

Procédés de suivi rhéologique par champ proche acoustique appliqués aux bitumes

Bernard CROS

Professeur à l'Université de Technologie de Belfort-Montbéliard
en Délégation au CNRS au Laboratoire d'Analyse des interfaces
et de nanophysique

J.-Y. FERRANDIS

Chercheur au Laboratoire d'Analyse des Interfaces et de nanophysique

G. LÉVÊQUE

Professeur à l'Université Montpellier 2
Laboratoire d'Analyse des Interfaces et de nanophysique

**Note
technique**

Résumé

La technique de champ proche acoustique consiste à étudier les caractéristiques de résonance d'une sonotrode dont la sonde est immergée dans l'échantillon. Elle est appliquée ici à la caractérisation qualitative de bitumes purs. Deux pics de résonance sont observés. La fréquence de résonance et la partie réelle de l'impédance à la résonance sont les paramètres dont la variation est suivie et reliée empiriquement à la variation des propriétés rhéologiques utilisées pour le contrôle qualitatif des échantillons. Différents procédés sont mis en œuvre pour la caractérisation à la température ambiante (essai de pénétration) et pour le suivi des propriétés rhéologiques en fonction de la température depuis l'ambiante jusqu'à 100 °C.

Introduction

Une méthode originale de caractérisation des matériaux viscoélastiques basée sur le champ proche acoustique a été mise au point au laboratoire [1-2]. Le principe consiste à étudier les modifications des caractéristiques de résonance d'une sonotrode en fonction de l'évolution des propriétés physiques du milieu dans lequel sa partie terminale (sonde) est immergée.

Cette technique s'est révélée très sensible aux propriétés rhéologiques. Dans le cas de matériaux qui sont le siège de variations importantes sous l'effet de réactions telles que polymérisation, réticulation ou gélification (qui est une forme de réticulation), la microscopie en champ proche acoustique permet de suivre l'augmentation de la viscosité et met en évidence l'apparition de l'élasticité [3]. Elle a été appliquée à la mise en évidence du seuil de cisaillement de la pâte de ciment [4]. Le but de cette étude est d'évaluer la technique pour la caractérisation de matériaux de viscosité très élevée tels que les bitumes.

La technique de champ proche acoustique

Principe

Un signal électrique sinusoïdal basse fréquence (environ 50 kHz) alimente un transducteur piézo-électrique pour être converti en ondes acoustiques. Le signal acoustique est transmis à une sonotrode formée d'un cylindre métallique à section variable (fig. 1), la section de la partie terminale (sonde) étant très inférieure à la longueur d'onde. Le signal acoustique est modifié par l'interaction entre la sonde et le fluide dans lequel elle est

immergée. Il en résulte une variation de signal électrique au niveau du transducteur. Ce dispositif résonnant est ainsi très sensible au milieu environnant la sonde, qu'il soit gazeux, liquide, semi-solide (gel) ou solide. Le milieu constitue en effet pour la sonotrode une charge qui modifie les caractéristiques de résonance détectées par un balayage en fréquence (fig. 2). Après enregistrement de la courbe de résonance de la sonotrode dans l'air, la sonde est plongée dans le milieu à caractériser. Le glissement de la fréquence de résonance Δf et $\Delta(1/Z)$ la variation de l'inverse du maximum de la partie réelle de l'impédance d'entrée du pavillon à la nouvelle fréquence de résonance sont les deux informations exploitées. Les valeurs de référence sont mesurées sur la courbe de résonance dans l'air. Les variations Δf et $\Delta(1/Z)$ sont proportionnelles, respectivement, à la partie imaginaire et à la partie réelle de l'impédance de charge. Dans le cas de milieux

