



Quelques effets du désordre et des non-linéarités sur la propagation des ondes sonores

Nicolás Mujica Fernandez

► To cite this version:

Nicolás Mujica Fernandez. Quelques effets du désordre et des non-linéarités sur la propagation des ondes sonores. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2002. Français. tel-00002000

HAL Id: tel-00002000

<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00002000>

Submitted on 22 Nov 2002

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE PARIS 6

Spécialité

Physique des Liquides

présentée par

M. Nicolás Mujica Fernández

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITE DE PARIS 6

Sujet de la thèse:

Quelques effets du désordre et des non-linéarités
sur la propagation des ondes sonores

soutenue le 4 Novembre 2002

devant le jury composé de :

M. Stéphan FAUVE	Directeur de thèse
M. Pierre ALAIS	Président
M. Christophe BAUDET	Rapporteur
M. Christophe COSTE	Rapporteur
M. Georges DEBREGEAS	Examineur

Résumé

Dans la première partie de cette thèse nous étudions la propagation du son dans les mousses. Nos expériences montrent que la vitesse et l'absorption du son varient lors du vieillissement des mousses en raison de l'évolution de leur structure. Pour expliquer la variation de vitesse nous montrons qu'il faut prendre en compte l'élasticité du squelette liquide. Nous montrons également que l'atténuation du son est très importante et qu'elle est dominée par la dissipation thermique aux interfaces gaz-liquide.

Dans la deuxième partie, nous nous intéressons à l'importance relative des non-linéarités acoustiques aux interfaces par rapport à celles engendrées en volume. Nous étudions pour cela la diffusion d'une onde acoustique par une surface oscillante et caractérisons deux régimes: l'un où le spectre de l'onde diffusée résulte principalement de l'effet Doppler à l'interface, et l'autre où les non-linéarités de volume sont dominantes. Nous montrons également qu'il est possible d'utiliser le décalage Doppler pour mesurer avec précision l'amplitude d'oscillation d'un diffuseur.

La dernière partie de ce travail concerne l'étude des non-linéarités acoustiques de volume dans CO_2 au voisinage du point critique (PC). Dans une première série d'expériences, nous mettons en évidence leur augmentation au voisinage du PC à l'aide de deux techniques différentes: la résonance non-linéaire d'un mode de cavité et le mélange non-linéaire de deux ondes de haute fréquence. Nous présentons ensuite une étude expérimentale de la diffusion du son par le son sous un angle non-nul, qui nous permet de montrer que le paramètre non-linéaire acoustique de CO_2 peut augmenter d'un facteur 100 au voisinage du PC.

Remerciements

En premier lieu, j'exprime ma gratitude à Sébastien Balibar qui m'a accueilli au Laboratoire de Physique Statistique de l'ENS de Paris lorsqu'il était directeur, ainsi que à son successeur, Jacques Meunier. A travers eux je voudrais remercier toutes les personnes qui travaillent au LPS-ENS pour leur aide quotidienne.

Je me dois de remercier Stéphan Fauve pour la confiance qu'il m'a accordé pendant ces années de thèse. Il a su partager avec moi son intuition et ses connaissances physiques d'une façon toujours claire et enrichissante. C'est difficile d'exprimer tout ce que j'ai appris avec lui. Il a su également se rendre disponible aux moments importants et difficiles. Pour tout ceci, et beaucoup plus, je lui exprime ici ma gratitude.

Le chapitre consacré à l'acoustique des mousses est la conséquence d'une collaboration initiale avec Sergio Rica. Son enthousiasme et sa profusion d'idées m'ont beaucoup aidé. Je remercie également Virginie Emsellem pour ses conseils pour les acquisitions d'images au microscope. Les parties consacrées à l'effet Doppler et à la diffusion du son par le son dans le voisinage du point critique de CO_2 sont les fruits d'une étroite collaboration avec Régis Wunenburger. Je le remercie ici pour partager avec moi ses connaissances et son enthousiasme (et sa bonne humeur !). J'ai apprécié également la qualité du montage expérimental qu'il a mis au point lors de son travail post-doctoral au LPS-ENS. Pour nos premières expériences d'acoustique au voisinage du point critique de CO_2 j'ai bénéficié du savoir faire d'Yves Garrabos et de son équipe qui nous ont fourni une cellule expérimentale d'une grande qualité. J'ai bénéficié aussi d'une courte mais efficace collaboration avec François Kohler lors de son stage expérimental de Licence de Physique. Enfin, j'ai beaucoup appris d'Artem Petrossian et de Raúl Labbé lors de leurs visites au LPS ; ils ont toujours su être à l'écoute et d'une grande aide.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à tous les membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail. À Pierre Alais pour avoir accepté d'être le Président du jury. Je remercie en particulier Christophe Baudet et Christophe Coste d'avoir accepté d'être les rapporteurs. Certaines parties du manuscrit ont été corrigées afin de prendre en compte leurs remarques. Enfin, j'exprime ma gratitude à Georges Debrégeas pour l'encouragement qu'il m'a donné lors d'un colloque sur la rhéologie des mousses.

De plus, cette thèse expérimentale a profité du savoir faire du personnel du LPS, je pense particulièrement à José da Silvas Quintas et à Jacques Kerboriou de l'atelier de mécanique et à Carole Philippe, Nora Sadaoui, Soraya Mekki et Angelique Manchon du secrétariat. J'ai aussi bénéficié de l'aide très efficace de Monique Brouat et Anne Condamine de la bibliothèque de physique de l'ENS.

Je remercie mes professeurs du Chili, sans leur aide ni leur encouragement initial cette thèse n'aurait pas été possible. Je pense à Enrique Tirapegui, Francisco Melo et Fernando Lund, entre autres. Pour leur soutien, je me dois aussi de remercier mes «collègues» chiliens : Marcel Clerc, Felipe Barra, Rodrigo Hernández, Rodrigo Soto et Rodrigo Arias.

Je tiens à remercier mes amis de la D24, Sébastien Aumaitre, Rémy Berthet, Jean Farago, Francois Pétrélis et Régis Wunenburger, pour leurs encouragements, leur sympathie et pour toutes les discussions que nous avons eues, pas seulement sur la physique. Je crois que ce n'est que le début ! Un remerciement spécial pour la famille Pétrélis pour leur accueil chaleureux à Tours, et un autre pour Mokhtar Adda-Bedia, Steffen Bohn, Charles Baroud et Chi-Tuong Pham du LPS.

Je remercie également mes amis à Paris et à Santiago. Merci pour tout ! J'exprime également ma gratitude à Claudia Martínez et Jean Mendelson pour avoir facilité notre installation à Paris.

Finalement, j'exprime un «grand» merci à Michelle, pour m'avoir accompagné pendant ces quatre années et pour être le meilleur soutien que j'aurais pu demander. J'exprime également ma gratitude à toute m'a famille qui ma soutenu à distance. En especial, doy muchas gracias a mi hermano Felipe, a mis padres, Paty y Felipe, a la Lela, a mis hermanas y a la oveja. Agradezco también a Ivonne, Jamie, Rose-Marie, Macarena y Matias por confiarme su hija-hermana por tanto tiempo.

Table des matières

I	Acoustique de milieux diphasiques	9
1	Introduction	11
1.1	Diffusion du son dans un milieu désordonné	11
1.1.1	Rappel des différents modes de propagation	11
1.1.2	Onde cohérente : propagation ondulatoire	14
1.2	Exemples de milieu effectif	15
1.2.1	Mélange gaz-liquide	15
1.2.2	Milieux poreux	21
	<i>Compléments</i>	25
1.A	Oscillateur harmonique couplé à une corde infinie	25
1.B	Modes normaux d'une chaîne désordonnée d'oscillateurs	28
2	Acoustique des mousses	35
2.1	Introduction	35
2.2	La physique des mousses	36
2.3	Les mousses à raser	40
2.4	L'élasticité des films de savon	43
2.5	Résumé des principaux résultats expérimentaux	45
2.6	Copie de l'article	46
	<i>Compléments</i>	61
2.A	Effet du drainage sur $\langle \rho \rangle$	61
2.B	Reproductibilité des mesures acoustiques	62
II	Effets non-linéaires de volume et de surface	67
3	Introduction à l'acoustique non-linéaire	69
3.1	Milieux homogènes	69
3.1.1	Origine physique des non-linéarités acoustiques	69
3.1.2	Équation d'onde non-linéaire d'un fluide thermo-visqueux	73
3.2	Milieux diphasiques	75
3.2.1	Paramètre non-linéaire effectif $\langle B/A \rangle$	75

3.2.2	Exemples de milieux hétérogènes présentant des fortes non-linéarités acoustiques	76
4	Diffusion du son par une surface oscillante	79
4.1	Non-linéarité de surface en acoustique	79
4.2	Compétition entre les effets de surface et de volume	80
4.3	Copie des articles	82
5	Acoustique au voisinage du point critique de CO₂	115
5.1	Thermodynamique du point critique	115
5.1.1	Transitions de phase du premier et du deuxième ordre	115
5.1.2	Divergence et annulation des propriétés thermophysiques	118
5.1.3	Coordonnées critiques de CO ₂	121
5.2	Étude des résonances acoustiques d'une cavité	121
5.2.1	Description du montage	121
5.2.2	Résultats expérimentaux	123
5.2.3	Conclusions	131
5.3	Mise en évidence de la non-linéarité du milieu	131
5.3.1	Résonances non-linéaires	132
5.3.2	Première étude du mélange d'ondes acoustiques	135
5.3.3	Conclusions	138
5.4	Étude semi-quantitative du paramètre B/A	138
5.4.1	Introduction	138
5.4.2	Copie de l'article	139
6	Conclusions et perspectives	149

Première partie

Acoustique de milieux diphasiques

Chapitre 1

Introduction

1.1 Diffusion du son dans un milieu désordonné

1.1.1 Rappel des différents modes de propagation

Nous allons commencer cette introduction en rappelant brièvement les différents modes de propagation du son dans les milieux désordonnés. Il faut noter que ces modes de propagation ne sont pas propres à l'acoustique. On les observe également avec les ondes électromagnétiques, les ondes de surface, ou les ondes quantiques. En acoustique, le traitement en termes d'onde scalaire simplifie la présentation. Il existe une vaste littérature sur les ondes dans les milieux désordonnés et le lecteur peut se reporter aux références [1, 2, 3, 4] pour plus de détails.

La figure 1.1 présente le problème. La situation la plus simple est celle d'une onde plane monochromatique incidente sur un ensemble désordonné de diffuseurs. Les diverses approches théoriques supposent en général que les diffuseurs sont «statistiquement indépendants», ce qui veut dire qu'il n'existe pas de corrélations entre leurs positions ; on néglige aussi les interactions entre diffuseurs, qu'elles soient hydrodynamiques ou d'un autre type. De façon générale, on peut dire qu'il existe trois modes de propagation ou trois types de comportement pouvant résulter de l'interaction d'une onde avec un milieu désordonné :

- (1) Propagation ondulatoire : l'amplitude de l'onde moyennée sur le désordre, $\langle \psi \rangle$, où ψ représente un champ quelconque, est décrite par une équation d'onde,

$$\nabla^2 \langle \psi \rangle - \frac{1}{c_{\text{eff}}^2} \frac{\partial^2 \langle \psi \rangle}{\partial t^2} = 0. \quad (1.1)$$

Pour des ondes monochromatiques, $\langle \psi \rangle \sim e^{-i\omega t}$, on a l'équation de Helmholtz

$$\nabla^2 \langle \psi \rangle + k_{\text{eff}}^2 \langle \psi \rangle = 0, \quad (1.2)$$

où le nombre d'onde effectif $k_{\text{eff}} = \omega/c_{\text{eff}}$ est en général complexe. Donc, l'amplitude de l'onde décroît exponentiellement avec la distance x , $\langle \psi \rangle \sim e^{-x/2l_e}$,

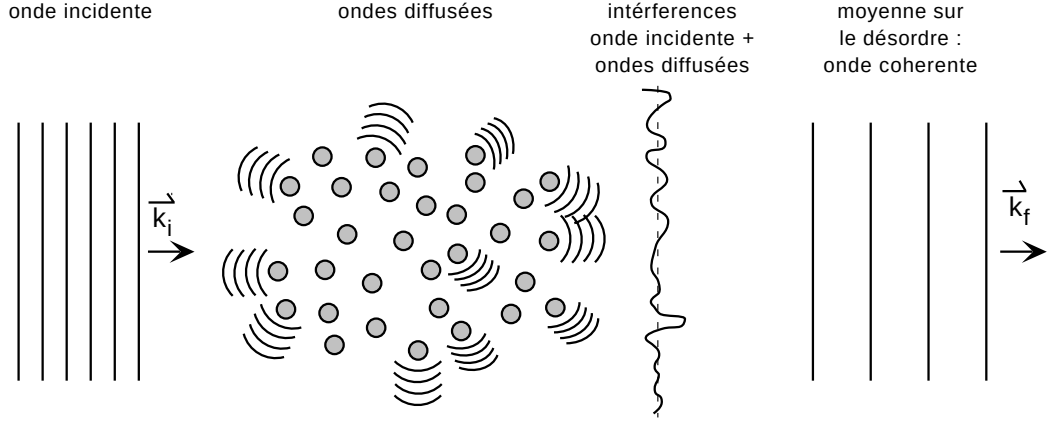


FIG. 1.1 – Schéma du problème de diffusion du son dans un milieu désordonné. Pour l'onde incidente et l'onde «cohérente» les lignes représentent des plans de phase constante.

où l_e est la longueur d'extinction résultant des mécanismes dissipatifs et diffusifs.

- (2) Propagation diffusive : l'intensité de l'onde moyennée sur le désordre $\langle \psi \bar{\psi} \rangle$, où $\bar{\psi}$ est le complexe conjugué de ψ , est décrite par l'équation de diffusion,

$$\frac{\partial \langle \psi \bar{\psi} \rangle}{\partial t} = D \nabla^2 \langle \psi \bar{\psi} \rangle. \quad (1.3)$$

Dans les systèmes tridimensionnels et en régime stationnaire, cette équation donne la Loi d'Ohm, $\langle \psi \bar{\psi} \rangle \sim 1/x$.

- (3) Localisation : lorsque les effets du désordre sont suffisamment forts on peut avoir $D \rightarrow 0$ dans l'équation (1.3). Dans ce cas, l'intensité décroît de façon exponentielle avec la distance, $\langle \psi \bar{\psi} \rangle \sim e^{-x/\xi}$, où ξ est la longueur de localisation.

Le mode ondulatoire dans un milieu désordonné est en général décrit par la théorie du milieu effectif. En optique on l'utilise dès que l'on fait référence à l'indice de réfraction d'un milieu ; cet indice renormalise la vitesse de la lumière et il peut être complexe, ce qui décrit l'atténuation de l'onde électromagnétique. On peut dire qu'en général, les différents traitements en termes de milieux continus font appel à un milieu effectif avec des propriétés moyennes. C'est le cas de l'élasticité, l'hydrodynamique, l'électromagnétisme des milieux continus, etc.

Dans le régime de grande longueur d'onde, tel que $\lambda \gg \langle R \rangle$, où $\langle R \rangle$ est la taille moyenne des diffuseurs, on peut comprendre le mode de propagation ondulatoire de façon plus ou moins heuristique en considérant que l'onde n'est pas sensible aux détails du désordre et qu'elle se propage donc dans un milieu effectif avec des propriétés moyennes. Dans la limite opposée, si la longueur d'onde est petite par rapport à la taille des diffuseurs, la propagation de l'onde peut être approximée par une propagation géométrique. Nous pouvons donc comprendre le régime diffusif si l'on considère que la propagation de l'onde

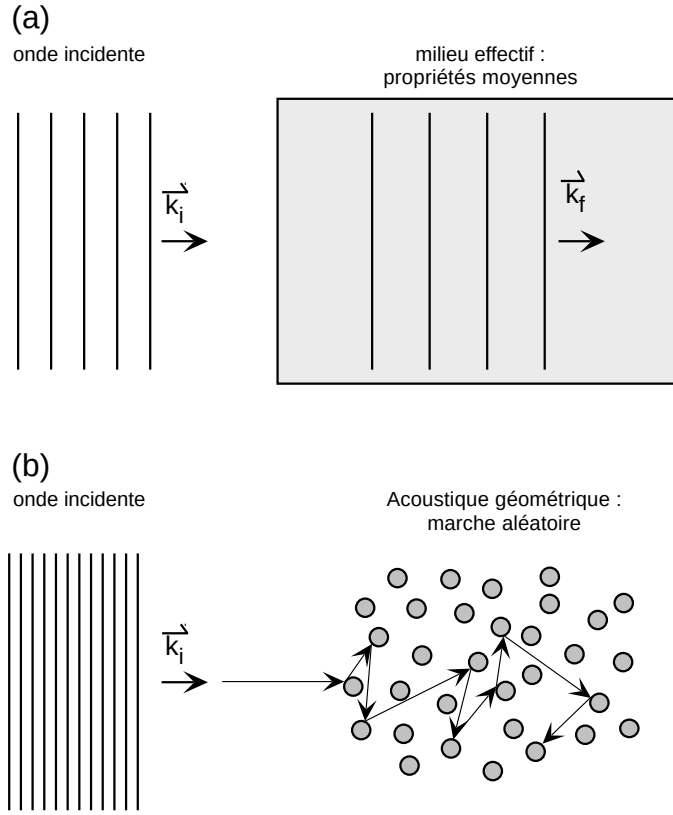


FIG. 1.2 – (a) Propagation ondulatoire pour $\lambda \gg \langle R \rangle$; l'onde se propage dans un milieu effectif avec des propriétés moyennes. (b) Propagation diffusive pour $\lambda \ll \langle R \rangle$; dans la limite de l'acoustique géométrique, la propagation est analogue à une marche aléatoire.

est analogue à celle d'une particule dans un milieu désordonné ; la particule suit une marche aléatoire et la probabilité de la trouver à une distance donnée suit bien une équation de diffusion. La figure 1.2 résume ces deux situations. Enfin, dans le régime $\lambda \sim \langle R \rangle$ on peut s'attendre à une dualité onde-particule lors de la propagation de l'onde. En fait, cette situation correspond normalement à une section efficace de diffusion importante. Les interférences entre les ondes diffusées peuvent induire la localisation *faible* ou *forte*, selon le degré du désordre et la taille du système.

Les arguments précédents nous aident à comprendre les différents modes de propagation, mais le problème est plus compliqué car λ et $\langle R \rangle$ ne sont pas les seules longueurs caractéristiques. Il faut considérer également les longueurs suivantes :

- l : distance moyenne entre diffuseurs,
- l_s : libre parcours moyen de diffusion élastique, défini par la distance à laquelle le flux d'énergie diffusée est de l'ordre du flux d'énergie de l'onde incidente,
- l_a : libre parcours moyen d'absorption¹, défini de manière analogue à l_s mais en

1. On dénote aussi cette longueur par libre parcours moyen de diffusion inélastique, noté l_{in} .

- comparant le flux d'énergie dissipée avec le flux d'énergie de l'onde incidente,
- l_e : libre parcours moyen d'extinction, défini par $l_e^{-1} = l_s^{-1} + l_a^{-1}$,
 - L : distance parcouru par l'onde ou taille de l'échantillon.

Nous avons donc cinq longueurs de plus. Pour ce qui concerne les phénomènes propres à la diffusion d'ondes, il est courant de négliger l'absorption, i.e. $l_a \gg l_s$. Dans ce cas, le problème se simplifie un peu car $l_e \approx l_s$ et nous ne gardons donc que trois de ces longueurs, l , l_s et L . De plus, l dépend de $\langle R \rangle$ et de la fraction volumique de diffuseurs ϕ ; on prend donc comme variable indépendante ϕ . Dans cette approximation non-dissipative, les longueurs importantes du problème sont λ , $\langle R \rangle$, l_s et L . Nous allons montrer dans la suite comment ces longueurs déterminent les différents modes de propagation.

1.1.2 Onde cohérente : propagation ondulatoire

Comme schématisé dans la figure 1.1, chaque diffuseur envoie une partie de l'énergie incidente soit en dehors soit dans la même direction de propagation que celle de l'onde incidente. La «directivité» et l'«efficacité» des diffuseurs dépendent de plusieurs paramètres, à savoir la fréquence de l'onde incidente, la forme des diffuseurs, leur concentration, leurs propriétés acoustiques relatives à celles du milieu, etc. Généralement parlant, si la diffusion est peu efficace on analyse le problème par des diffusions simples ; par contre, lorsque la diffusion est efficace, l'analyse est plus compliquée et elle est réalisée en termes de diffusions multiples. Dans tous les cas, les ondes diffusées interfèrent avec l'onde incidente, et si nous considérons un plan quelconque (par exemple, la ligne en pointillés dans la figure 1.1) nous observons que l'amplitude de l'onde totale, définie comme la somme de l'onde incidente et des ondes diffusées, fluctue avec la position. Ces fluctuations d'intensité, connues sous le nom de «speckles» en optique, sont en fait dues aux fluctuations de phase et d'amplitude de toutes les ondes diffusées qui ont suivi des «chemins» aléatoires jusqu'au point d'observation. Par conséquent, sur ce plan, tant la phase que l'amplitude de l'onde totale fluctuent avec la position, et, pour une réalisation donnée du désordre, on perd la «cohérence» de phase caractéristique de la propagation des ondes dans les milieux homogènes. Néanmoins, si on réalise une moyenne sur le désordre, soit une moyenne temporelle si la position des diffuseurs fluctue, soit une moyenne d'ensemble sur les différentes configurations du désordre, il en résulte que l'on peut définir des plans de phase constante, tels que nous les représentons schématiquement dans la figure 1.1.

Nous trouvons ainsi le concept d'onde «cohérente», qui résulte de cette moyenne sur le désordre. En général, le nombre d'onde de l'onde cohérente est complexe ; la partie réelle étant différente de celle de l'onde incidente, la vitesse de phase est donc différente. La renormalisation de la vitesse de phase provient de la modification de la phase lors de la moyenne sur le désordre ; comme nous venons de l'expliquer, les interférences entre les ondes diffusées et l'onde incidente produisent une phase fluctuante, et le processus de

Les mécanismes de dissipation peuvent être accompagnés d'un changement de fréquence, comme lors de la diffusion d'électrons de conduction dans un métal.

moyenne donne une phase constante (cohérence de phase) qui peut être en avance ou en retard par rapport à la phase de l'onde incidente. Par ailleurs, la partie imaginaire du nombre d'onde effectif induit une atténuation exponentielle de l'amplitude de l'onde cohérente. Nous remarquons que même en absence de mécanismes dissipatifs l'onde cohérente est atténuée, car les diffuseurs envoient une partie de l'énergie incidente en dehors de la direction de l'onde incidente (voir annexe 1.A).

Finalement, la description en termes d'une onde cohérente est valide tant que cette onde n'est pas trop atténuée le long de la direction de propagation dans le milieu désordonné. Ceci implique que les effets de la diffusion et de l'absorption doivent être faibles. Nous remarquons que lorsque les effets de l'absorption sont négligeables, on arrive à la définition «usuelle» de l'onde cohérente : c'est la «partie» peu ou non-diffusée de l'onde incidente qui traverse le milieu. Cependant, il faut en général prendre en compte l'absorption, et cette onde a donc une amplitude importante tant que $L < l_e$, où l_e est la distance d'extinction définie par $l_e^{-1} = l_s^{-1} + l_a^{-1}$. Comme on peut le constater dans sa définition, l_e dépend de «l'intensité» des événements de diffusion et des mécanismes de dissipation acoustique présents dans le milieu. A leur tour, l_s et l_a dépendent de λ , $\langle R \rangle$, ϕ et, éventuellement, des longueurs associées aux mécanismes de dissipation. Pour $L > l_e$ l'amplitude de l'onde cohérente est très faible et la propagation d'énergie se fait principalement de façon diffusive, la quantité pertinente étant l'onde «incohérente», définie comme la moyenne sur le désordre de l'intensité de l'onde.

1.2 Exemples de milieu effectif

Nous allons présenter deux exemples de milieu effectif. Nous allons aborder tout d'abord les aspects théoriques essentiels de l'acoustique des mélanges gaz-liquide. Nous allons discuter les hypothèses permettant d'obtenir une relation de dispersion complexe dans le cadre du modèle de Wijngaarden-Papanicolaou qui décrit ces milieux dans la limite $\phi \ll 1$ (ϕ étant la fraction volumique du gaz). Cette discussion nous permettra de comprendre les différents mécanismes d'amortissement du son présents dans ces milieux et leur importance relative. Ensuite, nous discuterons les principales caractéristiques de la propagation du son dans les milieux poreux, en présentant les hypothèses de la théorie de Biot et des résultats concernant la limite non-dissipative de basse fréquence.

1.2.1 Mélange gaz-liquide

Aspects généraux

La propagation du son dans les mélanges gaz-liquide dilués a été étudiée en détail, tant du point de vue théorique [5, 6, 7, 8, 9] qu'expérimental [10, 11, 12, 13, 14]. Il est bien connu que la présence de bulles de gaz modifie profondément les propriétés acoustiques du liquide. Par exemple, un aspect important des mélanges gaz-liquide est que la vitesse du son peut y atteindre des valeurs très faibles en fonction de la concentration de bulles, même dans la limite $\phi \ll 1$. En général, la vitesse du son dans le milieu effectif est inférieure

aux vitesses dans chacune des phases pures, en raison du grand contraste des propriétés acoustiques. Plus précisément, la densité du système est dominée par la densité du liquide et la compressibilité par celle du gaz. Par conséquent, on s'attend à ce que la vitesse effective soit faible.

Une autre propriété de ces mélanges est que même en présence d'une faible quantité de bulles, l'amortissement acoustique est très important par rapport à celui du liquide pur [15, 16]. En effet, au fur et à mesure que l'on augmente ϕ , le milieu peut éventuellement devenir «opaque» aux ondes acoustiques. Dans la limite $\phi \ll 1$, on s'attend à ce que les interactions entre bulles soient faibles. Dans ce cas, l'absorption du son peut être décrite en considérant la réponse individuelle des bulles sous l'effet du champ acoustique incident [8, 14]. Ainsi, on peut considérer une bulle soumise à une onde acoustique comme un oscillateur harmonique forcé, dont la raideur est donnée par la compressibilité du gaz, l'inertie par la densité du liquide et le forçage par l'onde acoustique incidente. L'amortissement du son résulte principalement de trois mécanismes, à savoir la dissipation visqueuse autour des bulles, la dissipation thermique aux interfaces gaz-liquide, et la diffusion du son par les bulles [15, 16, 17, 18].

Pour définir la vitesse effective, l'approche la plus simple est de considérer que lorsque la longueur d'onde est beaucoup plus grande que la taille des inhomogénéités du milieu, l'onde n'est pas sensible aux détails du désordre. De manière effective, l'onde se propage dans un milieu homogène de propriétés moyennes [5, 8, 9, 14]. De cette façon, pour un mélange gaz-liquide on peut définir la vitesse du son du milieu effectif par :

$$c_{\text{eff}}^2 = \frac{1}{\langle \rho \rangle \langle \chi \rangle} = \frac{\rho_l \rho_g c_l^2 c_g^2}{(\rho_l(1 - \phi) + \rho_g \phi)(\rho_g c_g^2(1 - \phi) + \rho_l c_l^2 \phi)}, \quad (1.4)$$

où

$$\langle \rho \rangle = \phi \rho_g + (1 - \phi) \rho_l, \quad (1.5)$$

$$\langle \chi \rangle = \phi \chi_g + (1 - \phi) \chi_l, \quad (1.6)$$

sont respectivement, la densité et la compressibilité moyennes du milieu. Cette définition est assez générale, dans le sens qu'on l'utilise pour divers systèmes diphasiques, tels que les suspensions, les émulsions et les mélanges gaz-liquide. Il semble qu'elle ait été donnée tout d'abord par Wood [19] et Herzfeld [20], et l'équation (1.4) est connue sous le nom de formule de Wood. Dans cette description, le système est caractérisé uniquement par le paramètre macroscopique ϕ et on n'a pas besoin de connaître les détails statistiques de la distribution de tailles des bulles. Dans la figure 1.3 nous montrons le comportement de c_{eff} en fonction de ϕ pour un mélange de bulles d'air dans l'eau. Comme nous l'avons déjà remarqué, la vitesse effective décroît rapidement en fonction de la fraction volumique du gaz ; sur presque toute la gamme de ϕ , c_{eff} est inférieure aux vitesses de chaque phase homogène, le minimum de vitesse étant de l'ordre de 23 m/s pour $\phi \approx 0.5$. En effet, dans le cas de mélanges gaz-liquide, on a $\rho_l \gg \rho_g$ et $\chi_l \ll \chi_g$, tels que l'équation (1.4) peut s'écrire sous la forme

$$c_{\text{eff}}^2 \approx \frac{1}{\rho_l \chi_g (1 - \phi) \phi}. \quad (1.7)$$

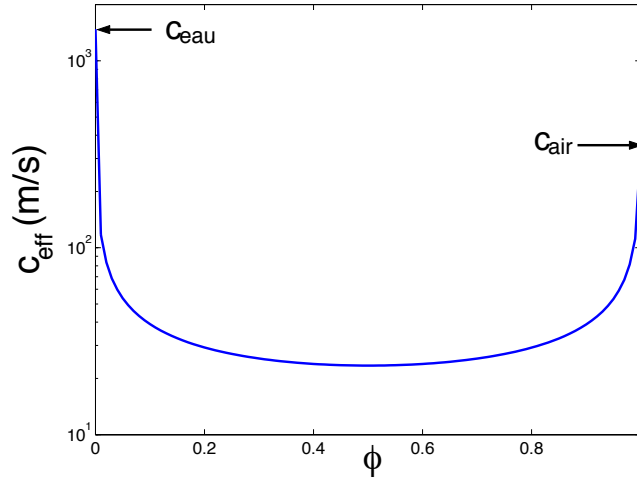


FIG. 1.3 – Vitesse effective c_{eff} dans un mélange eau-air, où ϕ est la fraction volumique d'air. c_{eff} décroît rapidement lorsque l'on s'éloigne des limites $\phi = 0$ et $\phi = 1$. Les flèches indiquent les valeurs $c_{\text{eau}} \approx 1480$ m/s et $c_{\text{air}} \approx 340$ m/s pour le liquide et le gaz purs. Le minimum de vitesse est de l'ordre de 23 m/s pour $\phi \approx 0.5$.

Dans ce cas, il est facile de montrer que le minimum de vitesse est obtenu pour $\phi = 0.5$.

Notons que la définition (1.4) suppose de manière implicite que le champ de vitesse «acoustique» des deux phases est le même, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de mouvement relatif [5, 8]. C'est effectivement le cas à basses fréquences acoustiques, lorsque la couche limite visqueuse est beaucoup plus grande que la taille des bulles, $\nu_l/\omega \gg R^2$ ($\nu_l = \mu_l/\rho_l$ est la viscosité cinématique du liquide, $\omega = 2\pi f$ est la fréquence angulaire et R est le rayon typique des bulles). Les bulles sont donc entraînées par la force visqueuse, laquelle domine les forces dynamiques. En effet, dans la limite contraire, $\nu_l/\omega \ll R^2$, et pour $\phi \ll 1$, il a été montré [6] que l'équation (1.7) doit être remplacée par

$$c_{\text{eff}}^2 \approx \frac{1 + 2\phi}{\rho_l \chi_g (1 - \phi)\phi}. \quad (1.8)$$

Donc, si les bulles bougent par rapport au liquide, les ondes acoustiques se propagent plus rapidement, l'accroissement étant néanmoins petit.

Remarquons enfin qu'aucune des expressions données pour c_{eff} ne prend en compte la structure du mélange gaz-liquide. Par ailleurs, ces expressions n'apportent aucune information sur l'amortissement du son dans ces types de mélange. Pour aborder ces points, il faut considérer la réponse des bulles au champ acoustique. Comme nous l'avons déjà mentionné, une bulle de gaz dans un liquide peut être considérée comme un oscillateur harmonique forcé. Dans le cas d'une bulle isolée qui oscille adiabatiquement, on peut donc définir une fréquence de résonance [21]

$$\omega_r^2 = \frac{3\gamma p_o}{\rho_l R^2}, \quad (1.9)$$

où γ est le rapport de capacités calorifiques et p_o est la pression à l'équilibre. Cette expression peut être interprétée de la manière suivante : une bulle de gaz a une raideur de l'ordre $\gamma p_o R$, donnée par la compressibilité du gaz, et une masse de radiation de l'ordre de $\rho_l R^3$, donnée par la densité du liquide ; donc, la fréquence de résonance est proportionnelle à $\sqrt{\gamma p_o / \rho_l R^2}$. Pour une bulle d'air de rayon $R \approx 10 \mu\text{m}$ dans l'eau, on a $\omega_r / 2\pi \approx 325 \text{ kHz}$. Il est intéressant de noter que la longueur d'onde à la résonance est $\lambda_r = 2\pi c_l / \omega_r \approx 4.5 \text{ mm} \gg R$, ce qui en acoustique est assez particulier au mécanisme de résonance des bulles². De plus, pour des bulles de petite taille, il faut prendre en compte les effets de tension de surface, et donc, on doit remplacer $p_o \rightarrow p_o + 2\sigma/R$ dans la définition de ω_r , σ étant la tension de surface. Nous allons montrer dans la suite comment prendre en compte la dynamique des bulles pour décrire l'acoustique du mélange gaz-liquide de façon plus détaillée.

Modèle de Wijngaarden-Papanicolaou

L'idée principale de ce modèle est de définir des quantités moyennes dès le départ [5, 8]. Donc, en plus de la densité moyenne du milieu ρ , définie par (1.5), on considère une vitesse moyenne $\vec{u}$ et une pression moyenne p , qui obéissent aux équations (linéarisées) de conservation de masse et d'impulsion³

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \rho \vec{\nabla} \cdot \vec{u} = 0, \quad (1.10)$$

$$\rho \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{\nabla} p = 0. \quad (1.11)$$

On cherche ensuite à déterminer la réponse d'une bulle soumise à un champ de pression dans le liquide. Le liquide étant considéré comme incompressible, le mouvement radial d'une bulle est décrit par l'équation de Rayleigh-Plesset [22],

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho_l} \left(p_g - \frac{2\sigma}{R} - 4\mu_l \frac{\dot{R}}{R} - p_\infty \right), \quad (1.12)$$

où p_g est la pression du gaz et p_∞ est la pression évaluée en $r \rightarrow \infty$, qui s'écrit $p_\infty = p_o + p_{inc}$, où p_{inc} est la pression acoustique incidente. Dans l'approximation des bulles indépendantes, on effectue l'approximation $p_{inc} \approx p$, puisque l'on considère que chaque bulle est forcée par l'onde de pression du mélange. Bien entendu, en ce qui concerne le modèle, on se limite aux termes linéaires de l'équation de Rayleigh-Plesset. Enfin, pour fermer le système d'équations on peut faire l'hypothèse de compressions adiabatiques,

$$p_g = p_o \left(\frac{R_o}{R} \right)^{3\gamma}, \quad (1.13)$$

2. En fait, de façon générale, on a cette situation dès que l'accord à la résonance est *temporel* et non *spatial*. Par exemple, en acoustique on a également $\lambda_r \gg R$ pour un résonateur de Helmholtz.

3. Pour simplifier l'écriture, nous notons $\langle \rho \rangle \equiv \rho$, etc.

où R_o est le rayon à l'équilibre.

On obtient à partir de ce système d'équations une relation de dispersion pour un nombre d'onde complexe [5, 8, 14] :

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c_l^2} + 4\pi\omega^2 \int_0^\infty \frac{RF(R)dR}{\omega_r^2 - \omega^2 - 2ib\omega}, \quad (1.14)$$

où b est la «constante» d'amortissement (qui dépend de R et ω) et $F(R)$ est la distribution normalisée de taille des bulles. On peut noter que cette relation de dispersion est analogue à celle de l'indice de réfraction complexe d'un gaz dilué ou d'un milieu diélectrique «non-denses» [23]. Pour un mélange gaz-liquide, b est la somme de trois termes, $b = b_v + b_{th} + b_{sc}$, ceux-ci étant donnés par la dissipation visqueuse autour de la bulle, la dissipation thermique à l'interface gaz-liquide et la diffusion du son par la bulle [15, 16, 17, 18]. A partir de cette relation de dispersion, la vitesse de phase et le coefficient d'absorption sont définis par

$$c = \frac{\omega}{\text{Re}[k(\omega)]}, \quad \alpha = \text{Im}[k(\omega)]. \quad (1.15)$$

Le point positif de ce modèle est qu'il donne des expressions explicites pour chaque terme de la constante d'amortissement b [14]. Il faut noter qu'une version plus complète [14] de ce modèle considère l'équation de l'énergie à l'intérieur de la bulle pour déterminer p_g au lieu de supposer une loi adiabatique comme dans l'équation (1.13). Remarquons également que cette relation de dispersion peut être obtenue avec une approche assez différente, celle de la diffusion multiple [8, 10, 24]. Le désavantage est que la constante b doit être introduite «à la main». L'équivalence des deux formalismes n'est pas évidente et elle a été discutée dans la référence [9].

Concernant la validité de la relation de dispersion (1.14) nous remarquons que lorsque les conditions $\omega \ll \omega_r$ et $\phi \ll 1$ sont remplies, un bon accord entre les valeurs théoriques et expérimentales de c et α est obtenu [14]. Par contre, ce modèle est en défaut dès que les interactions entre bulles sont importantes ; même pour des fractions volumiques de l'ordre de 5×10^{-4} , des différences entre théorie et expérience ont été observées pour $\omega \approx \omega_r$. La raison invoqué est la croissance de la section efficace de diffusion σ_s à la résonance qui invalide l'approximation des bulles indépendantes [14]. Par exemple, pour une bulle d'air de rayon $R = 0.1$ mm (resp. 1 mm), on a estimé que $\sigma_s/\pi R^2$, πR^2 étant la section géométrique, est de l'ordre de 750 (resp. 5600) à la résonance [14], ce qui montre que la diffusion est très importante et qu'on ne plus négliger les interactions acoustiques entre bulles. C'est seulement pour des distributions très étendues de taille de bulles [11] et pour des «écrans» bidimensionnels de bulles [12] qu'un accord satisfaisant est obtenu jusqu'à $\omega \gtrsim \omega_r$ [14].

Dans la plupart des cas, il est bien établi maintenant [15, 16, 17, 18] que lorsque la fréquence acoustique est inférieure à la fréquence de résonance des bulles, l'amortissement est largement dominé par la dissipation thermique. Dans le cas contraire, c'est la diffusion du son qui domine l'absorption⁴. Pour donner une idée des contributions relatives des trois

4. Une synthèse de ce problème est présentée dans le livre de Leighton, chapitre 4.4.2 [25]

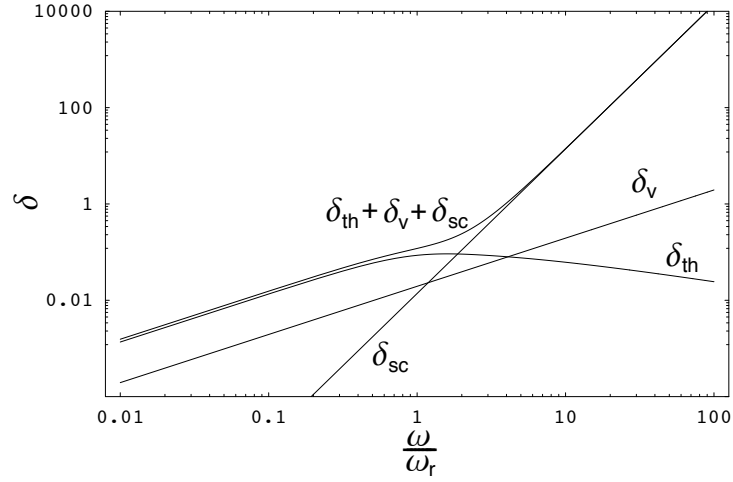


FIG. 1.4 – Contribution des mécanismes d’amortissement $\delta = \delta_{th} + \delta_v + \delta_{sc}$ en fonction de la fréquence normalisée ω/ω_r . Le milieu est un mélange eau-air et la taille des bulles est $R = 10 \mu\text{m}$. Le mécanisme d’amortissement dominant à basses fréquences (resp. hautes fréquences) est la dissipation thermique (resp. diffusion du son). La dissipation visqueuse est dominante pour $\omega < \omega_r$ et $R < 1 \mu\text{m}$.

mécanismes, nous définissons la constante d’amortissement sans dimension $\delta = 2b\omega/\omega_r^2$ et nous représentons dans la figure 1.4 le comportement des trois termes δ_{th} , δ_v et δ_{sc} [14, 17, 18], en fonction de la fréquence normalisée ω/ω_r , pour un mélange eau-air avec $R = 10 \mu\text{m}$. Il apparaît que pour les basses fréquences ($\omega < \omega_r$), l’amortissement est effectivement dominé par la dissipation thermique ; au contraire, à haute fréquence, celui-ci est dominé par la diffusion du son. Par exemple, pour $\omega/2\pi \approx 40 \text{ kHz}$ nous avons $\delta_{th} \approx 1.6 \times 10^{-2}$, $\delta_v \approx 2.4 \times 10^{-3}$ et $\delta_{sc} \approx 2.5 \times 10^{-5}$. Par ailleurs, il est connu que la dissipation visqueuse devient importante quand les bulles sont petites ; par exemple, pour un mélange air-eau, cette contribution domine seulement lorsque $\omega < \omega_r$ et $R \lesssim 1 \mu\text{m}$ [17]. Le fait que l’amortissement thermique soit important est dû grand contraste de propriétés thermiques du gaz et du liquide. La différence de température entre le centre de la bulle et le liquide peut être significative et, par conséquent, les forts gradients thermiques aux interfaces gaz-liquide dissipent de l’énergie de manière très efficace.

Remarquons enfin que l’effet des interactions entre bulles sur la propagation du son dans les mélanges gaz-liquide a été étudiée récemment de manière théorique, à faible [26, 27] et à haute concentration de bulles [28]. Il existe également quelques études concernant les interactions thermiques dans des émulsions périodiques et diluées [29]. Un résultat intéressant est que les interactions, acoustiques ou thermiques, semblent augmenter la vitesse du son dans le milieu effectif. A notre connaissance, il n’existe pas de confirmation expérimentale de cet effet.

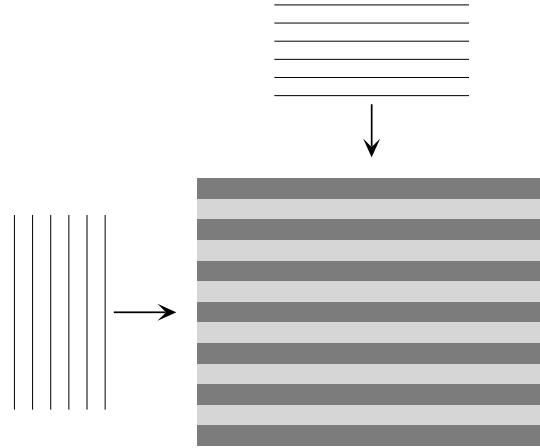


FIG. 1.5 – Schéma d'un milieu poreux formé par l'alternance périodique des couches fluides et solides. La propagation du son dépend de la direction de propagation.

1.2.2 Milieux poreux

Un milieu poreux est typiquement composé d'une matrice solide remplie par un fluide interconnecté, c'est-à-dire un milieu où l'on peut toujours connecter deux points de la phase solide (resp. fluide) par un chemin qui ne passe que par la phase solide (resp. fluide). Les propriétés physiques de tels milieux ont été étudiées en détail. En ce qui nous concerne plus particulièrement, l'acoustique de ces milieux a été étudiée tant expérimentalement que théoriquement [30]. Pour comprendre la différence essentielle entre la propagation du son dans les milieux poreux et les milieux désordonnés que nous avons considérés jusqu'à présent, nous allons prendre l'exemple d'un milieu poreux formé par l'alternance périodique d'un fluide et d'un solide, schématisé dans la figure 1.5. Les modes de propagation d'un tel système ont été calculés de façon exacte [31]. Dans le régime de longueur d'onde grande par rapport à l'épaisseur des couches, on montre l'existence de deux modes longitudinaux, avec deux vitesses différentes ; il y a donc un mode «rapide» et un mode «lent». Ceci est valide pour toutes les directions de propagation sauf pour celles perpendiculaires aux couches, où un seul mode peut se propager. Plus précisément, pour le mode rapide, les mouvements du fluide et du solide sont en phase, tandis que pour le mode lent, ils sont en opposition de phase. Grossièrement, on peut comprendre l'existence des deux vitesses si l'on considère que lors de la propagation dans la direction parallèle aux couches, une partie de l'onde peut se propager dans le fluide et une autre dans le solide. Notons que cette image très simple d'un milieu poreux a été réalisée expérimentalement [30], et qu'un bon accord avec la théorie a été observé. L'existence de ces deux modes longitudinaux de propagation et l'anisotropie en fonction de la direction de l'onde, laquelle est liée à l'anisotropie du milieu, sont peut-être les aspects caractéristiques de l'acoustique des milieux poreux. Concernant le cas plus réaliste d'un milieu poreux tridimensionnel et, en général, désordonné, la théorie semi-phénoménologique de Biot est considérée comme la théorie de milieu effectif la plus générale d'un système à deux composantes et ses prédictions ont été vérifiées expérimentalement [30].

Théorie de Biot

Nous allons maintenant discuter brièvement les hypothèses de la théorie de Biot [32, 33] et les résultats obtenus dans la limite de basses fréquences, c'est-à-dire la limite non-dissipative. Une bonne référence sur ce sujet est l'article de synthèse de Johnson [30].

On suppose que l'on peut décrire le système par deux vecteurs de déplacement moyens $\mathbf{u}$ et $\mathbf{U}$, pour le solide et le fluide respectivement⁵, tous les deux fonctions de $\vec{r}$ et t . Comme d'habitude, on suppose que la moyenne est réalisée sur un volume dr^3 grand par rapport à la taille des pores ou grains individuels, mais petit par rapport à la longueur d'onde acoustique. Pour obtenir l'équation dynamique, le système est considéré isotrope et homogène à l'échelle de la longueur d'onde; on écrit donc le Lagrangien du milieu, sans dépendance explicite en fonction du temps et de la position. Comme on cherche des équations de mouvement linéaires, on se limite aux termes quadratiques en $\mathbf{u}$ et $\mathbf{U}$ et à leurs dérivées. On prend en compte également dans ce formalisme la possibilité d'avoir une dissipation décrite par la *fonction de dissipation*, qui dépend des vitesses locales $\dot{\mathbf{u}}$ et $\dot{\mathbf{U}}$. En fait, le seul mécanisme considéré est la dissipation visqueuse due au mouvement relatif entre les deux phases; donc, cette fonction de dissipation ne dépend que des différences de vitesse $\dot{\mathbf{u}} - \dot{\mathbf{U}}$. Le résultat de cette approche est le système d'équations de mouvement suivant :

$$\rho_{11} \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} + \rho_{12} \frac{\partial^2 \mathbf{U}}{\partial t^2} = P \nabla (\nabla \cdot \mathbf{u}) + Q \nabla (\nabla \cdot \mathbf{U}) - N \nabla \times \nabla \times \mathbf{u} + bF(\omega) \left(\frac{\partial \mathbf{U}}{\partial t} - \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} \right) \quad (1.16)$$

$$\rho_{22} \frac{\partial^2 \mathbf{U}}{\partial t^2} + \rho_{12} \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} = R \nabla (\nabla \cdot \mathbf{U}) + Q \nabla (\nabla \cdot \mathbf{u}) - bF(\omega) \left(\frac{\partial \mathbf{U}}{\partial t} - \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} \right) \quad (1.17)$$

Dans ces équations, ρ_{11} , ρ_{12} , ρ_{22} , P , Q , N , R et b sont des paramètres phénoménologiques à définir. Nous remarquons que pour obtenir ces équations, on suppose que le fluide est interconnecté à l'intérieur de la matrice solide (de façon à ce qu'il n'y ait pas de forces engendrées par un mouvement relatif entre les deux centres des masses), ce qui élimine les termes du type $\mathbf{U} - \mathbf{u}$. On suppose également que le fluide n'engendre pas de cisaillements, ce qui élimine les termes du type $\nabla \times \nabla \times \mathbf{U}$. Concernant les paramètres ρ_{11} , ρ_{12} et ρ_{22} , on peut montrer [30] qu'ils peuvent être exprimés en fonction de la densité de chaque milieu, ρ_f et ρ_s , de la fraction volumique du fluide ϕ , et de la «tortuosité» α , un paramètre géométrique et, par conséquent, très dépendant du système considéré. A leur tour, les autres paramètres peuvent être exprimés, de façon plus ou moins compliquée, en fonction des variables macroscopiques, et donc «mesurables», du milieu [30], à savoir, la fraction volumique du fluide, les constantes élastiques de compression et de cisaillement de la matrice solide, K_b et N , et les constantes élastiques de compression du fluide et du solide *homogènes*, K_f et K_s . Ce système d'équations n'est pas du tout trivial; selon la fréquence acoustique et l'importance relative des modules élastiques du squelette solide et des deux

5. Nous allons utiliser la notation $\mathbf{U} \equiv \vec{U}$ pour les vecteurs.

phases, on peut effectivement avoir deux modes de propagation longitudinaux, un mode rapide et l'autre lent, et un mode de propagation transverse, c'est-à-dire des ondes de cisaillement [30]. Pour les basses fréquences, le mode lent devient diffusif et il ne s'agit plus vraiment d'un mode acoustique.

La limite de basse fréquence acoustique nous concerne plus particulièrement dans cette thèse. Le fluide est «accroché» à la matrice solide par le couplage visqueux, et donc $\mathbf{u} \approx \mathbf{U}$. Il n'y plus donc de dissipation, et il en résulte qu'on a seulement deux modes de propagation, un mode longitudinal et un mode transverse, les vitesses étant données par :

$$c_l^2 = \frac{H}{\langle \rho \rangle}, \quad c_t^2 = \frac{N}{\langle \rho \rangle}, \quad (1.18)$$

où

$$H = \frac{K_s + [\phi(K_s/K_f) - (1 + \phi)]K_b}{1 - \phi - K_b/K_s + \phi(K_s/K_f)} + \frac{4}{3}N. \quad (1.19)$$

Il est intéressant de noter que si nous négligeons la rigidité et le module de cisaillement du squelette par rapport aux constantes élastiques du fluide et du solide, on récupère la formule de Wood (1.4) pour un milieu diphasique. Cependant, pour des milieux poreux «réels», il est difficile d'imaginer un squelette mou si celui-ci est précisément formé par la phase solide. Notons enfin que le fait de prendre en compte la rigidité de la matrice solide, tant en compression que sous cisaillement, change complètement l'expression de la vitesse du son du mode longitudinal et induit également l'existence du mode transverse.

Compléments

1.A Exemple de système conservatif avec une dissipation apparente : un oscillateur harmonique couplé à une corde infinie

Nous allons présenter dans ce paragraphe un modèle simple de système conservatif avec une dissipation apparente. L'objectif est de montrer que le simple fait de coupler un oscillateur à un «champ ondulatoire» permet qu'une partie de l'énergie soit rayonnée vers l'infini. Ceci introduit une sorte de dissipation dans le système, et si nous ne prenons en compte que l'oscillateur, nous observons que celui-ci est régi par l'équation du mouvement d'un oscillateur harmonique amorti. Dans le calcul que nous exposons, nous allons lier cette brisure de symétrie temporelle au choix d'une solution ondulatoire divergente.

La figure 1.6 présente le schéma du système. Nous allons considérer une masse m située à l'origine du système des coordonnées (x, y) . Cette masse, fixée à un ressort de raideur K , est couplée à une corde infinie de densité de masse σ (par unité de longueur) et tension τ . La masse est soumise à un forçage $f(t)$ (unité de force) dans la direction y . Pour simplifier le calcul nous allons négliger l'effet de la gravité.

Notons $h(x, t)$ le déplacement de la corde par rapport à l'équilibre. Il est facile de

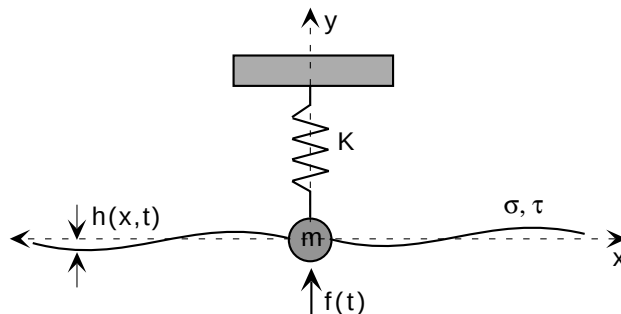


FIG. 1.6 – Schéma d'un oscillateur couplé à une corde. La corde est infinie, de densité de masse σ (par unité de longueur) et tension τ . La vitesse des ondes dans la corde est $c = \sqrt{\tau/\sigma}$ et la fréquence propre de l'oscillateur est $\omega_o = \sqrt{K/m}$. La masse est soumise à un forçage $f(t)$ (unité de force) dans la direction y .

montrer que l'équation de mouvement du système est

$$\sigma \left[1 + \frac{m}{\sigma} \delta(x) \right] \frac{\partial^2 h}{\partial t^2} = \tau \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \delta(x)(-Kh + f(t)), \quad (1.20)$$

où $\delta(x)$ est la fonction delta de Dirac⁶. En fait, pour $x \neq 0$, nous avons l'équation d'onde pour la corde

$$\frac{\partial^2 h}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 h}{\partial t^2} = 0, \quad (1.21)$$

avec $c^2 = \tau/\sigma$. Il faut noter que la condition limite $x \rightarrow \pm 0$ de cette équation dépend de la dynamique de la masse. Par ailleurs, si l'on intègre l'équation (1.20) entre $-\epsilon$ et $+\epsilon$, avec $\epsilon \rightarrow 0$, nous obtenons l'équation suivante pour m :

$$m \frac{\partial^2 h}{\partial t^2} \Big|_0 - \tau \left[\frac{\partial h}{\partial x} \Big|_{+0} - \frac{\partial h}{\partial x} \Big|_{-0} \right] + Kh(0,t) = f(t), \quad (1.22)$$

où les dérivées partielles sont évaluées soit en $x = 0$ ou $x = \epsilon \rightarrow \pm 0$. Cette équation a bien la forme attendue : un terme d'inertie, un terme de force exercée par la corde sur la masse ($\sim \tau \partial h / \partial x$), un terme de raideur du ressort et un terme de forçage externe. Néanmoins, la variable $h(0,t)$ et ses dérivées dépendent du comportement de la corde, et l'équation n'est donc pas «fermée».

