

UNIVERSITE D'ARTOIS

Laboratoire Génie Civil et géo-Environnement (LGCgE)

Doctorat

Mécanique

Jérôme LEFEBVRE

ÉTUDE ET VALORISATION D'UN ABSORBANT INNOVANT À BASE DE
POLYMÈRES D'ORIGINE NATURELLE DÉDIÉ AU CONFORT ACOUSTIQUE

Thèse dirigée par Antoine LAVIE, Alexandre LEBLANC et Benoît GENESTIE

Soutenue le 16 février 2018

Jury :

M. François-Xavier BECOT, Co-manager (Docteur)	Examineur
M. Nicolas DAUCHEZ, Professeur des universités	Rapporteur
M. Marc DUQUENNOY, Professeur des universités	Examineur
M. Benoît GENESTIE, Maître de conférences	Co-encadrant de thèse
M. Jean-Philippe GROBY, Chargé de recherche CNRS, HDR	Rapporteur
M. Antoine LAVIE, Professeur des universités	Directeur de thèse
M. Alexandre LEBLANC, Maître de conférences, HDR	Co-directeur de thèse
Mme Francine MONCHAU, Maître de conférences, HDR	Examineur

Résumé

Cette thèse porte sur le confort acoustique et, en particulier, sur les matériaux absorbants destinés au traitement des nuisances sonores dans le domaine de l'habitat. L'objectif est double : il s'agit de proposer un matériau bio-sourcé et absorbant dans la gamme des basses fréquences.

Notre choix s'est porté sur un matériau poreux bio-sourcé basé sur la fabrication de céramiques poreuses. Il est constitué de cellulose homogène et isotrope. Son procédé de fabrication repose sur la construction d'une empreinte en polyméthacrylate de méthyle permettant un contrôle fin de sa structure interne. Ensuite, nous avons procédé à la caractérisation expérimentale de ses propriétés acoustiques et des paramètres intrinsèques du matériau. L'analyse de ces données, associée à la modélisation numérique, a permis de définir les caractéristiques physiques influant sur ses performances acoustiques et d'identifier les leviers d'amélioration de celles-ci.

Enfin, une mise en œuvre de concepts empiriques est présentée, à savoir : (i) inclusion d'aérogel dans la matrice poreuse, (ii) exploitation de la double porosité dans deux configurations différentes, soit dans le cas d'un composite cellulose/aérogel, soit celui d'un matériau constitué d'un double réseau mésoporeux/microporeux et (iii) utilisation de matériaux à gradient de propriétés (interconnexions ou porosité). Pour chacune de ces trois approches, le procédé de fabrication et la caractérisation de ces nouveaux matériaux sont détaillés et leurs performances acoustiques sont discutées.

Abstract

This thesis is about soundproofing and deals particularly with absorptive materials used to treat noise pollution in the housing environment. Our purpose is a double-sided one as the idea is to propose a bio based and absorptive material within the range of low frequencies.

We have focused on porous bio-sourcé material on the same basis as the manufacturing of porous ceramic. It is composed of homogeneous and isotropic cellulose. Its manufacturing process hinges on the making of a polymethyl methacrylate print enabling a thorough control of its internal structure. Then, we have dealt with the experimental characterization of its acoustic properties and of the intrinsic parameters of the material. The analysis of these data together with the digital modelling permitted to define the physical characteristics having an influence on acoustic performances and to identify their means of improvement

Finally, the implementation of empirical means will be presented, namely: (i) the inclusion of aerogel in the porous mould, (ii) the exploitation of double porosity in two different configurations, either in the case of cellulose/aerogel composite, or the one of a material composed of a double mesoporous/microporous network and (iii) the use of materials containing gradients of properties (interconnection or porosity). For each of these three approaches, the manufacturing process and the characterization of these new materials will be detailed and their acoustic performances will be discussed.

Remerciements

L'aboutissement de cette thèse a été possible grâce à l'aide et le soutien de nombreuses personnes. Je tiens par ces quelques lignes à remercier toutes celles et ceux qui m'ont de près ou de loin soutenu dans ce projet.

Je tiens tout d'abord à remercier Nicolas DAUCHEZ et Jean-Philippe GROBY d'avoir accepté d'évaluer ce travail et d'en être les rapporteurs.

Merci à mes encadrants pour leur aide, leur soutien et la confiance qu'ils m'ont témoigné durant cette thèse. Antoine pour tes conseils et encouragements, Alexandre pour nos nombreuses discussions et ton aide sur la modélisation des matériaux poreux et Benoît pour m'avoir permis d'utiliser ton procédé de fabrication des poreux de cellulose.

J'aimerais également remercier Francine MONCHAU, François-Xavier BECOT et Marc DUQUENNOY de l'intérêt porté à cette thèse par leur participation au jury.

Merci aux personnels du Laboratoire Roberval de l'UTC de Compiègne pour leur accueil et leur aide lors de la détermination des paramètres intrinsèques. Merci à Lei Lei pour l'envoi régulier des codes de connexion.

Merci aux membres du personnel de la Faculté des Sciences Appliquées pour leurs contributions, et plus particulièrement Philippe WABLE pour ton aide précieuse et Thierry CHARTIER pour m'avoir fait découvrir les aérogels. Je remercie spécialement mon collègue de bureau Arnaud BERLEMONT (Le Zéphyr), merci pour tes imitations et ton goût particulier pour la chanson Française. Merci aux camarades de la pose méridienne pour leur bonne humeur.

Merci également aux amis pour tous les moments de décompression, avec une pensée particulière à Claire et Hélène.

Enfin, ces remerciements ne seraient pas complets sans ma famille, merci pour votre soutien inconditionnel et surtout merci Elodie, Noam et Janelle pour tout ce que vous m'apportez au quotidien.

*À Élodie,
Noam et Janelle.*

Liste de symboles

Symboles grecs

α	Coefficient d'absorption acoustique	
α_{∞}	Tortuosité	
α_{norm}	Activité acoustique	
α_R	Coefficient d'absorption sur fond rigide	
γ	Rapport des chaleurs spécifiques de l'air	
Δ	Compression de l'empreinte	(m)
δ_t	Épaisseur de couche limite thermique	(m)
ε	Diamètre des interconnexions	(m)
η	Viscosité dynamique de l'air	(N.s.m ⁻²)
θ	Perméabilité dynamique thermique	(m ²)
κ	Conductivité thermique de l'air ($\approx 0,026$)	(W.m ⁻¹ .K ⁻¹)
λ	Longueur d'onde	(m)
Λ	Longueur caractéristique visqueuse	(m)
Λ'	Longueur caractéristique thermique	(m)

Π	Perméabilité dynamique visco-inertielle	(m ²)
ρ	Masse volumique	(kg.m ⁻³)
ρ_0	Masse volumique de l'air au repos	(kg.m ⁻³)
$\tilde{\rho}_{eq}$	Densité dynamique	(kg.m ⁻³)
σ	Résistance au passage de l'air	(N.s.m ⁻⁴)
τ	Facteur de transmission acoustique	
ν	Coefficient de Poisson	
φ	Ratio d'aérogel dans le poreux	(%)
ϕ	Porosité	
ω	Pulsation	(Rad.s ⁻¹)
ω_d	Fréquence de diffusion de pression	(Rad.s ⁻¹)

Symboles latins

A	Amplitude de l'onde acoustique	
c	Célérité du milieu	(m.s ⁻¹)
C_p	Capacité calorifique de l'air à pression constante	(J.K ⁻¹ .kg ⁻¹)
C_v	Capacité calorifique de l'air à volume constant	(J.K ⁻¹ .kg ⁻¹)
d	Diamètre de l'échantillon	(m)
E	Module d'Young	(Pa)
f	Fréquence	(Hz)
F_d	Fonction de diffusion de pression	
h	Hauteur de l'échantillon	(m)
H	Hauteur de l'empreinte	(m)

j	$\sqrt{-1}$	
J_0	Fonction de Bessel de première espèce d'ordre 0	
J_1	Fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1	
k	Nombre d'onde	(Rad.m ⁻¹)
k_0	Perméabilité statique thermique	(m ²)
k'_0	Perméabilité dynamique thermique	(m ²)
$\tilde{K}_{eq}$	Module d'incompressibilité dynamique	(Pa)
m	Masse	(g)
M_d	Facteur de forme	
p	Pression de l'onde acoustique	(Pa)
P_0	Pression statique atmosphérique	(Pa)
p_e	Pression d'entrée	(Pa)
p_i	Pression incidente	(Pa)
p_r	Pression réfléchie	(Pa)
Pr	Nombre de Prandtl de l'air	
p_s	Pression de sortie	(Pa)
p_t	Pression transmise	(Pa)
r	Rayon des pores	(m)
$\bar{r}$	Rayon moyen des pores	(m)
s	Facteur de forme des pores	
S_p	Surface spécifique des pores	(m ²)
T	Température acoustique	(K)
[T]	Matrice de transfert	
TL	Indice d'affaiblissement acoustique (Transmission Loss)	(dB)
TL _N	Indice d'affaiblissement acoustique sous incidence normale	(dB)

v	Vitesse de l'onde acoustique	(m.s ⁻¹)
V	Volume	(m ³)
V_{AERO}	Volume d'aérogel	(m ³)
V_p	Volume poreux	(m ³)
$\vec{V}$	Vitesse d'écoulement	(m.s ⁻¹)
V_T	Volume total	(m ³)
W_i	Puissance acoustique incidente	(W)
W_t	Puissance acoustique transmise	(W)
Z_c	Impédance caractéristique	(Pa.s.m ⁻¹)
Z_0	Impédance caractéristique de l'air	(Pa.s.m ⁻¹)
Z_s	Impédance de surface	(Pa.s.m ⁻¹)

Acronymes

ACV	Analyse du cycle de vie
PLA	Acide polylactique
PMMA	Polyméthacrylate de méthyle
JCA	Johnson-Champoux-Allard

Formules chimiques

CH ₂ Cl ₂	Dichlorométhane
DMAc	Diméthylacétamide
LiCl	Chlorure de lithium

Table des matières

Introduction	23
Chapitre 1 État de l'art des matériaux dans le confort acoustique	27
1.1 Matériaux du bâtiment.....	29
1.1.1 Généralités	29
1.1.2 Matériaux acoustiques conventionnels	31
1.1.2.1 Les matériaux granulaires	35
1.1.2.2 Les matériaux fibreux	36
1.1.2.3 Les matériaux cellulaires.....	36
1.2 Utilisation de la cellulose comme absorbant acoustique	37
1.2.1 Mode d'obtention de la cellulose	38
1.2.2 La cellulose microcristalline.....	39
Chapitre 2 Fabrication d'un matériau poreux de cellulose	41
2.1 Contexte.....	43
2.2 Procédé de fabrication du poreux de cellulose.....	44
2.2.1 Construction de l'empreinte	45
2.2.2 Réalisation du squelette	48
2.2.3 Dissolution de l'empreinte	51
2.3 Validation du procédé	53

Chapitre 3 Développement d'un absorbant de cellulose.....	59
3.1 Dissipation acoustique et caractéristiques intrinsèques des matériaux poreux..	61
3.1.1 Dissipation acoustique dans un matériaux poreux	61
3.1.2 Paramètres caractéristiques des matériaux poreux	63
3.1.3 Détermination des paramètres intrinsèques	66
3.1.3.1 Mesure directe	66
3.1.3.2 Caractérisation par les méthodes inverse et indirecte.....	67
3.2 Modélisation des poreux	70
3.2.1 Modèles fluide-équivalent des milieux cellulaires.....	72
3.2.2 Les matériaux multicouches [16]	74
3.2.3 Les matériaux à double porosité [16]	76
3.3 Contrôle de la structure du squelette	79
3.3.1 Coefficient d'absorption	79
3.3.2 Isolation acoustique	80
3.4 Caractérisation des poreux de cellulose	81
 Chapitre 4 Optimisation des propriétés acoustiques	 85
4.1 Utilisation de l'aérogel de silice dans un poreux de cellulose	87
4.1.1 Les aérogels : super-isolants thermiques	87
4.1.2 Propriétés acoustiques des aérogels	88
4.1.3 Propriétés de l'aérogel de silice utilisé	88
4.1.4 Encapsulage d'aérogel.....	89
4.1.4.1 Procédé de fabrication.....	89
4.1.4.2 Détermination du ratio aérogel-cellulose	90
4.1.4.3 Performances acoustiques.....	97
4.1.5 Matériau composite cellulose / aérogel	100
4.1.5.1 Procédé de fabrication.....	100
4.1.5.2 Résultats expérimentaux.....	101

4.1.5.3	Caractérisation.....	102
4.1.6	Composite cellulose / filler calcaire.....	103
4.1.7	Conclusion	105
4.2	Vers l'obtention de matériaux poreux à gradient de propriétés	105
4.2.1	Gradient d'interconnexions continu	107
4.2.1.1	Procédé de fabrication.....	107
4.2.1.2	Résultats expérimentaux.....	108
4.2.2	Gradient de porosité	109
4.2.2.1	Procédé de fabrication.....	109
4.2.2.2	Résultats expérimentaux.....	111
4.3	Absorbant à double porosité.....	113
4.3.1	Procédé de fabrication	113
4.3.2	Résultats expérimentaux	114
4.4	Conclusion	115
Conclusion générale et perspectives		119
Annexe 1. Méthodes de mesure.....		123
A.1.	Méthodes de mesure des propriétés acoustiques des matériaux	123
A.1.1.	Le tube d'impédance.....	123
A.1.2.	Autres méthodes	127
Références bibliographiques		131

Introduction

Le confort acoustique est une préoccupation désormais majeure dans les transports mais également dans les sites industriels et d'une manière plus large, dans le domaine du bâtiment. À cette problématique se rajoute de plus en plus des exigences environnementales concernant les matériaux utilisés. D'autre part, et si la principale exigence (hormis l'aspect purement structurel) des matériaux de construction reste de réduire les pertes thermiques de l'enveloppe du bâti, le confort acoustique de ses occupants devient tout aussi important. En effet une enquête menée par le Ministère de l'Écologie montre que 82% des interrogés rendent les nuisances sonores déterminantes dans leur confort personnel.

D'un point de vue technique, il existe différents moyens pour minimiser cette bruyance, parmi lesquels :

- le contrôle actif, consistant à générer une onde en opposition de phase à l'onde acoustique gênante (dans le but d'annihiler cette dernière). Il est réservé à des applications spécifiques car très encombrant et onéreux,
- le contrôle passif, visant à atténuer ou renvoyer l'onde acoustique par la rencontre de celle-ci avec un matériau absorbant ou à forte densité,
- le contrôle hybride, qui est la combinaison du contrôle actif et passif.