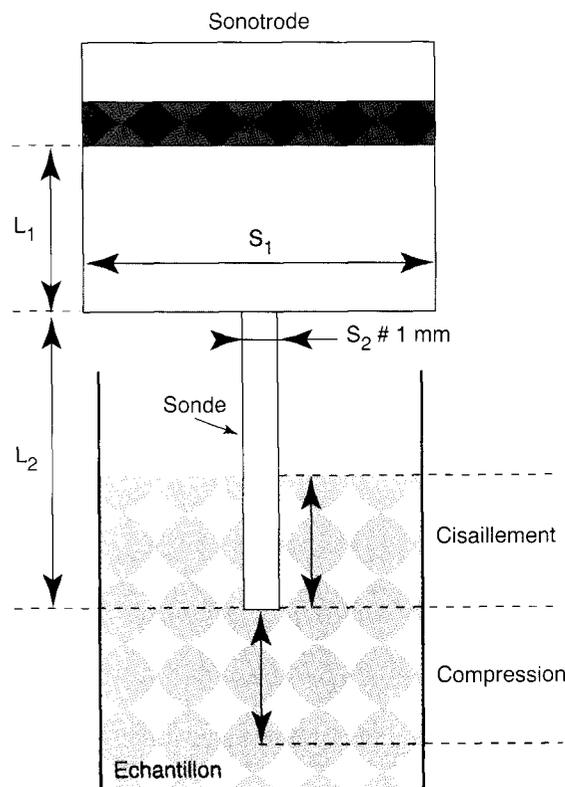


Fig. 1 - Schéma de la sonotrode.

liquides, la viscosité η et la densité ρ sont reliées à la fréquence de résonance et à la partie réelle de l'impédance par :

$$\Delta f = A\rho + B(\rho\eta)^{1/2} \text{ et } \Delta(1/Z) \\ = C(\rho\eta)^{1/2}$$

A, B et C sont des constantes pour un dispositif expérimental donné.

La première caractéristique de cette technique est le caractère très localisé des interactions avec le milieu environnant et, donc, des mesures. En effet, l'épaisseur de matériau affectée par les mouvements de la sonde est de quelques dizaines de nm.

Appareillage

Le schéma général de l'appareillage est présenté sur la figure 3. La sonotrode est composée de deux pavillons juxtaposés (fig. 1). Une étude théorique [2] a montré que cette géométrie étagée assure, entre l'extrémité de la sonotrode en contact avec la céramique et la sonde, une amplification importante des mouvements. En retour, la sensibilité aux modifications des caractéristiques de résonance liées à l'évolution des propriétés du milieu dans lequel la sonde est immergée est optimisée par cette géométrie. Le facteur d'amplification du déplacement M est donné par la formule (2) :

$$|M_{\text{étagé}}| = |S_1 \cos kL_1| / |S_2 \cos kL_2| \quad (2)$$

$k = \omega/c$ est le vecteur d'onde dans le matériau du pavillon. S_1 , L_1 et S_2 , L_2 sont les sections et les longueurs, respectivement, de l'étage en contact avec le transducteur et de l'étage en contact avec le milieu étudié. Pour $L_1 = L_2$, $M_{\text{étagé}}$ devient maximum et égal à S_1/S_2 .

L'excitation est assurée par un empilement de disques piézo-électriques de type PZT27. La fréquence de résonance de l'ensemble dans l'air est de l'ordre de 52 000 Hz avec une résolution de 1 Hz. Le signal délivré par le synthétiseur a été fixé à 1 volt pour limiter à 10 nm environ l'amplitude des mouvements de

la sonde. La figure 2 illustre la réponse du capteur dans l'air, dans l'eau et dans un bitume. Les signaux sont amplifiés par un circuit électronique. Le balayage de fréquence est réalisé avec un pas de 1 Hz. La répétabilité des mesures est obtenue par étalonnage par rapport aux conditions de résonance dans l'air.

La sonotrode est sensible aux variations de température par les effets de la dilatation et de la variation des propriétés élastiques du métal qui la constitue. Ces variations sont limitées par l'utilisation d'une sonotrode en invar à 10 Hz par degré et déterminées par un étalonnage.

Modélisation de la réponse du capteur

Pour des charges faibles ou moyennes, la courbe de résonance modélisée présente 2 pics (fig. 4). Le plus important apparaît à une fréquence proche de 46 kHz (il est désigné par la suite pic 1). Il correspond à la résonance du tronçon supérieur de la sonotrode (perturbée par son couplage avec le tronçon inférieur). Le second, à 52 kHz environ (désigné par la suite pic 2), correspond à la résonance du petit cylindre, la sonde (perturbée par son couplage avec le tronçon supérieur), en contact avec l'échantillon. Lorsque la charge augmente, l'amplitude des 2 pics diminue ($\Delta(1/Z)$ augmente, fig. 5). Aux charges élevées, le pic 2 disparaît. Cette disparition du pic 2 correspond à un minimum d'amplitude du pic 1. Ce dernier croît à nouveau lorsque l'augmentation de la charge se poursuit, tandis que sa fréquence se déplace vers 48 kHz.