En fait, le but est justement de trouver une équation «fermée» pour le mouvement de la masse m . Pour ce faire nous allons introduire les transformées de Fourier spatiale et temporelle:

$$\begin{aligned} \tilde{h}(k,t) &= \int_{-\infty}^{\infty} h(x,t) e^{-ikx} dx, \\ \tilde{h}(x,\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} h(x,t) e^{i\omega t} dt, \end{aligned}$$

6. Fonction delta de Dirac,

$$\delta(x - x') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{ik(x-x')} dk.$$

Cette fonction vaut ∞ si $x = x'$ et 0 si $x - x' \neq 0$, telle que l'intégrale soit normalisée,

$$\int_{-\infty}^{\infty} \delta(x) dx = 1.$$

et aussi les transformées inverses :

$$\begin{aligned} h(x,t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{h}(k,t) e^{ikx} dk, \\ h(x,t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{h}(x,\omega) e^{-i\omega t} d\omega. \end{aligned}$$

Avec cette notation, $\tilde{h}(k,\omega)$ représente la double transformée de Fourier spatiale et temporelle de $h(x,t)$. De l'équation (1.20) on obtient donc

$$\tilde{h}(k,\omega) = \frac{m}{\sigma} \frac{\omega^2 - \omega_o^2}{(ck)^2 - \omega^2} \tilde{h}(x=0,\omega) + \frac{1}{\sigma} \frac{1}{(ck)^2 - \omega^2} \tilde{f}(\omega). \quad (1.23)$$

Nous notons que pour écrire cette équation nous avons négligé les termes de «surface» des intégrales réalisées par parties. Plus précisément, nous avons supposé $h \rightarrow 0$, $\partial h / \partial t \rightarrow 0$ pour $t \rightarrow \pm\infty$, et $h \rightarrow 0$, $\partial h / \partial x \rightarrow 0$ pour $x \rightarrow \pm\infty$. Ceci semble raisonnable du point de vue physique.

Nous prenons maintenant la transformée de Fourier spatiale inverse de cette équation,

$$\tilde{h}(x,\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{h}(k,\omega) e^{ikx} dk \quad (1.24)$$

$$= \left[\frac{mc^2}{\sigma} (\omega^2 - \omega_o^2) \tilde{h}(0,\omega) + \frac{c^2}{\sigma} \tilde{f}(\omega) \right] \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{ikx}}{k^2 - (\omega/c)^2} dk. \quad (1.25)$$

Pour résoudre l'intégrale dans cette dernière ligne, il suffit de reconnaître

$$\frac{1}{(\omega/c)^2 - k^2}$$

comme la double transformée de Fourier, $\tilde{\tilde{G}}_o(k,\omega)$, de la fonction de Green, $G_o(x,t)$, de l'équation d'onde unidimensionnelle. L'intégrale dans (1.25) représente donc la transformée de Fourier spatiale inverse de $\tilde{\tilde{G}}_o(k,\omega)$, de solution [4]

$$\tilde{\tilde{G}}_o(\omega,x) = \pm \frac{c}{i\omega} e^{\pm i\frac{\omega}{c}x}, \quad (1.26)$$

où le signe + (−) représente des ondes divergentes (convergentes) à partir de (vers) l'origine. Concernant notre problème, nous choisissons le signe + car nous sommes intéressés aux solutions divergentes à partir de la masse. De plus, ce choix est consistant avec le fait que la corde est infinie : l'énergie fournie par le forçage $f(t)$ est donc émise par la masse

sous forme d'ondes divergentes, et cette énergie est donc «perdue» à l'infini. Nous avons donc

$$\tilde{h}(x, \omega) = \left[\frac{mc^2}{\sigma} (\omega^2 - \omega_o^2) \tilde{h}(0, \omega) + \frac{c^2}{\sigma} \tilde{f}(\omega) \right] \frac{ic}{\omega} e^{+i\frac{\omega}{c}x}. \quad (1.27)$$

Nous pouvons maintenant évaluer $\tilde{h}(x, \omega)$ en $x = 0$,

$$\tilde{h}(0, \omega) = \frac{ic}{\omega} \left[\frac{mc^2}{\sigma} (\omega^2 - \omega_o^2) \tilde{h}(0, \omega) + \frac{c^2}{\sigma} \tilde{f}(\omega) \right], \quad (1.28)$$

et on trouve une équation «fermée» pour l'amplitude de Fourier temporelle de la position de la masse :

$$\tilde{h}(0, \omega) = \frac{\tilde{f}(\omega)/m}{\omega_o^2 - \omega^2 - 2i\omega\sigma c/m}. \quad (1.29)$$

Enfin, nous pouvons prendre la transformée de Fourier temporelle inverse, et nous trouvons une équation fermée pour la masse m :

$$m \frac{\partial^2 h_o}{\partial t^2} + \frac{2\sigma c}{m} \frac{\partial h_o}{\partial t} + K h_o = f(t), \quad (1.30)$$

où $h_o \equiv h(x = 0, t)$. Cette équation est bien celle d'un oscillateur harmonique forcé mais avec un terme dissipatif, de constante de dissipation $2\sigma c/m$ (cette constante est un rapport entre l'impédance acoustique σc de la corde et la masse m , homogène à l'inverse d'un temps). Ce terme a le «bon» signe, c'est-à-dire il s'agit d'un amortissement. En fait, ce signe dépend du choix de la solution ondulatoire divergente ; si nous choisissons le signe $-$ de l'équation (1.26), et nous considérons donc les ondes convergentes, nous avons comme résultat la même équation dynamique pour m mais avec une dissipation négative. Le système est donc instable, ce qui correspond à la situation où la corde fournit de l'énergie à la masse.

Cette exemple montre clairement comment un système conservatif peut avoir une dissipation apparente. Le système complet conserve l'énergie, mais c'est le couplage de la masse avec le «champ ondulatoire» de la corde qui donne un mécanisme pour transporter de l'énergie vers l'infini. Si l'on considère que la dynamique de la masse, nous observons qu'elle a le comportement d'un oscillateur harmonique avec un terme d'amortissement. Ceci est analogue au problème de la propagation d'ondes dans les systèmes désordonnés où la diffusion élastique domine, c'est-à-dire où l'on néglige tous les mécanismes dissipatifs possibles. Dans ce cas, on trouve pour l'onde cohérente un coefficient d'absorption qui dépend du libre parcours moyen élastique. Comme dans notre modèle simple, mais maintenant à travers la diffusion des ondes, l'énergie est retirée de l'onde incidente pour être transportée vers l'infini.

1.B Modes normaux d'une chaîne désordonnée d'oscillateurs

Pour montrer l'effet du désordre sur la propagation des ondes, nous allons exposer l'exemple très simple d'une chaîne unidimensionnelle d'oscillateurs harmoniques. Nous

allons montrer qu'un faible désordre dans le système suffit pour changer complètement l'allure des vecteurs propres à petite longueur d'onde: les modes étendus du système ordonné deviennent localisés.

Nous considérons une chaîne de N particules identiques de masse m liées par des ressorts de constantes de raideur K_n (voir figure 1.7). Chaque particule est décrite par une coordonnée $x_n(t)$, mesurée à partir de la position d'équilibre. L'équation de la particule n est donc :

$$m \frac{d^2 x_n}{dt^2} = K_n(x_{n+1} - x_n) + K_{n-1}(x_{n-1} - x_n). \quad (1.31)$$

Nous considérons un désordre dans les constantes de raideur tel que

$$K_n/m \equiv G_n = 1 + \varepsilon_n, \quad (1.32)$$

où ε_n est une variable aléatoire, de distribution uniforme entre $-\varepsilon^*$ et $+\varepsilon^*$. En l'absence du désordre, i.e. $\varepsilon_n = 0 \forall n$, ce problème a une solution exacte [34], sous forme d'ondes progressives

$$x_n \propto e^{i(kna - \omega t)}, \quad (1.33)$$

où k est le nombre d'onde, ω est la pulsation et a est la distance initiale entre particules. Avec des conditions aux limites périodiques, on a quantification du nombre d'onde, $k_n = 2\pi n/aN$. En reportant la solution (1.33) dans l'équation (1.31), on trouve la relation de dispersion

$$\omega_n = 2\omega_o |\sin(k_n a/2)|, \quad (1.34)$$

où $\omega_o = \sqrt{K/m}$ est la pulsation propre des oscillateurs.

Dans le cas désordonné on ne peut plus vraiment parler d'une relation de dispersion (pour une réalisation donnée du désordre), mais on peut résoudre la famille d'équations (1.31) de façon numérique. Pour le faire nous utilisons

$$x_n \propto e^{-i\omega t}, \quad (1.35)$$

dans l'équation (1.31), et nous obtenons l'équation matricielle suivante

$$(\mathbf{G} - \omega^2 \mathbf{I}) \vec{x} = 0. \quad (1.36)$$

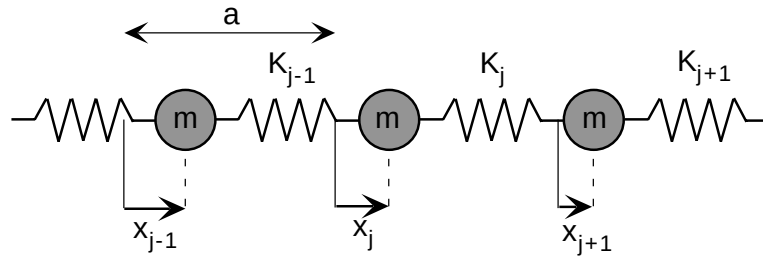


FIG. 1.7 – Schéma de la chaîne 1D d'oscillateurs harmoniques. Nous considérons le cas du désordre dans les constantes de raideur des ressorts. Les conditions aux limites sont périodiques.

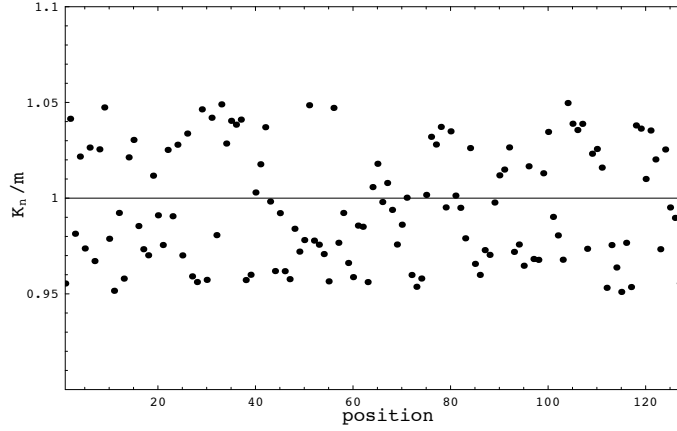


FIG. 1.8 – Une réalisation de valeurs aléatoires de K_n/m pour une chaîne de 128 oscillateurs : $K_n/m \equiv G_n = 1 + \varepsilon_n$. ε_n est une variable aléatoire, de distribution uniforme entre $-\varepsilon^*$ et $+\varepsilon^*$; dans ce cas, $\varepsilon^* = 0.05$.

Dans cette équation, $\mathbf{I}$ est la matrice unitaire, de dimension $N \times N$, et $\mathbf{G}$ est une matrice tridiagonale,

$$\mathbf{G} = \begin{bmatrix} G_1 + G_N & -G_1 & 0 & 0 & \dots & \dots & 0 \\ -G_1 & G_1 + G_2 & -G_2 & 0 & \dots & \dots & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & \dots & -G_{n-1} & G_{n-1} + G_n & -G_n & \dots & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & \dots & \dots & \dots & 0 & -G_{N-1} & G_N + G_{N-1} \end{bmatrix}. \quad (1.37)$$

Nous notons que les conditions aux limites périodiques sont prises en compte dans cette matrice, dans le terme $G_1 + G_N$ de la première ligne. L'équation matricielle (1.36) est donc une équation aux valeurs propres pour $\mathbf{G}$. Pour une configuration donnée du désordre, nous avons donc N valeurs propres et N vecteurs propres de la matrice $\mathbf{G}$. Les vecteurs propres correspondent ainsi aux modes propres de la chaîne d'oscillateurs.

La figure 1.8 montre une réalisation du désordre pour $\varepsilon^* = 0.05$ et $N = 128$. Nous présentons aussi les valeurs propres $\lambda = \omega^2$ obtenues pour cette réalisation dans la figure 1.9a (les valeurs propres sont présentées dans l'ordre croissant). Nous comparons ce résultat avec le cas ordonné, où l'on sait que $\lambda = \omega^2$ est donné par la relation de dispersion (1.34). Pour le cas désordonné, avec désordre faible, les valeurs propres sont très proches de celles de la chaîne ordonnée. La différence relative est en moyenne petite, de l'ordre de 0.3% comme on peut le constater dans la figure 1.9b. Nous notons que cette différence relative est plus importante pour les valeurs propres les plus élevées, de l'ordre de 1%, c'est-à-dire pour celles qui correspondent aux petites «longueurs d'onde». La divergence de $\lambda/\lambda_0 - 1$ vers $-\infty$ pour $j = 1$ est artificielle (numérique) car le premier vecteur propre correspond à une translation constante de toute la chaîne, et donc, tant dans le cas ordonné que désordonné, $\lambda_1 = 0$.

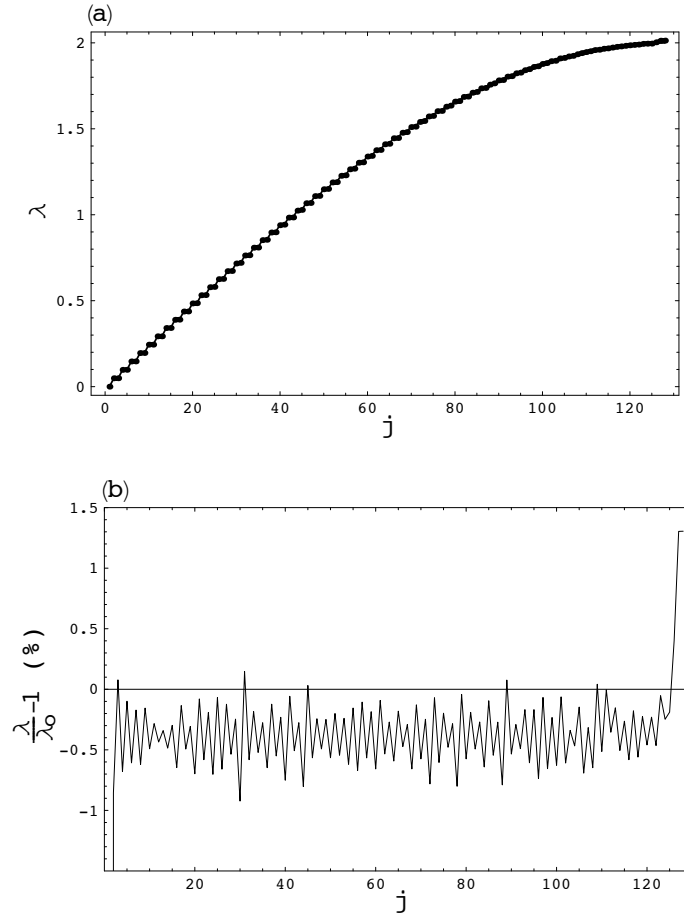


FIG. 1.9 – (a) Valeurs propres sans (trait continu) et avec désordre ($\bullet$) ; les valeurs propres sont présentées dans l'ordre croissant. Dans cette figure, j est donc un indice pour chaque valeur propre. Dans le cas ordonné, la courbe correspond à la relation de dispersion des ondes dans la chaîne, $\omega_j = 2\omega_o |\sin(k_j a/2)|$. (b) Erreur relative $\lambda/\lambda_o - 1$ exprimé en %.

Dans la figure 1.10 nous présentons deux vecteurs propres $j = 10$ (figures a et b) et $j = 128$ (figures c et d) pour chaque cas étudié : le cas désordonné (figures a et c) et le cas ordonné (figures b et d). Le désordre correspond à la même réalisation que précédemment. Nous observons que lorsque la longueur d'onde est grande par rapport à la distance entre particules, c'est-à-dire par rapport à l'échelle caractéristique du désordre, les vecteurs propres sont presque identiques (figures a et b). Par contre, à courte longueur d'onde, les vecteurs propres sont complètement différents. La figure 1.10d montre un cas extrême, où le vecteur propre est devenu localisé à cause du désordre. En fait, ce mode décroît de façon exponentielle, comme le montre la figure 1.11, la distance de localisation étant $\xi \approx 5a$.

En conclusion, ce problème relativement simple montre qu'un faible désordre dans le système suffit pour changer complètement l'allure des vecteurs propres à petite lon-

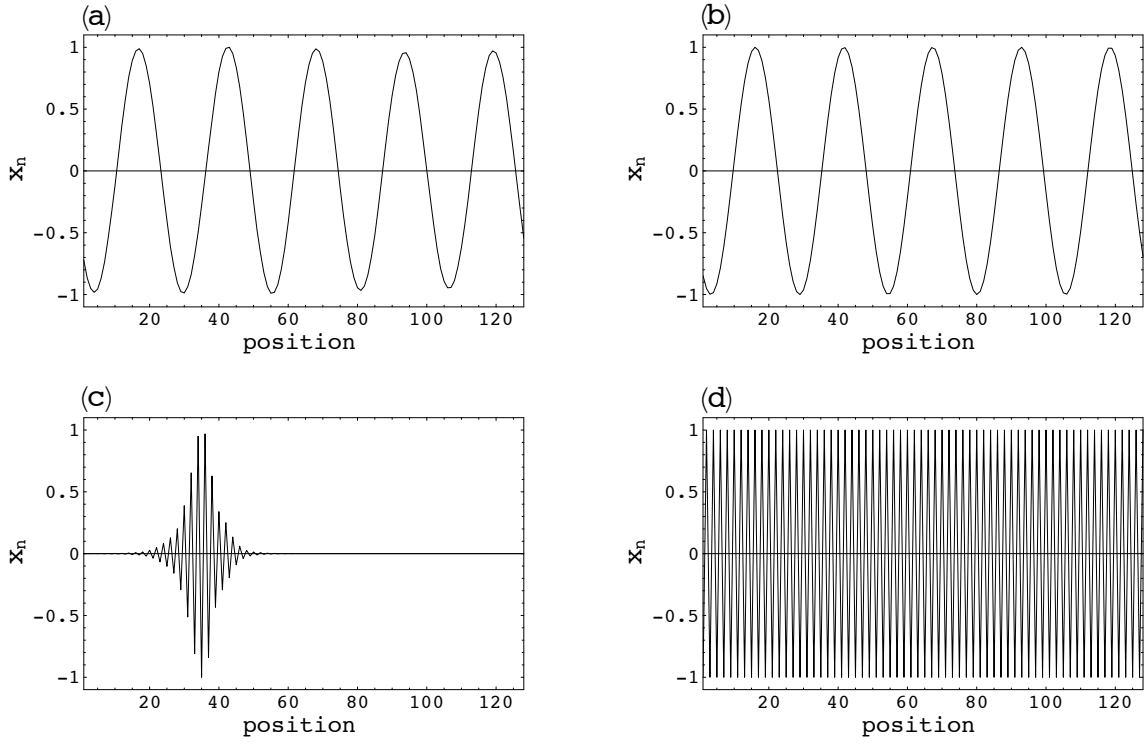


FIG. 1.10 – Vecteurs propres $j = 10$ (a-b) et $j = 128$ (c-d) dans la chaîne 1D, pour le système désordonné, (a) et (c), $\varepsilon^* = 0.05$, et pour le cas ordonné, (b) et (d).

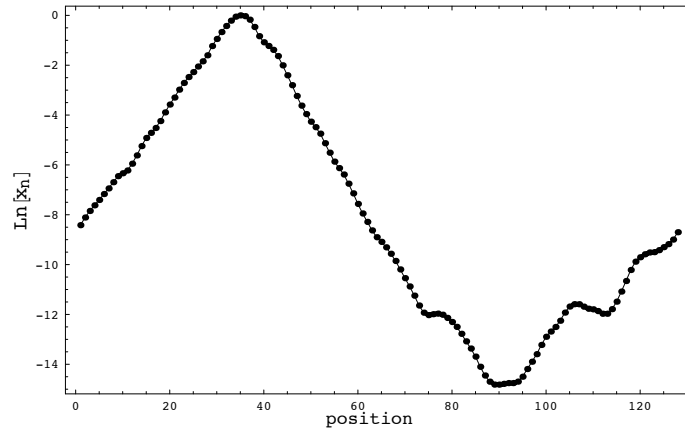


FIG. 1.11 – Module de l'amplitude du mode localisé en fonction de la position, en échelle Ln-linéaire. La décroissance du mode est bien exponentielle, de distance de localisation $\xi \approx 5a$. Le vecteur propre est le même que dans la figure 1.10c.

gueur d'onde. En effet, on peut même avoir un mode localisé. Ce résultat est bien connu dans la littérature : dans les systèmes unidimensionnels désordonnés, pour n'importe quel degré de désordre, les modes propres deviennent localisés dès que la taille du système est suffisamment grande [4].

Chapitre 2

Acoustique des mousses

Dans ce chapitre nous présentons une étude expérimentale sur l'acoustique des mousses. Les expériences consistent à mesurer la propagation de trains d'ondes longitudinaux dans les mousses. Nous étudions aussi l'effet du vieillissement sur l'acoustique de ces systèmes.

Après d'une introduction à l'acoustique des mousses nous présentons quelques propriétés physiques de ces systèmes dans le paragraphe 2.2 . Ensuite, dans le paragraphe 2.3, nous décrivons les mousses à raser utilisées dans les expériences («Gillette», du type «Classique» [35]). Dans le paragraphe 2.4 nous présentons quelques résultats sur la propagation d'ondes dans les films de savon. Un résumé des principaux résultats expérimentaux est présenté ensuite, dans le paragraphe 2.5. La partie principale de ce chapitre est présentée sous la forme d'un article, publié dans *Physical Review E* (Août 2002). Enfin, dans les compléments au chapitre nous présentons des résultats expérimentaux concernant l'effet du drainage sur l'évolution de la densité moyenne et la reproductibilité des mesures acoustiques.

2.1 Introduction

Une mousse liquide est un mélange gaz-liquide où $\phi \sim 1$ (ϕ étant la fraction volumique de gaz). Les bulles sont alors en contact les unes avec les autres. Quand la fraction volumique de liquide est inférieure à 1% on parle d'une mousse sèche ; dans le cas contraire, il s'agit d'une mousse humide. Contrairement au cas de mélanges gaz-liquides dilués, il y a très peu d'études sur l'acoustique des mousses, tant expérimentales [36, 37, 38, 39, 40] que théoriques [41, 42]. D'un point de vue expérimental, nous pensons que ceci est dû en partie à l'importante atténuation acoustique observée et en partie à la difficulté d'obtenir des distributions de tailles de bulles de façon bien reproductible.

Néanmoins, Orenbakh et Shushkov ont obtenu quelques résultats intéressants [36, 39]. Dans la gamme $\phi = 0.95 - 0.99$, ils ont comparé leurs résultats expérimentaux sur la vitesse du son à la prédiction théorique donnée par le milieu effectif (eq. (1.4) du paragraphe 1.2.1)), et ont obtenu un accord satisfaisant. Pour une fraction volumique de gaz de 0.95 ils ont mesuré $c \approx 50$ m/s. Cette valeur est beaucoup plus faible que celle de la vitesse du son dans chaque milieu homogène. De plus, ils ont mesuré le coefficient d'absorption

α dans la gamme de fréquence $f = 1 - 3$ kHz ; ils ont trouvé que celui-ci varie entre 1 et 5 m^{-1} de façon plus ou moins monotone avec f . Ces valeurs correspondent à longueurs d'absorption de l'ordre de 1 à 0.25 m. On trouve donc que le mélange est beaucoup plus dissipatif que chaque milieu homogène. Enfin, en dehors de cette étude expérimentale, les résultats relatifs à la dépendance de c en fonction de ϕ sont assez confus dans la littérature. La référence [42] présente une synthèse des travaux expérimentaux connus à l'époque. On trouve des variations importantes pour les valeurs mesurées de c en fonction de ϕ . En général, les valeurs expérimentales sont supérieures à la prédiction théorique donné par le milieu effectif, d'un facteur qui varie entre 10 et 50%. Ceci nous indique que le paramètre ϕ ne semble pas être suffisant pour caractériser la vitesse du son dans une mousse, même dans la limite où la longueur d'onde est grande par rapport aux tailles de bulles, $\lambda \gg \langle R \rangle$.

Une différence très importante entre une mousse et un mélange gaz-liquide dilué est que celle-ci présente une réponse élastique aux déformations de cisaillement. Une mousse a donc un module de cisaillement non nul. Ainsi, on peut envisager la mesure d'une vitesse de cisaillement associée aux ondes transverses. À notre connaissance il n'existe qu'une seule étude expérimentale concernant ce type d'ondes : dans le régime $\lambda \gg \langle R \rangle$, Sun *et al.* [40] ont mesuré une vitesse de cisaillement de l'ordre de 3 m/s, encore plus faible que la vitesse des ondes de compression. La différence d'un ordre de grandeur entre les deux vitesses montre qu'il est « plus facile » de cisailier une mousse que de la comprimer.

2.2 La physique des mousses

Dans cette partie nous présentons les propriétés physiques des mousses, en particulier celles qui sont pertinentes pour notre étude acoustique. Le lecteur peut se reporter aux références [43, 44, 45] pour plus de détails sur les mousses.

Il est bien connu qu'une mousse se comporte comme un fluide de Bingham [43] : pour de faibles contraintes de cisaillement une mousse répond donc de façon viscoélastique, mais elle coule pour des contraintes plus importantes. La transition est caractérisé par une contrainte critique dite de limite élastique. Entre les deux régimes, une mousse se comporte de manière plastique, des réarrangements topologiques apparaissent et les déformations deviennent irréversibles. Dans le régime viscoélastique, une déformation de cisaillement globale, dans le sens macroscopique, induit une déformation de surface pour chaque bulle. Il en résulte donc que le module élastique de cisaillement d'une mousse est de la forme

$$G^* \propto \sigma / \langle R \rangle, \quad (2.1)$$

où σ est la tension de surface. Selon la taille moyenne des bulles, le module élastique varie donc entre 1 et 100 Pa. Cette valeur est relativement faible par rapport au module élastique d'un solide ($\sim 10^{10}$ Pa). Ceci explique pourquoi il est relativement « facile » d'induire des déformations plastiques et non linéaires dans un système mou comme une mousse. Les effets de réarrangements topologiques et du vieillissement d'une mousse sur ses propriétés viscoélastiques et plastiques ont été étudiés en détail récemment [46, 47, 48, 49, 50]. Cependant, il existe peu de mesures du module élastique de dilatation ou de compression

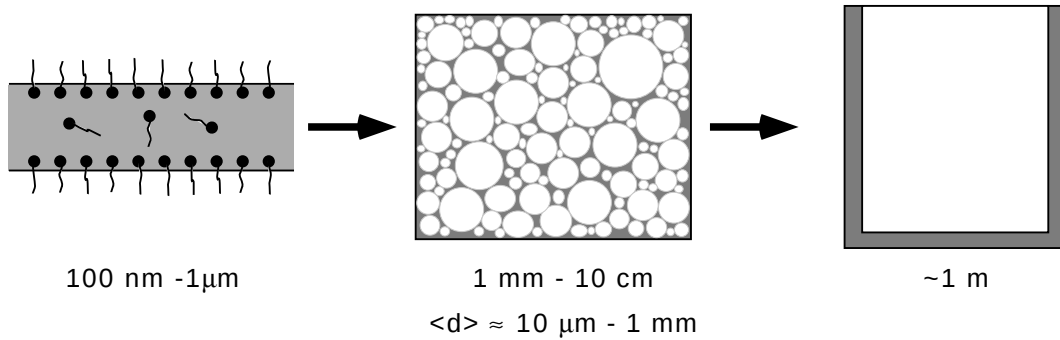


FIG. 2.1 – Échelles de longueur caractéristiques dans une mousse : (a) les molécules tensioactives ont une taille de l'ordre de 1 nm, l'épaisseur des films liquides ≈ 100 nm – 1 μ m ; (b) Le diamètre des bulles varie entre 10 μ m et 1 mm ; (c) pour des applications industrielles, une mousse peut facilement occuper un volume de l'ordre de 1 m³ ou plus.

d'une mousse. On estime qu'il est de l'ordre de 10^5 Pa [44, 51] car il serait dominé par la compressibilité du gaz. Il faut noter que l'élasticité du squelette liquide n'est pas prise en compte dans ce type d'estimation (voir paragraphe 2.4).

Une autre caractéristique des mousses est l'existence de trois échelles de longueur importantes (voir figure 2.1). La première est l'échelle microscopique des films liquides, déterminée par des effets moléculaires. La seconde est l'échelle dite mésoscopique, donnée par la taille des bulles, où la géométrie de la structure liquide joue un rôle important. Nous avons enfin l'échelle macroscopique, où on traite le système comme un milieu homogène continu. Généralement parlant nous pouvons associer ces trois échelles à : la chimie, la physique et au génie des procédés respectivement. En tant que physiciens nous étudions comment les caractéristiques d'une mousse à l'échelle méso ou macroscopique, telles que sa stabilité et ses propriétés rhéologiques, acoustiques, ou mécaniques en général, dépendent de sa structure et de ses propriétés physico-chimiques.

Une mousse est un système métastable, et, comme dans le cas des milieux granulaires, les fluctuations thermiques sont trop faibles pour permettre l'exploration de l'espace des phases. L'état du système correspond donc à un des minima possibles d'énergie et, de plus, cet état dépend de l'histoire du système. Mais cette métastabilité est apparente, car une mousse vieillit avec le temps, de façon continue jusqu'à son éventuelle disparition (dans le cas d'une mousse de taille finie). Il existe trois mécanismes de vieillissement :

- (i) Sous l'action de la gravité et de la capillarité le liquide coule naturellement, ce qui engendre des gradients de densité dans l'échantillon : c'est le drainage d'une mousse.
- (ii) Si une paroi liquide qui sépare deux bulles est trop mince, elle peut devenir instable. Un trou peut s'y former, la paroi se casse et deux bulles voisines peuvent fusionner : c'est la coalescence des bulles.
- (iii) Le gaz diffuse entre deux bulles voisines sous l'effet de gradients de pression

induits par les différences de courbure des interfaces gaz-liquide. La quantité de gaz dans les bulles varie avec le temps : c'est le « mûrissement » d'une mousse.

Pour stabiliser une mousse il faut empêcher l'amincissement des films liquides et ralentir le drainage et la diffusion du gaz dans le liquide. Pour minimiser le drainage il faut augmenter les forces visqueuses aux interfaces gaz-liquide. Pour cela on peut soit augmenter la fraction volumique du gaz pour amincir les films (ce qui est plutôt négatif si on veut aussi minimiser la coalescence), ou augmenter la viscosité du liquide par addition de polymères, comme dans le cas des mousses à raser. Pour empêcher l'amincissement des films on introduit des molécules amphiphiles chargées, lesquelles sont adsorbées de chaque côté de ces films. Les interfaces se repoussent donc à cause des charges électriques de ces molécules. De plus, ces molécules diminuent la tension de surface du mélange gaz-liquide, ce qui réduit l'énergie nécessaire à la formation d'une bulle. En général, la distribution de tailles des bulles est aléatoire, et le mûrissement est donc toujours présent. Pourtant, on peut choisir un gaz peu soluble dans un liquide donné, et on peut alors minimiser ainsi la diffusion du gaz entre bulles voisines. Selon les applications envisagées on peut chercher à inhiber ou à favoriser un ou plusieurs de ces mécanismes.

D'un point de vue physique, un cas assez intéressant est celui du vieillissement dominé par le mûrissement. La croissance de bulles est donc analogue à la croissance de grains observée par les métallurgistes lorsqu'ils recuisent un métal [52, 53]. Si le mûrissement domine, on pense qu'une mousse atteint un régime permanent de façon asymptotique, du type auto-similaire. La structure de la mousse est donc esclave de l'évolution temporelle d'une seule longueur, qui peut être la taille moyenne des bulles $\langle R(t) \rangle$. Plus précisément, si on dilate l'échelle de longueur du système, la distribution de taille des bulles $F(R, t)$ devient asymptotiquement indépendante du temps. Ceci s'exprime sous la forme

$$F(R, t) = a(t, t_o) F(a(t, t_o) R, t_o), \quad (2.2)$$

où $a(t, t_o) = \langle R(t_o) \rangle / \langle R(t) \rangle$ est le facteur de dilatation. Comme conséquence de cette évolution, il a été montré que $\langle R(t) \rangle$ est solution de l'équation [52]

$$\langle R(t) \rangle^{3(1-\beta)} - \langle R(t_o) \rangle^{3(1-\beta)} = A(t - t_o). \quad (2.3)$$

Le paramètre β est obtenu à partir de l'équation

$$\frac{d\langle V \rangle}{dt} = C \langle V \rangle^\beta, \quad (2.4)$$

où $\langle V \rangle$ est le volume moyen d'une bulle. Dans une mousse humide, où chaque bulle est sphérique, la concentration du gaz diffusé dans le liquide diminue de façon sphérique. On trouve $\beta = 0$ [52, 53], et asymptotiquement on a $\langle R(t) \rangle \propto t^{1/3}$. Par contre, dans une mousse sèche, quand les films sont minces, le flux du gaz entre bulles est indépendant de l'épaisseur des films. Le flux volumique de gaz est donc de la forme

$$j_n = \lambda \Delta p, \quad (2.5)$$

où $\lambda = \text{const}$ et $\Delta p \propto 1/\langle R \rangle$ est la différence de pression de Laplace entre deux bulles voisines. Comme

$$\frac{d\langle V \rangle}{dt} = - \int_{\partial V} j_n \cdot \hat{n} dS, \quad (2.6)$$

on trouve

$$\frac{d\langle V \rangle}{dt} \propto \langle R \rangle \propto \langle V \rangle^{1/3} \quad (2.7)$$

et $\beta = 1/3$ [52, 53]. Asymptotiquement on a donc $\langle R(t) \rangle \propto t^{1/2}$. Dans ce cas, l'équation (2.3) nous donne la loi dite parabolique

$$\langle R(t) \rangle^2 - \langle R(t_o) \rangle^2 = A(t - t_o). \quad (2.8)$$

Dans les expériences on cherche à mesurer l'évolution de $\langle R(t) \rangle$ pour déterminer si la mousse suit une évolution auto-similaire. Les expériences sur des mousses bidimensionnelles ont l'avantage de permettre la visualisation directe de la structure d'une mousse. En fait, dans le cas des mousses bidimensionnelles sèches, où le mûrissement est dominant, il a été montré que les relations (2.2) et (2.8) sont bien vérifiées [54]. Concernant les mousses tridimensionnelles, les premières vérifications expérimentales ont été obtenues avec les mousses à raser «Gillette», du même type que celles que nous utilisons dans nos expériences. Des mesures du libre parcours moyen optique [55, 48] et du module élastique de cisaillement [48] ont montré, de manière indirecte, que l'évolution de ces mousses suit bien asymptotiquement la loi $\langle R(t) \rangle \propto t^{1/2}$. Ce n'est que récemment que des techniques de visualisation ont été développées pour les mousses tridimensionnelles, telles que la tomographie optique [56, 57]. Dans ces études, réalisées avec des échantillons de mousse plus sèches et donc plus transparentes optiquement, la loi parabolique a été vérifiée sous une forme différente

$$\langle V_f(t) \rangle^{2/3} - \langle V_f(t_o) \rangle^{2/3} \propto (f - f_o)(t - t_o), \quad (2.9)$$

où V_f est le volume d'une bulle de f faces et f_o est le nombre moyen de faces.

Finalement, l'important à retenir de cette discussion est que sous certaines conditions, le mécanisme de vieillissement dominant est le mûrissement des mousses. L'évolution est alors asymptotiquement auto-similaire, et le rayon moyen des bulles suit l'équation (2.3). Quand les films liquides sont minces tel que le flux volumique de gaz est donné par (2.5), le rayon moyen des bulles suit la loi parabolique (2.8). C'est le cas des mousses à raser «Gillette», comme il a été montré expérimentalement [55, 48].

Néanmoins, il faut faire attention à l'évolution temporelle de la densité due au drainage du liquide. Pour les mousses à raser «Gillette», des observations expérimentales ont montré que la fraction volumique du gaz reste à peu près constante pendant les premières deux heures du vieillissement [48]. Ensuite, le drainage du liquide induit un gradient de densité, la mousse devient plus sèche vers le haut de l'échantillon et plus humide vers le bas. Au centre, la fraction volumique moyenne du gaz augmente lentement; après 4 heures (respectivement 8 heures) de vieillissement, elle augmente 0.5% (respectivement 1%), et donc la densité moyenne au centre diminue 7% (respectivement 14%). Les faibles variations de ϕ induisent des variations de densité assez importantes. En général, le drainage dépend

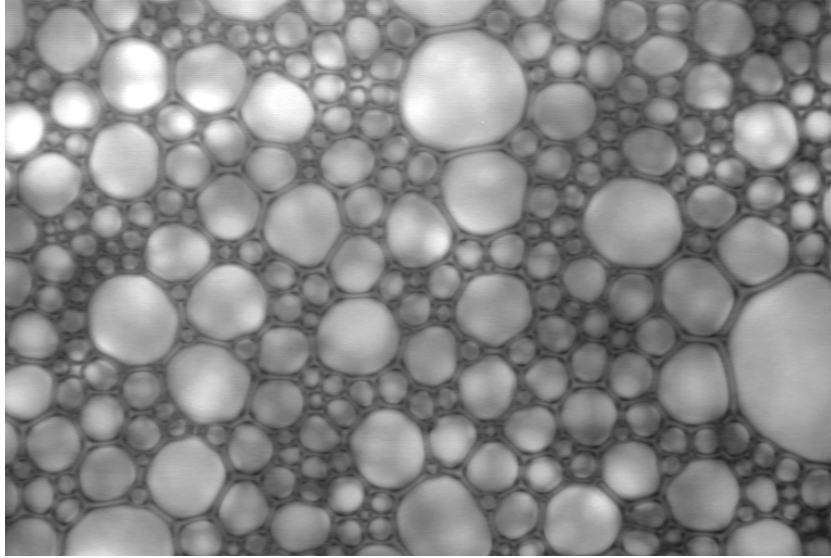


FIG. 2.2 – Image microscopique d'une mousse à raser.

de la géométrie de l'échantillon de mousse, en particulier de sa hauteur. Ces nombres ne sont donc pas « universels », mais les ordres de grandeur correspondent bien aux variations de densité que nous trouvons dans nos propres échantillons de mousse (voir paragraphe 2.A).

2.3 Les mousses à raser

Dans toutes nos expériences nous utilisons des mousses à raser «Gillette», du type «Classique» [35]. Ce choix a été motivé en partie par la grande quantité de travaux expérimentaux qui ont été réalisés avec ces mousses et aussi en raison de la stabilité et de la reproductibilité des échantillons [55, 48, 49]. Le fait que la taille moyenne des bulles évolue avec le temps, permet de disposer d'un paramètre du système qui varie de manière naturelle avec le vieillissement. En travaillant à différentes fréquences, et donc longueurs d'onde acoustique, nous pouvons ainsi explorer une large gamme du paramètre $\lambda/\langle R \rangle = 20 - 1500$.

Une mousse à raser est un mélange gaz-liquide dont approximativement 90% est du gaz, lequel est principalement un mélange d'Isobutane et de Propane. Dans la phase liquide il y a une forte concentration de molécules tensioactives et de polymères. Dans une bonbonne de mousse à raser, le gaz se trouve dilué dans le liquide de façon sursaturé. Le tout est sous pression et, lors de la formation d'une mousse, les bulles sont engendrées par nucléation du gaz. Dans les bières et les boissons gazeuses le mécanisme de formation des bulles est le même.

La figure 2.2 présente l'image d'une mousse à raser, prise à l'aide d'un microscope quelques minutes après sa formation. Le diamètre moyen des bulles est de l'ordre de 30 μm , et nous observons une grande distribution de tailles des bulles. Le films liquides

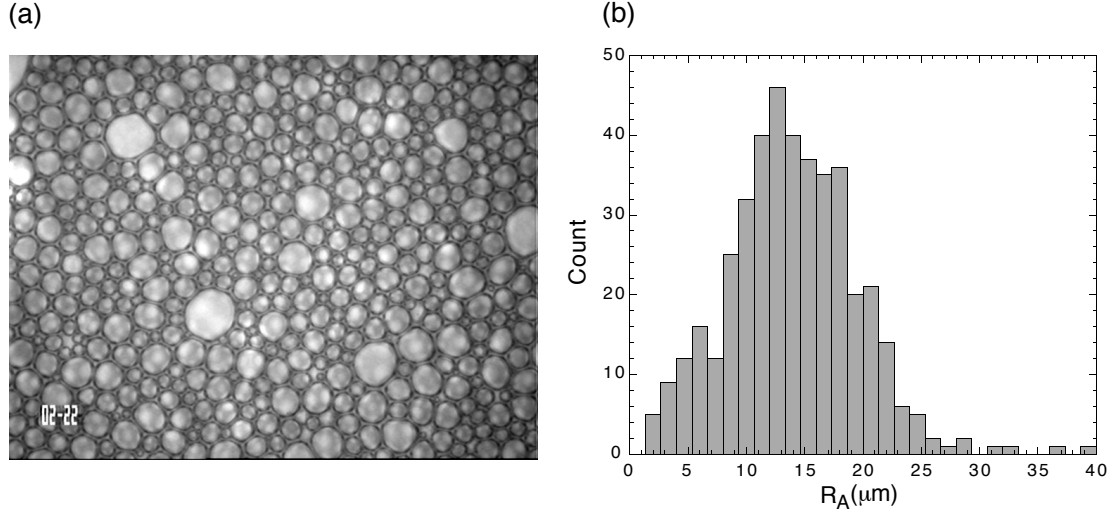


FIG. 2.3 – (a) Image microscopique d’une mousse à raser. Le rayon moyen est $\langle R_A \rangle \approx 14 \pm 5.5 \mu\text{m}$ et la fraction volumique du gaz est $\phi \approx 0.92$. (b) Histogramme de R_A , le nombre total de bulles est 420.

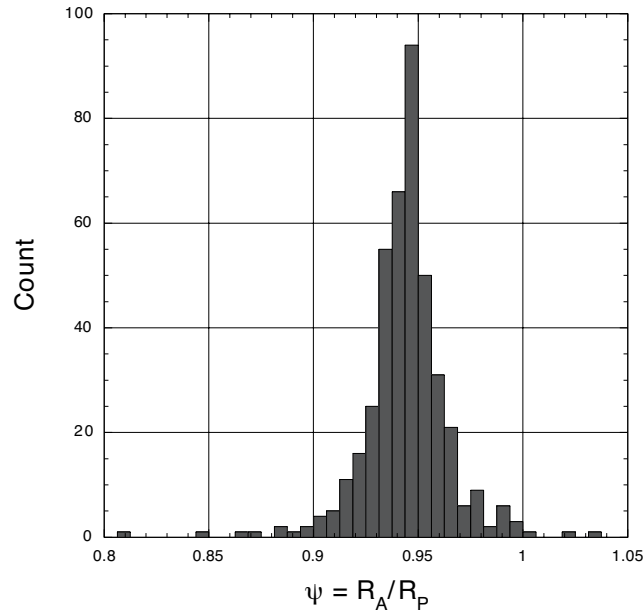


FIG. 2.4 – Histogramme de $\psi = R_A/R_P$, $\langle \psi \rangle = 0.94 \pm 0.03$. Pour une bulle sphérique, $\psi = 1$. En 2D, pour des polygones réguliers de $n = 5, 6, 7$ et 8 côtés, $\psi \approx 0.930, 0.952, 0.965$ et 0.974 respectivement.

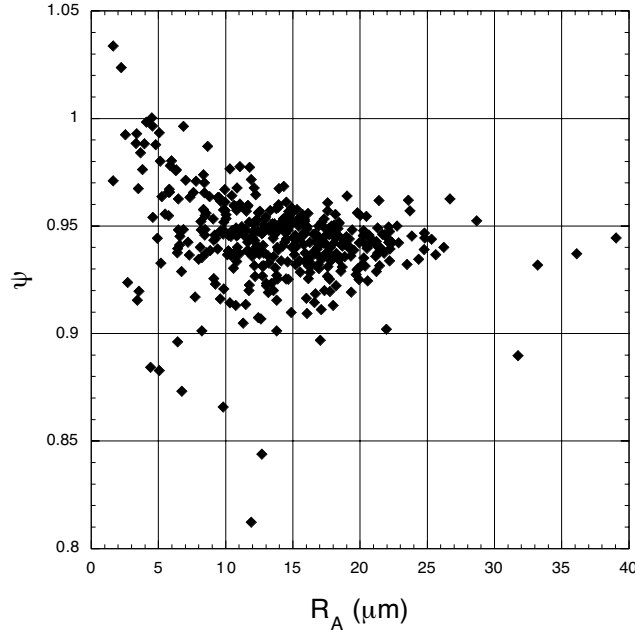


FIG. 2.5 – Corrélation entre ψ et R_A . Les bulles les plus sphériques sont celles de plus petite taille.

sont plutôt minces, pas supérieurs à $1 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Les bulles ne sont pas tout à fait sphériques, les plus petites bulles semblent être les plus sphériques. On remarque que même si ces mousses sont considérées comme humides, l'épaisseur des films liquides est assez mince, et nous pouvons donc nous attendre à ce que le flux du gaz entre bulles voisines soit bien décrit par l'équation (2.5). Ceci est consistant avec le fait que ces mousses suivent la loi parabolique (2.8).

Plus quantitativement, nous pouvons mesurer à partir de la photographie, l'aire A_b , et le périmètre P_b , de chaque bulle. Nous présentons un exemple dans la figure 2.3. Nous définissons les rayons $R_A = \sqrt{A_b/\pi}$ et $R_p = P_b/2\pi$ tels que pour une bulle sphérique $R_A = R_p$. La figure 2.3b montre l'histogramme de R_A obtenu à partir des 420 bulles de l'image 2.3a (les bulles qui touchent les bords ne sont pas prises en compte). Les rayons varient entre quelques μm 's et $40 \mu\text{m}$. Le rayon moyen est $\langle R_A \rangle \approx 14 \pm 5.5 \mu\text{m}$ et la fraction volumique du gaz est $\phi \approx 0.92$.

Nous définissons le paramètre de «sphéricité» $\psi = R_A/R_p$ tel que pour une bulle sphérique $\psi = 1$. La figure 2.4 montre l'histogramme de ψ obtenu aussi à partir de l'image 2.3a. Dans cette image bidimensionnelle d'une mousse, nous pouvons essayer d'ajuster les bulles par de polygones réguliers de n côtés. Il est facile à montrer que le paramètre ψ_n d'un des polygones réguliers est donné par

$$\psi_n = \sqrt{\frac{2\pi}{n \sin \theta_n}} \sqrt{\cos^2 \theta_n / 2 - \frac{1}{4} \sin^2 \theta_n} \quad (2.10)$$

où $\theta_n = 2\pi/n$. ψ_n prend approximativement les valeurs 0.930, 0.952, 0.965 et 0.974 pour

$n = 5, 6, 7$ et 8 . Nous observons que dans cette projection bidimensionnelle d'une mousse, les bulles ont en moyenne un nombre de faces voisin de 6. En fait, il est bien connu qu'à deux dimensions, le réseau de périmètre optimal est hexagonal [45]. Enfin, la corrélation entre ψ et R_A est présentée dans la figure 2.5. Comme nous l'avons observé, nous trouvons que les bulles les plus sphériques sont celles de plus petite taille.

2.4 L'élasticité des films de savon

Avant de présenter notre étude acoustique, nous allons exposer quelques résultats sur les ondes qui peuvent se propager dans un film de savon. L'intérêt est de mettre en évidence le comportement élastique de ces films, dont l'élasticité est due à la présence de molécules amphiphiles.

Un film composé d'un liquide pur peut propager deux types d'ondes : un mode asymétrique, où les surfaces sont en opposition de phase, et un mode symétrique, où les surfaces sont en phase (voir figure 2.6). Ces deux modes sont connus comme les modes de Taylor [58]. Le mode symétrique a la relation de dispersion suivante :

$$\omega = k \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho_l h}}, \quad (2.11)$$

où σ est la tension de surface, ρ_l la densité du liquide et h est l'épaisseur du film. Le mode asymétrique est dispersif, la relation de dispersion étant

$$\omega = k^2 \sqrt{\frac{\sigma h}{2\rho_l}}. \quad (2.12)$$

Ce mode est très amorti car il induit des variations locales d'épaisseur, et engendre donc un mouvement de liquide dans le film (voir figure 2.6b). En pratique, le mode asymétrique est observé plus facilement.

Concernant les films de savon, il est bien connu que la présence de molécules amphiphiles donne des propriétés élastiques aux films liquides [51, 59, 60, 61]. Cette élasticité est due à la redistribution de molécules tensioactives entre la «surface» et le «volume» d'un film lors de déformations. Quand cette déformation est lente par rapport au temps de diffusion τ_D des molécules tensioactives¹, on parle d'élasticité de Gibbs, et les molécules ont donc le temps de diffuser entre la surface et le volume. Dans le cas contraire, il s'agit de l'élasticité de Marangoni, et les molécules n'ont pas le temps d'émigrer du volume à la surface (ou vice-versa). La déformation du film liquide change donc l'aire de la surface tout en conservant le nombre de molécules à la surface constant. Si le film est étiré (comprimé), la concentration de molécules amphiphiles diminue (augmente) et la tension de surface augmente (diminue). C'est la variation de tension de surface qui donne l'élasticité aux films de savon.

1. $\tau_D = h^2/D_{ch}$ correspond au temps mis par les molécules pour émigrer depuis une surface à l'autre (D_{ch} est la constante de diffusion des molécules tensioactives). Pour des faibles concentrations, et pour $h \sim 1 \mu\text{m}$, on a $\tau_D \sim 0.01 \text{ s}$. Néanmoins, en présence d'impuretés, $\tau_D \sim 1 \text{ s}$ [51, 59].

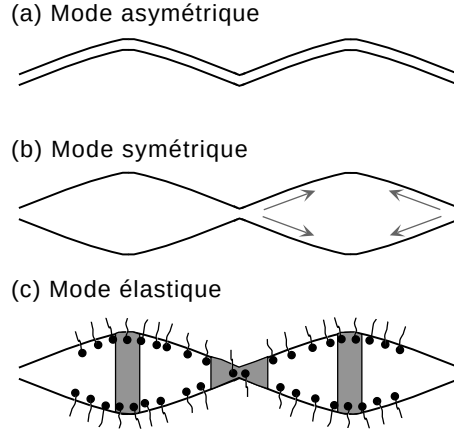


FIG. 2.6 – Ondes dans un film liquide. (a-b) Modes de Taylor : modes asymétrique et symétrique dans un film de liquide pur. (c) Mode élastique symétrique dans un film de savon. En gris on montre les zones de compression-étirement-compression respectivement.

La propagation d'ondes dans les films de savon a été étudiée par Lucassen *et al.* [60, 61]. Ils ont montré l'existence d'un mode élastique, en plus de deux modes de Taylor. Ce mode est symétrique (figure 2.6c) et il implique deux mécanismes de variation locale d'épaisseur, le premier étant dû à l'écoulement visqueux du liquide (de façon analogue au mode symétrique de Taylor) et le deuxième, à l'étirement et à la compression du film aux ventres de l'onde. Nous notons que pour le deuxième mécanisme les variations d'épaisseur sont dues aux variations de concentration de molécules tensioactives à la surface du film. En fait, il a été montré que ce mécanisme est dominant par rapport au premier [51]. Plus exactement, si $(\partial h / \partial t)_1$ ($(\partial h / \partial t)_2$) est la vitesse locale de la surface due à l'écoulement visqueux (étirement du film), on a

$$\frac{(\partial h / \partial t)_1}{(\partial h / \partial t)_2} \sim \left(\frac{h}{\lambda} \right)^2 \ll 1, \quad (2.13)$$

où λ est la longueur d'onde du mode élastique. Donc, pendant une période d'oscillation, l'écoulement visqueux n'a pas le temps de se mettre en place et le film se comprime et s'étire comme un milieu élastique.

Le mode élastique a donc pour relation de dispersion [61]

$$\omega = k \sqrt{\frac{2E}{\rho_l h}} + i\beta, \quad (2.14)$$

où $\beta = 2\nu_l k^2$ est le coefficient d'amortissement, ν_l est la viscosité cinématique du liquide, $E = 2d\sigma/d\ln A$ représente l'élasticité du film de savon et A est l'aire du film. En général, ce mode est peu amorti, i.e. $\beta \ll \omega$.

Il est intéressant de remarquer que cette élasticité n'a pas été prise en compte dans les estimations de compressibilité de volume d'une mousse qu'on peut trouver dans la

littérature [44, 51]. Nous allons montrer qu'il est bien nécessaire de le faire, tant pour expliquer la valeur mesurée du module élastique de volume d'une mousse que son évolution temporelle.

2.5 Résumé des principaux résultats expérimentaux

En raison de la variation de la taille moyenne des bulles avec le vieillissement et des différentes fréquences acoustiques explorées, le paramètre $\lambda/\langle R \rangle$ varie entre 1500 et 20 dans nos expériences. Nous explorons donc les deux régimes $\lambda \gg \langle R \rangle$ et $\lambda \gtrsim \langle R \rangle$. Dans le premier régime on peut s'attendre à vérifier les prédictions de la théorie du milieu effectif. Dans le second régime on s'attend à avoir une forte dissipation de l'onde acoustique ou des effets importants de diffusion multiple et d'interaction entre bulles.

Nos expériences montrent que tant la vitesse du son que l'absorption varient lors du vieillissement des mousses. Nous vérifions que la vitesse du son est bien donnée en première approximation par le milieu effectif. Néanmoins, pour une mousse jeune, la vitesse du son est approximativement 50% plus élevée que la valeur prédite par cette théorie. De plus, la vitesse du son décroît avec l'âge de la mousse, d'environ 20% après les deux premières heures de mûrissement. Tout ceci n'est pas du tout expliqué par la théorie du milieu effectif, car nous nous attendions à ce que dans la limite $\lambda \gg \langle R \rangle$, les propriétés acoustiques d'une mousse ne dépendent que de la composition du milieu diphasique et pas de sa structure géométrique. La prise en compte de l'élasticité du squelette liquide de la mousse à l'aide de la théorie de Biot non-dissipative donne un bon accord tant qualitatif que quantitatif avec nos mesures de vitesse du son à basse fréquence. Nous montrons ainsi que pour bien déterminer la vitesse du son, il est nécessaire de connaître la structure d'une mousse, même dans le régime $\lambda \gg \langle R \rangle$.

Comme on pouvait s'y attendre, l'atténuation acoustique dans une mousse est très importante par rapport à celle de deux phases homogènes. Nous trouvons que l'atténuation par longueur d'onde est proportionnelle au temps de vieillissement et à la fréquence acoustique, soit $\alpha\lambda \propto \langle R \rangle^2 f$. A partir de ce résultat, on conclut que l'atténuation d'énergie acoustique est dominée par la dissipation thermique aux couches limites des interfaces gaz-liquide. Ceci est dû au grand contraste des propriétés acoustiques et thermiques entre le gaz et le liquide.

2.6 Copie de l'article

« **Sound velocity and absorption in a coarsening foam** »

Nicolás Mujica & Stéphan Fauve,

Physical Review E, Août 2002.

