= 0, \\ U(\rho=R, z, t) + z_R^e \frac{\partial U}{\partial \rho}\Big|_{\rho=R} &= 0, \\ \frac{\partial U}{\partial \rho}\Big|_{\rho=0} &= 0, \end{aligned} \tag{A3.20}$$

où z_0^e, z_L^e et z_R^e correspondent aux distances d'extrapolations : $z_i^e = \frac{2\ell_{\rm tr}}{3}\frac{1+R_i^M}{1-R_i^M}$ et R_i et le coefficient de réflexion à l'interface i considérée. En mesurant l'impédance acoustique des parois en PVC de la cellule[j], on calcule le coefficient de réflexion moyen à l'interface émulsion PVC (détaillé dans l'annexe A.3.2) : $R_{\rm PVC} = 0,52$. La géométrie ainsi modélisée est représentée sur la figure 3.18.

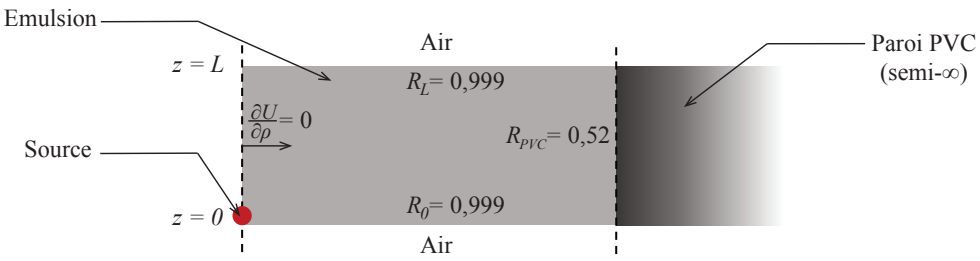

Fig. 3.18 – Géométrie utilisée pour le calcul par différences finies de la diffusion de la densité locale d'énergie. Les conditions aux limites sont représentées avec les différents coefficients de réflexion moyen en $z = 0$, $z = L$, $\rho = R$ et la condition de continuité en $\rho = 0$.

Le pas de la discrétisation en espace correspond à neuf points par libre parcours moyen de transport $\Delta\rho = \Delta z = 0,15\,\text{mm}$ et le pas pour la discrétisation en temps est calculé à partir de la condition CFL correspondant à l'équation A3.19 : $\Delta t = (\Delta\rho^4)/(8D\Delta\rho^2)$.

Ce calcul est effectué dans le cas de l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5\,\%$ étudiée précédemment pour la fréquence $f = 2,7\,\text{MHz}$. Les paramètres d'entrée de la simulation sont le temps caractéristique d'absorption $\tau_{\rm a}$, l'énergie initiale U_0, le coefficient de diffusion D et le libre parcours moyen de transport ℓ^*. Cette confrontation simulation/expérience est représentée sur la figure 3.19 pour les courbes de temps de vol et l'extension $w^2(t)/L^2$.

Le bon accord simulation/expérience de la figure 3.19 illustre l'effet des parois latérales sur la saturation du halo diffusif. Au-delà de $t = 750\,\mu\text{s}$, l'énergie a atteint les limites latérales du dispositif et l'expansion du halo diffusif est stoppée. Dans le cas de l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5\,\%$ (cf. section 3.2), cette simulation permet de déterminer les bornes du domaine temporel Δt exploité pour la mesure du coefficient de diffusion D.

j. Ces parois sont, dans un premier temps, considérées comme semi-infinies. Les réflexions multiples dans l'épaisseur de la cellule peuvent être prises en compte [36] mais sont ici négligées.

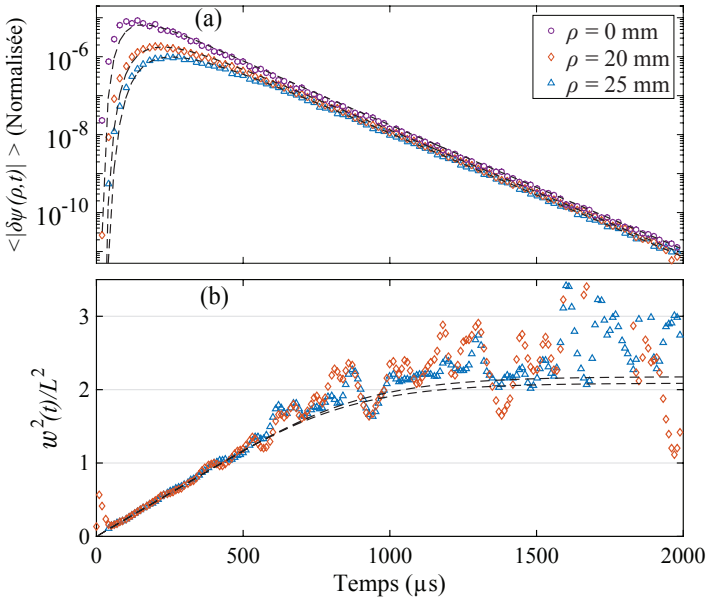

Fig. 3.19 – (a) Courbes de temps de vol normalisées par l'énergie initiale U_0 et (b) Extension latérale $w^2(t)$ du halo diffusif (normalisée par L^2) mesurées dans les conditions présentées sur la figure 3.16. Les lignes noires discontinues représentent les résultats de la simulation de la diffusion de la densité d'énergie avec les conditions aux limites latérales.

A.3.4 Expression de la vitesse de transport à l'aide des coefficients A_n

Dans cette annexe, nous détaillons les calculs conduisant à l'expression (3.40) de la vitesse de transport v_e à l'aide des coefficients A_n, éq. (1.2) :

$$v_e = \frac{c_0^2}{c_{ph}} \left[1 + \frac{2\pi\eta c_{gr}}{k_0^2} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) \left(\frac{\partial \alpha_n}{\partial \omega} - \frac{\mathrm{Im} A_n}{\omega} \right) \right]^{-1}. \tag{A3.21}$$

Pour cela, nous exprimons tout d'abord la vitesse v_e à l'aide des quantités Δ_1 et Δ_2 de la manière suivante :

$$v_e = \frac{c_0^2/c_{ph}}{1 + 2\pi c_{gr}(\Delta_1 + \Delta_2)}, \tag{A3.22}$$

avec :

$$\Delta_1 = \frac{c_{ph}}{\omega} \frac{\partial \mathrm{Re} f(0)}{\partial \omega} \qquad \text{et} \qquad \Delta_2 = \int_0^{\pi} \sin\theta |f(\theta)|^2 \frac{\partial \varphi(\theta)}{\partial \omega} \mathrm{d}\theta. \tag{A3.23}$$

En utilisant l'expression (éq. 1.5) de la fonction $f(0)$, il apparaît facilement :

$$\Delta_1 = \frac{1}{k k_0} \left[\sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) \left(\mathrm{Im} \left\{ \frac{\partial A_n}{\partial \omega} \right\} - \frac{\mathrm{Im} A_n}{\omega} \right) \right]. \tag{A3.24}$$

Le paramètre Δ_2 est plus délicat à calculer. Il faut tout d'abord remarquer la relation :

$$\frac{\partial \varphi(\theta)}{\partial \omega} = \mathrm{Im} \left\{ f^*(\theta) \frac{\partial f(\theta)}{\partial \omega} \right\} / |f(\theta)|^2. \tag{A3.25}$$

En substituant cette relation dans l'expression (A3.23), il vient :

$$\Delta_2 = \int_0^{\pi} \sin\theta \mathrm{Im} \left\{ f^*(\theta) \frac{\partial f(\theta)}{\partial \omega} \right\} \mathrm{d}\theta. \tag{A3.26}$$

En utilisant l'expression (éq. 1.5), de $f(\theta)$ cette équation peut s'exprimer de la manière suivante :

$$\Delta_2 = \frac{1}{k_0^2}\sum_{n,l}(2n+1)(2l+1)\mathrm{Im}\left\{A_n^*\left(\frac{\partial A_l}{\partial\omega}-\frac{A_l}{\omega}\right)\right\}\int_{-1}^{1}P_n(\cos\theta)P_l(\cos\theta)\mathrm{d}(\cos\theta). \tag{A3.27}$$

La relation d'orthogonalité des polynômes de Legendre donne :

$$< P_n, P_l >= \int_{-1}^{1}P_n(x)P_l(x)\mathrm{d}x = \frac{2}{2n+1}\delta_{nl}, \tag{A3.28}$$

et permet de simplifier l'expression (A3.27) :

$$\Delta_2 = \frac{1}{k_0^2}\sum_{n}(2n+1)\mathrm{Im}\left\{A_n^*\left(\frac{\partial A_n}{\partial\omega}-\frac{A_n}{\omega}\right)\right\}. \tag{A3.29}$$

En définissant les phases α_n telles que $A_n = (1-\mathrm{e}^{-2\mathrm{j}\alpha_n})/2$ [25], on obtient les trois relations :

$$\begin{aligned}\mathrm{Im}A_n &= \tfrac{sin2\alpha_n}{2},\\ \mathrm{Im}\left\{\tfrac{\partial A_n}{\partial\omega}\right\} &= \tfrac{\partial\alpha_n}{\partial\omega}\cos 2\alpha_n,\\ |A_n|^2 &= (1-\cos 2\alpha_n)/2.\end{aligned} \tag{A3.30}$$

Sous l'approximation de faible dispersion $\mathrm{Re}k \sim \mathrm{Re}k_0$, les relations A3.30 conduisent à l'expression suivante de $\Delta_1+\Delta_2$:

$$\Delta_1+\Delta_2 = \frac{1}{k_0^2}\sum_{n}(2n+1)\left(\frac{\partial\alpha_n}{\partial\omega}-\frac{\mathrm{Im}A_n}{\omega}\right), \tag{A3.31}$$

soit l'expression de la vitesse de transport telle que donnée dans les références [6,31] pour le cas des ondes scalaires :

$$v_\mathrm{e} = \frac{c_0^2}{c_\mathrm{ph}}\left[1+\frac{2\pi\eta c_\mathrm{gr}}{k_0^2}\sum_{n}(2n+1)\left(\frac{\partial\alpha_n}{\partial\omega}-\frac{\mathrm{Im}A_n}{\omega}\right)\right]^{-1}. \tag{A3.32}$$

La simplification de la somme $\Delta_1+\Delta_2$ n'autorise plus l'interprétation directe de la contribution du retard de groupe Δ_gr et du retard de diffusion dans cette expression alternative de la vitesse v_e.

Bibliographie

[1] A. Ishimaru. *Wave Propagation and Scattering in Random Media.* Academic Press, 1978.

[2] P. Sheng. *Introduction to wave scattering, localization and mesoscopic phenomena.* Springer Science & Business Media, 2006.

[3] M. Lax. Multiple scattering of waves. *Rev. Mod. Phys.*, **23** :287–310, 1951.

[4] J. H. Page, H. P. Schriemer, A. E. Bailey, and D. A. Weitz. Experimental test of the diffusion approximation for multiply scattered sound. *Phys. Rev. E*, **52** :3106–3114, 1995.

[5] N. Viard and A. Derode. Measurements of ultrasonic diffusivity and transport speed from coda waves in a resonant multiple scattering medium. *J. Acoust. Soc. Am.*, **138** :134–145, 2015.

[6] M. P. van Albada, B. A. van Tiggelen, A. Lagendijk, and A. Tip. Speed of propagation of classical waves in strongly scattering media. *Phys. Rev. Lett.*, **66** :3132–3135, 1991.

[7] L. L. Foldy. The multiple scattering of waves. I. General theory of isotropic scattering by randomly distributed scatterers. *Phys. Rev.*, **67** :107–119, 1945.

[8] A. Lagendijk and B. A. van Tiggelen. Resonant multiple scattering of light. *Phys. Rep.*, **270** :143–215, 1996.

[9] T. Brunet, S. Raffy, B. Mascaro, J. Leng, R. Wunenburger, O. Mondain-Monval, O. Poncelet, and C. Aristégui. Sharp acoustic multipolar-resonances in highly monodisperse emulsions. *App. Phys. Lett.*, **101** :011913, 2012.

[10] B. Mascaro, T. Brunet, O. Poncelet, C. Aristégui, S. Raffy, O. Mondain-Monval, and J. Leng. Impact of polydispersity on multipolar resonant scattering in emulsions. *J. Acoust. Soc. Am.*, **133** :1996–2003, 2013.

[11] P. Lloyd and M. V. Berry. Wave propagation through an assembly of spheres : IV. Relations between different multiple scattering theories. *Proc. Phys. Soc.*, **91** :678, 1967.

[12] A. Derode, V. Mamou, and A. Tourin. Influence of correlations between scatterers on the attenuation of the coherent wave in a random medium. *Phys. Rev. E*, **74** :036606, 2006.

[13] H. P. Schriemer, M. L. Cowan, J. H. Page, P. Sheng, Z. Liu, and D. A. Weitz. Energy velocity of diffusing waves in strongly scattering media. *Phys. Rev. Lett.*, **79** :3166–3169, 1997.

[14] A. Tourin. *Diffusion multiple et renversement du temps des ondes ultrasonores.* Thèse de doctorat, Université Paris VII, 1999.

[15] H. S. Carslaw and J. C. Jaeger. *Conduction of Heat in Solids.* Clarendon Press, 1959.

[16] J. X. Zhu, D. J. Pine, and D. A. Weitz. Internal reflection of diffusive light in random media. *Phys. Rev. A*, **44** :3948–3959, 1991.

[17] H. P. Schriemer. *Ballistic and Diffusive Transport of Acoustic Waves in Random Media.* PhD thesis, University of Manitoba, 1997.

[18] A. Tourin, A. Derode, P. Roux, B. A. van Tiggelen, and M. Fink. Time-dependent coherent backscattering of acoustic waves. *Phys. Rev. Lett.*, **79** :3637–3639, 1997.

[19] C. Aristégui and Y. C. Angel. Effective mass density and stiffness derived from p-wave multiple scattering. *Wave Motion*, **44** :153–164, 2007.

[20] M. L. Cowan, J. H. Page, and P. Sheng. Ultrasonic wave transport in a system of disordered resonant scatterers : Propagating resonant modes and hybridization gaps. *Phys. Rev. B*, **84** :094305, 2011.

[21] H. Hu, A. Strybulevych, J. H. Page, S. E. Skipetrov, and B. A. van Tiggelen. Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network. *Nat. Phys.*, **4** :945–948, 2008.

[22] B. A. van Tiggelen, A. Lagendijk, and D. S. Wiersma. Reflection and transmission of waves near the localization threshold. *Phys. Rev. Lett.*, **84** :4333–4336, 2000.

[23] D. J. McClements and M. J. W. Povey. Scattering of ultrasound by emulsions. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **22** :38, 1989.

[24] L. Brillouin. *Wave Propagation and Group Velocity.* Academic Press, 1960.

[25] H. C. van de Hulst. *Light scattering by small particles.* Dover, 1981.

[26] J. Mobley. The time-domain signature of negative acoustic group velocity in microsphere suspensions. *J. Acoust. Soc. Am.*, **122** :EL8–EL14, 2007.

[27] J. Mobley and R. E. Heithaus. Ultrasonic properties of a suspension of microspheres supporting negative group velocities. *Phys. Rev. Lett.*, **99** :124301, 2007.

[28] E. P. Wigner. Lower limit for the energy derivative of the scattering phase shift. *Phys. Rev.*, **98** :145–147, 1955.

[29] B. A. van Tiggelen. *Multiple scattering and localization of light.* PhD thesis, University of Amsterdam, 1992.

[30] K. Busch, C. M. Soukoulis, and E. N. Economou. Transport velocity in two-dimensional random media. *Phys. Rev. B*, **52** :10834–10840, 1995.

[31] B. A. van Tiggelen, A. Lagendijk, M. P. van Albada, and A. Tip. Speed of light in random media. *Phys. Rev. B*, **45** :12233–12243, 1992.

[32] N. Cherroret, S. E. Skipetrov, and B. A. van Tiggelen. Transverse confinement of waves in three-dimensional random media. *Phys. Rev. E*, **82** :056603, 2010.

[33] J. H. Page. Ultrasonic spectroscopy of complex media. *Proceedings of the International School of Physics Enrico Fermi*, pages 115–31, 2011.

[34] M. Störzer, C. M. Aegerter, and G. Maret. Reduced transport velocity of multiply scattered light due to resonant scattering. *Phys. Rev. E*, **73** :065602, 2006.

[35] J. M. Drake and A. Z. Genack. Observation of nonclassical optical diffusion. *Phys. Rev. Lett.*, **63** :259–262, 1989.

[36] M. L. Cowan. *Strong scattering of ultrasonic waves in fluidized suspensions, wave propagation, spectroscopy techniques and particle dynamics.* PhD thesis, University of Manitoba, 2001.