Fonctionnement du capteur

L'étude théorique du fonctionnement du capteur montre que l'évolution des propriétés du milieu d'immersion peut être suivie, jusqu'à des valeurs de charge très élevées, à partir de l'étude des conditions de résonance, c'est-à-dire par le suivi

des pics 1 et 2. L'évolution de milieux fluides est suivie avec une meilleure sensibilité par la variation des caractéristiques du pic 2. Lorsque la charge atteint des valeurs correspondant à celles d'un milieu proche de l'état solide et à une immobilisation de la sonde, le pic 2 disparaît et la caractérisation du milieu peut se poursuivre par l'étude des conditions de résonance du pic 1.

La variation $\Delta(1/Z)$ de l'inverse du maximum de la partie réelle de l'impédance de résonance électrique a une signification physique. Elle représente la variation de l'énergie dissipée par la sonotrode dans l'échantillon. Elle est ainsi représentative de la variation du module G'' du matériau. C'est $\Delta(1/Z)$ qui est étudiée expérimentalement.

La figure 6 montre les résultats de l'application de la technique au suivi de la pâte de ciment. La courbe A traduit l'augmentation de la viscosité pendant les premières heures qui suivent la préparation de la pâte, puis sa disparition après la prise. La courbe B met en évidence la prise par l'apparition de propriétés élastiques (seuil de cisaillement) et permet de suivre, après la prise, l'augmentation des propriétés élastiques.

Les échantillons

Quatre échantillons de différentes qualités de liants bitumineux ont été fournis par la Société Eurovia et par le Centre de Recherches BP France de Dunkerque : bitumes purs 20/30, 35/50, 70/100 et 180/220. Les mesures sont effectuées sur des prises d'essai de 2 à 3 cm³ contenues dans un récipient d'acier, c'est-à-dire de propriétés mécaniques suffisamment supérieures à celles des bitumes pour qu'elles n'influencent pas les mesures. La régulation de température est assurée par une plaque chauffante et par le volant thermique que constitue la masse du récipient.

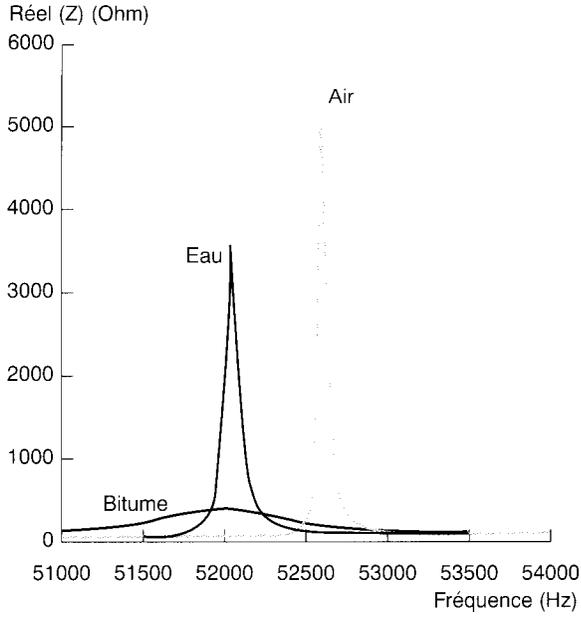


Fig. 2 - Évolution, avec le milieu d'immersion de la sonde, de la courbe de résonance (limitée à la plage du deuxième pic) de la sonotrode obtenue par un balayage de fréquence (sonde à l'air ambiant ; sonde immergée dans l'eau à température ambiante ; sonde immergée dans un bitume à 36 °C).