Sound velocity and absorption in a coarsening foam

Nicolás Mujica* and Stéphan Fauve

Laboratoire de Physique Statistique, Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France

(Received 10 December 2001; revised manuscript received 4 June 2002; published 19 August 2002)

We present experimental measurements of sound velocity and absorption in a commercial shaving foam. We observe that both quantities evolve with time as the foam coarsens increasing its mean bubble radius $\langle R \rangle$. By varying the acoustic frequency we probe the foam from the large wavelength regime, $\lambda \approx 1500\langle R \rangle$, down to the scale $\lambda \approx 20\langle R \rangle$. Sound absorption α varies significantly with both the foam age and the excitation frequency. After an initial transition time of 20 min, the attenuation per wavelength, $\alpha\lambda$, varies linearly with the foam age. In addition, for evolution times smaller than ≈ 90 min, we observe that $\alpha\lambda$ scales linearly with both foam age and frequency. From these scalings we show that the thermal dissipation mechanism is the dominant one. Sound velocity c is initially frequency independent but the medium becomes slightly dispersive as the foam coarsens. We observe that sound velocity depends on the evolution of the structure of the foam, even in the large wavelength regime. After 2 h of foam coarsening, c decreases at least by a factor of 20%, due to the softening of the foam. These facts are explained by considering the liquid matrix elasticity, due to the presence of surfactant molecules. A simple model of foam structure, combined with results of Biot's theory for porous media, gives both good qualitative and quantitative agreement with our experimental results in the low frequency regime.

DOI: 10.1103/PhysRevE.66.021404

PACS number(s): 82.70.Rr, 43.20.+g

I. INTRODUCTION

Sound propagation through bubbly liquids has attracted much attention, from both theoretical [1–5] and experimental points of view [6–10]. The presence of gas bubbles in a liquid profoundly affects its acoustic properties. For example, a common feature of bubbly liquids is the very low speed of sound that can be reached, even at very small gas volume fractions. In general, the effective sound speed c_{eff} can be lower than both the speed in the pure liquid c_l and in the pure gas c_g . This reduction is in fact due to the high contrast of acoustic properties of both media. More precisely, the density of the mixture is dominated by the density of the liquid and its compressibility is given by that of the gas, thus a lower effective sound velocity is expected.

It is also known that liquids containing a small amount of gas bubbles possess a relatively high sound attenuation compared to the gas-free liquid [11,12]. The sound wave damping is mainly due to three mechanisms, namely, the viscosity of the surrounding liquid, the gas thermal conductivity, and the scattering of sound by the bubble [11–14]. We note that the last mechanism is not a dissipative phenomenon, but it effectively removes energy from the incident sound wave, reemitting it in other directions than the incident one.

Most of theoretical and experimental studies on sound propagation in bubbly liquids deal with the limit of very small gas volume fraction $\phi \ll 1$. In addition, theoretical models generally assume that the acoustic wavelength is much larger than the typical bubble size. Commander and Prosperetti [10] give an extensive review of the subject and show the validity of an effective-medium approach (the van

Wijngaarden–Papanicolaou model [1,4,5]) by comparison with the experimental data available at the time. They conclude that the quoted model is valid for acoustic frequencies ω much smaller than the bubble resonant frequency ω_r . Even at gas volume fractions of the order of 5×10^{-4} , discrepancies between the experimental and theoretical values of sound attenuation were found for $\omega \approx \omega_r$. They offer as explanation the fact that at resonance the scattering cross section of a single bubble increases dramatically, then breaking down the assumption that the bubbles do not interact. The problem of the effect of bubble interactions on the sound propagation has been theoretically studied only recently, both at low [15] and high gas volume fractions [16]. An interesting prediction of these theoretical studies is that the sound velocity is found to increase with respect to the noninteracting effective-medium result [15,16], but almost no experimental work has been carried out to test this result.

If we increase ϕ enough, bubbles will eventually come in contact, producing a foam. Contrary to bubbly liquids of small gas volume fraction, very little work has been done on sound propagation through foams. From an experimental point of view we believe that this is due to the high absorption of acoustic waves in these systems, which makes acoustic measurements a difficult task. Another possible reason is the difficulty in obtaining reproducible bubble distributions, a problem also found in the experiments concerning low bubble concentrations [10]. However, some interesting experimental results were obtained by Orenbakh and Shushkov [17], who present an attempt of verification of the dependence of the effective sound velocity c on the gas volume fraction ϕ [as given by Eq. (2) of Sec. I B]. For $\phi \approx 0.95$ they measured $c \approx 50$ m/s, which is of the order of our measured values. In addition, they measured the sound attenuation coefficient α ; for acoustic frequencies between 1 and 3 kHz they found that it varies from 1 to 5 m^{-1} . Another interesting work is the study of shear wave propagation by

*Permanent address: Departamento de Física, Facultad de Ciencias Físicas y Matemáticas, Universidad de Chile, Avenida Blanco Encalada 2008, Santiago, Chile.

Sun *et al.* [18], where a much lower velocity $c \approx 3$ m/s was reported. The difference in magnitude between the compressional and shear velocities shows that a foam is much easier to shear than to compress. Concerning theoretical studies, Gol'dfarb and co-workers have studied the heat transfer effect on the absorption of sound in foams [19,20]. We note that they neglect the heat transfer between bubbles, thus neglecting thermal interactions. In Ref. [20] they also review the experimental results known at the time and they compare them with their theory. Concerning the ϕ dependence of c , the situation seems somewhat confusing, as they present some experimental results in agreement with their prediction and some others in disagreement. In general, the few experimental results that they were aware of seem to indicate that c is higher than the predicted value given by a simple effective-medium approach, the difference varying from 10% to 50%.

In this work we present an experimental study of sound propagation through a coarsening shaving foam (Gillette regular [21]). We study the aging and the frequency dependence of acoustic propagation. In particular, we show that sound velocity and absorption are quantities that evolve in time. As the mean bubble radius grows by coarsening and by varying the acoustic frequency, we are then able to vary the acoustic wavelength λ from the large wavelength regime, $\lambda \approx 1500\langle R \rangle$, down to $\lambda \approx 20\langle R \rangle$, where $\langle R \rangle$ is the mean bubble radius. In the later regime either dissipative effects or multiple scattering effects and bubble interactions are expected to become important. From the dependence of the sound absorption on both time and sound frequency we can also identify the dominant damping mechanism as the thermal dissipation. Finally, we also address in this paper the question of the theoretical prediction of the sound speed in a foam and the mechanism that explains its evolution, namely, the liquid matrix elasticity due to the presence of surfactant molecules. To our knowledge, this is the first experimental study of the acoustic properties of a coarsening foam.

This paper is organized as follows: we first review some general characteristics of aqueous foams in Sec. I A and the theoretical treatments of sound propagation through bubbly liquids in Sec. I B. The experimental setup and the acoustic measurement methods are presented in Sec. II. We then present our experimental results in Sec. III and we show how the foam coarsening is probed by acoustic measurements. Finally, a discussion of our results and the conclusions are given in Sec. IV.

A. Aqueous foams

Aqueous foams are diphasic systems with a high concentration of gas bubbles in a liquid matrix of small volume fraction, thus $\phi \lesssim 1$. In general, surfactant molecules are present in the liquid in order to decrease the bubble surface tension (reducing then the energy required to form a bubble) and to increase the stability of the liquid films.

An important characteristic of foams is that they are never in equilibrium. They are intrinsically unstable and evolve in time. Three aging mechanisms can be identified: (i) the liquid can drain due to gravity, imposing density gradients in

the sample; (ii) the films that separate bubbles can become too thin and, in consequence, unstable, causing their rupture and the coalescence of adjacent bubbles; (iii) the bubble volume can vary due to gas diffusion through the liquid films due to Laplace pressure differences. In foams of high concentration of bubbles, i.e., of high gas volume fraction, there are large viscous forces that oppose the fluid drainage. In fact, polymers are generally added to the liquid to increase its viscosity, thus mechanism (i) can be very slow. Also, if surfactants are added to the liquid, the bubble interfaces are very stable under coalescence processes, so mechanism (ii) is negligible too. As in most foams the bubble size distribution is random, so process (iii) cannot be eliminated and it always occurs. Nevertheless, gases of poor solubility and poor diffusivity can be used to minimize coarsening. Thus, under certain conditions, the dominant aging mechanism is the gas diffusion between bubbles. This is indeed the case in shaving foams, as it has been shown experimentally [22,23].

When the coarsening process is due to interbubble gas diffusion, experiments have shown that foams reach a scaling state [22–24]. This means that the foam structure is dominated by the time evolution of a single length scale, which can be the radius mean value $\langle R(t) \rangle$ (the average is performed over a given bubble configuration). More precisely, this means that if we rescale the bubble radius by this time-dependent length, then the bubble size distribution becomes asymptotically time independent. As a consequence of this scaling state, it has been shown that the mean bubble radius follows a parabolic law of the form [25]

$$\langle R(t) \rangle^2 - \langle R(t_0) \rangle^2 \approx A(t - t_0), \quad (1)$$

where t_0 is an arbitrary reference time and A is a constant. Previous experiments on shaving foams give $\langle R(t) \rangle \approx 15, 30$, and $50 \mu\text{m}$ for $t \approx 20, 120$, and 480 min [22,23]. In practice, the parabolic law is used to test if the foam has reached a scaling state or not.

Nevertheless, some attention should be drawn to the foam density evolution due to drainage. Experimental observations on Gillette regular samples, of ≈ 7 cm height, show that the average gas volume fraction remains constant for the first 2 h of foam aging [23]. At later times, ϕ is seen to increase slowly and a density gradient appears in the sample (ϕ increases more rapidly at the higher part of the sample). After 4 and 8 h, the spatial average of ϕ increases by a factor of 0.5% and 1%, respectively (the spatial average is taken over two measurements, at 1.5 and 5 cm above the bottom of the vessel). Thus, over the same time scales, the average density decreases by factors of $\sim 7\%$ and $\sim 14\%$, respectively. Such relatively small changes in ϕ are crucial to the density changes, which can indeed affect the foam acoustic properties. It must be noticed that as drainage depends on the foam sample geometry, in particular, on its height, these numbers are not universal. However, they agree in order of magnitude with the density changes of our own foam samples.

B. Theoretical aspects of sound propagation in bubbly liquids

This section consists in a review of the most important aspects of sound propagation through bubbly liquids in the

limit $\phi \ll 1$. Nevertheless, we note that the very definition of the effective sound speed does not depend on this limit.

The most simple effective-medium approach states that when the wavelength is much larger than the scale of the inhomogeneities, the wave propagation does not depend on the fine details of the mixture. The wave then probes an effective homogeneous medium with average acoustic properties [1,4,5,10]. Thus, for a liquid/gas mixture we can write for the effective sound speed,

$$c_{\text{eff}}^2 = \frac{1}{\langle \rho \rangle \langle \chi \rangle}, \quad (2)$$

where $\langle \rho \rangle = \phi \rho_g + (1 - \phi) \rho_l$ and $\langle \chi \rangle = \phi \chi_g + (1 - \phi) \chi_l$ are the average density and the average compressibility, respectively. We note that this definition is quite general, in the sense that it is used for different kinds of diphasic systems, such as suspensions, emulsions, and bubbly liquids. It was apparently first written by Wood [26] and Herzfeld [27], and is often referred as Wood's formula. In this simple model, the system is characterized by the knowledge of the macroscopic quantity ϕ , and no details on the statistical bubble distribution are needed.

In the case of bubbly liquids, $\rho_l \gg \rho_g$ and $\chi_l \ll \chi_g$, and Eq. (2) takes the approximated form

$$c_{\text{eff}}^2 \approx \frac{1}{\rho_l \chi_g (1 - \phi) \phi}. \quad (3)$$

We note that this expression implicitly assumes that the liquid and the bubbles move with the same velocity throughout the acoustic wave. This is indeed the case at low acoustic frequencies, when the viscous boundary layer is much larger than the bubble size, $\nu_l / \omega \gg R^2$ ($\nu_l = \mu_l / \rho_l$ is the liquid kinematic viscosity, ω is the acoustic angular frequency, and R is the typical bubble size). In this case viscous forces dominate over dynamic forces and the bubbles are driven by the liquid. This was noted by Crespo [2], who also showed that in the opposite limit, $\nu_l / \omega \ll R^2$, Eq. (3) must be replaced by

$$c_{\text{eff}}^2 \approx \frac{1 + 2\phi}{\rho_l \chi_g (1 - \phi) \phi}. \quad (4)$$

Thus, if bubbles move with respect to the liquid, sound waves propagate faster.

None of the above expressions of c_{eff} take into account the structure of the bubbly liquid, thus the statistics of the bubble distribution do not play any role. In addition, sound attenuation is discarded. To go a step further, one has to take into account the fact that a bubble in a sound field behaves as a forced harmonic oscillator, its stiffness being given by the gas compressibility and the inertia by the liquid density. For an isolated bubble that undergoes adiabatic radial oscillations, the angular resonance frequency is given by [28]

$$\omega_r^2 = \frac{3\gamma P_o}{\rho_l R^2}, \quad (5)$$

where P_o is the ambient pressure and γ is the specific heat ratio. This expression can be understood as follows: a gas bubble that undergoes adiabatic compressions has a *stiffness* of order $\gamma P_o R$ and a *radiation mass* of order $\rho_l R^3$, thus the natural frequency scales like $\sqrt{\gamma P_o / \rho_l R^2}$. For an air bubble of radius $R \approx 10 \mu\text{m}$ in water, the resonance frequency is $\omega_r / 2\pi \approx 325 \text{ kHz}$. It is interesting to note that at resonance, the associated acoustic wavelength is much larger than the bubble size, $\lambda_r = 2\pi c_l / \omega_r \approx 4.5 \text{ mm}$. In addition, for small bubbles, we must take into account surface tension effects. We then replace in the above expression $P_o \rightarrow P_o + 2\sigma/R$, where σ is the liquid/gas surface tension.

A more elaborated effective-medium approach, the van Wijngaarden-Papanicolaou model [10], gives the following dispersion relation for the complex wave number k in the low gas volume fraction limit $\phi \ll 1$:

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c_l^2} + 4\pi\omega^2 \int_0^\infty \frac{RF(R)dR}{\omega_r^2 - \omega^2 - 2ib\omega}, \quad (6)$$

where ω is the acoustic pulsation, $F(R)$ is the normalized bubble size distribution function, and b is the damping constant (note that in spite of its name, b is a function of R and ω). This dispersion relation is analogous to the complex index of refraction of dilute gases and “nondense” dielectric materials [29]. In a bubbly liquid, b involves three contributions, viscous and thermal dissipation mechanisms and sound scattering, $b = b_v + b_{th} + b_{sc}$ [11–14]. The phase velocity c and the absorption α are, therefore, defined as

$$c = \frac{\omega}{\text{Re}[k(\omega)]}, \quad \alpha = \text{Im}[k(\omega)]. \quad (7)$$

This effective-medium approach has the advantage that it provides an explicit form for the damping constant b [10]. It is interesting to note that the dispersion relation (6) can also be obtained by a multiple scattering approach for the coherent part of the acoustic wave [4,6], but in this case b is introduced by hand.

Concerning the validity of this dispersion relation, we remark that when $\omega \ll \omega_r$ and $\phi \ll 1$, such that scattering effects are small, there is a good agreement between the values of c and α predicted by Eq. (6) and those obtained experimentally [10]. Only for wide bubble size distributions [7] and for two-dimensional bubble screens [8], the agreement can be extended to a wider range of frequencies, up to $\omega \gtrsim \omega_r$ [10].

A final remark concerning the dispersion relation (6): if we define $\chi_g = 1/\gamma P_o$ and use the definition

$$\phi = \frac{4\pi}{3} \int_0^\infty R^3 F(R) dR, \quad (8)$$

it is easy to show that for $F(R') = n \delta(R' - R)$ and small dissipation, such that $b\omega \ll \omega_r^2$, and considering the leading order terms in $\omega/\omega_r \ll 1$, $\phi \ll 1$, and $c_{\text{eff}}/c_l \ll 1$, the dispersion relation (6) becomes

$$k = \frac{\omega}{c_{\text{eff}}} \left(1 + \frac{i}{2} \delta \right), \quad (9)$$

where $\delta = 2b\omega/\omega_r^2$ is the dimensionless damping constant and c_{eff} is given by Eq. (3) up to order ϕ . From Eq. (7) we also obtain $c = c_{\text{eff}}$ and $\alpha = \omega\delta/(2c_{\text{eff}})$.

In most of the experimental situations of interest it is well accepted that for driving frequencies less than the bubble resonance, thermal dissipation is the dominant damping mechanism; on the contrary, for frequencies greater than the bubble resonance, the scattering damping dominates [11–14] (for a review, see the book of Leighton, Chap. 4.4.2 [30]).

It is interesting to have a look at the form of each term of the dimensionless damping constant [10,14]:

$$\delta_v = \frac{4\mu_l\omega}{\rho_l R^2 \omega_r^2}, \quad (10)$$

$$\delta_{\text{sc}} = \frac{R\omega^3}{c_l \omega_r^2}, \quad (11)$$

$$\delta_{\text{th}} = \frac{P_o}{\rho_l R^2 \omega_r^2} \text{Im}[\tilde{F}(R, \omega)], \quad (12)$$

where $\tilde{F}(R, \omega)$ is a complex function that turns out to depend on the single variable $\eta = 2R/l_t$, where $l_t = \sqrt{2D_g/\omega}$ is the gas thermal boundary layer thickness and D_g is the gas thermal diffusivity. The low frequency limit $\eta \rightarrow 0$ gives

$$\delta_{\text{th}} \rightarrow \frac{4R^2\omega}{3D_g}, \quad (13)$$

which is accurate within 5% and 10% for $\eta \lesssim 2.4$ and $\eta \lesssim 2.8$, respectively. The high frequency limit $\eta \rightarrow \infty$ gives

$$\delta_{\text{th}} \rightarrow \frac{3(\gamma-1)}{2R} \sqrt{\frac{2D_g}{\omega}}, \quad (14)$$

which in turn is accurate within 5% and 10% for $\eta \gtrsim 50$ and $\eta \gtrsim 25$, respectively. To give an idea of the relative value of the different damping terms, for a water/air mixture with $R \approx 10 \mu\text{m}$ and $\omega/2\pi \approx 40 \text{ kHz}$, we estimate $\delta_{\text{th}} \approx 1.6$, $\delta_v \approx 2.4 \times 10^{-3}$, and $\delta_{\text{sc}} \approx 2.5 \times 10^{-5}$. Thus, in the low frequency range, the thermal dissipation is indeed the dominant damping mechanism. Finally, in view of our experimental results, using Eqs. (13) and (14) in Eq. (9), such that $\delta \ll 1$, we find that for a water/air mixture the following scalings for the thermal contribution to the sound absorption are obtained:

$$\alpha_{\text{th}} \lambda \rightarrow \frac{4\pi\omega R^2}{3D_g} \quad (15)$$

for $\eta \rightarrow 0$ and

$$\alpha_{\text{th}} \lambda \rightarrow \frac{3\pi(\gamma-1)}{2} \sqrt{\frac{2D_g}{\omega R^2}} \quad (16)$$

for $\eta \rightarrow \infty$, where $c_{\text{eff}} = \lambda f$. We finally remark that these expressions are valid to leading order in δ .

II. EXPERIMENTAL SETUP

The experiment consists in measuring the propagation of acoustic pulses through aging foams. In all the experiments, shaving cream is used as a sample (Gillette regular [21]). This choice has been motivated in part by the number of experimental studies done on this kind of foam and in part by the stability and reproducibility of the samples [22–24].

Two different experimental setups are used depending on the explored acoustic frequencies. At low frequencies we only measure the sound velocity c . This is due to the fact that at low frequencies the acoustic absorption length $1/\alpha$ is of the order of 0.3–1 m [17], and we then need an experiment of these dimensions in order to measure it accurately. As we work with commercial shaving foams, we cannot produce these amounts of foam in a homogeneous way. At higher frequencies, as $1/\alpha$ becomes of the order of 1 cm or less, we are able to measure both c and α by probing the acoustic pressure as a function of the distance of propagation in a more reasonable volume of foam.

For all the experiments the average density of the foam $\langle \rho \rangle$ is controlled at the beginning of foam aging and after each measurement, at a given foam age. This is done by measuring the mass of foam contained in a known volume. The balance has a sensitivity of 0.01 g (Mettler Toledo PB602), so the final density sensitivity is $\approx \pm 2 \text{ mg/cm}^3$. The foam temperature is maintained constant by controlling the ambient temperature at $21.5 \pm 1^\circ \text{C}$.

At low frequencies a 45-mm-diameter and 7-mm-thick piston is used as an acoustic source. Figure 1(a) shows a sketch of this setup. The frequency can be varied in the range 1 kHz–10 kHz. The experimental results presented here correspond to $f = 5 \text{ kHz}$. The piston is driven by an electromechanical vibration exciter (B&K 4810) and its response is followed by a piezoelectric accelerometer (B&K 4393). Fresh foam samples are injected in a 60-mm-interior-diameter and 90-mm-height cylindrical container. The container's wall is made of plexiglass and the vibrator is used as a base. With this setup, the foam is enclosed in the plexiglass tube (however, the sample is not sealed), and no humidity air saturation was found to be necessary. The incident acoustic pulse is obtained by means of exciting the vibrator with an amplitude modulated electric pulse, centered at a frequency f with N_c cycles. The reception is done by a piezoelectric pressure sensor with a 40 kHz resonant frequency (PCB 106B50), the sensitivity being 80.8 mV/kPa. As we measure both the piston response and the acoustic pressure, we can measure both the time of flight and the amplitude of the pressure signal. Thus, the distance between the piston surface and the pressure sensor is left fixed at $L = 56 \text{ mm}$, which ensures that measurements are done in the far field of the piston. The electric pulse is generated by an arbitrary function generator (Wavetek 395), and the number of cycles can be varied between a few cycles ($N_c = 3$) to a semicontinuous pulse ($N_c \gtrsim 100$). Nevertheless, to avoid interferences due to reflections at the ends of the tube, all the pulses are chosen to

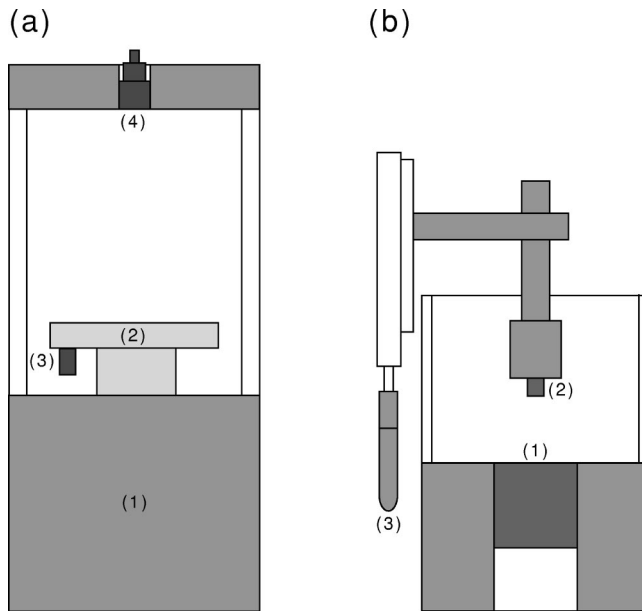


FIG. 1. Sketches of the experimental apparatus. (a) Low acoustic frequencies: (1) electromechanical vibration exciter, (2) piston, (3) piezoelectric accelerometer, and (4) pressure sensor. (b) High acoustic frequencies: (1) acoustic transducer, (2) pressure sensor, and (3) micrometer displacement controller.

be shorter than L (thus, in general, $N_c \leq 7$). This electric pulse is amplified by a power amplifier (B&K 2706) and the detected pressure signal is filtered and amplified by a low-noise preamplifier (Stanford Research Systems 560). Typical gains vary between 10^3 and 10^4 . The piston velocity and the amplified acoustic pressure signal are then measured by an oscilloscope (Lecroy 4374L) and transferred to a power PC via a general purpose interface bus board. The sound speed c is then obtained by measuring the time of flight τ_{fl} between the piston velocity and the pressure signal.

The second experimental setup is almost the same but the incident acoustic pulses are now generated by acoustic transducers. Figure 1(b) shows a sketch of this setup. To explore different frequencies, two different transducers are used for the pulse emission: a contact transducer is used at $f = 37$ kHz (Panametrics X1021) and an air coupled transducer at $f = 63$ and 84 kHz (ITC 9071). With this last transducer the acoustic impedance matching with the foam is much better. The fresh foam samples are injected in a 45-mm-diameter and 40-mm-height cylindrical container. The container's wall is plexiglass, while the base is polyvinyl chloride. The acoustic transducers are mounted concentrically on the base, with the active surface directed into the plexiglass cylinder. Thus, during an experiment, the acoustic transducer is in contact with the foam sample. In this case the reception is also done by a piezoelectric pressure sensor but with a 500 kHz resonant frequency (PCB 113A02). The sensor is followed by an in-line charge amplifier (PCB 402A11), the final sensitivity being 3.2 mV/kPa. The distance L between the acoustic transducer and the pressure sensor is controlled by a micrometer displacement controller, with a resolution of $20 \mu\text{m}$ (Micro-Controle M-UMR5.25). The electric signal generation and the pressure signal measure-

ments are done in the same way as for the first setup. But in this case, the electric signal used to excite the acoustic transducers is amplified by a high speed power amplifier (NF Electronic Instruments 4005). Finally, the electric impulse and the amplified acoustic pressure are the signals that are measured by the oscilloscope and transferred to the power PC. To measure c and α , the distance L is varied by constant steps.

At high frequencies and for large distances of propagation, or large aging times, the acoustic pressures can be quite low, of the order of a few pascals. As the level of the electronic noise of the pressure sensor is of the order of 40 Pa, it is necessary to average the pressure signal for about 100 to 400 sweeps. Depending on the number of sweeps, this averaging process takes between 2 and 6 s, which is fast compared to the time evolution of the foam. Finally, within the second setup, only the upper surface of the foam sample is in contact with air. As the pressure sensor is immersed in the foam sample, this surface is always quite far from the probed volume, at least 20 mm farther. For the explored foam ages the evaporation of water is only seen to affect a thin layer on the surface of the sample, typically 1–2 mm thin. Thus, we do not need to saturate the air humidity because the probed volume is not affected by water evaporation. We verified this point by performing some measurements under humidity saturated atmosphere; no changes were observed.

An important point is the reproducibility of the experiments. We observe that our measurements are very sensitive to the foam production. As we use commercial shaving foams, the state of the initial foam varies from one sample to another. There are at least two important parameters: the foam average density $\langle \rho \rangle$ and the bubble size distribution $F(R, t)$, where t denotes the aging time. The foam density depends slightly on the foam tube history; it is mainly constant for the first 10–20 samples produced from the same tube (the foam then tends to become more liquid). For different tubes, we find that the density varies slightly. In general, the average foam density is measured to be $\langle \rho \rangle = 0.076 \pm 0.005$ g/cm³, which corresponds to a gas volume fraction $\phi = 0.924 \pm 0.005$.

Once the density is controlled, the principal effect on the acoustic measurements is due to the bubble size distribution. We observe that for short evolution times, or low excitation frequencies, it is the mean bubble size $\langle R(t) \rangle$ that determines the foam acoustic properties. Nevertheless, as we increase the excitation frequency and tend to probe more effectively the “details” of the foam structure, the measurements become quite sensitive to the details of $F(R, t)$ and its evolution. It is clear that $F(R, t)$ is in part fixed by the interior geometry of the foam tube (size of pores through which the foam is forced, etc.), parameters that we do not control at all. Another parameter that is seen to affect $F(R, t)$ at the production of the foam is the velocity of the foam at the exit of the tube. In practice, this means that we have to produce the foam at a constant velocity, constant during its production and also between different sample productions.

To reduce then the possible errors due to the variations in $F(R, t)$ and $\langle \rho \rangle$ from one sample to another, we perform several measurements of α and c (between 5 and 20), keep-

ing unchanged the other experimental conditions. We then perform ensemble averages over α and c . This averaging procedure allows us to determine these quantities with relative errors smaller than 15% (in most cases 10%) and 5%, respectively.

III. EXPERIMENTAL RESULTS

A. Low frequency results

We start this section by presenting our experimental results at low frequency, namely, $f = 5$ kHz and $N_c = 5$. Figure 2 shows typical time series of the piston velocity v_p and the acoustic pressure p . The foam age is about 10 min and the initial time is given by the end of foam production. As the vibration exciter has a nearly flat frequency response around the excitation frequency, the piston velocity is seen to follow the electric pulse quite well. The acoustic pressure signal is also seen to follow the piston velocity, with the expected delay due to the pulse propagation. From this kind of data we define $p_{\max}$ and τ_{fl} as the maximum pressure amplitude of the acoustic pulse and the time between the maxima of the piston velocity and acoustic pressure pulse. Finally, the observed small second pulse in Fig. 2(b) is due to reflections at both ends of the tube, as its extra flight time is approximately double of the flight time of the first acoustic pulse.

We then present in Fig. 2(c) the time evolution of the ensemble-averaged sound velocity $c = L/\tau_{fl}$, for ≈ 8 h of foam aging. To avoid confusions we note that we are dealing with the propagation of finite pulses and that there does not seem to be much pulse distortion, thus the measured velocity is the group velocity. As the system can be dispersive it should not be identified with the phase velocity. Measurements on five different foam samples were done. The error bars correspond to the standard deviations obtained. The ensemble-averaged density is $\langle \rho \rangle = 0.076 \pm 0.005$ g/cm³. For each sample the value of $\langle \rho \rangle$ is measured at the beginning of the foam aging. Within this setup the foam density does not vary during the first 2 h of foam aging. After 8 h of aging, a 5%–20% average decrease with respect to the initial value of $\langle \rho \rangle$ is measured. We observe that the exact value depends on the height at which the foam density is measured, the density change being higher near the top surface and smaller at the middle of the foam sample. In fact, for long times we observe the formation of a very thin layer of liquid on the vibration exciter surface, which confirms that the average density change is due to liquid drainage. The order of magnitude of the observed average density reduction is in agreement with previously published data [23].

We then observe a decreasing behavior of the sound velocity with time. At early times it has a value of 65 m/s and then decreases and tends to ≈ 50 m/s. The corresponding acoustic wavelength $\lambda = c/f$ varies from 1.3 cm to ≈ 1 cm with foam aging. This indeed corresponds to the large wavelength regime $\lambda \gg \langle R \rangle$. As expected from the discussions given in the Introduction, we measure a much lower effective sound speed compared to both sound speeds in the liquid and gas components of the mixture that composes the foam.

A very important experimental observation is that the foam softens with aging. This point has been clearly estab-

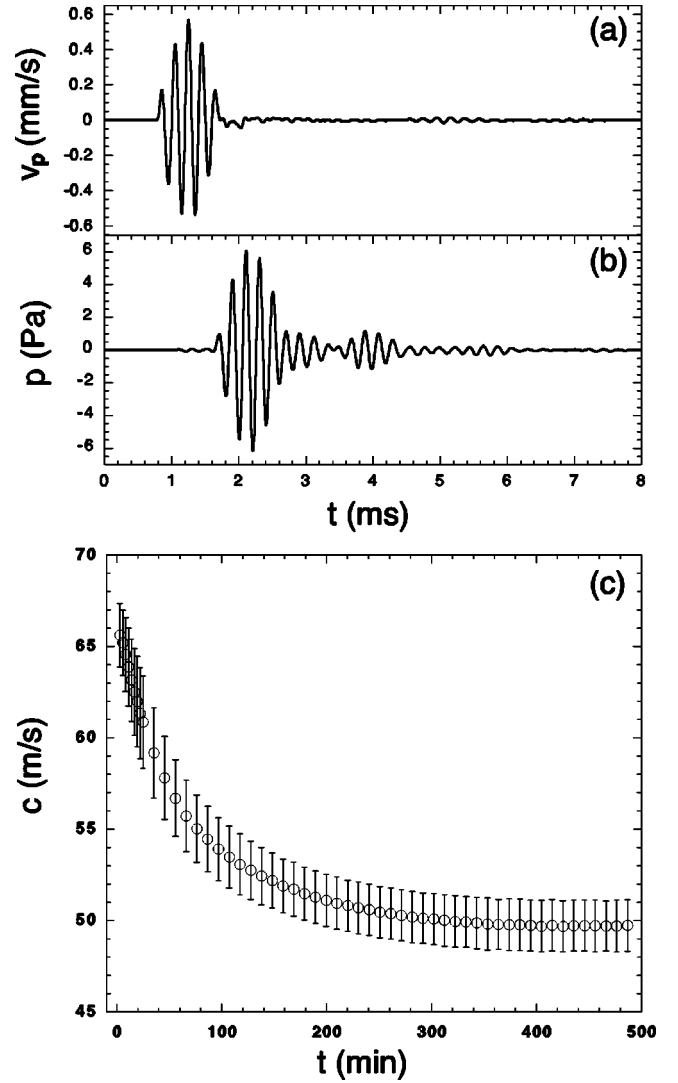


FIG. 2. Time series of piston velocity v_p (a) and acoustic pressure p (b), for $L = 56$ mm, $f = 5$ kHz, $N_c = 5$, and $\langle \rho \rangle = 0.074 \pm 0.002$ g/cm³. Foam age is about 10 min. From this kind of data we define $p_{\max}$ and τ_{fl} as the maximum pressure amplitude of the acoustic pulse and the time of flight, which is measured between the maxima of the piston velocity and acoustic pressure pulse. (c) Time evolution of the ensemble-averaged sound velocity c for $f = 5$ kHz. The ensemble-averaged density is $\langle \rho \rangle = 0.076 \pm 0.005$ g/cm³.

lished for the shear elastic modulus of a coarsening foam [23,24]. However, the bulk elastic modulus of a foam does not seem to have been studied. Considering a foam as a viscoelastic solid, we can define the longitudinal sound speed as $c = \sqrt{(K + 4\mu/3)/\langle \rho \rangle}$, where K and μ are the macroscopic bulk and shear elastic moduli, respectively [31]. Therefore, for fresh foams $c \approx 65$ m/s and then $K \approx 3.2 \times 10^5$ Pa, and after 2 h of coarsening $c \approx 53$ m/s, and K decreases to $\approx 2.1 \times 10^5$ Pa. We remark that we have used $K \gg \mu$, since a foam is usually considered as incompressible. In fact, we find that for fresh foams, K is ≈ 700 times larger than the reported values of μ [23,24]. It should be noticed that the frequencies of the shearing experiments reported in [23,24]

are very low, typically in the range $f=0.04\text{--}3$ Hz. Thus, the exact value of μ (to be compared with K) is expected to be different at $f=5$ kHz, but we do not expect it to change in order of magnitude.

Thus, as foam density does not vary significantly during the first few hours of foam aging, we can then conclude that the main mechanism responsible for the reduction of the sound speed with time is the increment of foam compressibility, or in other words, the softening of its elastic bulk modulus. Furthermore, we believe that the observed saturation of c is due to a competition between the increment of foam compressibility and the average density reduction in the foam's volume. In fact, measurements performed up to 17 h of foam aging show that c finally slightly increases with time, about 3% during the last 8 h. If the density reduction is the only mechanism for this small increment of c , we expect it to change by an amount of the order of 10%. Therefore, the observed long time behavior of c must be due to the competition between both effects.

The main results of the low frequency experiments are the following ones: (i) acoustic measurements allow us to probe the foam coarsening. (ii) As expected, the effective sound speed is found to be much lower than the sound speeds in both components of the foam. (iii) The sound speed reduction is due to the softening of the foam, i.e., the foam tends to be more compressible with aging time.

Nevertheless, for long times the liquid drainage is seen to affect the foam density profile, and thus sound propagation. Taking into account our observations on the evolution of $\langle\rho\rangle$, we then consider that acoustic measurements are of most utility during the first 4 h of foam coarsening. This means that we can use acoustic measurements for the determination of the bulk elastic modulus of a coarsening foam. For longer times, the main problem is the appearance of a density gradient in the system and a significant change of the average density; however, combined acoustic and density measurements can give important qualitative information about the foam properties and its aging.

B. High frequency results

We now present results concerning higher excitation frequencies, namely, $f=37$, 63, and 84 kHz. Considering the foam sound velocity to be of the order of 50 m/s, these frequencies correspond to wavelengths of the order of 1.3, 0.8, and 0.6 mm, respectively. We recall that our experimental setup allows us to measure both α and c in this frequency regime.

In Fig. 3 we present the time evolution of the pressure pulse maximum $p_{\max}$ and the flight time τ_{fl} for $L=15$ mm, $f=37$ kHz, $N_c=7$, and $\langle\rho\rangle=0.078\pm0.002$ g/cm³. We note that the flight time τ_{fl} is now defined as the time difference between the maxima of the electric input and the acoustic pulse. We observe that as the foam coarsens the transmitted acoustic signal becomes smaller. After 90 min, the acoustic amplitude $p_{\max}$ decreases approximately by a factor of 50. Thus, at high frequencies and as the mean bubble size increases with time, the acoustic absorption in the foam increases in a significant way. Also, after

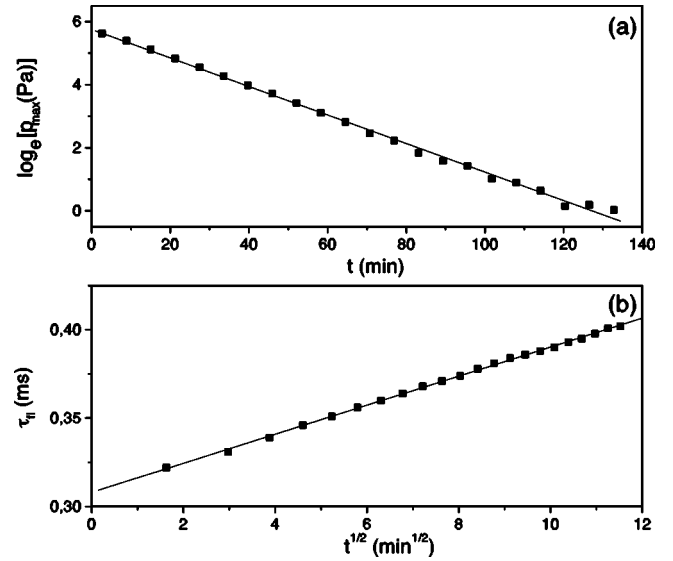


FIG. 3. (a) In $\log_e$ -linear scale, time evolution of $p_{\max}$ for $L=15$ mm, $f=37$ kHz, $N_c=7$, and $\langle\rho\rangle=0.078\pm0.002$ g/cm³. (b) τ_{fl} vs $t^{1/2}$. Continuous lines show the fits $p_{\max}=p_0 e^{-t/\tau}$ and $\tau_{\text{fl}}=a+bt^{1/2}$, with $p_0=314\pm3$ Pa, $\tau=22.1\pm0.3$ min, $a=0.308\pm0.001$ ms, and $b=8.2\pm0.1$ $\mu\text{s}/\text{min}^{1/2}$.

this time, the flight time τ_{fl} slightly increases. Thus, as we already observed at low frequencies, as the foam coarsens, sound velocity decreases. Figure 3(a) shows that $p_{\max}$ decreases exponentially with time, with a characteristic decay time τ of the order of 22 min. We note that this decay time depends on L , and we roughly find $\tau\propto 1/L$. At this propagation distance, $L=15$ mm, after 120 min the acoustic signal decreases to ≈ 1 Pa. This value corresponds to the resolution of our acquisition system (sensor sensitivity + averaging process + oscilloscope resolution). On the other hand, Fig. 3(b) shows that τ_{fl} evolves according to the law $a+bt^{1/2}$, with $a=0.308\pm0.001$ ms and $b=8.2\pm0.1$ $\mu\text{s}/\text{min}^{1/2}$. We remark that these “nice” behaviors of $p_{\max}$ and τ_{fl} with aging time t are not observed at low frequencies.

An important feature is the dependence of $p_{\max}$ and τ_{fl} on L . As the foam evolves with time, we must make fast measurements for different values of L . The term “fast” means that the measurement should take a time much smaller than the typical decay times. This is done by moving the pressure sensor manually with the micrometer displacement controller and measuring $p_{\max}$ and τ_{fl} . The motion is in the direction of the acoustic transducer, so we decrease L by constant steps. A typical run for several L 's takes about 1 min, which is indeed short compared to the decay times. Figure 4(a) shows that $p_{\max}$ also decreases exponentially with L (for a “fixed” evolution time). The data were taken 30 min after the foam production. The continuous line shows an exponential fit of the form $p_{\max}=p_0 e^{-\alpha L}$, with $p_0=1.07\pm0.01$ kPa and $\alpha=160\pm3$ m⁻¹. Now, we define $\Delta L=L-L_1$ and $\Delta\tau_{\text{fl}}=\tau_{\text{fl}}-\tau_{\text{fl}1}$, where L_1 and $\tau_{\text{fl}1}$ are the shortest measured distance of propagation and flight time. Figure 4(b) then presents ΔL as a function of $\Delta\tau_{\text{fl}}$, and the slope of this curve gives a direct measurement of sound velocity; in this case $c=55.1$

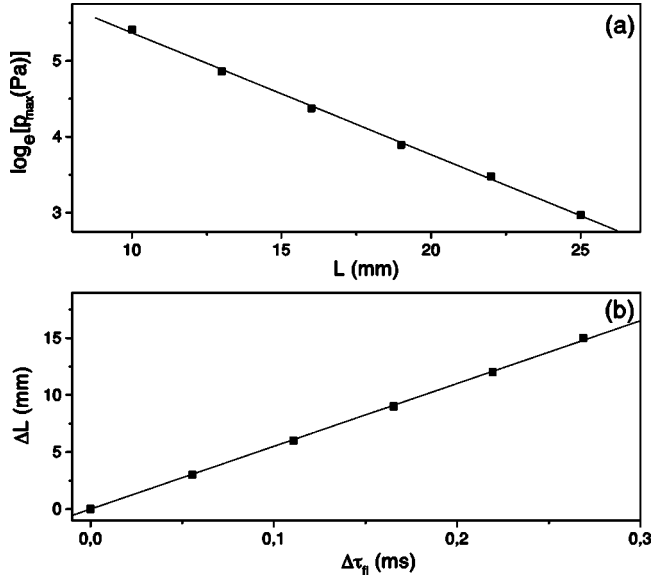


FIG. 4. (a) In $\log_e$ -linear scale, $p_{\max}$ versus L . (b) ΔL versus $\Delta \tau_f$. The continuous lines show the fits $p_{\max} = p_o e^{-\alpha L}$ and $\Delta L = c \Delta \tau_f$, with $p_o = 1.07 \pm 0.01$ kPa, $\alpha = 160 \pm 3$ 1/m, and $c = 55.1 \pm 0.3$ m/s. The measurement was made 30 min after the foam production. $f = 37$ kHz, $N_c = 7$, and $\langle \rho \rangle = 0.080 \pm 0.002$ g/cm³.

± 0.3 m/s. We remark that this method avoids the effects of the thin liquid layer between the transducer and the foam formed by drainage [32].

Considering our experimental results we observe, as expected, that the acoustic pressure has the following form:

$$p(x, t) \propto p_{\max}(x, t) e^{i[\omega t - k(t)x]}, \quad (17)$$

$$p_{\max}(x, t) \propto e^{-\alpha(t)x}, \quad (18)$$

where $k(t) = \omega/c(t)$ is the wave number, $c(t)$ is the sound velocity, and $\alpha(t)$ is the absorption coefficient [the $\alpha(t)$ and $c(t)$ notation indicates the effect of foam coarsening]. These

are the basic acoustic quantities that we can measure. We note that in our problem there are clearly two different time scales, one associated with the foam evolution and the other with the sound frequency, such that $\tau \gg 1/f$. There are also three length scales, given by λ , $1/\alpha$, and $\langle R \rangle$, which in general are well separated, i.e., $1/\alpha > \lambda \gg \langle R \rangle$. However, as will be shown for high frequencies and large foam ages, the absorption length can be comparable to the acoustic wavelength, $\lambda \sim 1/\alpha$ (see below).

The evolution in time of $\alpha\lambda$ and c for different frequencies is displayed in Fig. 5. For comparison, we also show in Fig. 5(b) the values of c obtained at $f = 5$ kHz. At high frequencies, each point corresponds to an ensemble average of at least seven independent experimental runs.

We observe that $\alpha\lambda$ increases with time for all f . Also, for a fixed foam age, $\alpha\lambda$ increases with f . Thus, we can conclude that as we probe the smaller scales of the foam structure (by increasing $\langle R \rangle$ or decreasing λ) the sound is more effectively attenuated. We observe that the fluctuations of $\alpha\lambda$ increase with both f and the foam aging time (see the size of the error bars). This reflects the sensitivity of the acoustic absorption measurements to the details of the foam disorder. We also observe that as foam coarsens, the two length scales $1/\alpha$ and λ become comparable.

Another interesting feature is that after an initial transition time of ≈ 20 min, $\alpha\lambda$ seems to follow a linear dependence on t . We present then in Fig. 5(a) the corresponding linear fits $\alpha\lambda = a + bt$, which are done for $t > 20$ min. These linear evolution laws fit quite well the ensemble-averaged values of $\alpha\lambda$. Recalling the parabolic law Eq. (1), we conclude that the time dependence of the quantity $\alpha\lambda$ is given by the evolution of the square of the dominant length scale in the foam, the mean bubble radius, i.e., $\alpha(t)\lambda(t) \propto \langle R(t) \rangle^2$.

Concerning sound velocity, we observe that at high frequencies c also decreases with time; it has an initial value of the order of 63 m/s and it decreases to ≈ 45 m/s after 4 h of aging. As the density does not change significantly on the evolution time scale, we confirm our previous result that the

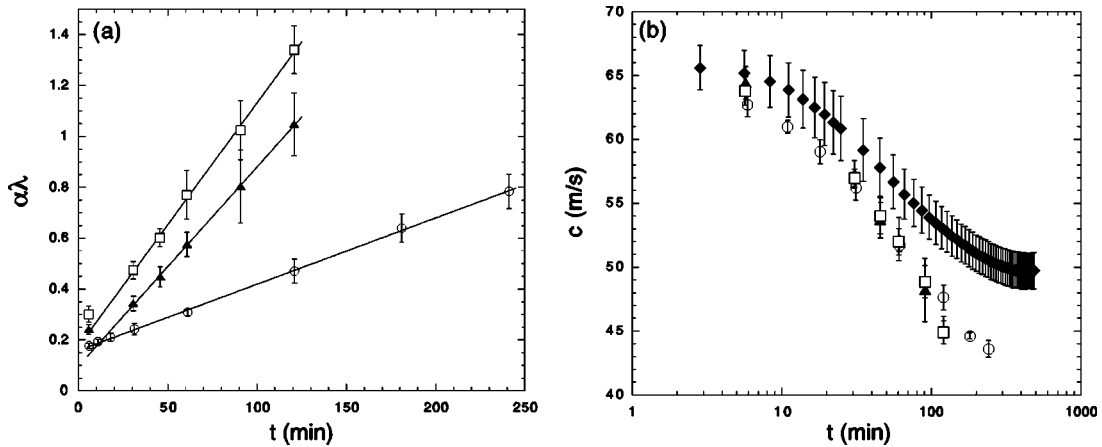


FIG. 5. (a) Time evolution of $\alpha\lambda$ for $f = 37$ ($\circ$), 63 ($\blacktriangle$), and 84 ($\square$) kHz. The continuous lines correspond to linear fits $\alpha\lambda = a + bt$ for $t > 20$ min. The parameters are $a = 0.159, 0.097$, and 0.175 , $b = 2.61 \times 10^{-3}, 7.84 \times 10^{-3}$, and 9.58×10^{-3} min⁻¹, respectively. The linear regression coefficients are $R_c = 0.9996, 0.9998$, and 0.9992 , respectively. (b) Time evolution of c , in linear-log₁₀ scale, for $f = 5$ ($\blacklozenge$), 37 ($\circ$), 63 ($\blacktriangle$), and 84 ($\square$) kHz. The ensemble-averaged density is $\langle \rho \rangle = 0.076 \pm 0.005$ g/cm³.

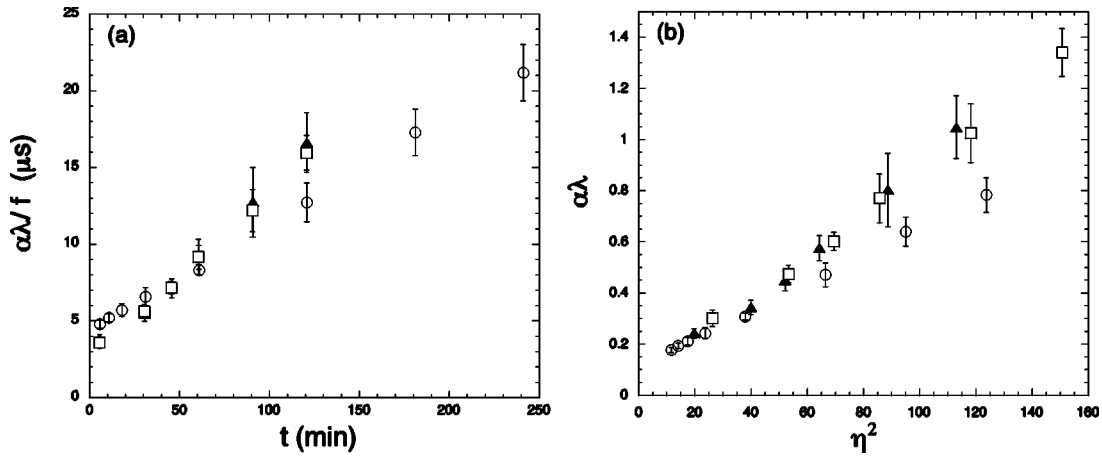


FIG. 6. (a) Time evolution of the scaled quantity $\alpha\lambda/f$. (b) $\alpha\lambda$ versus $\langle\eta\rangle^2$, where $\langle\eta\rangle = 2\langle R\rangle/l_t$; $f = 37$ ($\circ$), 63 ($\blacktriangle$), and 84 ($\square$) kHz, and $l_t = 6.6, 5.0$, and 4.4 μm , respectively.

foam softens as it coarsens. Concerning the frequency dependence we note that for short times we do not observe any velocity dispersion. Nevertheless, as time evolves a clear velocity dispersion appears; after 2 h of aging, the lowest frequency value is clearly higher than the highest frequency value, by approximately a factor 20%, and c thus becomes a decreasing function of f . We believe that the only possible explanation for this time-dependent velocity dispersion is the existence of a characteristic time scale that depends on the mean bubble radius $\langle R(t) \rangle$. A natural choice seems to be the inverse of the bubble resonant frequency. In fact, in the limit $\phi \ll 1$, sound velocity dispersion is observed as the resonant frequency is approached [8,10], and for $\omega \lesssim \omega_r$, c decreases with f . We note that this velocity dispersion is also predicted by the dispersion relation (6). Nevertheless, the definition of a resonant frequency in a concentrated foam does not seem clear, and we do not have the analogous expressions to Eqs. (5) and (6).

From the velocity data of Fig. 5(b), we can estimate the evolution of the ratio $\lambda/\langle R \rangle$ for all the explored frequencies. To obtain $\langle R \rangle$ we use Eq. (1) and we roughly estimate $A = 5.07$ $\mu\text{m}^2/\text{min}$, $t_o \approx 20$ min, and $\langle R_o \rangle \approx 14$ μm , using the visual observations reported in Ref. [24]. We obtain that $\lambda/\langle R \rangle$ decreases asymptotically as a power law of t , which is due to the parabolic evolution of $\langle R \rangle$ and the very small dependence of λ on t . Depending on both the foam age and the excitation frequency, this quantity decreases from ≈ 1500 to 20. Thus, due to the explored frequency range and the foam coarsening, we see that our experiments explore both regimes $\lambda \gg \langle R \rangle$ and $\lambda \approx 20\langle R \rangle$.

To conclude the presentation of our experimental results, we plot in Fig. 6(a) the time evolution of $\alpha\lambda/f$, for all f together. We notice that this scaling works pretty well, specially at the shorter aging times, let us say for $t \leq 90$ min.

Thus, the main results of the high frequency experiments are the following.

(i) Sound attenuation varies significantly with both foam age and sound frequency. As we probe the smaller scales of the foam structure, by increasing $\langle R \rangle$ or by decreasing λ , the

sound is more effectively attenuated. The sound attenuation fluctuations are also seen to increase with time and frequency.

(ii) For all the explored frequencies the sound velocity decreases with foam age. Thus, the foam becomes more compressible as it coarsens. Velocity dispersion is observed for long evolution times. After 2 h of foam coarsening c has clearly become a decreasing function of f .

(iii) The attenuation per wavelength $\alpha\lambda$ is seen to be a linear function of foam age, i.e., $\alpha\lambda \propto t$. Recalling the parabolic law for the evolution of $\langle R(t) \rangle$, we can then state that this quantity scales as $\alpha\lambda \propto \langle R \rangle^2$. In addition, for short times, $\alpha\lambda$ is found to scale linearly with both foam age and frequency, so that $\alpha\lambda \propto t f \propto \langle R \rangle^2 f$.

IV. DISCUSSION AND CONCLUSIONS

A. Sound attenuation

Our measurements show that the acoustic attenuation is very high compared to the attenuation in both components of the foam. We can qualitatively understand this fact by following an argument given by Landau and Lifshitz [33]. Let us suppose that we have a gas bounded by a well defined surface, which has both high thermal conductivity and high rigidity compared to the gas, and consider that a sound wave in the gas undergoes a reflection on the wall's surface. In the sound wave, the temperature oscillates periodically about its mean value. Thus, near the rigid and highly conductive wall, there is a periodically fluctuating temperature difference between the gas and the wall. But at the wall itself, the temperatures of the wall and the fluid must be the same. This generates a large temperature gradient in a thin boundary layer of the gas, where energy is dissipated by thermal conduction. The same kind of argument shows that the gas viscosity also leads to a strong absorption of energy, because the velocity gradient is large at the boundary. We recall that in the bulk of a homogeneous fluid, sound attenuation is due to the same physical mechanisms, but the temperature and velocity gradients are generated by the wave itself, such that they are of order T_{ac}/λ and v_{ac}/λ , respectively [33]. Here,

T_{ac} and v_{ac} are the amplitude of the acoustic temperature and velocity fluctuations. In general, these gradients are small compared to the gradients formed in a boundary layer. In fact, it is well known that the ratio of the power losses at the surface to the power losses in the gas volume is of order λ/l , where l is the molecular mean free path in the gas (see Chapter 6.4 in Ref. [34]). This can be easily shown by estimating the thermal power losses on the wall, Π_{wall}^t , and the thermal power losses in the volume, Π_{vol}^t , as

$$\Pi_{wall}^t \propto (T_{ac}/l_t)^2, \quad \Pi_{vol}^t \propto (T_{ac}/\lambda)^2, \quad (19)$$

where $l_t = \sqrt{2D_g/\omega}$ is the thermal boundary layer. Thus,

$$\frac{\Pi_{wall}^t}{\Pi_{vol}^t} \propto \left(\frac{\lambda}{l_t}\right)^2 \propto \frac{\lambda}{l}, \quad (20)$$

where in the last expression we have used $D_g \approx c_g l$, l being the molecular mean free path in the gas and c_g the gas sound speed. In a gas, $\nu \approx c_g l / \sqrt{\gamma}$, and the same result is obtained for the ratio of the viscous power losses. The fact that the surface power losses dominate the volume power losses explains why systems of high porosity and with high contrasts of both thermal and acoustic properties, such as foams, are good acoustic attenuators.