Chapitre 4

Diffusion multiple dans des émulsions résonantes concentrées

Sommaire

4.1 Propriétés effectives des émulsions concentrées 94

4.1.1 Méthodes d'homogénéisation pour les fortes concentrations 95

4.1.2 Mesure du nombre d'onde effectif pour des émulsions concentrées 98

4.2 Transport de l'intensité moyenne dans des émulsions concentrées . 102

4.2.1 Diffusion anormale de l'intensité moyenne 103

4.2.2 Observation expérimentale d'un régime de sub-diffusion 105

4.2.3 Modélisation de la renormalisation de la diffusion 111

4.3 Conclusion 113

4.4 Perspectives 114

4.4.1 Diffusion multiple dans des émulsions ordonnées 114

4.4.2 Diffusion multiple par des suspensions de billes poreuses 118

A.4 Annexes 119

A.4.1 Calcul du nombre d'onde effectif dans le cadre du modèle de Linton & Martin 119

A.4.2 Calcul des amplitudes modales dans le cadre de la GCPA 120

Bibliographie 122

Les théories de la diffusion multiple des ultrasons dans le cas simple d'émulsions diluées ont été développées dans le chapitre 3. Cependant, les fortes résonances des gouttes d'huile mettent à mal les approximations de diffusion indépendante au-delà d'une fraction volumique de seulement 10 %. Une révision des modèles utilisés est alors nécessaire pour de telles concentrations.

Dans ce chapitre, nous présentons les différents résultats des mesures du champ acoustique dans des émulsions dont la fraction volumique varie de 10 à 40 %. Pour la modélisation des paramètres effectifs des émulsions concentrées, nous aborderons premièrement différents modèles adaptés aux concentrations élevées, basés sur les théories de diffusion multiple (modèles de *Waterman & Truell* [1] et *Lloyd & Berry* [2]) ou la détection des *quasi-modes* de propagation (grâce à l'approche de la fonction spectrale [3, 4]).

La deuxième partie de ce chapitre portera sur l'étude du transport de l'intensité moyenne en milieux concentrés. Lorsque le pouvoir diffusant de l'émulsion augmente, l'approximation de diffusion est en défaut. Il est alors possible d'observer un ralentissement de la diffusion (le transport de l'intensité moyenne est alors sub-diffusif).

Dans certains cas [5], la diffusion est totalement stoppée. On parle alors de localisation forte ou localisation d'Anderson [6]. Dans le but d'observer de tels phénomènes, nous mesurons l'intensité moyenne dans les émulsions en augmentant progressivement la fraction volumique. Les résultats obtenus pourront alors être comparés à une modélisation de cette diffusion « renormalisée » : la *Self-Consistent Theory* [7]. Il s'agit d'une méthode de résolution itérative de l'équation de diffusion permettant de déterminer le coefficient de diffusion D dépendant dans ce cas de l'intensité moyenne.

L'ensemble des résultats de ce chapitre montre alors que le lien entre la modélisation du transport des ultrasons en émulsions diluées et concentrées n'est pas trivial dès que les approximations de diffusion indépendante ne sont plus vérifiées et que de nouveaux phénomènes physiques entrent en jeu.

4.1 Propriétés effectives des émulsions concentrées

Pour la modélisation des paramètres effectifs de l'onde cohérente, il est possible de voir la correction du nombre d'onde k_0, comme un développement en concentration η :

$$k^2 = k_0 + \delta_1 \eta + \delta_2 \eta^2 + ... \tag{4.1}$$

Dans le chapitre précédent, nous avons vu le développement du terme $\delta_1 = 4\pi f(0)$ dans le cadre de l'ISA. Dans ce cas, les termes d'ordres supérieurs étaient négligés dans l'hypothèse de faibles concentrations η. Dans ce chapitre, nous nous intéressons tout d'abord à deux développements du nombre d'onde k à l'ordre 2 en η : les modèles de *Waterman & Truell* [1] et *Lloyd & Berry* [2].

Cependant, lorsque l'on augmente la concentration η, la distance inter-gouttes diminue et la vision de milieu effectif ($\Sigma(\vec{p}, \omega) \approx \Sigma(\omega)$) est de plus mise à mal. Pour tenir compte de ces effets de diffuseurs proches et de dépendance spatiale de l'opérateur de masse Σ, nous étudions également un troisième modèle : la *Generalized Coherent Potential Approximation* (GCPA) [3,4]. Cette modélisation n'est plus une théorie de diffusion multiple mais se base sur la détection des

quasi-modes de propagation dans un milieu effectif à l'aide du calcul de la « fonction spectrale ». Dans cette approche, on ne calcule plus de solutions analytiques du nombre d'onde k, mais on utilise un algorithme numérique optimisant la solution de l'équation de dispersion $k(\omega) = p(\omega)$.

4.1.1 Méthodes d'homogénéisation pour les fortes concentrations

Waterman et Truell [1] considèrent une population de diffuseurs anisotropes et ponctuels pour le calcul de k à l'ordre 2 en concentration. Dans ce cas, l'expression du nombre d'onde devient :

$$k^2 = k_0^2 + 4\pi f(0)\eta + \frac{4\pi^2}{k_0^2}\left(f(0)^2 - f(\pi)^2\right)\eta^2, \tag{4.2}$$

où $f(\pi)$ est la fonction de diffusion de l'onde rétro-diffusée.

Le modèle de Lloyd et Berry [2] tient compte de la corrélation de positions de diffuseurs en introduisant une distance d'exclusion (les diffuseurs ne peuvent pas s'interpénétrer) [a] :

$$k^2 = k_0^2 + 4\pi f(0)\eta - \frac{4\pi^2}{k_0^2}\left(f(0)^2 - f(\pi)^2 + \int_0^\pi \sin^{-1}(\theta/2)\frac{\mathrm{d}f(\theta)^2}{\mathrm{d}\theta}\right)\eta^2 \tag{4.3}$$

Ces deux dernières théories sont comparées au modèle de l'ISA sur la figure 4.1, pour une émulsion contenant $\phi = 10\%$ de gouttes d'huile (fraction volumique pour laquelle nous avons expérimentalement établi la limite de « faible concentration » pour le modèle de l'ISA). Malgré la faible différence entre ces trois théories pour cette fraction volumique $\phi = 10\,\%$, les modèles du deuxième ordre en η ne font qu'amplifier la valeur de l'atténuation et des variations de célérité de phase par rapport aux prédictions de l'ISA. Ces modèles ne semblent donc pas pertinents pour nos observations expérimentales précédentes (fig. 3.5) pour lesquelles l'ISA surestimait déjà l'atténuation à basse fréquence. Les modèles de diffusion multiple basés sur un développement de k en η étudié ici ne sont donc pas appropriés au cas des émulsions résonantes concentrées.

Pour mieux tenir compte des effets de diffusion présents pour de grandes concentrations, nous étudions l'approche GCPA (*Generalized Coherent Potential Approximation*) [3, 4]. Dans cette approche, on considère la diffusion d'une onde par un objet biphasique (une goutte d'huile enrobée d'une couche de gel aqueux) immergé dans un milieu effectif inconnu. Les propriétés de ce milieu inconnu sont calculées grâce à la fonction de diffusion de l'inclusion biphasique. Ainsi, plus la diffusion de l'objet est importante, plus les propriétés du milieu environnant sont renormalisées.

La GCPA est une généralisation de la condition *Coherent Potential Approximation* (CPA) qui correspond à l'annulation de la fonction de diffusion « vers l'avant » $f_p(0) = 0$ d'un diffuseur bicouche immergé dans le milieu effectif pour un nombre d'onde particulier $p = k$. Cette condition équivaut à annuler l'*opérateur de masse* (relatif au milieu homogène équivalent et supposé indépendant de l'espace) et donc à chercher les pôles de la fonction de Green moyenne (1.25) (les modes propagatifs). Malheureusement, pour les fréquences intermédiaires (lorsque la

a. Cette expression ne correspond pas exactement à celle implémentée. Nous utilisons une version simplifiée de ce modèle (détaillée dans l'annexe A.4.1) proposée par Linton et Martin [8] permettant de tenir compte plus simplement des effets de polydispersité (les interactions entre gouttes de taille différente devant être prises en compte ici).

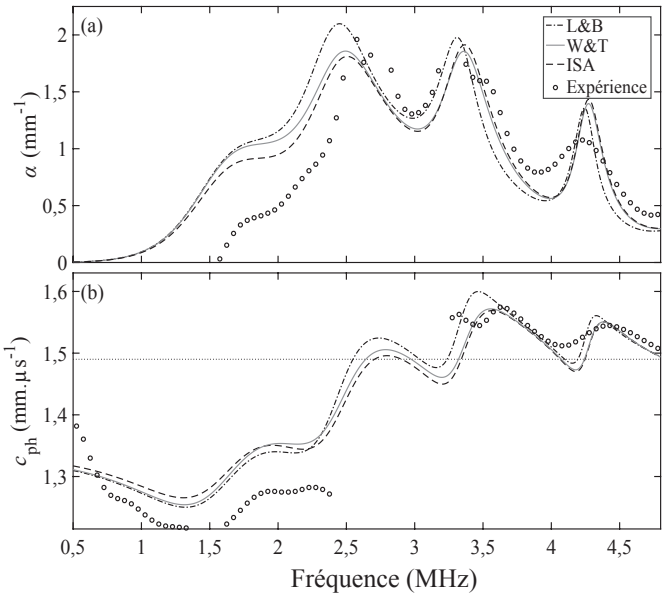

Fig. 4.1 – Atténuation (a) et célérité de phase (b) de l'onde cohérente calculées dans le cas d'une émulsion de fraction volumique $\phi = 10\,\%$ et des gouttes de rayon $< a >= 0,140\,mm$. Le calcul est représenté pour les modèles de Llyod et Berry (L&B) en ligne discontinue mixte, Waterman et Truell (W&T) en ligne grise continue et l'ISA en ligne discontinue. La ligne pointillée représente la célérité du son dans la matrice pure c_0. Les mesures de l'atténuation α et de la célérité de phase c_{ph}, effectuées dans le chapitre précédent, son représentées par les cercles noirs.

longueur d'onde devient comparable à la taille des objets), l'approximation de milieu effectif $\Sigma(p,\omega) \approx \Sigma(\omega)$ est en défaut et il n'existe plus de solutions exactes $p = k$ pouvant satisfaire la CPA. L'idée de la GCPA est alors de chercher les quasi-modes correspondant non plus à l'annulation de la fonction de diffusion $f_p(0)$ mais aux minima de $\mathrm{Im} f_p(0) = 0$.

Pour calculer cette fonction de diffusion particulière, on considère la diffusion d'une onde par un objet biphasique (goutte d'huile de rayon a enrobée d'une couche de gel pur de rayon b) dans un milieu effectif inconnu. Le rayon b est déterminé à partir de la fraction volumique ϕ de gouttes d'huile : $b = a/\phi^{1/3}$. Le système ainsi obtenu est schématisé sur la figure 4.2. p et ρ^v représentent le nombre d'onde et la masse volumique du milieu effectif de même que (k_0, ρ_0^v) et (k_1, ρ_1^v) respectivement pour la couche de gel 0 et la goutte d'huile 1.

Pour calculer la fonction de diffusion de l'ensemble goutte d'huile/couche de gel, il faut résoudre les conditions de continuité des champs de pression et de vitesse aux limites $r = a$ et $r = b$ (de la même manière que pour la goutte isolée vue au chapitre 1). La résolution de ce problème (détaillée dans l'annexe A.4.2) conduit à l'expression de l'amplitude modale de l'onde diffusée (dans le milieu effectif) A_n. À partir de cette amplitude modale, nous calculons la fonction de diffusion de l'onde diffusée vers l'avant par l'inclusion bicouche (relativement au milieu effectif) de la manière suivante :

$$f_p(0) = \frac{1}{\mathrm{j}p} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) A_n. \tag{4.4}$$

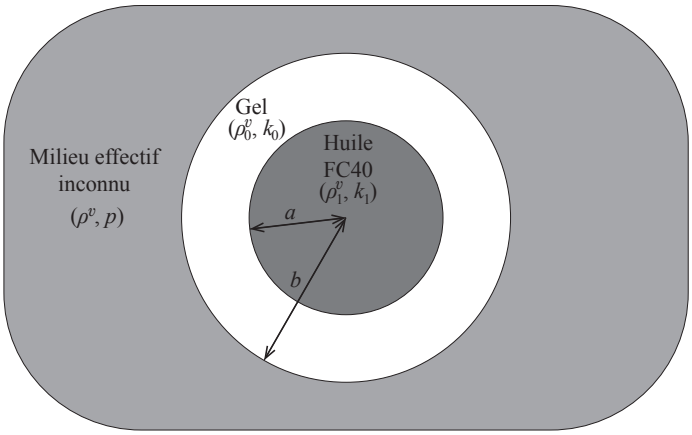

Fig. 4.2 – Schématisation du système étudié pour le calcul de la fonction de diffusion dans le cadre de la GCPA.

Cette fonction de diffusion conduit à l'expression de la *fonction spectrale* S [3] :

$$S(\omega, p) = \mathrm{Im}\left\{\frac{1}{\Sigma_p(\omega)}\right\} \approx -\mathrm{Im}\left\{\frac{1}{4\pi\eta f_p(0)}\right\}, \tag{4.5}$$

où $\Sigma_p(\omega)$ est l'*opérateur de masse* relatif au milieu effectif. La fonction spectrale $S(\omega, p)$ est calculée pour plusieurs valeurs du nombre d'onde p et de la pulsation ω. L'algorithme parcourt la matrice obtenue pour chaque ω suivant p afin de détecter les pics de la fonction spectrale ou les quasi-modes de propagation. Pour une valeur de la pulsation ω, lorsqu'un pic de la fonction spectrale $S(\omega, p)$ est détecté, la valeur de $p(\omega)$ correspondant donne la solution de l'équation de dispersion $k(\omega) = p(\omega)$. Nous verrons que dans certains cas, l'algorithme détecte plusieurs pics associés à une seule pulsation ω. Cet aspect n'est *a priori* pas lié à la propagation de deux modes différents [9,10], est n'est qu'un *artefact* numérique se manifestant pour de faibles valeurs du nombre d'onde p. Il faut alors prendre certaines précautions avec ces modes artificiels qui masquent parfois les modes physiques qui peuvent être très atténués.

La fonction spectrale pour une émulsion de fraction volumique $\phi = 10\,\%$ et de rayon moyen $< a >= 0,170\,\mathrm{mm}$ est représentée sur la figure 4.3a.

La courbe de dispersion ainsi obtenue (les solutions $k(\omega) = p(\omega)$ en ligne noire sur la figure 4.3a) présente des discontinuités non physiques (autour de $f = 2,5\,\mathrm{MHz}$ par exemple). Autour des résonances la détection des modes reste compliquée à cause de la forte dispersion et des *artefacts* présents aux grandes longueurs d'onde ($p \sim 1\mathrm{mm}^{-1}$). Ces discontinuités ne correspondent ni à des effets de périodicité (la structure étant désordonnée) ni à des effets de bandes interdites d'hybridation [10] (la structure de l'échantillon étant entièrement fluide, il est peu probable d'observer des interactions entre deux modes de propagation différents). Pour outrepasser ce problème numérique, nous ajoutons une absorption non physique dans les gouttes d'huile : $\alpha_1 = 0,04k_1'$. Cette absorption permet de réduire légèrement le facteur de qualité des pics artificiels (masquant les modes réels aux fréquences où ceux-ci sont très atténués) et ainsi obtenir une courbe de dispersion bien définie sur toute la gamme de fréquence en « lissant » les pics artificiels aux grandes longueurs d'onde ($p < 5\,\mathrm{mm}^{-1}$ sur la figure 4.3b). De la même manière que pour l'ISA, il est possible d'introduire les effets de polydispersité en calculant $f_p(0)$ pour

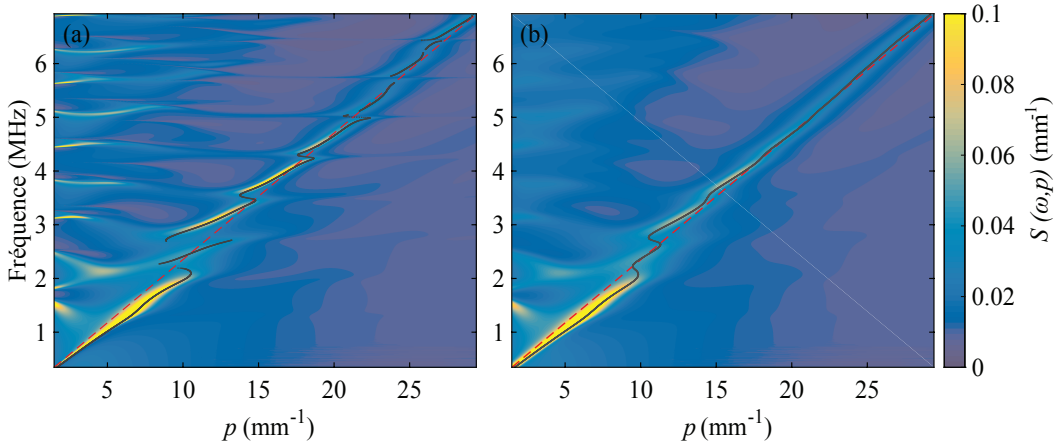

Fig. 4.3 – Fonctions spectrales pour deux émulsions de fraction volumique $\phi = 10\,\%$ et de rayon moyen $< a >= 0,170\,mm$. Les calculs sont réalisés pour des fluides (a) non absorbants et (b) avec une légère absorption ($\alpha_1 = 0,04k_1'$) dans la goutte d'huile. Les pointillés noirs représentent les pics détectés de la fonction spectrale. Le tracé rouge discontinu représente la courbe de dispersion dans le gel pur.

plusieurs rayons a puis en effectuant la moyenne pondérée par η_a. Cependant l'implémentation de la distribution en taille mesurée ne permet pas de lisser suffisamment la fonction spectrale pour détecter les quasi-modes aux résonances.