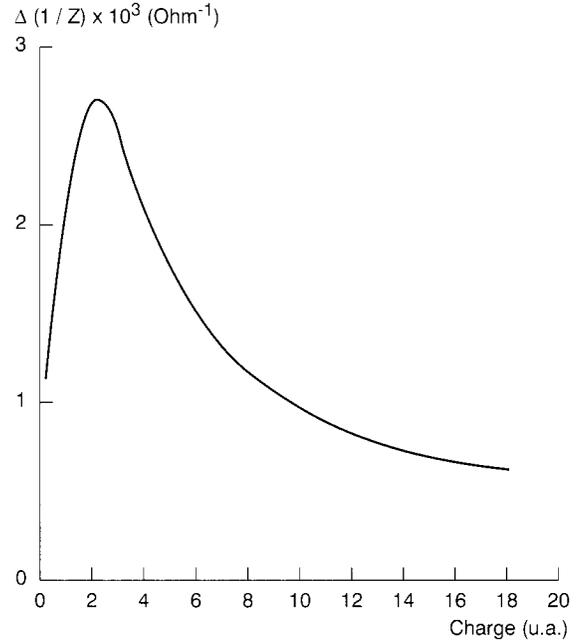


Fig. 5 - Modélisation de la variation $\Delta(1/Z)$ de l'inverse de la partie réelle de l'impédance électrique pour le pic 1.

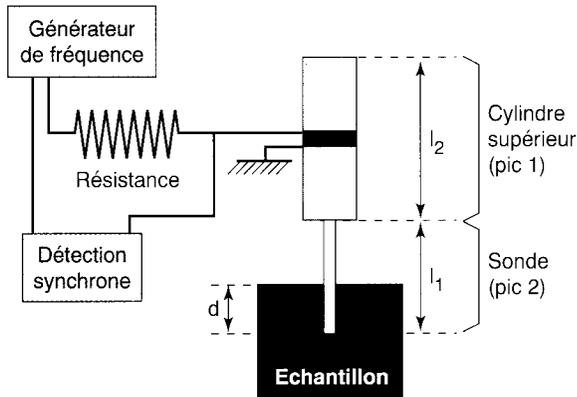


Fig. 3 - Schéma général de l'appareillage de champ proche acoustique.

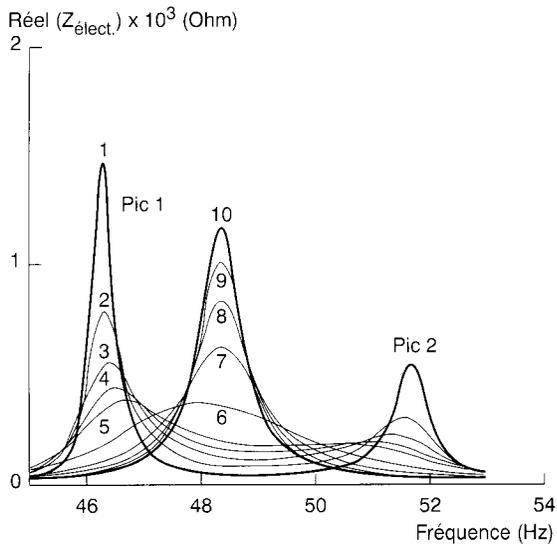


Fig. 4 - Évolution, en fonction de la charge s'exerçant sur la sonde, de la courbe de résonance modélisée.

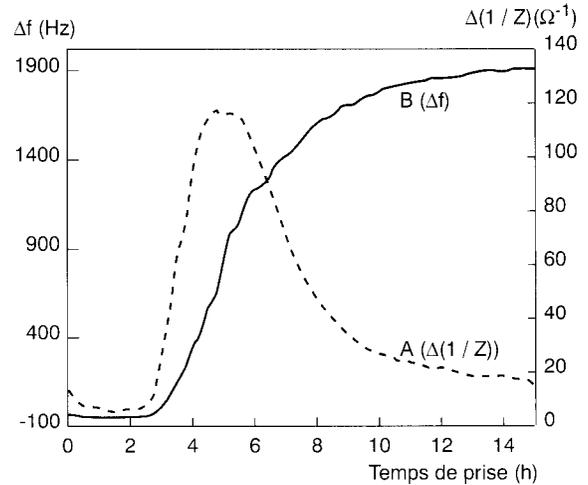


Fig. 6 - Caractérisation du seuil de cisaillement de la pâte de ciment par champ proche acoustique [4].