La solution la plus utilisée, car simple à mettre en œuvre et peu coûteuse, reste le contrôle passif. Utiliser un mur plein étant rarement la solution pour isoler une pièce des bruits extérieurs (l'épaisseur nécessaire dépassant largement les contraintes de construction) ou corriger l'ambiance sonore d'un local, les absorbants acoustiques dédiés, et parmi eux les matériaux poreux, sont privilégiés. Le mécanisme en œuvre dans ces matériaux est de dissiper une partie (la plus importante possible) de l'énergie acoustique par dissipation viscothermique, essentiellement par frottement visqueux et conduction de chaleur. Si les matériaux poreux sont efficaces à moyennes et hautes fréquences, leurs performances dans les fréquences les plus basses requièrent une épaisseur importante. Cependant les contraintes actuelles dans le bâtiment (qui sont également valables dans l'industrie automobile et aéronautique), tendent à l'allégement, aussi bien en terme d'encombrement que de poids. Aussi les recherches actuelles autour des poreux acoustiques visent à développer des matériaux équivalents sur le plan de leur mise en œuvre mais avec des performances

acoustiques étendues : matériaux multicouches [1, 2], à double porosité [3], à gradient de porosité [4], avec inclusion de résonateurs rigides [5, 6], ou encore les mousses de polyuréthane à gradient d'interconnexions [7-9].

Dans cette thèse, un matériau poreux bio-sourcé dédié au confort acoustique, basé sur un procédé de fabrication de céramiques, est proposé. Il repose sur la construction d'une empreinte dont la structure est contrôlable (taille des pores et des interconnexions). Cette maîtrise, potentiellement fine, de la structure du poreux constitue le principal enjeu : plutôt que d'assembler ou de détourner des matériaux existants pour atteindre un objectif d'efficacité et d'absorption basses fréquences (inférieur à 1000 Hz), nous avons ici la possibilité de créer un nouveau matériau pour répondre directement à notre objectif dans un minimum d'encombrement.

Ce mémoire se décompose en quatre chapitres, le premier présente l'état de l'art des matériaux dans le confort acoustique du bâtiment et des solutions existantes pour réduire les nuisances sonores.

Le deuxième pose les bases du procédé de fabrication du poreux de cellulose par le contrôle de l'empreinte formant le négatif de notre matériau.

Dans le troisième, les caractéristiques acoustiques du poreux de cellulose sont étudiées en fonction de la structure de son squelette. La mesure de ses paramètres intrinsèques permet sa modélisation et la définition des caractéristiques physiques intervenant dans les performances acoustiques de notre matériau.

Enfin, le dernier propose une optimisation des performances acoustiques du poreux développé par le contrôle de sa structure interne et notamment la mise en œuvre d'échantillons reposant sur les études citées précédemment (double porosité, multicouches ou encore gradient de propriété).

Chapitre 1 **État de l’art des matériaux dans le confort acoustique**

Sommaire

1.1	Matériaux du bâtiment.....	29
1.1.1	Généralités	29
1.1.2	Matériaux acoustiques conventionnels	31
1.1.2.1	Les matériaux granulaires	35
1.1.2.2	Les matériaux fibreux	36
1.1.2.3	Les matériaux cellulaires.....	36
1.2	Utilisation de la cellulose comme absorbant acoustique	37
1.2.1	Mode d’obtention de la cellulose	38
1.2.2	La cellulose microcristalline.....	39

1.1 Matériaux du bâtiment

1.1.1 Généralités

Dans le domaine du bâtiment, les matériaux utilisés doivent répondre à plusieurs contraintes. La première est mécanique et permet d'assurer la durabilité structurelle du bâtiment. La deuxième est liée à la réduction du besoin énergétique, c'est-à-dire la limitation des pertes thermiques de l'enveloppe du bâti. La troisième contrainte est la qualité acoustique des bâtiments ; elle vise essentiellement au confort des occupants.

En Europe le secteur du bâtiment représente 40% du besoin énergétique total [10]. Ainsi, pour réduire la consommation de ce secteur, faire face au problème du changement climatique et à la raréfaction des ressources énergétiques fossiles, la limitation des pertes thermiques de l'enveloppe apparaît comme l'exigence principale. Le confort acoustique est pourtant tout aussi important. En effet, une récente étude de l'ADEME évalue les coûts sociaux occasionnés par les nuisances sonores [11] et en déduit la nécessité d'améliorer la protection des usagers contre les bruits de voisinage, les bruits extérieurs (transports routier, ferroviaire et aérien) et les bruits d'impacts. Ces coûts sont liés à une perte de qualité de vie : une diminution du nombre d'années de vie en bonne santé, une perte de performance, d'efficacité et de productivité. Les deux principales sources de nuisances sont le transports et le voisinage et représentent chacune un coût social d'environ 120 millions d'euros par an (uniquement pour les troubles de la santé). Par ailleurs, les habitations nécessitent l'utilisation de matériaux permettant d'assurer plusieurs fonctions (isolation acoustique, résistance au feu, perméabilité à la vapeur d'eau, impact sur l'environnement). Parmi les matériaux utilisés dans le bâtiment, les mousses cellulaires et les structures fibreuses présentent des caractéristiques thermiques et acoustiques intéressantes de par leur morphologie (porosité, tortuosité et surface spécifique) et sont donc majoritairement utilisées.

Les différents matériaux isolants dans le domaine du bâtiment peuvent être répartis en trois catégories [12] : les matériaux conventionnels, les matériaux alternatifs et ceux issus de technologies avancées (*cf.* figure 1.1). Abstraction faite des technologies avancées qui débouchent sur des produits répondants à des besoins spécifiques, tous ces matériaux sont des poreux (fibreux, cellulaires ou granulaires). On les retrouve sous forme de rouleaux, panneaux ou en vrac, avec des fibres d'origines naturelle ou synthétique. On retrouve ainsi des fibres d'origine végétale (chanvre, kenaf, lin, coton, bois, etc.) ou animale (laine de mouton). Les fibres synthétiques peuvent être obtenues à partir de cellulose (fibres de bambou, papier, etc.),

de minéraux (fibre de verre, laine minérale, laine de verre, céramiques, etc.) ou de polymères (polyester, polypropylène, kevlar).

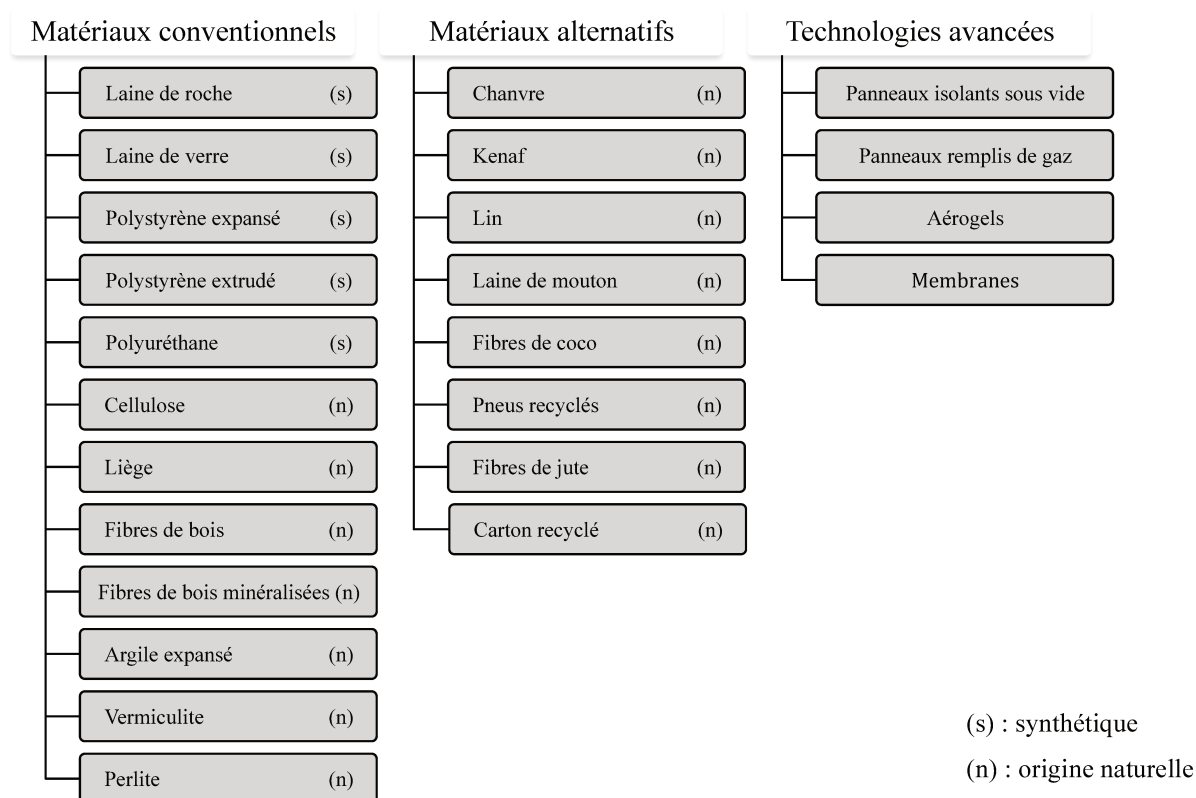


Figure 1.1 - Les matériaux isolants employés dans le domaine du bâtiment [12].

Comme le montre la figure 1.1, de nombreux matériaux utilisés dans le bâtiment sont maintenant d'origine naturelle. Dans ce domaine le terme d'éco-matériau est couramment employé. Souvent un éco-matériau est présenté comme ayant des répercussions positives sur l'environnement. Or un matériau d'origine naturelle, en fonction de son extraction, sa fabrication, sa durée de vie ou encore sa biodégradabilité, peut avoir des effets négatifs sur l'environnement. C'est pourquoi, afin de limiter l'emploi abusif de ce terme, il est nécessaire d'effectuer une analyse du cycle de vie (ACV) du matériau [13].

De nombreux matériaux naturels ont été développés et testés pour des applications acoustiques. Plusieurs études [14 – 16] montrent l'intérêt des éco-matériaux dans ce domaine et permettent de comparer ces derniers avec les matériaux conventionnels. Ainsi, le coefficient d'absorption d'un matériau en cellulose de 60 mm d'épaisseur est équivalent à celui d'une laine de verre de 50 mm avec une absorption totale à 500 Hz [14]. D'autres matériaux multifonctionnels comme le béton de chanvre rendent compte d'une absorption

totale aux alentours de 800 Hz pour une épaisseur de 50 mm. Les performances de ce dernier sont essentiellement liées à la microstructure poreuse des chènevottes [17]. Leurs performances peuvent être améliorées notamment par la fabrication de matériaux multicouches.

L'objet de cette thèse étant de développer un matériau acoustique absorbant, il est intéressant de comparer le matériau poreux développé ici aux matériaux dits conventionnels. Pour ce faire nous nous attachons dans la partie suivante à définir précisément ce qu'est un matériau acoustique et les solutions qui permettent d'absorber une onde acoustique.

1.1.2 Matériaux acoustiques conventionnels

Dans l'acoustique du bâtiment une distinction est faite entre correction acoustique et isolation acoustique. Comme le montre la figure 1.2 une onde incidente qui rencontre un obstacle est en partie réfléchi, transmise et absorbée par le matériau constituant cet obstacle.

La correction acoustique permet de contrôler la réponse d'une pièce à un son émis dans cette même pièce. Elle vise à améliorer l'ambiance sonore dans un local clos et ainsi limiter les effets d'échos. Le temps de réverbération T_r permet de caractériser la persistance sonore dans un local. Il dépend du coefficient d'absorption α moyen et de la surface des parois qui le composent. Ainsi le traitement acoustique d'une salle consiste à mettre en œuvre sur les parois des matériaux ayant un coefficient d'absorption approprié. En acoustique architecturale il existe plusieurs critères permettant de caractériser la réponse d'une salle, le plus courant étant le T_r qui représente la durée que met l'onde acoustique à décroître de 60 dB après l'arrêt de la source. Le temps de réverbération optimal est lui utilisé pour les salles de concerts, de théâtre et de conférences ou pour les auditoriums et dépend de la géométrie et des revêtements de la pièce.

L'isolation acoustique correspond aux moyens mis en œuvre pour minimiser la transmission d'énergie d'une pièce à une autre ou de l'extérieur à l'intérieur d'un bâtiment. Elle est définie par l'indice d'affaiblissement acoustique noté TL (Transmission Loss ou perte en transmission) exprimé en décibels (dB). Les matériaux classiques utilisés pour l'isolation acoustique sont des matériaux à forte inertie (exemple : mur de séparation entre deux pièces), on parle alors d'effet de masse.

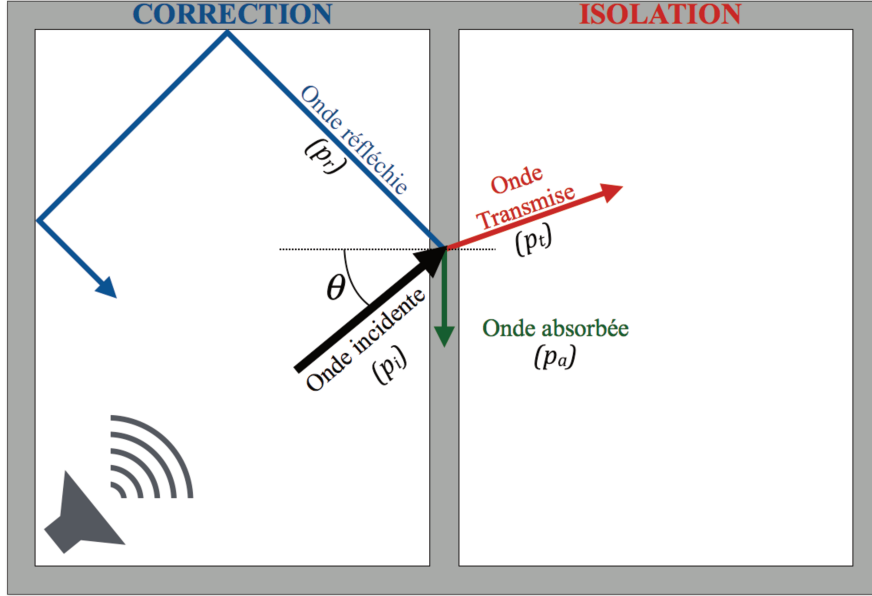


Figure 1.2 - Correction et isolation acoustique.