Enfin, ces résultats montrent l'intérêt de la fonction spectrale par rapport à la CPA classique (valable sur la figure 4.3 pour $p < 5\text{mm}^{-1}$ et $f < 1\text{MHz}$). En effet, lorsque p et ω augmentent, la valeur de la fonction spectrale diminue ($f_p \neq 0$) et la CPA est en défaut (les modes ne sont plus purement propagatifs mais évanescents).

4.1.2 Mesure du nombre d'onde effectif pour des émulsions concentrées

À partir de l'approche de la fonction spectrale, nous pouvons extraire la célérité de phase c_{ph} de l'onde cohérente et son atténuation α (à partir de la fonction de diffusion $f_{p=k}(0)$ et du théorème optique : $\ell_e = 1/2\alpha = 4\pi \text{Im} f_k(0)/k$). Ces deux quantités sont représentées sur la figure 4.4 pour l'émulsion de fraction volumique $\phi = 10\%$ étudiée dans le chapitre précédent, pour laquelle l'ISA était en défaut (fig. 4.1). Nous ne calculons pas la célérité de groupe avec cette méthode car celle-ci est difficile à estimer expérimentalement pour les fortes concentrations (fig. 3.5). En effet, pour ces échantillons, l'atténuation et la dispersion de l'onde cohérente sont trop fortes aux fréquences de résonance pour détecter des impulsions gaussiennes bien définies.

Sur la confrontation 4.4 entre les modélisations (GCPA, ISA) et les expériences, on note premièrement une différence significative de la GCPA avec les modèles de diffusion multiple étudiés précédemment. Alors que les développements de k à l'ordre supérieur en η (W&T et L&B) surestiment l'atténuation par rapport à l'ISA, la GCPA, au contraire, prévoit une atténuation plus faible. Bien que l'accord de ces différents modèles avec les expériences ne soit pas parfait, la GCPA décrit mieux le comportement basse fréquence ($f < 2,5\,\text{MHz}$) de α et c_{ph} observé expérimentalement.

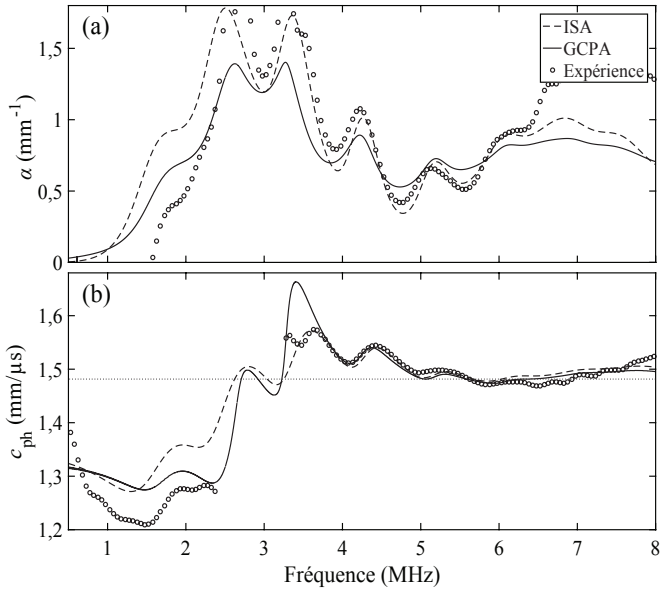

Fig. 4.4 – Atténuation (a) et célérité de phase (b) de l'onde cohérente calculées avec l'ISA (en ligne discontinue) et avec la GCPA (en ligne continue). La ligne pointillée représente la célérité du son dans la matrice pure c_0. Ces calculs sont effectués pour une émulsion de fraction volumique $\phi = 10\%$ et des gouttes de rayon $< a >= 0,140\,mm$ et comparés aux mesures (o) présentées sur la figure 3.5.

Pour confirmer l'échec de l'ISA et la performance de la GCPA, nous effectuons maintenant une mesure de l'onde cohérente sur un échantillon avec une grande fraction volumique $\phi = 25\%$. En conservant le même dispositif acoustique que pour les émulsions diluées, nous caractérisons l'onde s'étant propagée à travers 2 mm de ce nouvel échantillon (fig. 4.5).

La comparaison entre le signal de référence (fig. 4.5a) et l'estimation de l'onde cohérente (fig. 4.5b) révèle le caractère fortement dispersif de ce nouvel échantillon. Ces effets de dispersion provoquent un étalement temporel du signal transmis qui masque l'écho entre les deux transducteurs (fig. 4.5b). En effet sur le signal de référence, le temps d'arrivée de l'écho se situe autour de $t_{\text{echo}} \sim 4\,\mu$s (fig. 4.5a) avant les dernières impulsions de l'onde cohérente situées autour de $5\,\mu$s (fig. 4.5b). Cependant nous pouvons raisonnablement affirmer que la forte atténuation ($\alpha \sim 1\,\text{mm}^{-1}$) pour une telle fraction volumique (25 %) est suffisante pour négliger les effets d'un écho résiduel cohérent entre les deux transducteurs espacés de $z = 2\,$mm. Ces effets se réduisent à de faibles oscillations aux basses fréquences du spectre de l'onde cohérente (f<1 MHz fig. 4.5c) où l'atténuation α est suffisamment faible pour conserver la composante basse fréquence de l'écho.

De la même manière que pour les échantillons dilués précédents, nous mesurons l'atténuation α et la célérité c_{ph} grâce au rapport entre le spectre du signal de référence et celui de l'estimation de l'onde cohérente (fig. 4.5c). Le résultat de ces mesures est représenté sur la figure 4.6 et comparé aux prédictions des modèles de L&B, de l'ISA et de la GCPA [b]. La forte atténuation

b. Le modèle de W&T présenté plus tôt dans ce chapitre prédit des comportements intermédiaires entre les modélisations de L&B et de l'ISA. Celui-ci ne présente donc pas d'intérêt manifeste et sera abandonné pour des raisons de clarté dans la suite de cette étude

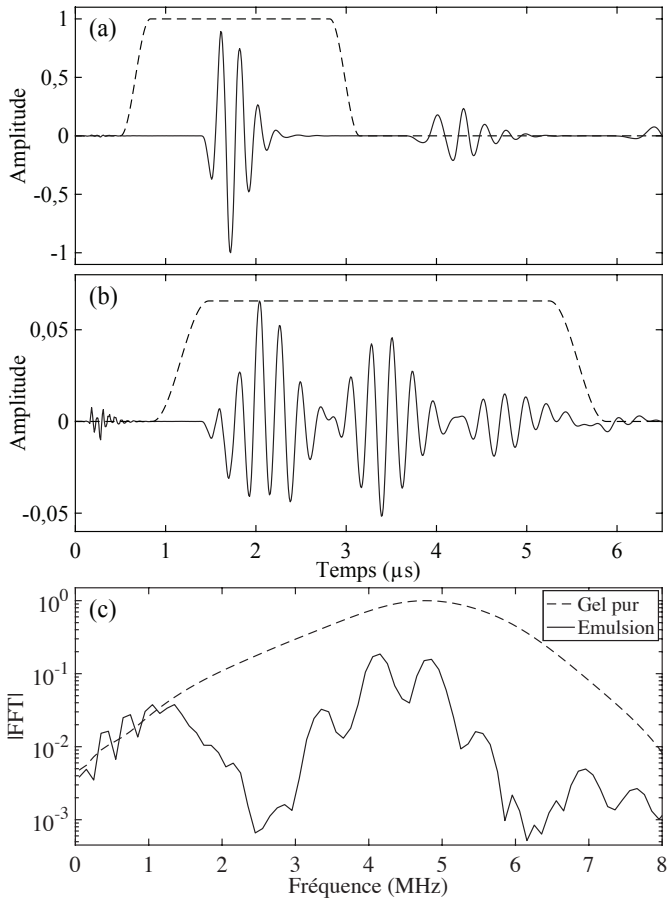

Fig. 4.5 – (a) Signal de référence s'étant propagé à travers 2 mm de gel pur et (b) estimation de l'onde cohérente pour la même distance de propagation à travers l'émulsion de fraction volumique $\phi = 25\,\%$. Les lignes discontinues représentent les fenêtres rectangulaires apodisées appliquées à ces signaux. (c) Module des transformées de Fourier (en échelle logarithmique) pour le signal de référence (en ligne discontinue) et l'estimation de l'onde cohérente (en trait plein).

autour de la résonance dipolaire $f \sim 2,5\,\mathrm{MHz}$ (fig. 4.6a) rend les mesures contestables autour de cette fréquence. En effet, même avec le moyennage spatial sur la surface du transducteur, un champ incohérent résiduel peut polluer les mesures pour les résonances les plus fortes où le libre parcours moyen d'extinction est très petit ($\ell_{\mathrm{ext}} \sim 0,18\,\mathrm{mm}$). Cependant, le niveau global de l'atténuation α (fig. 4.6a) montre l'échec des modèles de diffusion multiple classiques (ISA et L&B) pour ces émulsions concentrées. De plus, bien que la phase de l'onde cohérente ne soit pas bien définie autour de 3 MHz (fig. 4.6b) les mesures de c_{ph} confirment la présence de la propagation « lente » à basse fréquence uniquement prédite par la GCPA.

Ce mode « lent » est facilement observable sur les courbes de dispersion de la figure 4.7. Sur cette figure, les quasi-modes déterminés grâce au calcul de la fonction spectrale sont comparés aux courbes de dispersion expérimentale et calculée grâce à l'ISA. La comparaison avec la fonction spectrale explicite la raison de la discontinuité entre les deux branches de la courbe de dispersion autour de 2,5 MHz. Autour de cette gamme de fréquence, les résonances sont très fortes et les quasi-modes très atténués. La phase de l'onde cohérente est alors difficile à

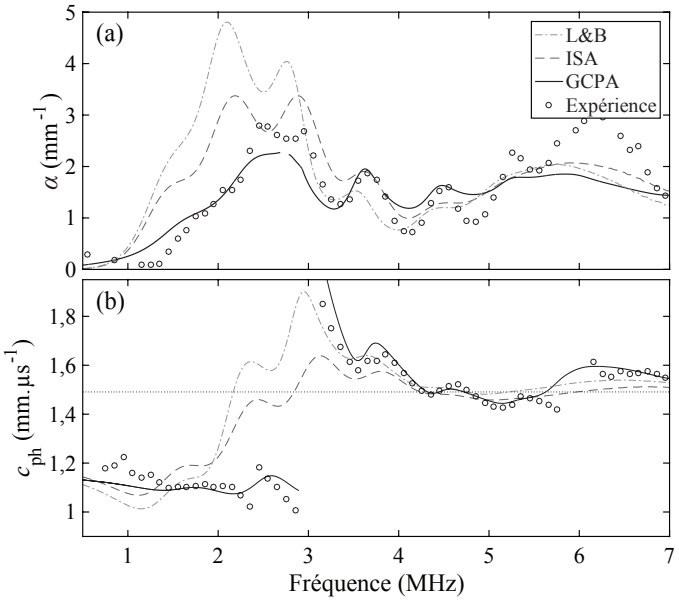

Fig. 4.6 – Mesures de la célérité de phase (a) et de l'atténuation (b) de l'onde cohérente comparées aux prédictions l'ISA (en ligne discontinue), de L&B (en ligne discontinue mixte) et de la GCPA (en ligne continue). La ligne pointillée représente la célérité du son dans la matrice pure c_0. Les calculs sont effectués pour une émulsion de fraction volumique $\phi = 25\,\%$ avec une absorption dans l'huile fluorée $\alpha_1 = 0,04.k_1'$ et le rayon des gouttes $< a >= 0,160\,mm$.

déterminer numériquement et expérimentalement. Pour déterminer ces modes, il faut introduire artificiellement une absorption dans la goutte d'huile déraisonnablement élevée ($\alpha_1 \sim 0,25k_1'$ soit, à 2 MHz, une valeur 650 fois plus grande que l'absorption de l'huile fluorée mesurée dans la section 2.1.1). Dans ce cas, les résonances deviennent moins fortes et les modes sont plus faciles à déterminer mais ne correspondent plus aux résultats expérimentaux (fig. 4.8a).

Cet ajout d'absorption dans la goutte d'huile n'est qu'une astuce numérique et ne correspond pas à la réalité physique (si nous prenons en compte l'absorption réelle de l'huile fluorée, les *artefacts* aux faibles p ne sont pas assez atténués et plusieurs modes de propagation coexistent (fig. 4.8b).

La GCPA utilisée ici nous permet juste de confirmer l'échec de modélisations « classiques » telles que l'ISA et L&B pour des systèmes concentrés et fortement résonants où le couplage entre diffuseurs devient important. Les calculs de la fonction spectrale sont donc à améliorer pour l'utilisation de ce modèle en vue de réelles prédictions des propriétés effectives des émulsions concentrées.

Pour améliorer ces calculs, il est possible de modifier l'objet diffusant, en calculant par exemple, la fonction de diffusion d'un ensemble de deux gouttes (ou plus) immergées dans une sphère de gel pur [3]. Le calcul de la fonction de diffusion devient plus complexe dans ce cas mais les interactions entre diffuseurs proches sont mieux modélisées. Il existe également une autre méthode de calcul des propriétés effectives basées sur l'homogénéisation de la densité d'énergie [4]. Dans ce cas, les modes recherchés sont tels que la diffusion par la sphère enrobée

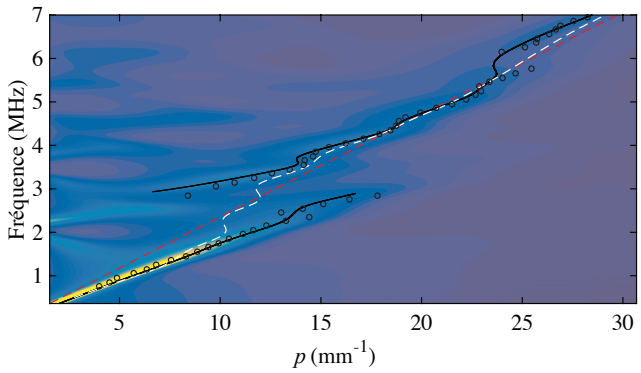

Fig. 4.7 – Comparaison entre l'expérience et le calcul de la fonction spectrale dont les paramètres d'entrée proviennent des mesures de la figure 4.6 (avec une émulsion de fraction volumique $\phi = 25\,\%$, une absorption dans l'huile fluorée $\alpha_1 = 0,04.k'_1$ et un rayon de gouttes $< a >= 0,160\,mm$). La ligne noire représente les quasi-modes détectés et est comparée à la courbe de dispersion obtenue expérimentalement (en cercles noirs) à partir de la mesure de la célérité de phase c_{ph} (fig. 4.6b). La ligne rouge discontinue représente la courbe de dispersion dans la matrice pure et la ligne blanche discontinue représente les prédictions de l'ISA.

n'induit pas de retard de l'onde diffusée par rapport au milieu effectif. Le calcul de la vitesse de transport est alors direct dans ce cas.

4.2 Transport de l'intensité moyenne dans des émulsions concentrées

Pour la description du transport de l'intensité moyenne, nous avons vu au chapitre précédent que l'approximation de diffusion est performante pour modéliser le comportement des ondes multiplement diffusées dans des systèmes dilués. Aux fréquences de résonance des gouttes, la diffusion est plus lente à cause de la faible valeur de la vitesse de transport (l'onde diffusée est retardée par le contraste de célérités du son entre la goutte d'huile et le gel aqueux). Les coefficients de diffusion mesurés à ces fréquences sont donc très faibles mais l'approximation de diffusion reste valable dans les émulsions diluées. Dans cette partie, nous étudions le cas où l'approximation de transport diffusif de l'intensité moyenne dans les émulsions concentrées est en défaut. Dans ce cas, le transport diffusif est très lent (la valeur de D est très faible) à cause de la forte de diffusion de l'échantillon ($\ell_e \sim 0,2\,\text{mm} = \lambda_0/3$). De cette façon, pour certaines concentrations, nous obtenons $k'\ell_e \sim 1$ près des résonances et le transport des ondes n'est plus totalement diffusif [11]. Les interactions entre les ondes diffusées (négligées dans l'approximation de diffusion) conduisent à un ralentissement de la diffusion de l'intensité au cours du temps et on parle alors de sub-diffusion voire de localisation forte (aussi appelée localisation d'Anderson) si le transport de l'intensité est « figé » dans le temps et l'espace [5].