As discussed in Sec. I B, there are several damping mechanisms of an acoustic wave in a bubbly liquid, namely, the liquid viscosity, the gas thermal conductivity, and the sound scattering. In principle, from both the frequency and the bubble size dependence of $\alpha\lambda$, we should be able to identify which of these mechanisms is dominant. In our experiments, the bubble sizes vary with time due to gas diffusion, according to an evolution law of the form $\langle R \rangle^2 \propto t$. As we measure a linear dependence of $\alpha\lambda$ with time, we conclude that $\alpha\lambda \propto \langle R \rangle^2$. This scaling alone is a strong restriction to the possible damping mechanisms. On the other hand, we observe that the quantity $\alpha\lambda$ scales like f for early foam ages, approximately for $t \lesssim 90$ min.

If we consider the scattering contribution given by Eq. (12), we should expect a dependence of the form $\alpha_{sc}\lambda \propto R\omega^3/\omega_r^2$. This corresponds to Rayleigh scattering, $\alpha \propto \omega^4$, valid in the large wavelength limit $\lambda \gg R$. As discussed before, in the case of concentrated foams, it is clear that ω_r cannot be given by Eq. (5), and the question of a proper definition of the bubble resonance in a concentrated foam does not seem to be clear. As the density is greatly reduced compared to a dilute bubbly liquid, we do expect the resonance to be shifted to higher frequencies. In any case, in the large wavelength regime, a Rayleigh scaling $\alpha_{sc}\lambda \propto \omega^3$ is expected. Thus, from our experimental results we can conclude that the scattering damping is not important to leading order.

An important point that has not been discussed is the viscous attenuation caused by the translational motion of the bubbles. In fact, the van Wijngaarden–Papanicolaou model considers the viscous attenuation due to the radial motion of the bubbles. But it has been argued that in the case of bubbly liquids, for frequencies much smaller than the bubble resonant frequency, the effects of viscosity on the translational

motion would dominate the effects caused by the radial oscillations [3,35]. Nevertheless, as discussed in the Introduction, it has been well established for bubbly liquids that the thermal damping dominates for $\omega \ll \omega_r$ and $\phi \ll 1$ [10], such that even if the translational viscous drag dominates the radial viscous damping, it does not seem to be important. In general, the relative importance of the different damping mechanisms depends on the material constants of the system. For example, Urlick compares experimental results of sound attenuation in dilute kaolin and sand suspensions with a viscous-drag calculation of α_v [36]. He finds a good agreement with theory and he concludes that the viscous drag between the fluid and the particles is the dominant damping mechanism. On the other hand, Allegra and Hawley compare viscous drag and thermal attenuations in an emulsion of 20% toluene in water and find that the thermal damping is dominant [37].

We must note that the asymptotic viscous-drag expressions of $\alpha_v\lambda$ [36,37] take forms similar to those given by Eqs. (15) and (16) for the thermal damping mechanism, such that

$$\alpha_v\lambda \propto \frac{\omega R^2}{\nu_l} \quad (21)$$

for $R/l_v \ll 1$, with $l_v = \sqrt{2\nu_l/\omega}$, and

$$\alpha_v\lambda \propto \sqrt{\frac{\nu_l}{\omega R^2}} \quad (22)$$

for $R/l_v \gg 1$. Thus, compared to our results, both low frequency expressions (15) and (21) give the correct scalings on R and ω . As the foam is concentrated, it seems quite unlikely to us that the sound wave could generate a relative motion between the bubbles and the thin liquid films. To clear up this point, we estimate the viscous boundary layer for $f = 37, 63$, and 84 kHz to be $l_v \approx 2.9, 2.3$, and 1.9 μm , respectively, where we approximate $\nu_l \approx 10^{-6}$ m^2/s , as for water. As the liquid channel thickness h in our foams is ≈ 1 μm or less, we conclude that bubbles are strongly coupled by viscous forces. The viscous forces are then so high, that no relative motion between the bubbles and the liquid is possible. However, if the frequency is increased enough, such that l_v decreases well below h , we can expect the viscous-drag attenuation to become important. We finally conclude that the main contribution to the sound attenuation is given by thermal dissipation.

We can indeed go a step further by comparing quantitatively our results with the theoretical predictions for the thermal attenuation. To do so, we plot in Fig. 6(b) the experimental attenuation per wavelength versus $\langle \eta \rangle^2$, where $\langle \eta \rangle = 2\langle R \rangle/l_t$. The gas is a mixture of isobutane and propane, we then have $D_g \approx 5 \times 10^{-6}$ m^2/s at $T \approx 21.5$ $^\circ\text{C}$ [38]. Once again, $\langle R \rangle$ is estimated by the parabolic law (1). As the bubble size distribution is quite large, we recall that $\langle \eta \rangle$ is an average value. For $f = 37$ kHz and at the beginning of foam coarsening, $\langle \eta \rangle \approx 3$; for long aging times and higher frequencies, $\langle \eta \rangle \approx 12$. Thus the bubble diameter is, in general, larger

than the thermal boundary layer. We observe that for the smaller values of $\langle \eta \rangle^2$, the data collapse on a single curve. This collapse also corresponds to the smaller values of $\alpha\lambda$. For higher values of $\langle \eta \rangle^2$, $\alpha\lambda$ seems to increase with f . A possible explanation is that when we increase the frequency, the scattering contribution of the larger bubbles to the sound attenuation becomes important. The crossover between the different behaviors is obtained for $\langle \eta \rangle^2 \approx 40$.

We note that from Eq. (16) we expect $\alpha\lambda \propto 1/\langle \eta \rangle$ for $\langle \eta \rangle \gg 1$. This means that for a large enough frequency, $\alpha\lambda$ should decrease with t , which is not observed experimentally. We think that this is in part due to the large polydispersity of the bubble size distribution. In fact, we expect a maximum attenuation per wavelength for $\eta \sim 1$, which can be interpreted as a thermal resonance condition $l_t \sim R$. Thus, at fixed frequency, the bubbles that satisfy this thermal resonance condition are those that attenuate most effectively the incident sound wave. Due to foam coarsening, the bubble size distribution becomes larger with time. However, the smallest bubbles are continuously shrinking before disappearing during the coarsening process. Thus, there always exist bubbles that satisfy the resonance condition even at high frequency. On the other side, for the larger bubbles, the scattering contribution to the sound attenuation becomes important. These two mechanisms lead to an increase of $\alpha\lambda$ with time.

B. Effective sound velocity

Our first observation is that the value of the sound velocity is much smaller than the velocities of both components of the foam, which is expected from the high contrast of acoustic properties between the components of the foam. As it will become clear after this discussion, the most important experimental observations are the following: (i) The sound speed evolves as the foam coarsens. (ii) The initial value of c is markedly higher than that estimated with Wood's formula (3). (iii) Velocity dispersion is observed for long times; after 2 h of foam coarsening, c is clearly a decreasing function of f . These results show that the sound speed depends on the foam structure in a nontrivial way, and we will now discuss them in more detail.

We can indeed try to estimate the sound velocity by means of the effective-medium approximation. We use Wood's formula, given by Eq. (3). The foam average density is $\langle \rho \rangle \approx 0.076 \text{ g/cm}^3$, and we can consider the average compressibility to be $\langle \chi \rangle \approx \phi \chi_g$, where $\phi \approx 0.924$ is the average gas volume fraction and $\chi_g \approx 1/\gamma P_o$ is the adiabatic compressibility of the gas. Here, P_o is the atmospheric pressure and γ is the ratio of specific heats. As the gas is a mixture of isobutane and propane, we approximate $\gamma \approx 1.1$ for $T \approx 21.5^\circ\text{C}$ [38]. Thus, $\chi_g \approx 8.8 \times 10^{-6} \text{ Pa}^{-1}$, and we find $c_{\text{eff}} \approx 40 \text{ m/s}$, which is of the order of magnitude of the measured values. For fresh foams the sound velocity has nevertheless a value of 65 m/s, which is $\approx 60\%$ higher than the estimated value. This seems to be contradictory, because at the beginning of the foam evolution the condition $\lambda \gg \langle R \rangle$ is better satisfied than for large foam ages, so we would expect the effective-medium estimation to work better at short foam ages. The difference between the predicted and the measured

values of c has already been noted by Gol'dfarb *et al.* [20], and it seems that there is a systematic deviation in some of the measured values compared to the adiabatic approximation given by Eq. (3). Nevertheless, some experimental results presented in Ref. [20] agree with Eq. (3). This confusing result was already pointed out in the introduction of this paper. We note that Gol'dfarb *et al.* did not take into account the foam coarsening. No attention at all was drawn to the age of the foam when the measurements were done. Our measurements indicate that the value $c \approx 40 \text{ m/s}$ can be observed if the foam coarsens for long enough time. However, there is an important difference between the estimated and the measured values of c for fresh foams.

The estimation given by Wood's formula must be considered as a leading order approximation. In fact, we have found that the effective sound velocity evolves with time, and this aspect is not considered at all in this effective-medium approach. We know that for the first hours of foam coarsening the average density $\langle \rho \rangle$ does not vary significantly with time. We must then consider the dependence of the compressibility on the foam structure. In particular, for short foam ages, we expect that the effective compressibility should be lower, roughly by a factor 2.5 with respect to $\phi/\gamma P_o$.

It is well known that the presence of surfactant molecules gives elastic properties to liquid films [39,40]. This elasticity is caused by the redistribution of the surfactants between the free surface and the bulk of the liquid during a deformation process. When the deformations are slow, this elasticity is called Gibbs elasticity. Thus, during a slow deformation, the surfactant molecules have time to diffuse out to the surface. There is then a thermodynamic equilibrium between the surface and the bulk surfactant concentrations. On the contrary, if the deformation is fast, the elasticity is called Marangoni elasticity, and in this case the surfactant molecules do not have time to migrate from the bulk to the free surface. In this case, the deformation changes the film's surface but the number of surfactant molecules at the surface stays constant. When the liquid film is stretched, the surfactant surface concentration is then reduced and the surface tension increases. It is the extra surface tension that tends to reduce the surface deformation.

The terms "slow" and "fast" must be compared to a diffusion time scale. In fact, it is the time $\tau_D = h^2/D_{\text{ch}}$ that characterizes the diffusive motion of the surfactant molecules (here h is the liquid film thickness and D_{ch} is a chemical diffusion constant). Typically, for 1- μm -thick films, τ_D is of the order of 0.01 s [40]. However, due to contaminations, τ_D can increase up to 1 s [39]. It is then clear that for the explored acoustic frequencies, it is the Marangoni elasticity that could be important. For small surfactant concentrations, the Gibbs and Marangoni elastic constants are of the same order, $E_G \approx E_M \approx 80 \text{ mN/m}$ [40]. For large concentrations, the Marangoni elasticity dominates, the value of E_M being smaller than in the small concentration limit.

We can then consider that the foam liquid matrix has elastic properties. The problem of sound propagation through a liquid-elastic matrix with gas inclusions resembles very much that of a porous fluid-filled solid media (in our case the fluid is the gas and the porous "solid" medium is the liquid-

elastic skeleton). In fact, sound propagation through these kind of heterogeneous systems has been widely studied. The semiphenomenological Biot theory is considered as the most general effective-medium theory for two-component systems and it has been shown to have a tremendous predictive power [41]. To our knowledge, this is the only effective-medium theory that considers explicitly the existence of a skeleton elasticity, and it is therefore interesting to see under which circumstances we can apply this theory to our foam samples. In the Biot theory there are four basic assumptions [41]: (i) the system can be described by two displacement fields, (ii) there is no force due to relative displacements of the centers of mass of the two constituents, (iii) the fluid (in our case the gas) neither creates nor reacts to shear forces, (iv) sound attenuation is solely due to viscous damping created by the relative motion of both constituents. To apply this theory to our foams, the main problems are given by assumptions (ii) and (iv). In fact, assumption (ii) presumes that the fluid is interconnected throughout the sample, which is not the case in a foam. On the other hand, assumption (iv) neglects the possibility of thermal damping, which we know is dominant for the high frequencies explored by our experiments. However, it is easy to show that point (ii) can be completely relaxed if both constituents are described by the same displacement field, such that there is no relative motion between the gas and the liquid; as it has already been shown, this is the case for our foam samples because bubbles are highly coupled by viscous forces. This has another consequence, which is the elimination of dissipative terms in Biot theory, since the only damping source is given by velocity differences at the boundaries of both constituents.

Thus, the main problem is that Biot theory does not consider thermal attenuation. However, we note that in the low frequency experiments $p_{\max}$ decreases very slowly during the explored aging times, by approximately a factor of 1.6 after 8 h of coarsening. This has to be compared to the reduction of $p_{\max}$ by a factor of 50 observed after only 2 h of coarsening for $f=37$ kHz. If we assume that at low frequencies, thermal damping dominates the acoustic attenuation, then for $f=5$ kHz, $\alpha\lambda \propto \langle R \rangle^2 \omega$ is of order 0.03, 0.07, and 0.1 for aging times of 20 min, 2 h and 4 h, respectively. Thus, our low frequency experiments can be considered as almost non-dissipative. We can then apply the low frequency results of the Biot theory. In this limit, both constituents are described by the same displacement field and two nondissipative propagating modes are predicted [41], a transverse mode and a longitudinal one, with speeds given by

$$c_t^2 = \frac{N}{\langle \rho \rangle}, \quad c_l^2 = \frac{H}{\langle \rho \rangle} \quad (23)$$

with

$$H = \frac{K_s + [\phi(K_s/K_f) - (1 + \phi)]K_b}{1 - \phi - K_b/K_s + \phi(K_s/K_f)} + \frac{4}{3}N, \quad (24)$$

where ϕ is the fluid volume fraction. K_s and K_f are the bulk elastic moduli of the solid and the fluid as if they were homogeneous and isotropic. Thus, in the case of a foam, K_s

$\rightarrow 1/\chi_l$ and $K_f \rightarrow 1/\chi_g$, and ϕ is the gas volume fraction. K_b and N are the bulk and shear elastic moduli of the skeletal frame (liquid-elastic matrix). In general, they are independent of the fluid in the pores [41]. N can be then identified as the shear modulus of the foam, previously noted by μ , but for a foam $\mu \propto \sigma/\langle R \rangle$ [23,24] and the surface tension σ depends on the gas. On the other hand, the first term of H can be then identified as the elastic bulk modulus, which we denoted by K in Sec. III A. For a foam $K \gg \mu$, and we can then consider that the first term of the right-hand side of Eq. (24) is dominant. The form of this term is not obvious, but we can show that in the limit of a very weak skeleton, such that $K_b/K_s \rightarrow 0$ and $K_b/K_f \rightarrow 0$, Eq. (24) then takes the form

$$H \approx \frac{1}{\phi\chi_g + (1 - \phi)\chi_l}, \quad (25)$$

and the longitudinal sound velocity c_l takes the form of Wood's formula (2). In the case of a foam, where the elastic properties of the liquid films can be important, we have

$$H \approx \frac{1}{\phi\chi_g} (1 + \phi\chi_g K_b), \quad (26)$$

where we have neglected terms of order χ_l/χ_g . Thus, the skeleton elastic modulus K_b increases the foam's effective bulk modulus, and thus the effective sound speed.

We now proceed to estimate K_b . It is known that pure liquid films (without surfactants) can propagate in both anti-symmetrical and symmetrical wave modes [40]. However, the symmetrical mode is more difficult to observe because it involves viscous motion of the liquid from the nodes to the antinodes. In a liquid film with surfactant molecules, the variation of thickness is coupled to the variation of the surface density of the surfactant molecules. The corresponding waves propagate at a velocity $v_M = \sqrt{2E_M/\rho_l h}$ [40], where h is the film thickness. We can therefore define the liquid film elastic modulus as $K_b \approx 2E_M/h$.

The final step is to relate h to the mean bubble radius $\langle R(t) \rangle$. As the total foam surface decreases with time and the liquid content is constant, h should increase with time. In addition, as the foam structure is dominated by a single length scale, a linear relation $h \propto \langle R(t) \rangle$ is expected. We then estimate an average value of h by assuming that each bubble is surrounded by a liquid film of thickness $h/2$ (thickness per bubble). The gas volume fraction is then

$$\phi \approx \frac{\langle R(t) \rangle^3}{\langle R(t) + h(t)/2 \rangle^3}. \quad (27)$$

Thus, for $\phi \approx 0.924$, $\langle h(t) \rangle = B\langle R(t) \rangle$, with $B \approx 5.34 \times 10^{-2}$. The effective skeleton elastic modulus is therefore

$$K_b \approx \frac{2E_M}{B\langle R(t) \rangle}. \quad (28)$$

We then find that the foam's effective bulk modulus, given by Eq. (26), evolves with time, which explains the

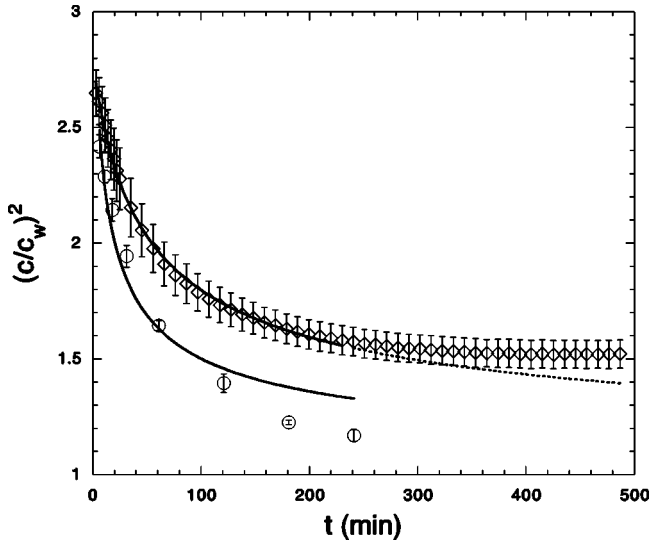


FIG. 7. Time evolution of $(c/c_w)^2$ for $f=5$ ($\diamond$) and 37 ($\circ$) kHz. The continuous lines correspond to fits of the form $[c(t)/c_w]^2 = 1 + a/\sqrt{1+b(t-t_0)}$ for $t < 240$ min (see Table I for the values of a and b). The dashed line shows the extrapolation of the fit for $f=5$ kHz.

time dependence of the measured sound velocity. In fact, using Eqs. (23), (26), and (28), we find that the longitudinal sound speed takes the form

$$\left(\frac{c_l(t)}{c_w}\right)^2 = 1 + \frac{a}{\sqrt{1+b(t-t_0)}} \quad (29)$$

with $c_w = \sqrt{\gamma P_o / \phi \langle \rho \rangle} \approx 40$ m/s, which is Wood's value of the effective sound speed, and

$$a = \frac{2\phi E_M}{B\gamma P_o \langle R_o \rangle}, \quad (30)$$

$$b = \frac{A}{\langle R_o \rangle^2}. \quad (31)$$

As before, $A \approx 5.07 \mu\text{m}^2/\text{min}$ and $\langle R_o \rangle \approx 14 \mu\text{m}$, thus $b \approx 0.026 \text{ min}^{-1}$.

We then present in Fig. 7 the time evolution of the experimental values of $(c/c_w)^2$ for $f=5$ and 37 kHz. This quantity represents the foam's elastic bulk modulus, normalized to $\gamma P_o / \phi$. As discussed before, for early times of coarsening, this bulk modulus is a factor 2.5 higher than $\gamma P_o / \phi$. In the frame of the Biot theory we can understand this fact by the importance of the liquid matrix intrinsic elasticity, which turns out to be of the same order as $\gamma P_o / \phi$. The continuous lines are fits of Eq. (29) for $t < 240$ min, where both a and b are adjustable parameters. We observe that for the lower frequency, the fit is quite good. In this case we also show the long time extrapolation of the fit (dashed line). The long time departure is caused by the average density reduction due to drainage. At $f=37$ kHz the fit seems to deviate significantly for $t \geq 100$ min, the experimental values being lower than those predicted by the fit and this is observed for all the high

TABLE I. Parameters of the fit $[c(t)/c_w]^2$ given by Eq. (29). The fourth column presents the regression coefficients.

f (kHz)	a	$b(\text{min}^{-1})$	R_c
2	1.42 ± 0.01^a	0.020 ± 0.001	0.985
5	1.33 ± 0.01	0.022 ± 0.001	0.999
37	1.01 ± 0.05	0.038 ± 0.005	0.977
63	1.04 ± 0.08	0.040 ± 0.006	0.961
84	1.03 ± 0.07	0.038 ± 0.006	0.959

^aThis frequency corresponds to a single experimental run, with $\langle \rho \rangle = 0.071 \text{ g/cm}^3$. ϕ and c_w are then corrected.

frequency measurements. This is surely caused by the breakdown of the nondissipative approximation made to obtain Eq. (23). Table I shows that for low f the fitted values of b approach the expected value $b \approx 0.026 \text{ 1/min}$, confirming that we can apply the Biot theory to our low frequency results. On the other hand, the fitted values of a at low frequency give $E_M \approx 60 \text{ mN/m}$. In spite of the rather rough estimation of B , this value is in good agreement with those found in the literature for the Marangoni elastic constant in the large surfactant concentration limit [39].

Before concluding this discussion, we will estimate the sound velocity of transverse waves. This is motivated by the experimental results of Sun *et al.* [18]. They effectively show that a foam can propagate as a transverse acoustic wave. We note that their measurements were performed in the frequency range 20–200 Hz. Compared to our measurements of the longitudinal velocity, they report a much lower transverse velocity, $c_t = 3.1 \pm 0.4 \text{ m/s}$. Unfortunately, they give little information about the foam characteristics. For example, the mean bubble size and the bubble size distribution are not reported. Nevertheless, they do mention the average density, $31 \pm 4 \text{ kg/m}^3$. As the liquid they used is a mixture of distilled water and glycerine, we have approximately $\rho_l = 1 \text{ g/cm}^3$, so the average gas volume fraction is $\phi \approx 0.97$. They also indicate that their measurements were done with 1-h-old foams. On the other hand, Cohen-Addad *et al.* have studied the viscoelastic response of a coarsening foam [24], using Gillette shaving foams. They measured the temporal evolution of both elastic shear and loss moduli in the frequency range 0.04–3 Hz. For a foam age of 15 min, μ increases slowly with f from 400 to 500 Pa. By Eq. (23), we have $c_t = \sqrt{\mu / \langle \rho \rangle}$. Considering that $\langle \rho \rangle \approx 76 \text{ kg/m}^3$, we obtain that c_t increases slowly between 2.3 and 2.6 m/s with f . This value is very close to that found by Sun *et al.*; taking into account the differences of the foams, this may be a coincidence. The important point is that our estimation gives a good order of magnitude and we expect to find this value for our own foam samples. Finally, the difference in magnitude between the estimated values of c_t and the measured longitudinal sound velocity is very important. As noted before, it corresponds to a factor 700 between bulk and shear elastic moduli.

In conclusion, we have shown that frequency-dependent acoustic measurements can be used to probe foam coarsening. This is due to the high contrast of thermal and acoustic

properties at the liquid-gas interface within the foam, which leads to a dominant thermal dissipation. We have also observed that sound velocity depends on the structure of the foam even in the large wavelength regime. This is explained by considering the liquid matrix elasticity, which is related to Marangoni's elasticity. A simple model of foam structure, combined with the low frequency Biot theory, gives both good qualitative and quantitative agreement with our experimental results in the low frequency regime.

ACKNOWLEDGMENTS

We acknowledge Christophe Coste for useful comments on the manuscript. We also thank Vance Bergeron and Régis Wunenburger for discussions on the elasticity of liquid films. N.M. acknowledges Sergio Rica for many stimulating discussions. This work was financially supported by Chancellerie des Universités de Paris, France and Cátedra Presidencial en Ciencias (Chile).

-
- [1] L. van Wijngaarden, *J. Fluid Mech.* **33**, 465 (1968).
 - [2] A. Crespo, *Phys. Fluids* **12**, 2274 (1969).
 - [3] G.K. Batchelor, in *Fluid Dynamics Transactions*, edited by W. Fiszdon, P. Kucharczyk, and W.J. Posnak (PWN-Polish Scientific, Warsaw, 1969), pp. 425–445.
 - [4] L. van Wijngaarden, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **4**, 369 (1972).
 - [5] R.E. Caflisch, M.J. Miksis, G.C. Papanicolaou, and L. Ting, *J. Fluid Mech.* **153**, 259 (1985).
 - [6] E.L. Carstensen and L.L. Foldy, *J. Acoust. Soc. Am.* **19**, 481 (1947).
 - [7] F.E. Fox, S.R. Curley, and G.S. Larson, *J. Acoust. Soc. Am.* **27**, 534 (1955).
 - [8] J.D. Macpherson, *Proc. Phys. Soc. London, Sect. B* **70**, 85 (1957).
 - [9] E. Silberman, *J. Acoust. Soc. Am.* **29**, 925 (1957).
 - [10] K.W. Commander and A. Prosperetti, *J. Acoust. Soc. Am.* **85**, 732 (1989).
 - [11] C. Devin, *J. Acoust. Soc. Am.* **31**, 1654 (1959).
 - [12] A.I. Eller, *J. Acoust. Soc. Am.* **47**, 1469 (1970).
 - [13] A. Prosperetti, *J. Acoust. Soc. Am.* **61**, 17 (1977).
 - [14] A. Prosperetti, *J. Fluid Mech.* **222**, 587 (1991).
 - [15] J. Rubinstein, *J. Acoust. Soc. Am.* **77**, 2061 (1985).
 - [16] R.E. Caflisch, M.J. Miksis, G.C. Papanicolaou, and L. Ting, *J. Fluid Mech.* **160**, 1 (1985).
 - [17] Z.M. Orenbakh and G.A. Shushkov, *Acoust. Phys.* **39**, 63 (1993).
 - [18] Q. Sun, J.P. Butler, B. Suki, and D. Stamenović, *J. Colloid Interface Sci.* **163**, 269 (1994).
 - [19] F.I. Vafina, I.I. Gol'dfarb, and I.R. Shreiber, *Akust. Zh.* **38**, 260 (1992) [*Sov. Phys. Acoust.* **38**, 139 (1992)].
 - [20] I.I. Gol'dfarb, I.R. Shreiber, and F.I. Vafina, *J. Acoust. Soc. Am.* **92**, 2756 (1992).
 - [21] The Gillette Company, Gillette U.K. Ltd., London.
 - [22] D.J. Durian, D.A. Weitz, and D.J. Pine, *Phys. Rev. A* **44**, R7902 (1991).
 - [23] H. Hoballah, R. Holler, and S. Cohen-Addad, *J. Phys. II* **7**, 1215 (1997).
 - [24] S. Cohen-Addad, H. Hoballah, and R. Holler, *Phys. Rev. E* **57**, 6897 (1998).
 - [25] W.W. Mullins, *J. Appl. Phys.* **59**, 1341 (1986).
 - [26] A.B. Wood, *A Textbook of Sound* (Bell and Sons, London, 1944), pp. 360–363.
 - [27] K.F. Herzfeld, *Philos. Mag.* **9**, 752 (1930).
 - [28] M. Minnaert, *Philos. Mag.* **16**, 235 (1933).
 - [29] R.P. Feynman, R.B. Leighton, and M. Sands, *Lectures On Physics* (Addison-Wesley, Reading, MA, 1969), Vol. II.
 - [30] T.G. Leighton, *The Acoustic Bubble* (Academic Press, New York, 1994).
 - [31] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Theory of Elasticity*, 3rd ed. (Pergamon Press, New York, 1986).
 - [32] For long aging times, the accumulation of a thin liquid layer on the transducer can induce changes on the acoustic transmission to the foam. However, once the acoustic pulse enters the foam, this liquid layer does not affect its propagation. Indeed, a liquid layer would affect the absolute values of $p_{\max}$ and τ_n , but not their relative values with respect to changes of L .
 - [33] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Fluid Mechanics*, 2nd ed. (Butterworth Heinemann, Oxford, 1987).
 - [34] P.M. Morse and K.U. Ingard, *Theoretical Acoustics* (Princeton University Press, Princeton, NJ, 1986).
 - [35] M.J. Miksis and L. Ting, *Phys. Fluids* **30**, 1683 (1987).
 - [36] R.J. Urick, *J. Acoust. Soc. Am.* **20**, 283 (1948).
 - [37] J.R. Allegra and S.A. Hawley, *J. Acoust. Soc. Am.* **51**, 1545 (1972).
 - [38] National Institute of Standards and Technology Chemistry WebBook, <http://webbook.nist.gov/chemistry>
 - [39] A.I. Rusanov and V.V. Krotov, *Prog. Surf. Membr. Sci.* **13**, 415 (1979).
 - [40] Y. Couder, J.M. Chomaz, and M. Rabaud, *Physica D* **37**, 384 (1989).
 - [41] D.L. Johnson, in *Frontiers in Physical Acoustics*, Proceedings of the International School of Physics “Enrico Fermi,” Course XCIII, edited by D. Sette (North-Holland, Amsterdam, 1986), pp. 255–290.

Compléments

2.A Effet du drainage sur $\langle \rho \rangle$

Concernant les mousses à raser on sait que le drainage du liquide a un effet assez important sur la densité de la mousse pour des «longs temps» de vieillissement. Nous avons brièvement discuté ceci à la fin du paragraphe 2.2 et aussi plus en détail dans l'article. Nous savons que la réduction de densité est due au drainage car nous avons mesuré $\langle \rho \rangle$ dans les différents dispositifs en fonction du temps de vieillissement². En fait, après quelques heures de vieillissement nous observons la présence d'un gradient de densité, la mousse devenant plus sèche vers le haut de l'échantillon et plus humide vers le bas. Pour des temps de vieillissement «très longs» nous observons la présence d'une fine couche de liquide en dessous de l'échantillon.

La figure 2.7 présente l'évolution de $\langle \phi \rangle$ et $\langle \rho \rangle$ en fonction du temps de vieillissement. Les différents points expérimentaux correspondent aux mesures que nous avons réalisées sur des échantillons de mousse vieillissant dans les deux dispositifs utilisés, et aux résultats de Hoballah *et al.* [48]. Les barres d'erreur correspondent à une moyenne sur plusieurs mesures différentes. Dans le cas du dispositif I, les mesures ont été réalisées à hauteurs différentes dans l'échantillon (la barre d'erreur représente donc les variations typiques de $\langle \rho \rangle$ en fonction de la hauteur, $\langle \rho \rangle$ étant la valeur moyenne à mi-hauteur). Concernant les mesures de Hoballah *et al.*, la barre d'erreur correspond à l'erreur maximale rapportée, de $\pm 1\%$ par rapport à la valeur moyenne à mi-hauteur. Nous observons que l'évolution de $\langle \phi \rangle$ et de $\langle \rho \rangle$ est à peu près la même dans les trois cas, étant un peu plus lente dans le cas du dispositif II. Comme nous l'avons déjà dit, le drainage dépend en général de la géométrie de l'échantillon de mousse, en particulier de sa hauteur. En fait, la cellule utilisée dans [48] a une hauteur de 7 cm, proche à la hauteur du tube cylindrique du dispositif I. Le drainage plus lent des échantillons étudiés avec le dispositif II est sûrement dû à la plus petite hauteur du tube utilisé (4 cm).

En conclusion, le drainage du liquide a un effet assez faible pendant les premières heures de vieillissement. Après 4 heures de vieillissement les variations sont de l'ordre de $+0.5\%$ pour $\langle \phi \rangle$ et de -5% pour $\langle \rho \rangle$. Ces ordres de grandeur correspondent bien aux

2. Nous rappelons que ces mesures sont faites en mesurant le poids d'un volume connu de mousse ($\approx 5.15 \pm 0.03 \text{ cm}^3$) avec une balance de $\pm 0.01 \text{ g}$ de résolution (Mettler Toledo PB602). La résolution en densité est approximativement $\pm 2 \text{ mg/cm}^3$. $\langle \phi \rangle$ est obtenu à partir de l'expression $\langle \rho \rangle \approx (1 - \langle \phi \rangle)\rho_l$, où $\rho_l \approx 1 \text{ g/cm}^3$.

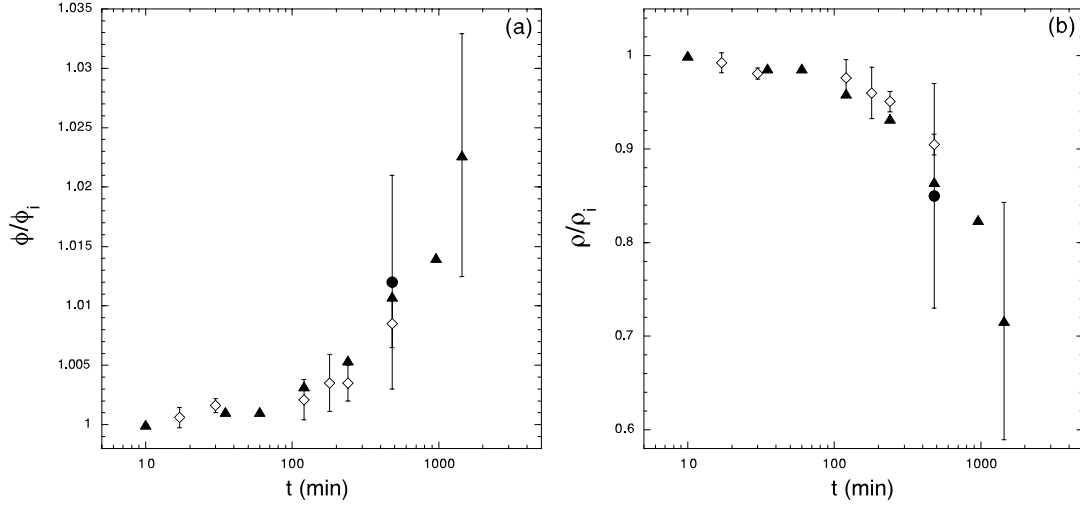


FIG. 2.7 – Évolution temporelle de la fraction volumique de gaz (a) et de la densité (b) pour les deux dispositifs expérimentaux ; (●) dispositif I, (◇) dispositif II. Nous présentons aussi les données obtenues par Hoballah et al [48] (▲). Toutes les données sont normalisées par rapport aux valeurs initiales.

valeurs rapportées dans la référence [48].

2.B Reproductibilité des mesures acoustiques

Un aspect assez important concerne la reproductibilité des expériences. Nous observons que nos mesures sont assez sensibles à la fabrication des mousses. L'état initial des mousses à raser varie d'un échantillon à l'autre. Il y a au moins deux paramètres importants : la densité moyenne, $\langle \rho \rangle$, et la distribution des tailles de bulles, $F(R, t)$ (où t est le temps de vieillissement). En fait, $\langle \rho \rangle$ peut être considéré, à une constante près, équivalent au premier moment de $F(R, t)$.

La densité de la mousse dépend de l'histoire de la bonbonne. Au tout début et à la fin de la «vie utile» d'une bonbonne, la mousse fabriquée peut être assez liquide et peu reproductible. Notre expérience nous montre que c'est seulement après avoir fabriqué quelques échantillons avec une bonbonne neuve, que la densité se stabilise autour d'une valeur à peu près constante. En fait, pour différents échantillons ainsi fabriqués, $\langle \rho \rangle$ varie autour d'une valeur moyenne, comme le montre l'histogramme de $\langle \rho \rangle$ présenté dans la figure 2.8. La plupart des mesures se trouvent dans la gamme $\langle \rho \rangle = 0.067 - 0.089$ g/cm³, la valeur moyenne étant 0.083 g/cm³. Néanmoins, pour nos mesures acoustiques nous choisissons une gamme plus étroite de valeurs de densité, à savoir $\langle \rho \rangle = 0.070 - 0.083$ g/cm³, et donc, en moyenne, $\langle \rho \rangle = 0.076 \pm 0.005$ g/cm³. Nous considérons $\rho_i \approx 1$ g/cm³, et nous avons donc $\langle \phi \rangle = 0.924 \pm 0.005$, en accord avec les travaux précédents [55, 48, 49].

La densité étant bien contrôlée, $F(R, t)$ peut encore avoir une influence sur les mesures

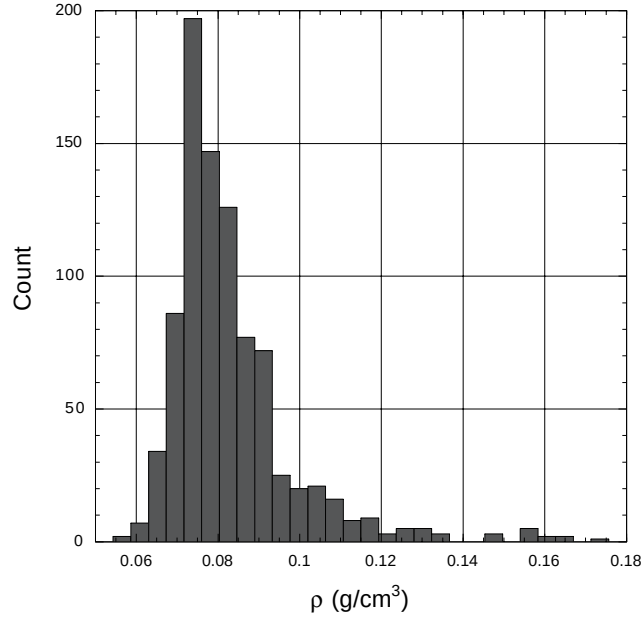


FIG. 2.8 – Histogramme de $\langle \rho \rangle$ pour des échantillons relativement «jeunes» de mousse, où le drainage du liquide n’a pas encore affecté la densité du système (temps de vieillissement < 60 min). Le nombre total de mesures est 875. 72% des valeurs mesurées se trouvent dans la gamme $\langle \rho \rangle = 0.067 - 0.089 \text{ g/cm}^3$. Les mesures $\langle \rho \rangle \gtrsim 0.09 \text{ g/cm}^3$ correspondent à des échantillons fabriqués soit au tout début soit à la fin de la «vie utile» d’une bonbonne de mousse.

acoustiques. Il est clair que deux échantillons avec la même densité peuvent avoir des distributions de tailles de bulles différentes ; il suffit que les deux distributions soient centrées autour de la même moyenne. Pour les hautes fréquences acoustiques nous observons que les mesures deviennent sensibles au détail de $F(R,t)$ et à son évolution. Ceci peut se comprendre si nous considérons que quand nous augmentons f , λ diminue, et nous explorons donc de façon plus efficace les détails de la structure des mousses. Il est clair que $F(R,t)$ est déterminé en partie par la géométrie interne de la bonbonne de mousse, comme la taille des pores par où la mousse est forcée à passer pendant sa formation, paramètres que nous ne contrôlons pas du tout. La distribution de taille des bulles est aussi affectée par la «vitesse» à laquelle la mousse est fabriquée. Nous montrons dans la figure 2.9 un exemple, où nous présentons en échelle semi-logarithmique $p_{\max}$ en fonction de L pour plusieurs expériences indépendantes. Comme attendu, $p_{\max} \sim e^{-\alpha L}$, mais α dépend de la «vitesse» de fabrication des mousses. Il est bien connu que quand les bulles sont fabriquées par nucléation du gaz, la taille des bulles dépend du temps qu’elles prennent pour «monter» à la surface du liquide [44]. La fabrication «rapide» favorise alors la présence de petites bulles. Nous trouvons donc qu’une mousse avec des bulles plus grandes est plus efficace pour atténuer l’onde acoustique. En pratique, ceci veut dire que pour avoir des mesures reproductibles, nous devons fabriquer les différents échantillons de mousse à une vitesse

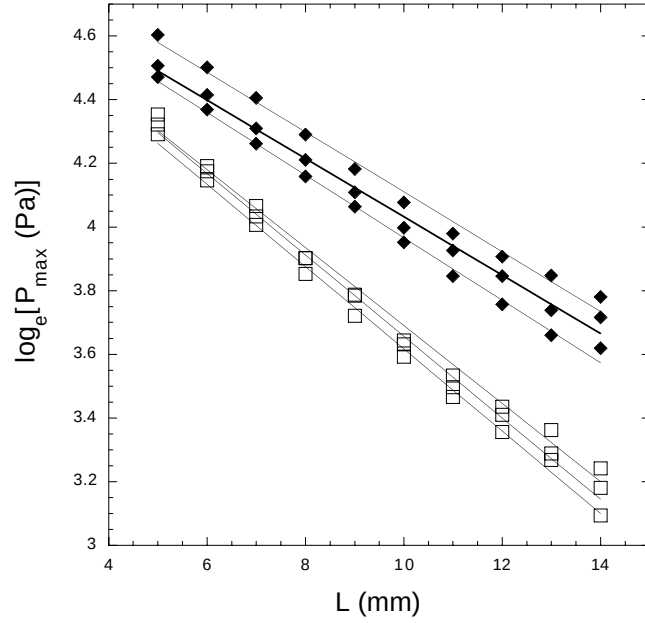


FIG. 2.9 – Effet de la «vitesse» de fabrication d'une mousse sur l'atténuation pour une densité constante $\langle \rho \rangle = 0.076 \pm 0.005$. ($\square$) fabrication «lente», $\alpha = 128.1, 129.2$ et 122.5 1/m ; ($\blacklozenge$) fabrication «rapide», $\alpha = 91.8, 98.2$ et 94.1 1/m.

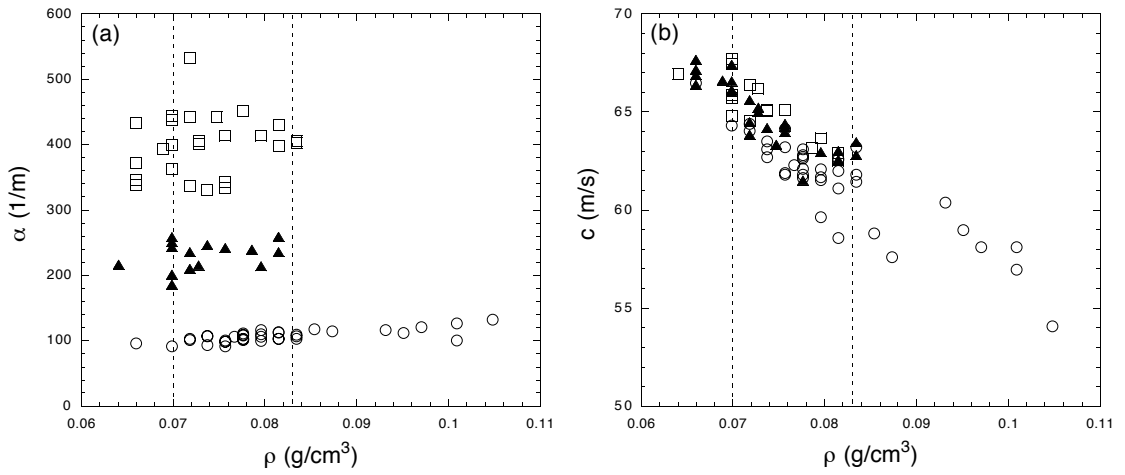


FIG. 2.10 – Reproductibilité des mesures : α et c en fonction de la densité pour $f = 37$ ($\circ$), 63 ($\blacktriangle$) et 84 ($\square$) kHz. Les mesures ont été réalisées 5 min après la formation de la mousse. Les lignes verticales indiquent la gamme de densité $\langle \rho \rangle = 0.070 - 0.083$ g/cm³ considérée pour les moyennes d'ensemble.

constante, en appuyant de façon contrôlée sur le «bouton» de la bonbonne³. Dans nos expériences nous fixons cette vitesse autour de 5 cm³/s, qui correspond à la fabrication «rapide» de la figure 2.9. Remarquons enfin que la vitesse est contrôlée en mesurant le temps de remplissage du tube.

Pour réduire alors les erreurs dues aux variations de $\langle\rho\rangle$ et de $F(R,t)$, nous réalisons plusieurs mesures de α and c (entre 5 et 20) sous les mêmes conditions expérimentales: à savoir le même temps de vieillissement, la même fréquence acoustique, la même vitesse de fabrication des échantillons, etc. La figure 2.10 présente un exemple; nous montrons plusieurs mesures de α et c en fonction de $\langle\rho\rangle$ pour $f = 37, 63$ et 84 kHz. Généralement parlant, c diminue avec $\langle\rho\rangle$ et ne dépend pas de f . Au contraire, α ne varie presque pas avec $\langle\rho\rangle$ et dépend fortement de f (comme nous l'avons montré dans l'article). Nous observons que les fluctuations de α augmentent avec f , ce qui semble indiquer que nos mesures acoustiques sont plus sensibles aux détails de la structure de la mousse lorsque nous l'explorons aux petites échelles, c'est-à-dire à petit λ . En raison de la variation de c avec $\langle\rho\rangle$, nous ne gardons que les valeurs de α et c telles que $\langle\rho\rangle = 0.070 - 0.083$ g/cm³, et nous réalisons des moyennes d'ensemble pour chaque quantité. Cette procédure nous permet de déterminer ces quantités avec des erreurs relatives inférieures à 15% (dans la plupart de cas $\lesssim 10\%$) et 5% respectivement.

3. Nous avons fabriqué une pièce d'adaptation pour appuyer toujours de la «même façon», en contrôlant le déplacement du bouton de la bonbonne. Ceci n'a pas donné de bons résultats car la pression à l'intérieur du tube varie au fur et à mesure qu'on utilise une bonbonne. Nous avons donc fini par contrôler la vitesse de remplissage et non la force ni le déplacement du bouton.

Deuxième partie

Effets non-linéaires de volume et de surface

Chapitre 3

Introduction à l'acoustique non-linéaire

L'acoustique non-linéaire a été étudiée en détail, mais, comparée à l'acoustique linéaire, les progrès ont été lents et limités [62, Chapitre 1]. L'étude de l'acoustique non-linéaire concerne des phénomènes fondamentaux associés à la propagation d'ondes non-linéaires [62, 63], mais aussi des applications industrielles, que ce soit dans le domaine de la médecine [62, Chapitre 15], de la tomographie acoustique non-linéaire [63, paragraphe 5.3] ou du contrôle non-destructif des matériaux [64].

Nous commençons ce chapitre en présentant les aspects principaux de l'acoustique non-linéaire dans les milieux homogènes, à savoir l'origine physique des non-linéarités acoustiques et les hypothèses permettant d'obtenir une équation d'onde non-linéaire. Ensuite, nous présentons dans le deuxième paragraphe quelques résultats concernant l'acoustique non-linéaire des milieux diphasiques.

3.1 Milieux homogènes

3.1.1 Origine physique des non-linéarités acoustiques

Le fait que deux ondes acoustiques de fréquences f_1 et f_2 peuvent engendrer des ondes aux fréquences «différence» $f_1 - f_2$ et «somme» $f_1 + f_2$ est connu depuis Rayleigh [65, Paragraphe 297]. Par ailleurs, la formation d'ondes de choc, le phénomène peut-être le plus étudié en acoustique non-linéaire, est précisément due à la génération en cascade d'harmoniques d'une fréquence fondamentale. On peut dire que l'interaction de l'onde fondamentale avec elle-même ($f_1 = f_2$) engendre le second harmonique ($f_1 + f_2 = 2f_1$), qui, à son tour, interagit avec l'onde fondamentale pour engendrer le troisième harmonique ($f_1 + 2f_1 = 3f_1$), etc... En pratique, cette cascade d'énergie est limitée par la dissipation, qui est plus importante à haute fréquence. Nous remarquons que de façon générale, le mécanisme de mélange des ondes est optimal en l'absence de dispersion et lorsque les vecteurs d'onde sont colinéaires. Notons également que, telle que décrite ici, la génération des ondes «mélanges» est due aux non-linéarités quadratiques des premiers

termes correctifs de l'équation d'onde.

Il existe deux sources de non-linéarités acoustiques : la première est la non-linéarité de l'équation d'état du fluide

$$P = P(\rho, s), \quad (3.1)$$

où P , ρ et s sont la pression, la densité et l'entropie spécifique (par unité de masse) du fluide ; la deuxième est le caractère proprement non-linéaire des équations de conservation. Nous allons maintenant considérer chacune de ces sources de non-linéarité.

Paramètre B/A : non-linéarité du milieu

Le développement limité de l'équation d'état autour des valeurs d'équilibre (P_o, ρ_o) à entropie constante $s = s_o$, s'écrit

$$P - P_o = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_{s,o} (\rho - \rho_o) + \frac{1}{2!} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2} \right)_{s,o} (\rho - \rho_o)^2 + \frac{1}{3!} \left(\frac{\partial^3 P}{\partial \rho^3} \right)_{s,o} (\rho - \rho_o)^3 + \dots, \quad (3.2)$$

où $p = P - P_o$ et $\rho' = \rho - \rho_o$ sont les variations de pression et de densité. Les indices « s » et « o » indiquent que les dérivées sont évaluées à entropie constante et aux valeurs d'équilibre (P_o, ρ_o, s_o) . On peut réécrire cette équation sous la forme

$$p = A \left(\frac{\rho'}{\rho_o} \right) + \frac{B}{2!} \left(\frac{\rho'}{\rho_o} \right)^2 + \frac{C}{3!} \left(\frac{\rho'}{\rho_o} \right)^3 + \dots, \quad (3.3)$$

où

$$A = \rho_o \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_{s,o} \equiv \rho_o c_o^2, \quad (3.4)$$

$$B = \rho_o^2 \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2} \right)_{s,o}, \quad (3.5)$$

$$C = \rho_o^3 \left(\frac{\partial^3 P}{\partial \rho^3} \right)_{s,o}. \quad (3.6)$$

La première équation donne précisément la définition de la vitesse du son isentropique à l'équilibre, la définition générale étant

$$c^2 = (\partial P / \partial \rho)_s. \quad (3.7)$$

En général, on se limite au deuxième ordre du développement de $P(\rho, s)$, les valeurs de C étant rarement nécessaires. Par contre, comme nous allons le montrer, le rapport

$$\frac{B}{A} = \frac{\rho_o}{c_o^2} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \rho^2} \right)_{s,o} \quad (3.8)$$

est important pour expliquer les phénomènes non-linéaires en acoustique. Des définitions alternatives sont données par

$$\frac{B}{A} = \frac{2\rho_o}{c_o} \left(\frac{\partial c}{\partial \rho} \right)_{s,o} = 2\rho_o c_o \left(\frac{\partial c}{\partial P} \right)_{s,o}, \quad (3.9)$$

où nous avons utilisé la définition de la vitesse du son isentropique (3.7). Remarquons qu'en pratique il est difficile de mesurer B/A en étudiant les variations isentropiques des dérivées de P ou de c en fonction de la densité ou la pression. En utilisant des relations thermodynamiques, on obtient une relation plus utile du point de vue expérimental

$$\frac{B}{A} = 2\rho_o c_o \left(\frac{\partial c}{\partial P} \right)_{T,o} + \frac{2\alpha_P c_o T_o}{c_P} \left(\frac{\partial c}{\partial T} \right)_{P,o}, \quad (3.10)$$

où $\alpha_P = -\rho_o^{-1}(\partial\rho/\partial T)_P$ est le coefficient de dilatation thermique isobare, T_o est la température à l'équilibre, et les dérivées sont évaluées respectivement à température et à pression constantes. Notons également que pour un gaz parfait, $P/P_o = (1 + \rho'/\rho_o)^\gamma$, où γ est le rapport de capacités calorifiques. Ainsi, $A = \gamma$, $B = \gamma(\gamma - 1)$ et $C = \gamma(\gamma - 1)(\gamma - 2)$.

Advection de l'onde acoustique par elle même

Nous avons déjà remarqué que les non-linéarités des équations de conservation sont également responsables des effets non-linéaires en acoustique. Nous allons voir par la suite comment celles-ci déterminent la forme de l'équation d'onde non-linéaire (voir le paragraphe suivant). Pour le moment, remarquons qu'un des effets principaux est celui de l'advection de l'onde acoustique par son propre champ de vitesse. On peut facilement comprendre ceci en considérant les termes convectifs, i.e. de la forme $\mathbf{u} \cdot \nabla$, dans les équations de conservation. Plus précisément, à partir des équations de conservation non-dissipatives, on obtient l'équation d'onde unidimensionnelle pour des ondes progressives d'amplitude finie [62, chapitre 1]:

$$c_o^2 \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} - \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\partial u^2}{\partial t} + u^2 \frac{\partial u}{\partial x} \right), \quad (3.11)$$

où u est la vitesse acoustique (sa valeur à l'équilibre étant $\mathbf{u} = 0$). Les deux termes correctifs viennent des termes d'advection des équations de conservation, le premier terme étant d'ordre 2 ($\sim u^2$) et le deuxième d'ordre 3 ($\sim u^3$). Cette équation a une solution exacte [62, chapitre 1], due à Poisson

$$u = g[x - (c_o \pm u)t], \quad (3.12)$$

où g est une fonction arbitraire, et le signe $+$ (resp. $-$) représente les ondes divergentes (resp. convergentes). Cette solution implicite est intrinsèquement non-linéaire. On observe en effet que la *vitesse de propagation* d'une onde d'amplitude finie est donnée par

$$\left. \frac{dx}{dt} \right|_u = c_o \pm u. \quad (3.13)$$

Dans cette notation, $dx/dt|_u$ indique que c'est la vitesse de propagation liée à la vitesse acoustique u . Remarquons que quand les ondes acoustiques ont une amplitude finie, on doit faire attention à la différence entre les termes *vitesse du son* et la *vitesse de propagation*. La première est définie par $c^2 = (\partial P / \partial \rho)_s$, tandis que la deuxième est définie par (3.13)¹, à partir de la solution exacte (3.12). Évidemment, lorsque $u/c_o \ll 1$, i.e. les perturbations sont infinitésimales, on retrouve que la vitesse de propagation d'une onde acoustique est égale à la vitesse du son, $dx/dt|_u = c_o$. Notons également que dans cette description, nous n'avons pas pris en compte la non-linéarité du milieu. Ceci est possible comme nous allons le voir par la suite.

Interprétation physique

Une manière simple de comprendre les effets non-linéaires en acoustique est de considérer la dépendance des vitesses du son et de propagation en fonction de l'amplitude de l'onde acoustique. Concernant la non-linéarité du milieu, on utilise la définition (3.7), $c^2 \approx p/\rho'$, et on obtient à partir de l'équation (3.3)

$$\frac{c^2}{c_o^2} \approx 1 + \frac{B}{A} \left(\frac{\rho'}{\rho_o} \right). \quad (3.14)$$

Cependant $(B\rho')/(A\rho_o) \ll 1$, de telle sorte que

$$\frac{c}{c_o} \approx 1 + \frac{B}{2A} \left(\frac{\rho'}{\rho_o} \right). \quad (3.15)$$

On observe donc que lors d'une surpression $\rho'/\rho_o > 1$ (resp. dépression $\rho'/\rho_o < 1$) la vitesse du son c augmente (resp. diminue); la vitesse du son devient donc une fonction *locale*. Si l'on considère des ondes planes et progressives on a $\rho'/\rho_o = u/c_o$, et on obtient $c \approx c_o + (B/2A)u$. La vitesse du son varie donc avec l'amplitude de la vitesse acoustique u , l'amplitude de cette variation étant donnée par le coefficient non-linéaire B/A .