L'onde incidente peut être solidienne (bruits dits « d'impact ») ou aérienne. Dans cette thèse, nous nous intéressons uniquement au mode de propagation aérien du bruit. En considérant une onde émise de pression p_i et d'angle θ , la rencontre avec le matériau absorbant donne naissance à une onde réfléchie de pression p_r et une onde transmise de pression p_t (cf. figure 1.2)

Le coefficient de réflexion R est le rapport entre la pression réfléchie et la pression incidente, il en découle le coefficient d'absorption α :

$$R(\theta) = \frac{p_r}{p_i}, \quad (1.1)$$

$$\alpha(\theta) = 1 - |R(\theta)|^2. \quad (1.2)$$

Le coefficient d'absorption est fonction de la fréquence et varie entre 0 pour les matériaux parfaitement réfléchissants et 1 pour les matériaux totalement absorbants.

L'indice d'affaiblissement acoustique TL est quant à lui défini à partir du facteur de transmission τ [18] :

$$\tau(\theta) = \frac{W_t}{W_i}, \quad (1.3)$$

où W_i et W_t sont les puissances acoustiques incidentes et transmises.

$$TL(\theta) = 10 \log \left(\frac{1}{\tau(\theta)} \right). \quad (1.4)$$

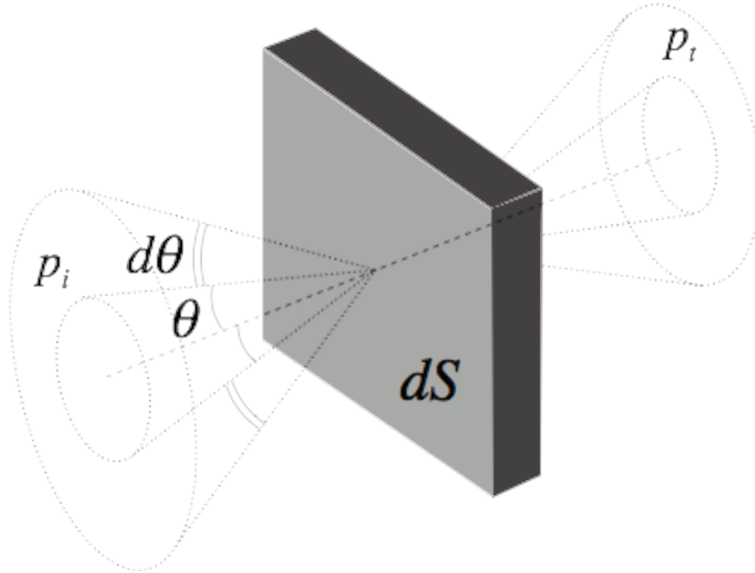


Figure 1.3 - Surface soumise à une onde en champ diffus.

Dans le cas d'un champ diffus et d'un matériau isotrope, le coefficient d'absorption et l'indice d'affaiblissement acoustique peuvent être calculés par intégration sur toutes les incidences (cf. figure 1.3) [19] :

$$\alpha_d = \frac{\int_{\theta_{min}}^{\theta_{max}} \alpha(\theta) \cos \theta \sin \theta d\theta}{\int_{\theta_{min}}^{\theta_{max}} \cos \theta \sin \theta d\theta}, \quad (1.5)$$

$$TL_d = -10 \log \left[\frac{\int_{\theta_{min}}^{\theta_{max}} |\tau(\theta)|^2 \cos \theta \sin \theta d\theta}{\int_{\theta_{min}}^{\theta_{max}} \cos \theta \sin \theta d\theta} \right]. \quad (1.6)$$

Nous venons de voir que la correction acoustique d'une pièce dépend de la forme des parois qui la composent et de la capacité des matériaux utilisés à absorber l'onde acoustique. Dans le domaine de l'acoustique, il existe plusieurs solutions permettant d'absorber le son et ainsi de réduire la réflexion de l'énergie acoustique dans l'espace. Parmi ces absorbants, les plus courants sont les panneaux acoustiques, les résonateurs d'Helmholtz et les matériaux poreux (cf. figure 1.4) :

- les panneaux acoustiques sont des membranes placées à une certaine distance d'un mur, l'énergie incidente étant absorbée par déformation du panneau. Ce procédé est efficace pour les basses fréquences (au voisinage de 125 Hz),
- les résonateurs d'Helmholtz sont des cavités ouvertes sur la salle. La fréquence d'absorption dépend de la fréquence de résonance du système. Ils sont utilisés pour absorber les médiums (entre 300 et 1000 Hz),
- les matériaux poreux sont utilisés pour dissiper les ondes acoustiques au-delà de 1 kHz.

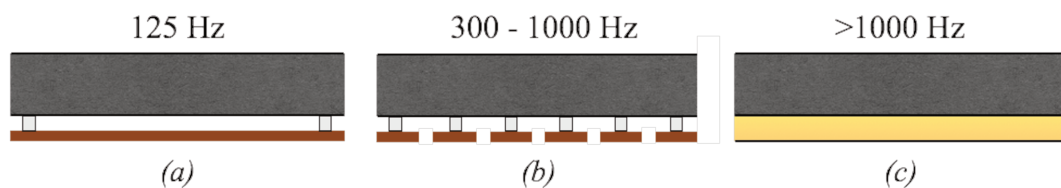


Figure 1.4 - Les différents matériaux absorbants : (a) panneau acoustique, (b) résonateurs d'Helmholtz, (c) matériaux poreux [20].

Comme évoqué précédemment, la majeure partie des matériaux utilisés dans le bâtiment, qu'ils soient bio-sourcés ou non, sont des matériaux poreux. Un matériau poreux, au sens large du terme, est un solide composé de cavités (pores), de canaux (connexions) ou d'interstices. Il existe ainsi plusieurs catégories de matériaux poreux. Ils sont classifiés en fonction de leur perméabilité à un fluide extérieur comme l'air. Comme le montre la représentation schématique (*cf.* figure 1.5), les matériaux poreux sont à porosité occluse ou ouverte :

- une porosité est dite occluse lorsque les pores qui composent le matériau sont totalement isolés de leurs voisins, c'est le cas du repère (a). L'onde acoustique ayant un accès limité aux pores, ce type de matériau absorbe nettement moins d'énergie acoustique,
- la porosité ouverte rend compte de l'ouverture des pores vers le milieu extérieur. La porosité ouverte est dite totale lorsque les pores ont une communication continue avec l'extérieur, c'est le cas du pore (e) qui communique avec l'extérieur par l'intermédiaire des conduits (c) et (d). Une porosité ouverte est partielle lorsque les pores comportent une terminaison comme les pores (b) et (f).

Notons également qu'un matériau présentant une face rugueuse (g) est considéré comme un matériau poreux si ses rugosités sont plus profondes que larges.

Le paramètre utilisé dans la description des matériaux poreux est la porosité ouverte ϕ . Elle quantifie le volume d'air au sein des pores ouverts du matériau. Ce dernier étant constitué d'une phase solide et d'une phase fluide, la porosité ϕ est le rapport entre le volume poreux (V_p) occupé par l'air et le volume total (V_t) du matériau :

$$\phi = \frac{V_p}{V_t} \cdot \quad (1.7)$$

Il est possible de classifier les milieux poreux en trois groupes : cellulaire, fibreux et granulaire (cf. figure 1.6).

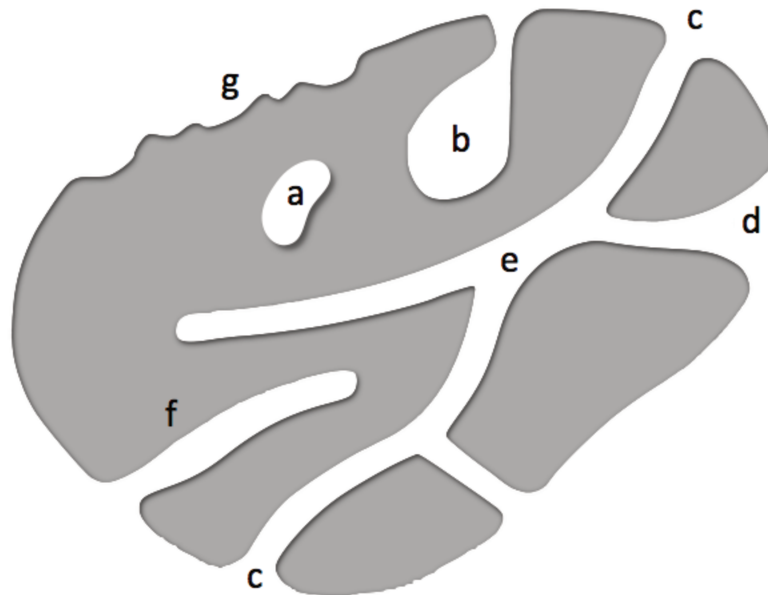


Figure 1.5 - Représentation schématique d'un matériau poreux [21].

1.1.2.1 Les matériaux granulaires

Ils sont constitués d'un empilement de grains, compactés ou non, dont les dimensions sont beaucoup plus grandes que celles des vides internes. On les retrouve essentiellement pour diminuer la propagation des sons extérieurs. Les revêtements bitumeux, les bétons poreux ou encore l'argile expansé [22] sont des matériaux granulaires. En revêtement intérieur on retrouve également le polystyrène qui est habituellement utilisé comme isolant thermique. Le milieu granulaire peut être modélisé par un empilement de sphères, leur porosité est de l'ordre de 0,5.

1.1.2.2 Les matériaux fibreux

Une multitude de fibres disposées de façon aléatoire forment des tunnels à l'intérieur du matériau. Ce sont les matériaux les plus couramment rencontrés dans l'isolation thermique et acoustique du bâtiment. Ils peuvent être constitués de fibres naturelles ou synthétiques (laines minérales ou laines de verre). Contrairement aux milieux granulaires dont la taille des sphères est souvent millimétrique et donc beaucoup plus grande que celle des pores, les milieux fibreux sont constitués de fibres dont l'ordre de grandeur est de quelques microns avec une phase fluide nettement plus importante. Ce qui implique que les milieux fibreux ont une porosité élevée (de l'ordre de 0,9). Ils peuvent être modélisés comme un empilement de cylindres parallèles.

1.1.2.3 Les matériaux cellulaires

Des cellules (ou pores) connectées à une ou plusieurs autres cellules environnantes forment les matériaux cellulaires. Ils peuvent être à porosité ouverte si le milieu est parfaitement réticulé (présence de membranes) ou occluse. Ainsi la porosité varie de 0 à 1 en fonction du taux de réticularité. Les mousses de polyuréthane ou les mélamines sont des exemples de matériaux parfaitement réticulés. Ils peuvent être modélisés comme une cellule cubique à pores connectés.

Nous proposons dans cette thèse l'utilisation d'un polymère d'origine naturelle pour la fabrication d'un matériau cellulaire parfaitement réticulé. Parmi ces polymères, la cellulose est le principal constituant des cellules végétales et dont les procédés d'extractions sont maîtrisés avec un faible impact sur l'environnement.

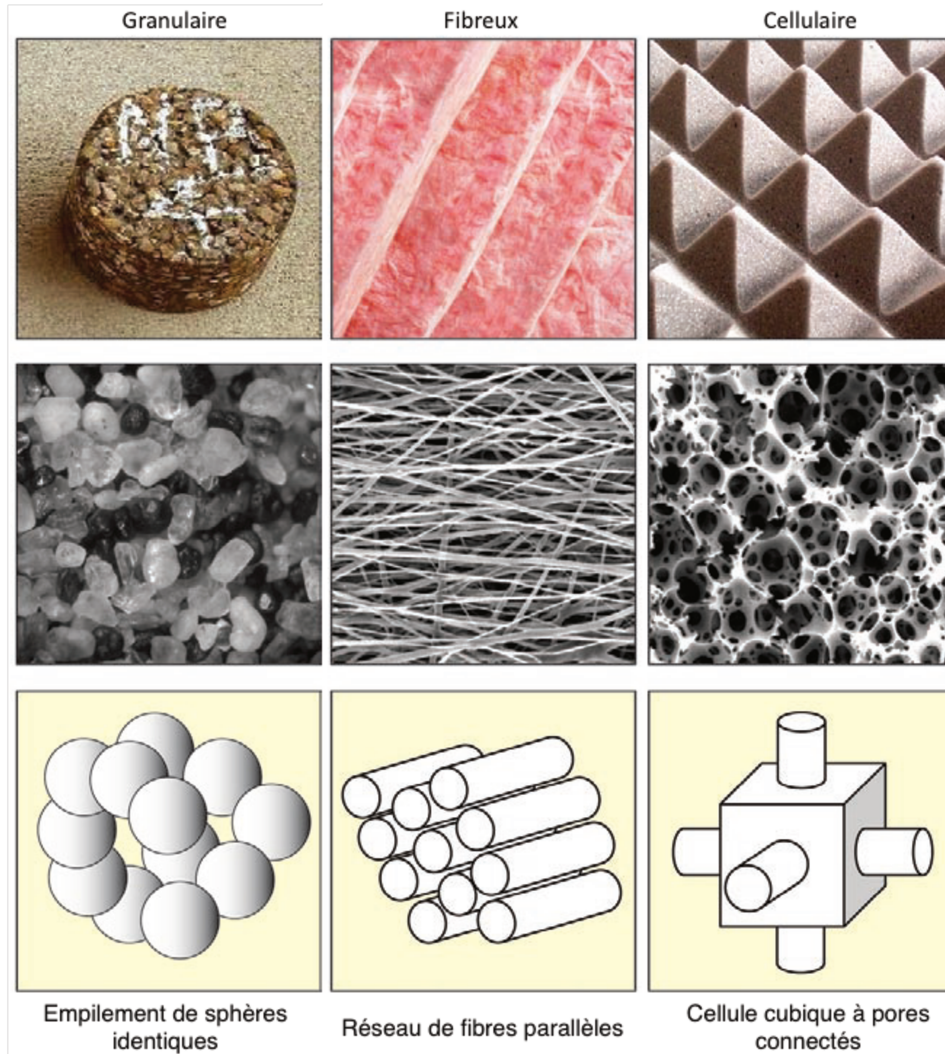


Figure 1.6 - Les trois principaux types de matériaux absorbants poreux. [23].

