



Diffusion Multiple dans un Milieu Bulleux Aléatoire

O. Lombard^a, N. Viard^b, C. Barrière^b et V. Leroy^a

^aLaboratoire Matière et Systèmes Complexes UMR 7057, 4 rue Elsa Morante, 75013 Paris, France

^bInstitut Langevin UMR 7587, 1 rue Jussieu, 75005 Paris, France

oliviergerard.lombard@laposte.net

Cette étude expérimentale porte sur la propagation d'une onde de choc ultrasonore dans un milieu hétérogène aléatoire discret, formé de bulles identiques (de rayon $75 \mu\text{m}$) immobiles, piégées dans un fluide à seuil. La fréquence fondamentale de l'onde varie autour de quelques MHz. Elle est donc grande devant la fréquence de résonance des bulles, qui vaut 38 kHz. Une *coda* étendue, résultant de la diffusion multiple de l'onde de choc incidente, est observée expérimentalement en transmission. L'expérience montre que les bulles ont un comportement linéaire à ces fréquences. La transmission de l'onde de choc est alors analogue à la superposition des transmissions de chaque harmonique la constituant. La transmission du champ cohérent est bien décrite par le modèle de "l'Independent Scattering Approximation" (ISA). L'étude du champ incohérent montre que la densité locale d'énergie est régie par une équation de diffusion, jusqu'à ce que le libre parcours moyen de transport devienne comparable à l'épaisseur du milieu.

1 Introduction

La propagation acoustique dans les milieux hétérogènes aléatoires fortement diffuseurs est un sujet très étudié depuis de nombreuses années [1]. La transmission d'une onde acoustique à travers un tel milieu est vue comme la réalisation d'un processus aléatoire. Sous l'hypothèse d'ergodicité spatiale, différentes réalisations du désordre sont observables en différents lieux du milieu. Il est donc possible de mesurer à la fois le champ moyen, ou champ cohérent, et ses fluctuations sur le désordre des hétérogénéités, ou champ incohérent. Sur une réalisation, on appelle "ballistique" la partie du signal mesuré en transmission, correspondant aux "premières arrivées", et "*coda*" la partie qui suit, résultant de la diffusion multiple de l'onde incidente.

sont des bulles de diazote de rayon $R_0 = 75 \mu\text{m}$, piégées dans un fluide à seuil. Ces bulles de gaz sont caractérisées par une fréquence de résonance, dite de Minnaert [2], à 38 kHz. Cependant, comme le montre la figure (1), l'absorption est plus forte que la diffusion au voisinage de cette fréquence. Il est alors impossible d'observer une *coda*. Par conséquent, nous travaillons à des fréquences comprises entre 1 et 15 MHz, bien plus élevées que celle de Minnaert, mais plus favorables à la diffusion multiple. Par ailleurs, à 1 MHz, la section efficace de diffusion d'une bulle d'air de rayon $75 \mu\text{m}$ est environ cent fois plus élevée que celle d'une bille d'acier de même rayon (cf. figure (1)).

Après avoir présenté le protocole expérimental, nous étudions le champ cohérent issu de la transmission d'une onde de choc ultrasonore à travers ces échantillons. Nous comparons nos mesures à un modèle linéaire de diffusion multiple. L'étude expérimentale du champ incohérent nous conduit ensuite à discuter les limites de sa modélisation par une équation de diffusion.

2 Protocoles de synthèse des échantillons et de mesure

2.1 Synthèse des échantillons bulleux

Nos milieux bulleux sont synthétisés en injectant du diazote pollué au C_6F_{14} (accroissant la stabilité des bulles dans le temps) dans un fluide à seuil, à l'aide d'un capillaire de rayon $20 \mu\text{m}$ déplacé par des moteurs [3]. La contrainte seuil du fluide permet de piéger les bulles, dont l'immobilité est nécessaire à l'observation d'une *coda* bien développée [4], [5].

L'injection se fait dans une cuve de 3 cm d'épaisseur, dont les parois en Mylar, de $14 \mu\text{m}$ d'épaisseur, sont assez transparentes aux ultrasons jusqu'à 30 MHz.

Ce dispositif permet la conception de gels contenant des bulles identiques, de rayon minimal $R_0 = 75 \mu\text{m}$, et de concentration maximale $n = 8 \text{ bulles.mm}^{-3}$. L'injection initiale n'étant pas aléatoire, il faut touiller l'échantillon afin de le désordonner. La figure (2) présente une photo d'un tel échantillon, d'épaisseur $L = 9,3 \text{ mm}$, utilisé lors des expériences suivantes.