Résultats

La première étape de la démarche visant à mettre au point des procédés de caractérisation des liants bitumineux par microscopie acoustique en champ proche a consisté à suivre, pour chaque échantillon, l'évolution de la courbe de résonance en fonction de la viscosité du matériau, c'est-à-dire en fonction de la température. Les résultats expérimentaux sont conformes à l'évolution de la courbe de résonance prévue par modélisation (fig. 4). Lorsque la viscosité est basse (température élevée), la courbe révèle 2 pics de résonance. Le premier apparaît dans la plage de fréquence 46-48 kHz. Il correspond, comme le prévoit la modélisation, à la résonance de l'étage supérieur de la sonotrode, au contact des disques piézo-électriques. Le second se situe dans la plage 50-53 kHz. Il correspond à la résonance de l'étage inférieur (sonde). Lorsque la viscosité augmente (température plus basse), l'amplitude à la résonance du deuxième pic diminue, puis il disparaît, pendant que l'amplitude à la résonance du premier pic se stabilise.

La figure 7 caractérise les échantillons par l'évolution avec la température de la partie réelle de l'impédance à la résonance (en prenant la valeur de l'impédance à la résonance dans l'air comme référence). Les valeurs relevées à une même température permettent de comparer les différents types de bitumes. Le maximum de la courbe $\Delta(1/Z)$ représente la température pour laquelle la fluidité disparaît et le raideur apparaît. Les figures 8 et 9 caractérisent les échantillons par la valeur du glissement de la fréquence de résonance par rapport à la résonance dans l'air.

Les propriétés rhéologiques des échantillons à la température ambiante (24 °C) sont reflétées par les courbes représentant l'évolution, au cours de la pénétration de la sonde dans le matériau, du glissement de la fréquence de résonance et de la partie réelle de l'impédance à la résonance (résonance de l'étage

supérieur, seule observée à l'ambiante) (fig. 10).

Discussion

La partie réelle de l'impédance à la résonance de la sonde est essentiellement liée à l'énergie dissipée dans le matériau en contact avec la sonde, donc à sa viscosité [2]. Les courbes correspondantes (fig. 7) sont donc représentatives de l'évolution du module de dissipation G'' . Une valeur de l'impédance à la résonance correspond à une valeur de la viscosité et l'étalonnage de la technique par des échantillons de viscosité connue permettra des contrôles quantitatifs.

La température de disparition du deuxième pic peut être déterminée par extrapolation de la courbe représentant la variation de la partie réelle de l'impédance en fonction de la température. Elle correspond à une valeur définie de la viscosité, liée aux caractéristiques de la sonde. Cette température pour laquelle une valeur définie de la viscosité est atteinte est une caractéristique du couple sonde-matériau.

Les courbes correspondant à la résonance de l'étage supérieur présentent un maximum qui pourrait traduire une énergie dissipée optimale. Dans cette hypothèse, la diminution, de part et d'autre de ce maximum, serait due à des phénomènes différents. Pour des températures plus élevées que celle correspondant au maximum, la diminution de l'énergie dissipée traduirait une augmentation de la fluidité. En effet, l'élévation de température entraîne la rupture des liaisons faibles et les mouvements des chaînes des macromolécules constituant le bitume sont favorisés. À l'opposé, la diminution vers les températures plus basses que celle du maximum traduirait la disparition du caractère visqueux du matériau et l'apparition de propriétés élastiques. L'étude théorique et la modélisation de la résonance de la sonotrode doivent permettre de relier les informations mesurées aux propriétés rhéologiques, c'est-à-dire aux modules de conservation G' et de dissipation G'' .

La courbe d'évolution des caractéristiques de résonance avec la profondeur d'immersion de la sonde dans le bitume constitue une caractérisation du matériau à la température ambiante sous la forme d'un test de pénétration. L'amplitude à la résonance pour une profondeur donnée, par exemple 3 mm est un paramètre permettant de comparer les matériaux, au même titre que l'allure de la courbe. Comme le montrent les figures 4 et 5, le maximum des courbes de la figure 10 correspond à la profondeur d'immersion qui bloque la sonde (le cylindre inférieur). Pour des profondeurs plus importantes, l'augmentation d'impédance traduit la réponse élastique du milieu.