1.2 Utilisation de la cellulose comme absorbant acoustique

La cellulose est un polymère de glucose qui constitue la structure principale de nombreux végétaux. Selon l'espèce, sa teneur peut varier de 40% pour le bois à plus de 95% pour les fibres de coton. Comme le montre schématiquement la figure 1.7 [24], les cellules de bois sont composées de cellulose, d'hémicelluloses et de lignines. Les taux d'hémicelluloses et de lignines varient en fonction de la nature du bois (bois dur ou tendre) contrairement à celui de la cellulose qui reste constant (40%).

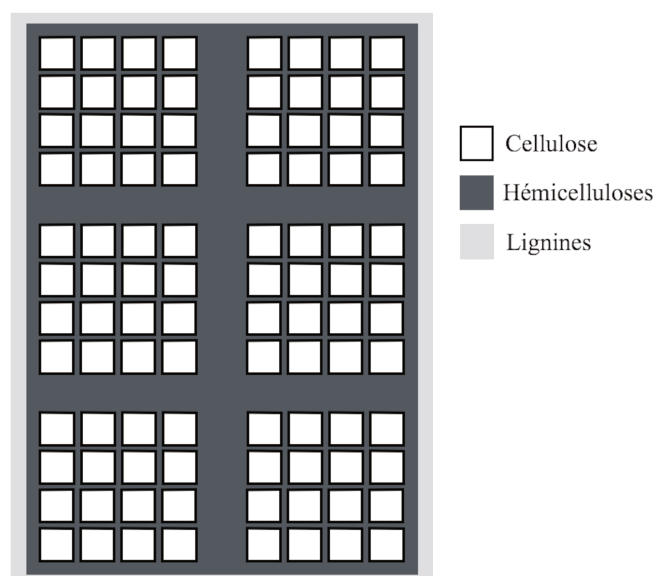


Figure 1.7 - Représentation schématique des cellules de bois [24].

1.2.1 Mode d'obtention de la cellulose

L'extraction de la cellulose peut être chimique et/ou mécanique. Les procédés chimiques permettent de dissoudre les constituants du bois par extraction des graisses et autres extractibles. L'échantillon ainsi dégraissé est délignifié puis une extraction alcaline permet de séparer la cellulose et les hémicelluloses (*cf.* figure 1.8).

En France, la production de fibres de cellulose (α -cellulose) se fait essentiellement par le procédé Kraft [25]. Il permet de séparer la cellulose et les autres sous-produits (lignine, hémicelluloses et d'autres constituants). La lignine et les hémicelluloses se retrouvent dans une « liqueur noire » qui est brûlée dans le but de produire de l'énergie. Les autres constituants (terpènes et acides résiniques) sont récupérés pour une valorisation chimique. Les raffineries produisant de la cellulose sont auto-suffisantes et peuvent même produire plus d'énergie qu'elles n'en consomment grâce à cette « liqueur noire ». Leur impact sur l'environnement est faible et des études sont en cours afin de diminuer cet impact par une meilleure valorisation de la « liqueur noire » [26].

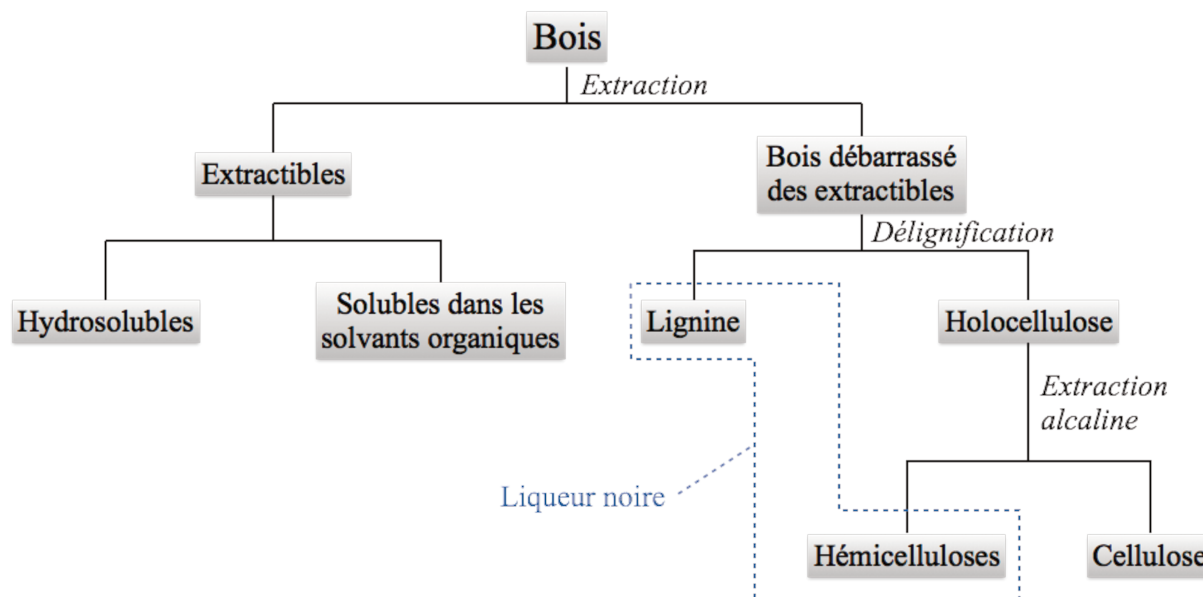


Figure 1.8 - Séparation des constituants du bois [24].

1.2.2 La cellulose microcristalline

La cellulose microcristalline est une cellulose purifiée et partiellement dépolymérisée. Elle est obtenue par l'hydrolyse contrôlée de l' α -cellulose. La structure fibreuse est ainsi transformée en structure particulaire. La cellulose microcristalline se trouve sous forme de poudre.

Il y a très peu d'études sur l'impact environnemental de la cellulose microcristalline, cependant, son ACV montre que celui-ci est principalement dû à la consommation d'électricité, d'eau et de produits chimiques nécessaires à l'hydrolyse et dépend beaucoup du végétal utilisé pour l'extraction de l' α -cellulose (la teneur en cellulose variant suivant l'espèce) [27].

La fabrication du poreux de cellulose repose sur la construction d'une empreinte en polyméthacrylate de méthyle (PMMA) qui est son négatif. Une mousse de cellulose à porosité ouverte est obtenue après imprégnation et dissolution de ce dernier. Le chapitre suivant reprend en détail les différentes étapes de la fabrication : construction de l'empreinte, réalisation du squelette et dissolution de l'empreinte.

Chapitre 2 Fabrication d'un matériau poreux de cellulose

Sommaire

2.1	Contexte.....	43
2.2	Procédé de fabrication du poreux de cellulose.....	44
2.2.1	Construction de l'empreinte.....	45
2.2.2	Réalisation du squelette	48
2.2.3	Dissolution de l'empreinte	51
2.3	Validation du procédé	53

2.1 Contexte

La fabrication du poreux de cellulose repose sur le procédé de fabrication de biocéramiques, telle que le phosphate tricalcique (β TCP), d'architecture macroporeuse [28]. Les biocéramiques poreuses sont utilisées dans les implants osseux, leur fabrication part du constat que l'ostéointégration d'un implant (sa colonisation) est assurée par la structure poreuse du matériau. Ainsi le procédé de fabrication de ces céramiques permet de contrôler leur structure interne (diamètre des pores, diamètre des interconnexions). L'originalité du procédé repose sur le formage d'une empreinte en billes de PMMA (*cf.* figure 2.1 (a)) qui est ensuite imprégnée d'une solution aqueuse de β TCP. Après cuisson l'empreinte en PMMA est calcinée et il ne reste que le positif (ou squelette) formant une céramique à porosité ouverte (*cf.* figure 2.1 (b)).

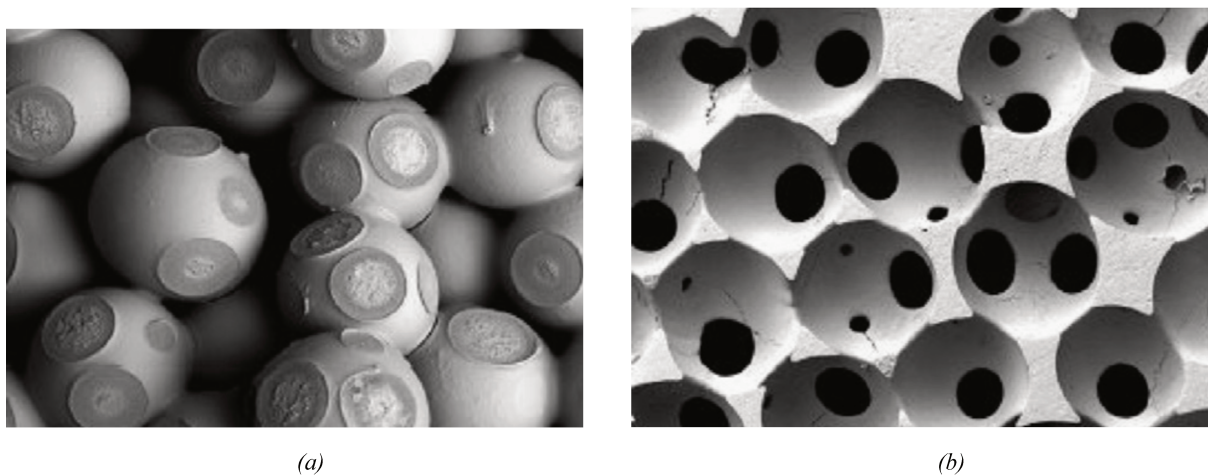


Figure 2.1 - Vues microscopiques du négatif en PMMA (a) et de la céramique poreuse obtenue (b).

Sur le même procédé de fabrication que les céramiques poreuses, depuis 2011, l'équipe de chercheurs Biomatériaux Artois du LGCgE, et notamment B. Genestie, développe un matériau à porosité ouverte bio-sourcé dont les propriétés physiques sont contrôlées. Le but de ce matériau est de permettre de répondre aux besoins de plusieurs domaines d'applications, et notamment la chirurgie reconstructive (stomatologie, chirurgie maxillo-faciale ou ophtalmologie, ...). Contrairement aux céramiques qui ont un squelette rigide et ne permettent pas d'assurer une bonne dissipation de l'onde acoustique, le poreux de cellulose possède un squelette déformable. Le procédé de fabrication de ce matériau est détaillé ci-après.

2.2 Procédé de fabrication du poreux de cellulose

Comme pour les céramiques poreuses, la construction d'une empreinte de billes de PMMA permet de contrôler la taille des billes et leurs interconnexions par la mesure de la compression de l'empreinte Δ (cf. figure 2.3). Le solvant utilisé lors de cette phase a pour effet de dissoudre lentement et uniformément les billes de PMMA et ainsi de procéder à une interpénétration entre celles-ci.

La fabrication se fait en trois phases (cf. figure 2.2) :

1. construction de l'empreinte en PMMA,
2. imprégnation de l'empreinte avec la solution de cellulose (remplissage du positif),
3. dissolution du négatif.

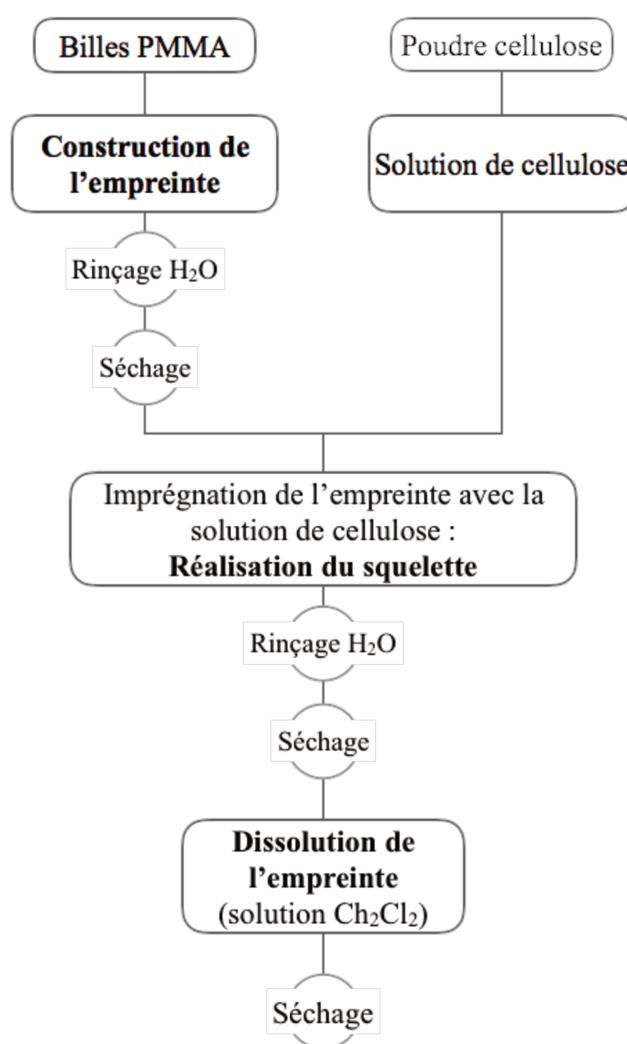


Figure 2.2 - Synoptique de fabrication d'un matériau poreux de cellulose.

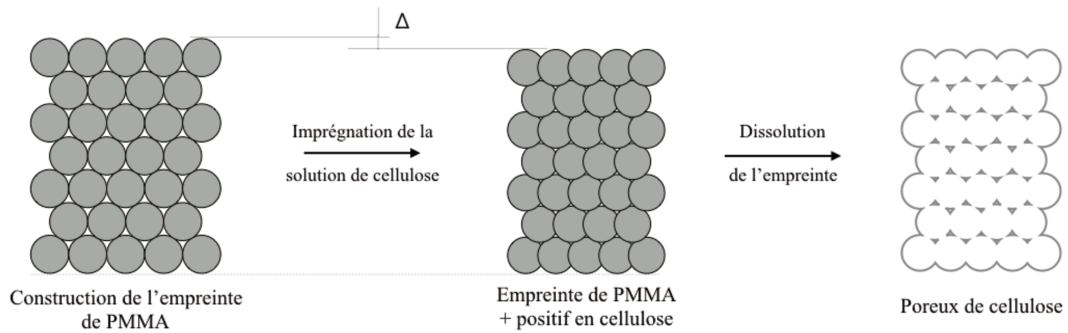


Figure 2.3 - Schéma de fabrication de la mousse de cellulose.

La figure 2.4 rend compte de l'évolution des interconnexions en fonction de la compression du milieu. Ces images ont été obtenues à partir d'échantillons dont le diamètre des billes de PMMA est compris entre 400 et 500 μm pour une hauteur initiale d'environ 23 mm. L'ajustement de Δ permet de modifier la structure finale de la mousse.