2.2 Dispositif expérimental et longueurs caractéristiques

Le dispositif expérimental est représenté sur la figure (3). Un transducteur ultrasonore (fréquence centrale 3,5 MHz, diamètre $2a = 38 \text{ mm}$) émet dans l'eau une

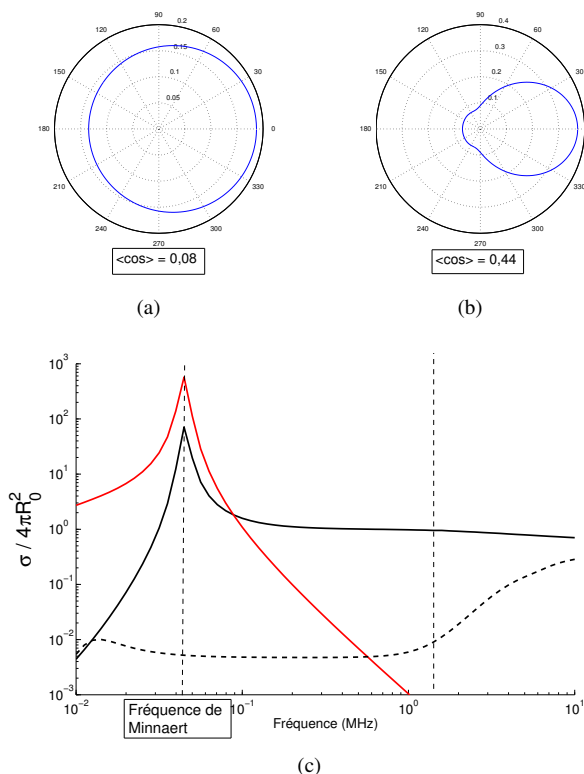


FIGURE 1 – (a) et (b) : Fonctions de diffusion d'une bulle de diazote de rayon $75 \mu\text{m}$, aux fréquences 2 et 7 MHz.

(c) : Sections efficaces de diffusion (rouge) et de dissipation (noir) d'une bulle de diazote en fonction de la fréquence. Comparaison avec la section efficace de diffusion d'une bille d'acier (pointillés noirs).

Cette étude porte sur la propagation ultrasonore dans des milieux hétérogènes aléatoires discrets. Nos hétérogénéités

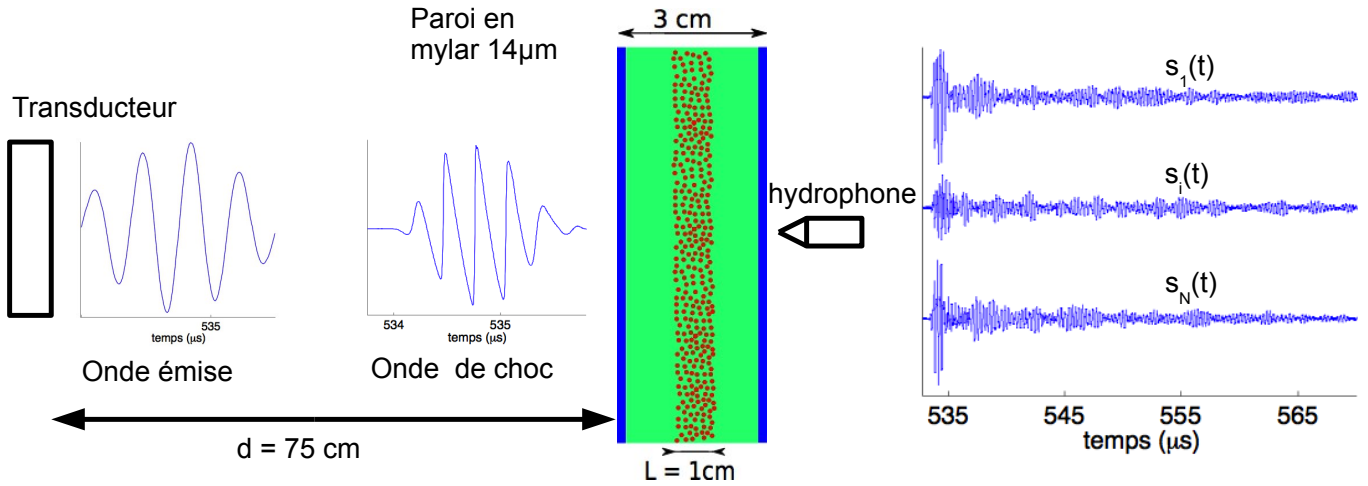


FIGURE 3 – Dispositif expérimental. Le transducteur émet une impulsion ultrasonore dans l'eau. Sa propagation non linéaire engendre une onde de choc, rencontrant l'échantillon immergé. L'hydrophone mesure l'onde transmise à travers l'échantillon. Trois signaux, mesurés pour différentes positions du couple émetteur/récepteur par rapport à l'échantillon, sont représentés en fonction du temps.