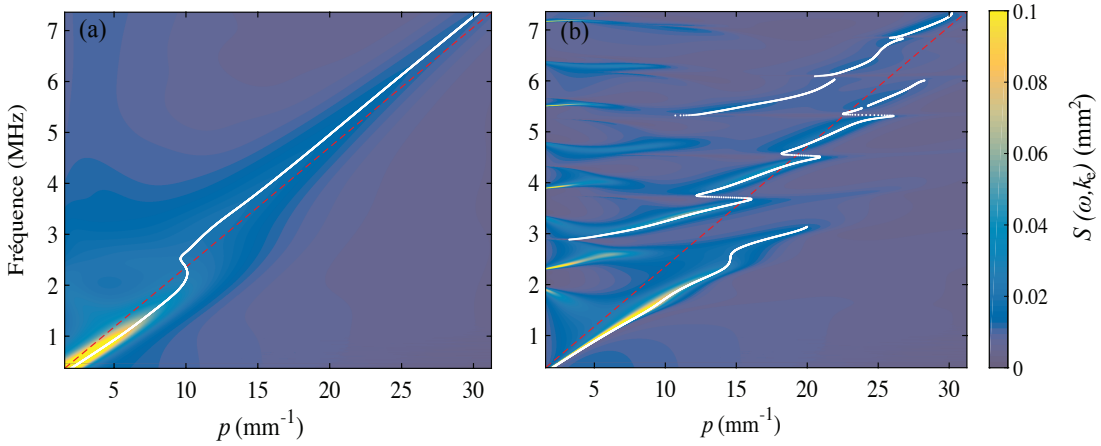

Fig. 4.8 – Résultat du calcul de la fonction spectrale pour l'émulsion de fraction volumique $\phi = 25\,\%$ et de rayon des gouttes $< a >= 0,160\,mm$. Les lignes blanches représentent les quasi-modes détectés pour une valeur de l'absorption α_1 (a) suffisamment grande pour supprimer les fréquences interdites ($\alpha_1 = 0,25.k'_1$) (b) pour l'absorption réelle de l'huile fluorée (caractérisée dans le chapitre 2).

4.2.1 Diffusion anormale de l'intensité moyenne

Le phénomène de localisation d'Anderson est largement étudié depuis plus d'un demi-siècle [4, 12, 13]. En 1958, P. Anderson propose une théorie décrivant la transition métal/isolant dans les milieux désordonnés (la conductivité de certains métaux, contenant un seuil critique d'impuretés, devient brusquement nulle) [6]. 25 ans plus tard, S. John suggère que de la même manière, les ondes classiques peuvent être localisées [14]. L'étude de ce phénomène devient alors beaucoup plus accessible expérimentalement grâce à l'utilisation d'ondes électromagnétiques ou élastiques. En effet, avec les ondes classiques les expériences peuvent être réalisées à température ambiante (les expériences avec des particules quantiques nécessitant des températures très basses) et les dispositifs expérimentaux sont « à taille humaine » (de l'ordre du cm). Depuis, alors que la localisation forte à trois dimensions de la lumière reste toujours inobservée [15] (uniquement dans des réseaux unidimensionnels et bidimensionnels [16]), plusieurs études ont montré la localisation des ondes élastiques à deux [17, 18] et trois dimensions [5]. Les ondes élastiques et acoustiques sont intéressantes pour sonder les effets de localisation d'Anderson car, contrairement aux dispositifs optiques, les dispositifs ultrasonores donnent simultanément accès à la phase spatiale et temporelle des signaux transmis (l'accès à l'information transportée par l'onde est donc direct). Les émulsions résonantes pourraient être très intéressantes pour l'étude d'un tel phénomène grâce à leur nature faiblement absorbante et fortement résonante. De plus, le caractère *in situ* de nos expériences est séduisant pour la vérification des théories basées sur une variation spatiale du coefficient de diffusion $D(\rho, z)$ en régime sub-diffusif dans les milieux finis [7]. Cependant, ce phénomène de localisation des ondes reste très difficile à observer pour les ondes classiques en particulier à cause de sa similarité des effets d'absorption. En effet, il existe plusieurs manières d'observer les signatures de la localisation d'Anderson ou plus largement du transport sub-diffusif, potentiellement adaptables aux expériences dans les émulsions

résonantes [19]. Dans le paragraphe suivant, nous détaillons les méthodes les plus utilisées pour l'observation des signatures de la localisation des ondes classiques.

- Certaines études ont présenté la transmission moyenne T de la lumière en régime monochromatique en fonction de l'épaisseur L d'un échantillon de poudre d'arséniure de gallium [20]. En régime diffusif, la transmission décroît alors linéairement avec L alors qu'en régime localisé, les auteurs observent une décroissance exponentielle de la transmission $T(L) \propto \exp(-L/\xi)$ (avec ξ la longueur caractéristique de localisation). Malheureusement des controverses quant au rôle de l'absorption dans la décroissance de la transmission ont rendu ces résultats contestables [21].

- Toujours dans le cadre de la diffusion des ondes lumineuses, des expériences en régime dynamique dans des échantillons de poudre de TiO_2 ont montré la décroissance temporelle non exponentielle de l'intensité transmise (les courbes de temps de vol) [22]. Cette décroissance peut être interprétée comme un ralentissement du transport diffusif au cours du temps dû au confinement de l'intensité dans le milieu hétérogène. Cependant, cette méthode ne constitue qu'une preuve indirecte : de la même manière que pour le régime diffusif, l'ajustement des modélisations de la sub-diffusion avec les courbes de temps de vol mesurées présente trop de paramètres libres pour quantifier avec précision les grandeurs caractéristiques de la localisation d'Anderson.

- Le confinement des ondes provenant des effets d'interférence entre les différents chemins de diffusion, les fluctuations de l'intensité transmises deviennent très grandes en régime localisé (la distance de corrélation du champ transmis devient comparable à la longueur d'onde). Le régime localisé peut alors être caractérisé par des méthodes statistiques appliquées à la « figure de speckle » transmise. Cette méthode a notamment été utilisée pour la caractérisation du transport des ondes optiques dans des réseaux quasi-unidimensionnels [23].

- La signature la plus directe du régime localisé reste cependant la caractérisation du confinement transverse du halo diffusif. Celle-ci consiste à observer le ralentissement de l'expansion latérale $w^2(t)$ du halo diffusif (les effets de localisation « piégeant » l'énergie au voisinage de la source). De la même manière que pour le régime diffusif, cette méthode est indépendante des effets d'absorption et de réflexion et fournit à ce jour la preuve expérimentale la plus directe de la localisation d'Anderson des ondes classiques à trois dimensions [5].

C'est cette dernière méthode que nous utilisons dans le cas des émulsions résonantes car celle-ci reste la technique la plus robuste de caractérisation du régime sub-diffusif ou localisé. De plus, le dispositif expérimental ne nécessite pas de modification et reste le même que pour la mesure du coefficient de diffusion (chap. 3).

En régime sub-diffusif, le paramètre $w^2(t)$ n'évolue plus de façon linéaire (la diffusion est ralentie aux temps longs) et tend vers une valeur constante proportionnelle à la distance caractéristique de localisation ξ : $w^2(t \to \infty) \propto L\xi$ [11]. Ainsi, lorsque le seuil de localisation est

atteint ($\xi \sim L$), le paramètre $w^2(t)$ tend à saturer vers L^2 et la progression du halo diffusif est stoppée : l'énergie reste localisée au voisinage de la source. Ainsi les résultats des mesures de l'extension $w^2(t)$ seront normalisés par L^2 dans cette partie. De plus, nous avons vu qu'en régime purement diffusif, l'extension latérale du halo $w^2(t)$ est indépendante de la distance transverse ρ. Cette observation n'est vraie que si le halo diffusif est spatialement représenté par une fonction gaussienne (nous avons défini $w^2(t)$ au chapitre 2 tel que : $R(\rho, t) = \exp(-\rho^2/w^2(t))$). En régime sub-diffusif, le profil spatial du halo devient exponentiel aux temps longs dans certains cas (si $L \sim \xi$), ainsi la largeur $w_\rho^2(t)$ devient également dépendante de la distance ρ. Pour les ondes élastiques, ces observations (fig. 4.9) ont été réalisées dans le groupe de J. H. Page dans des réseaux de billes d'aluminium frittées [5, 24].

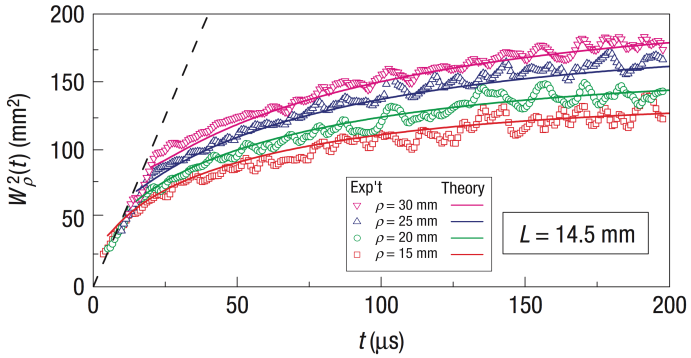

Fig. 4.9 – Mesures (réalisées par le groupe de J. H. Page) de la saturation de l'évolution transverse du halo diffusif démontrant des effets de localisation d'Anderson des ondes élastiques dans un réseau tridimensionnel désordonné de billes d'aluminium frittées (extrait de [5]).

Ces mesures constituent la première observation de la localisation d'Anderson des ondes élastiques à trois dimensions (d'autres types de caractérisation ont suivi mais toujours dans le même système [25, 26]). Cependant, bien que le confinement transverse de l'énergie constitue la signature la plus directe de la localisation d'Anderson, cette méthode est à utiliser avec précaution car l'évolution du halo diffusif peut être affectée par d'autres phénomènes. En effet, ce type de mesure a également été effectué pour le transport d'ondes lumineuses dans des poudres de TiO_2. Les observations de la saturation de l'extension $w^2(t)$ ont d'abord été interprétées comme une signature de localisation d'Anderson de la lumière [27] avant d'être attribuées à des effets de fluorescence [28]. Dans le cas des émulsions résonantes, nous verrons qu'un filtre numérique inadapté conduit potentiellement aux mêmes confusions.

4.2.2 Observation expérimentale d'un régime de sub-diffusion

Les premières caractérisations d'émulsions concentrées ont rapidement montré des confinements de l'intensité moyenne similaires aux comportements provoqués par la localisation d'Anderson. En effet, la figure 4.10 présente des mesures de l'intensité moyenne dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 30\%$. Cette figure représente le rapport $R(\rho, t) = U(\rho, t)/U(0, t)$ (en échelle logarithmique) mesuré dans le plan transverse (ρ, θ) ou (x, y) de profondeur $z = 12\,\text{mm}$

à l'intérieur de l'échantillon (d'épaisseur $L = 13\,\text{mm}$) pour deux fréquences $f = 1,5\,\text{MHz}$ (figs. 4.10a, b et c) et $f = 2,5\,\text{MHz}$ (figs. 4.10d, e et f) avec une bande-passante de filtrage de $df = 100\,\text{kHz}$. À partir des simulations (GCPA) des paramètres effectifs, un comportement purement diffusif est attendu pour $f = 1{,}5$ MHz ($k'\ell_e \approx 6$) et plus proche du régime localisé pour $f = 2{,}5$ MHz ($k'\ell_e \approx 2,2$). C'est effectivement ce qu'il semble se produire avec une expansion rapide du halo diffusif à 1,5 MHz et un confinement de l'intensité autour de la source à $2,5\,\text{MHz}$ (sur les figures 4.10 d, e et f, le diamètre du halo diffusif n'évolue manifestement pas entre 30 et 80 μs).

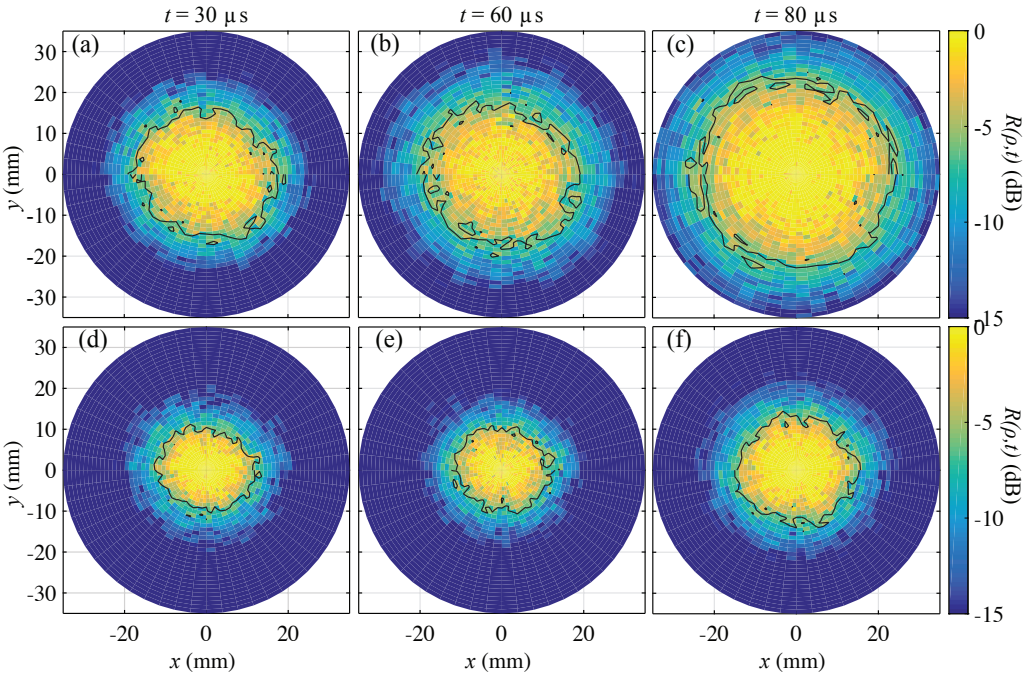

Fig. 4.10 – Mesure du rapport $R(\rho,t) = U(\rho,t)/U(0,t)$ (représenté en échelle logarithmique) dans le plan transverse à $z = 12\,mm$ dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 30\,\%$. Les lignes noires continues représentent la limite $R(\rho,t) = -6\,dB$. Les mesures sont présentées pour trois instants $t = 30, 60$ et $80\,\mu s$ et deux fréquences : $f = 1,5\,MHz$ (a, b et c) et $f = 2,5\,MHz$ (d, e et f).

Bien que cette mesure illustre de manière simple et intuitive le confinement de l'intensité moyenne au voisinage de la source, elle n'est en aucun cas révélatrice d'effets de localisation. Une mesure de l'extension $w^2(t)$ du halo diffusif est nécessaire pour comprendre s'il s'agit effectivement d'effets de localisation forte et pour déterminer la longueur ξ.

La caractérisation de $w^2(t)$ alors effectuée pour $f = 2,5\,\text{MHz}$ dans cet échantillon est représentée sur la figure 4.11a. Cette mesure présente effectivement une croissance du halo diffusif aux temps courts ($t < 30\mu s$) avant une brusque saturation du halo diffusif entre $t = 30$ et $100\,\mu s$. Dans cette gamme de temps, nous observons $w^2(t)/L^2 < 1$ ce qui signifie que la longueur de localisation est *a priori* plus petite que l'épaisseur L de l'échantillon. De plus, lorsque l'extension $w^2(t)$ atteint un « plateau », celle-ci devient dépendante de la distance ρ (ce qui semble indiquer

un profil spatial exponentiel du halo diffusif). En effet, la représentation du halo diffusif (fig. 4.11b) à $t = 70\,\mu$s est en parfait accord avec un ajustement exponentiel $R(\rho) = e^{-|\rho|/w^2(t)}$.

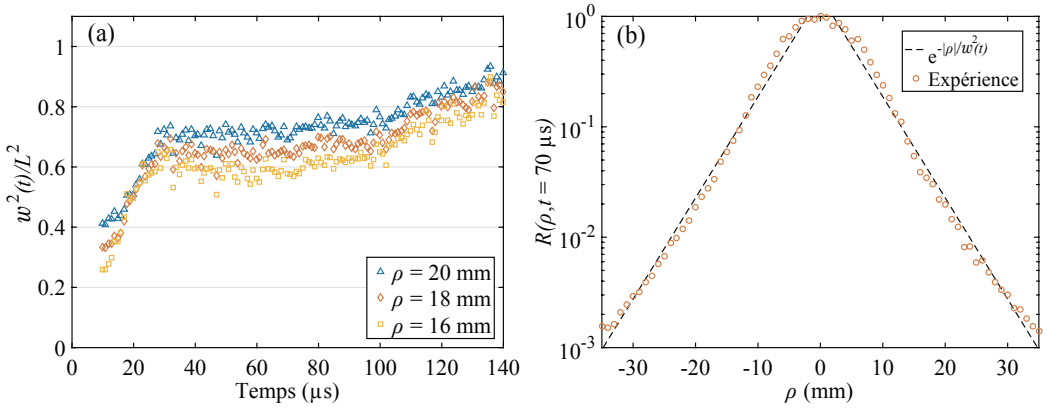

Fig. 4.11 – (a) Extension latérale $w^2(t)$ du halo diffusif (normalisée par L^2) mesurée pour une fréquence $f = 2,5$ MHz dans l'émulsion de fraction volumique $\phi = 30\,\%$. (b) Profil spatial du halo diffusif correspondant à l'instant $t = 70\,\mu$s. La ligne noire discontinue représente l'ajustement exponentiel $R(\rho) = e^{-|\rho|/w^2(t)}$ utilisé.