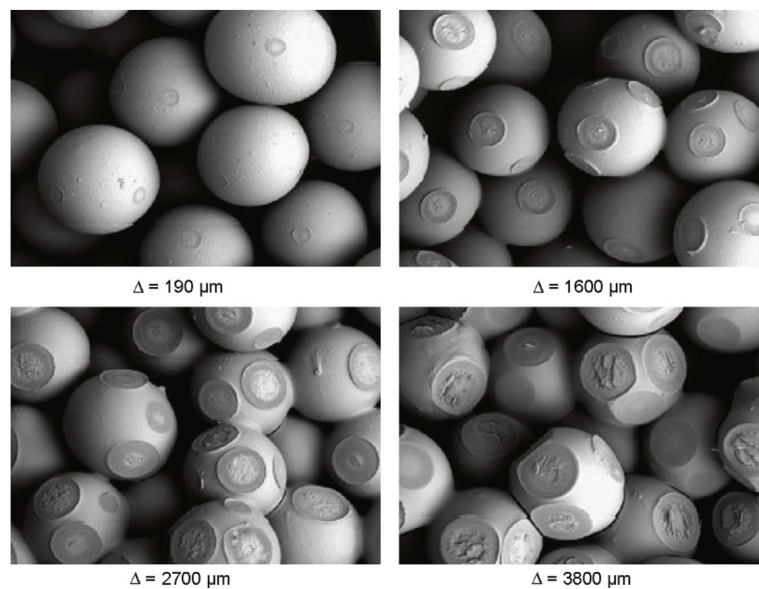


Figure 2.4 - Evolution du diamètre d'interconnexion en fonction de la compression du milieu [28].

2.2.1 Construction de l'empreinte

Le PMMA utilisé pour la fabrication de l'empreinte est de forme sphérique, un tamisage mécanique permet d'avoir une plage de diamètres des billes allant de 200 μm à plus de 1 mm. La courbe de distribution des diamètres des billes de PMMA (cf. figure 2.5) est obtenue avec un granulomètre laser. Elle montre une distribution normale avec une valeur maximale pour

les billes de diamètre 750 μm et un écart type de 200 μm . Environ 60% du volume total (VT) des billes ont un diamètre compris entre 550 et 950 μm . Sept tamis sont utilisés : 200, 400, 500, 600, 710, 800 et 1000 μm et permettent d'obtenir 8 plages de diamètre.

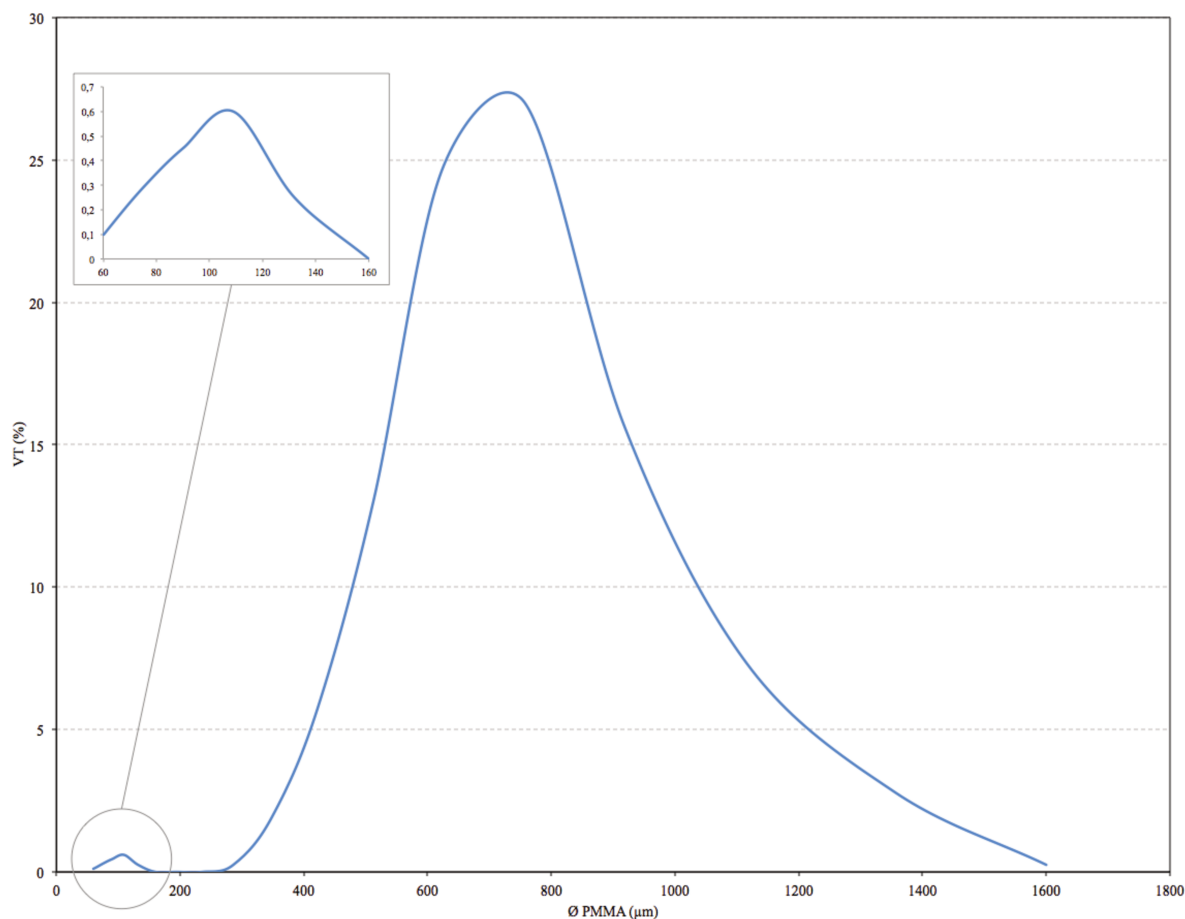


Figure 2.5 - Répartition des diamètres de billes après tamisage.

Pour agir sur la taille des pores et des interconnexions (*cf.* figure 2.3), les billes de PMMA sont placées dans un moule cylindrique avec un solvant. L'utilisation de l'acétone permet une dissolution lente du PMMA et un contrôle précis de la compression via Δ . Les billes sont comprimées par l'effet d'un piston sur lequel est placé un micromètre numérique qui mesure son déplacement (*cf.* figure 2.6).

La mesure du déplacement du piston (Δ) permet d'évaluer le diamètre des interconnexions (ε) par la formule [28] :

$$\varepsilon = 2\bar{r} \sqrt{1 - \left(1 - \frac{\Delta}{H} - \frac{2\bar{r}}{3H}\right)^2}, \quad (2.1)$$

où $\bar{r}$ est le rayon moyen des billes de PMMA et H la hauteur totale après construction de l'empreinte.

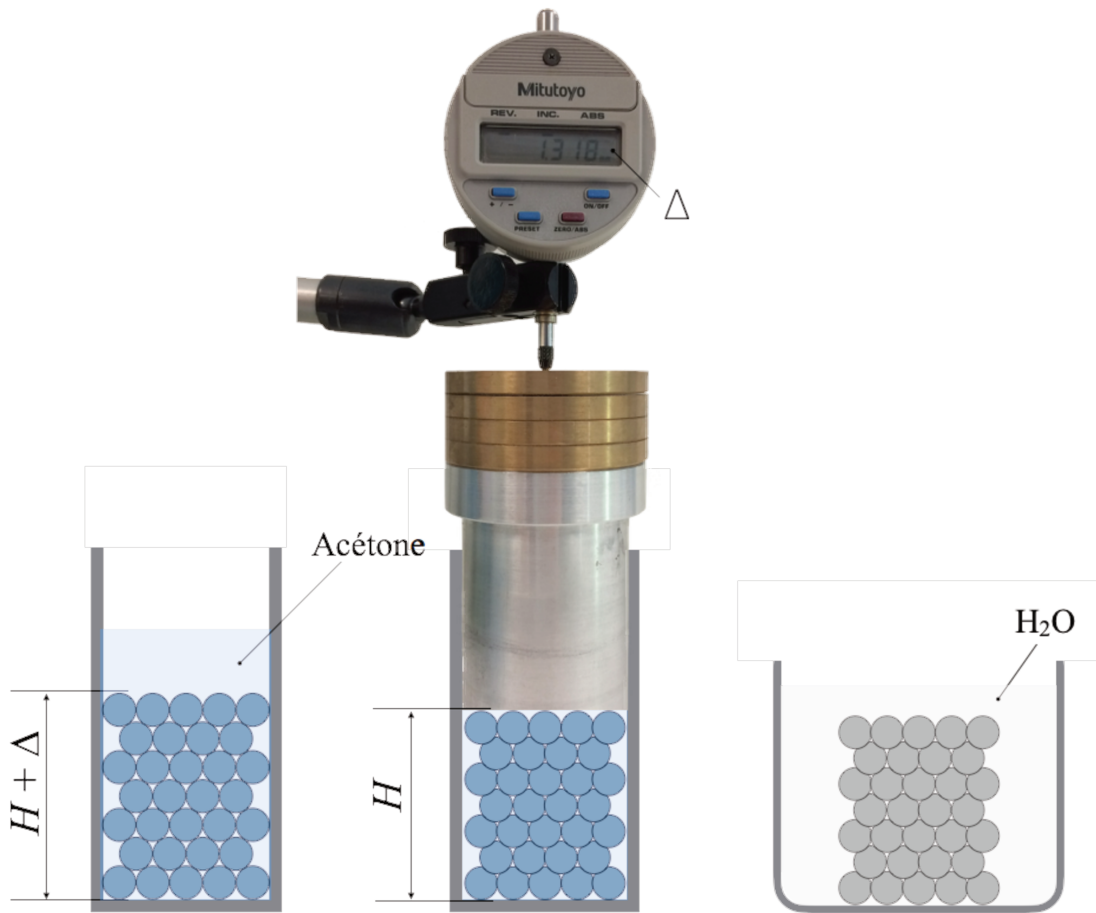


Figure 2.6 - phase 1 : construction de l'empreinte de PMMA.

Afin de neutraliser et d'éliminer le solvant, l'empreinte est plongée dans un bain d'eau. Il faut 5 cycles de rinçage pour éliminer le solvant. L'empreinte est ensuite mise à l'étuve pour éliminer les traces d'eau et s'assurer de la bonne imprégnation de la solution de cellulose lors de l'étape suivante (la solution de cellulose se figeant au contact de l'eau).

2.2.2 Réalisation du squelette

La solution de cellulose est obtenue en plusieurs étapes (*cf.* figure 2.7), la première étape consiste à fabriquer une solution composée d'un mélange de chlorure de lithium (LiCl) avec du diméthyl acétamide (DMAc) à un dosage de 6% (60 g de LiCl pour 1 l de DMAc). La cellulose microcristalline contient naturellement de l'eau qu'il est nécessaire d'éliminer par plusieurs lavages : un premier lavage avec du méthanol (30 mn, 20 °C, agitation), puis un second lavage au DMAc (30 mn, 20 °C, agitation). La cellulose ainsi débarrassée de l'eau est dissoute dans la solution LiCl/DMAc pendant 12 h à 80°C [29]. La solution obtenue est une solution ionique, les chaînes de cellulose étant reliées entre elles par des charges Li⁺ et Cl⁻.

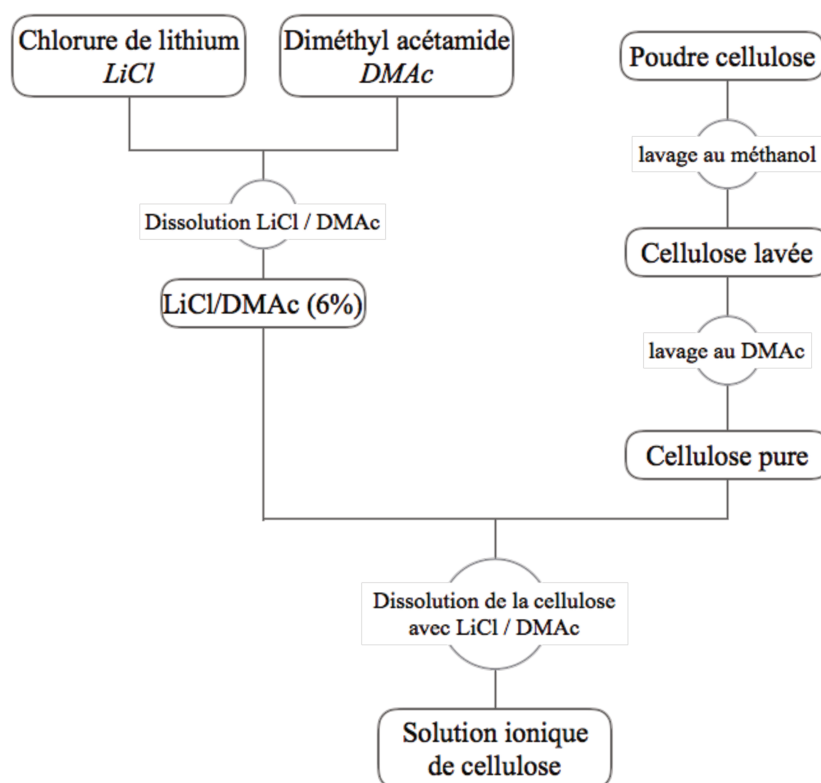


Figure 2.7 - Synoptique d'obtention de la solution ionique de cellulose.

L'imprégnation de l'empreinte en PMMA doit être rapide, le solvant contenu dans la solution de cellulose ne pouvant être en contact plus de 10 mn avec les billes de PMMA (au-delà de ce temps, le LiCl/DMAc commence à dissoudre les billes).

Le procédé d'imprégnation a été initialement développé pour des échantillons de 15 mm de diamètre et une hauteur de 10 à 15 mm. L'empreinte est placée sur une coupelle remplie de solution de cellulose, l'imprégnation se faisant par capillarité (*cf.* figure 2.8 (a)). Or, les

mesures dans notre tube d'impédance requièrent des échantillons de diamètre 29 mm (*cf.* Annexe A.1.1), et comme nous le verrons dans la section suivante, la mousse de cellulose se rétracte lors du séchage du squelette. Un moule de diamètre 49,5 mm est donc utilisé avec une hauteur d'échantillon variant entre 30 et 40 mm. Le poreux de cellulose obtenu est découpé (avec un emporte pièce) pour obtenir le diamètre de 29 mm.