En ce qui concerne l'effet de l'advection, la variation de la vitesse de propagation se déduit aisément des équations (3.12) et (3.13). En effet, en considérant les deux sources de non-linéarité, il résulte que la vitesse de propagation d'une onde plane est donnée par [62, chapitres 1-4]

$$\left. \frac{dx}{dt} \right|_u = c_o \pm \beta u = c \pm u, \quad (3.16)$$

où $\beta = 1 + B/2A$ est le paramètre non-linéaire du fluide et $c \approx c_o + (B/2A)u$. Ce paramètre prend en compte les effets de l'advection de l'onde acoustique par elle-même (d'ordre 1) et le premier terme non-linéaire de l'équation d'état (d'ordre $B/2A$). Pour un gaz parfait diatomique $B/2A \approx 0.2$, et l'advection est dominante; par contre, pour un liquide $B/2A \approx 2 - 6$, et la non-linéarité de l'équation d'état est plus importante [62, chapitre 2].

1. ou plus généralement par l'équation (3.16)

Remarquons enfin que les deux sources de non-linéarité discutées sont *cumulatives*, c'est-à-dire qu'elles affectent la propagation de l'onde sur de longues distances par rapport à la longueur d'onde. On peut comprendre ainsi la formation des ondes de choc de la façon suivante : lors de la propagation d'une onde acoustique divergente, les particules de fluide aux «sommets» de l'onde ($u > 0$) prennent de l'avance par rapport aux particules de fluide aux «creux» ($u < 0$), ce qui déforme l'onde petit à petit pour finalement former une discontinuité de la vitesse acoustique. Dans l'espace de Fourier, ce phénomène est caractérisé par une cascade d'énergie vers les hautes fréquences (modes de petite longueur d'onde).

3.1.2 Équation d'onde non-linéaire d'un fluide thermo-visqueux

Lorsque les temps de relaxation moléculaires d'un fluide sont petits devant l'échelle de temps acoustique, les équations complètes de conservation de masse, de l'impulsion et d'énergie sont [62, 66, 67]

$$\frac{D\rho}{Dt} + \rho \nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (3.17)$$

$$\rho \frac{D\mathbf{u}}{Dt} + \nabla P = \eta \nabla^2 \mathbf{u} + (\eta_v + \frac{1}{3}\eta) \nabla (\nabla \cdot \mathbf{u}), \quad (3.18)$$

$$\rho T \frac{Ds}{Dt} = \lambda_T \nabla^2 T + \eta_v (\nabla \cdot \mathbf{u})^2 + \frac{1}{2} \eta \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \right)^2, \quad (3.19)$$

où $D/Dt = \partial/\partial t + \mathbf{u} \cdot \nabla$ est la dérivée convective, η est la viscosité de cisaillement et λ_T est la conductivité thermique. η_v est la viscosité de volume, qui prend en compte les déviations de la pression local par rapport à la pression thermodynamique P [62, chapitre 3]. Notons que comme l'entropie n'est plus constante lors de la propagation, on doit réécrire le développement limité (3.3) de l'équation d'état sous la forme

$$p \approx c_o^2 \rho' + \frac{c_o^2}{\rho_o} \frac{B}{2A} \rho'^2 + \left(\frac{\partial P}{\partial s} \right)_{\rho, o} s', \quad (3.20)$$

où $s' = s - s_o$ est l'écart à l'entropie d'équilibre.

Notre but est de déduire l'équation d'onde non-linéaire à partir des équations de conservation (3.17), (3.18) et (3.19) et de l'équation (3.20). En écrivant les équations (3.18) et (3.19) nous avons déjà fait une hypothèse car la description en termes d'une viscosité de volume impose que les temps de relaxation moléculaires soient très courts par rapport aux temps acoustiques [62, chapitre 3].

Nous avons plusieurs paramètres que l'on peut considérer comme petits : le nombre de Mach acoustique $M_{ac} = u_o/c_o$, où u_o est l'amplitude de vitesse acoustique, et deux paramètres qui représentent la dissipation, $\epsilon = \eta\omega/\rho_o c_o^2$ et $\varepsilon = \epsilon/P_r = \lambda_T\omega/\rho_o c_o^2 c_P$, où $P_r = \eta c_P/\lambda_T$ est le nombre de Prandtl (pour un gaz $P_r \sim O(1)$). Pour fixer les idées, à

température ambiante et pour $p \approx 1$ kPa (i.e. $p/P_o \approx 0.01$) on a $M_{ac} \approx 5 \times 10^{-7}$ dans l'eau et $M_{ac} \approx 7 \times 10^{-3}$ dans l'air. Concernant les paramètres de dissipation, on peut montrer que pour un gaz, $\epsilon \approx \varepsilon \approx l/\lambda \ll 1$, où l est le libre parcours moyen moléculaire et λ est la longueur d'onde acoustique². Dans l'eau, $\epsilon\lambda \approx 4.9 \times 10^{-9}$ m et donc $\varepsilon = \epsilon/P_r \ll 1$ car $P_r \approx 7$. L'idée est donc de trouver une équation d'onde en se limitant aux termes quadratiques pour les termes correctifs : On fait la supposition que tous ces paramètres sont «comparables», et l'on garde tous les termes d'ordre M_{ac}^2 , ϵ^2 , ε^2 , $M_{ac}\epsilon$, $M_{ac}\varepsilon$, et $\epsilon\varepsilon$ [62, chapitre 3].

Une dernière hypothèse est que l'onde se propage dans l'espace libre, loin des bords. Ceci permet de négliger les modes de vorticité et d'entropie dans le système d'équations (3.17), (3.18) et (3.19) [62, 67], qui ne sont importants que près des parois du système. En fait, dans le chapitre 2 nous avons invoqué la forte atténuation acoustique qui apparaît aux interfaces ou aux bords d'un fluide, en raison de la forte dissipation visqueuse et thermique aux couches limites. Une autre façon de comprendre ceci est justement d'invoquer le transfert d'énergie du mode purement acoustique aux modes de vorticité et d'entropie, dont l'énergie est dissipée dans les couches limites.

On obtient à partir de ce système d'équations l'équation d'onde non-linéaire

$$\square^2 p + \frac{\delta}{c_o^3} \frac{\partial^3 p}{\partial t^3} = -\frac{\beta}{\rho_o c_o^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2} - \left(\nabla^2 + \frac{1}{c_o^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathfrak{L}, \quad (3.21)$$

où $\square^2 = \nabla^2 - c_o^{-2}(\partial^2/\partial t^2)$ est l'opérateur d'Alembertien,

$$\delta = \frac{1}{\rho_o} \left(\frac{4}{3} \eta + \eta_v \right) + \frac{\lambda_T}{\rho_o} \left(\frac{1}{c_V} + \frac{1}{c_P} \right), \quad (3.22)$$

est défini comme la diffusivité acoustique, et

$$\mathfrak{L} = \frac{1}{2} \rho_o u^2 - \frac{p^2}{2 \rho_o c_o^2}, \quad (3.23)$$

est la densité Lagrangienne du second ordre. Il est important de noter que cette équation est fermée seulement lorsque $\mathfrak{L} = 0$; c'est le cas des ondes planes progressives, où l'on a $p = \rho_o c_o u$. En général, $\mathfrak{L} \neq 0$, et pour fermer l'équation (3.21) on doit exprimer u en fonction de p . On peut montrer que ces deux quantités sont liées par le développement [62, chapitre 4]

$$p = \rho_o c_o^2 \left(\frac{u}{c_o} + \frac{\beta}{2} \left(\frac{u}{c_o} \right)^2 + \frac{\beta}{6} \left(\frac{u}{c_o} \right)^3 + \dots \right). \quad (3.24)$$

Une façon de montrer cette relation est d'utiliser l'équation d'un gaz parfait $P/P_o = (1 + \rho'/\rho_o)^\gamma$, et d'intégrer la relation d'impédance acoustique $dP/du = dp/du = \rho c$.

Notons que la non-linéarité qui résulte de $\mathfrak{L} \neq 0$ est une non-linéarité *locale*, dans le sens que la différence entre la solution de l'équation (3.21) avec $\mathfrak{L} = 0$, dénotée $\hat{p}$,

2. Voir le paragraphe IV.A de l'article dans le chapitre 2

et la solution p du cas $\mathfrak{L} \neq 0$, est proportionnelle à ϕ^2 , où ϕ est le potentiel de vitesse ($\mathbf{u} = \vec{\nabla}\phi$). La différence $p - \hat{p}$ dépend donc des propriétés locales du champ acoustique. Par contre, l'advection de l'onde acoustique et la non-linéarité de l'équation d'état, i.e le terme proportionnel à β dans l'équation (3.21), sont responsables des effets cumulatifs, car elles induisent la distortion de l'onde acoustique lors de sa propagation. En général, lorsque l'on s'intéresse aux effets non-linéaires pour la propagation d'ondes acoustiques, les effets locaux sont négligeables si l'on est loin de la source acoustique. Dans ce cas, les effets cumulatifs dominent. Les effets locaux peuvent être importants pour les ondes stationnaires, dans les guides d'onde à géométrie non-plane ou encore lors de la diffusion de son par le son sous un angle non-nul [62, chapitre 3]. Néanmoins, dans le cas de diffusion du son par le son, les deux solutions p et $\hat{p}$ deviennent égales dans le champ lointain du volume d'interaction car $\hat{p} \sim 1/r$ et $\phi \sim 1/r^2$ [68].

3.2 Milieux diphasiques

Nous avons étudié dans la première partie de cette thèse la notion de milieu effectif. En particulier, nous avons présenté quelques exemples où l'on peut définir des quantités associés à l'acoustique linéaire de tels systèmes. Plus précisément, nous avons défini une vitesse effective et une atténuation effective pour un mélange gaz/liquide; nous avons également abordé la limite non-dissipative d'un milieu poreux et nous avons même fait appel à ce modèle pour expliquer nos mesures acoustiques dans les mousses (chapitre 2). Tant que la longueur d'onde est grande devant la taille caractéristique du désordre, l'approche du milieu effectif est une très bonne description. Donc, de façon assez naturelle, on peut poser deux questions intéressantes:

- (1) Peut-t-on définir un paramètre effectif $\langle B/A \rangle$ pour un milieu diphasique?
- (2) Quel est l'effet du désordre ou de la structure d'un milieu sur ses propriétés acoustiques non-linéaires?

Ces questions ont été abordées récemment dans la littérature et nous présentons par la suite un résumé des principaux résultats.

3.2.1 Paramètre non-linéaire effectif $\langle B/A \rangle$

Concernant la première de ces questions, Apfel a été le premier à la poser [69], en proposant pour un milieu composé de deux fluides immiscibles la relation

$$\langle \chi \rangle^2 \left\langle \frac{B}{2A} \right\rangle = \chi_1^2 \left(\frac{B}{2A} \right)_1 (1 - X) + \chi_2^2 \left(\frac{B}{2A} \right)_2 X, \quad (3.25)$$

où χ_i et $(B/A)_i$ sont la compressibilité et le paramètre non-linéaire du milieu i , et X est la fraction volumique du milieu 2. Il a également comparé sa prédiction avec des résultats expérimentaux obtenus pour un mélange d'«huile de castor» dans l'eau, où la fraction de l'huile varie entre 0.1 et 0.8, et a trouvé un bon accord. Dans un deuxième article,

Apfel a proposé d'utiliser une généralisation³ de l'équation (3.25) pour en déduire la composition des tissus biologiques [70]. Cependant, Apfel *et al.* [71] ont apporté récemment une correction à l'équation (3.25) car elle ne prend pas en compte la possibilité que les fractions volumiques varient lors d'un changement de pression. La nouvelle expression est la même que (3.25), à condition de remplacer $B/2A$ par le paramètre non-linéaire $\beta = 1 + B/2A$. A notre connaissance, il n'existe pas de travaux expérimentaux pour vérifier la validité de ce type de relation, excepté les résultats présentés dans [69].

3.2.2 Exemples de milieux hétérogènes présentant des fortes non-linéarités acoustiques

La deuxième question que nous avons posée a été abordée plus souvent dans la littérature, notamment lorsque la structure du milieu désordonné induit des comportements non-linéaires «anormaux», voire très importants. Deux systèmes fréquemment étudiés sont les mélanges gaz-liquide et les milieux poreux.

Mélange gaz-liquide

Comme nous l'avons vu dans la première partie de cette thèse, le grand contraste entre les propriétés acoustiques du gaz et du liquide induit des propriétés *linéaires* assez particulières. Un milieu composé de bulles de gaz dans un liquide est en quelque sorte un milieu diphasique «modèle» en acoustique. Par exemple, en raison de la forte résonance des bulles, ce milieu a été proposé comme système tridimensionnel où l'on pourrait observer la localisation forte d'ondes acoustiques [3, 72, 73]. Ceci nous semble cependant peu probable, en raison de la forte dissipation acoustique à la résonance des bulles.

En ce qui concerne les propriétés non-linéaires d'un mélange gaz-liquide, le coefficient effectif β d'un mélange dilué a été calculé en fonction de la pulsation acoustique ω , en considérant comme source de non-linéarité dominante les non-linéarités de l'équation de Rayleigh-Plesset (1.12) [74, 62, 63]. En l'absence de dissipation, ce coefficient diverge pour $\omega \approx \omega_r/2$ et $\omega \approx \omega_r$. Notons que la première divergence est due à l'amplification du second harmonique de la fréquence $\omega_r/2$. Si l'on considère la dissipation, le paramètre β est fortement réduit dans le voisinage de $\omega \approx \omega_r/2$ et $\omega \approx \omega_r$; ces fréquences restent néanmoins des maxima de $\beta(\omega)$. Remarquons que même dans la limite $\omega \rightarrow 0$, où la dissipation est faible, β prend de valeurs importantes : pour un mélange air-eau et une fraction volumique du gaz de 10^{-4} , on obtient $\beta(0) \sim 10^3$ [62, chapitre 5].

Remarquons enfin que le fait que le paramètre β soit très grand dans un mélange gaz-liquide a été vérifié expérimentalement. A partir des expériences de démodulation de trains d'onde dans un mélange hydrogène-eau, des valeurs de β de l'ordre de 100 ont été mesurées, pour une fraction volumique de l'ordre de 10^{-5} [75]. Des valeurs effectives de β de l'ordre de $10^4 - 10^5$ ont également été observées dans les mélanges de bulles «cylindriques» dans l'eau, à des fractions volumiques de l'ordre de 10^{-2} . En raison de la forte non-linéarité de ces systèmes, divers phénomènes non-linéaires, à savoir la propagation de solitons et

3. Il considère des mélanges avec plus de deux composantes.

d'ondes de choc [77], la conjugaison de phase [78], et la diffusion du son par le son [79] ont pu être étudiés expérimentalement (pour plus de références, voir [80]).

Milieux poreux

Il a été récemment observé que certains milieux poreux, tels que les sols, les sédiments et les rochers, présentent également de fortes non-linéarités acoustiques [64]. Dans le domaine de la géophysique, il est donc indispensable de comprendre ces non-linéarités pour modéliser correctement la propagation d'ondes sismiques [81]. Ceci a motivé des études détaillées au laboratoire des propriétés acoustiques non-linéaires des roches [82, 83, 84]. Dans le cas des roches présentant de micro-fractures, un coefficient non-linéaire effectif de l'ordre de 10^4 a été mesuré [84]. Notons que le comportement fortement non-linéaire des certains milieux poreux peut être compris en considérant que sous des fortes contraintes, les micro-fractures, ou pores en général, peuvent être partiellement fermés, ce qui induit de changements significatifs du comportement élastique ou acoustique (le module élastique, et donc la vitesse du son, dépendent alors fortement de la contrainte appliquée). Notons enfin que ce mécanisme non-linéaire a été proposé par Biot.

Par ailleurs, dans le cas d'un système mou composé de cavités sphériques ou cylindriques où le module élastique de compression est très grand devant le module de cisaillement, $K \gg N$ ⁴ (tels que les mousses), la fraction volumique optimale ϕ_{opt} telle que le coefficient non-linéaire effectif soit maximal, $\beta_{\text{max}} \sim K/N$, a été calculé [85, 86]. Le fait que ces milieux ont de fortes non-linéarités a été vérifié par l'étude de l'amplitude du second harmonique acoustique dans des échantillons poreux contenant des cavités sphériques et cylindriques [87] et un accord satisfaisant a été obtenu avec la théorie. Par exemple, pour un milieu avec des cavités sphériques et pour $\phi \approx 150\phi_{\text{opt}}$ et $\phi \approx 400\phi_{\text{opt}}$ les mesures de β , $\beta \approx 900$ et 360 , sont en bon accord avec les prédictions théoriques (1100 et 370 respectivement).

4. Nous utilisons la notation des chapitres 1 et 2, K et N sont les constantes élastiques de compression et de cisaillement.

Chapitre 4

Diffusion du son par une surface oscillante

4.1 Non-linéarité de surface en acoustique

Prenons l'exemple très simple d'un plan infini qui oscille sinusoidalement, $\xi(t) = A \sin(\Omega t)$. Supposons que cette oscillation est la seule source acoustique et que le fluide occupe le demi-espace $x > 0$. Dans le cadre de l'acoustique linéaire, l'équation d'onde pour u a une solution triviale, de la forme

$$u(x, t) = u_o \operatorname{Re}[e^{i\omega(t-x/c_o)}], \quad (4.1)$$

où l'amplitude de vitesse u_o est déterminée par les conditions aux limites. Lorsque l'amplitude du mouvement A est petite devant la longueur d'onde λ (qui est la seule autre longueur du problème), on écrit en général

$$u(x = 0, t) = \frac{d\xi}{dt} = A\Omega \cos(\Omega t), \quad (4.2)$$

et donc $u_o = A\Omega$; l'amplitude de vitesse acoustique est égale à celle du plan. Néanmoins, cette solution suppose implicitement que l'on peut négliger le mouvement du plan car, l'expression exacte de la condition limite est

$$u(x = A \sin(\Omega t), t) = \frac{d\xi}{dt}, \quad (4.3)$$

de telle sorte que

$$u_o \operatorname{Re}[e^{i\omega(t-A/c_o \sin(\Omega t))}] = A\Omega \cos(\Omega t). \quad (4.4)$$

Ceci complique significativement le problème. En fait, l'équation (4.4) exprime que u_o n'est plus une constante mais une fonction du temps, $u_o = u_o(t)$. Ceci est le reflet du fait que la solution sous forme d'une onde plane progressive $u(x, t) = g(t - x/c_o)$, avec g fonction quelconque, n'est plus correcte. Une approche plus physique consiste à interpréter l'argument $t - x/c_o$ de la solution (4.1) comme le temps auquel une perturbation est partie

du plan (x/c_o est le temps de vol depuis le plan jusqu'au point d'observation x). C'est la définition même d'une solution progressive *qui ne se déforme pas* ; le temps a comme seul effet de décaler la solution dans l'espace réel. Donc, en prenant en compte l'expression exacte de la condition limite (4.3), on s'attend que la solution soit de la forme

$$u(x,t) = \dot{\xi}(\varphi), \quad (4.5)$$

$$\varphi = t - \frac{x - \xi(\varphi)}{c_o}, \quad (4.6)$$

où $\dot{\xi} = d\xi/dt$ et φ est précisément l'instant de «départ» de l'ondulation observée en x au temps t . Dans le cas du mouvement sinusoïdal du plan, on observe que la solution $u(x,t)$ est aussi une fonction sinusoïdale, mais avec un argument $\varphi(x,t)$ solution d'une équation implicite. La solution $u(x,t)$ est donc intrinsèquement non-linéaire. On peut donc parler d'un effet non-linéaire de surface.

Remarquons que ce type de solution est connu depuis longtemps, précisément depuis le travail d'Earnshaw en 1860 [62, chapitre 1]. En prenant en compte à la fois un mouvement arbitraire $X(t)$ du plan et la non-linéarité du milieu β , il a obtenu la solution générale

$$u(x,t) = U(\varphi), \quad (4.7)$$

$$\varphi = t - \frac{x - X(\varphi)}{\beta U(\varphi) + c_o}, \quad (4.8)$$

où $U = dX/dt$. Lorsque l'on s'intéresse aux effets cumulatifs observés loin de la source, cette solution peut être approximée en négligeant X par rapport au point d'observation x . Ici, «loin» signifie [62]

$$x \gg \frac{\lambda}{2\pi\beta}, \quad (4.9)$$

ce qui correspond typiquement à une fraction de la longueur d'onde. C'est une des hypothèses de base de l'acoustique non-linéaire [62] qui revient à ignorer la différence entre les descriptions de Lagrange et d'Euler. En ce qui concerne la génération d'ondes de choc par un piston, cette approximation est tout à fait pertinente et elle a permis d'étudier ce problème en détail.

4.2 Compétition entre les effets de surface et de volume

Un problème associé à l'effet non-linéaire de surface engendré par la condition au bord «Lagrangienne» est celui de l'interaction d'une onde, acoustique ou électromagnétique, avec un diffuseur en mouvement dépendant du temps. Ce problème a d'abord été étudié en électromagnétisme par Kovalev et Krasil'nikov [88]. Ils ont montré que lorsqu'une onde de pulsation ω est réfléchiée par une surface oscillante de pulsation Ω , l'onde diffusée présente un spectre de Fourier discret, avec des fréquences $\omega \pm n\Omega$, avec n entier. Pour un

mouvement sinusoïdal $\xi(t) = A \sin(\Omega t)$, ils ont également montré qu'à faible amplitude de vibration et pour $A\Omega \ll c$ (c étant la vitesse de la lumière), l'onde diffusée est dominée par les composantes de Fourier à $\omega - \Omega$, ω , et $\omega + \Omega$, leurs amplitudes étant d'ordre Ak , 1 et Ak respectivement, où k est le nombre d'onde incident. Dans ce cas, on dit que l'onde diffusée est décalée en fréquence par l'effet Doppler. Notons néanmoins que le décalage est donné par la fréquence d'oscillation du diffuseur et non par sa vitesse.

Dans le cas d'ondes acoustiques, la situation est plus délicate car la surface oscillante émet une onde de pulsation Ω . Les non-linéarités du milieu, i.e. les non-linéarités acoustiques de volume, engendrent les ondes mélange aux fréquences $\omega - \Omega$ et $\omega + \Omega$. Donc, qualitativement, les effets non-linéaires de surface et de volume produisent le même spectre de Fourier de l'onde diffusée. A partir des années 1970, ce problème a donné lieu à une forte polémique entre Censor [89, 90, 91], qui affirmait que l'on pouvait détecter l'effet Doppler résultant de la réflexion sur une surface oscillante, et Rogers [92] et Piquette et Van Buren [93, 94, 95, 96], qui prétendaient que celui-ci était masqué par l'effet non-linéaire de volume. L'argument essentiel était la limitation de l'effet de surface par opposition au caractère cumulatif des effets non-linéaires de volume qui augmente avec la distance. Comme dans le cas de l'émission d'une onde plane par un piston (paragraphe précédent), on observe en effet que les effets de volume dominent lorsque [95]

$$Y = \frac{\Lambda}{\beta\pi L} \ll 1, \quad (4.10)$$

où Λ est la longueur d'onde de l'onde engendrée par la surface oscillante et L est la distance de propagation (distance entre la surface oscillante et l'émetteur/récepteur). En théorie, cette relation est satisfaite à partir d'une fraction de la longueur d'onde. Il faut cependant noter qu'elle n'est correcte que pour les ondes planes et néglige donc les effets de diffraction et l'absorption, souvent présents dans les expériences.

De nombreuses techniques acoustiques ont été développées en exploitant les effets non-linéaires de volume : émetteurs paramétriques [62, 63], vibromètres [97], mesure des non-linéarités acoustiques par interaction paramétrique [98]. Les non-linéarités de surface sont négligeables dans la plupart des configurations étudiées. Remarquons tout de même que l'amplification paramétrique d'un mode de cavité a pu être obtenue tant par la modulation de la longueur de la cavité (effet de surface) [99, 100] que par la non-linéarité du milieu [101, 102].

Il est donc paradoxal qu'aucune expérience n'ait été réalisée pour caractériser les régimes où les effets non-linéaires de surface (respectivement de volume) sont dominants, et pour étudier la transition entre ces régimes. Nous présentons une telle étude dans l'article « Scattering of a sound wave by a vibrating surface ». Enfin, il a été proposé d'utiliser le décalage Doppler engendré par une surface oscillante pour mesurer l'amplitude d'oscillation d'un diffuseur [103]. Nous montrons que ceci est possible dans l'article « Experimental study of the Doppler shift generated by a vibrating scatterer ».

4.3 Copie des articles

« **Scattering of a sound wave by a vibrating surface** »

Nicolás Mujica, Régis Wunenburger & Stéphan Fauve,
Soumis à *Physical Review Letters*, Juillet 2002.

« **Experimental study of the Doppler shift generated by a vibrating scatterer** »

Régis Wunenburger, Nicolás Mujica & Stéphan Fauve,
En préparation.

Scattering of a sound wave by a vibrating surface

N. Mujica, R. Wunenburger, S. Fauve

*Laboratoire de Physique Statistique,
Ecole Normale Supérieure, UMR 8550,
24, rue Lhomond, 75 005 Paris, France*

(Dated: September 5, 2002)

Abstract

We report an experimental study of the scattering of a sound wave of frequency f by a surface vibrating at frequency F . Both the Doppler shift at the vibrating surface and acoustic nonlinearities in the bulk of the fluid, generate the frequencies $f \pm nF$ (n integer) in the spectrum of the scattered wave. We show that these two contributions can be singled out because they scale differently with respect to the vibration frequency and to the distance between the vibrating scatterer and the detector. We determine the parameter range in which the bulk acoustic nonlinearities, respectively the Doppler shift, give the dominant contribution to the scattered spectrum and present a quantitative study of the later regime.

PACS numbers: 43.25.+y, 43.58.+z

A problem of interest in the discussion of nonlinear effects is how the boundary surfaces of the media affect the results. Generation of longitudinal waves from transverse ones in solids [1], first to second sound conversion in superfluid helium [2], second harmonic generation in optics [3], can result from both bulk nonlinearities and boundary conditions at interfaces. An essential question is thus, how can one distinguish between bulk and surface nonlinearities. In particular, this problem arises when an acoustic wave of frequency f is reflected by a boundary vibrating at frequency F . The scattered signal being Doppler shifted, its spectrum involves peaks at frequencies $f \pm nF$ (n integer) [4]. The vibrating surface also emits an acoustic wave at frequency F that interacts with the high frequency one f through nonlinear terms in the conservation equations and in the equation of state. These also generate sum and difference frequencies [5, 6]. Although Doppler shift and bulk nonlinearities lead to the same qualitative spectrum, the amplitude of the waves generated through bulk nonlinearities increase with distance from the vibrating surface, thus it has been argued that they give the dominant contribution to the spectrum within a fraction of a wavelength of the scatterer's surface. It has been even claimed that the contribution of the Doppler effect might be undetectable [7]. This has been the subject of a strong theoretical controversy [4, 7]. In this letter, we present an experimental study of the spectral characteristics of an acoustic wave scattered by a vibrating piston. We show that there exists a wide parameter range in which the Doppler shift gives the dominant contribution to the spectrum of the scattered wave. We then study the cross-over to the bulk nonlinear regime.

The scattering of a wave by a vibrating surface, $\xi = A \sin \Omega t$ ($\Omega = 2\pi F$), has been widely studied theoretically, first in the case of electromagnetic waves [8] and then in acoustics [4]. A simple way to describe this process is to consider the Doppler shift of the high frequency wave scattered by the vibrating surface. We assume that this wave is emitted by a transducer located at a distance L from the plate, reflected normally and detected by the same transducer. Thus the scattered wave measured at time t , has been generated at time $t - \tau(t)$ and reflected at time $t - \tau(t)/2$. Writing that it propagated at velocity c gives

$$\tau(t) = \frac{2}{c} \left[L - \xi \left(t - \frac{\tau(t)}{2} \right) \right]. \quad (1)$$

The detected wave is thus of the form

$$p_s \propto \exp i\omega (t - \tau(t)). \quad (2)$$

If $A \ll L$, we have $\tau(t) \approx 2L/c$. In addition, if the velocity of the plate is small compared to the sound velocity c , $M \equiv A\Omega/c \ll 1$, we can substitute this value of τ in the vibration amplitude ξ in (2). We get the quasi-static approximation, which gives up to a constant phase factor

$$\begin{aligned} p_s &\propto \exp i\omega \left[t + \frac{2}{c}\xi \left(t - \frac{L}{c} \right) \right] \\ &\propto \exp i \left[\omega t + 2kA \sin \Omega \left(t - \frac{L}{c} \right) \right]. \end{aligned} \quad (3)$$

Consequently, we observe that the Doppler effect generates a phase modulation of scattered wave with a characteristic magnitude $\Delta\Phi_D = 2kA$ where A is the vibration amplitude and k the wave number of the high frequency wave. Using

$$\begin{aligned} &\exp i \left[\omega t + (2kA) \sin \Omega \left(t - \frac{L}{c} \right) \right] \\ &= \exp(i\omega t) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(2kA) \exp \left[in\Omega \left(t - \frac{L}{c} \right) \right], \end{aligned} \quad (4)$$

we observe that the amplitude of the peak at pulsation $\omega \pm n\Omega$ is given by the modulus of the Bessel function of order n , $|J_n(2kA)|$ which scales like $(kA)^n$ for kA small.

Acoustic nonlinearities in the bulk of the fluid also generate a phase modulation of the high frequency wave [9]. There are two contributions, the nonlinear terms in the fluid equations and the ones in the equation of state. In the case of plane waves their effect can be understood as a modification of the high frequency wave propagation velocity c by a amount $\Delta c \propto V_\Omega \propto P_\Omega/\rho c$ where V_Ω (resp. P_Ω) is the typical amplitude of the velocity (resp. the pressure) modulation related to the low frequency wave, and ρ is the fluid density. After propagation on a distance L , the characteristic magnitude $\Delta\Phi_{NL}$ of the phase modulation due to bulk nonlinearities is $\Delta\Phi_{NL} \propto L\Delta k = L\omega\Delta c/c^2 \propto L\omega P_\Omega/\rho c^3$. A detailed calculation in the case of a perfect gas of adiabatic index γ gives $\Delta\Phi_{NL} = (1 + \gamma)L\omega P_\Omega/2\rho c^3$ [9]. For a liquid, one should substitute $(1 + \gamma)/2$ by acoustic nonlinear parameter $\epsilon = 1 + \rho(\partial c/\partial \rho)_S/2c$ [10]. Thus, both the Doppler effect and bulk nonlinearities generate a phase modulation of the high frequency wave by the low frequency one. However, the shifted peak amplitudes scale differently with the vibration parameters: they depend on the vibration amplitude A when the Doppler effect is dominant and on the low frequency pressure P_Ω when bulk nonlinearities are dominant. We emphasize that despite these different scalings, the Doppler effect cannot be singled out just by decreasing the amplitude of the waves. It results from boundary

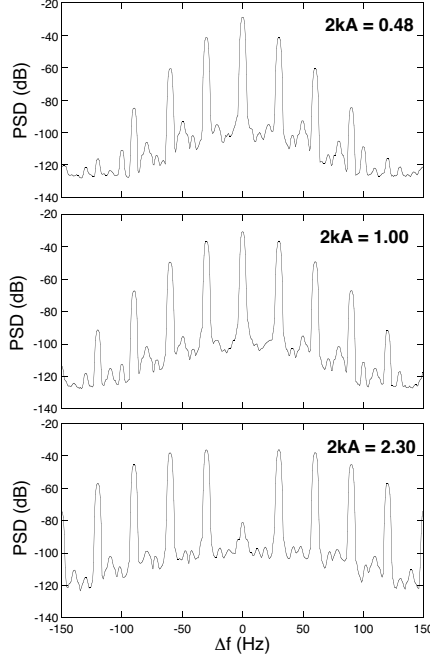


FIG. 1: Power spectra of the wave scattered by the vibrating plate at frequency $F = 30$ Hz as a function of the dimensionless vibration amplitude $2kA$ (k is the wave number of the incident high frequency wave, f). The x -axis represents the Doppler shift, such that the origin corresponds to $f = 2.25$ MHz.

conditions at the moving interface which are nonlinear as can be easily seen by taking the Taylor expansion of the fields at the interface in the vicinity of $\xi = 0$. The successive powers of the vibration amplitude are then involved in the boundary conditions, thus generating the frequencies $f \pm nF$. Nonlinearities arising from boundary conditions at free interfaces are very common in capillary-gravity waves, crystal growth and flame fronts.

The importance of the Doppler shift related to the effect of bulk nonlinearities is thus measured by the parameter

$$Y = \frac{\Delta\Phi_D}{\Delta\Phi_{NL}} = \frac{2\rho c^2 A}{\epsilon L P_\Omega}. \quad (5)$$

In the case of plane propagating waves ($P_\Omega = \rho c V_\Omega \propto \Omega A$), we have $Y \propto \Lambda/L$ where Λ is the wavelength of the low frequency wave.

Experiments have been performed both in air and in water, in different geometrical configurations. The set-up in air has been used in order to determine the dominant mechanism that generates sum and difference frequencies, the Doppler effect versus bulk acoustic nonlinearities, whereas the one in water allowed a quantitative study of the characteristics of

the wave scattered from a vibrating piston when bulk nonlinearities are negligible compared to the Doppler effect.

Experiments in water have been performed in a tank of dimensions $72 \times 68 \times 55$ cm, thermally regulated at temperature $T = 15 \pm 0.2$ °C. Its lower boundary is covered with a layer of plastic foam (Plastiform's) in order to minimize the effect of multiple reflections. A square piston made of PMMA, of dimensions 15×15 cm and 10 mm thick, located beneath the upper surface of the water, is driven sinusoidally by an electromagnetic vibration exciter (BK4808). Its motion is described by $\xi = A \sin \Omega t$ and is recorded using an accelerometer (BK 4393V) fixed on the piston. The range of vibration parameters is $3 \cdot 10^{-10} < A < 10^{-3}$ m, $30 < F < 6000$ Hz. A dual transducer (Panametrics D706), 13 mm in diameter, located at a distance L below the piston, generates an incident wave at frequency $f = 2.25$ MHz ($\omega = 2\pi f$) and records the wave scattered by the vibrating piston. Its power spectrum, computed by a spectrum analyzer (Agilent 3589A), is displayed in Fig. 1 for $F = 30$ Hz. We observe that the number and the amplitude of the peaks at frequencies $f \pm nF$ for $n \geq 1$ (n integer), first increases when the amplitude A is increased from zero (Fig. 1a, b). Fig. 2 shows that the normalized amplitudes $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ do not depend on the vibration frequency F in the range $30 < F < 3000$ Hz. A slight dependence on F begins to be observed only for $F = 6000$ Hz. Thus for $F < 3000$ Hz, the Doppler effect is dominant and bulk nonlinearities can be neglected. For kA small, the amplitude of the peak at frequency $f \pm nF$ ($n \geq 1$) increases like $(kA)^n$, as shown for $n = 1$ and $n = 2$. On the contrary, the amplitude of the component at frequency f of the scattered wave decreases and we observe that it almost vanishes for $2kA \approx 2.3$ (see Fig. 1c). It increases when A is increased further above $2kA \approx 2.3$, then decreases and vanishes again for $2kA \approx 5.4$. The same process occurs roughly periodically for the amplitude of each peak $f \pm nF$, as displayed in Fig. 3 for $n = 0, 1, 2, 3$. This behavior can be understood from Eq. (4). We observe in Fig. 3 that the agreement is rather good.

Experiments in air are performed in a 1 m long tube made of PMMA, 56.5 mm in inner diameter. A cylindrical piston made of aluminium, 55.8 mm in diameter, is located at one end of the tube, $x = 0$ say, and is driven sinusoidally with amplitude A and frequency F as for the experiments in water. A transducer ITC 9072, 16 mm in diameter, located at position $x = L$, $0.3 < L < 1$ m, generates a wave at frequency $f = 150$ kHz, incident on the vibrating piston. The scattered wave is recorded by another ITC 9072 transducer, also located at $x = L$, 3 mm apart from the first one. We also measure at the same location

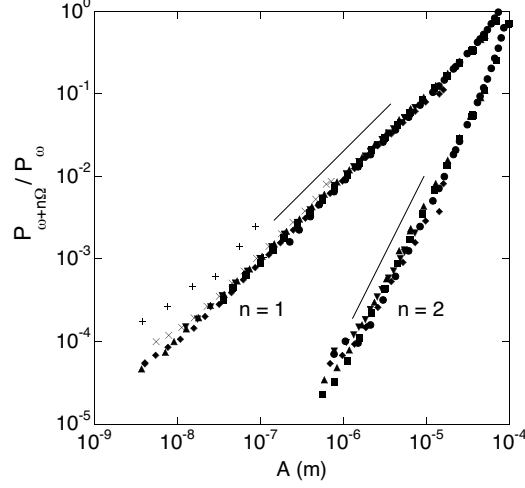


FIG. 2: Normalized amplitudes $P_{\omega+n\Omega}/P_{\omega}$ of the peaks at frequencies $f + nF$ ($n = 1, 2$) as a function of the vibration amplitude A : $F = 30$ Hz ($\bullet$), 60 Hz ($\blacksquare$), 120 Hz ($\blacktriangle$), 180 Hz ($\blacklozenge$), 700 Hz ($\blacktriangledown$), 3000 Hz ($\times$), 6000 Hz ($+$). Continuous lines display the slopes 1 and 2.

$x = L$, the low frequency pressure P_{Ω} generated by the vibrating piston, using a PCB 103A pressure transducer with a flat response in the range $1 - 5000$ Hz.

The power spectrum of the scattered wave is computed with a spectrum analyzer (Agilent 3589A). As for experiments in water, it displays peaks at frequencies $f \pm nF$ (n integer). The amplitude of the pressure at pulsation $\omega + \Omega$, $P_{\omega+\Omega}$, normalized by the one of the wave scattered at pulsation ω , P_{ω} , is displayed in Fig. 4. Fig. 4a shows that at low enough frequency of the vibrating piston, $30 < F < 964$ Hz, $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ does not depend on Ω and increases linearly with the vibration amplitude A as for experiments in water. At higher vibration frequency, $1.2 < F < 4.5$ kHz, we observe a clear departure from the low frequency curve. On the contrary, when $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ is plotted as a function of the low frequency pressure P_{Ω} generated by the vibrating piston, we observe in Fig. 4b that the data collapse on a single curve at high F and a departure from this curve at low F . We thus observe that bulk nonlinearities become dominant at high frequency because the two waves interact on a larger number of low frequency wavelengths.

Another way to study the cross-over between the two regimes is to vary the distance L and frequency F for constant A ($A = 0.22 \mu m$), i.e. keeping the contribution of the Doppler effect constant. The measurements are displayed in Fig. 5 as a function of L/Λ . For L/Λ small enough, we observe that $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ is constant as it should be when the

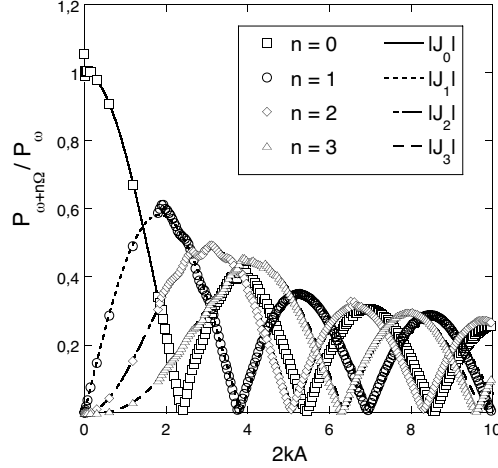


FIG. 3: Normalized amplitudes $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega 0}$ of the peaks at frequencies $f + nF$ ($n = 0, 1, 2, 3$) as a function of the dimensionless vibration amplitude $2kA$: $n = 0$ ($\square$), $n = 1$ ($\circ$), $n = 2$ ($\diamond$), $n = 3$ ($\triangle$). Lines display the moduli of Bessel functions of order n . $P_{\omega 0}$ is the amplitude of the reflected wave when the piston is at rest.

Doppler effect is dominant. When L/Λ is large, $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ increases with L/Λ on average, but also displays strong local maxima. We have checked that they correspond to acoustic resonances of the tube ($L/\Lambda \approx n/2$) for which P_{Ω} shows a maximum. According to Eq.(5) this strongly enhances the contribution of bulk nonlinearities. In order to take into account the contribution of P_{Ω} , we have plotted in the inset of Fig. 5 $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ as a function of the dimensionless parameter Y (see Eq. 5). For Y large, $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ does not depend on Y . When Λ is decreased for fixed L , such that Y becomes smaller than one, the cooperative effect of bulk nonlinearities becomes dominant and $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ increases like Y^{-1} . Note also that it is apparent in Fig. 5 that $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ first decreases when bulk nonlinearities become comparable to the contribution of the Doppler effect, i.e. when L/Λ is increased such that $Y \approx 1$. This clearly shows that these two contributions are not in phase as can be inferred from the fact that the amplitude of the Doppler shifted wave scales with the vibration amplitude whereas the one of the nonlinearly shifted wave depends on the low frequency velocity field.

We have thus clearly identified two scattering regimes: one for which the only contribution to the sum and difference frequencies comes from the Doppler shift by the vibrating piston, bulk nonlinearities being negligible, and another one for which the frequency shifted wave is dominantly generated by bulk acoustic nonlinearities. Both effects are intrinsically nonlinear

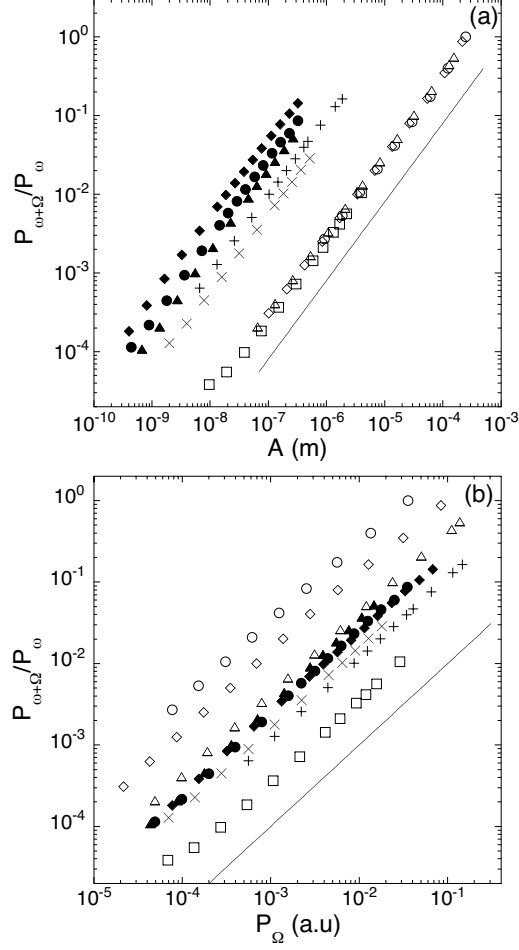


FIG. 4: Normalized amplitudes $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ as a function of the vibration amplitude A (a) and as a function of the low frequency pressure P_{Ω} (b): $F = 30$ Hz ($\circ$), 60 Hz ($\diamond$), 120 Hz ($\triangle$), 964 Hz ($\square$), 1200 Hz ($+$), 3000 Hz ($\times$), 3500 Hz ($\bullet$), 4000 Hz ($\blacklozenge$), 4500 Hz ($\blacktriangle$) (Solid lines of slope one.)

and thus none of them can be made dominant by varying only the vibration amplitude. However, they scale differently on the vibration frequency and on the distance between the vibrating scatterer and the detector. It is thus possible to single out one of them but it is important to check carefully that the other one is negligible when one uses this scattering technique for non intrusive measurements of vibration or for the determination of the nonlinear acoustic parameter of a medium.

R. W. thanks the Centre National d'Etudes Spatiales for financial support. This work has been supported by contract No. 793/CNES/01/8601/00.

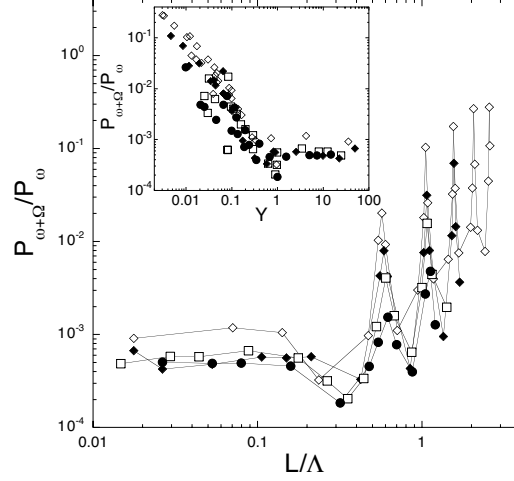


FIG. 5: Normalized amplitudes $P_{\omega+\Omega}/P_{\omega}$ as a function of L/Λ for $A = 0.22 \mu m$: $L = 20$ cm ($\diamond$), 30 cm ($\blacklozenge$), 50 cm ($\square$), 90 cm ($\bullet$). The inset displays the dependence of the same quantity on the dimensionless ratio $Y = \frac{2\rho c^2 A}{\epsilon L P_{\Omega}}$.

-
- [1] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Theory of elasticity*, 3rd edition, Pergamon (Oxford, 1986); F. R. Rollins, L. H. Taylor and P. H. Todd, Phys. Rev. **136**, A 597 (1964).
 - [2] S. Garrett, S. Adams, S. Putterman and I. Rudnick, Phys. Rev. Lett. **41**, 413 (1978); B. Castaing and P. Nozières, J. Physique **41**, 701 (1980).
 - [3] Y. R. Shen, *The principles of nonlinear optics*, John Wiley and sons (New York, 1984); S. S. Jha, Phys. Rev. Lett. **15**, 412 (1965).
 - [4] D. Censor, J. Sound Vib. **25**, 101 (1972), J. Acoust. Soc. Am. **76**, 1527 (1984), J. Acoust. Soc. Am. **79**, 181 (1986), J. Acoust. Soc. Am. **83**, 1223 (1988).
 - [5] P. H. Rogers, J. Sound Vib. **28**, 764 (1973).
 - [6] L. Naugolnykh and L. Ostrovsky, *Nonlinear wave processes in acoustics*, Cambridge University Press (Cambridge, 1998).
 - [7] J. C. Piquette and A. L. van Buren, J. Acoust. Soc. Am. **76**, 880 (1984), J. Acoust. Soc. Am. **79**, 179 (1986), J. Acoust. Soc. Am. **80**, 1533 (1986), J. Acoust. Soc. Am. **83**, 1681 (1988).
 - [8] A. M. Kovalev and V. N. Krasil'nikov, Soviet Phys. Tech. Phys. **7**, 19 (1962); D. Censor, Phys. Rev. A **35**, 2869 (1987).

- [9] V. A. Zverev and A. I. Kalachev, Sov. Phys. Acoust. **16**, 204 (1970).
- [10] R. T. Beyer, in *Nonlinear acoustics*, M. F. Hamilton and D. T. Blackstock eds., Academic Press (New York, 1998).

Experimental study of the Doppler shift generated by a vibrating scatterer

R. Wunenburger, Nicolás Mujica,^{*} and Stéphan Fauve

Laboratoire de Physique Statistique,

Ecole Normale Supérieure, CNRS UMR 8550,

24 rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France

(Dated: November 12, 2002)

Abstract

We report an experimental study of the backscattering of a sound wave of frequency f by a surface vibrating harmonically at frequency F and amplitude A . When the duration t_0 of the analyzed time series of the scattered wave is small compared to the vibration period, the power spectrum of the wave is proportional to the Probability Density Function of the scatterer velocity, which presents two peaks shifted from f by roughly $2fA\Omega/c$ ($\Omega = 2\pi F$). On the contrary, when $t_0 \gg F^{-1}$, satellites at frequencies $f \pm nF$ (n integer) appear in the power spectrum, which are due to the phase modulation of the backscattered wave induced by its reflection on a moving boundary. In the regime where this Doppler effect overcomes bulk nonlinear effects, we use the backscattered power spectrum to test the validity of an acoustic non-intrusive estimator of A as a function of power spectrum bandwidth and of A itself.

PACS numbers: 43.20.Fn, 43.28.Py

^{*}Permanent address: Departamento de Física, Facultad de Ciencias Físicas y Matemáticas, Universidad de Chile, Av. Blanco Encalada 2008, Santiago, Chile

I. INTRODUCTION

Velocity measurement using the Doppler shift of a wave reflected from a moving object is a widely used technique both with electromagnetic and acoustic waves. For objects moving at constant speed, it is well known that the Doppler shift, calculated by means of coordinate transformation, is proportional to the velocity. The problem is more difficult when the motion is time dependent. In the case of a periodically oscillating object the problem has been well studied for electromagnetic waves [1], and it is well known that the spectrum of the scattered sound wave is modified due to the Doppler effect, which can be understood as a nonlinear boundary condition [1, 2]. More precisely, the spectrum of the wave at frequency f scattered by a sinusoidally oscillating surface at frequency F is similar to that of a phase modulation process [1], i.e. satellites at frequencies $f \pm nF$ (n integer) appear in the spectrum of the scattered wave. In the case of acoustic scattering, the situation is more complex, as the oscillating scatterer also emits a sound wave at frequency F which interacts with the scattered wave due to the nonlinear character of the equations of sound propagation [3, 4]. Rogers remarked [5] that the bulk nonlinear wave mixing produces the same satellite peaks in the spectrum of the backscattered sound wave as the Doppler effect. Due to the lack of any decisive experiment, the criteria allowing to discriminate between the two effects have been the subject of an intense debate [5–11], and it has been even claimed that the contribution of the Doppler effect might be undetectable [5, 7–9, 11]. In a previous Letter [12], we showed that there exists a wide parameter range in which the Doppler shift gives the dominant contribution to the spectrum of the scattered wave, and studied the cross-over to the bulk dominated nonlinear regime.

In this article we focus on the experimental situation where the Doppler effect induced by a vibrating scatterer overcomes bulk nonlinearities. In particular we study the backscattering of a high frequency f sound wave by a plane scatterer oscillating at low frequency $F \ll f$. We study the characteristic features of the Doppler effect in both the static and quasi-static regimes. We finally test the accuracy of an acoustic non-intrusive estimator of the scatterer oscillation amplitude computed from the frequency spectrum of the backscattered wave, originally proposed by Huang *et al.* [13].

In section II we present the conditions for observing the static and quasi-static Doppler effect, and we recall some predictions concerning both surface Doppler and bulk nonlinear

effects. This helps us to justify our choice of the experimental configuration, which is presented in section III. In section IV we present the main features of the static and quasi-static Doppler effect. In section V we finally test the validity of a non-intrusive estimator of the scatterer oscillation amplitude proposed by Huang *et al.* [13]. Conclusions are given in section VI.

II. THEORETICAL CONSIDERATIONS

A. Static versus quasi-static Doppler effect

The usual picture of the Doppler effect is the constant frequency shift of an incident or emitted wave by an object moving at constant velocity V , which we will call the static Doppler effect. In the case of backscattering, the frequency shift Δf encountered by the scattered wave of frequency f is $2fV/c$. From an experimental point of view, when the velocity of the scatterer varies, the latter approach remains valid when the timescale of velocity variations is much larger than the duration t_0 of the scattered wave time series which is analyzed. For a periodic motion of frequency F , this implies $t_0 \ll F^{-1}$. In this case, the statistical distribution of the successively measured Doppler shifts is proportionnal to the Probability Density Function (PDF) of the object velocity. In practice, since f and F are not commensurate, the computed power spectrum of the backscattered wave is the average of power spectra of many successive signal time series of duration t_0 ($t_0 \gg f^{-1}$) measured at random phase of the scatterer motion. Thus, this time-averaged power spectrum is expected to be proportional to the PDF of the scatterer velocity.

When t_0 is large enough so that the scatterer velocity varies during the acquisition, an analysis in terms of modulation of the time of flight of the scattered wave shows that the wave is phase modulated. To show this, we will consider the unidimensional situation where a plane progressive monochromatic sound wave propagating at velocity c in a quiescent medium is backscattered by a plane scatterer. This object has an infinite acoustic impedance (normal total reflection) and oscillates sinusoidally around its mean position according to the trajectory $x_S(t) = A \sin \Omega t$. We assume that the wave is emitted at time t by a transducer located at a distance L from the scatterer. The backscattered wave is then detected by the

same transducer at time $t + \tau(t)$ such that

$$\tau(t) = \frac{2}{c} \left[L - \frac{x_S(t - \tau(t))}{2} \right]. \quad (1)$$

This modulation of the time of flight of the wave induces a phase modulation of the backscattered wave detected at a distance L from the scatterer, such that

$$p^D \propto \exp i\omega(t - \tau(t)), \quad (2)$$

where the superscript “ D ” denotes the Doppler contribution to the backscattered wave. If $A \ll L$, we have $\tau(t) \approx 2L/c$. In addition, if the velocity of the plate is small compared to the sound velocity c , $M \equiv A\Omega/c \ll 1$, substitution of $\tau(t) \approx 2L/c$ in the argument of the vibration amplitude x_S in (1) gives an explicit approximate expression for $\tau(t)$. This gives a phase modulation of the form

$$\omega\tau(t) \approx \frac{2\omega}{c} \left[L - x_S \left(\frac{t - L}{c} \right) \right]. \quad (3)$$

This is what is called the quasi-static approximation of the Doppler effect. The detected wave then rewrites

$$p^D \propto \exp i \left[\omega t + 2kA \sin \Omega \left(t - \frac{L}{c} \right) \right], \quad (4)$$

where $k = \omega/c$ is the wave number of the high frequency incident acoustic wave. The generation of satellite peaks at pulsation $\omega \pm n\Omega$ (n integer) in the spectrum of the backscattered wave is evidenced when transforming the latter expression to

$$p^D \propto \exp i(\omega t) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(2kA) \exp \left[in\Omega \left(t - \frac{L}{c} \right) \right], \quad (5)$$

where J_n is the Bessel function of n^{th} order. The satellite peaks at frequency $f \pm nF$ ($F = \Omega/2\pi$) have their amplitude proportionnal to $|J_n(2kA)|$. For $2kA \ll 1$, $J_n(2kA) \sim (kA)^n/n!$, and the Doppler effect is considered as weak, i.e. the energy of the peak at frequency f in the spectrum of the backscattered wave is almost equal to the energy of the incident wave, and the leading satellite peaks are at frequency $f \pm F$.

Note that the condition $M \ll 1$ implies two possible situations: the first is $F \ll f$, thus equation (5) is valid for any value of $2kA$; the second, $F \sim f$, thus $A\omega/c \sim A\Omega/c \ll 1$, and therefore Eq. (5) is restricted to $kA \ll 1$.