Conclusion

Les procédés de contrôle rhéologique faisant appel à la technique de champ proche acoustique se sont révélés très faciles à mettre en œuvre en raison de la simplicité de cette technologie originale. Ils présentent de plus l'avantage de pouvoir être utilisés soit *in situ* par implantation de la sonde d'une profondeur de quelques millimètres dans le bitume, soit par prélèvement sur de très faibles volumes de matériau, de l'ordre de quelques millimètres cubes. L'étude des courbes de résonance a permis la caractérisation qualitative des échantillons, aussi bien à la température ambiante qu'en fonction de la température. Deux voies sont envisagées pour mieux adapter cette technique à la caractérisation des liants bitumineux. La première consiste à optimiser la géométrie de la sonde, particulièrement la longueur et la section relative des deux étages cylindriques de la sonotrode, mais aussi la forme de la sonde, pour mieux prendre en compte la viscosité très élevée et accroître la sensibilité des mesures. La seconde est un étalonnage par des matériaux de propriétés connues pour relier les caractéristiques de résonance aux propriétés rhéologiques, plus précisément, les modules G' et G'' .

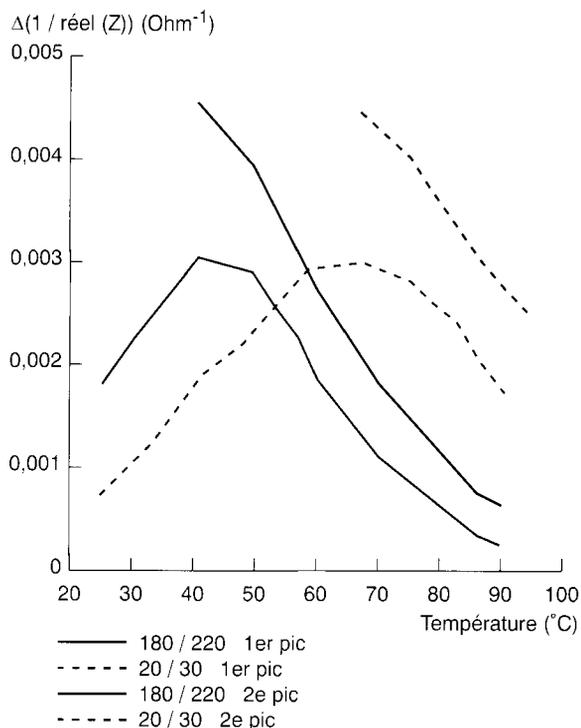


Fig. 7 - Variation avec la température du bitume de l'impédance à la résonance pour le premier et le deuxième pic (bitumes 20/30 et 180/220). Pour montrer la relation avec la viscosité, l'échelle d'ordonnée représente l'inverse de la partie réelle de l'impédance.

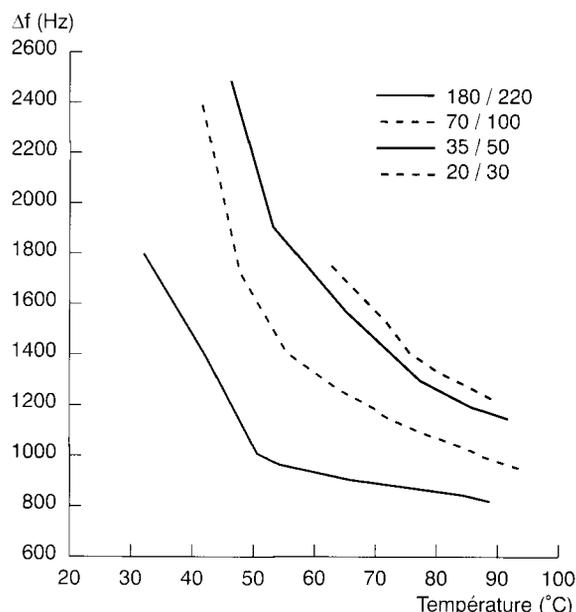


Fig. 9 - Variation avec la température du bitume de la fréquence de résonance du deuxième pic.