Ainsi, tout porte à croire que nous sommes en présence d'effets de localisation forte dans cet échantillon. Cependant, en examinant de plus près le comportement de $w^2(t)$ pour des temps supérieurs à $100\,\mu$s, on s'aperçoit que la croissance du halo reprend aux temps longs. Cet effet fut imputé dans un premier temps à l'écho acoustique entre le capteur et l'échantillon (arrivant exactement à $t = 100\mu$s). Les signaux ne sont donc pas enregistrés pour des temps supérieurs à $140\,\mu$s. Si un tel écho apparaît, il a pour effet de réinjecter de l'énergie dans le système et donc de modifier le comportement du halo diffusif initialement créé. Cependant, la rupture d'impédance entre l'émulsion et l'eau (contenue dans la ligne à retard liant l'émetteur à l'échantillon, fig. 2.15) est très faible et la lame d'air placée à l'entrée de l'échantillon réduirait très fortement l'effet de cet écho éventuel. De plus, un tel écho n'a jamais été observé dans les échantillons dilués où le rapport signal sur bruit est plus grand que dans les échantillons concentrés.

Cet *artefact* est en fait dû à la nature du filtre numérique (exponentiel) qui n'était pas approprié pour traiter les *codas* transmises. Le filtre numérique initialement utilisé pour ces expériences est à réponse impulsionnelle finie et sa décroissance exponentielle autour de sa fréquence centrale est moins rapide qu'un filtre gaussien. Ainsi, bien que le filtre utilisé soit relativement sélectif ($df = 100$kHz), il atténue fortement mais ne coupe pas les basses fréquences. Le système étant fortement résonant, après filtrage, les composantes basses fréquences du signal transmis sont toujours présentes. Le comportement observé, s'apparentant à de la localisation, n'est en fait qu'un mélange de deux processus diffusifs : une croissance rapide aux temps courts ($t < 30\,\mu$s) du halo diffusif liée aux basses fréquences résiduelles (de coefficient de diffusion D élevé) suivie ($t > 100\,\mu$s) d'une diffusion plus lente correspondant aux fréquences d'intérêt (autour de la fréquence centrale du filtre). Pour les temps intermédiaires ($t \in [30, 100]$ μs) la saturation de $w^2(t)$ est due à la « transition » entre les deux régimes diffusifs. Par la suite, les filtres numériques uti-

lisés ont un profil gaussien et sont plus sélectifs ($df \in [15, 50]$ kHz) permettant une atténuation plus rapide des composantes fréquentielles autour de la fréquence centrale du filtre.

Les premières observations réelles de transport sub-diffusif dans les émulsions résonantes ont été réalisées pour un échantillon de fraction volumique $\phi = 30\%$ et d'épaisseur $L = 12\,\text{mm}$ (fig. 4.12) [29]. Le libre parcours moyen d'extinction de cet échantillon mesuré est $\ell_{\text{ext}} = 0,23\,\text{mm}(\approx \ell_{\text{e}})$ pour une fréquence $f = 2,5\,\text{MHz}$ soit $k'\ell_{\text{e}} \approx 2,2$. À première vue, le régime de localisation forte n'est pas atteint dans ce cas car aucune saturation de $w^2(t)$ n'est observée et $w^2(t)/L^2 > 1$ dans la gamme de temps considérée. Cependant la comparaison de cette mesure avec un exemple de diffusion pure (une évolution parfaitement linéaire de $w^2(t)$) montre qu'ici le transport de l'intensité moyenne est légèrement ralenti (pour $t > 500\,\mu\text{s}$).

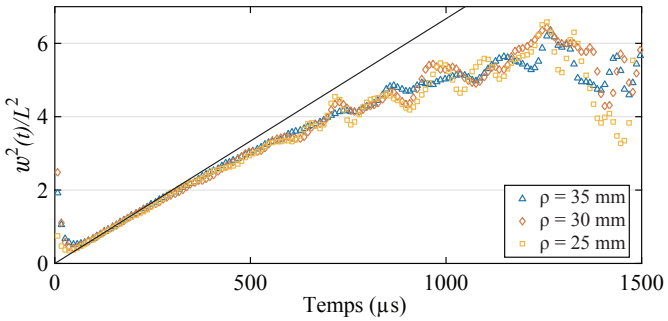

Fig. 4.12 – Mesure de $w^2(t)$ dans l'échantillon d'épaisseur $L = 12\,mm$ et de fraction volumique $\phi = 30\,\%$ pour une fréquence $f = 2,5\,MHz$ (correspondant à $k'\ell_e \approx 2,2$). La ligne noire représente un exemple de comportement purement diffusif avec $D = 0,24\,mm^2.\mu s^{-1}$.

La limite en fraction volumique du dispositif d'injection étant $\phi = 40\,\%$, il est raisonnable de penser qu'en augmentant la concentration en gouttes d'huile, une sub-diffusion plus marquée peut être obtenue. Cette mesure pour $\phi = 40\,\%$ est représentée sur la figure 4.13. Les acquisitions sont réalisées sur une gamme de temps réduite ($t < 600\,\mu\text{s}$) car la forte absorption pour cet échantillon concentré provoque une décroissance rapide des *codas* transmises.

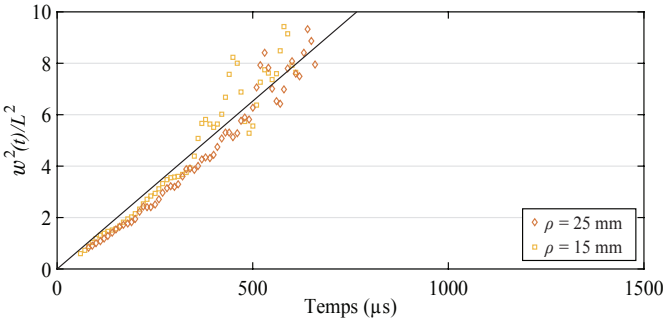

Fig. 4.13 – Mesure de $w^2(t)$ dans l'échantillon d'épaisseur $L = 12\,mm$ et de fraction volumique $\phi = 40\,\%$ pour une fréquence $f = 2,5\,MHz$ et une bande-passante $df = 25\,kHz$. La ligne noire représente un exemple de comportement purement diffusif avec $D = 0,47\,mm^2/\mu s$.

Ce résultat montre que pour cet échantillon très concentré, non seulement le transport de l'intensité est purement diffusif mais le coefficient de diffusion est comparable à celui mesuré dans les émulsions diluées ($D = 0,45\,\mathrm{mm}^2/\mu\mathrm{s}$ ici). On ne peut malheureusement pas estimer le paramètre $k'\ell_\mathrm{e}$ dans ce cas où l'estimation de l'onde cohérente est très difficile. Ainsi, ces derniers résultats portent à croire qu'il existe une fraction volumique (autour de $\phi = 30\,\%$) optimale pour laquelle le coefficient de diffusion est le plus faible.

Nous mesurons pour cela D dans plusieurs échantillons en faisant varier la fraction volumique ϕ de 5 % à 40 % (4.14). Cette mesure est réalisée pour un filtre numérique de fréquence centrale $f = 2,5\,\mathrm{MHz}$ fixe [c] et une bande-passante $df = 25\,\mathrm{kHz}$. En complément, nous mesurons également le temps caractéristique d'absorption τ_a en fonction de la fraction volumique ϕ (fig. 4.14).

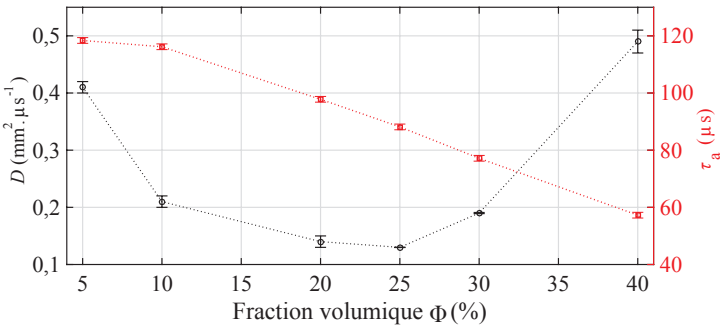

Fig. 4.14 – Coefficient de diffusion D (en cercles noirs) et temps caractéristique d'absorption τ_a (en carrés rouges) en fonction de la fraction volumique ϕ pour une fréquence $f = 2,5\,MHz$ et une distance de propagation $z = 11\,mm$ (avec un échantillon d'épaisseur $L = 12\,mm$). Les incertitudes sont estimées à partir des résidus des ajustements linéaires de l'extension $w^2(t)$ (fig. 3.10) pour le coefficient D et des ajustements des courbes des temps de vol (fig. 3.6) pour le temps caractéristique τ_a.

Cette analyse montre tout d'abord que lorsque l'on augmente la concentration en gouttes d'huile, l'absorption augmente également (le temps caractéristique d'absorption τ_a diminue), ce qui est consistant avec notre précédente hypothèse sur les effets de pertes visqueuses aux interfaces goutte d'huile/gel aqueux (cf. sec. 3.2.2). Il apparaît également clairement une fraction volumique optimale ($\phi = 25\,\%$) pour laquelle le transport diffusif est très lent ($D = 0,13\,\mathrm{mm}^2.\mu\mathrm{s}^{-1}$).

Ainsi, cette concentration en diffuseurs est la plus appropriée pour observer d'éventuels effets de localisation forte. Nous testons donc un échantillon de fraction volumique $\phi = 25\,\%$, dans la cellule la plus épaisse ($L = 26\,\mathrm{mm}$) afin d'augmenter la possibilité d'observer la subdiffusion en explorant des distances de propagation z potentiellement comparables à la longueur de localisation ξ. Les résultats des mesures de $w^2(t)/L^2$ et de $R(\rho, t)$ sont représentés sur la figure 4.15 pour l'émulsion de fraction volumique $\phi = 25\,\%$.

c. En fonction de l'échantillon, la taille des gouttes varie légèrement et par conséquent les fréquences de résonance également (impactant la valeur du coefficient de diffusion D). Cependant les mesures optiques de la taille des gouttes montrent que pour les fractions volumiques d'intérêt ($\phi \in [20, 30]$ %) la variation de rayon moyen est très faible (environ 3%).

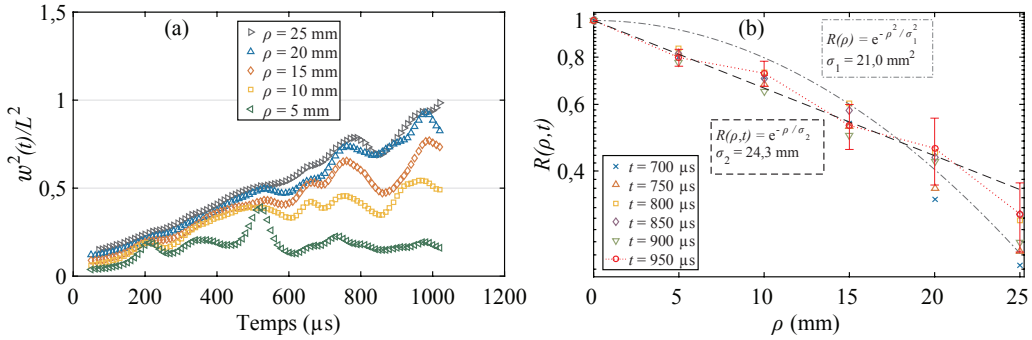

Fig. 4.15 – (a) Extension normalisée $w^2(t)/L^2$ du halo diffusif en fonction du temps, mesurée pour plusieurs distance ρ. (b) Profil spatial (représenté en échelle logarithmique) du halo diffusif pour plusieurs temps de $t = 700\,\mu s$ à $t = 950\,\mu s$. Les barres d'erreur, représentées pour ce dernier instant, proviennent de l'écart type calculé pour chaque position ρ entre les six instants t représentés (en supposant que dans le régime localisé le rapport $R(\rho, t)$ n'évolue plus en fonction du temps). Deux fonctions d'ajustement sont représentées : une fonction gaussienne (en ligne discontinue mixte) et une fonction exponentiellement décroissante (en ligne discontinue). Ces mesures sont effectuées à une profondeur $z = 20\,mm$ de l'échantillon et les signaux obtenus sont filtrés à la fréquence $f = 2,64\,MHz$ avec une bande-passante $df = 10\,kHz$.

Pour ces résultats, le champ acoustique est sondé à une profondeur $z = 20\,\text{mm}$ dans l'échantillon d'épaisseur $L = 26\,\text{mm}$ (d'autres mesures ont également été réalisées pour $z > 20\,\text{mm}$ mais dans ce cas, le faible rapport signal sur bruit rend délicate l'interprétation du comportement de $w^2(t)$). Les signaux transmis sont ensuite filtrés numériquement à la fréquence $f = 2,64\,\text{MHz}$ avec une bande-passante de $df = 10\,\text{kHz}$ [d]. La mesure de la largeur du halo diffusif en fonction du temps (fig. 4.15) révèle le caractère sub-diffusif du transport de l'intensité moyenne dans cet échantillon. En effet, l'évolution de $w^2(t)$ pour $\rho < 20\,\text{mm}$ est non-linéaire et semble tendre vers une valeur $w^2(t)/L^2 < 1$ (fig. 4.15a) (pour $\rho = 5\,\text{mm}$, $w^2(t)$ semble même être constant après 300 μs mais les incertitudes sont grandes pour de si faibles distances transverses ρ). Ce comportement suggère que l'échantillon est plus large que la distance de localisation ξ. De plus, l'extension $w^2(t)$ est dépendante de la distance ρ, révélant ainsi un profil transverse non-gaussien du halo diffusif. Ce profil est représenté sur la figure 4.15b pour plusieurs instants supérieurs à $t = 700\,\mu\text{s}$. La comparaison du halo diffusif au temps $t = 950\,\mu\text{s}$ avec un ajustement gaussien et un ajustement exponentiel suggère que le profil spatial de l'intensité moyenne n'est effectivement pas gaussien.

Ces résultats mettent en évidence le transport fortement sub-diffusif de l'intensité moyenne dans les émulsions résonantes. Cependant, un ajustement plus rigoureux avec des simulations numériques traitant de localisation d'Anderson est nécessaire pour pouvoir quantifier la longueur de localisation ξ et estimer d'un part si le régime obtenu est effectivement sub-diffusif et si la localisation forte des ultrasons est observable dans nos émulsions d'autre part. Dans le

d. La largeur de bande du filtre est ici réduite par rapport aux mesures du chapitre précédent (concernant le transport purement diffusif). Un filtre plus large permettrait de réduire les fluctuations de $w^2(t)$ (en moyennant sur les fréquences) mais pour $df > 10\,\text{kHz}$ le comportement de la quantité $w^2(t)$ aux temps longs est pollué par le régime diffusif résiduel venant compromettre la saturation de $w^2(t)$.

paragraphe suivant, nous présentons ces simulations [e] basées sur le modèle de la *Self-Consistent Theory* (SCT) [7, 11].

4.2.3 Modélisation de la renormalisation de la diffusion

Comme son nom l'indique, la SCT est une théorie auto-cohérente déterminant la renormalisation du coefficient de diffusion due aux effets de diffusion récurrente. Ainsi en milieu infini, la diffusion récurrente (les boucles de diffusion) ralentit le transport diffusif de l'intensité et le coefficient de diffusion renormalisé D est inférieur au coefficient de diffusion $D_\mathrm{B} = v_\mathrm{e}\ell_\mathrm{B}^*/3$ obtenu dans le cas d'un régime purement diffusif sans récurrence (ℓ_B^* correspond de la même manière au libre parcours moyen de transport dans le régime purement diffusif).

Dans les milieux finis, les événements de diffusion récurrente sont moins probables aux interfaces. Dans ce cas, le coefficient de diffusion D doit également dépendre de l'espace. C'est l'idée proposée par S. E. Skipetrov et B. A. van Tiggelen pour calculer la transmission moyenne à travers un échantillon en régime localisé [7].

Dans ce modèle, la solution de l'équation de diffusion est calculée pour la « probabilité de diffusion » $C(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega) \propto < G(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega)G^*(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega) >$. Cette solution prend la forme suivante (au point $\vec{r}$ pour une source placée en $\vec{r}_s$ dans le domaine de Fourier temporel) :

$$[-\mathrm{j}\Omega - \nabla.D(\vec{r},\Omega)\nabla]\, C(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega) = \delta(\vec{r}-\vec{r}_s), \tag{4.6}$$

où le coefficient de diffusion $D(\vec{r},\Omega)$ est renormalisé par rapport à D_B grâce à la « probabilité de retour » $C(\vec{r},\vec{r}_s=\vec{r},\Omega)$:

$$\frac{1}{D(\vec{r},\Omega)} = \frac{1}{D_\mathrm{B}} + \frac{12\pi}{k'^2\ell_\mathrm{B}^*}C(\vec{r},\vec{r},\Omega). \tag{4.7}$$

Ainsi, plus la probabilité de retour est grande, plus le coefficient de diffusion sera modifié. De plus, la résolution de ce problème est associée à deux conditions aux limites en $z=0$ et $z=L$:

$$\begin{aligned} C(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega) - z_0^e\tfrac{D(\vec{r},\Omega)}{D_\mathrm{B}}\nabla C(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega) = 0 \text{ en } z=0, \\ C(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega) + z_0^e\tfrac{D(\vec{r},\Omega)}{D_\mathrm{B}}\nabla C(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega) = 0 \text{ en } z=L, \end{aligned} \tag{4.8}$$

où z_0^e est la distance d'extrapolation définie au chapitre 3. Le système doit donc être résolu de manière itérative pour calculer ce coefficient de diffusion $D(\vec{r},\Omega)$ dépendant de la probabilité de diffusion $C(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega)$.