Finally, the general case of oblique incidence has been widely studied theoretically [1, 6, 10, 14, 15]. If we define θ as the angle between the incident wave and the normal of the

surface, the argument of the Bessel functions of the scattered wave (Eq. 5) must be replaced by

$$2kA \rightarrow (k_z + k_{nz})A, \quad (6)$$

where $k_z = k \cos \theta$, $k = \omega/c$,

$$k_{nz} = \sqrt{\left(\frac{\omega + n\Omega}{c}\right)^2 - k_x^2}, \quad (7)$$

and $k_x = k \sin \theta$. The argument depends then on n and θ . If $F \ll f$ and if we restrict to the first satellites, we can approximate $(\omega + n\Omega)/c \approx \omega/c$ in (7). Thus, the argument of the Bessel functions results

$$(k_z + k_{nz})A \approx 2kA \cos \theta, \quad (8)$$

and for small angles, the multiplicative correction term is almost unity, $\cos \theta \approx 1 - \theta^2/2$. Thus, from an experimental point of view, a simple configuration to study is $\theta \ll 1$ and $F \ll f$; in this case, Eq. (5) holds for any value of $2kA$.

B. Surface quasi-static Doppler effect versus bulk nonlinear effects

Due to the intrinsic nonlinear character of the conservation equations and to the nonlinear dependence of pressure fluctuations against density fluctuations (as a consequence of the equation of state of the fluid), sound propagation is nonlinear [3, 4]. Thus, two colinear waves of frequencies f_1 and f_2 may interact and generate waves whose frequencies are linear combinations of f_1 and f_2 , and whose amplitudes increase with the distance of interaction L [4]. Considering our experiment, the nonlinear interaction of the low frequency wave p_Ω emitted by the vibrating scatterer and the high frequency backscattered wave p_ω leads to the generation of satellite peaks in the spectrum of the detected wave. In the case of weak nonlinear interaction, the amplitude of the first satellite is to leading order proportional to:

$$p_{\omega \pm \Omega}^{NL} = \frac{B/2A + 1}{2\rho c^3} (\omega \pm \Omega) p_\Omega p_\omega L, \quad (9)$$

where $\epsilon = B/2A + 1$ is the usual nonlinear parameter of the medium [4, 16] (here A should not be confused with the vibration amplitude). For gases, $\epsilon = (\gamma + 1)/2$, with $\gamma = c_p/c_v$ the specific heat ratio.

Therefore, when an acoustic wave is scattered by a vibrating surface, both the surface Doppler effect and bulk nonlinearities contribute to the generation of combination frequencies. However, it has been argued that the Doppler effect is practically always overwhelmed by bulk nonlinearities [5, 7–9, 11]. In fact, our previous experimental study [12] showed that when the dimensionless parameter

$$Y = \frac{p_{\omega \pm \Omega}^D}{p_{\omega \pm \Omega}^{NL}} = \frac{2\rho c^2 A}{\epsilon L p_{\Omega}}, \quad (10)$$

is large compared to unity, Doppler effect is dominant.

In this article, we focus on the Doppler effect, and therefore we choose an experimental configuration where the condition $Y \gg 1$, as defined by Eq. (10), is verified.

III. EXPERIMENTAL SETUP

Figure 1 displays the experimental setup. The vibrating scatterer consists in a square flat piston made of PMMA, 17×17 cm and 10 mm thick, located at $x = 0$ say. It is driven sinusoidally by an electromechanical vibration exciter of Bruel & Kjaer (BK) 4808 type, at a frequency $F = 14$ Hz and amplitude $10^{-6} \text{ m} < A < 3.5 \times 10^{-3} \text{ m}$. An air coupled transducer ITC 9073, $d = 12$ mm in diameter, located at a distance $L = 28$ cm, generates a wave at frequency $f = 225$ kHz, incident on the vibrating plane with a small angle $\theta = 5^\circ$. It is driven by the source of a high frequency spectrum analyzer Agilent 3589 amplified by a NF Electronic Instruments 4005 power amplifier. The incident wave on the piston is in the far field, as $d^2/4\lambda \approx 23.5 \text{ mm} \ll L$. The backscattered wave is detected by another ITC 9073 transducer, also located at a distance L , and oriented with an angle $\theta = -5^\circ$. The displacement of the piston is controlled by a Wavetek 395 function generator. This sinusoidal electric signal is amplified by a BK 2712 power amplifier, and the displacement is of the form $x_S(t) = A \sin(\Omega t)$. We note that the vibration harmonics have an energy at least 100 times smaller than the fundamental frequency vibration. The acceleration $-A\Omega^2 \sin(\Omega t)$ of the scatterer is measured using a BK 4393V piezoelectric accelerometer and a BK 2635 charge amplifier. The acceleration signal is processed using both an Agilent 35670A low frequency spectrum analyzer and a Stanford Research System 830 Lock-In amplifier, in order to get the displacement of the scatterer at F (the difference between both measurements is smaller than 0.5%). The power spectrum of the backscattered wave is computed with the high

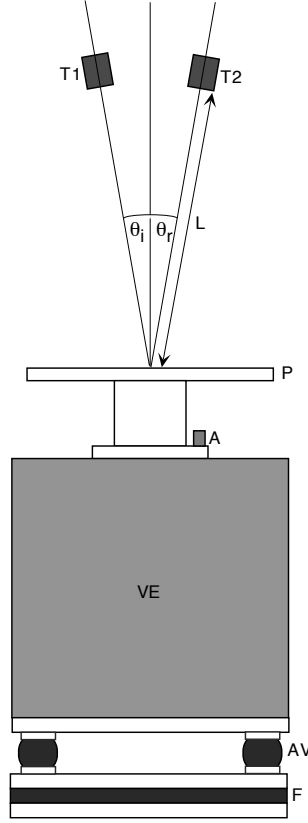


FIG. 1: Sketch of the experimental apparatus. (VE) electromechanical vibration exciter, (P) $17 \times 17 \times 1$ cm PMMA piston, (A) piezoelectric accelerometer, (T1-T2) air coupled transducers, (AV) antivibrations supports and (F) foam antivibration layer. In the experiments described here, $\theta_i = \theta_r \equiv \theta = 5^\circ$ and $L = 280$ mm. The piston displacement is $x_S(t) = A \sin(\Omega t)$.

frequency Agilent 3589A spectrum analyzer. The experiment is controlled by a Power PC Mac computer and the data are transferred to this computer via a general purpose interface bus (GPIB) board.

Concerning the power spectrum measurements, an important parameter is $t_0 F$, where t_0 is the time duration of the analyzed time series, and t_0^{-1} is thus the spectral resolution (SR). In practice, it is the frequency span, f_{sp} , of the Agilent spectrum analyzer which is varied for a fixed number of points, $N = 401$. Thus, $t_0^{-1} = f_{\text{sp}}/(N - 1)$, and the frequency span takes the values 5 kHz, 2.5 kHz, 1.25 kHz, 625 Hz and 312.5 Hz, giving $t_0^{-1} = 12.5, 6.25, 3.125, 1.5625$ and 0.78125 Hz.

Finally, in our experiment $\theta = 5^\circ$ is finite but small. As discussed in section II, if $F \ll f$ and if we restrict our analysis to the first satellites, the argument of the Bessel functions

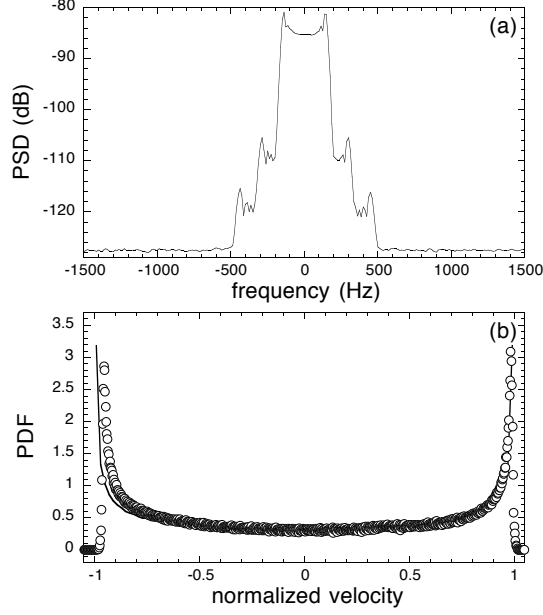


FIG. 2: (a) Backscattered wave power spectrum density (PSD) for $F = 5$ Hz and $t_o^{-1} = 12.5$ Hz. Frequencies are shifted by $f = 225$ kHz. (b) experimental ($\circ$) and theoretical (solid line) PDFs of the normalized scatterer velocity.

appearing in Eq. (5) must be replaced by $2kA \cos \theta$ [see Eq. (8)]. This is indeed the case in our experiments, since $F \sim O(10 \text{ Hz})$, $f \sim O(225 \text{ kHz})$ and the number of analyzed satellites is either 5 or 11. For $\theta = 5^\circ$, the correct argument of the Bessel functions is $2kA \cos \theta \approx 1.992kA$, which represents a 0.4% error, with respect to $2kA$. This error is small compared to the errors related to the measurements of A and the error on k (given by the approximation on $c \approx 345 \pm 5 \text{ m/s}$ at 25°C), and it is then considered as negligible. Therefore, we simply use the parameter $2kA$ in the analysis of our experimental results.

IV. MAIN CHARACTERISTIC FEATURES OF THE DOPPLER EFFECT

A. Static Doppler effect

As explained above, when $t_0^{-1} \gg F$ the time averaged backscattered wave power spectrum is expected to be proportional to the PDF of the scatterer velocity. In addition, a static Doppler shift can be detected only if it exceeds the spectral resolution. This implies an additional condition, $2fA\Omega/c > t_0^{-1}$, i.e. $2kA \gg 1$. In our experimental setup both

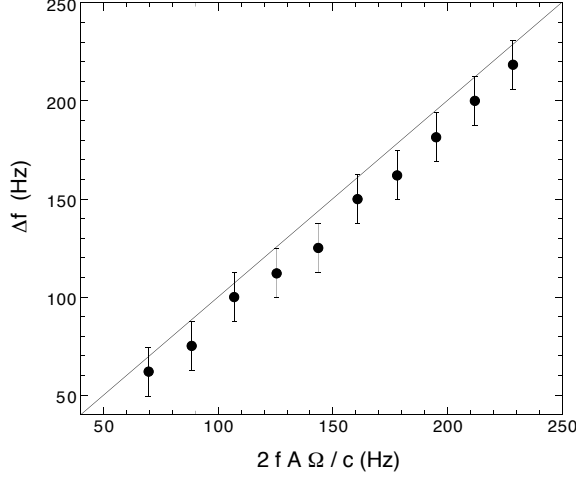


FIG. 3: Maximal frequency shift measured from the backscattered wave power spectrum Δf as a function of $2A\Omega f/c$ which is the expected static doppler shift obtained from acceleration measurements. Errorbars correspond to the frequency resolution $t_0^{-1} = 12.5$ Hz and $F = 5$ Hz. Solid line represents $\Delta f = 2A\Omega f$.

conditions are simultaneously verified for $F = 5$ Hz. In addition $Y \gg 1$, and we are then in the Doppler dominated regime.

Fig. 2a displays the backscattered wave power spectrum density (PSD) obtained for a low spectral resolution (SR) of $t_0^{-1} = 12.5$ Hz, such that $t_0^{-1} \approx 2.5F$, and a scatterer vibration amplitude A verifying $2kA = 32.6$. Thus, the conditions for observing a static Doppler shift are approximately verified. We observe that the spectrum displays two maxima, and we define Δf as the frequency shift of these maxima ; in this case $\Delta f \approx 150$ Hz. These maxima can be identified with the two maxima of the scatterer velocity PDF occuring at $\pm A\Omega$. Its theoretical expresion

$$\text{PDF}[\dot{x}_S/A\Omega] = \frac{1}{\pi \sin(\arccos(\dot{x}_S/A\Omega))} \quad (11)$$

is presented in Fig. 2b together with the experimental PDF of the actual scatterer velocity normalized by the value $A\Omega = 0.125$ m/s, obtained with the acceleration measurement done with the Lock-In amplifier. Note that in Fig. 2a two pairs of extra symmetric peaks appear at roughly $2\Delta f$ and $3\Delta f$, but they are of much lower intensity. They probably correspond to the Doppler shifts of the waves which undergo multiple reflections on the scatterer.

Fig. 3 displays the variations of Δf as a function of the expected static Doppler frequency shift $2fA\Omega/c$. Solid line represents the expected correlation between these two quantities

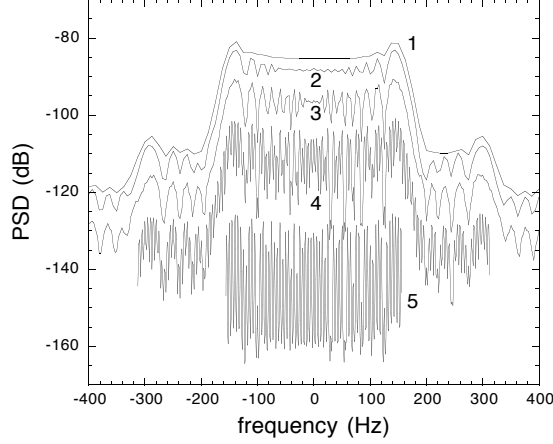


FIG. 4: Backscattered wave power spectra for $F = 5$ Hz, and $t_o^{-1} = 12.5$ Hz (1), 6.25 Hz (2), 3.125 Hz (3), 1.5625 Hz (4) and 0.78125 Hz (5). Frequencies were shifted by $f = 225$ kHz. Curves (3), (4) and (5) have been shifted down by 5, 15 and 40 dB respectively for a better display.

in the static Doppler effect regime. The systematic underestimation of Δf is probably due to the fact that the scatterer velocity is not constant during the time of signal acquisition. Nevertheless, there is a satisfactory correlation between both quantities.

Fig. 4 displays the backscattered wave power spectra obtained for various spectral resolutions ranging from $t_o^{-1} = 12.5$ Hz to 0.78125 Hz. For a larger SR, $t_o^{-1} = 6.25$ Hz $\gtrsim F$, the condition of static Doppler effect is not verified, and curve 2 of Fig. 4 displays several peaks between the two initial maxima. The number of peaks increases with the spectral resolution (curves 3 and 4) until the frequency difference between two peaks drops to $F = 5$ Hz (curve 5). As we explain in the following, this can be understood in the frame of the quasi-static Doppler effect presented in section II. Note that whereas in the static Doppler effect regime the frequency difference between two peaks in the scattered wave power spectrum is determined by the scatterer oscillation *velocity amplitude*, in the quasistatic Doppler effect regime it is determined by the scatterer oscillation *frequency*.

B. Quasistatic Doppler effect

In this section we present experimental results concerning the quasi-static Doppler effect. We show that in our current experimental configuration, which is slightly different than in Ref. [12], the Doppler effect overcomes bulk nonlinearities in the generation of the satellites

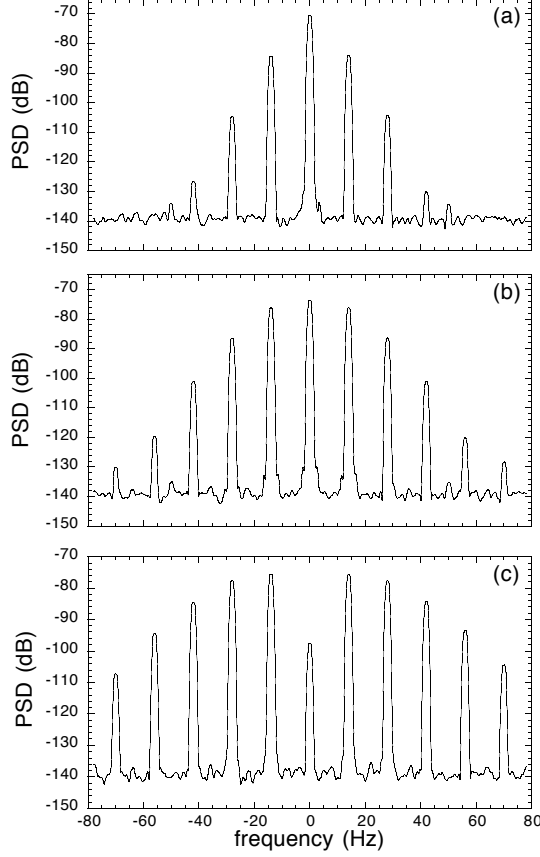


FIG. 5: Power spectra of the wave scattered by the vibrating plate as a function of the dimensionless vibration amplitude $2kA = 0.39$ (a), 1.17 (b) and 2.34 (c) (k is the wave number incident high frequency wave, f). Frequencies were shifted by $f = 225$ kHz. For the calculation of $k = \omega/c$ we used $c = 345$ m/s for air at ambient temperature $T_0 = 25 \pm 1$ °C.

at $f \pm nF$ of the backscattered wave.

Three pressure power spectra of the backscattered wave computed for $f = 225$ kHz, $F = 14$ Hz and for three different values of the dimensionless amplitude $2kA$ are displayed in Fig. 5. (For the calculation of $k = \omega/c$ we used $c \approx 345$ m/s for air at ambient temperature $T_0 = 25 \pm 1$ °C). These spectra are composed of pairs of symmetric peaks at $f \pm nF$ surrounding the central peak at f . Comparison of spectra 5a and b shows that the number of satellites emerging from the background noise around the central peak at f increases with $2kA$, exceeding the frequency span for $2kA \gtrsim 1$. A first cancellation of the central peak occurs at $2kA \approx 2.3$, as shown in Fig. 5c, where the central peak has decreased by approximately 30 dB respect to its initial value.

Fig. 6 displays the variations of the normalized amplitudes $p_n = p_{\omega+n\Omega}/p_{\omega_0}$ of the satellites measured in the power spectrum of the backscattered wave as a function of $2kA$, in both the weak (a), $2kA \ll 1$, and strong (b-c), $2kA \gtrsim 1$, regimes. Normalization is done using the amplitude p_{ω_0} of the wave backscattered on the motionless piston (called hereafter the reference wave). Comparison with the predictions of phase modulation theory, i.e. with the absolute values of the Bessel functions, shows excellent agreement, except for high order satellites when their amplitude is close to the background noise (this is for $p_n \lesssim -65$ dB, i.e $p_n \lesssim 6 \times 10^{-4}$). For $2kA$ small, the amplitude of the satellites at frequency $f \pm nF$ ($n = 0 - 5$) increases like $(kA)^n/n!$. For higher values of $2kA$, the amplitude of the component at frequency f of the scattered wave decreases and we observe that it almost vanishes for $2kA \approx 2.3$ (see Figs. 5c and 6b). It then increases when $2kA$ is increased further above 2.3, and then decreases and vanishes again for $2kA \approx 5.4$. The same process occurs roughly periodically for the amplitude of each peak $f \pm nF$, as displayed in Fig. 6 for $n = 0 - 5$. We note that experiments were performed up to $2kA = 30$, showing the same behaviour.

Another way to check that the Doppler effect is dominant versus bulk acoustic nonlinearities is to vary the vibration frequency, always keeping $Y \gg 1$, and to show that the satellite amplitudes p_n scale like A , independently of F . This is indeed the case in our experimental configuration. Thus, the Doppler effect is the dominant mechanism in the generation of frequency combinations $f \pm nF$. We can then study an acoustic non-intrusive estimator of the vibration amplitude A , which is presented in the next section.

V. TEST OF A SPECTRAL ESTIMATOR OF THE SCATTERER HARMONIC VIBRATION AMPLITUDE

Recently, Huang *et al.* [13] proposed to use a mathematical property of Bessel functions,

$$z = \sqrt{\frac{2 \sum_{n=-\infty}^{+\infty} n^2 J_n^2(z)}{\sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n^2(z)}}, \quad (12)$$

in order to define a spectral estimator $\hat{A}$ of the scatterer vibration amplitude A when its motion is harmonic in the quasi-static Doppler regime. In practice, the number of detected

satellites being finite, the estimator has to be defined with a finite number of satellites $2n_0$:

$$\hat{A} = \frac{1}{\sqrt{2k}} \sqrt{\frac{\sum_{n=-n_0}^{+n_0} n^2 p_n^2(2kA)}{\sum_{n=-n_0}^{+n_0} p_n^2(2kA)}}. \quad (13)$$

We can then test the accuracy and validity domain of this estimator. It is expected to be valid as long as the energy of the undetected satellites is small compared to the energy of the detected ones. This can be checked by measuring the energy of the backscattered wave E and comparing it to the energy of the reference wave E_0 . As a matter of fact, due to the orthogonality of the Bessel functions, the normalized energy of a wave of the form given by Eq. (5) is

$$E/E_0 = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n^2(2kA) = 1. \quad (14)$$

As long as the undetected energy is small compared to the one of the reference wave, we expect the estimator $\hat{E}$ to be equal to the energy of the reference wave :

$$\hat{E} = \sum_{n=-n_0}^{+n_0} p_n^2(2kA) \approx E_0. \quad (15)$$

This reflects the fact that the phase modulation process induced by the scatterer vibration, does not transfer any energy from the scatterer to the scattered wave. In fact, energy of the satellites is pumped from the incident wave only.

Fig. 7a displays the average relative error $\hat{A}/A - 1$ as a function of $2kA$ for $n_0 = 5$ and 11, where A is determined from the scatterer acceleration. The averages are performed over 22 independent experimental runs for each value of A . This average relative error is compared to the error computed using a theoretical truncated amplitude estimator $\hat{A}_T$, which is defined with the finite number of detected satellites :

$$\hat{A}_T = \frac{1}{\sqrt{2k}} \sqrt{\frac{\sum_{n=-n_0}^{+n_0} n^2 J_n^2(2kA)}{\sum_{n=-n_0}^{+n_0} J_n^2(2kA)}}. \quad (16)$$

In the range $2kA < n_0$, the estimator $\hat{A}$, defined in Eq. (13), is found to have a satisfactory accuracy. The mean value of $\hat{A}/A - 1$ does not exceeds 5%. The associated errorbars are important (of the order of 20%) for $2kA \approx 0.01$, but they decrease rapidly to a value below

5% as we increase A . The larger errors are in fact due to the uncertainty of the determination of the amplitude from acceleration measurements at low frequency (At both low F and low A , the acceleration is quite small, of the order of $1.6 \times 10^{-2} \text{ m/s}^2$). However, the relative errors of both amplitude measurements, i.e. the acceleration and non-intrusive acoustic power spectrum estimator measurements, are of same order of magnitude, as can be seen in Fig. 7b, where we present $\hat{A}$ versus A in a $\log_{10}$ - $\log_{10}$ scale.

In Fig. 7a we observe that for $n_0 = 5$ (resp. 11) the estimation error increases above 5% when $2kA > 5$ (resp. 11), in agreement with the error computed using the theoretical troncated amplitude estimator $\hat{A}_T/A - 1$. This departure from 0 is concomitant with the saturation of $\hat{A}$ observed in Fig. 7b. Theses facts are due to the transfer of a significant part of the incident energy to undetected satellites during scattering. This is clearly observed in Fig. 8, which shows the average value of $\hat{E}/E_0$ as a function of $2kA$. It is compared to the normalized energy computed using a theoretical troncated energy estimator $\hat{E}_T/E_0$, defined as

$$\hat{E}_T/E_0 = \sum_{n=-n_0}^{+n_0} J_n^2(2kA). \quad (17)$$

Here, we also find that both $\hat{E}/E_0$ and $\hat{E}_T/E_0$ drop by more than 5% when $2kA > n_0$.

We thus conclude that for the experimental configuration presented here, the acoustic amplitude estimator proposed in Ref. [13] is valid in a large range of amplitudes, namely $2 \times 10^{-2} < 2kA < n_0$, which gives $2 \times 10^{-3} \text{ mm} < A < n_0/2k \approx 1.2 \text{ mm}$ (resp. 2.7 mm) for $n_0 = 5$ (resp. $n_0 = 11$). The relative error on $\hat{A}$ is of the same order of magnitude than that on the acceleration measurements. The lower limit of A is given by the signal to noise ratio (SNR) of the acceleration measurements whereas the lower limit of $\hat{A}$ is given by the PSD SNR, which is of the order of 65 dB in our present experimental configuration. Concerning the acoustic non-intrusive estimator $\hat{A}$, for small amplitude measurements ($2kA \ll 1$) the first satellites must then satisfy $p_{\omega \pm \Omega}/p_{\omega 0} = p_1/p_0 \approx kA > -65 \text{ dB} \approx 6 \times 10^{-4}$ in order to resolve the first satellite. Thus, to get a better resolution on the measured amplitude we have to increase k , i.e. to increase f . For example, for experiments in water presented in Ref. [12], where the SNR is 80 dB, $L = 20 \text{ cm}$, $F = 120 \text{ Hz}$ and $f = 2.25 \text{ MHz}$, using only one satellite, $n_0 = 1$, and for a single experimental run, we find that the relative error $\hat{A}/A - 1$ is lower than 15% for $7 \times 10^{-9} \text{ m} < A < 5 \times 10^{-5} \text{ m}$. Smaller errors can be obtained by averaging over several experimental runs as is done the present work. On the other

hand, to increase the upper limit of the measurable amplitude, one has to increase the ratio n_0/k , either by increasing the number of satellites taken into account in the analysis or by decreasing k (by decreasing f).

VI. CONCLUSION

We have studied the Doppler effect generated by vibrating scatterers. We have shown that depending on the duration t_0 of the analyzed backscattered wave, we have two possible situations: (i) if $t_0 \ll F^{-1}$, the static Doppler effect is observed and the backscattered power spectrum is proportional to the PDF of the scatterer velocity. The frequency shift Δf is then given by the amplitude of the scatterer velocity; (ii) if $t_0 \gg F^{-1}$, the so-called quasi-static Doppler effect is observed, and the scattered wave is phase modulated by the normalized vibration displacement $2kx_s(t) = 2kA \sin(\Omega t)$. In this case, the backscattered wave has a frequency spectrum composed of peaks at $f \pm nF$ (n integer). Experiments show that the backscattered wave is very well described by Eq. (5), i.e. the amplitudes of the satellites of order n are described by the Bessel functions of order n . We verified that in the case $F \ll f$, this agreement holds in both the weak ($2kA \ll 1$) and strong ($2kA \gtrsim 1$) regimes.

The last part of this work was devoted to the study of a non-intrusive acoustic estimator of the amplitude vibration A . We conclude that for the present experimental configuration, the acoustic amplitude estimator is valid for a large range of amplitudes, namely $2 \times 10^{-2} < 2kA < n_0$, which gives $2 \times 10^{-3} \text{ mm} < A < n_0/2k \approx O(1 \text{ mm})$. To increase the upper bound one has to consider a larger number of satellites or one can choose to decrease the incident sound frequency. For a given SNR, one has to increase the incident frequency to decrease the lower bound.

Acknowledgments

R. W. thanks the Centre National d' Etudes Spatiales for financial support. This work has been supported by contract No. 793/CNES/01/8601/00.

- [1] A. M. Kovalev and V. N. Krasil'nikov, "Reflection of electromagnetic waves from moving surfaces", Soviet Phys. Tech. Phys. **7**, 19 (1962).
- [2] D. Censor, "Scattering by time varying obstacles", J. Sound Vib. **25**, 101-110 (1972).
- [3] M.F. Hamilton and C.L. Morfey, "Model equations", in *Nonlinear Acoustics*, Edited by M.F. Hamilton and D.T. Blackstock, (Academic Press, 1998).
- [4] K. Naugolnykh and L. Ostrovsky, *Nonlinear Wave processes in Acoustics*, (Cambridge University, Cambridge, 1988).
- [5] P.H. Rogers, "Comments on 'Scattering by time varying obstacles'", J. Sound Vib. **28**, 764-768 (1973).
- [6] D. Censor, "Harmonic and transient scattering from time varying obstacles", J. Acoust. Soc. Am. **76**, 1527-34 (1984).
- [7] J. C. Piquette and A. L. Van Buren, "Nonlinear scattering of acoustic waves by vibrating surfaces", J. Acoust. Soc. Am. **76**, 880-9 (1984).
- [8] J. C. Piquette and A. L. Van Buren, "Comments on "Harmonic and transient scattering from time varying obstacles" [J. Acoust. Soc. Am. **76**, 1527-34 (1984)]", J. Acoust. Soc. Am. **79**, 179-80 (1984) and author's reply.
- [9] J. C. Piquette and A. L. Van Buren, "Some further remarks regarding scattering of an acoustic wave by a vibrating surface", J. Acoust. Soc. Am. **80**, 1533-6 (1986).
- [10] D. Censor, "Acoustical Doppler effect analysis - Is it a valid method?", J. Acoust. Soc. Am. **83**, 1223-30 (1988).
- [11] J. C. Piquette, A. L. Van Buren, and P. H. Rogers, "Censor's acoustical Doppler effect analysis - Is it a valid method?", J. Acoust. Soc. Am. **83**, 1681-2 (1988).
- [12] N. Mujica, R. Wunenburger, and S. Fauve, "Sound scattering by vibrating surface", submitted to Phys. Rev. Lett.
- [13] S. Huang, R. M. Lerner, and K. J. Parker, "On estimating the amplitude of harmonic vibration

- from the Doppler spectrum of reflected signals”, J. Acoust. Soc. Am. **88**, 2702-12 (1990).
- [14] L.M. Lyamshev, “Diffusion of sound by a periodically moving plate”, Sov. Phys. Dokl. **28**, 274-276 (1983).
- [15] L.M. Lyamshev, “Distinctive features of the scattering and radiation of sound by periodically moving plates and shells”, Sov. Phys. Acoust. **30**, 237-238 (1984).
- [16] R.T. Beyer, “The parameter B/A ”, in *Nonlinear Acoustics*, Edited by M.F. Hamilton and D.T. Blackstock, (Academic Press, 1998).

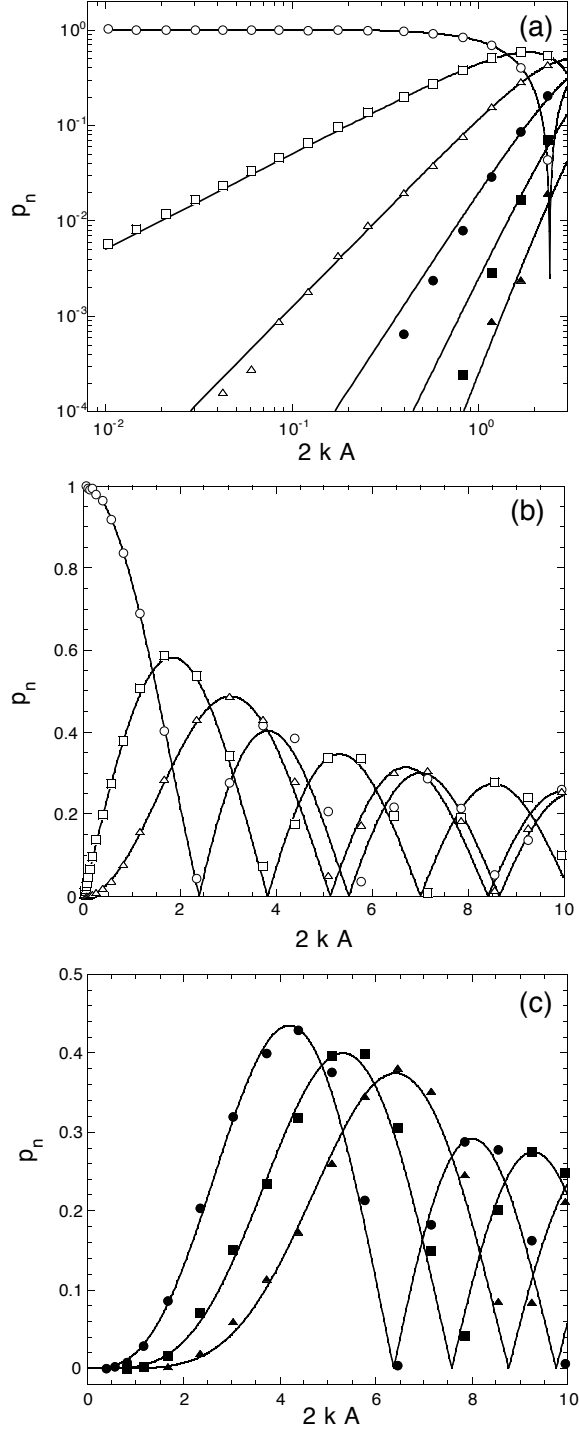


FIG. 6: Normalized pressure $p_n = p_{\omega+n\Omega}/p_{\omega 0}$ versus $2kA$ for $n = 0$ ($\circ$), 1 ($\square$), 2 ($\triangle$), 3 ($\bullet$), 4 ($\blacksquare$) and 5 ($\blacktriangle$). Here $p_{\omega 0}$ is the amplitude of the wave backscattered on the motionless piston. (a) weak regime in $\log_{10}$ - $\log_{10}$ scale and (b-c) strong regime in linear scale. Continuous lines show the absolute values of the Bessel functions of order $n = 0, \dots, 5$. Note that there is no adjustable parameter, and k is fixed by the sound speed c .

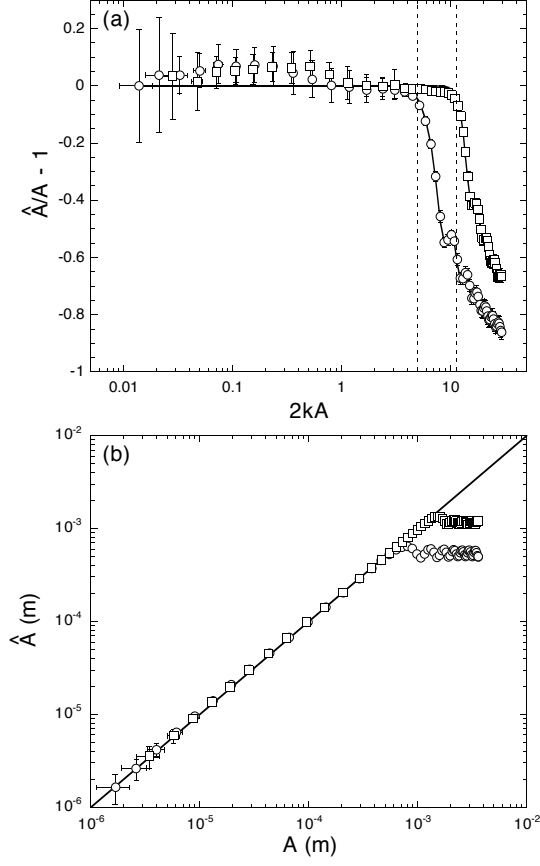


FIG. 7: (a) Amplitude estimator error, $\hat{A}/A - 1$, versus $2kA$. Solid line represents the theoretical truncated amplitude estimator error. Vertical dashed lines represent the values $2kA = n_0$. Errorbars correspond to the errors obtained including the standard deviation of 22 independent experimental runs and the errors associated to the amplitude measurements and the error associated to the value of k ($\pm 1.5\%$ for c). (b) Estimated amplitude $\hat{A}$ versus A . In this case the errorbars correspond to the statistical standard deviation of 22 independent experimental runs. In both figures, results for two PSD spans are presented, $n_0 = 5$ ($\circ$) and 11 ($\square$).

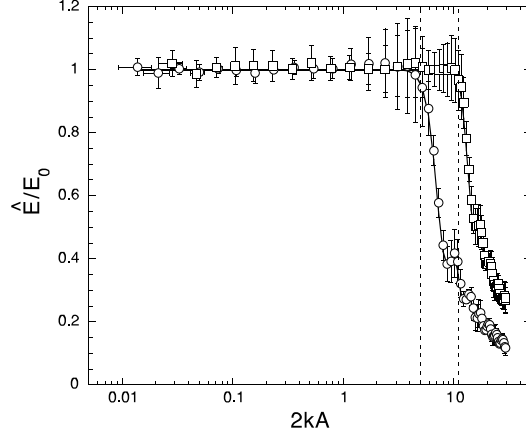


FIG. 8: Normalized estimated acoustic energy $\hat{E}/E_0$ versus $2kA$ for two PSD spans, $n_0 = 5$ ($\circ$) and 11 ($\square$). In this case the errorbars correspond only to the standard deviation of 22 independent experimental runs. Vertical dashed lines represent the values $2kA = n_0$.

Chapitre 5

Acoustique au voisinage du point critique de CO₂

Dans ce chapitre nous présentons une étude expérimentale de la propagation du son au voisinage de point critique de CO₂. Nous commençons par rappeler dans le paragraphe 5.1 les différents types de transitions de phase que l'on peut observer pour les fluides purs et le comportement de leurs propriétés thermophysiques au voisinage du point critique. Nous présentons ensuite, dans le paragraphe 5.2, une étude sur les résonances linéaires d'une cavité acoustique, ce qui nous permet de retrouver quelques résultats généraux de l'acoustique linéaire au voisinage du point critique des fluides purs. Nous présentons ensuite, dans le paragraphe 5.3, des résultats concernant deux expériences d'acoustique non-linéaire au voisinage du point critique de CO₂, à savoir la déformation de la résonance fondamentale d'une cavité à «forte» amplitude d'excitation et le mélange non-linéaire de deux ondes acoustiques. Nous montrons que les effets des non-linéarités acoustiques sont maximisés au voisinage du point critique. Enfin, nous présentons dans le paragraphe 5.4 une étude semi-quantitative de la variation du paramètre non-linéaire B/A au voisinage du point critique de CO₂ ; nous montrons en particulier que ce paramètre augmente d'environ un facteur 100 lorsque l'on s'approche du point critique.

5.1 Thermodynamique du point critique

Nous présentons brièvement dans ce paragraphe les aspects plus importants de la thermodynamique du point critique. Une très bonne référence est le livre de Callen [104].

5.1.1 Transitions de phase du premier et du deuxième ordre

La figure 5.1 représente un schéma du diagramme de phases d'un fluide pur. Ce diagramme est caractérisé par diverses courbes de coexistence de phases et par l'existence des points triple (PT) et critique (PC), lesquels sont définis, respectivement, comme le point où les phases solide, liquide et vapeur sont en équilibre thermodynamique et le point où la courbe de coexistence liquide-vapeur s'«arrête». Par définition, si le système se trouve

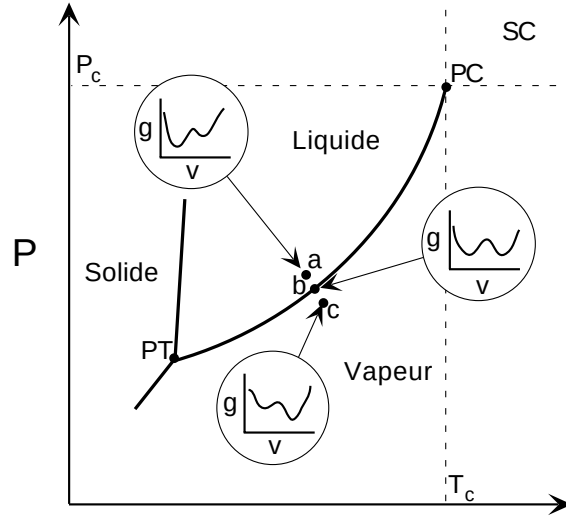


FIG. 5.1 – Schéma du diagramme de phases d'un fluide pur en représentation (P, T) . Les encarts représentent l'enthalpie libre g en fonction du volume massique v pour les points a , b et c sur le plan (P, T) ; ces points correspondent à la phase liquide, à la coexistence liquide-vapeur et à la phase vapeur respectivement. Le point critique est défini par $T = T_c$, $P = P_c$ et $\rho = \rho_c$ et la «phase supercritique» (SC), par $T > T_c$ et $P > P_c$. La transition du point a au b est une transition du premier ordre.

sur la courbe de coexistence liquide-vapeur (point b par exemple), ces deux phases sont en équilibre thermodynamique. On peut varier la pression du système, ou la température, tout en restant sur la courbe de coexistence en gardant le volume total constant. Seules les densités de chaque phase varient le long de cette courbe, tandis que la masse totale, voir la densité totale, reste constante (plus précisément, cette courbe correspond à une isochore du système total). Lorsque l'on traverse cette courbe, par exemple du point a jusqu'au point c , le fluide subit une *transition de phase de premier ordre*, en passant de l'état liquide à l'état vapeur. La caractéristique principale d'une transition du premier ordre est que l'entropie et le volume massiques sont discontinus, même si les potentiels chimiques des deux phases sont égaux à la transition. Donc, les dérivées premières de l'enthalpie libre sont discontinues. Physiquement, le système «choisit» une configuration qui minimise l'enthalpie libre, et nous montrons dans les encarts de la figure 5.1 comment ce potentiel se déforme en passant d'un côté à l'autre de la courbe de coexistence. Ce potentiel présente en effet deux minima en fonction du volume massique, l'état d'équilibre du système correspond donc au minimum global de g . En particulier, lorsque l'on est sur la courbe de coexistence, les deux minima sont égaux et les deux phases sont en équilibre. Finalement, le fait que l'entropie et le volume massiques soient discontinus implique que la chaleur spécifique à pression constante $C_P = T(\partial s / \partial T)_P$ et la compressibilité isotherme $\chi_T = -v^{-1}(\partial v / \partial P)_T$ divergent à la transition. Formellement, ces deux quantités divergent tout le long de la courbe de coexistence, mais leur différence entre un côté et l'autre de la courbe reste néanmoins finie.

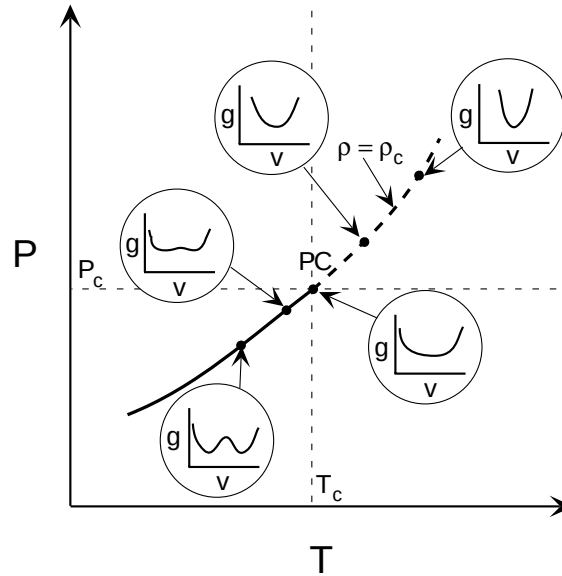


FIG. 5.2 – Détail du voisinage au point critique (PC) qui correspond à la fin de la courbe de coexistence et au début de l'isochore critique $\rho = \rho_c$. La transition entre la coexistence des états liquide et vapeur vers l'état supercritique est une transition du deuxième ordre.

Par ailleurs, si l'on continue à augmenter la température du système le long de la courbe de coexistence, et par conséquent aussi la pression, la différence entre les propriétés thermophysiques des deux phases devient de plus en plus petite, jusqu'au point critique, où les deux phases se confondent en une seule, appelé état supercritique. Nous présentons dans la figure 5.2 le détail du voisinage du PC ; nous montrons dans les encarts comment l'allure de l'enthalpie libre varie le long de la courbe de coexistence et le long de l'isochore critique. Ainsi, au fur et à mesure que l'on s'approche du PC en suivant la courbe de coexistence, les minima se rapprochent et la barrière entre eux diminue. En arrivant au PC les deux minima fusionnent, et le rayon de courbure de g est en principe «très grand». Si l'on continue à augmenter T , l'enthalpie libre garde un seul minimum, qui devient plus étroit à mesure que l'on s'éloigne du PC. La transition entre la coexistence des états liquide et vapeur vers l'état supercritique est une *transition de phase de deuxième ordre* ; ce sont donc les dérivées secondes de l'enthalpie libre qui sont discontinues à la transition, l'entropie et le volume massiques étant continus. Notons que le paramètre d'ordre de cette transition est l'écart relatif de la densité à la densité critique $\Delta\rho = |\rho - \rho_c|/\rho_c$, ayant une valeur nulle pour $T > T_c$ et non nulle pour $T < T_c$, et que la symétrie brisée à la transition est la symétrie de translation spatiale. Il est également intéressant de noter que l'existence du point critique permet de passer du point a au point b (figure 5.1) en contournant le point critique et, de cette façon, de passer du liquide à la vapeur sans transition de phase.

Remarquons enfin que c'est l'aplatissement de g au PC (voir figure 5.2) qui explique l'absence d'une «force de restitution» aux fluctuations de densité du fluide ; celles-ci deviennent donc très importantes dans le voisinage du PC, ce qui est caractérisé par la

divergence de la longueur de corrélation ξ (définie comme le moment d'ordre 1 de la fonction de distribution de densité du fluide). Notons que le phénomène d'opalescence critique est une conséquence des fluctuations de densité : la lumière est diffusée par les fluctuations spatio-temporelles de densité et la propagation de l'onde cohérente est fortement atténuée. On peut également comprendre le fait que ces systèmes présentent une certaine «universalité» à la transition supercritique si l'on considère que ξ devient très grand par rapport aux longueurs microscopiques caractéristiques du fluide ; la transition est ainsi dominée par ξ , indépendamment des propriétés du fluide aux échelles moléculaires. Notons à ce sujet que les théories actuelles supposent que divers systèmes physiques appartiennent à la même «classe d'universalité» lorsque les dimensions du système et la structure du paramètre d'ordre sont identiques.

5.1.2 Divergence et annulation des propriétés thermophysiques

Le comportement particulier des fluides purs au voisinage de leur point critique au niveau de leurs propriétés hydrodynamiques, acoustiques ou thermiques, est dû aux divergences ou annulations de différentes propriétés thermophysiques. Le comportement asymptotique des quantités thermodynamiques est décrit qualitativement par la théorie de Landau des transitions phase du deuxième ordre ou encore par l'équation d'état de Van der Waals [104]. En fait, ces deux approches théoriques donnent les mêmes valeurs pour les *exposants critiques* des divergences ou annulations des quantités thermodynamiques, lesquels sont appelés *exposants classiques*. Il existe plusieurs exposants critiques, dont deux caractérisant la divergence de la chaleur spécifique à volume constant,

$$C_V \propto (T - T_c)^{-\alpha} \quad (T > T_c), \quad (5.1)$$

$$C_V \propto (T_c - T)^{-\alpha'} \quad (T < T_c), \quad (5.2)$$

et deux autres la divergence de la compressibilité isotherme,

$$\chi_T \propto (T - T_c)^{-\gamma} \quad (T > T_c), \quad (5.3)$$

$$\chi_T \propto (T_c - T)^{-\gamma'} \quad (T < T_c). \quad (5.4)$$

De plus, deux exposants caractérisent le comportement du paramètre d'ordre en fonction des écarts de température et de pression,

$$\Delta\rho \propto (T_c - T)^\beta \quad (T < T_c), \quad (5.5)$$

$$\Delta\rho \propto (P - P_c)^{\frac{1}{\delta}} \quad (T = T_c). \quad (5.6)$$

La théorie classique prédit $\alpha = \alpha' = 0$, $\gamma = \gamma' = 1$, $\beta = 1/2$ et $\delta = 3$ [104]. Le fait que ces exposants soient des nombres rationnels est dû à l'hypothèse d'analyticité de l'énergie libre en fonction du paramètre d'ordre qui rend possible un développement limité au voisinage de la transition. C'est à partir des années 1960 que ces exposants classiques ont été mis en défaut par des expériences. Nous comparons dans la table 5.1 les valeurs prédites par la théorie classique avec celles observées expérimentalement ; la différence est très claire.

exposant	valeur classique	valeur expérimentale
α	0	0.08-0.125
γ	1	1.14-1.25
β	1/2	0.305-0.354
δ	3	4.2-4.6

TAB. 5.1 – *Exposants critiques classiques et observés dans les fluides purs. Les valeurs expérimentales sont tirées de la référence [105].*

Le comportement «anormal» des quantités thermodynamiques est le reflet de l'effet des fluctuations de la densité du fluide au voisinage du point critique, caractérisées par la divergence de la longueur de corrélation selon la loi [106, 107]

$$\xi \approx \xi_o \left(\frac{|T - T_c|}{T_c} \right)^{-\nu}, \quad (5.7)$$

avec $\nu = 0.63$ et $\xi_o \sim O(1 \text{ Å})$. Donc, pour $|T - T_c| \approx 0.01 \text{ °C}$ (resp. 0.001 °C), on a $\xi/\xi_o \approx 700$ (resp. 2900).

Remarquons que d'autres quantités peuvent être liées à celles données par les équations (5.1)-(5.6) par des relations thermodynamiques. Par exemple, pour la chaleur spécifique à pression constante

$$C_P = C_V + \frac{TV\alpha_P^2}{N\chi_T}, \quad (5.8)$$

où $\alpha_P = -\rho^{-1}(\partial\rho/\partial T)_P$ est le coefficient de dilatation thermique isobare. Nous avons également

$$\alpha_P = P\beta_\rho\chi_T, \quad (5.9)$$

où $\beta_\rho = P^{-1}(\partial P/\partial T)_\rho$ est le coefficient de pression, qui ne présente pas de divergence au PC. Nous avons donc asymptotiquement près de T_c , $\alpha_P \propto \chi_T$ et donc $C_P \propto \chi_T$ et $C_P \gg C_V$.

Concernant l'acoustique de ces systèmes, il est facile de vérifier que pour $T \rightarrow T_c$ la vitesse du son isentropique, qui correspond à la vitesse obtenue dans la limite $\omega \rightarrow 0$, converge lentement vers zéro, selon la loi

$$c_o^2 \equiv \frac{1}{\rho\chi_S} = \frac{C_P}{\rho C_V\chi_T} \propto C_V^{-1}, \quad (5.10)$$

et donc, $c_o \propto |T - T_c|^{\alpha/2}$ pour $T \rightarrow T_c$. Par ailleurs, on s'attend à ce que l'absorption diverge au voisinage du PC. En effet, pour des ondes planes, l'absorption volumique est donnée par [66]

$$\alpha = \frac{\omega^2}{2\rho c^3} \left[\left(\frac{4}{3}\eta + \eta_v \right) + \lambda_T \left(\frac{1}{C_V} - \frac{1}{C_P} \right) \right]. \quad (5.11)$$

où η est la viscosité dynamique, η_v est la viscosité de volume et λ_T est la conductivité thermique. Il est bien connu que les propriétés de transport présentent également des

divergences (ou annulations) au PC [108]; par exemple, λ_T et η divergent, la viscosité présentant cependant une divergence très faible. Notons que l'on possède peu de données relatives à la divergence de η_v [109, 110]; pourtant, on sait que $\eta_v = 0$ pour un gaz monoatomique. Par contre, la diffusivité thermique $D_T = \lambda_T/\rho C_P$ s'annule au PC en raison de la forte divergence de C_P . Bref, les comportements asymptotiques des propriétés de transport impliquent que l'atténuation du son, donnée par l'équation (5.11), diverge au PC. La divergence observée dans les expériences est même plus forte que celle prédite par l'équation «classique» (5.11) [109, 110]. Ceci a été attribué à la connaissance imprécise de la viscosité de volume η_v [109]. On pourrait penser que les fluctuations de densité augmentent l'atténuation par la diffusion du son, ce qui ne semble pas être le cas. En fait, la théorie «classique» de propagation du son dans un milieu dissipatif est en défaut lorsque des fortes fluctuations de densité dominent la dynamique du système, voir lorsque le temps de relaxation du fluide est plus grand que le période d'oscillation acoustique. La théorie de la propagation du son dans le voisinage du point critique des fluides purs fait l'objet d'études récents [110, 111] utilisant la technique dite de *couplage des modes*; il s'agit de prendre en compte le couplage non-linéaire entre les différents modes de transport lors de la propagation d'une onde acoustique. Remarquons qu'un bon accord a été observé entre les mesures d'atténuation et de dispersion du son et cette théorie dans divers fluides purs au voisinage de leur point critique [110, 111].

Une autre quantité intéressante est la *chaleur latente* associée à la transition liquide-vapeur. Par définition, la chaleur latente d'une transition de phase de premier ordre est

$$l = T\Delta s, \quad (5.12)$$

où T est la température à la transition et Δs est la différence d'entropie molaire des deux phases. Ainsi, à mesure que l'on s'approche du PC, l tends vers zéro car les deux phases sont de plus en plus semblables (Δs diminue) et, au PC, les deux phases se confondent en une seule ($\Delta s = 0$). Ceci peut avoir des effets importants sur la propagation du son dans un mélange liquide/vapeur d'un fluide pur. En particulier, on attend une vitesse du son encore plus faible que dans un mélange gaz/liquide usuel car l'onde acoustique peut induire des transitions de phase aux interfaces liquide/vapeur, ce qui augmente encore plus la compressibilité du milieu [112, 113]. Ces transitions, qui sont limitées par le temps de transport de la chaleur latente par diffusion thermique, pourraient avoir un effet plus important au voisinage du PC. Cependant, cet effet pourrait être contrarié par l'annulation de la diffusivité thermique qui pourrait rendre le transfert isobare de chaleur dans un fluide pur de plus en plus lent à mesure que l'on s'approche du PC (le temps caractéristique de diffusion de la chaleur est donné par $\tau_D = L^2/D_T$, où L est la dimension caractéristique du volume de fluide). Ce phénomène est connu comme le *ralentissement critique*. Cependant, la divergence de la compressibilité et du rapport des chaleurs spécifiques C_P/C_V rend le mécanisme de transfert de chaleur adiabatique beaucoup plus efficace [105]. En effet, si l'on augmente la température d'une des parois d'une cavité de volume constant, la température d'une fine couche limite augmente de façon isobare et, en raison de la divergence du coefficient de dilatation thermique α_P , celle-ci se dilate en comprimant le reste du fluide; une onde de compression se propage donc

de façon adiabatique dans le fluide. La cavité étant de taille finie, cette onde est réfléchiée sur les autres parois et elle peut réaliser ainsi plusieurs allée-retours dans le volume, en chauffant un peu le fluide lors de chaque passage. Ce mécanisme est connu sous le nom d'«effet piston». Le temps caractéristique d'équilibre de température dans le volume est donné par $\tau_{EP} = \tau_D / (C_P / C_V - 1)^2$, qui s'annule pour $T \rightarrow T_c$. Notons que l'on a montré tant théoriquement qu'expérimentalement, que l'effet piston est le mécanisme dominant de transfert de chaleur dans le voisinage du PC des fluides purs à *volume constant* [105].

5.1.3 Coordonnées critiques de CO₂

L'équation d'état de CO₂ est connue empiriquement avec précision depuis quelques années [114, 115], et les propriétés thermophysiques de ce gaz sont facilement accessibles dans des bases de données [116]. Pour fixer les idées par rapport aux expériences que nous avons réalisées, nous donnons les coordonnées critiques de CO₂ [115, 116]:

$$T_c = 30.978 \pm 0.015^\circ\text{C}, \quad (5.13)$$

$$P_c = 73.773 \pm 0.003 \text{ bar}, \quad (5.14)$$

$$\rho_c = 467.6 \pm 0.6 \text{ kg/m}^3. \quad (5.15)$$

Le dioxyde de carbone présente l'avantage d'avoir des valeurs critiques de température et de pression relativement faibles par rapport à d'autres fluides purs. De plus, c'est un fluide comparativement peu réactif qui ne présente pas de dangers particuliers. Ceci rend sa manipulation assez simple à condition de prendre en compte ses propriétés de bon solvant au voisinage du PC.