Ce changement d'échelle a montré les limites de la méthode d'imprégnation par capillarité. Le temps d'imprégnation de ce procédé est supérieur au temps maximal de contact supporté par le PMMA avec la solution de cellulose et un effondrement de l'empreinte en PMMA est observé avant son imprégnation complète (*cf.* figure 2.9 (a)).

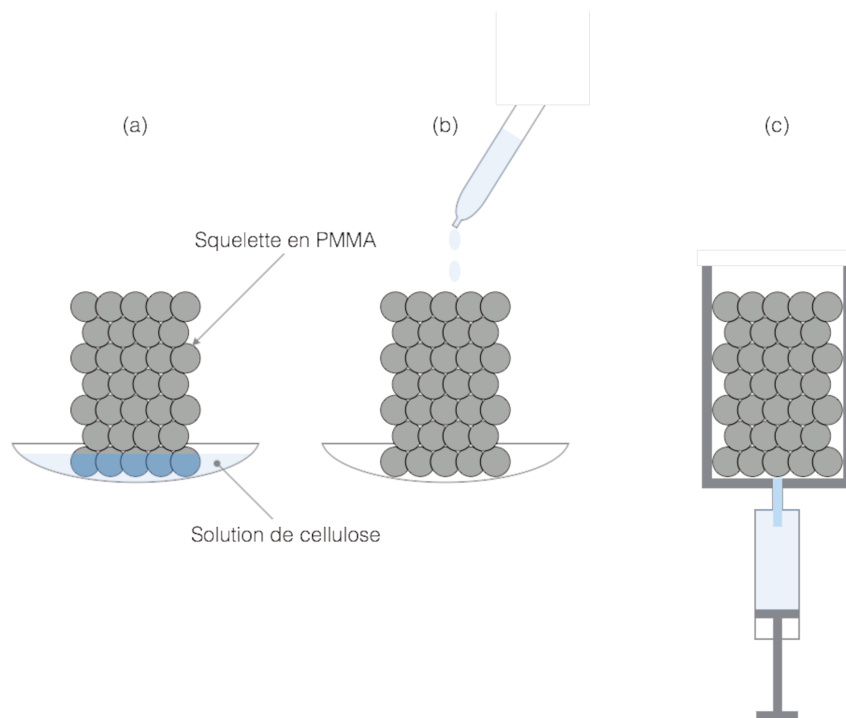


Figure 2.8 - Procédés d'imprégnation : capillarité (a), goutte à goutte (b), injection (c).

Deux autres méthodes d'imprégnation ont été testées : l'imprégnation goutte à goutte (*cf.* figure 2.8 (b)) et l'imprégnation par injection (*cf.* figure 2.8 (c)).

Pour l'imprégnation goutte à goutte, la solution de cellulose est déposée sur la surface supérieure de l'échantillon avec une pipette. Cette solution est rapide à mettre en œuvre pour des échantillons de faible épaisseur (< 15 mm) mais ne permet pas de s'assurer de l'imprégnation totale de l'empreinte en PMMA pour des épaisseurs plus importantes. Comme le montre la figure 2.9 (b), des trous apparaissent après dissolution de l'empreinte.

La solution finalement adoptée est l'imprégnation par injection de la solution de cellulose. L'échantillon est placé dans un moule (en position verticale) de même diamètre que l'empreinte et dont une extrémité est ouverte (*cf.* figure 2.8 (c)). L'injection de la solution de cellulose se fait par le fond du moule à l'aide d'une seringue (*cf.* figure 2.10). La solution est poussée dans l'empreinte, l'imprégnation est rapide (de l'ordre de 2 min) et l'air est chassé vers le haut du moule évitant la formation de bulles d'air.

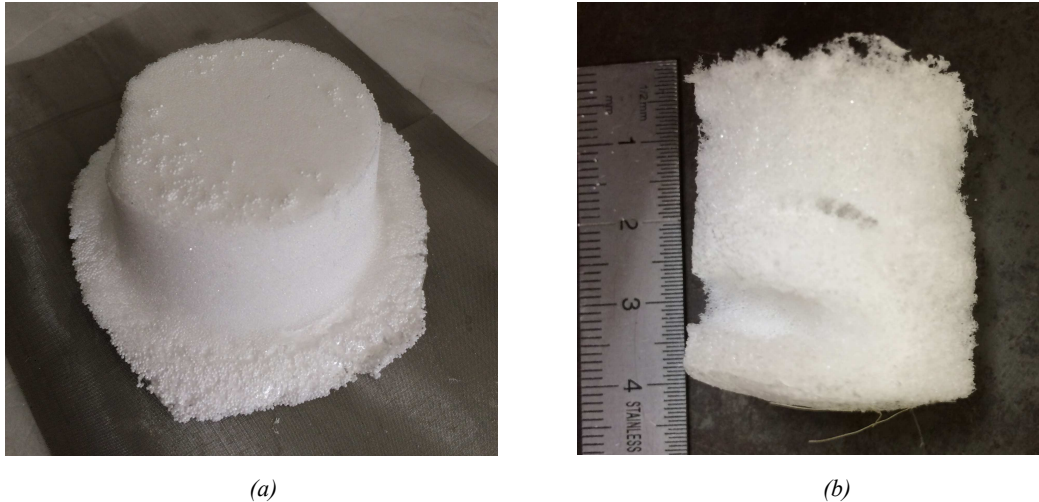


Figure 2.9 - Essais d'imprégnation par capillarité (a) et en goutte à goutte (b).

Comme pour la phase de construction de l'empreinte, une fois celle-ci imprégnée, elle est placée dans un bain d'eau pour stopper l'effet du solvant. Trois rinçages sont effectués puis une phase de séchage long (15 jours à l'air ambiant) est observée afin d'éliminer toute trace d'eau dans le composite PMMA/Cellulose.



Figure 2.10 – Imprégnation par capillarité forcée.

2.2.3 Dissolution de l’empreinte

Le composite PMMA/Cellulose est immergé dans un bain de dichlorométane (CH_2Cl_2). Il a pour effet de dissoudre le PMMA rapidement et donc de minimiser les altérations des propriétés physiques du squelette en cellulose. Suivant la taille des échantillons réalisés, il est possible d'utiliser un Soxhlet, dispositif permettant de minimiser la quantité de dichlorométane nécessaire. Dans un Soxhlet (*cf.* figure 2.11), une chambre d'extraction se remplit en goutte à goutte de CH_2Cl_2 contenu dans un ballon jusqu'au niveau haut d'un siphon. Une fois ce niveau atteint, le solvant contenu dans la chambre d'extraction se vide dans le ballon et un nouveau cycle commence. Il faut quatre cycles de rinçage pour éliminer totalement les traces de PMMA. Cette méthode est possible uniquement avec des échantillons dont le diamètre est inférieur à 30 mm. Au delà, la durée de remplissage de la chambre d'extraction est supérieure à 2 h 30, on observe alors un séchage des échantillons entre deux remplissages et une rigidification de ceux-ci. Pour des échantillons de diamètre supérieur à 30 mm, l'immersion dans un bain de CH_2Cl_2 est préconisée. Cette méthode permet d'avoir un contact continu de l'échantillon avec le dichlorométhane et donc d'éviter le séchage entre deux changements de bain. Il est nécessaire d'effectuer cinq changements de bain pour éliminer le PMMA. Cette méthode est plus consommatrice de dichlorométane même si 75 à 80% du volume utilisé est recyclé.

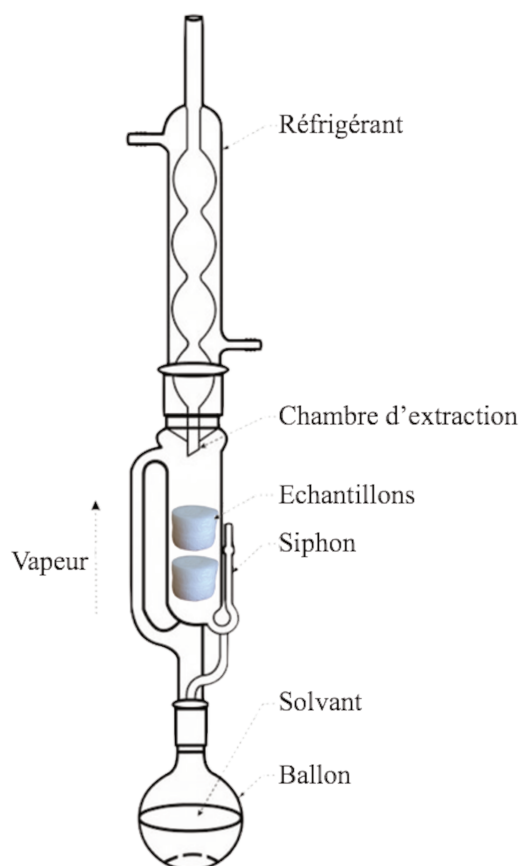


Figure 2.11 - Méthode du soxhlet.

Une fois le PMMA dissout, l'échantillon est mis à l'étuve pour éliminer les traces de solvant, puis laissé à l'air ambiant pour séchage. Le poreux de cellulose est ensuite coupé à l'emporte-pièce afin d'obtenir le diamètre de 29 mm nécessaire à la mesure en tube d'impédance. Lors des premières campagnes de fabrication, une forte rétractation des échantillons durant le séchage a été observée. Il est donc apparu nécessaire de déterminer le temps de séchage minimum des échantillons de diamètre 49,5 mm en sortie de moule. Pour cela, quatre échantillons sont découpés après un temps de séchage allant de 3 à 8 jours (J+3 à J+8) après la dissolution de l'empreinte. Les temps de séchage avant la découpe sont respectivement J+3 et J+4 pour les échantillons V_01 et V_02, et J+8 pour les échantillons V_04 et V_05.

Les résultats (*cf.* figure 2.12) montrent une forte rétractation des deux premiers échantillons (de l'ordre de 10%) avec une rétractation importante à $J_{\text{découpe}} +7$ pour l'échantillon V_01 (8,5%) et $J_{\text{découpe}} +8$ pour l'échantillon V_02 (6%). Pour les échantillons V_03 et V_04 dont la découpe a été faite après 8 jours de séchage la diminution de diamètre

est de l'ordre de 1% au bout de 30 jours. Notons également que pour tous les échantillons une stabilisation des diamètres est visible au bout de 15 jours de séchage. Un temps de séchage de 15 jours minimum est donc respecté avant la découpe et le passage au tube d'impédance.

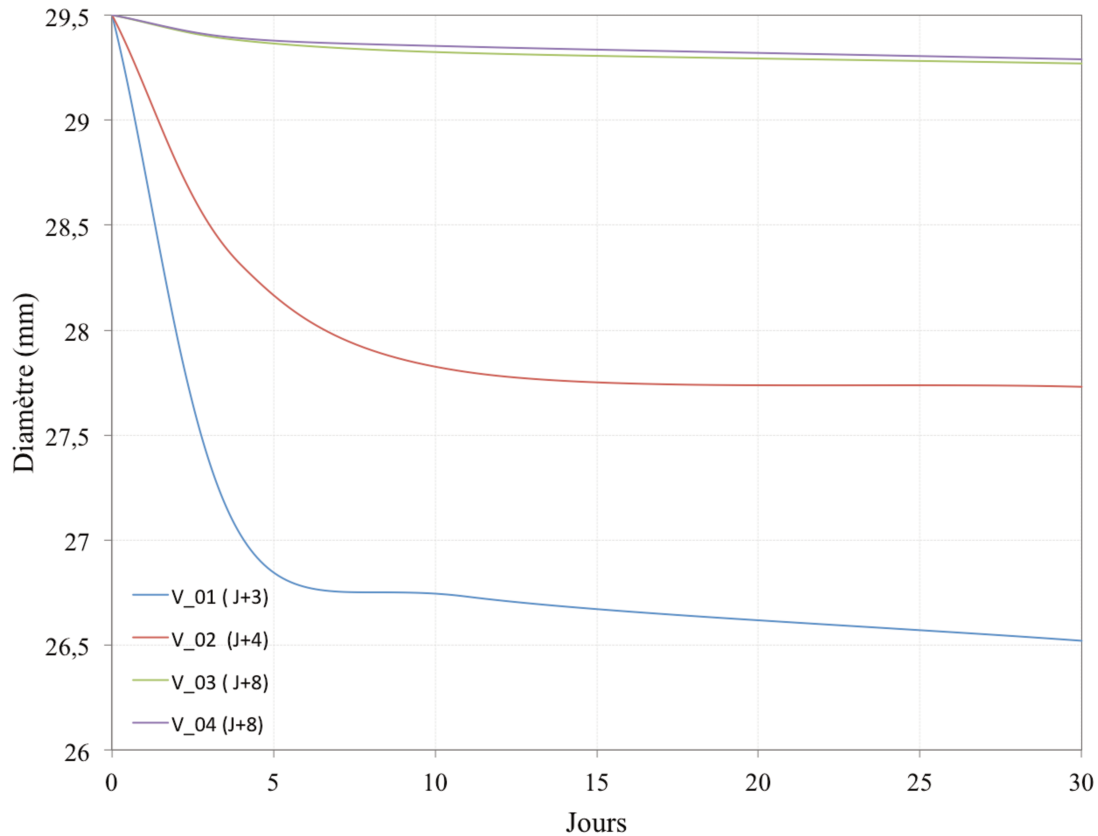
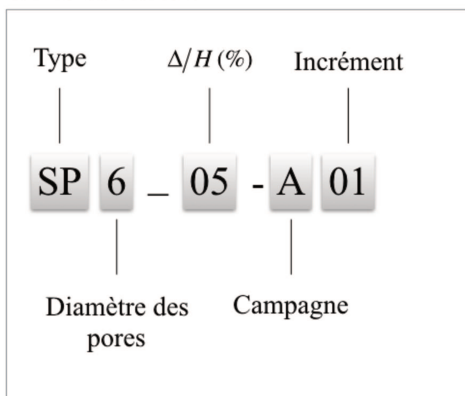


Figure 2.12 - Evolution du diamètre après découpe (0 est le jour de la découpe).