Numériquement, la résolution de ce système consiste à modéliser un pavé d'extensions latérales infinies (les conditions aux limites latérales ne sont pas prises en comptes) et d'épaisseur L. Le coefficient de diffusion est alors considéré comme invariant par translation de le plan (x,y) ($D(\vec{r},\Omega) = D(z,\Omega)$) [11]. Pour chaque fréquence Ω, le coefficient de diffusion est calculé de manière itérative :

e. Ces simulations ont été réalisées à l'*Ultrasonics Research Laboratory* de Winnipeg avec l'aide de J. H. Page grâce à un programme de calcul de la SCT dont le fonctionnement est détaillé dans la référence [30].

- la quantité $C(\vec{r}, \vec{r}_s, \Omega)$ est calculée grâce aux équations (4.6) et (4.8) et l'initialisation $D(z, \Omega) = D_{\mathrm{B}}$;
- $C(\vec{r}, \vec{r}_s, \Omega)$ donne accès au nouveau coefficient de diffusion *via* la relation (4.7) ;
- la première étape du calcul est alors répétée avec le coefficient $D(z, \Omega)$ ainsi obtenu ;
- l'itération est stoppée lorsque la convergence de $D(z, \Omega)$ est obtenue.

De la même manière que pour le régime diffusif, nous ajustons les prédictions de ce modèle avec nos mesures des courbes de temps de vol et de la largeur du halo diffusif en fonction du temps. Les paramètres d'entrée de l'ajustement sont alors le facteur d'amplitude des courbes de temps de vol U_0, le temps caractéristique d'absorption τ_{a} et le libre parcours moyen de transport ℓ^*. Par rapport aux modélisations de la diffusion pure vues au chapitre 3, la SCT fait intervenir un autre paramètre d'ajustement : le produit $k'\ell_{\mathrm{c}}$ qui correspond à la valeur de $k'\ell_{\mathrm{e}}$ critique à partir de laquelle le régime de localisation est atteint. En effet la valeur de $k'\ell_{\mathrm{e}}$ étant connue (mesurée) les prédictions du modèle SCT serviront à quantifier le régime de transport : le régime de localisation forte est obtenu lorsque $k'\ell_{\mathrm{e}} < k'\ell_{\mathrm{c}}$ (signifiant que le pouvoir diffusant de l'échantillon est suffisant pour observer un régime de localisation forte).

Les premiers calculs ont été effectués dans le cas de l'émulsion de fraction volumique $\phi = 30\,\%$ dans l'échantillon d'épaisseur $L = 12\,\mathrm{mm}$ dont les résultats de la mesure de $w^2(t)/L^2$ sont présentés sur la figure 4.12. Les ajustements de $w^2(t)/L^2$ et des courbes de temps de vols obtenus dans ce cas sont présentés sur la figure 4.16.

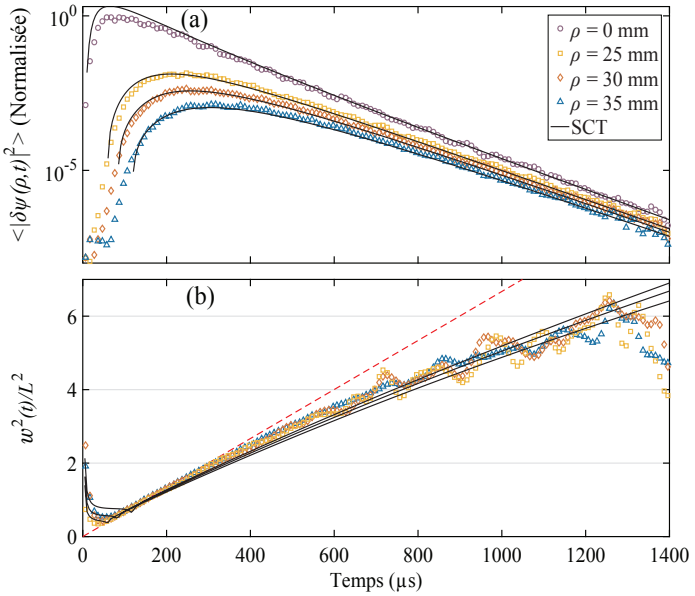

Fig. 4.16 – Résultats de l'ajustement des courbes de temps de vol (a) et de la largeur du halo diffusif (b) avec les prédictions du modèle SCT dans le cas de l'émulsion de fraction volumique $\phi = 30\,\%$ et d'épaisseur $L = 12\,mm$. La courbe discontinue rouge représente un exemple de comportement purement diffusif avec $D_B = 0,24\,mm^2/\mu s$.

L'ajustement représenté sur la figure 4.16 est obtenu pour $k'\ell_c = k'\ell_e/1,13$. Ce résultat signifie que le transport de l'intensité moyenne n'est que sub-diffusif (le régime de localisation n'est clairement pas atteint dans ce cas). Notons de plus que dans le code de calcul utilisé, la quantité calculée est la transmission $J(L,t)$ à travers la surface $z = L$ de l'échantillon :

$$J(L,t) = -D(z,\Omega)\frac{\partial C(\vec{r},\vec{r}_s,\Omega)}{\partial z}\bigg|_{z=L},$$

alors que la quantité réellement mesurée dans notre cas est la densité locale d'énergie $U(z,t)$ à une profondeur $z = 11\,\text{mm}$ dans l'échantillon. Cependant, l'extension $w^2(t)/L^2$ est indépendante de la mesure de $J(L,t)$ ou $U(z,t)$. Seules les valeurs de τ_a et de l'amplitude U_0 obtenues lors de l'ajustement des courbes de temps de vol sont impactées par cette imprécision de la modélisation (donc non précisées ici).

Malheureusement, aucun résultat numérique n'a été obtenu de manière satisfaisante pour ajuster les mesures de $w^2(t)/L^2$ dans l'échantillon d'épaisseur $L = 26\,\text{mm}$ et de fraction volumique $\phi = 25\,\%$ (fig. 4.15a). En effet, l'épaisseur de cet échantillon force à considérer un plus grand nombre de points pour discrétiser l'espace et la durée du calcul devient très importante (environ une semaine). Comme plusieurs simulations sont nécessaires avant de trouver les meilleurs paramètres d'entrée de la simulation, aucun ajustement convainquant n'a été obtenu pour ces derniers résultats lors de cette étude.

4.3 Conclusion

Cette dernière partie de l'étude fût consacrée à l'étude du transport acoustique dans les émulsions concentrées dans le but d'observer des phénomènes singuliers tels que le transport sub-diffusif de l'intensité moyenne ou l'échec des théories de diffusion multiple « classiques » pour la description des propriétés de l'onde cohérente dans ces émulsions fortement dispersives.

En effet, malgré la difficulté d'estimer expérimentalement l'onde cohérente dans ces émulsions concentrées, la comparaison de la mesure de k avec les prédictions de l'ISA, *Waterman & Truell* et *Lloyd & Berry* (en échec également lors de travaux précédents [31]) montre que ces modèles ne sont pas adaptés à la description de nos observations. Le modèle GCPA paraît alors plus approprié à notre cas d'étude en prédisant la réduction de l'atténuation de l'onde cohérente et la faible valeur de la célérité de phase observée à basse fréquence. Cependant, les prédictions de la GPCA sont à appréhender avec précautions car les *artefacts* numériques issus de la détection des quasi-modes conduisent potentiellement à des erreurs d'interprétation (comme la présence de deux modes de propagation, ou de « bandes interdites »). Par conséquent, l'ajout d'une absorption artificielle pour réduire l'influence de ces *artefacts* n'est pas totalement rigoureuse mais l'utilisation de ce type de modélisation pour l'étude des émulsions résonantes semble digne d'intérêt pour de futures investigations de leurs propriétés effectives.

Lors de l'étude du transport de l'intensité moyenne dans des émulsions résonantes, le régime de sub-diffusion a été observé. Cependant, même avec la mesure de confinement traverse de l'intensité (indépendante des effets d'absorption) les erreurs d'interprétation sont possibles

lors de l'observation de la saturation du halo diffusif. En identifiant ces erreurs (comme le mauvais filtrage des acquisitions), le dispositif expérimental a été amélioré et l'observation d'un régime sub-diffusif dans une émulsion de fraction volumique $\phi = 30\%$ a été confirmée par les prédictions numériques de la *Self-Consistent Theory*. Dans le but d'observer des effets de localisation d'Anderson, l'échantillon a été optimisé et un régime de transport s'apparentant à de la sub-diffusion forte (plus proche du régime localisé) a été également observé. Cependant, les simulations numériques correspondant à ces nouvelles conditions expérimentales sont délicates et aucun ajustement quantifiant ce nouveau régime de transport de l'intensité moyenne n'a été obtenu dans cette étude.

Si certains développements numériques et expérimentaux sont à effectuer pour confirmer la manifestation d'effets de localisation dans nos échantillons, cette étude permet d'appréhender le potentiel des émulsions résonantes pour l'étude du transport des ondes dans les milieux désordonnés résonants. Un tel système modèle dont le potentiel réside dans sa nature fortement résonante et l'exploration *in situ* du champ acoustique au sein même du milieu, pourraient aider à mieux comprendre des phénomènes complexes tels que la localisation d'Anderson.

4.4 Perspectives

Nous présentons, dans cette dernière partie, deux axes d'amélioration de l'étude dans l'optique d'observer un régime localisé des ultrasons. La première idée tire avantage des émulsions ordonnées, et la deuxième proposition consiste à exploiter une autre technologie issue du domaine de la matière molle pour créer des suspensions de billes de silicone poreux présentant des valeurs d'indice acoustique relatif beaucoup plus élevées que les gouttes d'huile fluorée.

4.4.1 Diffusion multiple dans des émulsions ordonnées

L'utilisation de réseaux quasi-périodiques pour l'observation d'effets de localisation fût initialement proposée par S. John en 1987 [32]. L'idée est de faciliter l'apparition de localisation en ajoutant une faible perturbation sur la position des inclusions d'un milieu initialement ordonné [4] (la position des diffuseurs est fortement corrélée à courte distance et faiblement à longue distance). Les effets de périodicité devraient ainsi ralentir le transport diffusif des ondes. Les effets de localisation sont donc attendus à l'approche des fréquences de coupure correspondant au milieu initialement parfaitement périodique.

Les résultats préliminaires présentés dans cette partie constituent une suggestion pour l'optimisation des émulsions résonantes en vue d'observer la localisation d'Anderson des ondes ultrasonores. La tentative de réalisation de telles structures « quasi-périodiques » découle du processus d'injection des émulsions résonantes. En effet, comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, les émulsions sont rendues aléatoires après une étape de transfert de l'échantillon. Si cette étape est supprimée, les plans (et rangées) de gouttes restent alignés. À partir de cette observation, il ne reste plus qu'à réaliser les mesures acoustiques directement dans la cellule d'injection. Afin de préserver la structure de l'échantillon lors des mesures du champ acoustique, les premières expériences sont réalisées dans des échantillons dilués ($\phi = 5$ et $10\,\%$) de gouttes suspendues

dans un gel très peu dilué en eau (afin d'augmenter sa tension seuil pour maintenir les gouttes à leur position). Les injections tests de la figure 4.17 montrent que sur un plan unique de gouttes, l'ordre à courte portée existe (dans le plan (x, y)). Cette observation est d'autant plus vraie que la fraction volumique est faible. Pour des raisons de clarté, nous ne représentons pas ici d'injections sur plusieurs plans de gouttes [f]. Cependant, la position de chaque plan étant déterminée par la profondeur de l'aiguille dans le gel, nous pourrons raisonnablement supposer que la structure est périodique dans la direction z.

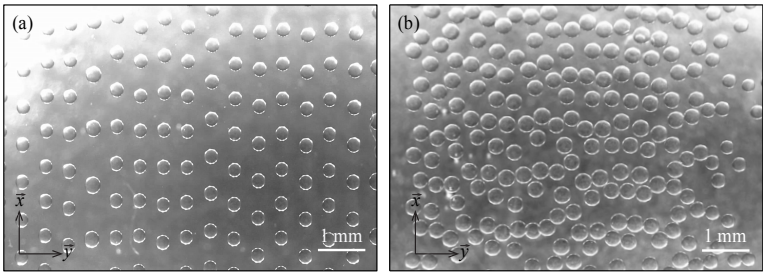

Fig. 4.17 – Injection test sur un plan de gouttes pour vérifier la structure ordonnée dans le plan (x, y). L'injection est réalisée pour un pas entre rangées (orientées suivant $\vec{x}$) correspondant à des fractions volumiques $\phi = 5\,\%$ (a) et $\phi = 10\,\%$ (b).

Pour des raisons techniques, l'épaisseur des échantillons quasi-périodiques ne dépassera pas $L = 12\,\text{mm}$. Les mesures seront effectuées uniquement à une profondeur $z = 10\,\text{mm}$ afin de limiter au maximum le brassage des gouttes par le passage de l'hydrophone dans l'émulsion. Le paramètre $w^2(t)$ est premièrement mesuré dans deux émulsions quasi-périodiques de fractions volumiques $\phi = 5\,\%$ (fig. 4.18a) et $\phi = 10\,\%$ (fig. 4.18b) à la fréquence $f = 2,65\,\text{MHz}$ pour une largeur de filtre de $df = 10\,\text{kHz}$. Ces mesures sont ajustées avec des lois de puissance $w^2(t)/L^2 \propto t^n$ pour interpréter le régime de transport obtenu. Si $n < 1$, le transport s'apparente à de la sub-diffusion. Ainsi, pour l'émulsion $\phi = 5\,\%$ cet ajustement montre une évolution de $w^2(t)/L^2 \propto t^{0,66}$ pour $\rho = 15\,\text{mm}$ et $w^2(t)/L^2 \propto t^{0,90}$ pour $\rho = 15\,\text{mm}$.

Ce résultat montre que ce ralentissement du transport de l'intensité moyenne est similaire au régime sub-diffusif avec une évolution non linéaire ($n < 1$) du paramètre $w^2(t)$. Cependant, cette interprétation semble incorrecte si on observe le comportement purement diffusif ($n \approx 1$) de $w^2(t)/L^2$ obtenu dans l'émulsion de fraction volumique $\phi = 10\,\%$ (fig. 4.18b) pour laquelle le pouvoir diffusant est *a priori* plus élevé.

Cette apparente sub-diffusion semble en fait provenir d'effets d'anisotropie dans le transport de l'intensité moyenne. En effet, le mouvement de l'aiguille (selon x) lors de l'injection ne permet de rendre la structure aléatoire que dans une seule direction (celle du déplacement de l'aiguille). La périodicité est parfaite dans les deux autres directions comme le montre la figure 4.19a pour l'émulsion de fraction volumique $\phi = 5\,\%$. Ainsi lorsque le champ acoustique est moyenné sur des acquisitions réalisées pour différents angles θ, tout ce passe comme si plusieurs coefficients de diffusion D différents étaient moyennés. La direction perpendiculaire à la direction de l'injection

f. Une telle structure est représentée sur la photographie 2.8b lors de l'étude des paramètres de fabrication des échantillons dans le chapitre 2.

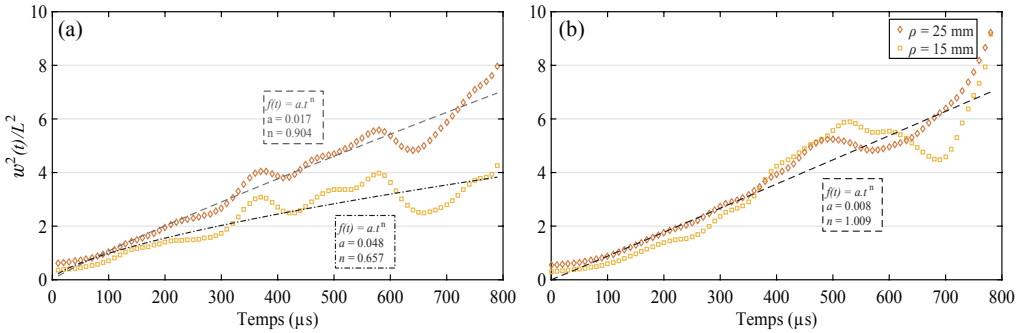

Fig. 4.18 – Extensions latérales normalisées $w^2(t)/L^2$ des halos diffusifs mesurées dans des émulsions quasi-périodiques de fractions volumiques $\phi = 5\,\%$ (a) et $\phi = 10\,\%$ (b) à la fréquence $f = 2,65\,MHz$. Les lignes discontinues et discontinue mixtes représentent les ajustements de ces mesures avec une loi de puissance $f(t) = a.t^n$.