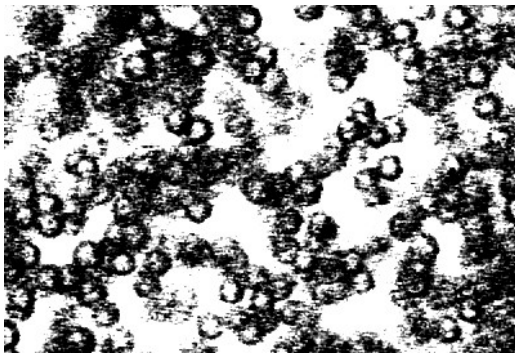


FIGURE 2 – Échantillon de bulles désordonnées.

impulsion d'enveloppe gaussienne comportant 5 périodes aux fréquences 2 ou 3,5 MHz. A ces fréquences, la distance caractéristique de la diffraction (a^2/λ) vaut respectivement 48 et 84 cm.

Immerger l'échantillon bulleux à une distance $d = 75$ cm de la source permet donc de le soumettre à une forme d'onde acoustique stable, en dehors de la zone d'interférences caractéristique du champ proche. A cette distance, le faisceau acoustique diverge également assez peu.

Par ailleurs, pour des amplitudes d'émissions suffisamment élevées, la non linéarité de la propagation dans l'eau engendre cumulativement des harmoniques des fréquences initiales de l'impulsion, pouvant conduire à la formation d'une onde de choc [6]. Pour une onde plane, la distance à laquelle apparaît une discontinuité de la pression est :

$$L_c = \frac{1}{k\beta M}, \quad (1)$$

où k est le nombre d'onde, β est le coefficient de non linéarité du milieu et $M = \frac{v_0}{c_0}$ est le nombre de Mach acoustique, rapport de l'amplitude de vitesse particulière v_0 sur la vitesse du son c_0 .

Dans l'eau ($c_0 = 1500$ m/s et $\beta = 3,5$), à 3,5 MHz, l'émission d'une amplitude $v_0 = 0,06$ m/s (correspondant

à une surpression acoustique $p_0 = 90$ kPa) conduit à l'apparition d'un choc à une distance $L_c = 50$ cm de la source. Comme la calibration du transducteur par interférométrie optique a montré sa capacité à émettre cette amplitude, il est possible de soumettre l'échantillon placé à $d = 75$ cm de la source à une onde de choc [7].

L'utilisation d'une onde de choc permet d'une part d'étudier la compétition entre les effets non linéaires et la diffusion multiple, et d'autre part de sonder l'échantillon sur une large plage fréquentielle, de 1 à 15 MHz, avec un unique transducteur [8].

L'onde transmise est mesurée 2 cm après sa sortie de l'échantillon, par un hydrophone de résolution latérale $200 \mu\text{m}$ et de bande passante 0,5 – 20 MHz. Sa transmission est mesurée sur plusieurs réalisations du désordre des bulles, en déplaçant conjointement le couple émetteur/récepteur par rapport à l'échantillon.

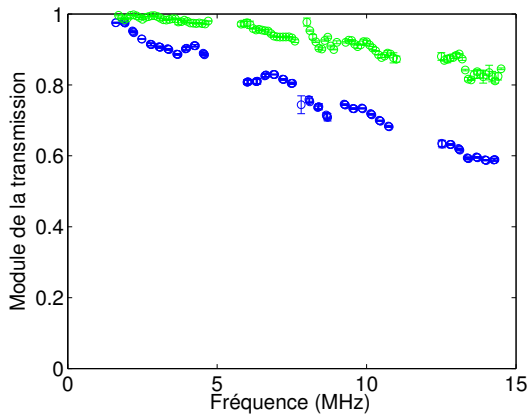
A cette fin, les mesures sont réalisées sur trois lignes de hauteurs différentes, espacées de 1 mm. Chaque ligne comporte 81 positions de mesure, espacées de $500 \mu\text{m}$. Le champ transmis est donc mesuré sur $N = 243$ positions différentes. Le pas d'acquisition a été choisi de façon à ce que chaque signal mesuré soit significativement décorrélé de ses voisins.

Enfin, les transmissions acoustiques par le fluide à seuil et par les parois de la cuve ont été caractérisées, en l'absence de bulles. La figure (4) montre en particulier que le fluide à seuil n'est pas dispersif. Il est alors possible de mesurer l'effet des bulles déconvolué de celui de la cellule les contenant.