5.2 Étude des résonances acoustiques d'une cavité

5.2.1 Description du montage

La figure 5.3a présente le schéma du dispositif expérimental. Nous montrons aussi une photographie de la cellule dans la figure 5.3b. Elle a été réalisée en cuivre pour assurer une bonne conductivité thermique sous la forme d'un parallélépipède rectangle de 3 cm de haut et de 2.2×2.7 cm de section, dans lequel on a creusé un trou cylindrique. La cavité qui contient le fluide est un cylindre de 1 cm de haut et de 6 mm de rayon, est limité par deux hublots circulaires de saphir, de 1 cm d'épaisseur, collés à l'aide d'une résine polymère¹. Un capteur de pression (Kistler 6031) est monté dans la cellule de façon à pouvoir mesurer les fluctuations de pression à l'intérieur de la cavité, c'est-à-dire dans le fluide (la fréquence de résonance du capteur est 160 kHz). Le signal de pression, conditionné par un amplificateur de charge (Kistler 5011B), est traité par un analyseur de spectre (HP 3589A). Une sonde de température (résistance de platine PT100)

1. La cellule a été fabriquée et remplie, à $\pm 0.2\%$ de la densité critique, par Y. Garrabos, de l'Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux.

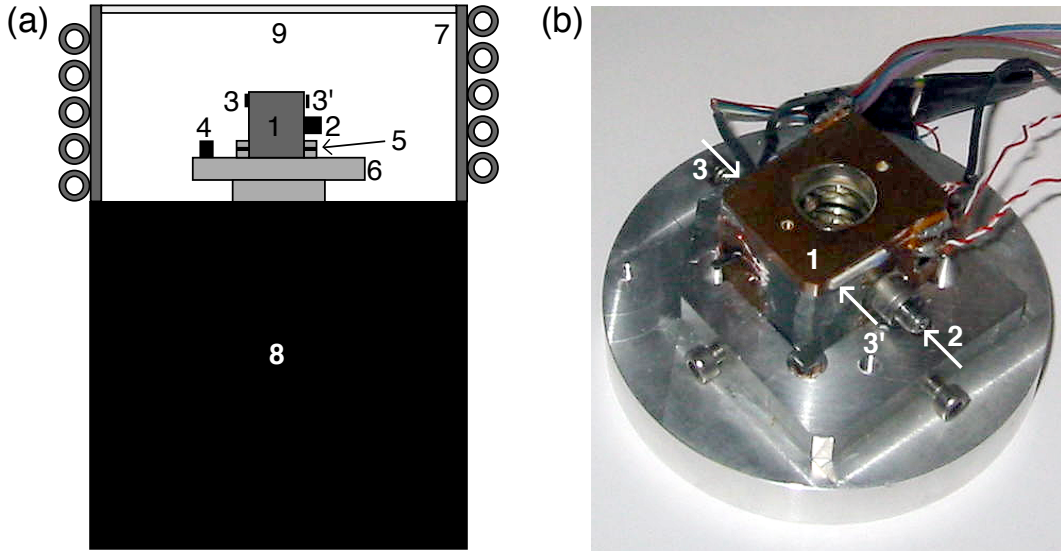


FIG. 5.3 – (a) Schéma du dispositif expérimental: (1) cellule en cuivre contenant le CO_2 , (2) capteur de pression, (3-3') thermorésistances de platine, (4) accéléromètre piézoélectrique, (5) vis de fixation de la cellule, (6) socle en duralumin, (7) tube en cuivre et circulation d'eau, (8) exciteur électromécanique de vibrations, et (9) couvercle en verre. (b) Photographie de la cellule fixée sur le socle. Lors des expériences présentées dans ce chapitre, nous n'avons utilisé que la thermorésistance (3).

est fixée sur la cellule. Un montage à quatre fils permet de mesurer la résistance de la sonde, et donc la température, avec un multimètre (Keithley 2010). La cellule est fixée à l'aide de quatre vis à un socle circulaire en Duralumin. De son côté, le socle est fixé sur un vibreur électromécanique (BK 4808). Celui-ci est alimenté par un signal électrique engendré par l'analyseur de spectre et amplifié par un amplificateur de puissance (BK 2712). La réponse de l'ensemble du système (socle + cellule) est mesurée à l'aide d'un accéléromètre piézoélectrique (BK 4393V). Comme le montre la figure 5.3a, un tube de cuivre de 10 cm de haut, 20 cm de diamètre intérieur et 4 mm d'épaisseur, sur lequel un serpentín de cuivre est soudé, est ajusté sur le vibreur. Un bain de régulation thermique (MGW Lauda RCS6) assure une circulation d'eau régulée à ± 0.1 °C, ce qui nous permet de contrôler la température à l'intérieur du volume délimité par le tube renfermant la cellule.

L'expérience consiste à chauffer la cellule au delà de T_c , typiquement jusqu'environ 33 °C. Ensuite, nous laissons refroidir le système de façon «naturelle», c'est-à-dire par diffusion de chaleur vers l'extérieur. Ainsi, la vitesse de refroidissement de la cellule est approximativement 0.05 °C/min. Nous réalisons les enregistrements des résonances acoustiques de la cavité via la mesure de pression, en fonction de la température, soit tous les dixièmes ou les vingtièmes de degré. L'analyseur de spectre est utilisé à cet effet en mode de balayage de fréquence. La source de l'analyseur a donc une tension constante mais sa fréquence varie; typiquement, le spectre est centré autour de la fréquence de résonance

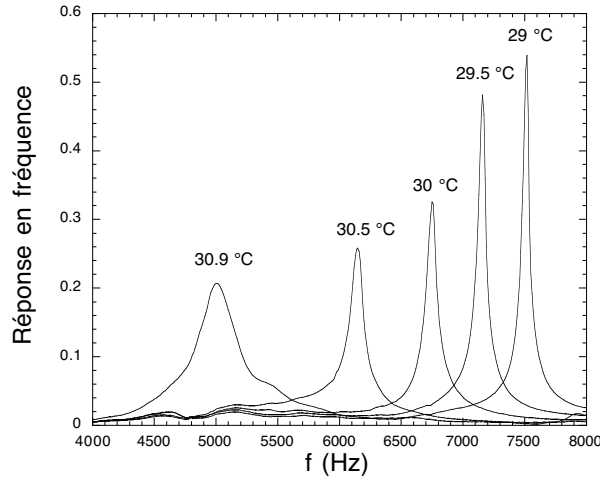


FIG. 5.4 – Courbes de réponse en fréquence de la pression acoustique (dans le voisinage de la fréquence de résonance fondamentale). La température diminue de gauche à droite, entre $T \approx 30.9\text{ °C} \lesssim T_c$ et $T \approx 29\text{ °C} < T_c$.

fondamentale de la cavité, i.e. autour de 5 – 6 kHz, avec une fenêtre de quelques kHz (un balayage en fréquence prend environ 1 s). Plus précisément, la courbe de résonance, ou la courbe de réponse en fréquence, est obtenue à l'aide de l'analyseur en mesurant le rapport entre l'amplitude du signal de pression et l'amplitude de la source à mesure que la fréquence varie, et en faisant une moyenne sur environ cinq balayages de fréquence.

5.2.2 Résultats expérimentaux

Nous allons tout d'abord exposer des résultats obtenus dans le régime de l'acoustique linéaire. Concernant les résonances de notre cavité, ceci veut dire que la réponse en fréquence varie de manière linéaire avec l'amplitude d'excitation. Nous remarquons que cette étude reste qualitative. Notre but est simplement de retrouver les caractéristiques générales de l'acoustique linéaire au voisinage du point critique de CO_2 , afin de mettre en évidence par la suite l'amplification des non-linéarités du milieu près du point critique (voir le paragraphe suivant).

Effet de la température sur les résonances

La figure 5.4 montre cinq courbes de réponse en fréquence obtenues à des températures différentes. Nous observons que près de T_c , c'est-à-dire pour la première courbe de gauche, l'amplitude de la résonance est faible et sa largeur est importante, ce qui est caractéristique d'une forte dissipation du mode acoustique. La résonance est aussi décalée vers les basses fréquences, ce qui indique que la vitesse du son est plus faible autour de T_c . À mesure que la température diminue, les résonances se décalent vers les hautes fréquences en devenant de plus en plus étroites. Donc, en s'éloignant de T_c , la vitesse du son augmente et la dissipation diminue. Nous remarquons que le même comportement est observé de l'autre côté de T_c ,

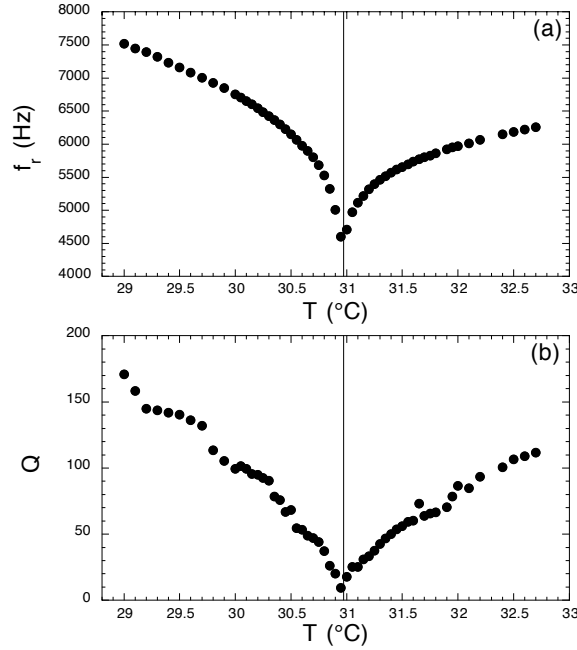


FIG. 5.5 – Fréquence de résonance f_r (a) et facteur de qualité Q (b) en fonction de T . Pour $T > T_c$ le fluide est dans l'état supercritique (monophasique) ; au contraire, pour $T < T_c$, le fluide est séparé en deux phases, liquide et vapeur. Dans cette figure et les suivantes, les lignes verticales montrent la valeur attendue $T_c \approx 30.98$ $^{\circ}\text{C}$.

i.e. dans la phase supercritique. Par contre, pour $T < T_c$, les deux phases liquide et vapeur coexistent dans la cavité. Les courbes de cette figure correspondent donc aux résonances acoustiques d'un système diphasique, où chaque phase a une densité et une vitesse du son différente. Pourtant, «suffisamment» près de T_c les deux phases se ressemblent ; en fait nous allons préciser par la suite ce que nous voulons dire par «suffisamment» près de T_c . Le fait que les fluides critiques présentent un fort amortissement du son et une réduction de la vitesse du son dans le voisinage du point critique est bien établi dans la littérature [109, 110].

A partir de ces courbes nous définissons la fréquence de résonance f_r comme la fréquence à laquelle la réponse est maximale ; nous définissons aussi le facteur de qualité de la résonance $Q = \Delta f_r / f_r$, où Δf_r est la largeur à mi-hauteur du carré de la courbe de réponse, c'est-à-dire c'est la largeur à mi-hauteur de la courbe de réponse en fréquence de la puissance acoustique. La figure 5.5 montre le comportement de f_r et de Q en fonction de T . Comme nous venons de le discuter, ces deux quantités varient significativement à mesure que l'on s'approche de T_c . Par exemple, du côté supercritique, Q varie de 110 à 10 entre $T \approx 32.6$ $^{\circ}\text{C}$ et $T \approx T_c$, soit approximativement d'un facteur 10, tandis que f_r diminue de 25% entre les mêmes températures. Enfin, l'accord des deux minima de f_r et Q autour de $T \approx T_c \approx 30.98$ $^{\circ}\text{C}$ confirme que le remplissage de la cellule a été effectué très près de la densité critique.

Mode acoustique et vitesse du son

Le problème des résonances d'une cavité acoustique est discuté en détail dans la littérature, en particulier la version «simple» d'un fluide homogène dans une cavité de parois rigides [117], i.e. telles que la vitesse (acoustique) s'y annule exactement. L'étude de ces résonances a déjà été utilisée pour mesurer la vitesse, la dispersion et l'absorption du son dans plusieurs systèmes liquide-vapeur au voisinage du point critique, à savoir CO₂ [118, 119, 120], He⁴ [121] et le Xenon [122, 123, 124, 125]. En effet, dans la plupart de ces travaux on utilise l'approximation des parois rigides.

Concernant notre expérience, cette approximation semble raisonnable puisque le rapport des impédances acoustiques $[\rho c]_{\text{CO}_2}/[\rho c]_{\text{Cu}}$ varie entre 1×10^{-3} et 3×10^{-3} dans la gamme de températures explorée. Dans cette approximation, la pression acoustique du mode (l, m, n) , où l , m et n sont des nombres entiers, s'exprime en coordonnées cylindriques sous la forme

$$p_{lmn} = A_{lmn} J_m(k_{mn}r) \cos(m\theta + \gamma_{lmn}) \cos(k_{zl}) e^{i\omega_{lmn}t}, \quad (5.16)$$

où les fréquences de résonance sont données par

$$\omega_{lmn} = c \sqrt{k_{mn}^2 + k_{zl}^2}. \quad (5.17)$$

Les conditions aux limites rigides impliquent que la vitesse s'annule en $r = R$, $z = 0$ et $z = L$, où R est le rayon de la cavité et L sa hauteur, ce qui revient à maximiser la pression aux bords de la cavité. Il en résulte donc

$$k_{zl}L = l\pi \quad \text{et} \quad k_{mn}R = j'_{mn}, \quad (5.18)$$

où j'_{mn} est le n -ème extremum de la fonction de Bessel du premier type d'ordre m . Le mode fondamental dépend donc de la géométrie d'une cavité donnée, mais dans tous les cas il s'agit soit d'un mode vertical pur soit d'un mode radial pur. Pour notre cavité, il s'agit d'un mode radial pur car

$$f_{100} = \frac{c}{2L} \approx 50c [\text{Hz}] > f_{001} = \frac{j'_{01}}{2\pi R} \approx 10.16c [\text{Hz}],$$

où c est en m/s. Néanmoins, le mode fondamental *observable* dépend de la forme de l'excitation imposée au système. Dans notre cas, la cellule est vibrée verticalement, et nous nous attendons à exciter principalement des modes verticaux, sans dépendance radiale ni angulaire². Nous attendons donc comme fréquence fondamentale *observable* $f_0 = f_{100} = c/2L$; une demi-longueur d'onde correspond à la hauteur de la cellule, $\lambda_0 = c/f_0 = 2L \approx 2$ cm. Évidemment, on ne peut appliquer ce résultat que pour l'état supercritique, lorsqu'il n'y a qu'une seule phase et que le fluide est homogène.

2. En fait, de faibles imperfections géométriques et le fait que l'excitation ne soit pas parfaitement verticale suffisent pour transférer une partie de l'énergie acoustique vers les modes radiaux et angulaires. Dans notre cellule, le capteur de pression brise en effet la symétrie axiale et on peut le considérer comme un défaut de la cellule

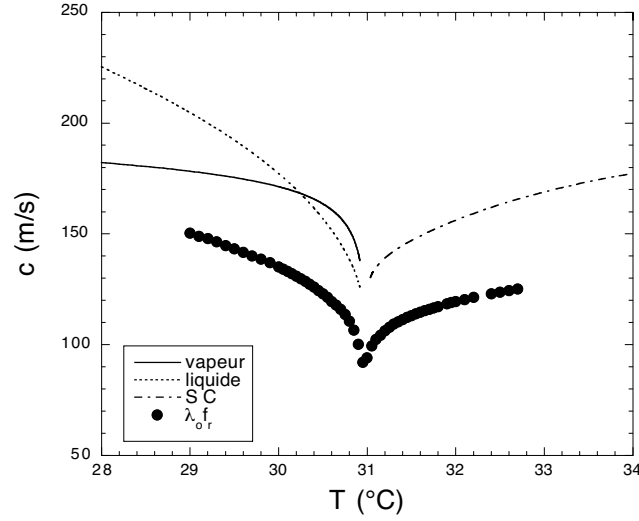


FIG. 5.6 – $\lambda_o f_r$ en fonction de la température, où $\lambda_o = 2$ cm est la longueur d'onde du mode vertical attendu. Les courbes représentent la vitesse du son isentropique dans CO_2 pour chaque phase [116].

Donc, à partir de nos mesures de f_r , nous pouvons calculer une vitesse $\lambda_o f_r$, avec $\lambda_o = 2$ cm. Or, si le mode acoustique est bien celui décrit par l'approximation des parois rigides, on peut s'attendre que le long de la branche supercritique, cette vitesse soit la vitesse du son dans CO_2 . Comme nous l'avons déjà dit, l'équation d'état de CO_2 est maintenant bien établi [114, 115], et les propriétés de ce gaz, la vitesse du son isentropique entre autres, sont facilement accessibles dans des bases de données [116].

La vitesse $\lambda_o f_r$ est représentée en fonction de la température dans la figure 5.6, pour toute la gamme des températures explorée, même si pour $T < T_c$ nous savons que l'analyse effectuée pour un milieu homogène n'est pas valide. Nous présentons aussi, pour chaque phase, les valeurs tabulées de la vitesse du son isentropique de CO_2 [116]. La différence entre $\lambda_o f_r$ et les valeurs tabulées est claire, l'ordre de grandeur étant néanmoins correct. Nous observons aussi que $\lambda_o f_r$ a bien la forme de la courbe attendue, avec un minimum autour de T_c . Nous pouvons donc conclure que le mode fondamental excité n'est pas celui donné par l'approximation des parois rigides. Pour quantifier ceci, nous présentons dans la figure 5.7 les valeurs calculées de la longueur $\Lambda = c_{sc}/f_r$ pour $T > T_c$, où c_{sc} est la vitesse du son isentropique le long de l'isochore critique. Cette longueur ne présente pas un comportement «particulier» en fonction de T ni dans le voisinage proche de T_c . Nous trouvons que cette quantité varie autour d'une valeur moyenne $\langle \Lambda \rangle = 2.61$ cm, avec un écart-type de 0.02 cm ($\approx 0.8\%$). Nous observons donc que $\langle \Lambda \rangle$ est supérieur à λ_o , d'environ 31%, et donc la vitesse $\lambda_o f_r$ est inférieure à la vitesse isentropique d'un facteur à peu près constant de 31%.

Il existe plusieurs effets physiques qui peuvent expliquer une différence entre la vitesse mesurée $\lambda_o f_r$ et la vitesse du son isentropique dans CO_2 :

- (1) Effet de la gravité sur la densité du fluide. Au voisinage du point critique

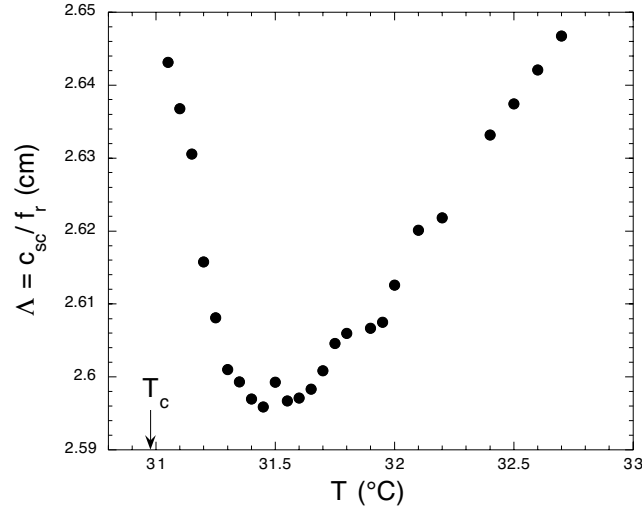


FIG. 5.7 – Longueur $\Lambda = c_{sc}/f_r$ pour la branche supercritique (SC), où c_{sc} est la vitesse du son isentropique tabulée [116]; nous trouvons $\langle \Lambda \rangle = 2.61 \pm 0.02$ cm.

la compressibilité isotherme du fluide diverge, et donc, la gravité induit des gradients importants de densité. Le milieu n'est plus homogène et la fréquence de résonance n'est plus donnée par l'équation (5.17).

- (2) La dispersion du son, c'est-à-dire la dépendance en ω de la vitesse du son. A mesure que l'on explore des échelles de longueur plus petites, on s'attend à ce que l'onde soit plus affectée par les fluctuations critiques du fluide, lesquelles sont plus importantes près du point critique; donc, la propagation du son est plus dispersive près du point critique.
- (3) L'effet de l'absorption sur la vitesse du son. Dans le cas d'une cavité cylindrique cet effet a été étudié en détail [126]: la relation de dispersion est modifiée et la vitesse du son diminue à cause de l'absorption sur les parois de la cavité. On peut dire que l'onde est «freinée» en raison de la dissipation aux bords. On s'attend donc à ce que la vitesse du son soit réduite autour de T_c par rapport à sa valeur isentropique.
- (4) Le couplage mécanique du fluide avec le vibreur, ou avec le générateur du son en général.

Nous remarquons que les trois premiers effets sont plutôt importants dans le voisinage du point critique, ce qui n'est pas forcément le cas du dernier. Par ailleurs, il a été bien établi que les effets de la gravité et de la dispersion augmentent la vitesse du son par rapport à sa valeur isentropique [109, 121, 122, 124], ce qui va dans le sens contraire à ce que nous observons. De plus, pour des fréquences de l'ordre de 1 – 10 kHz, ce qui est le cas de notre étude, il est admis que la vitesse du son ainsi mesurée est bien la vitesse isentropique [125], les effets de dispersion étant importants à ce degré de proximité du point critique que pour des fréquences plus élevées. Concernant la modification de la relation de dispersion en raison de l'absorption, il a été montré [126] que la vitesse du son

dépend du paramètre l_{diss}/R et, que l'on a au premier ordre

$$c = c_o \left(1 - \frac{l_{\text{diss}}}{R} \right), \quad (5.19)$$

où c_o est la vitesse isentropique, $l_{\text{diss}} = l_v + (\gamma - 1)l_t$ est une longueur de dissipation acoustique, l_v (resp. l_t) étant l'épaisseur de la couche limite visqueuse (resp. thermique) et $\gamma = C_P/C_V$, le rapport de capacités calorifiques. A l'aide des données de la littérature nous avons estimé que l_{diss}/R est de l'ordre de 1×10^{-3} loin de T_c , i.e. pour $T \approx T_c \pm 3$ °C, augmentant jusqu'à $\approx 1 \times 10^{-2}$ près de T_c (pour $\tau = |T - T_c|/T_c \approx 1 \times 10^{-4}$). Cette correction à la vitesse du son reste donc très faible. Enfin, il faut noter aussi que dans notre expérience, Λ ne varie pas significativement près de T_c .

Tous ces arguments nous font penser que les trois premiers effets ne sont pas responsables de la différence trouvée entre $\lambda_o f_r$ et la vitesse du son dans CO₂. Nous concluons donc que la seule explication possible est celle du couplage mécanique du fluide avec le vibreur. Cet effet a été peu considéré dans les travaux précédents, mais, en effet, il a été précisément invoqué pour expliquer les différences entre les mesures de vitesse du son isentropique réalisées par différents groupes [122, 125] et il est introduit comme une correction à la condition au bord. Il faut noter que dans ces travaux les différences trouvées sont en général faibles, entre 1.5% [122, 125] et 5%³.

Il est bien connu que la solution exprimée par les équations (5.16), (5.17) et (5.18), c'est-à-dire avec des conditions aux limites rigides, est valide lorsque la masse et la rigidité du fluide sont négligeables par rapport à celles du système piston-vibreux (voir le chapitre 10.6 de la référence [117]), le piston étant dans notre cas la paroi de la cavité. Par exemple, dans la limite opposée, celle d'un système piston-vibreux très léger et très «flexible», le mode fondamental d'une cavité avec une seule paroi rigide, l'autre étant le piston, correspond à $\lambda_0 \approx 4L$. La condition au bord du piston n'est plus une condition rigide de vitesse nulle ; le fluide bouge avec le piston, celui-ci étant même un maximum de vitesse acoustique au lieu d'un zéro. Donc, en général, lorsque l'on excite un fluide avec un système mécanique, la condition au bord n'est pas tout à fait rigide, et les nombres d'onde sont décalés par rapport à $k_{zL}L = l\pi$; le mode fondamental peut donc avoir une longueur d'onde supérieure à $2L$. Le fait que dans notre expérience $\Lambda/2L \approx 1.31$ soit à peu près une constante, c'est-à-dire indépendante de T , est une bonne indication que cette explication est possible. Plus quantitativement, nous pouvons estimer le rapport de masse et de rigidité pour notre expérience. Ces quantités sont données par [117]

$$\frac{\text{masse vibrée}}{\text{masse du fluide}} \equiv a = \frac{m}{\rho SL}, \quad (5.20)$$

$$\frac{\text{rigidité du vibreur}}{\text{rigidité du fluide}} \equiv b = \frac{KL}{S\rho c^2}, \quad (5.21)$$

où $m = 0.4$ kg est la masse totale vibrée (du vibreur plus la cellule), $K = 5.6 \times 10^3$ N/m est la raideur du vibreur (donnée par le constructeur), $S = \pi R^2$, et ρ et c sont la densité

3. Nous avons estimé cette valeur en comparant la valeur donnée dans la référence [120], pour $T = 32.5$ °C et $\rho = 467$ kg/m³ $\approx \rho_c$, avec la valeur tabulée.

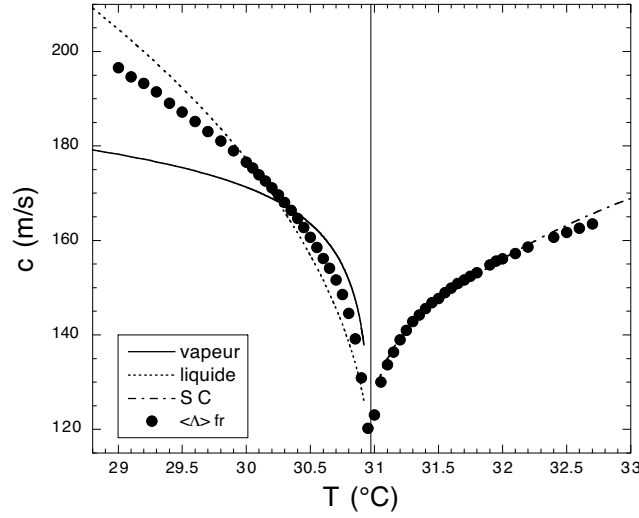


FIG. 5.8 – Vitesse du son dans les trois «phases» de CO_2 : vapeur, liquide et supercritique. Les points correspondent aux valeurs de vitesse $\langle \Lambda \rangle f_r$, où $\langle \Lambda \rangle$ est la moyenne des valeurs présentées dans la figure 5.7.

et la vitesse du son du fluide. En considérant le fluide comme homogène, de densité ρ_c , nous trouvons $a \approx 756 \gg 1$; par contre, $b \ll 1$, variant entre 6×10^{-3} et 3×10^{-3} pour $T \approx T_c$ et $T \approx 34$ °C. Notre fluide est donc très léger et très rigide par rapport au vibreur, une limite assez particulière.

L'approximation des parois rigides n'est pas donc une si bonne approximation, même si elle donne le bon ordre de grandeur de la longueur d'onde du mode acoustique excité. Une modélisation plus détaillée est nécessaire pour utiliser les valeurs mesurées de f_r afin de mesurer précisément la vitesse du son. Nous remarquons que le facteur 1.31 trouvé entre la longueur d'onde acoustique réelle Λ et la longueur d'onde attendue λ_o , est assez important par rapport aux différences trouvées précédemment entre les valeurs mesurées de la vitesse du son [122, 125], qui sont de l'ordre de 1.5% – 5% comme nous l'avons déjà remarqué. Ceci est probablement dû au fait que dans ces expériences on a utilisé des céramiques piézo-électriques comme transducteurs acoustiques. Ces céramiques sont très rigides par rapport à notre vibreur électromécanique, et donc l'effet de couplage transducteur-fluide est moins important. En effet, pour ce type de transducteurs, le paramètre b est de l'ordre de 1×10^3 dans la gamme de températures explorée ; la rigidité de la paroi formée par une céramique est donc beaucoup plus grande que celle du fluide. Bref, lors des expériences précédentes, les corrections à la condition aux bords sont plus faibles parce que la condition des parois rigides est plus exacte.

Enfin, avec la valeur de $\langle \Lambda \rangle$ obtenue pour $T > T_c$, nous pouvons calculer une nouvelle vitesse $\langle \Lambda \rangle f_r$. Cette quantité est représentée pour toute la gamme de température explorée dans la figure 5.8, où nous avons également tracé les données tabulées de la vitesse du son isentropique. Un résultat intéressant est que dans la gamme 30.3 °C $< T < T_c$, la vitesse du son ainsi calculée est bien une «moyenne» des deux vitesses du son dans les

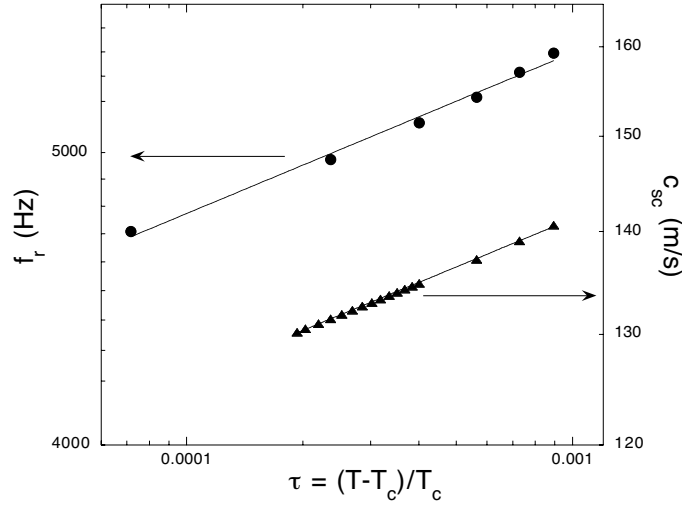


FIG. 5.9 – *Exposants critiques : f_r (•) et c_{sc} (▲) en fonction de la température réduite $\tau = (T - T_c)/T_c$, en se limitant à $\tau < 0.001$ (τ a été calculé avec la température exprimée en °K). Les lignes montrent des ajustements par des lois de puissance $[(T - T_c)/T_c]^b$. Nous trouvons $b \approx 0.053$ et $b \approx 0.050$ pour f_r et c_{sc} respectivement. Pour une gamme plus étendue de τ , à savoir $\tau < 0.002$, des ajustements similaires donnent $b \approx 0.073$ et $b \approx 0.055$ respectivement.*

phases vapeur et liquide, ce qui indique que ces phases ont des propriétés acoustiques très proches. En fait, on peut facilement calculer l'impédance acoustique de chaque phase [116] ; nous trouvons que dans la gamme de température explorée, le rapport d'impédances $[\rho c]_{\text{liq}}/[\rho c]_{\text{vap}}$ ne dépasse pas 2.2. Ainsi, pour $T \approx 30.3$ °C, ce rapport vaut 1.6 et converge vers 1 à mesure que l'on s'approche de T_c . Du point de vue acoustique, l'interface liquide-vapeur est donc une interface assez faible.

Exposant critique de C_V

Pour finir, il est intéressant de montrer que nous pouvons utiliser les valeurs des fréquences de résonance pour estimer l'exposant critique de la capacité calorifique à volume constant, C_V . Nous rappelons que cet exposant est en principe universel, dans le sens qu'il doit être le même pour tous les systèmes liquide-vapeur.

La figure 5.9 montre f_r et c_{sc} en fonction de $\tau = (T - T_c)/T_c$ en échelle log₁₀-log₁₀, en se limitant à $0 < \tau < 0.001$. Les deux quantités suivent des lois de puissance, i.e. $\propto \tau^b$, et nous avons ajusté ces données obtenant $b \approx 0.053$ et 0.050 respectivement. Nous pouvons comparer ces exposants à la valeur «théorique» de l'exposant critique de C_V . En effet, il est facile de montrer que la vitesse du son tend asymptotiquement vers zéro près de T_c comme

$$c = \sqrt{\frac{1}{\rho_c \chi_S}} \propto \sqrt{\frac{C_P}{C_V \chi_T}} \propto \sqrt{\frac{1}{C_V}} \propto \sqrt{\tau^\alpha}, \quad (5.22)$$

α étant l'exposant critique de C_V . Nous remarquons que dans cette estimation nous avons utilisé $C_P \propto \chi_T$ pour $T \rightarrow T_c$. Des travaux précédents rapportent $\alpha = 0.1085$ [114]. De notre côté, nous l'avons estimé à partir des données du NIST pour la capacité calorifique à volume constant de CO_2 [116] : nous avons trouvé plutôt $\alpha \approx 0.0955$. Donc, l'exposant critique attendu pour la vitesse du son isentropique varie entre 0.05425 et 0.04775. Les exposants que nous avons calculé pour f_r et c_{sc} sont en bon accord avec cette estimation. Enfin, nous avons aussi fait des ajustements par des lois de puissance pour une gamme plus étendue de τ , à savoir $0 < \tau < 0.002$, et nous avons obtenu $b \approx 0.073$ et $b \approx 0.055$, pour f_r et c_{sc} respectivement. L'accord est moins satisfaisant, sûrement à cause de la contribution des termes non-critiques des quantités thermodynamiques que déterminent la vitesse du son.

Remarquons enfin qu'en pratique c ne tend pas vers zéro pour $T \approx T_c$ dans les expériences, mais présente toujours un minimum fini au point critique. L'exposant $\alpha/2$ est si petit qu'il est probable qu'on ne soit jamais suffisamment «près» du point critique pour mesurer une vitesse nulle. A ce jour cette question semble encore ouverte.

5.2.3 Conclusions

Sans une modélisation précise du mode acoustique et du couplage avec le vibreur, nous ne pouvons pas utiliser les mesures de fréquence de résonance pour en déduire la vitesse et l'absorption du son dans CO_2 près de T_c . Néanmoins, nous avons montré expérimentalement quelques aspects assez intéressants de l'acoustique linéaire au voisinage du point critique, à savoir, la diminution de la vitesse du son et l'augmentation de l'amortissement acoustique autour de T_c et la possibilité d'utiliser ces mesures pour obtenir un exposant critique du fluide.

5.3 Mise en évidence de la non-linéarité du milieu

Nous allons maintenant montrer le caractère non-linéaire de l'acoustique au voisinage de point critique de CO_2 en présentant des résultats obtenus pour deux expériences différentes.

La première expérience a été réalisée avec le montage décrit dans le paragraphe précédent. Il s'agit de l'étude des résonances non-linéaires dans notre cellule de CO_2 . En particulier, nous montrons que au delà d'un seuil d'excitation, les courbes de réponse en fréquence du mode fondamental sont décalées par rapport à la courbe de la résonance linéaire, le décalage étant vers les basses fréquences. De plus, nous observons que ce décalage est maximisé lorsque l'on s'approche du point critique.

La deuxième expérience consiste à faire interagir deux ondes acoustiques dans notre cellule. Lorsque deux ondes de «haute» fréquence $f_1 \approx f_2 \sim O(100 \text{ kHz})$ interagissent, nous observons une troisième onde acoustique, de fréquence $\Delta f = f_2 - f_1 \sim O(5 \text{ kHz})$. Nous montrons que l'amplitude de cette onde passe également par un maximum au voisinage du point critique.

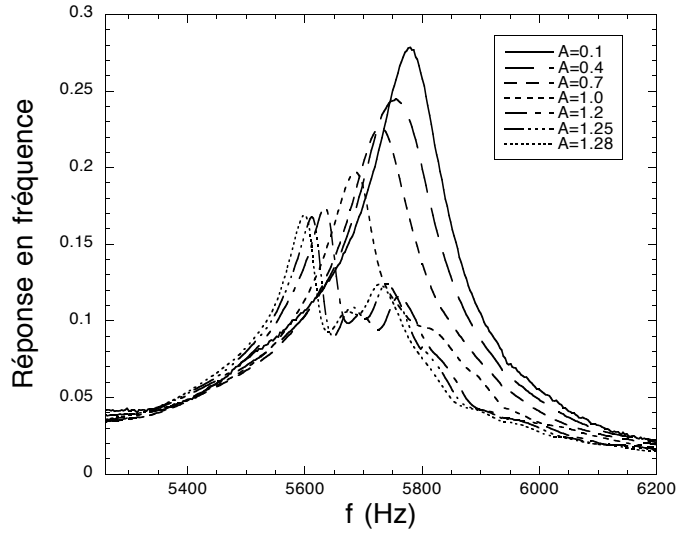


FIG. 5.10 – Réponse en fréquence du mode fondamental pour différentes amplitudes d'excitation A (en V_{rms}) et $T \approx 31.5^\circ \text{C}$. La réponse est linéaire jusqu'à $A \approx 0.2$; au delà, la courbe de résonance est décalée vers les basses fréquences et son amplitude augmente plus lentement qu'une loi linéaire. Les résonances non-linéaires présentent aussi des oscillations, qui ressemblent aux effets de mémoire présents dans des oscillateurs non-linéaires dont le forçage est sinusoïdal avec une fréquence lentement variable [127].

5.3.1 Résonances non-linéaires

Observations expérimentales

Nous avons étudié l'évolution de la courbe de résonance du mode fondamental en fonction de l'amplitude d'excitation, pour une température constante $T \approx 31.5^\circ \text{C} > T_c$, telle que le fluide soit dans la phase supercritique. La figure 5.10 montre l'évolution de la courbe de réponse en fréquence à mesure que l'on augmente l'amplitude d'excitation A . (Les valeurs indiquées correspondent à la tension de la source de l'analyseur de spectre, en V_{rms} , et non à l'amplitude d'oscillation). En fait, de façon qualitative, seules les valeurs relatives de A sont importantes pour notre analyse⁴. Nous rappelons que ces courbes correspondent au rapport entre la pression acoustique à une fréquence donnée et A . Nous présentons donc dans cette figure des courbes correspondant à sept valeurs de A , depuis le régime linéaire, $A \sim 0.1$, jusqu'au régime fortement non-linéaire, $A \sim 1$, le comportement restant linéaire jusqu'à $A \approx 0.2$.

Nous observons qu'au fur et à mesure que l'on augmente l'amplitude de l'excitation, la courbe de résonance devient de plus en plus asymétrique. La courbe de résonance du

4. Dans cette gamme de fréquence la réponse du vibreur est constante en accélération et la vitesse varie comme A/f . Néanmoins, la gamme de fréquence explorée est assez réduite et, par conséquent, la vitesse d'oscillation varie peu sur une courbe de résonance, d'environ 7% entre 5.6 et 6 kHz.

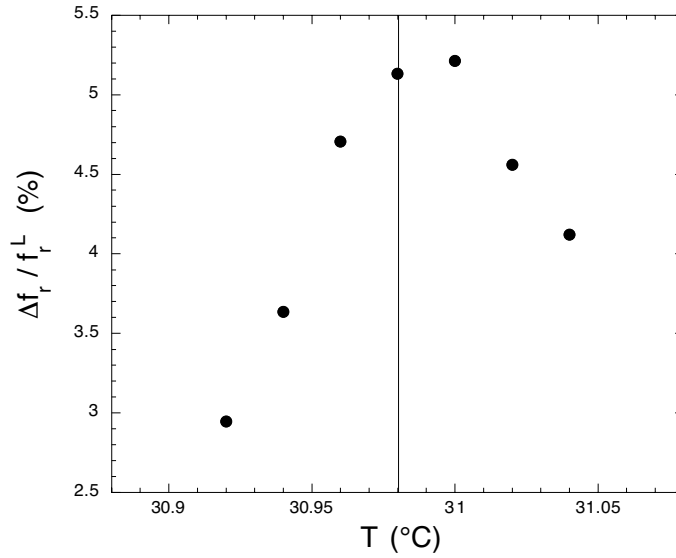


FIG. 5.11 – Différence en fréquence relative $\Delta f_r / f_r^L = (f_r^L - f_r^{NL}) / f_r^L$ en fonction de T (les valeurs sont présentées en pourcentage). Lors des expériences, la courbe de résonance linéaire (resp. non-linéaire) a été obtenue avec une amplitude d'excitation de $A = 0.1$ (resp. $A = 1$).

mode fondamental est ainsi décalée vers les basses fréquences. Nous observons aussi que le rapport $P_{\max}/A$, où $P_{\max}$ est l'amplitude maximale de pression, diminue avec A ; donc, l'amplitude de la résonance augmente plus lentement qu'une loi linéaire en A . De plus, nous observons des oscillations en fréquence sur ces courbes, lesquelles augmentent en amplitude lorsque l'on augmente A . Nous n'avons pas étudié ce phénomène en détail, mais on peut noter que ces oscillations ressemblent aux effets de mémoire présents dans des oscillateurs non-linéaires dont le forçage est sinusoïdal avec une fréquence lentement variable [127]. Ceci semble indiquer que le balayage en fréquence dans notre expérience n'est pas tout à fait quasi-statique.

Un aspect intéressant est l'importance relative des effets non-linéaires en fonction de la distance au point critique. Pour étudier ceci nous avons réalisé des expériences en gardant l'amplitude d'excitation constante mais en variant la température autour de T_c . La figure 5.11 montre la différence en fréquence relative $\Delta f_r / f_r^L = (f_r^L - f_r^{NL}) / f_r^L$ en fonction de T . Dans cette figure, f_r^L (resp. f_r^{NL}) est la fréquence de résonance «linéaire» (resp. «non-linéaire»), c'est-à-dire la fréquence à laquelle la courbe de réponse en fréquence linéaire (resp. non-linéaire) est maximale. Lors des expériences, ces deux courbes de résonance ont été obtenues avec des amplitudes d'excitation $A = 0.1$ et $A = 1$ respectivement. Le résultat est assez clair : pour une amplitude de vibration constante, le décalage de la résonance non-linéaire est maximum lorsque $T \approx T_c$. Nous concluons donc que les effets non-linéaires sont plus importants autour du point critique.

Discussion

Le décalage de la courbe de résonance d'un oscillateur non-linéaire a été étudié en détail dans la théorie générale des oscillateurs non-linéaires [127]. Dans les cas où l'on peut réduire le problème à un seul degré de liberté, on sait que le sens du décalage dépend du signe de la non-linéarité. Par contre, très peu d'études ont été réalisées en acoustique. Quelques expériences ont été réalisées dans les années 1970 [128, 129, 130] et ce n'est que récemment que ce problème a été étudié de manière théorique [131, 132] et que des expériences plus performantes ont été réalisées [133].

Dans notre expérience, le décalage du mode fondamental acoustique est bien vers les basses fréquences. Un argument simple et général est le suivant : le sens du décalage dépend de la variation de la vitesse du son avec la pression acoustique. Ainsi, si la vitesse diminue avec la pression et si nous augmentons l'amplitude des ondes stationnaires dans la cavité, alors la vitesse du son diminue et, par conséquent, la fréquence de résonance de la cavité aussi. Ceci expliquerait un décalage de la courbe de résonance vers les basses fréquences. Cependant, cet argument semble être en conflit avec la définition même du coefficient non-linéaire acoustique B/A . Comme nous l'avons discuté dans le chapitre 3, le coefficient B/A est précisément défini comme

$$\frac{B}{A} = 2\rho c \left(\frac{\partial c}{\partial P} \right)_s. \quad (5.23)$$

Donc, si à entropie constant, la vitesse du son diminue avec la pression, alors le paramètre B/A est négatif. Ceci semble paradoxal car pour la plupart des fluides «normaux», $B/A > 0$. Pourtant, on a proposé l'existence de fluides avec un coefficient non-linéaire négatif, précisément dans le voisinage du point critique [134, 135]. Ces travaux ont en effet montré l'existence de ce type de fluides en calculant B/A à l'aide des équations d'état disponibles à l'époque. Par ailleurs, cette possibilité a été proposée déjà en 1946 par Zel'dovich, en se basant sur l'équation de van der Waals (voir [135]). La confirmation expérimentale a été obtenue en étudiant les ondes de choc de raréfaction [136, 137, 138, 139], qui sont instables pour un fluide normal. Plus récemment, on a montré l'auto-focalisation du second son dans l'Hélium superfluide près du point lambda, i.e. près de la transition superfluide à $T \approx T_\lambda$ [140]. En fait, il est bien établi maintenant que le coefficient non-linéaire de l'Hélium devient négatif et de très grande amplitude lorsque $T \rightarrow T_\lambda$ [141, 140], alors qu'il est positif loin de T_λ .

Concernant nos résultats expérimentaux, le fait que les effets non-linéaires soient maximisés autour de T_c semble être en bon accord avec ces travaux précédents. Cependant, nous ne pouvons pas vraiment conclure que B/A est négatif près du point critique de CO_2 . Une raison est que la dérivée de l'équation (5.23) est définie à entropie constante, ce que nous ne contrôlons pas lors des expériences. Au contraire, à mesure que l'on augmente A , la dissipation augmente et donc également la température dans la cellule, ce qui augmente l'entropie du système⁵. Il faut aussi prendre en compte cette augmentation de température, car pour un gaz ordinaire, décrit par la loi du gaz parfait par exemple,

5. On peut en effet écrire les variables thermodynamiques en fonction du volume spécifique

la vitesse du son augmente avec la température ce qui ferait augmenter la fréquence de résonance [133]. Par ailleurs, des études récentes ont montré que le décalage de la courbe de résonance dépend fortement de la géométrie de la cavité [131, 132, 133]; par exemple, pour un même fluide, le décalage est vers les hautes fréquences pour une cavité en forme de cône et il est vers les basses fréquences pour une cavité en forme d'ampoule. Plus précisément, les caractéristiques non-linéaires d'une cavité dépendent de sa «dissonance», c'est-à-dire de l'accord ou non des harmoniques du mode fondamental avec les modes supérieurs de la cavité [133].

Nous allons finir cette discussion avec un commentaire sur la dissipation. Nous avons observé que dans le régime non-linéaire le rapport $P_{\max}/A$ diminue avec A . Par définition, dans le régime linéaire $P_{\max} \propto A$, étant donné que l'amplitude de la vitesse des oscillations à la résonance, v_o , est proportionnelle à A . Ceci est dû au mécanisme de saturation de la résonance, à savoir la dissipation visqueuse et thermique dans les couches limites sur les parois de la cavité. En effet, la puissance dissipée est proportionnelle à v_o^2 , et par conséquent $P_{\max} \propto A$. Par-contre, dans le régime non-linéaire on a un transfert d'énergie vers les hautes fréquences par la génération d'harmoniques et, donc, la dissipation est plus importante. Ceci expliquerait la diminution de $P_{\max}/A$ avec A .

5.3.2 Première étude du mélange d'ondes acoustiques

Description du montage

La figure 5.12 montre le dispositif expérimental utilisé. Deux transducteurs de contact (Panametrics X1020), de fréquence de résonance de l'ordre de 103 kHz, sont montés dans un tube de plexiglass de part et d'autre de la cellule. Chaque transducteur est alimenté par une des sorties d'un générateur de fonctions de deux voies (HP8904A), en mode sinusoïdal, les fréquences f_1 et f_2 ayant été choisies de manière symétrique autour de la résonance des transducteurs. Les ondes acoustiques sont donc émises dans la cellule en transmission par le cuivre. Même si le contraste d'impédance acoustique entre le cuivre et le CO_2 est important, les signaux acoustiques à l'intérieur de la cellule sont suffisamment puissants pour engendrer l'onde différence, c'est-à-dire une onde à une fréquence $\Delta f = f_1 - f_2$. Pour détecter les trois ondes en question, nous avons utilisé le même analyseur de spectre que lors des expériences de résonance (HP3589A), mais dans le mode de mesure de spectre de puissance.

Les mesures ont été réalisées de manière analogue à celles des expériences de résonance : la cellule est chauffée au delà de T_c et nous la laissons se refroidir de façon naturelle, par diffusion de chaleur vers l'extérieur. Nous avons aussi réalisé des moyennes sur les spectres obtenus pour une température donnée, cette procédure de moyenne étant rapide par rapport à la vitesse de refroidissement.

$v = 1/\rho$ et la température [135], au lieu de la densité et l'entropie. L'équation (5.23) a donc une forme plus compliquée, mais on peut identifier les termes qui dépendent des dérivées de T et ceux qui dépendent de dérivées de v (v est constant pour $T > T_c$).

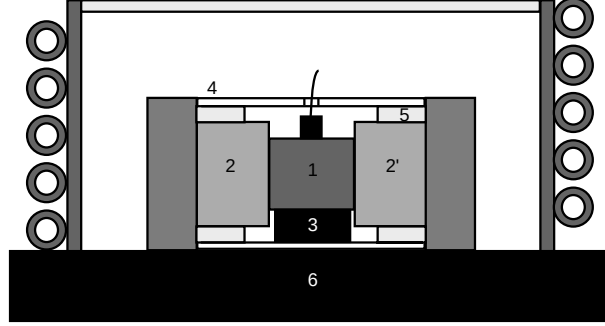


FIG. 5.12 – Schéma du dispositif expérimental: (1) cellule en cuivre contenant le CO_2 , (2-2') transducteurs de contact, (3) support de la cellule en mousse «perbunan», (4) tube en plexiglass, (5) anneau de fixation des transducteurs en PVC, et (6) couche de mousse «perbunan».

Résultats expérimentaux

La figure 5.13a montre un résultat typique de densité de puissance spectrale (DSP) obtenue par l'analyseur autour de 102 kHz et mesurée par le capteur de pression. Lors de cette mesure le fluide était dans l'état supercritique, la température étant à peu près constante $T \approx 32^\circ\text{C}$. Dans ce spectre, les fréquences correspondant aux deux ondes pompes sont clairement définies; dans ce cas $f_1 = 100\text{ kHz}$ et $f_2 = 105.5\text{ kHz}$, les amplitudes de pression étant du même ordre, $P_1 \approx P_2$. Ces fréquences correspondent aux longueurs d'onde de l'ordre de $\lambda_1 \approx \lambda_2 \approx 1.6\text{ mm}$, et, par conséquent, nous attendons que le mélange non-linéaire acoustique de volume soit important sur la longueur de la cellule et même largement dominant par rapport aux non-linéarités de surface (voir chapitre 4). La figure 5.13b présente la DPS dans le voisinage de $\Delta f = f_2 - f_1$; même si le spectre est nettement plus bruité que celui de la figure (a), celui-ci montre clairement la présence de l'onde mélange à $\Delta f = 5.5\text{ kHz}$, son amplitude P_m étant approximativement à 60 dB en dessous de P_1 et P_2 .

Nous avons ensuite fait des mesures du rapport P_m/P_1 en fonction de la température, au voisinage de la température critique, $29^\circ\text{C} < T < 32^\circ\text{C}$. Considérant nos résultats du paragraphe précédent, nous attendons que le mélange non-linéaire soit plus efficace autour de T_c . La figure 5.14 présente une série de mesures pour $\Delta f = f_1 - f_2 = 3, 5.5$ et 7 kHz . En fait, nous avons choisi ces fréquences de façon que la fréquence de l'onde mélange soit respectivement inférieure, de l'ordre de, et supérieure à la fréquence de résonance de la cavité (voir figure 5.5a). Le résultat est très clair pour les trois séries: l'onde «basse fréquence» engendrée par l'interaction des deux ondes de «haute fréquence» a en effet une amplitude relative plus importante pour $T \approx T_c$. Nous observons que ce résultat est indépendant de la longueur d'onde de l'onde basse fréquence, ce qui écarte la possibilité que le maximum observé soit dû à la résonance de la cavité. Nous confirmons donc que les effets non-linéaires augmentent dans le voisinage de T_c .

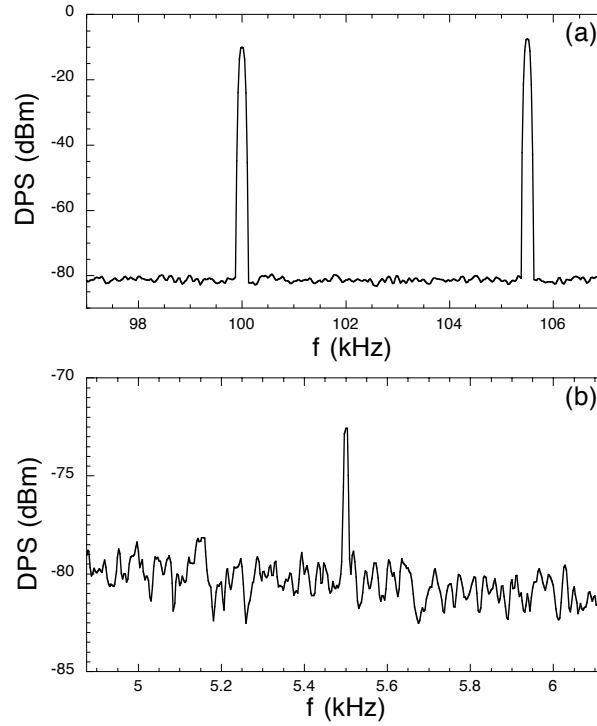


FIG. 5.13 – (a) Densité de puissance spectrale (DPS) des ondes pompes : $f_1 = 100$ kHz, $f_2 = 105.5$ kHz et $P_1 \approx P_2$. (b) DPS dans le voisinage de $\Delta f = f_2 - f_1$; le spectre montre la présence de l'onde mélange à 5.5 kHz. L'amplitude de cette onde, P_m , est approximativement à -60 dB de P_1 et P_2 . L'onde basse fréquence correspond à une longueur d'onde de l'ordre de 3 cm.

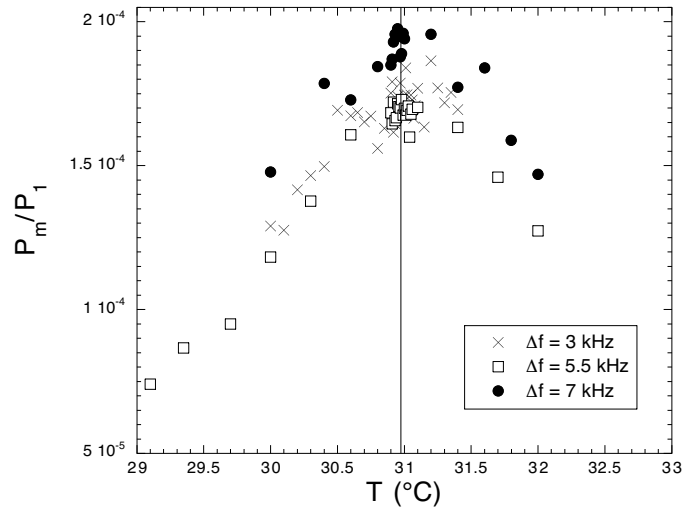


FIG. 5.14 – Amplitude relative P_m/P_1 en fonction de T pour $\Delta f = f_1 - f_2 = 3$ (x), 5.5 (□) et 7 (●) kHz.