($d\theta_1$) correspondant au coefficient de diffusion le plus faible et la diffusion la plus rapide se produisant le long des rangées de gouttes ($d\theta_2$). Cet effet (moins présent pour $\phi = 10\,\%$ où les rangées de gouttes sont plus resserrées) est appuyé par le résultat de la figure 4.19 où la structure de l'émulsion est comparée à la méthode d'acquisition et de moyennage des signaux transmis (fig. 4.19a). À une distance ρ fixée, l'acquisition est réalisée pour 275 angles θ différents. La transmission est mesurée pour chacun de ces points (et les trois distances ρ), puis moyennée sur quatre valeurs de θ proches afin d'obtenir une estimation spatialement résolue de la transmission moyenne.

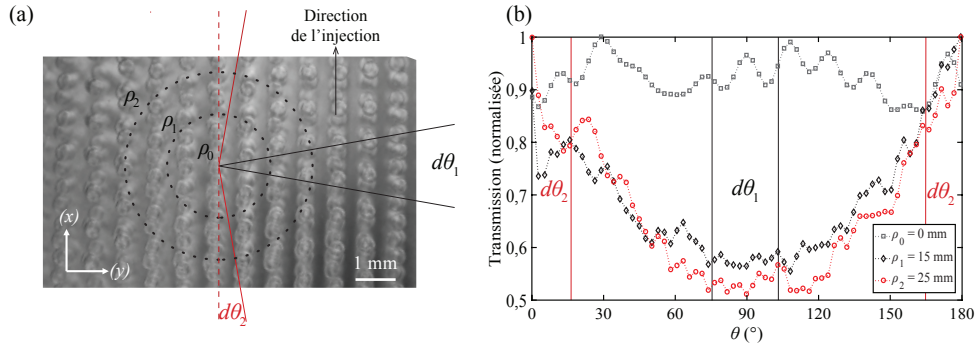

Fig. 4.19 – (a) Photographie de l'échantillon quasi-périodique de fraction volumique $\phi = 5\,\%$. Les points schématisent les différentes acquisitions à ρ constant pour différents angles θ. (b) Transmission normalisée pour les différentes distances ρ en fonction de l'angle θ.

La mesure de cette transmission (fig. 4.19b) révèle l'anisotropie de la diffusion. Pour les directions d'acquisition $\theta \sim 90^\circ$ perpendiculaires à la direction d'injection (repérées par la zone $d\theta_1$ sur la figure 4.19), la transmission est minimale alors qu'elle est maximale pour les directions de propagation parallèles aux rangées de gouttes (zone d'acquisition $d\theta_2$). De plus, pour $\rho = 0\,\text{mm}$ la transmission est indépendante de l'angle θ.

Il existe donc une anisotropie dans le transport de l'intensité dans les émulsions quasi-périodiques pouvant s'apparenter à de la sub-diffusion au premier abord. Les premières arrivées correspondent aux coefficients de diffusion D les plus grands (croissance rapide de $w^2(t)$) alors que les acquisitions aux temps longs correspondent aux D les plus faibles. Enfin, pour appuyer cette dernière hypothèse, nous mesurons le coefficient de diffusion D dans les émulsions quasi-périodiques en ajustant uniquement les temps courts $t < 300\,\mu$s avec la fonction d'ajustement $f(t) = 4Dt$. Cette mesure est réalisée pour plusieurs fractions volumiques ϕ et comparée sur la figure 4.20 aux mesures équivalentes effectuées dans les émulsions désordonnées présentées précédemment (fig. 4.14).

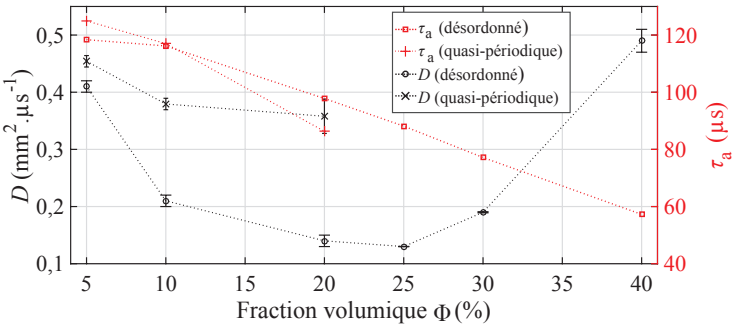

Fig. 4.20 – Coefficient de diffusion D (en noir) et temps caractéristique d'absorption τ_a (en rouge) en fonction de la fraction volumique ϕ. Les mesures effectuées dans les émulsions quasi-périodiques sont représentées par les croix : ($\times$) pour le coefficient D et ($+$) pour le temps d'absorption τ_a. L'incertitude sur la mesure des temps d'absorption est de $1\,\mu s$ pour chaque valeur de la fraction volumique ϕ. Cette incertitude est estimée à partir des résidus des ajustements des courbes de temps de vol avec le calcul de la densité locale d'énergie U (fig. 3.6).

Ce résultat montre tout d'abord que le temps d'absorption τ_a ne semble pas dépendre de la structure de l'émulsion (uniquement de la fraction volumique ϕ et donc de la quantité de gouttes à l'intérieur de l'échantillon). En revanche, l'ajustement des temps courts pour les mesures dans les émulsions quasi-périodiques montre que D est toujours plus faible si l'émulsion est désordonnée (pour $\phi \in [5, 20]\,\%$). La diffusion aux temps courts dans les émulsions quasi-périodiques est donc anormalement rapide.

Nous avons donc vu que l'apparente sub-diffusion obtenue dans les émulsions quasi-périodiques était due au « mélange » de plusieurs régimes diffusif (à l'instar de la diffusion dans les réseaux de billes d'aluminium frittées et plongées dans l'éthanol [24]). La structure des échantillons réalisés ici ne correspond donc pas à l'idée émise par S. John [32].

Néanmoins, le déplacement de l'aiguille étant programmable, il est toujours possible d'ajouter un faible désordre dans le pas entre deux rangées et deux plans. De la même manière il est possible d'injecter les gouttes non plus en rangées mais en spirale par exemple pour limiter l'anisotropie dans le transport de l'intensité moyenne. Cependant, dans ce cas d'échantillons entièrement fluides, il paraît compliqué de contrôler et de préserver une forte corrélation à faible

ou moyenne distance dans la position des gouttes en particulier lors des mesures où le mouvement de l'hydrophone affecte évidemment la structure de l'émulsion.

4.4.2 Diffusion multiple par des suspensions de billes poreuses

Dans cette dernière partie, nous proposons l'utilisation d'un autre type de systèmes modèles, constitués de billes poreuses suspendues dans une matrice aqueuse [33], exhibant de plus fortes résonances que les émulsions de gouttes d'huile fluorée. Initialement, ces suspensions ont suscité l'intérêt de la communauté des métamatériaux acoustiques puisqu'il a été récemment démontré que celles-ci peuvent posséder un indice de réfraction acoustique relatif négatif à basse fréquence. A titre d'exemple, une bande « négative » a été observée vers 150 kHz dans une suspension aqueuse constituée de billes de silicone poreux dont le rayon moyen était de 0,160 mm [34]. Cette propriété hors-norme résulte de la superposition des résonances monopolaire et dipolaire des billes poreuses, dont la célérité de phase peut s'avérer extrêmement basse pour certains matériaux poreux (jusqu'à 40 m/s pour certains silicones poreux [35]).

De tels contrastes de célérités de phase entre la matrice et les inclusions rendent ces billes de silicone poreux potentiellement intéressantes pour l'étude du transport des ultrasons dans les régimes sub-diffusif et localisé. En effet, en raison de la très forte résonance monopolaire des billes poreuses, le libre parcours moyen élastique ℓ_e dans ces suspensions est proche de 0,1 mm à 100 kHz, ce qui correspond à une longueur d'onde incidente 150 fois plus grande que ℓ_e. Par ailleurs, ces billes poreuses étant solides, la durée de vie des échantillons devrait s'en trouver grandement améliorée par rapport aux émulsions de gouttes d'huile fluorée dont la nature *tout fluide* les rend « fragiles » et sensibles à divers effets néfastes tels que la coalescence de gouttes.

Ainsi, des mesures préliminaires, similaires à ce qui a été présenté dans les chapitres précédents au sujet des ondes multiplement diffusées, ont été effectuées dans une suspension aqueuse de billes de silicone poreux dont le rayon moyen est d'environ 0,160 mm [34]. La fraction volumique a été, ici, choisie relativement faible ($\sim 5\,\%$) pour favoriser la comparaison avec les émulsions diluées présentées au chapitre 3 et limiter les pertes assez importantes, même pour ces faibles distances de propagation ($\sim 2\,\mathrm{mm}$). Les différentes acquisitions des signaux temporels se propageant dans cette suspension n'ont révélé aucune *coda* (fig. 4.21a), contrairement à ce qui a été observé dans les émulsions résonantes présentées dans ce manuscrit (fig. 4.21b).

La raison de cette absence de fluctuations du champ acoustique aux temps longs est très probablement liée au fort niveau d'absorption dans les billes de silicone poreux. Cette dissipation interne devient prépondérante devant les effets de diffusion multiple dans l'extinction de l'onde cohérente observée. Si les mécanismes de cette atténuation sont très probablement différents de ceux inhérents aux milieux bulleux (pertes par radiation, conduction thermique...), les billes de silicone poreux ne semblent pas être de meilleurs candidats que les bulles d'air [36] pour l'étude du transport diffusif, voire localisé, des ultrasons.

Cependant, les techniques issues du monde de la matière molle autorisent la fabrication d'un très large panel de « résonateurs » dont les propriétés mécaniques/acoustiques semblent très facilement ajustables. A titre d'exemple, les billes de xérogel de silice, qui possèdent des célérités de phase basses ($\sim 0,3\,\mathrm{mm}.\mu\mathrm{s}^{-1}$) tout en étant faiblement absorbantes [37], pourraient constituer

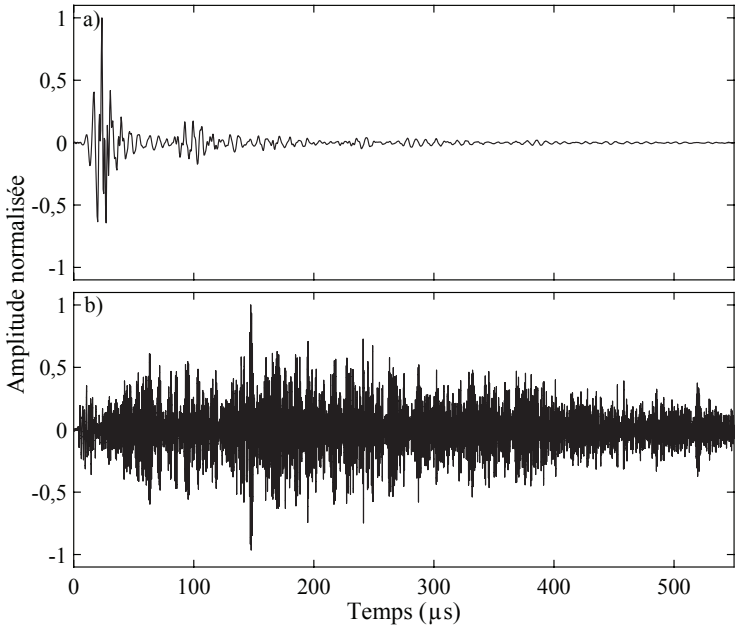

Fig. 4.21 – (a) Signal transmis à travers une suspension de billes de silicone poreux ($\phi = 5\,\%$) présentant une décroissance très rapide due à la forte absorption dans les constituants de l'échantillon. (b) Signal mesuré à travers une émulsion résonante ($\phi = 5\,\%$), caractéristique des effets de diffusion multiple (coda) et de la faible absorption du milieu.

d'excellents « résonateurs modèles » pour l'étude des régimes particuliers de la diffusion tels que la localisation d'Anderson.

A.4 Annexes

A.4.1 Calcul du nombre d'onde k dans le cadre du modèle de Linton & Martin

P. Lloyd et M. Berry [2] ont donné une expression du nombre d'onde de l'onde cohérente au deuxième ordre en concentration η :

$$k^2 = k_0^2 + 4\pi f(0)\eta - \frac{4\pi^2}{k_0^2}\left(f(0)^2 - f(\pi)^2 + \int_0^\pi \sin^{-1}(\theta/2)\frac{\mathrm{d}f(\theta)^2}{\mathrm{d}\theta}\right)\eta^2. \tag{A4.1}$$

C. Linton et P. Martin [8] ont alors simplifié cette expression en donnant un nouveau développement de k que nous reprenons pour implémenter simplement les effets de dispersion en taille d'une population N d'objets :

$$k^2 = k_0^2 + 4\pi\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} f_{a_i}(0)\eta_{a_i} - \frac{1}{2}\left(\frac{4\pi}{k_0}\right)^4 \sum_{i,j}^{N}\sum_{n,\nu} A_n(a_i)A_\nu(a_j)K_{n\nu}\eta_{a_i}\eta_{a_j}. \tag{A4.2}$$

où η_{a_i} représente la concentration en inclusions de rayon a_i. Les deux premiers termes de cette équation représentent la modélisation de k dans le cadre du modèle de Foldy. Le dernier terme est la correction apportée par Linton et Martin (simplifiée par Linton et Martin) en tenant compte des effets de polydispersité. La modélisation de la polydispersité est simplement réalisée

par la double somme sur les rayons a_i et a_j (éq. A4.2). Le produit $A_n(a_i)A_\nu(a_j)$ pour $i \neq j$ représente les interactions entre inclusions de tailles différentes.

Les coefficients $K_{n\nu}$ impliqués dans l'équation (A.4.2) s'expriment de la manière suivante :

$$K_{n\nu} = \frac{\sqrt{(2n+1)(2\nu+1)}}{(4\pi)^{3/2}} \sum_q q\sqrt{(2q+1)}G(n,0;\nu,0;q), \tag{A4.3}$$

avec q variant de $|n-\nu|$ à $(n+\nu)$ par pas de 2. Les coefficients de Gaunt $G(n,0;\nu,0;q)$ sont évalués à l'aide de la méthode proposée par Y. Xu [38] :

$$G(n,0;\nu,0;q) = S.\begin{pmatrix} n & \nu & q \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.\begin{pmatrix} n & \nu & q \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \tag{A4.4}$$

avec :

$$\sqrt{(2n+1)(2\nu+1)(2q+1)/(4\pi)} \tag{A4.5}$$

et :

$$\begin{pmatrix} n & \nu & q \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \left\{ \begin{array}{ll} \frac{(-1)^t t!\sqrt{(2t-2n)!(2t-2\nu)!(2t-2q)!}}{(t-n)!(t-\nu)!(t-q)!\sqrt{(2t+1)!}} & \text{si} \quad n+\nu+q=2t \quad \text{avec} \quad t \in \mathbb{N} \\ 0 & \text{sinon} \end{array} \right\}. \tag{A4.6}$$

A.4.2 Calcul des amplitudes modales dans le cadre de la GCPA

Dans cette annexe, nous calculons les amplitudes modales des champs de pression impliqués dans le problème de diffusion d'une onde plane harmonique par un ensemble goutte d'huile/couche de gel (fig. 4.2).

Dans ce problème, les champs de pressions incident P_i, diffusé P_d, dans la couche de gel P_0 et dans la goutte d'huile P_1 sont définis tels que :

$$\begin{aligned} P_i(r,\theta,t) &= \sum_{n=0}^{\infty} \zeta_n j_n(pr), \\ P_d(r,\theta,t) &= \sum_{n=0}^{\infty} \zeta_n A_n h_n^{(1)}(pr), \\ P_0(r,\theta,t) &= \sum_{n=0}^{\infty} \zeta_n \left[B_n h_n^{(1)}(k_0 r) + C_n h_n^{(2)}(k_0 r) \right], \\ P_1(r,\theta,t) &= \sum_{n=0}^{\infty} \zeta_n D_n j_n(k_1 r), \end{aligned} \tag{A4.7}$$

où :

$$\zeta_n = \mathrm{j}^n(2n+1)P_n(\cos\theta)\mathrm{e}^{-\mathrm{j}\omega t}. \tag{A4.8}$$

Pour calculer les amplitudes modales A_n, B_n, C_n et D_n, il faut résoudre les conditions de continuité des champs de pression et de vitesse aux limites $r = a$ et $r = b$ (de la même manière que pour la goutte isolée étudiée dans le chapitre 1). À partir des équations (A4.7) et des champs

de vitesse (calculés grâce à l'équation d'Euler) , nous obtenons le système matriciel suivant :

$$\begin{bmatrix} \frac{p}{\rho^v} h_n^{(1)'}(pb) & -\frac{k_0}{\rho_0^v} h_n^{(1)'}(k_0 b) & -\frac{k_0}{\rho_0^v} h_n^{(2)'}(k_0 b) & 0 \\ 0 & \frac{k_0}{\rho_0^v} h_n^{(1)'}(k_0 a) & \frac{k_0}{\rho_0^v} h_n^{(2)'}(k_0 a) & -\frac{k_1}{\rho_1^v} j_n'(k_1 a) \\ h_n^{(1)}(pb) & -h_n^{(1)}(k_0 b) & -h_n^{(2)}(k_0 b) & 0 \\ 0 & h_n^{(1)}(k_0 a) & h_n^{(2)}(k_0 a) & -j_n(k_1 a) \end{bmatrix} . \begin{bmatrix} A_n \\ B_n \\ C_n \\ D_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\frac{p}{\rho^v} j_n'(pb) \\ 0 \\ -j_n(pb) \\ 0 \end{bmatrix} . \quad \text{(A4.9)}$$

Les amplitudes A_n sont alors calculées grâce à la méthode de Cramer ou en inversant numériquement la matrice de l'équation (A4.9), et conduisent à l'expression de la fonction de diffusion (4.4).