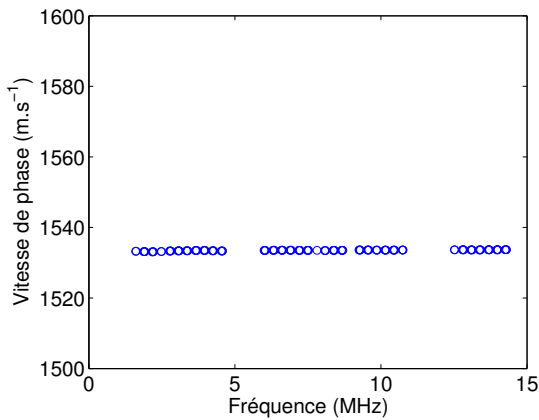
3 Champs cohérents et incohérents

Le champ total S peut être vu comme la superposition d'un champ moyen $\langle S \rangle$ et de ses fluctuations provenant du désordre des bulles δS :

$$S = \langle S \rangle + \delta S. \quad (2)$$



(a)



(b)

FIGURE 4 – (a) : Transmissions des parois en Mylar de la cuve (vert), et du fluide à seuil (bleu) en fonction de la fréquence.

(b) Vitesse de phase d'une onde acoustique se propageant dans le fluide à seuil en fonction de la fréquence.

3.1 Le champ cohérent

Le champ cohérent $\langle S \rangle$ est estimé par la moyenne des N mesures $s_i(t)$ acquises aux différentes positions du couple émetteur/récepteur :

$$\langle S(t) \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N s_i(t). \quad (3)$$

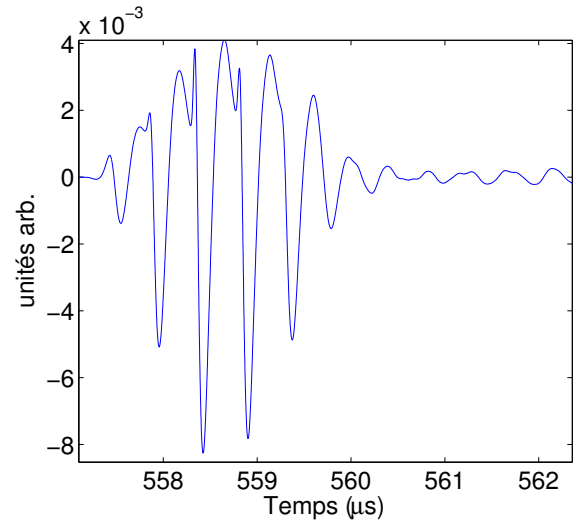
La figure (5) représente le champ cohérent mesuré à travers un échantillon de bulles de rayon $R_0 = 75\mu\text{m}$, de concentration $n = 5,4 \text{ bulles}/\text{mm}^3$ (correspondant à une fraction volumique de gaz $\phi = 0,96\%$).

Le champ résultant de la diffusion d'une onde plane $e^{j\vec{k}_0 \cdot \vec{r}}$ par une bulle est donné par :

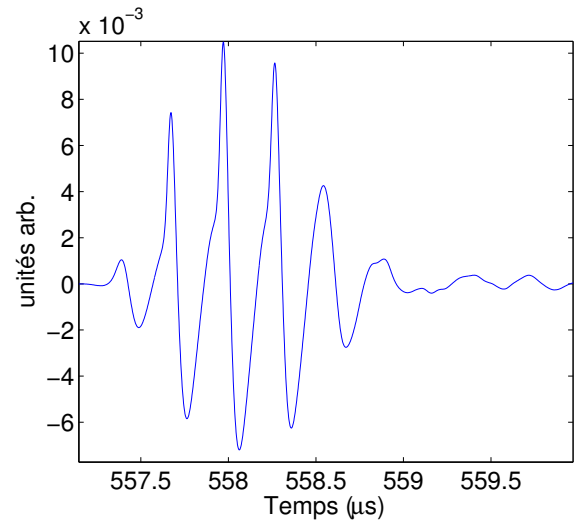
$$e^{j\vec{k}_0 \cdot \vec{r}} + f(\theta) \frac{e^{jk_0 r}}{r}, \quad (4)$$

où f est la fonction de diffusion de la bulle, qui dépend de l'angle θ entre les vecteurs d'onde incident et diffusé. La dépendance temporelle $e^{-j\omega t}$ est volontairement omise ici. Cette fonction de diffusion a été largement étudiée [9].