5.3.3 Conclusions

Nous avons étudié deux phénomènes caractéristiques de l'acoustique non-linéaire, à savoir la résonance non-linéaire d'une cavité et l'interaction des ondes acoustiques. Dans la première expérience nous avons mesuré le décalage de la fréquence de résonance du mode fondamental de la cavité, en fonction de l'amplitude d'excitation et de la température. Nous avons trouvé que le décalage relatif est maximisé autour de T_c . Avec la deuxième configuration expérimentale nous avons montré que le mélange non-linéaire de deux ondes «haute fréquence» est également maximisé autour de la température critique. Ces deux études nous permettent de conclure que le coefficient des non-linéarités acoustiques de CO₂ passe par un maximum autour de T_c . Par contre, nous ne pouvons rien conclure au sujet du signe de la non-linéarité. Faute d'une calibration précise, nous ne pouvons pas estimer non plus l'ordre de grandeur du coefficient.

5.4 Étude semi-quantitative du paramètre B/A : a-t-il une divergence au voisinage du point critique?

5.4.1 Introduction

Les travaux de Borisov et al. montrent que le paramètre non-linéaire B/A a un comportement anormal au voisinage du PC [136, 137, 138, 139]. Comme nous l'avons déjà dit, ils ont bien montré qu'au voisinage du PC, des ondes de choc de raréfaction sont stables, ce qui est un indice de la valeur négative du paramètre B/A . Ils suggèrent également que le paramètre non-linéaire diverge au PC selon la loi [139]

$$\left| \frac{B}{A} \right| \sim \left(\frac{|T - T_c|}{T_c} \right)^{-1+\alpha}, \quad (5.24)$$

où α est l'exposant critique de C_V . Néanmoins, à notre connaissance, aucune étude a été réalisée pour quantifier la divergence de ce paramètre au voisinage du point critique des fluides purs. Nous présentons une telle étude dans l'article «Scattering of a sound by sound in the vicinity of the liquid-vapor critical point». Nous étudions donc de manière plus quantitative (en fonction de la distance au PC) la diffusion du son par le son sous un angle non nul dans un volume important de CO₂, d'environ 3 l. La taille de l'expérience, 20 cm de diamètre et 10 cm de hauteur, a été déterminée par les fréquences acoustiques utilisées de sorte que le volume d'interaction des faisceaux acoustiques soit en champ lointain pour toutes les fréquences utilisées. Par ailleurs, les fréquences acoustiques ont été déterminées par le choix de céramiques piezoélectriques disponibles (tant en émission qu'en réception) et aussi par le fait que sur la «longueur» d'interaction nous voulions avoir beaucoup des longueurs d'onde de chaque onde incidente, de façon à maximiser l'interaction non-linéaire acoustique en volume. La fréquence acoustique ne doit pas être trop élevée non plus, en raison de la plus forte atténuation acoustique à haute fréquence. Remarquons que la différence de fréquence des ondes incidentes dans ces expériences

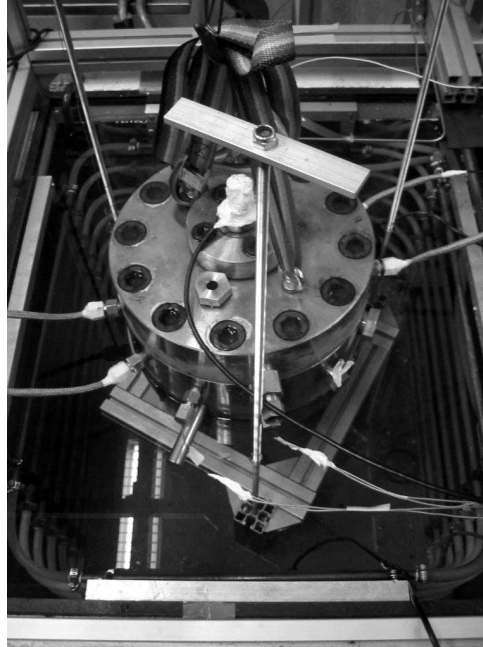


FIG. 5.15 – Photographie de la cellule utilisée pour les expériences de diffusion du son par le son au voisinage du point critique de CO_2 . Voir l'article pour plus de détails sur le montage.

(≈ 100 kHz) est plus importante que lors des premières expériences de mélange d'ondes (≈ 5 kHz, voir paragraphe 5.3.2). Ceci permet de rendre la diffusion du son par le son plus efficace car l'onde mélange est proportionnelle à la différence de fréquences [142]. Nous présentons plus de détails relatifs à l'expérience dans l'article suivant. En complément, nous présentons dans la figure 5.15 une photographie de la cellule placée au dessus de l'aquarium utilisé pour la régulation de température.

5.4.2 Copie de l'article

« Scattering of a sound by sound in the vicinity of the liquid-vapor critical point »

Nicolás Mujica, Régis Wunenburger & Stéphan Fauve,
En préparation.

Scattering of sound by sound in the vicinity of the liquid-vapor critical point

N. Mujica, R. Wunenburger, S. Fauve

*Laboratoire de Physique Statistique,
Ecole Normale Supérieure, UMR 8550,
24, rue Lhomond, 75 005 Paris, France*

(Dated: October 7, 2002)

Abstract

We report an experimental study of the scattering of sound by sound in the vicinity of the liquid-vapor critical point of carbon dioxide. We measure the amplitude of the scattered difference frequency wave generated by acoustic bulk nonlinearities. We observe that it is strongly increased in the vicinity of the critical point.

PACS numbers: 43.25.+y, 05.70.Jk, 62.60.+v

INTRODUCTION

The study of physical properties of fluids in the vicinity of their liquid-vapor critical point (CP) has a long history that has witnessed several revivals of interest motivated by fundamental questions such as the study of critical phenomena and their universal behavior [1–3], and also by potential applications of supercritical fluids to various chemical engineering problems [4].

Acoustic techniques have been widely used to probe fluids in the vicinity of their CP. Low frequency sound velocity is directly related to the singular behavior of thermodynamic properties [5–8] while sound absorption gives information about transport properties and critical relaxation processes [9–11]. Both absorption and dispersion are strongly affected by critical fluctuations and many theoretical studies have been devoted to elucidate the relevant coupling mechanisms responsible for the anomalous critical absorption and dispersion [13–16]. Most of the experiments on acoustics in critical fluids have been performed in the linear regime so far, except an observation of rarefaction shock waves that has been related to a possible anomaly of a thermodynamic property close to the CP [17]. We report here the experimental observation that the nonlinear acoustic behavior of a fluid is strongly enhanced in the vicinity of the CP.

EXPERIMENTAL SET-UP AND MEASUREMENT TECHNIQUES

Experiments are performed in a stainless steel cylinder, $D = 200$ mm in inner diameter and $H = 100$ mm in height sketched in Fig. 1, immersed in a thermally regulated water bath of volume 250 l.

The vessel is filled with carbon dioxide at nearly critical density. This is roughly achieved by visual inspection of the liquid-vapor meniscus using two opposite windows made of sapphire. The pressure within the vessel is measured with a resistive transducer (Entran EPXM-N02-100B) and temperature is measured with two platinum resistors. The first one is located along the axis of the cylinder, 60 mm above the bottom, i.e. just below the acoustic scattering volume. The second one is along the lateral boundary, 25 mm below the top.

The pressure-temperature curve is recorded during each experiment in order to determine the filling density. This is done by comparing the variation of its slope from the two-phase to

the supercritical state with the prediction given by the state equation [18]. Three different fluid densities ρ are thus determined: $\rho/\rho_c = 0.915, 0.95$, and 0.97 ± 0.005 , where ρ_c is the critical density.

Four piezoelectric transducers are located in the plane perpendicular to the cylinder axis, 75 mm above its bottom. Two of them, 30° apart along the inner lateral boundary, (E_1 and E_2 in Fig. 1) are used as emitters. Two acoustic sinusoidal waves, at frequencies $f_1 = 107$ kHz and $f_2 = 203$ kHz, are generated toward the center of the cell where they interact nonlinearly. The emitters diameter, $d = 20$ mm, gives the typical size of the scattering volume. The diameter of the vessel has been chosen large enough in order to avoid near field effects of the emitters. The two other piezoelectric transducers are used as receivers (R_1 and R_2 in Fig. 1). They are located at a distance L from each emitter. For the measurements reported below, $L = 107$ mm, but comparison with measurements performed for $L = 160$ mm has been used in order to determine the absolute value of sound absorption as a function of temperature.

The two received waves pressure amplitudes, P_1 and P_2 , and their phases, ϕ_1 and ϕ_2 , are measured by lock-in amplifiers (Stanford SR844RF and SR830RF). Each measurement is averaged during one minute. The amplitude P_m of the nonlinearly generated wave at frequency $f_2 - f_1 = 96$ kHz, recorded by the transducer R_1 , is measured with a spectrum analyzer (Agilent 3589A) after averaging during one minute on a 78 Hz frequency band. During the experiments, the two temperature probes far apart display temperature differences smaller than 20 mK. The experiments are conducted as follows: we start with the water bath at about two degrees above the critical temperature ($T_c = 304.11$ K) and we turn off the temperature regulation. The bath being well insulated, the temperature of the vessel begins to decrease slowly, roughly at a rate 1 mK per minute. We take measurements every one minute and average them during one minute. Thus, we record, the temperature, the static pressure, the two acoustic waves amplitudes P_i and their phases ϕ_i and the difference frequency wave amplitude P_m , roughly every 2 mK. As said above, the size of the vessel has been determined to avoid near field effects. Thus, it is larger than in usual CP experiments and density gradients which involve very long relaxation times and the effect of gravity are important close to the CP [19]. However, the paths followed by the acoustic waves and the scattering region involve only a small horizontal layer within the vessel. Moreover, our aim is not to perform quantitative measurements of critical exponents but to show the increase

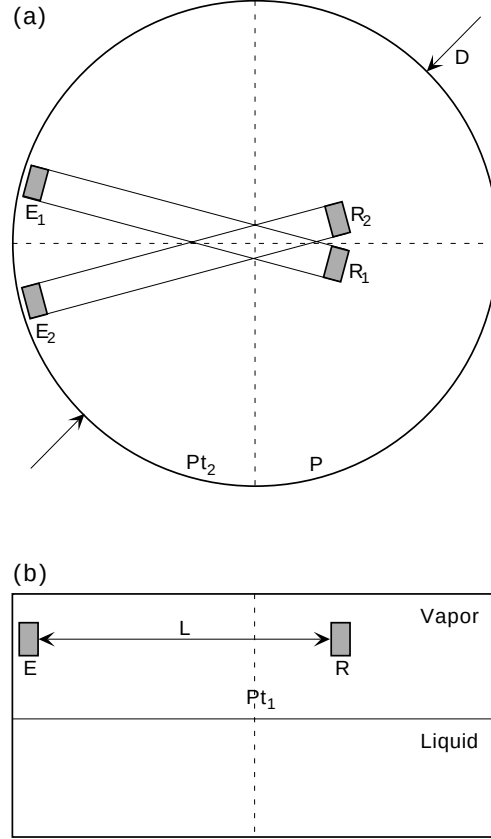


FIG. 1: Sketch of the experimental set-up. E_i : sound emitters, R_i : sound receivers, Pt_i : platinum resistors, P : pressure transducer. $D = 200$ mm, $L = 107$ mm.

of acoustical nonlinearities close the CP. Fortunately, it has not been necessary to go very close to the CP to display this effect. Our measurements have been performed further than 0.1 K from the CP.

EXPERIMENTAL RESULTS

We first present our data related to sound velocity and absorption versus temperature in order to check agreement with previous experimental measurements close to the CP. Sound velocity c can be obtained from the phase difference, $\Delta\phi_i = \omega_i L/c$, where $\omega_i = 2\pi f_i$ is the wave pulsation ($i = 1, 2$) and L is the distance between the emitter and the corresponding receiver. The lock-in amplifiers only measure ϕ_i , the phases of the received signals. In order to avoid the determination of the absolute value of the unwrapped phases, we compute $d\phi_i/dT$ from the experimental measurements and compare with $-\omega_i L c^{-2} dc/dT$ where $c(T)$

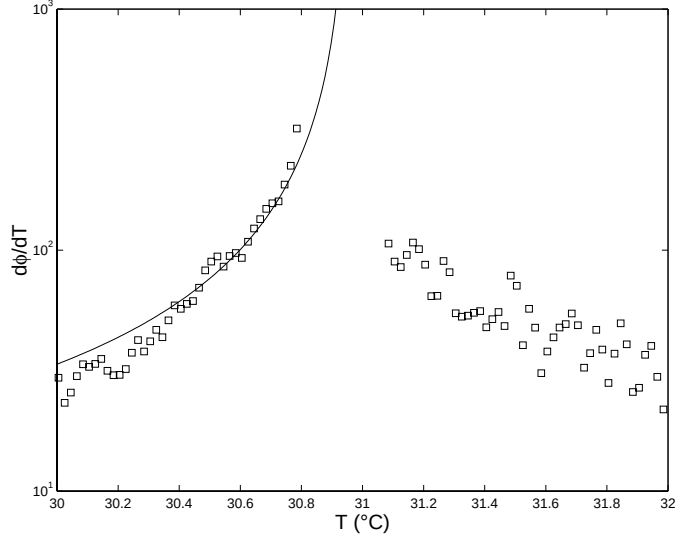


FIG. 2: Temperature derivative $d\phi/dT$ of the phase of the measured wave at frequency $f_1 = 107$ kHz with respect to the temperature T ($\square$). $d\phi/dT = -\omega_1 L c^{-2} dc/dT$, calculated from the state equation [18], as a function of T (full line). The density is $\rho \approx 0.97\rho_c$, $L = 107$ mm.

is determined by using the state equation of carbon dioxide [18]. Fig. 2 shows that the agreement is good. We note that for one series of experiments ($\rho/\rho_c = 0.97$), we had to shift the temperature origin by 130 mK in order to get a good agreement. We think that this may result from non relaxed gradients within the vessel.

Measurements of the pressure wave amplitudes, P_1 and P_2 , as a function of temperature are displayed in Fig. 3. We observe that the waves are strongly attenuated in the vicinity of the CP, roughly by three orders of magnitude at 0.1 K from T_c . Note that for the two larger filling densities, this absorption does not allow to perform measurements very close to T_c , the signal to noise ratio being too small. Using the measurements performed for $L = 107$ mm together with additional ones for $L = 160$ mm, we can estimate the absorption coefficient α . For the highest attenuation, obtained for $\rho/\rho_c = 0.97$ and roughly 0.1 K below T_c , we have $\alpha \approx 70 \text{ m}^{-1}$ for both frequencies. Thus, the maximum attenuation per wavelength in our experiments are, $\alpha\lambda \approx 0.08$ for $f_1 = 107$ kHz and $\alpha\lambda \approx 0.04$ for $f_2 = 203$ kHz. It has been shown that the critical part of the attenuation per wavelength, $\alpha_c\lambda$, depends on the frequency and on the temperature through a single reduced variable, $\omega^* = \omega\xi^2/\kappa$ where ξ is the correlation length and κ the heat diffusivity [9]. For the highest temperature below T_c of our experiments, we have $\omega^* \approx 0.1$ at $f_2 = 203$ kHz and we are thus rather far from the

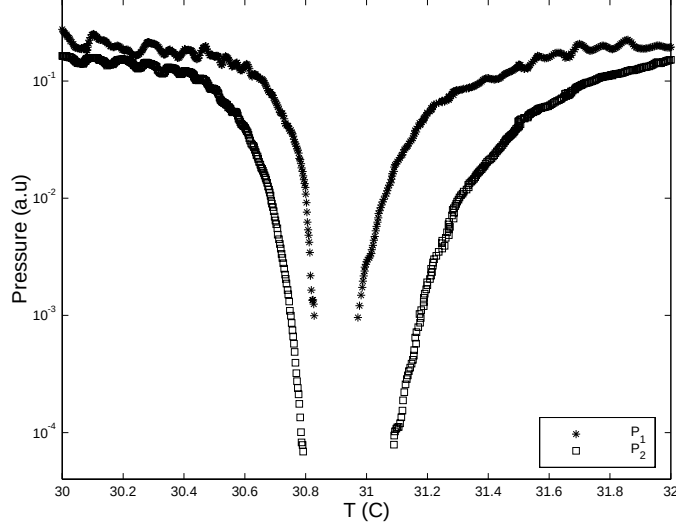


FIG. 3: Pressure amplitudes P_1 and P_2 at frequencies $f_1 = 107$ kHz (*) and $f_2 = 203$ kHz ($\square$) versus the temperature T . The density is $\rho \approx 0.97\rho_c$.

regime in which $\alpha_c\lambda$ saturates ($\omega^* \approx 1$). Earlier measurements for $\omega^* \approx 0.1$ gave $\alpha_c\lambda \approx 0.05$ in Xenon [9] and $\alpha_c\lambda \approx 0.02 - 0.03$ in different isotopes of Helium [12], thus showing that, although different, these values have the same order of magnitude for different fluids.

We now consider the generation of the wave at frequency $f_2 - f_1$ as a function of temperature. This wave is created by nonlinearities of the conservation equations and of the state equation. For two waves of amplitudes A_1 and A_2 , propagating along a distance L in the same direction in a medium without dissipation, the amplitude A_m of the difference frequency wave is given by

$$A_m \propto \varepsilon \frac{(\omega_2 - \omega_1)L}{\rho c^3} A_1 A_2, \quad (1)$$

where ε is the acoustic nonlinearity parameter,

$$\varepsilon = \left(1 + \frac{B}{2A}\right), \quad (2)$$

where A and B are the coefficients of the linear and quadratic terms in the Taylor series expansion of the isentropic equation of state of the fluid [20, 21],

$$A = \rho c^2, \quad B = \rho^2 \left(\frac{\partial c^2}{\partial \rho} \right). \quad (3)$$

For waves with non parallel wave vectors propagating in an absorbing medium, there is an additional geometrical factor [22, 23] and L should be replaced by a characteristic attenuation

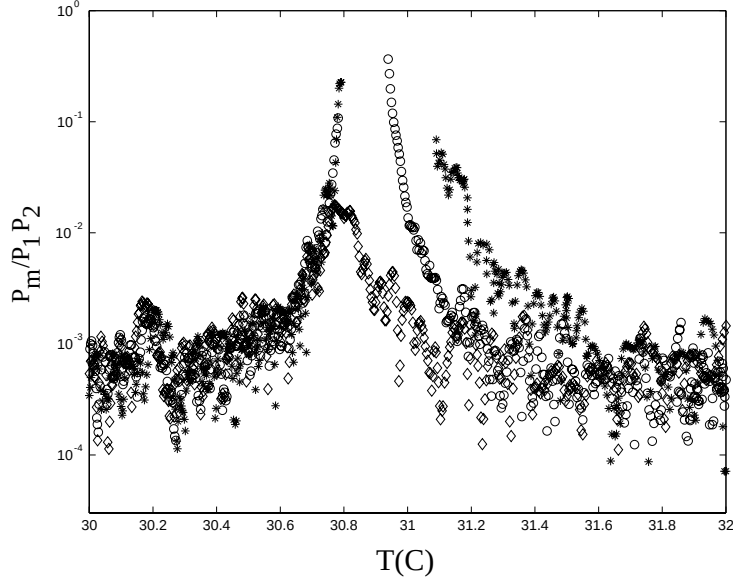


FIG. 4: Normalized amplitude P_m/P_1P_2 as a function of the temperature T for three different densities: $\rho \approx 0.97\rho_c$ (*), $\rho \approx 0.95\rho_c$ ($\circ$), $\rho \approx 0.91\rho_c$ ($\diamond$).

length [23]. We have displayed P_m/P_1P_2 as a function of temperature for the three densities $\rho/\rho_c = 0.915, 0.95$, and 0.97 in Fig. 4. We observe that this ratio strongly increases in the vicinity of T_c . As said above, the absorption is too large to allow measurements very close to T_c in the case of the two larger filling densities. The maximum of P_m/P_1P_2 is thus observed only with the lowest density $\rho \approx 0.91\rho_c$. Note also that P_m/P_1P_2 for different values of ρ first increase along the same curve below T_c whereas the decrease at higher temperatures clearly depends on the density.

DISCUSSION AND CONCLUSION

The experimental result displayed in Fig. 4 needs to be discussed before concluding about the behavior of the nonlinearity parameter in the vicinity of the CP where the medium becomes more and more absorbing. Indeed, the amplitudes P_1 , P_2 and P_m that are measured are smaller than the ones in the scattering region A_1 , A_2 and A_m . We may assume that the attenuations of the two waves at frequencies f_1 and $f_2 - f_1$ are similar and compensate since $f_1 \sim f_2 - f_1$, but the exponential attenuation of the wave at frequency f_2 on the propagation length $l \sim 30$ mm from the scattering region to the receiver clearly leads to overestimate

A_m/A_1A_2 if the value of P_m/P_1P_2 is not corrected. The dependence of ρc^3 on T in our temperature range is small but, as said above, L in equation (1) should be replaced by the attenuation length which is temperature dependent and decreases in the vicinity of the CP. The shortest attenuation length $\alpha^{-1} \sim 14$ mm being slightly smaller than the size of the scattering region, we do not take this into account but note that this can only lead to underestimate the increase of the nonlinearity parameter ε in the vicinity of the CP. We are thus left with

$$\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_o} \sim \frac{(P_m/P_1P_2)_c}{(P_m/P_1P_2)_o} \frac{\exp \alpha_o l}{\exp \alpha_c l}, \quad (4)$$

where the subscript (c) refers to the value close to the CP and (o) to the nearly constant value of P_m/P_1P_2 reached roughly 1 K far from T_c . Our attenuation measurements give $\exp \alpha_c l \sim 8$, thus even if we neglect attenuation away from T_c , the correction factor is less than 10. Thus, we observe that the nonlinearity parameter increases by more than a factor 100 at roughly 0.1 K from the critical point.

We thank Y. Garrabos for useful discussions. R. W. thanks the Centre National d'Etudes Spatiales for financial support. This work has been supported by contract No. 02/CNES/0211/00-DPI190.

-
- [1] A. Onuki, Phys. Rev. E **55**, 403 (1997).
 - [2] R. Folk and G. Moser, Phys. Rev. E **57**, 683 (1998), Phys. Rev. E **57**, 705 (1998), G. Flossmann, R. Folk and G. Moser, Phys. Rev. E **60**, 779 (1999).
 - [3] J. K. Bhattacharjee and R. A. Ferrell, Physica A **250**, 58 (1998).
 - [4] S. A. Egorov and E. Rabani, J. Chem. Phys. **116**, 8447 (2002) and references therein.
 - [5] C. M. Herget, J. Chem. Phys. **8**, 537 (1940).
 - [6] N. S. Anderson and L. P. Delsasso, J. Acoust. Soc. Am. **23**, 423 (1951)
 - [7] J. L. Kline and E. F. Carome, J. Chem. Phys. **58**, 4962 (1972).
 - [8] C. W. Garland and R. D. Williams, Phys. Rev. A **10**, 1328 (1974).
 - [9] C. W. Garland, D. Eden and L. Mistura, Phys. Rev. Lett. **25**, 1161 (1970).
 - [10] H. Z. Cummins and H. L. Swinney, Phys. Rev. Lett. **25**, 1165 (1970).
 - [11] D. B. Roe, B. A. Wallace and H. Meyer, J. Low. Temp. Phys. **16**, 51 (1974).

- [12] A. B. Kogan and H. Meyer, J. Low. Temp. Phys. **110**, 899 (1998).
- [13] M. Fixman, J. Chem. Phys. **33**, 1363 (1960).
- [14] L. Kadanoff and J. Swift, Phys. Rev. **166**, 89 (1968).
- [15] K. Kawasaki, Phys. Rev. A **1**, 1750 (1970).
- [16] D. Dengler and F. Schwabl, Europhys. Lett. **4**, 1233 (1987).
- [17] Al. A. Borisov, A. A. Borisov, S. S. Kutateladze and V. E. Nakoryakov, JETP Lett. **31**, 585 (1980), J. Fluid Mech. **126**, 59 (1983).
- [18] P. C. Albright, T. J. Edwards, Z. Y. Chen and J. V. Sengers, J. Chem. Phys. **87**, 1717 (1987).
- [19] M. Barmatz and P. C. Hohenberg, Phys. Rev. Lett. **24**, 1225 (1970).
- [20] R. T. Beyer, in *Nonlinear acoustics*, M. F. Hamilton and D. T. Blackstock eds., Academic Press (New York, 1998).
- [21] L. Naugolnykh and L. Ostrovsky, *Nonlinear wave processes in acoustics*, Cambridge University Press (Cambridge, 1998).
- [22] V. A. Zverev and A. I. Kalachev, Sov. Phys. Acoust. **15**, 322 (1970).
- [23] P. Alais et P.-Y. Hennon, C. R. Acad. Sci. (Paris) **282**, B 385 (1976); B 421 (1976).

Chapitre 6

Conclusions et perspectives

Dans la première partie de cette thèse nous avons étudié la propagation du son dans les mousses. Nous avons montré que ces systèmes présentent des propriétés acoustiques originales par rapport à l'acoustique des milieux diphasiques gaz-liquides usuels. Nos expériences montrent que tant la vitesse du son que l'absorption varient lors du vieillissement des mousses en raison de l'évolution de leur structure. Nous avons vérifié que la vitesse du son est bien donnée en première approximation par la théorie du milieu effectif, i.e. par la formule de Wood. Néanmoins, pour une mousse jeune, la vitesse du son est approximativement 50% plus élevée que la valeur prédite par cette théorie. De plus, la vitesse du son décroît avec l'âge de la mousse, d'environ 20% après les deux premières heures de mûrissement. Pour expliquer ceci nous avons montré qu'il faut prendre en compte l'élasticité du squelette liquide en raison de la présence de molécules tensioactives aux interfaces gaz-liquide. La théorie de Biot non-dissipative donne un bon accord tant qualitatif que quantitatif avec nos mesures de vitesse du son à basse fréquence. En ce qui concerne l'atténuation du son dans les mousses, nous avons montré qu'elle est très importante par rapport à celle des deux phases homogènes et également par rapport à celle des mélanges gaz-liquides dilués, ce qui est dû à la grande quantité d'inclusions, i.e. au fait que dans une mousse la fraction volumique du gaz est proche de 1. En ce qui concerne les propriétés de vieillissement, le coefficient d'absorption croît linéairement aux temps longs et, en première approximation, également linéairement en fonction de la fréquence acoustique. A partir de ce résultat, nous concluons que l'atténuation d'énergie acoustique est dominée par la dissipation thermique aux interfaces gaz-liquide, ce qui est dû au grand contraste des propriétés acoustiques et thermiques entre le gaz et le liquide. Nous avons également montré que la polydispersité de la mousse masque l'effet résonant thermique ; $\alpha\lambda$ ne présente pas de maximum lorsque la couche limite thermique est de l'ordre de la taille des bulles. Nous avons donc montré que l'acoustique peut être utilisée comme une technique alternative à l'étude des propriétés rhéologiques des mousses, tant en compression qu'en cisaillement. Une perspective de ce travail est l'étude de ces milieux dans des gammes de fréquences non accessibles à l'aide des techniques usuelles de rhéologie. D'autre part, nous nous proposons d'étendre notre étude à d'autres systèmes diphasiques tels que les émulsions ou les milieux granulaires en phase liquide, de telle sorte que les

mécanismes dissipatifs soient moins importants. En réalisant une adaptation d'impédance entre les phases, il serait possible d'étudier des phénomènes proprement dus à la diffusion multiple, tels que la propagation incohérente et la localisation faible ou forte.

Dans la deuxième partie de cette thèse nous avons considéré les effets non-linéaires de volume et de surface en acoustique. En fait, l'étude des non-linéarités de volume nous a conduit à quantifier les non-linéarités de surface afin d'estimer dans quel régime elles sont négligeables. Une situation typique où les deux effets non-linéaires sont présents est une expérience de mélange de deux ondes de fréquences ω_1 et ω_2 . Les interactions peuvent en effet se produire en volume mais également lors des réflexions sur les parois qui vibrent aux fréquences ω_1 et ω_2 . Pour clarifier ceci nous avons conçu une expérience simple, celle de la diffusion d'une onde acoustique par une surface oscillante. Nous avons étudié les régimes «Doppler» et «volumique» et nous avons caractérisé la transition entre les deux. En général, tant que la longueur d'onde basse fréquence est inférieure à la taille de l'expérience ou à la distance d'interaction, les effets de volume dominent. Il faut néanmoins prendre en compte les effets de diffraction et l'absorption pour ne pas surestimer les effets de volume. Enfin, nous avons également montré qu'il est possible d'utiliser le décalage Doppler engendré par une surface oscillante pour mesurer l'amplitude d'oscillation d'un diffuseur.

La dernière partie de ce travail a concerné l'étude de la propagation du son dans le dioxyde de carbone au voisinage du point critique (PC). Nous avons présenté des résultats relatifs à la résonance linéaire du mode fondamental d'une cavité acoustique et nous avons retrouvé les aspects généraux de l'acoustique linéaire au voisinage du PC des fluides purs (diminution de la vitesse du son et augmentation de l'absorption). Nous avons ensuite abordé l'étude des non-linéarités de volume de CO_2 au voisinage du PC. Dans une première série d'expériences, nous avons mis en évidence l'augmentation des non-linéarités au voisinage du PC avec deux techniques différentes, la résonance non-linéaire d'un mode de cavité et le mélange non-linéaire de deux ondes haute fréquence. Puis, nous avons mis au point un montage expérimental permettant des mesures plus quantitatives, en étudiant la diffusion du son par le son sous un angle non-nul dans un volume plus important de CO_2 . Nous avons ainsi montré que le paramètre non-linéaire B/A peut varier d'un facteur 100 au voisinage du PC.

La suite logique de ce travail est l'étude du mélange d'ondes dans le régime diphasique liquide/vapeur de CO_2 près du PC. Nous nous attendons à observer des effets non-linéaires encore plus importants en raison de la compressibilité additionnelle associée aux transferts de masse entre les deux phases. Nous pensons également disposer ainsi d'un «bon» milieu pour réaliser l'étude des effets simultanés du désordre et des non-linéarités sur la propagation du son. Cela permettrait en particulier d'apporter un élément de réponse à la question ouverte relative à l'effet des non-linéarités sur le phénomène de localisation des ondes.

Bibliographie

- [1] D. Sornette, *Acoustic waves in random media. I. Weak disorder regime*, *Acustica* **67**, 199 (1989).
- [2] D. Sornette, *Acoustic waves in random media. II. Coherent effects and strong disorder regime*, *Acustica* **67**, 251 (1989).
- [3] D. Sornette, *Acoustic waves in random media. III. Experimental situations*, *Acustica* **68**, 15 (1989).
- [4] P. Sheng, *Introduction to wave scattering, localisation, and mesoscopic phenomena*, (Academic Press 1995).
- [5] L. van Wijngaarden, *On the equations of motion for mixtures of liquid and gas bubbles*, *Journal of Fluid Mechanics* **33**, 465-474 (1968).
- [6] A. Crespo, *Sound and shock waves in liquids containing bubbles*, *Physics of Fluids* **12**, 2274-2282 (1969).
- [7] G.K. Batchelor, *Compression waves in a suspension of gas bubbles in liquid*, dans *Fluid Dynamics Transactions*, édité par W. Fiszdon, P. Kucharczyk & W.J. Posnak, pp. 425-445 (PWN-Polish Scientific, Warsaw, 1969).
- [8] L. van Wijngaarden, *One-dimensional flow of liquids containing small gas bubbles*, *Annual Review of Fluid Mechanics* **4**, 369-396 (1972).
- [9] R.E. Caflisch, M.J. Miksis, G.C. Papanicolaou and L. Ting, *Effective equations for wave propagation in bubbly liquids*, *Journal of Fluid Mechanics* **153**, 259-273 (1985).
- [10] E.L. Carstensen and L.L. Foldy, *Propagation of sound through a liquid containing bubbles*, *Journal of the Acoustical Society of America* **19**, 481-501 (1947).
- [11] F.E. Fox, S.R. Curley and G.S. Larson, *Phase velocity and absorption measurements in water containing air bubbles*, *Journal of the Acoustical Society of America* **27**, 534-539 (1955).
- [12] J.D. Macpherson, *The effect of gas bubbles on sound propagation in water*, *Proceedings Physical Society London* **B70**, 85-92 (1957).
- [13] E. Silberman, *Sound velocity and attenuation in bubbly mixtures measured in standing wave tubes*, *Journal of the Acoustical Society of America* **29**, 925-933 (1957).
- [14] K.W. Commander & A. Prosperetti, *Linear pressure waves in bubbly liquids: comparison between theory and experiments*, *Journal of the Acoustical Society of America* **85**, 732-746 (1989).

- [15] C. Devin, *Survey of thermal, radiation, and viscous damping of pulsating air bubbles in water*, Journal of the Acoustical Society of America **31**, 1654-1667 (1959).
- [16] A.I. Eller, *Damping constants of pulsating bubbles*, Journal of the Acoustical Society of America **47**, 1469-1470 (1970).
- [17] A. Prosperetti, *Thermal effects and damping mechanisms in the forced radial oscillations of gas bubbles in liquids*, Journal of the Acoustical Society of America **61**, 17-27 (1977).
- [18] A. Prosperetti, *The thermal behaviour of oscillating gas bubbles*, Journal of Fluid Mechanics **222**, 587-616 (1991).
- [19] A.B. Wood, *A Textbook of Sound* (Bell and Sons, London 1944), 360-363.
- [20] K.F. Herzfeld, *Propagation of sound in suspensions*, Philosophical Magazine **9**, 752-768 (1930).
- [21] M. Minnaert, *On musical air-bubbles and the sounds of running water*, Philosophical Magazine **16**, 235 (1933).
- [22] A. Prosperetti, *Physics of acoustic cavitation*, dans *Frontiers in Physical Acoustics, Proceedings of the international school of physics "Enrico Fermi"*, édité par D. Sette, (North-Holland physics publishing, 1986), pp. 145-188.
- [23] R.P. Feynman, R.B. Leighton & M. Sands, *Lectures On Physics*, Volume II, (Addison-Wesley Publishing 1969).
- [24] L.L. Foldy, *The multiple scattering of waves. I. General theory of isotropic scattering by randomly distributed scatterers*, Physical Review **67**, 107-119 (1945).
- [25] T.G. Leighton, *The Acoustic Bubble*, (Academic Press 1994).
- [26] J. Rubinstein, *Bubble interaction effects in bubbly liquids*, Journal of the Acoustical Society of America **77**, 2061-2066 (1985).
- [27] A. Sangani, *A pairwise interaction theory for determining the linear acoustic properties of dilute bubbly liquids*, Journal of Fluid Mechanics **232**, 221-284 (1991).
- [28] R.E. Caflisch, M.J. Miksis, G.C. Papanicolaou & L. Ting, *Wave propagation in bubbly liquids at finite volume fraction*, Journal of Fluid Mechanics **160**, 1-14 (1985).
- [29] Y. Fukumoto & T. Izuyama, *Thermal attenuation and dispersion of sound in a periodic emulsion*, Physical Review A, **46**, 4905-4921 (1992).
- [30] D.L. Johnson, dans *Frontiers in Physical Acoustics, Proceedings of the international school of physics "Enrico Fermi"*, édité par D. Sette, (North-Holland physics publishing, 1986), pp. 255-290.
- [31] M. Schoenberg, *Wave propagation in a finely laminated periodic elastoacoustic medium*, Applied Physics Letters **42**, 350-352 (1983).
- [32] M.A. Biot, *Theory of propagation of elastic waves in a fluid-saturated porous solid. I. Low-frequency range*, Journal of the Acoustical Society of America **28**, 168-178 (1956).

- [33] M.A. Biot, *Theory of propagation of elastic waves in a fluid-saturated porous solid. II. Higher frequency range*, Journal of the Acoustical Society of America **28**, 179-191 (1956).
- [34] N.W. Ashcroft et N.D. Mermin, *Solid state Physics*, (Saunders College Publishing, 1988)
- [35] The Gillette Company, Gillette U.K. Ltd., London.
- [36] Z.M. Orenbakh & G.A. Shushkov, *Experimental determination of the velocity and attenuation coefficient of an acoustic disturbance in a gas-liquid foam*, Soviet Physical Acoustics **37**, 206-207 (1991).
- [37] I.I. Gol'dfarb, Z.M. Orenbakh, G.A. Shushkov, I.R. Shreiber & F.I. Vafina, *Investigation of sound waves propagation peculiarities in gas-liquid foam*, Journal de Physique IV C1, 891-894 (1992).
- [38] G.S. Tolstov, *Propagation of acoustic waves in foams*, Soviet Physical Acoustics **38**, 596-600 (1992).
- [39] Z.M. Orenbakh & G.A. Shushkov, *Acoustical characteristics of water-air foams*, Acoustical Physics **39**(1), 63-66 (1993).
- [40] Q. Sun, J.P. Butler, B. Suki & D. Stamenović, *Measurements of shear wave propagation speed in gas-liquid foam*, Journal of Colloid and Interface Science **163**, 269-276 (1994).
- [41] F.I. Vafina, I.I. Gol'dfarb & I.R. Shreiber, *Influence of heat transfer on sound propagation in foam*, Akust. Zh. **38**, 260 (1992) [Soviet Physical Acoustics **38**(2), 139-144 (1992)].
- [42] I.I. Gol'dfarb, I.R. Shreiber & F.I. Vafina, *Heat transfer effect on sound propagation in foam*, Journal of the Acoustical Society of America **92**, 2756-2769 (1992).
- [43] A.M. Kraynik, *Foam flows*, Annual Review of Fluid Mechanics **20**, 325-357 (1988).
- [44] D. Weaire et S. Hutzler, *The physics of foams*, Oxford University Press (1999).
- [45] M. Vignes-Adler et F. Graner, *La vie éphémère des mousses*, Pour la Science (Mars 2002).
- [46] D.J. Durian, *Foam mechanics at the bubble scale*, Physical Review Letters **75**, 4780-4783 (1995).
- [47] D.J. Durian, *Bubble-scale model of foam mechanics: Melting, nonlinear behavior, and avalanches*, Physical Review E **55**, 1739-1751 (1997).
- [48] H. Hoballah, R. Holler & S. Cohen-Addad, *Time evolution of the elastic properties of aqueous foam*, Journal de Physique II **7**, 1215 (1997).
- [49] S. Cohen-Addad, H. Hoballah & R. Holler, *Viscoelastic response of a coarsening foam*, Physical Review E **57**, 6897 (1998).
- [50] G. Debrégeas, H. Tabuteau & J.M. di Meglio, *Deformation and flow of a two-dimensional foam under continuous shear*, Physical Review Letters **87**, 178305 (2001).

- [51] A.I. Rusanov & V.V. Krotov, *Gibbs elasticity of liquid films, threads and foams*, Progress in Surface and Membrane Science **13**, 415 (1979).
- [52] W.W. Mullins, *The statistical self-similarity hypothesis in grain growth and particle coarsening*, Journal of Applied Physics **59**, 1341 (1986).
- [53] T.W. Patzek, *Self-similar collapse of stationary bulk foams*, AIChE Journal **39**, 1697 (1993).
- [54] J. Stavans, *Temporal evolution of two-dimensional drained soap froths*, Physical Review A **42**, 5049 (1990).
- [55] D.J. Durian, D.A. Weitz & D.J. Pine, *Scaling behavior in shaving cream*, Physical Review A **44**, R7902 (1991).
- [56] C. Monnnereau & M. Vignes-Adler, *Dynamics of 3D real foam coarsening*, Physical Review Letters **80**, 5228 (1998).
- [57] C. Monnnereau, B. Prunet-Foch & M. Vignes-Adler, *Topology of slightly polydisperse real foams*, Physical Review E **63**, 061402 (2002).
- [58] G. Taylor, *The dynamics of thin sheet of fluid II. Waves on fluid sheets*, Proceedings of the Royal Society A, **253**, 296 (1959).
- [59] Y. Couder, J.M. Chomaz & M. Rabaud, *On the hydrodynamics of soap films*, Physica D **37**, 384 (1989).
- [60] J. Lucassen, M van den Tempel, A. Vrij & F.Th. Hesselink, *Waves in thin liquid films I. The different modes of vibration*, Physical Chemistry B **73**, 109 (1970).
- [61] A. Vrij, F.Th. Hesselink, J. Lucassen & M van den Tempel, *Waves in thin liquid films II. Symmetrical modes in very thin films and film rupture*, Physical Chemistry B **73**, 124 (1970).
- [62] *Nonlinear Acoustics*, Édité par M.F. Hamilton & D.T. Blackstock (Academic Press, San Diego, 1998)
- [63] L. Naugolnykh & L. Ostrovsky, *Nonlinear wave processes in acoustics*, (Cambridge University, Cambridge, 1998).
- [64] R.A. Guyer & P.A. Johnson, *Nonlinear mesoscopic elasticity: Evidence for a new class of materials*, Physics Today, 30-36 (Avril 1999).
- [65] J.W.S. Rayleigh, *The theory of sound*, Volume II, 2^{ème} Édition, (Dover, New York, 1945).
- [66] L.D. Landau & E.M. Lifshitz, *Fluid Mechanics*, 2^{ème} Édition, (Butterworth Heinemann, Oxford, 1987).
- [67] P.M. Morse & K.U. Ingard, *Theoretical Acoustics* (Princeton University, 1986).
- [68] J. N. Tjøtta & S. Tjøtta, *Interaction of sound waves. Part III. Two real beams*, Journal of the Acoustical Society of America **83**, 487-495 (1988).
- [69] R.E. Apfel, *The effective nonlinearity parameter for immiscible liquid mixtures*, Journal of the Acoustical Society of America **74**, 1866-1868 (1983).
- [70] R.E. Apfel, *Prediction of tissue composition from ultrasonic measurements and mixture rules*, Journal of the Acoustical Society of America **79**, 148-152 (1986).

- [71] E.C. Everbach, Z. Zhu, P. Jiang, B.T. Chu & R.E. Apfel, *A corrected mixture law for B/A* , Journal of the Acoustical Society of America **89**, 446-447 (1991).
- [72] Z. Ye & A. Alvarez, *Acoustic Localization in Bubbly Liquid Media*, Physical Review Letters **80**, 35033506 (1998).
- [73] K. Wang & Z. Ye, *Acoustic pulse propagation and localization in bubbly water*, Physical Review E **64**, 056607 (2001).
- [74] E.A. Zabolotskaya & S.I. Soluyan, *Emission of harmonic and combination-frequency waves by air bubbles*, Soviet Physics Acoustics **18**, 396-398 (1973).
- [75] T. Asada & Y. Wantanabe, *Experiments of parametric amplification using nonlinear vibrations of bubble layer*, dans *Frontiers of Nonlinear Acoustics, Proceedings of the 12th ISNA*, édité par M.F. Hamilton & D.T. Blackstock, (Elsevier Science, London, 1990), pp. 485-490.
- [76] J. Wu & Z. Zhu, *Measurements of the effective nonlinearity parameter B/A of water containing trapped cylindrical bubbles*, Journal of the Acoustical Society of America **89**, 2634-2639 (1991).
- [77] V.V. Kuznetsov, V.E. Nakoryakov, B.G. Pokusaev & I.R. Sheiber, *Liquid with gas bubbles as an example of a Korteweg-de Vries-Burges medium*, Journal of Experimental and Theoretical Physics Letter **23**, 172-176 (1976).
- [78] L.M. Kustov, V.E. Nazarov & A.M. Sutin, *Phase conjugation of an acoustique wave at a bubble layer*, Soviet Physics Acoustics **31**, 517-518 (1985).
- [79] L.M. Kustov, V.E. Nazarov & A.M. Sutin, *Nonlinear sound scattering by a bubble layer*, Soviet Physics Acoustics **32**, 500-503 (1986).
- [80] F.V. Bunkin, Y.A. Kravtsov & G.A. Lyakhov, *Acoustic analogues of nonlinear-optics phenomena*, Soviet Physics Uspekhi **29**, 607-619 (1986).
- [81] I.A. Beresnev & A.V. Nikolaev, *Experimental investigations of nonlinear seismic effects*, Physics of the Earth and Planetary Interiors **50**, 83-87 (1998).
- [82] P.A. Johnson & T.J. Shankland, *Nonlinear generation of elastic waves in crystalline rock*, Journal of Geophysical Research B **92**, 3597-3602 (1987).
- [83] P.A. Johnson & T.J. Shankland, *Nonlinear generation of elastic waves in granite and sandstone: Continuous wave and travel time observations*, Journal of Geophysical Research B **94**, 17729-17733 (1989).
- [84] G.D. Meegan, P.A. Johnson, R.A. Guyer & K.R. McCall, *Observations of nonlinear elastic wave behavior in sandstone*, Journal of the Acoustical Society of America **94**, 3387-3391 (1993).
- [85] L.A. Ostrovskii, *Nonlinear acoustics of slightly compressible porous media*, Soviet Physics Acoustics **34**, 523-526 (1988).
- [86] L.A. Ostrovskii, *Wave processes in media with strong acoustic nonlinearity*, Journal of the Acoustical Society of America **90**, 3332-3337 (1991).
- [87] I.Y. Belyaeva & E.M. Timanin, *Experimental study of nonlinear properties of porous elastic media*, Soviet Physics Acoustics **37**, 533-534 (1991).
- [88] A.M. Kovalev & V.N. Krasil'nikov, *Reflection of electromagnetic waves from moving surfaces*, Soviet Physics Technical Physics **7**, 19-21 (1962).

- [89] D. Censor, *Scattering by time varying obstacles*, Journal of Sound and Vibration **25**, 101-110 (1972).
- [90] D. Censor, *Harmonic and transient scattering from time varying obstacles*, Journal of the Acoustical Society of America **76**, 1527-1534 (1984).
- [91] D. Censor, *Acoustical Doppler effect analysis - Is it a valid method?*, Journal of the Acoustical Society of America **83**, 1223-1230 (1988).
- [92] P. H. Rogers, *Comments on "Scattering by time varying obstacles"*, Journal of Sound and Vibration **28**, 764-768 (1973).
- [93] J. C. Piquette & A. L. Van Buren, *Nonlinear scattering of acoustic waves by vibrating surfaces*, Journal of the Acoustical Society of America **76**, 880-889 (1984).
- [94] J. C. Piquette & A. L. Van Buren, *Comments on "Harmonic and transient scattering from time varying obstacles" J. Acoust. Soc. Am. **76**, 1527-34 (1984)]*, Journal of the Acoustical Society of America **79**, 179-180 (1984), et la reponse de l'auteur.
- [95] J. C. Piquette & A. L. Van Buren, *Some further remarks regarding scattering of an acoustic wave by a vibrating surface*, Journal of the Acoustical Society of America **80**, 1533-1536 (1986).
- [96] J. C. Piquette, A. L. Van Buren, & P. H. Rogers, *Censor's acoustical Doppler effect analysis - Is it a valid method?*, Journal of the Acoustical Society of America **83**, 1681-1682 (1988).
- [97] O. Bou Matar - Lacaze, *Mesure de vibration par vibromètre acoustique, importance des effets non-linéaires*, Thèse de Doctorat, Université de Tours (1997).
- [98] C. Barrière, *Effet de la diffraction sur l'interaction paramétrique d'ondes acoustiques. Application à la mesure de non-linéarité et de champs acoustiques*, Thèse de Doctorat, Université de Paris VII (2001).
- [99] L. Adler & M.A. Breazeale, *Generation of fractional harmonics in a resonant ultrasonic wave system*, Journal of the Acoustical Society of America **48**, 1077-1083 (1970).
- [100] A.I. Eller, *Fractional-harmonic frequency pairs in nonlinear systems*, Journal of the Acoustical Society of America **53**, 758-765 (1973).
- [101] L.A. Ostrovskii, I.A. Papilova & A.M. Sutin, *Parametric ultrasound generation*, Journal of Experimental and Theoretical Physics **15**, 322-323 (1972).
- [102] N. Yen, *Experimental investigation of subharmonic generation in an acoustic interferometer*, Journal of the Acoustical Society of America **57**, 1357-1975 (1975).
- [103] S. Huang, R. M. Lerner, & K. J. Parker, *On estimating the amplitude of harmonic vibration from the Doppler spectrum of reflected signals*, Journal of the Acoustical Society of America **88**, 2702-2712 (1990).
- [104] H.B. Callen, *Thermodynamics and an introduction to thermostatistics*, 2nd Edition (John Wiley & Sons, New York, 1985).

- [105] R. Wunenburger, *Transfert de chaleur et effet des vibrations dans les fluides purs diphasiques au voisinage du point critique*, Thèse de Doctorat, Université de Bordeaux I (2000).
- [106] B.S. Maccabee & J.A. White, *Supercritical correlation length of carbon dioxide along the critical isochore*, Physical Review Letters **27**, 495-498 (1971).
- [107] J.H. Lunacek & D.S. Cannell, *Long-range correlation length and isothermal compressibility of carbon dioxide near the critical point*, Physical Review Letters **27**, 841-844 (1971).
- [108] G.A. Olchowy & J.V. Sengers, *Crossover from singular to regular behavior of the transport properties of fluids in the critical region*, Physical Review Letters **61**, 15-18 (1988).
- [109] C.W. Garland, *Ultrasonic investigations of phase transitions and critical points*, Physical Acoustics **7**, 51-148 (1970).
- [110] A.B. Kogan & H. Meyer, *Sound propagation in ^3He and ^4He above the liquid-vapor critical point*, Journal of Low Temperature Physics **110**, 899-918 (1998).
- [111] R. Folk & G. Moser, *Frequency-dependent shear viscosity, sound velocity, and sound attenuation near the critical point in liquids. II. Comparison with experiment*, Physical Review E **57**, 705-719 (1998).
- [112] C. Coste, C. Laroche, & S. Fauve, *Acoustic resonances in a liquid with vapor bubbles: Effect of liquid-vapor transition on sound velocity and attenuation*, Physical Review Letters **69**, 765-768 (1992).
- [113] C. Coste & C. Laroche, *Acoustic behavior of a liquid vapor mixture in a standing-wave tube*, Journal of Fluid Mechanics **246**, 67-89 (1993).
- [114] P.C. Albright, T.J. Edwards, Z.Y. Chen & J.V. Sengers, *A scaled fundamental equation for the thermodynamic properties of carbon dioxide in the critical region*, Journal of Chemical Physics **87**, 1717-1725 (1987).
- [115] R. Span & W. Wagner, *A new equation of state for carbon dioxide covering the fluid region from the triple-point temperature to 1100 K at pressures up to 800 MPa*, Journal of Phys. Chem. Reference Data **25**, 1509-1596 (1996).
- [116] *National Institute of Standards and Technology Chemistry WebBook*, <http://webbook.nist.gov/chemistry>.
- [117] L.E. Kinsler, A.R. Frey, A.B. Coppens & J.V. Sanders, *Fundamentals of acoustics*, 4ème Edition (John Wiley & Sons, New York, 2000).
- [118] C.M. Herget, *Ultrasonic velocity in carbon dioxide and ethylene in the critical region*, Journal of Chemical Physics **8**, 537-542 (1940).
- [119] H.D. Parbook & E.G. Richardson, *Propagation of ultrasonic waves in vapours near the critical point*, Proceedings of the Physical Society **B65**, 437-444 (1952).
- [120] G.T. Feke, K. Fritsch & E.F. Carome, *Low-frequency sound velocity in CO_2 near the critical point*, Physical Review Letters **23**, 1282 (1969).
- [121] M. Barmatz, *Ultrasonic measurements near the critical point of He^4* , Physical Review Letters **24**, 651 (1970).

- [122] P.E. Mueller, D. Eden, C.W. Garland & R.C. Williamson, *Ultrasonic attenuation and dispersion in xenon near its critical point*, Physical Review A **6**, 2272-2281(1972).
- [123] J.L. Kline & E.F. Carome, *Low frequency sound velocity measurements in xenon in the critical region*, Journal of Chemical Physics **58**, 4962-4967 (1973).
- [124] J. Thoen & C.W. Garland, *Sound absorption and dispersion as a function of density near the critical point of xenon*, Physical Review A **10**, 1311-1327 (1974).
- [125] C.W. Garland & R.C. Williamson, *Low-frequency sound velocity near the critical point of xenon*, Physical Review A **10**, 1328-1332 (1974).
- [126] D.E. Weston, *The theory of the propagation of plane sound waves in tubes*, Proceedings of the Physical Society (London) **B66**, 695-709 (1953).
- [127] A.H. Nayfeh & D.T. Mook, *Nonlinear oscillations*, (Wiley, New York, 1979).
- [128] A.B. Coppens & J.V. Sanders, *Finite-amplitude standing waves in rigid-walled tubes*, Journal of the Acoustical Society of America **43**, 516-529 (1967).
- [129] D.B. Cruikshank, *Experimental investigation of finite-amplitude acoustic oscillations in a closed tube*, Journal of the Acoustical Society of America **52**, 1024-1036 (1972).
- [130] A.B. Coppens & J.V. Sanders, *Finite-amplitude standing waves within real cavities*, Journal of the Acoustical Society of America **58**, 1133-1140 (1975).
- [131] Y.A. Ilinskii, B. Lipkens, T.S. Lucas, T.W. van Doren & E.A. Zabolotskaya, *Nonlinear standing waves in an acoustical resonator*, Journal of the Acoustical Society of America **104**, 2664-2674 (1998).
- [132] M.F. Hamilton, Y.A. Ilinskii & E.A. Zabolotskaya, *Linear and nonlinear frequency shifts in acoustical resonators with varying cross sections*, Journal of the Acoustical Society of America **110**, 109-119 (2001).
- [133] C.C. Lawrenson, B. Lipkens, T.S. Lucas, D.K. Perkins & T.W. van Doren, *Measurements of macroscopic standing waves in oscillating closed cavities*, Journal of the Acoustical Society of America **104**, 623-636 (1998).
- [134] K.C. Lambrakis & P.A. Thomson, *Existence of real fluids with negative fundamental derivative Γ* , The Physics of Fluids **15**, 953-935 (1972).
- [135] M.S. Cramer, *Negative nonlinearity in selected fluorocarbons*, Physics of Fluids A **1**, 1894-1897 (1989).
- [136] S.S. Kutateladze, Al. A. Borisov, A.A. Borisov & V.E. Nakoryakov, *Experimental detection of a rarefaction shock wave near the liquid-vapor critical point*, Soviet Physics Dokl. **25**, 392-393 (1980).
- [137] Al. A. Borisov, A.A. Borisov, S.S. Kutateladze & V.E. Nakoryakov, *Evolution of rarefaction waves near the thermodynamic critical point*, Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters **31**, 585-588 (1980).
- [138] A. A. Borisov, Al.A. Borisov, S.S. Kutateladze & V.E. Nakoryakov, *Rarefaction shock wave near the liquid-vapour critical point*, Journal of Fluid Mechanics **126**, 59-73 (1983).

- [139] S.S. Kutateladze, V.E. Nakoryakov & A. A. Borisov, *Rarefaction waves in liquid and gas-liquid media*, Annual review of Fluid Mechanics **19**, 577-600 (1987).
- [140] L.C. Krysac, *First observation of self-focusing of nonlinear second sound in superfluid Helium near T_λ* , Physical Review Letters **73**, 2480-2483 (1994).
- [141] L.S. Goldner, N. Mulders & G. Ahlers, *Second sound very near T_λ* , Journal of Low Temperature Physics **93**, 131-182 (1993).
- [142] V.A. Zverev & A.I. Kalachev, *Sound radiation from region of interaction of 2 sound beams*, Soviet Physics Acoustics **15**, 322 (1970).