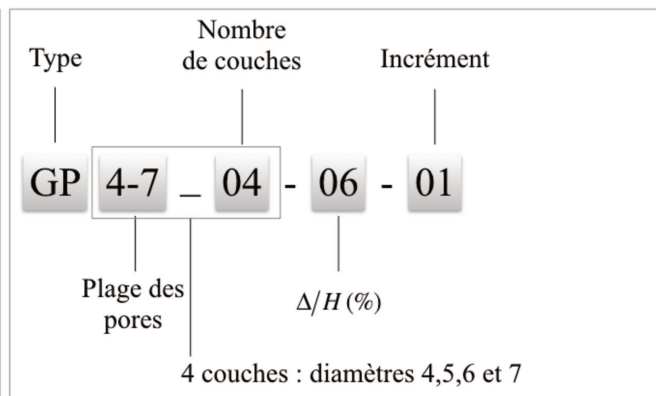
2.3 Validation du procédé

Comme nous le verrons par la suite nous allons être amenés à faire varier différents paramètres physiques du poreux de cellulose et étudier plusieurs concepts. Une nomenclature permettant d'identifier les propriétés des échantillons étudiés est présentée figure 2.13.

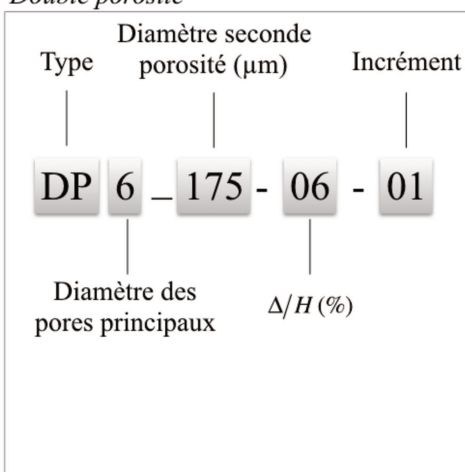
Simple porosité et gradient d'interconnexion



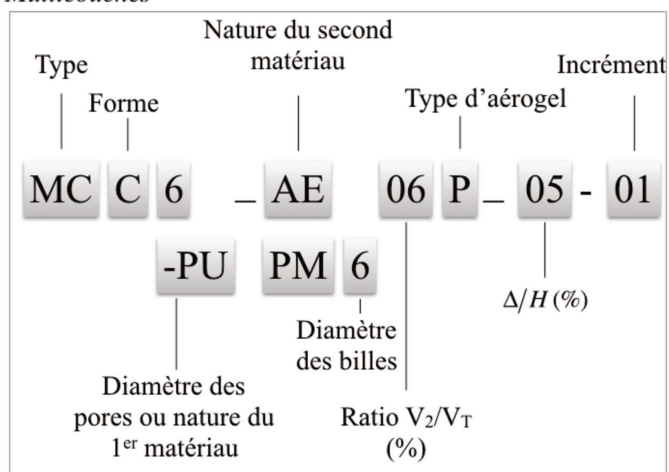
Gradient de porosité



Double porosité



Multicouches



Type

SP	Simple porosité
GP	Gradient de porosité
GI	Gradient d'interconnexion
MC	Multicouches
DP	Double porosité

Diamètre des pores

2	200 - 400 μm
4	400 - 500 μm
5	500 - 600 μm
6	600 - 710 μm
6+	600 - 800 μm
7	710 - 800 μm
8	800 - 1000 μm

Forme

C	Composite
E	Encapsulé

Nature du matériau

A	Air
AE	Aérogel de silice
FC	Filler calcaire
PU	Mousse de polyuréthane
PM	Billes de PMMA

Figure 2.13 - Codification des échantillons.

Une première campagne de fabrication a été effectuée afin de vérifier la répétabilité du processus de fabrication. Pour la construction de l’empreinte en PMMA des échantillons SP6+_05-A01 à SP6+_05-A06, la même granulométrie est utilisée (entre 600 μm et 800 μm). Le Δ/H est constant et fixé à 5%. Les propriétés des échantillons en fin de processus de fabrication sont données dans le tableau 2.1. Les paramètres m , V_T et $V_{cellulose}$ étant respectivement la masse, le volume total et le volume de cellulose du poreux.

Tableau 2.1 - Propriétés des échantillons SP6+_A01 à A06 en sortie de fabrication.

échantillon	m (g)	h (mm)	d (mm)	V_T (cm^3)	$V_{cellulose}$ (cm^3)	Porosité ϕ
SP6+_05-A01	0,5492	35,57	28,09	22,04	0,38	0,9829
SP6+_05-A02	0,5720	35,25	28,13	21,91	0,39	0,9820
SP6+_05-A03	0,5894	34,86	27,65	20,93	0,41	0,9806
SP6+_05-A04	0,4612	35,12	25,79	18,35	0,32	0,9827
SP6+_05-A05	0,5479	34,83	27,62	20,87	0,38	0,9819
SP6+_05-A06	0,5792	35,78	27,57	21,36	0,40	0,9813

La figure 2.14 montre les échantillons à l’échelle macroscopique (a) et microscopique (b). La vue microscopique rend compte des interconnexions des pores et confirme le milieu cellulaire. Cependant, lors de la fabrication un film de cellulose se forme sur les faces supérieures et inférieures des mousses. Pour supprimer cet artefact et obtenir des échantillons de hauteur identique (25 mm), ces faces sont coupées. Les courbes d’absorption (*cf.* figure 2.15) sont obtenues avec les échantillons de 25 mm de hauteur par la méthode de mesure à 2 microphones en tube d’impédance selon la norme ISO 10534-2 (*cf.* Annexe A.1.1).



Figure 2.14 - Echantillons de cellulose à l’échelle macroscopique (a) et microscopique (b).

Afin de caractériser rapidement l'efficacité acoustique du matériau poreux sur la plage de mesure, la notion d'activité acoustique (α_{norm}) est introduite [30] :

$$\alpha_{norm} = \frac{1}{f_2 - f_1} \int_{f_1}^{f_2} \alpha(f) df, \quad (2.2)$$

où f_1 et f_2 représentent la plage fréquentielle de l'étude.

La taille des échantillons utilisés ne permet pas une mesure directe de la porosité ouverte, elle sera donc obtenue analytiquement. D'après la méthode de fabrication nous pouvons supposer que tous nos pores sont interconnectés et donc déterminer analytiquement la porosité ϕ de notre matériau. Connaissant la masse volumique de la cellulose après séchage ($\rho_{cellulose}$), la masse de notre échantillon (m) et le volume total (V_T) de notre échantillon, il est possible de déterminer le pourcentage d'air présent dans notre matériau par la méthode dites des « masses apparentes » :

$$\phi = 1 - \frac{m}{\rho_{cellulose} \cdot V_T}. \quad (2.3)$$

La porosité des 6 échantillons (*cf.* tableau 2.1) est de l'ordre de 0,98 ce qui est en adéquation avec le milieux poreux cellulaire. La mesure du coefficient d'absorption en tube d'impédance (*cf.* figure 2.15) rend compte d'une activité acoustique α_{norm} relativement constante (comprise entre 0,45 et 0,48) sur la bande de fréquences 500 à 6400 Hz. La comparaison des courbes d'absorption montre un écart moyen de l'ordre 5% ce qui permet de valider la répétabilité du procédé de fabrication. Ce dernier permettant de jouer finement sur la structure interne du poreux (variabilité des pores et des interconnexions), il est donc intéressant d'observer de quelle manière ceux-ci influent sur les performances acoustiques. Ce sujet est traité dans le chapitre suivant par la mesure des performances acoustiques de différents échantillons pour lesquels nous faisons varier le diamètre des billes de PMMA et le rapport Δ/H .

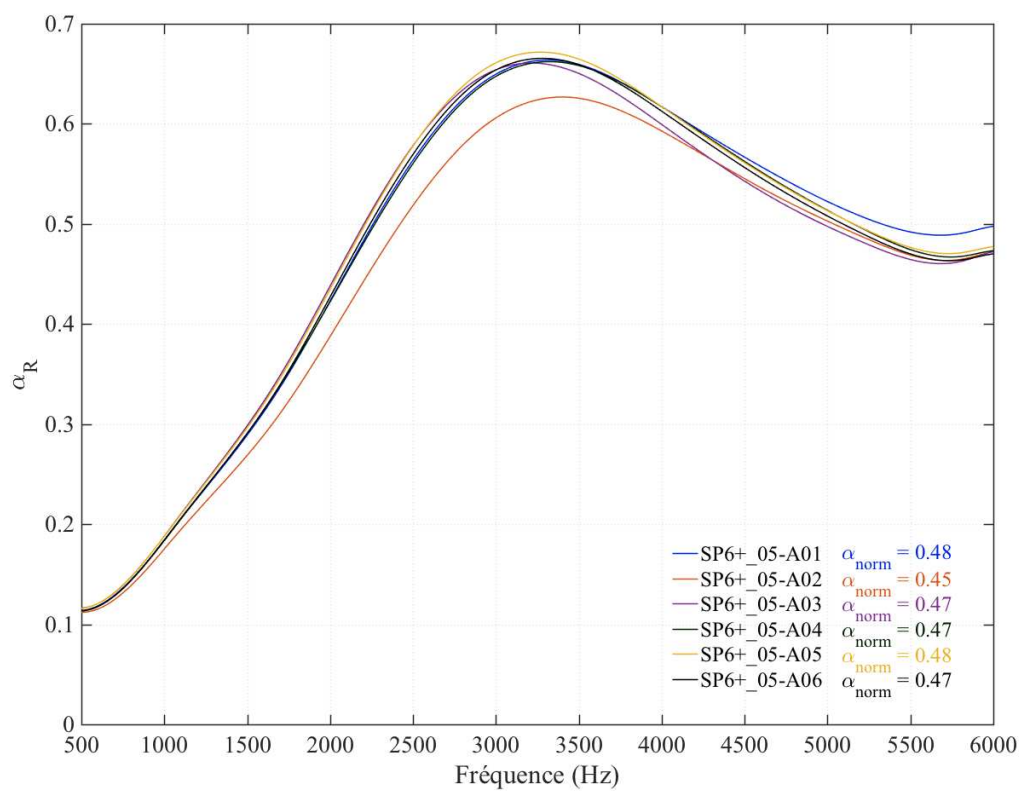


Figure 2.15 - Mesure du coefficient d'absorption sous incidence normale des échantillons A1 à A6.

Chapitre 3 Développement d'un absorbant de cellulose

Sommaire

3.1	Dissipation acoustique et caractéristiques intrinsèques des matériaux poreux..	61
3.1.1	Dissipation acoustique dans un matériaux poreux	61
3.1.2	Paramètres caractéristiques des matériaux poreux	63
3.1.3	Détermination des paramètres intrinsèques	66
3.1.3.1	Mesure directe	66
3.1.3.2	Caractérisation par les méthodes inverse et indirecte.....	67
3.2	Modélisation des poreux	70
3.2.1	Modèles fluide-équivalent des milieux cellulaires.....	72
3.2.2	Les matériaux multicouches [16]	74
3.2.3	Les matériaux à double porosité [16]	76
3.3	Contrôle de la structure du squelette	79
3.3.1	Coefficient d'absorption	79
3.3.2	Isolation acoustique	80
3.4	Caractérisation des poreux de cellulose	81

Comme nous avons pu le voir dans le chapitre précédent, si notre procédé de fabrication montre une bonne répétabilité des performances acoustiques, il est maintenant nécessaire de comprendre quels sont les paramètres permettant d'obtenir un absorbant acoustique efficace. Ce chapitre traitera donc des mécanismes de dissipation acoustique des matériaux poreux et des caractéristiques intrinsèques qui entrent en jeu dans ces mécanismes. Afin de décrire le comportement acoustique des matériaux poreux, de nombreux modèles ont été développés, ceux utilisés dans cette thèse seront traités dans la deuxième partie de ce chapitre. Enfin, une dernière partie proposera une caractérisation du poreux de cellulose afin de comprendre quels paramètres influent sur ses performances acoustiques.

3.1 Dissipation acoustique et caractéristiques intrinsèques des matériaux poreux

3.1.1 Dissipation acoustique dans un matériaux poreux

Le milieu poreux à l'échelle microscopique est un milieu hétérogène. Sa description à cette échelle étant complexe, son comportement est par conséquent étudié de manière macroscopique en raisonnant sur des valeurs homogénéisées à l'échelle d'un volume élémentaire représentatif.

On considère un matériau poreux d'épaisseur h soumis à une **onde acoustique incidente normale** placé contre une terminaison rigide (*cf.* figure 3.1) et qui vérifie les hypothèses suivantes :

- les pores sont supposés être connectés entre eux et avec l'extérieur. La présence de pores occlus au sein du milieu poreux n'est pas prise en compte, car considérée comme partie intégrante du squelette rigide,
- le matériau est homogène et isotrope,
- la longueur d'onde λ est grande devant la dimension caractéristique des pores ($\lambda \gg \bar{r}$),
- le squelette est supposé rigide, il n'est pas mis en vibration par les ondes acoustiques,
- la longueur d'onde λ est grande devant la distance moyenne entre les pores.

En négligeant les effets de diffusion et de dispersion spatiale ($\lambda \gg \bar{r}$), la propagation d'une onde acoustique dans un fluide libre peut être caractérisée par la densité et le module d'incompressibilité du fluide. Sa caractérisation dans un milieu poreux est plus complexe car la présence d'une phase solide modifie son comportement. La géométrie du poreux a pour

effet de créer des variations de vitesse et de température au sein du matériau (dues aux interactions entre les phases fluide et solide), ce qui entraîne une dissipation thermique et visqueuse. Ainsi la pression p et la vitesse v d'une onde acoustique plane sinusoïdale (caractérisée par son nombre d'onde k et sa pulsation $\omega = 2\pi f = kc$, où f est sa fréquence et c sa célérité), se déplaçant suivant l'axe x est donnée par :

$$p = Ae^{j(\omega t - kx)}, \quad (3.1)$$

$$v = \frac{A}{Z_c} e^{j(\omega t - kx)}, \quad (3.2)$$

où A est l'amplitude de l'onde acoustique, Z_c est l'impédance caractéristique du milieu et définie par le rapport entre la pression et la vitesse acoustique de ce dernier :

$$Z_c = \frac{p}{v} = \rho c, \quad (3.3)$$

où ρ est la densité.

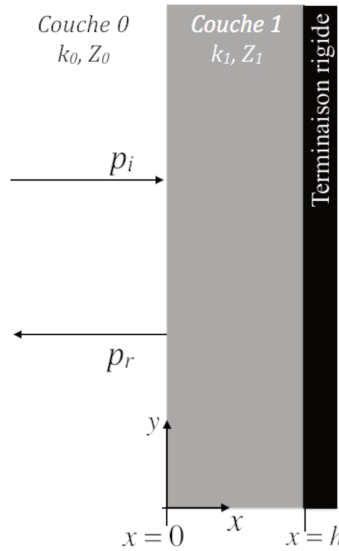


Figure 3.1 - Matériau poreux soumis à une onde acoustique incidente normale d'axe $\vec{x}$.