Pour modéliser la propagation cohérente dans un milieu multiplement diffuseur, en première approximation, les boucles de diffusions, ainsi que les corrélations de positions



(a)



(b)

FIGURE 5 – Champ cohérent mesuré pour une onde de choc incidente de fréquence fondamentale : (a) 2 MHz, (b) 3,5 MHz.

existant potentiellement entre les diffuseurs, sont négligées. C'est "l'Independent Scattering Approximation" (ISA), qui prédit que le champ cohérent se propage avec un nombre d'onde effectif k_{eff} donné par [10] :

$$k_{eff}^2 = k_0^2 + 4\pi n f_0, \quad (5)$$

où $f_0 = f(\theta = 0)$ est l'amplitude de l'onde diffusée vers l'avant.

La transmission du champ acoustique prédite par l'ISA est donc :

$$T = e^{-\Im(k_{eff})L} e^{j\Re(k_{eff})L}, \quad (6)$$

où L est l'épaisseur du milieu bulleux.

$L_e = 1/2\Im(k_{eff})$ est le libre parcours moyen élastique de diffusion, correspondant à la longueur d'atténuation effective du champ cohérent.

$v_\phi = \frac{\omega}{\Re(k_{eff})}$ est la vitesse de phase du champ cohérent.

La figure (6) compare les mesures résolues en fréquence du module de la transmission acoustique et de la vitesse de phase, avec ceux prédit par l'ISA.

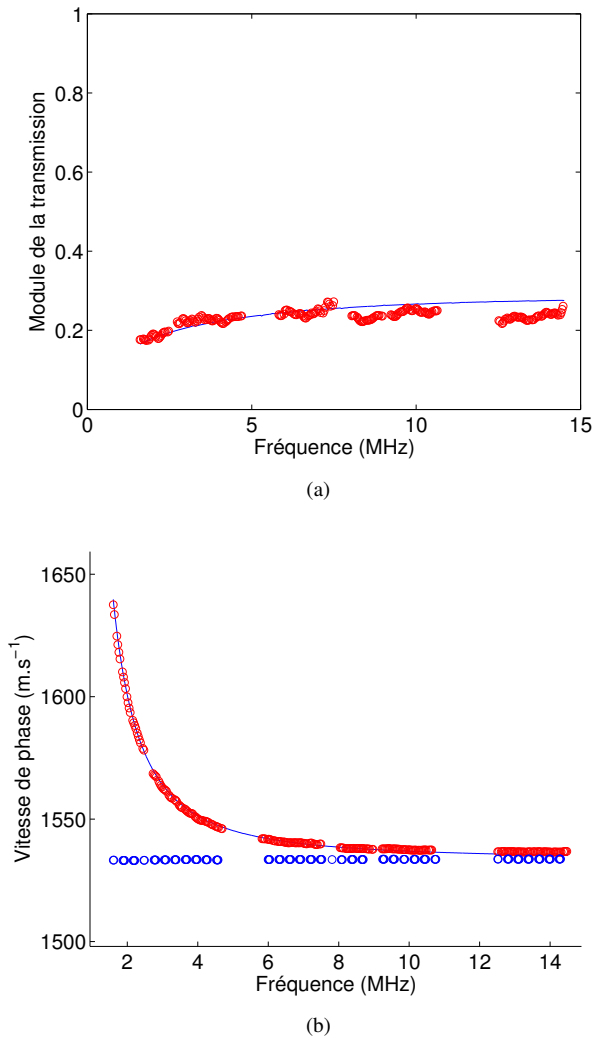


FIGURE 6 – Module de la transmission acoustique (a) et vitesse de phase (b), mesurés expérimentalement (points), en fonction de la fréquence. Comparaison avec le modèle de l’ISA (trait plein).

Négliger les corrélations de positions des diffuseurs est une approximation, car les bulles ne peuvent physiquement pas s’interpénétrer. D’autres modèles prenant en compte ces corrélations existent [11], mais la correction qu’ils apportent ici est négligeable en raison de la très faible fraction volumique de gaz $\approx 1\%$.

La figure (6) montre que la transmission acoustique de notre échantillon est très bien décrite par l’ISA, qui est un modèle de propagation linéaire. Il n’y a donc pas de couplage entre non linéarité et diffusion multiple dans l’échantillon, pour la gamme de fréquences étudiée. Les bulles se comportent en particulier comme des diffuseurs linéaires. La transmission de l’onde de choc s’interprète donc comme la superposition des transmissions de chaque harmonique la composant.

Dans cet échantillon, le libre parcours moyen élastique de diffusion L_e vaut 2,5 mm à 2 MHz et 3 mm à 3,5 MHz. Il croît ensuite légèrement jusqu’à 3,5 mm à 15 MHz.