Bibliographie

[1] P. C. Waterman and R. Truell. Multiple scattering of waves. *J. Math. Phys.*, **2** :512–537, 1961.

[2] P. Lloyd and M. V. Berry. Wave propagation through an assembly of spheres : IV. Relations between different multiple scattering theories. *Proc. Phys. Soc.*, **91** :678, 1967.

[3] X. Jing, P. Sheng, and M. Zhou. Acoustic and electromagnetic quasimodes in dispersed random media. *Phys. Rev. A*, **46** :6513–6534, 1992.

[4] P. Sheng. *Introduction to wave scattering, localization and mesoscopic phenomena*. Springer Science & Business Media, 2006.

[5] H. Hu, A. Strybulevych, J. H. Page, S. E. Skipetrov, and B. A. van Tiggelen. Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network. *Nat. Phys.*, **4** :945–948, 2008.

[6] P. W. Anderson. Absence of diffusion in certain random lattices. *Phys. Rev.*, **109** :1492–1505, 1958.

[7] S. E. Skipetrov and B. A. van Tiggelen. Dynamics of Anderson localization in open 3D media. *Phys. Rev. Lett.*, **96** :043902, 2006.

[8] C. M. Linton and P. A. Martin. Multiple scattering by random configurations of circular cylinders : Second-order corrections for the effective wavenumber. *J. Acoust. Soc. Am.*, **117** :3413–3423, 2005.

[9] J. Liu, L. Ye, D. A. Weitz, and P. Sheng. Novel acoustic excitations in suspensions of hard-sphere colloids. *Phys. Rev. Lett.*, **65** :2602–2605, 1990.

[10] M. L. Cowan, J. H. Page, and P. Sheng. Ultrasonic wave transport in a system of disordered resonant scatterers : Propagating resonant modes and hybridization gaps. *Phys. Rev. B*, **84** :094305, 2011.

[11] N. Cherroret, S. E. Skipetrov, and B. A. van Tiggelen. Transverse confinement of waves in three-dimensional random media. *Phys. Rev. E*, **82** :056603, 2010.

[12] A. Lagendijk, B. A. Van Tiggelen, and D. S. Wiersma. Fifty years of Anderson localization. *Phys. Today*, **62** :24–29, 2009.

[13] E. Abrahams. *50 Years of Anderson Localization*. World Scientific, 2010.

[14] S. John, H. Sompolinsky, and M. J. Stephen. Localization in a disordered elastic medium near two dimensions. *Phys. Rev. B*, **27** :5592–5603, 1983.

[15] S. E. Skipetrov and J. H. Page. Red light for Anderson localization. *New J. Phys.*, **18** :021001, 2016.

[16] T. Schwartz, G. Bartal, S. Fishman, and M. Segev. Transport and Anderson localization in disordered two-dimensional photonic lattices. *Nature*, **446** :52–55, 2007.

[17] R. L. Weaver. Anderson localization of ultrasound. *Wave motion*, **12** :129–142, 1990.

[18] A. Bretagne, M. Fink, and A. Tourin. Transverse localization of sound. *Phys. Rev. B*, **88** :100302, 2013.

[19] J. H. Page. Anderson localization of ultrasonic waves in three-dimensional 'mesoglasses'. Recent Developments in Wave Physics of Complex Media, 2011.

[20] D. S. Wiersma, P. Bartolini, A. Lagendijk, and R. Righini. Localization of light in a disordered medium. *Nature*, **390** :671–673, 1997.

[21] F. Scheffold, R. Lenke, R. Tweer, and G. Maret. Localization or classical diffusion of light ? *Nature*, **398** :206–207, 1999.

[22] M. Störzer, P. Gross, C. M. Aegerter, and G. Maret. Observation of the critical regime near Anderson localization of light. *Phys. Rev. Lett.*, **96** :063904, 2006.

[23] A. A. Chabanov, M. Stoytchev, and A. Z. Genack. Statistical signatures of photon localization. *Nature*, **404** :850–853, 2000.

[24] W. K. Hildebrand. *Ultrasonic waves in strongly scattering disordered media : understanding complex systems through statistics and correlations of multiply scattered acoustic and elastic waves*. PhD thesis, University of Manitoba, 2015.

[25] W. K. Hildebrand, A. Strybulevych, S. E. Skipetrov, B. A. Van Tiggelen, and J. H. Page. Observation of infinite-range intensity correlations above, at, and below the mobility edges of the 3D Anderson localization transition. *Phys. Rev. Lett.*, **112** :073902, 2014.

[26] L. A Cobus. *Anderson Localization and Anomalous Transport of Ultrasound in Disordered Media*. PhD thesis, University of Manitoba, 2016.

[27] Sperling T., Buhrer W., AegerterC. M., and Maret G. Direct determination of the transition to localization of light in three dimensions. *Nat. Photon.*, **7**(1) :48–52, 2013.

[28] T. Sperling, L. Schertel, M. Ackermann, G. J. Aubry, C. M. Aegerter, and G. Maret. Can 3D light localization be reached in white paint ? *New J. Phys.*, **18** :013039, 2016.

[29] B. Tallon, T. Brunet, and J. H. Page. In situ search for 3D Anderson localization of ultrasound in resonant emulsions. *IEEE*, pages 262–264, 2016.

[30] L. A. Cobus, S. E. Skipetrov, A. Aubry, B. A. van Tiggelen, A. Derode, and J. H. Page. Anderson mobility gap probed by dynamic coherent backscattering. *Phys. Rev. Lett.*, **116** :193901, 2016.

[31] A. Derode, V. Mamou, and A. Tourin. Influence of correlations between scatterers on the attenuation of the coherent wave in a random medium. *Phys. Rev. E*, **74** :036606, 2006.

[32] S. John. Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, **58** :2486–2489, 1987.

[33] T. Brunet, J. Leng, and O. Mondain-Monval. Soft acoustic metamaterials. *Science*, **342** :323–324, 2013.

[34] T. Brunet, A. Merlin, B. Mascaro, K. Zimny, J. Leng, O. Poncelet, C. Aristégui, and O. Mondain-Monval. Soft 3D acoustic metamaterial with negative index. *Nat. Mater.*, **14** :384–388, 2015.

[35] A. Ba, A. Kovalenko, C. Aristégui, O. Mondain-Monval, and T. Brunet. Soft porous silicone rubbers with ultra-low sound speeds in acoustic metamaterials. *Sci. Rep.*, **7** :40106, 2017.

[36] O. Lombard, N. Vierd, C. Barrière, and V. Leroy. Diffusion multiple dans un milieu bulleux aléatoire. *Congrés Français D'acoustique*, pages 499–505, 2014.

[37] S. Raffy, B. Mascaro, T. Brunet, O. Mondain-Monval, and J. Leng. A soft 3D acoustic metafluid with dual-band negative refractive index. *Adv. Mater.*, **28** :1760–1764, 2016.

[38] Y. Xu. Fast evaluation of the Gaunt coefficients. *Math. Comput. Am. Math. Soc.*, **65** :1601–1612, 1996.

Conclusion générale

Depuis fort longtemps, le transport des ondes en milieux désordonnés a fait l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales dans plusieurs domaines tels que l'optique, l'acoustique ou encore la sismique [1]. Cependant, certains régimes de transport, tels que la localisation d'Anderson, sont restés relativement inexplorés faute de systèmes modèles suffisamment maîtrisés pour autoriser leur observation. Motivés par l'étude de ce type de phénomènes complexes, nous nous sommes intéressés dans le cadre de cette thèse, à un nouveau système modèle dit « émulsion résonante », pour l'étude du transport diffusif des ultrasons dans les milieux hétérogènes multi-diffusants et résonants. Ces matériaux inclusionnaires ont été fabriqués par voie microfluidique assurant une maîtrise parfaite de la structure des échantillons (faible dispersion en taille des échantillons, contrôle précis de leur fraction volumique en diffuseurs...). La spécificité de nos émulsions résonantes, constituées de gouttes « lentes », nous a permis d'établir un certain nombre d'analogies avec de précédentes études menées en optique sur la diffusion résonante de la lumière. Pour nos émulsions diluées, nous avons pu tester avec succès diverses théories (homogénéisation, transport diffusif), alors que nos observations expérimentales conduites sur des systèmes plus concentrés ont permis de mettre en défaut un certain nombre de ces modèles de diffusion multiple. Néanmoins, il a été possible d'observer expérimentalement des régimes de transport non-conventionnels des ultrasons s'approchant de la localisation forte.

La première partie de ce manuscrit a été consacrée à la mise en place des définitions utiles à l'étude de la propagation des ondes acoustiques en milieux hétérogènes. La description de la diffusion d'une onde plane incidente par un objet sphérique a permis en particulier d'analyser les différentes résonances multipolaires d'une goutte d'huile fluorée immergée dans de l'eau. Ces résonances très marquées (exaltées par le contraste d'indices de réfraction acoustique relatif entre la goutte et le milieu environnant) se manifestent dans le régime intermédiaire lorsque la taille de la goutte est comparable à la longueur d'onde incidente. Une première analogie a été établie entre les résonances (de forme) acoustiques observées dans ce manuscrit avec les résonances de Mie étudiées en optique [2]. Ensuite, nous avons traité la diffusion d'une onde plane par une population désordonnée d'objets monodisperses. Le champ acoustique en présence se décompose alors en une partie cohérente (résistant à la moyenne d'ensemble) et une partie incohérente (décrivant les fluctuations aléatoires du champ). Les modélisations détaillées dans cette étude sont basées, d'une part sur des méthodes d'homogénéisation permettant de calculer le nombre d'onde effectif de l'onde cohérente, et d'autre part sur l'approximation de transport diffusif de l'intensité moyenne des ondes incohérentes [3].

Notre approche étant majoritairement expérimentale, les différents dispositifs de fabrication et de caractérisation acoustique ont été décrits dans le chapitre suivant. Chacune des phases fluides en présence a tout d'abord été soigneusement caractérisée aux fréquences ultrasonores propres à notre étude, pour avoir une connaissance complète des constituants de nos échantillons. Les propriétés effectives de ces systèmes modèles résonants ont été ensuite mesurées par des techniques standards de spectroscopie ultrasonore. En revanche, il nous a fallu développer un nouveau dispositif ultrasonore pour la caractérisation acoustique du champ incohérent. Ce dispositif inédit se base sur une méthode de mesure *in situ* de l'expansion transverse du halo diffusif.

Pour les émulsions faiblement concentrées, l'ISA s'est avérée très performante pour la modélisation du nombre d'onde effectif de l'onde cohérente jusqu'à une fraction volumique en gouttes de l'ordre de 10%. En ce qui concerne le champ incohérent, les résonances marquées des inclusions confèrent à l'échantillon un tel pouvoir de diffusion qu'il est possible d'observer le transport diffusif des ultrasons après de faibles distances de propagation, et ce, même pour des faibles fractions volumiques d'objets (5%). Notre étude, conjointement menée sur les champs cohérent et incohérent, a permis une estimation fréquentiellement résolue de la vitesse de transport révélant un comportement surprenant aux fréquences de résonance des gouttes. Alors que les résonances ont pour effet d'accroître la célérité de groupe de l'onde cohérente, elles diminuent dans un même temps la vitesse de transport des ondes multiplement diffusées. Le transfert d'énergie de l'onde cohérente vers les ondes incohérentes n'est alors respecté que si cet effet de retard provoqué par les diffuseurs lents est pris en compte. La deuxième analogie avec le domaine optique est alors établie par l'adaptation aux émulsions résonantes, d'une modélisation de la vitesse de transport provenant de travaux sur la diffusion de la lumière par des particules de dioxyde de titane [4].

Enfin, nous nous sommes intéressés aux effets des fortes concentrations sur le transport des ultrasons dans nos émulsions résonantes. Dans un premier temps, le pouvoir de diffusion de l'échantillon devient de manière surprenante inférieur aux prédictions des théories de diffusion multiple telles que les modèles de l'ISA ou de Lloyd & Berry. Dans ce cas, il ne suffit plus de tenir compte des corrélations de position des diffuseurs (telle que la taille finie des gouttes), mais le modèle doit également intégrer les interactions entre diffuseurs. L'utilisation d'une méthode de détection des modes de propagation telle que la GCPA permet alors de tenir compte de ces effets de diffusion en champ proche, tout en surmontant les faiblesses de l'homogénéisation du milieu complexe dans le régime intermédiaire. Dans ce cas, la description macroscopique du champ incohérent est également influencée par les interactions entre diffuseurs. Le transport de l'intensité incohérente moyenne devient alors sub-diffusif aux temps longs et le coefficient de diffusion doit être renormalisé. L'observation d'un tel régime de transport a alors laissé entrevoir la possibilité d'observer la localisation d'Anderson dans les émulsions résonantes. Dans la quête de ce phénomène complexe, nous avons vu qu'il existe une fraction volumique optimale pour laquelle le coefficient de diffusion présente un minimum. Pour cette fraction volumique ($\sim$ 25 %), le transport sub-diffusif des ultrasons semble presque s'arrêter, signe probable d'effets de localisation forte. Cependant, les simulations numériques dédiées à ces systèmes concentrés sont délicates et ne nous ont pas permis d'identifier la longueur de localisation.

D'autres pistes telles que l'étude du transport des ondes dans les émulsions non plus désordonnées mais quasi-périodiques restent à explorer. L'étude préliminaire présentée en perspectives de ce manuscrit démontre que le procédé de synthèse des émulsions autorise la création de corrélations de position entre les gouttes d'huile. Cependant, le protocole de fabrication et la stabilité des émulsions dans le temps sont à améliorer pour pouvoir maîtriser cette structure et préserver son intégrité lors des mesures acoustiques. L'utilisation de matériaux solides « souples » comme le PDMS [5] en guise de matrice suspendante pourrait aider à réaliser des milieux hétérogènes texturés beaucoup plus stables que les matériaux à matrice fluide. Cependant, la très forte absorption des ondes acoustiques dans ces matériaux souples risque de compromettre l'observation du transport des ultrasons sur les temps longs nécessaires à la mise en évidence du phénomène de localisation d'Anderson.

Une autre piste consiste à utiliser des particules diffusantes plus contrastées acoustiquement que les gouttes d'huile fluorée. Nous avons vu que les billes de silicone poreux induisaient de très fortes résonances mais sont également associées à de très forts niveaux d'atténuation [6]. Cependant, il existe d'autres matériaux poreux moins absorbants mais ayant tout de même un indice de réfraction acoustique relatif élevé. Les billes de xérogel de silice [7] pourraient offrir le compromis désiré dans la recherche de forts contrastes acoustiques tout en limitant les effets de l'absorption. Les xérogels de silice ont en effet un indice de réfraction acoustique deux fois supérieur à celui de l'huile fluorée. Par ailleurs, le coefficient d'atténuation des ondes longitudinales n'y est que 10 fois plus grand que dans l'huile fluorée et 100 fois plus petit que dans les silicones poreux. De plus, les suspensions de billes poreuses, encore inexploitées pour l'étude de la diffusion multiple des ultrasons, devraient être plus stables grâce à l'ossature solide des inclusions. L'exploration du champ acoustique au sein du milieu reste également possible grâce à la matrice aqueuse de ce nouveau système modèle. Ainsi, les nombreux procédés de fabrication issus du monde de la matière molle procurent un large choix de systèmes modèles dont les propriétés remarquables peuvent être optimisées pour l'observation de la localisation d'Anderson des ondes acoustiques.

Bibliographie

[1] P. Sheng. *Introduction to wave scattering, localization and mesoscopic phenomena*. Springer Science & Business Media, 2006.

[2] H. C. van de Hulst. *Light scattering by small particles*. Dover, 1981.

[3] A. Lagendijk and B. A. van Tiggelen. Resonant multiple scattering of light. *Phys. Rep.*, **270** :143–215, 1996.

[4] M. P. van Albada, B. A. van Tiggelen, A. Lagendijk, and A. Tip. Speed of propagation of classical waves in strongly scattering media. *Phys. Rev. Lett.*, **66** :3132–3135, 1991.

[5] V. Leroy, A. Bretagne, M. Fink, H. Willaime, P. Tabeling, and A. Tourin. Design and characterization of bubble phononic crystals. *Appl. Phys. Lett.*, **95** :171904, 2009.

[6] A. Ba, A. Kovalenko, C. Aristégui, O. Mondain-Monval, and T. Brunet. Soft porous silicone rubbers with ultra-low sound speeds in acoustic metamaterials. *Sci. Rep.*, **7** :40106, 2017.

[7] S. Raffy, B. Mascaro, T. Brunet, O. Mondain-Monval, and J. Leng. A soft 3D acoustic metafluid with dual-band negative refractive index. *Adv. Mater.*, **28** :1760–1764, 2016.