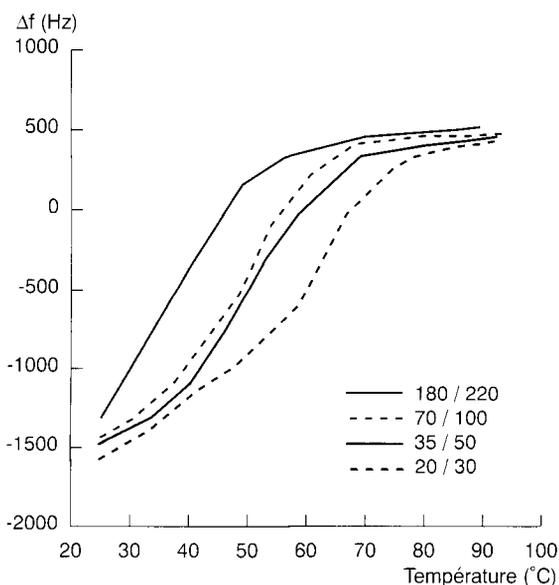


Fig. 8 - Variation avec la température du bitume de la fréquence de résonance du premier pic. L'échelle d'ordonnée représente le glissement de résonance de la sonotrode chargée (sonde immergée dans le bitume) par rapport à la sonotrode libre (résonance dans l'air).

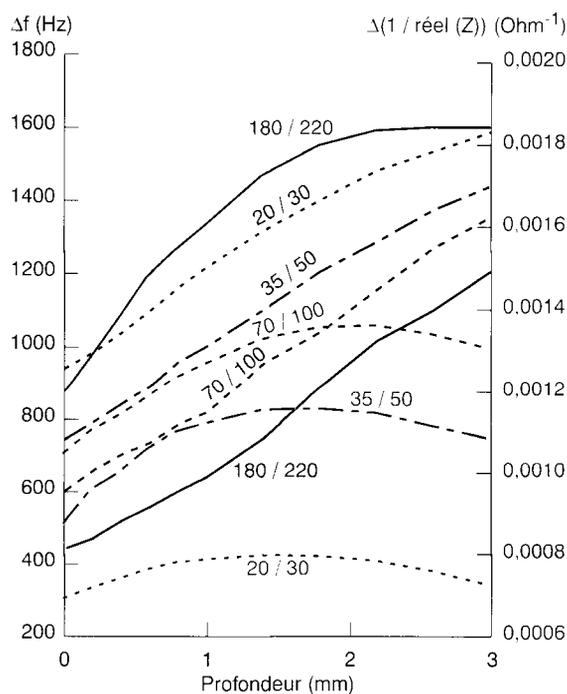


Fig. 10 - Variation avec la profondeur d'immersion dans le bitume à température ambiante (24 °C) de la fréquence de résonance (seul le premier pic apparaît à l'ambiante) et de l'impédance de la résonance.

La microscopie à champ proche acoustique étudie les interactions entre un système résonnant et le milieu à caractériser. Son principe fait que les mesures ont lieu dans un domaine étroit de fré-

quence. Ne prenant pas en compte l'évolution de la réponse du matériau en fonction de la fréquence, cette technique ne doit pas être considérée comme une méthode de caractérisation rhéologique.

Cependant, sa sensibilité à l'évolution des propriétés rhéologiques et la simplicité d'utilisation en font une méthode bien adaptée au contrôle qualitatif en laboratoire et sur chantier et au contrôle en ligne.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] VAN EST J., PRUGNE C., CROS B., ATTAL J., CRETIN B. (1998), Local measurements of viscoelastic properties of fluids using near-field ultrasonics, *Appl. Phys. A, Materials Science and Processing*, **66**, S357-S360.
- [2] PRUGNE C., VAN EST J., CROS B., LEVEQUE G., ATTAL J. (1998), Measurement of the viscosity of liquids by acoustic near field, *Meas. Sci. Technol.*, **9**, 1894-1898.
- [3] CROS B., FERRANDIS J.-Y., PAUTHE M. (1999), Étude de la mise en œuvre des polymères par champ proche acoustique, *Rev. Métall. - Science et Génie Matér.*, **96** (12), 1537-1545.
- [4] CROS B., FERRANDIS J.-Y. (1999), Characterization of the cement setting by acoustic near field, *Sensors and Actuators B*, **60** (2-3), 200-207.
-