L’onde de choc permet de caractériser l’échantillon sur une très large bande de fréquences, allant de 1 à 15 MHz, avec un seul transducteur.

3.2 Le champ incohérent

Pour étudier le champ incohérent, nous nous intéressons à la moyenne d’ensemble de l’intensité d’une réalisation : $\langle I \rangle = \langle |\psi|^2 \rangle$.

Expérimentalement, l’intensité moyenne autour d’une fréquence donnée f est obtenue en filtrant les signaux mesurés $s_i(t)$ dans la bande de fréquence désirée, puis en effectuant la moyenne des carrés des champs transmis filtrés $s_{i,f}(t)$. Elle est alors normalisée par l’intensité totale du champ incident autour de cette fréquence :

$$\frac{\langle I(t) \rangle_f}{I_{0,f}} = \frac{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N s_{i,f}^2(t)}{\int s_{inc,f}^2(t) dt} \quad (7)$$

La modélisation de la propagation de la densité locale d’énergie acoustique W (proportionnelle à l’intégrale de l’intensité spécifique sur les angles de diffusion) fait appel à l’approximation de la diffusion. Elle repose d’abord sur une séparation des échelles spatiale et temporelle de variation de l’intensité moyenne et de l’onde diffusée. L’approximation pré-isotrope suppose ensuite que la distribution angulaire de la diffusion de l’énergie transportée par l’onde devient de plus en plus isotrope au fil de la propagation dans le milieu. Pour que cette approximation soit valable, il faut que l’épaisseur L de l’échantillon soit très grande devant le libre parcours moyen élastique L_e . Enfin, le milieu est supposé statistiquement isotrope. Avec ces hypothèses, la densité locale d’énergie vérifie, dans un milieu infini, l’équation de la diffusion :

$$\frac{\partial W}{\partial t} = D \Delta W \quad (8)$$

D est le coefficient de diffusion, qui, à 3 dimensions, est relié au libre parcours moyen de transport l^* et à la vitesse de transport de l’énergie c par : $D = \frac{l^* c}{3}$.

l^* s’exprime en fonction du libre parcours moyen élastique L_e à l’aide de la relation :

$$l^* = \frac{L_e}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \quad (9)$$

où $\langle \cos \theta \rangle$ est le cosinus moyen de l’angle de diffusion.

Ce dernier est défini par :

$$\langle \cos \theta \rangle = \frac{\int_0^\pi |f(\theta)|^2 \cos(\theta) d\theta}{\int_0^\pi |f(\theta)|^2 d\theta} \quad (10)$$

La fonction de diffusion f d’une bulle dépend fortement de la fréquence de l’onde incidente sur la bulle, comme le montre la figure (1) [9].

La vitesse de transport de l’énergie c est généralement supposée constante et elle joue alors le rôle d’un paramètre d’ajustement. Ses variations fréquentielles ont néanmoins été mises en évidence récemment [8].

L’équation de la diffusion (8) est valable dans un milieu infini. Pour déterminer le coefficient de diffusion D la gouvernant dans nos échantillons d’épaisseur finie, il faut donc tenir compte de conditions aux limites. On suppose alors qu’il n’y a aucun flux d’énergie aux interfaces, c’est-à-dire que l’énergie sort de l’échantillon sans être réfléchi. Cette hypothèse, consistant à négliger les réflexions, est satisfaisante car, du fait de la faible fraction volumique de gaz, l’impédance effective du milieu bulleux est très proche

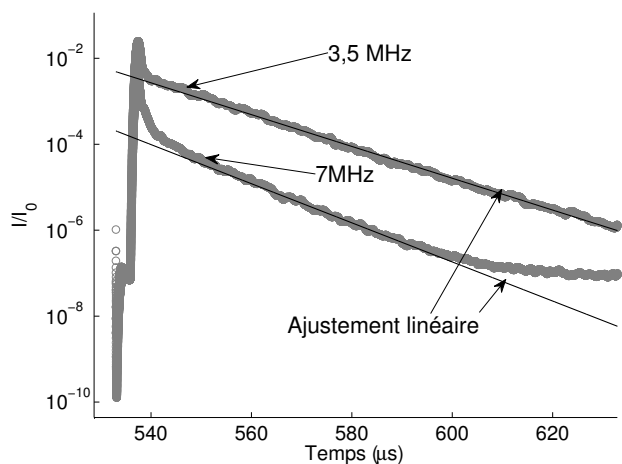


FIGURE 7 – Temps de vols aux fréquences 3,5 MHz et 7MHz. Ajustement avec une exponentielle décroissante e^{-t/τ_D} .

de l'impédance du fluide à seuil environnant. La densité locale d'énergie W vérifie alors les conditions aux limites :

$$W(z = -\frac{2}{3}l^*, t) = 0 \quad \text{et} \quad W(z = L + \frac{2}{3}l^*, t) = 0. \quad (11)$$

L'expression de la densité locale d'énergie W est alors une somme modale :

$$W(z', t) = \sum_{n=1}^{\infty} A_n \sin\left(\frac{n\pi z'}{L + \frac{4}{3}l^*}\right) e^{-D\left(\frac{n\pi}{L + \frac{4}{3}l^*}\right)^2 t} \times e^{-\frac{t}{\tau_a}}, \quad (12)$$

où $z' = z + \frac{2}{3}l^*$.

τ_a est le temps caractéristique d'absorption du gel, calculé grâce à la mesure de son atténuation.

Chaque mode de diffusion décroît temporellement avec un temps caractéristique : $\tau_n = \frac{(L + \frac{4}{3}l^*)^2}{n^2\pi^2 D}$.

Pour les temps longs vérifiant $t \gg \frac{\tau_1}{3}$, le premier mode est dominant, et les autres sont négligeables. W décroît donc avec un temps caractéristique $\tau_D = \tau_1$, pour $t \gg \frac{\tau_1}{3}$. La valeur théorique du temps caractéristique de diffusion est alors donnée par :

$$\tau_D = \frac{(L + \frac{4}{3}l^*)^2}{\pi^2 D}. \quad (13)$$

La quantité que l'on mesure (cf. équation (7)) est le flux moyen d'énergie, correspondant au vecteur de Poynting. Elle est liée à W par la relation : $J = -D \frac{\partial W}{\partial z} \Big|_{z=L}$.

L'évolution temporelle de $J(z = L, t)$ est donc la même que celle de $W(z = L, t)$ [12], et le coefficient de diffusion D peut être déduit de la courbe expérimentale des temps de vols.

La figure (7) montre les courbes de temps de vols mesurées aux fréquences 3,5 et 7 MHz, ainsi que les ajustements exponentiels aux temps longs, pour un échantillon de concentration $n = 5,4 \text{ bulles.mm}^{-3}$, de rayon $R_0 = 75 \mu\text{m}$ et d'épaisseur $L = 9,3 \text{ mm}$.

Dans cet échantillon dont nous avons déjà étudié la transmission cohérente (cf. figure (6)), le libre parcours moyen L_e vaut environ 3 mm. L'épaisseur de l'échantillon n'est donc égale qu'à 3 libres parcours moyen, et cependant,

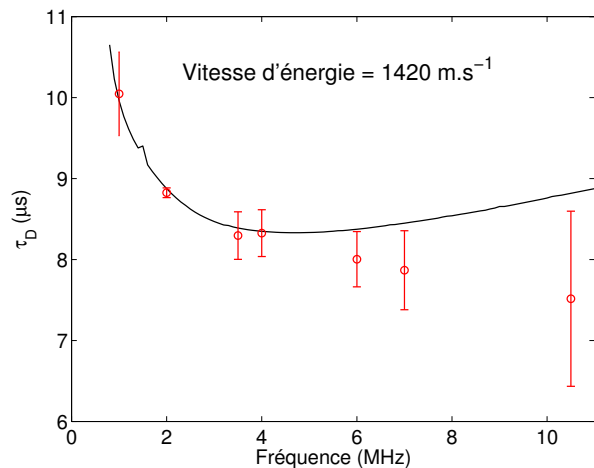


FIGURE 8 – Mesure de τ_D (rouge) et comparaison avec l'expression théorique donnée par l'équation (13) (noir).

l'approximation de la diffusion est malgré tout vérifiée expérimentalement.

Le choix de la fenêtre $[t_1; t_2]$ de l'ajustement est soumise à deux contraintes. D'abord, l'ajustement conduisant à trouver un temps caractéristique de diffusion τ_D , il faut que t_1 soit très grand devant τ_D pour que le premier mode domine les autres.

Ensuite, aux temps très longs, l'intensité tend vers une valeur limite, qui est l'intensité du bruit de mesure. Sur la figure (7), l'intensité du signal filtré autour de 3,5 MHz n'atteint jamais le niveau de bruit, car il s'agit de l'énergie contenue dans la composante fondamentale de l'onde de choc, qui est la plus importante. L'intensité du signal filtré à 7MHz atteint en revanche le niveau de bruit à environ $600 \mu\text{s}$.

Finalement, le critère choisi pour déterminer t_2 est que l'intensité doit être 2 fois plus grande que le niveau de bruit. Cet encadrement de t_2 détermine celui de τ_D , qui constitue l'incertitude de mesure.

A nouveau, l'utilisation d'une onde de choc permet la mesure de τ_D sur une large gamme fréquentielle, comme le montre la figure (8).

Dans notre expérience, l'approximation de la diffusion est valable jusqu'à environ 4 MHz. Au delà, cette approximation prédit une augmentation de τ_D avec la fréquence (signifiant que la diffusion croît), en contradiction avec l'observation expérimentale (cf. figure (8)). L'échec du modèle de diffusion à décrire l'expérience vient du comportement des diffuseurs. En effet, plus la fréquence augmente, plus la diffusion d'une bulle est piquée vers l'avant, au détriment des autres directions. Le libre parcours moyen de transport l^* devient alors trop grand par rapport à l'épaisseur L de l'échantillon et l'hypothèse d'isotropisation progressive du champ n'est plus valable.

Connaissant L_e (et donc l^* d'après la relation (9)), il est possible d'estimer le coefficient de diffusion D de l'échantillon, dans l'intervalle de fréquences où modèle et expérience sont en bon accord. Il y varie entre $1,1 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ à 1MHz et $3 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ à 4MHz.

Enfin, notons que les quatre premiers points expérimentaux de la figure (8) nous conduisent à choisir une vitesse de propagation de l'énergie c de 1420 m.s^{-1} .

4 Conclusion

Nous avons étudié la propagation d'une onde de choc ultrasonore dans des gels bulleux aléatoires multiplement diffuseurs.

La propagation de l'onde cohérente est bien décrite par l'ISA, montrant ainsi que la non linéarité est dominée par la diffusion multiple au sein de ces échantillons. Par ailleurs, l'influence des corrélations de position des diffuseurs est négligeable, en raison de la faible fraction volumique de gaz qui y est contenue (inférieure à 1 %).

Le champ incohérent est bien décrit par l'approximation de la diffusion, tant que le libre parcours moyen de transport l^* est suffisamment petit devant la longueur de l'échantillon L . L'application de conditions aux limites adéquates nous a permis d'estimer le coefficient de diffusion D de ces milieux.

Dans un futur proche, nous étudierons l'influence des variations du milieu sur l'onde acoustique transmise (Diffusing Acoustic Wave Spectroscopy) [13], [14].

Références

- [1] A. Ishimaru : Wave Propagation and Scattering in Random Media. New York : Academic Press, 1978
- [2] The acoustic Bubble. T. G. LEIGHTON. Academic Press
- [3] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, *Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments*. J. acoust. soc. Am **123** (2008).
- [4] J. Powers, T. R. Porter, S. Wilson, M. Averkiou, D. Skyba, M. Bruce, *Ultrasound contrast imaging research MEDICA MUNDI* **44** (2000).
- [5] S. Hilgenfeldt, D. Lohse, M. Zomack *Response of bubbles to diagnostic ultrasound : a unifying theoretical approach*. Eur. Phys. J. B **4**, 247-255 (1998)
- [6] M. F. Hamilton et D. T. Blackstock : Nonlinear Acoustics. Academic, New York, 1998.
- [7] C. Barrière et D. Royer : Optical measurement of large transient mechanical displacements. Appl. Phys. Lett., 79(6) :878–880, 2001.
- [8] N. Viard, Contribution expérimentale à l'étude de la diffusion multiple des ultrasons en régimes de propagation linéaire et non linéaire, Thèse de doctorat de l'université Paris-Diderot, 2014
- [9] J. R. Allegra, S. A. Hawley *Attenuation of sound in suspensions and emulsions : theory and experiments*. (1971)
- [10] L. L. Foldy : The multiple scattering of waves. Physical Review, 67 :107–119, 1945.
- [11] A. Derode, V. Mamou, A. Tourin, *Influence of correlations between scatterers on the attenuation of the coherent wave in a random medium*, Phys. Rev. E **74**, 036606 (2006).
- [12] J. H. Page, H. P. Schriemer, A. E. Baily, D. A. Weitz, *Experimental test of the diffusion approximation for multiply scattered sound.*, Phys Rev. **52**, number 3 (1995).
- [13] M. L. Cowan, I. P. Jones, J. H. Page, D. A. Weitz, *Diffusing acoustic wave spectroscopy*. Phys. Rev. E, **65**, 066605 (2002)
- [14] V. Leroy, A. Derode, *Temperature-dependent diffusing acoustic wave spectroscopy with resonant scatterers*. Phys. Rev. E, **77**, 036602 (2008)