Le nombre d'onde k d'un matériau est donné par :

$$k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}. \quad (3.4)$$

Dans le cadre des hypothèses posées précédemment, les grandeurs Z_1 et k_1 , respectivement l'impédance caractéristique et le nombre d'onde du matériau (cf. figure 3.1) permettent de déduire les propriétés acoustiques α et TL [19] par :

$$\alpha = 1 - |R|^2 = 1 - \left| \frac{Z_s - Z_0}{Z_s + Z_0} \right|^2, \quad (3.5)$$

$$TL = 10 \log \left(\frac{1}{\tau} \right) = 10 \log \left(\frac{Z_s + Z_0}{Z_s - Z_0} \right), \quad (3.6)$$

où Z_0 est l'impédance caractéristique de l'air et Z_s l'impédance de surface du matériau donnée par la relation :

$$Z_s = -j \frac{Z_1}{\phi} \cot(k_1 h). \quad (3.7)$$

Si l'impédance caractéristique Z_c et le nombre d'onde k d'un matériau poreux permettent la description complète de son comportement acoustique pour une épaisseur connue, d'autres grandeurs plus directement liées aux phénomènes de dissipation thermique et visco-inertiels sont généralement employées.

3.1.2 Paramètres caractéristiques des matériaux poreux

La résistivité au passage de l'air joue un rôle important dans les performances acoustiques du matériau poreux. Elle est définie par le rapport entre la pression différentielle à travers le matériau et la vitesse d'écoulement à travers celui-ci [19]. Il apparaît évident qu'un milieu non réticulé présente une résistance infinie au passage de l'air, donc pas ou très peu de propagation de l'onde acoustique dans le matériau. Ainsi un matériau non réticulé aura un coefficient d'absorption faible. La résistivité σ est donnée par :

$$\sigma = \frac{p_s - p_e}{Vh}, \quad (3.8)$$

p_e étant la pression à l'entrée du matériau, p_s la pression en sortie et V la vitesse d'écoulement à travers le matériau.

La résistivité au passage de l'air peut également être reliée à la perméabilité statique du matériau k_0 par $\sigma = \eta/k_0$, où η est la viscosité dynamique de l'air (environ $1,82 \cdot 10^{-5}$ N.s.m⁻² à 20°C). Usuellement, σ est comprise entre 10^3 N.s.m⁻⁴ pour les matériaux à porosité très « ouverte » et 10^6 N.s.m⁻⁴ pour ceux à porosité très « occluse » ou les films très peu perméables. Elle peut être déterminée par la mesure directe (cf. section 3.1.3.1).

La tortuosité est liée à la sinuosité du parcours effectué par l'air lors de la propagation de l'onde acoustique. La tortuosité α_∞ est définie par :

$$\alpha_\infty = \frac{\frac{1}{V} \int_V v^2 dV}{\left(\frac{1}{V} \int_V v dV \right)^2}, \quad (3.9)$$

où v est la vitesse microscopique de l'écoulement dans les pores pour un fluide parfait. Le terme $\left(\frac{1}{V} \int_V v dV \right)$ s'interprète comme la vitesse macroscopique. Pour les mousses plastiques et les matériaux poreux, la tortuosité est comprise entre 1 et 3.

La longueur caractéristique thermique Λ' et la longueur caractéristique visqueuse Λ peuvent être interprétés géométriquement comme le réseau idéal du poreux liant les pores à leur interconnexion (cf. figure 3.2). Si Λ' est un paramètre géométrique, Λ' en raison de la pondération par les vitesses (cf. Eq. 3.11) n'est pas un paramètre purement géométrique.

La longueur caractéristique thermique Λ' peut être définie telle que [31] :

$$\frac{2}{\Lambda'} = \frac{S_p}{\phi} = \frac{\int_{S_p} dS_p}{\int_{V_p} dV_p}, \quad (3.10)$$

où S_p est la surface de contact entre le fluide et la phase solide, $\int_{S_p}$ est l'intégrale sur la surface S_p des pores contenus dans un volume d'unité et $\int_{V_p}$ l'intégrale du volume V_p fluide contenu dans un volume unité du matériau.

La longueur caractéristique visqueuse Λ peut être définie de la même manière en pondérant chaque élément par le facteur v^2 [31] :

$$\frac{2}{\Lambda} = \frac{\int_{S_p} v^2 dS_p}{\int_{V_p} v^2 dV_p}, \quad (3.11)$$

où $\int_{S_p}$ est l'intégrale sur la surface S_p des pores contenus dans un volume d'unité et $\int_{V_p}$ l'intégrale du volume V_p fluide contenu dans un volume unité du matériau.

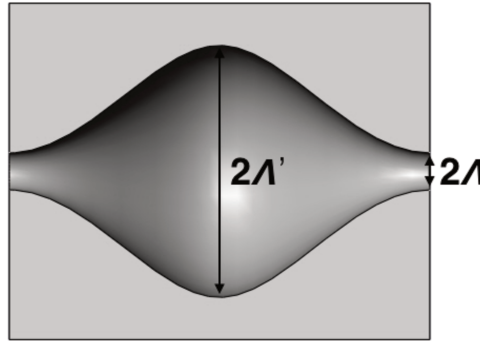


Figure 3.2 - Représentation des longueurs caractéristiques thermique et visqueuse.

Notons que Λ est toujours inférieur à Λ' sauf dans le cas de pores droits où les deux valeurs sont égales. Ces deux valeurs sont généralement comprises entre 10^{-6} et 10^{-3} m, avec un rapport de 2 à 3 entre Λ et Λ' .

La perméabilité thermique k'_0 est introduite par Lafarge *et al.* [32] pour représenter la section effective des échanges thermiques (par analogie à la perméabilité statique k_0). Elle est liée au comportement basse fréquence des pertes thermiques dans le matériau.

Considérons un matériau poreux soumis à une pression p lentement variable, des températures excédentaires apparaissent alors dans le fluide au niveau microscopique. Le champ des températures excédentaires dans les pores $\langle T_0 \rangle$ vérifie une loi de type Darcy [31]:

$$k'_0 = \phi \frac{\langle T_0 \rangle^2}{-\langle T_0 \cdot \Delta T_0 \rangle}. \quad (3.12)$$

Dans le cas de matériaux à squelette élastique, il serait nécessaire de connaître leurs paramètres mécaniques. En effet, pour un matériau excité mécaniquement ou dont le squelette est mis en mouvement par une onde acoustique, le module de Young complexe E et le coefficient de poisson ν interviennent dans son comportement acoustique.

3.1.3 Détermination des paramètres intrinsèques

Si la porosité et la résistivité au passage de l'air peuvent être déterminées par la mesure directe facilement à l'aide d'un porosimètre et d'une résistivimètre, la mesure de la tortuosité, des longueurs caractéristiques visqueuses et thermiques et de la perméabilité thermique s'avère plus complexe et destructive. L'utilisation des méthodes inverse et indirecte permet l'évaluation de ces derniers.

3.1.3.1 Mesure directe

Comme nous l'avons vu précédemment (*cf.* section 2.3) la taille des échantillons ne permet pas la mesure directe de la porosité et sera déterminée analytiquement (*cf.* Eq. (2.3)).

La résistivité σ est obtenue par la mesure directe en plaçant l'échantillon dans un tube ouvert à une extrémité (*cf.* figure 3.3). La différence de pression Δp_e entre l'entrée et la sortie de la résistance étalon R_e et la différence de pression Δp_x aux bornes de l'échantillon sont mesurées. En établissant les relations entre les valeurs mesurées et l'équation (3.8) on obtient :

$$p_s - p_e = \Delta p_x, \quad (3.13)$$

$$Q_v = V \cdot S = \frac{\Delta p_e}{R_e}, \quad (3.14)$$

d'où,

$$V = \frac{\Delta p_e}{R_e \cdot S}. \quad (3.15)$$

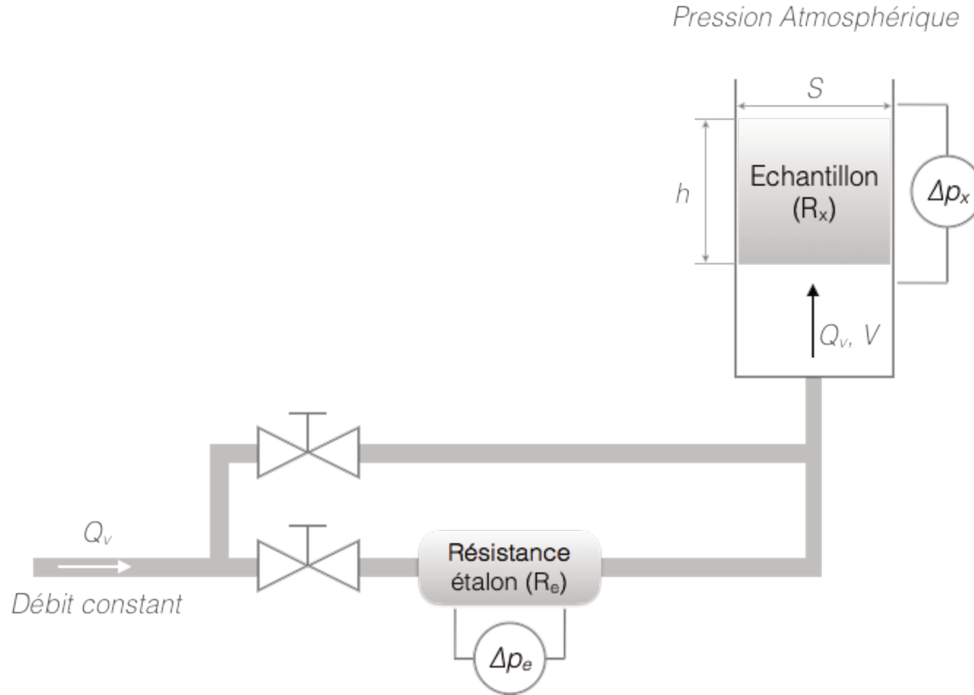


Figure 3.3 - Principe de mesure de la résistivité au passage de l'air.

La valeur de la résistivité au passage de l'air d'après les mesures expérimentales est donc :

$$\sigma = \frac{\Delta p_x}{\Delta p_e} \frac{S}{h} R_e \cdot \quad (3.16)$$

3.1.3.2 Caractérisation par les méthodes inverse et indirecte

L'évaluation de α_∞ , Λ , Λ' et k'_0 peut s'obtenir par la mesure à trois microphones en tube d'impédance. Il existe deux méthodes de caractérisation dont le montage expérimental est le même (cf. figure 3.4). L'échantillon est placé dans le tube d'impédance avec une terminaison rigide sur laquelle est fixé le troisième microphone. La méthode de caractérisation inverse permet d'évaluer dans notre cas les cinq grandeurs physiques nécessaires au modèle numérique de Johnson-Champoux-Allard (porosité, tortuosité, résistivité, longueur caractéristique thermique et longueur caractéristique visqueuse) qui est le modèle le plus utilisé pour la prédiction du coefficient d'absorption sous incidence normale. Le sixième paramètre k'_0 pourrait également être déterminé par cette méthode pour l'application du Johnson-Champoux-Allard-Lafarge (cf. figure 3.6), ce qui n'est pas forcément judicieux car

cela rajoute un degré de liberté à la minimisation. C'est pourquoi la méthode indirecte [33] est privilégiée.

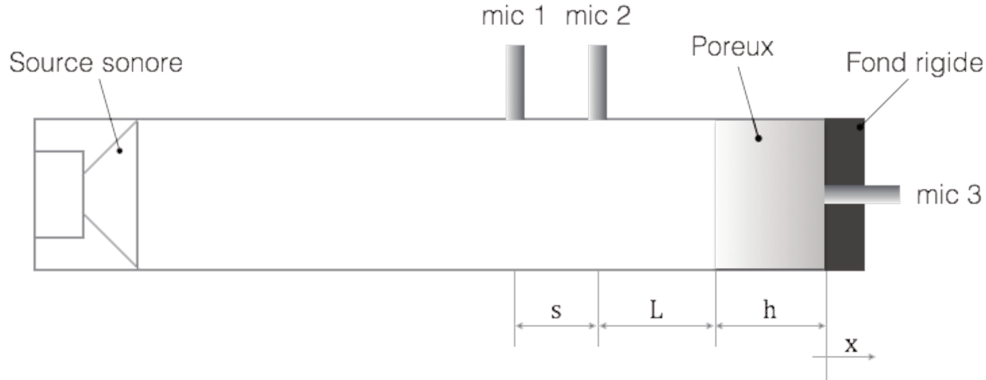


Figure 3.4 - Principe de mesure à trois microphones en tube d'impédance [33].

Méthode inverse [34]

La méthode inverse repose sur la mesure précise de l'impédance de surface du matériau poreux sur une plage de fréquence qui permet de considérer son squelette comme rigide. Le poreux peut alors être décrit macroscopiquement comme un fluide équivalent homogène de densité effective $\tilde{\rho}_{eq}$ et de module d'incompressibilité dynamique $\tilde{K}_{eq}$. L'impédance caractéristique du matériau étant reliée au fluide équivalent par $Z_c = \sqrt{\tilde{\rho}_{eq}\tilde{K}_{eq}}$, un ajustement par la méthode des moindres carrés entre les données expérimentales et estimées permet l'identification des 3 paramètres α_∞ , Λ et Λ' . Dans le but de minimiser cette fonction les limites suivantes peuvent être considérées [34] :

$$\begin{cases} 1 \leq \alpha_\infty \leq 5, & (a) \\ \frac{1}{3,3} \sqrt{\frac{8\alpha_\infty\eta}{\sigma\phi}} \leq (\Lambda, \Lambda') \leq \frac{1}{0,3} \sqrt{\frac{8\alpha_\infty\eta}{\sigma\phi}}, & (b) \\ \Lambda \leq \Lambda'. & (c) \end{cases} \quad (3.17)$$

D'autre part, l'analyse de la fonction permet d'identifier la gamme de fréquence nécessaire à la convergence du processus de minimisation. Ainsi, dans chaque zone un ensemble de paramètres est mis en évidence (cf. Figure 3.5) : le triplet $\{\phi, \sigma, \Lambda'\}$ dans la Zone I, $\{\alpha_\infty, \sigma, \Lambda\}$ dans la Zone II et $\{\phi, \Lambda, \Lambda'\}$ dans la Zone III. Il apparaît donc que lorsque ϕ et σ sont connus, seules les zones I et II sont nécessaires pour identifier les trois paramètres manquants.

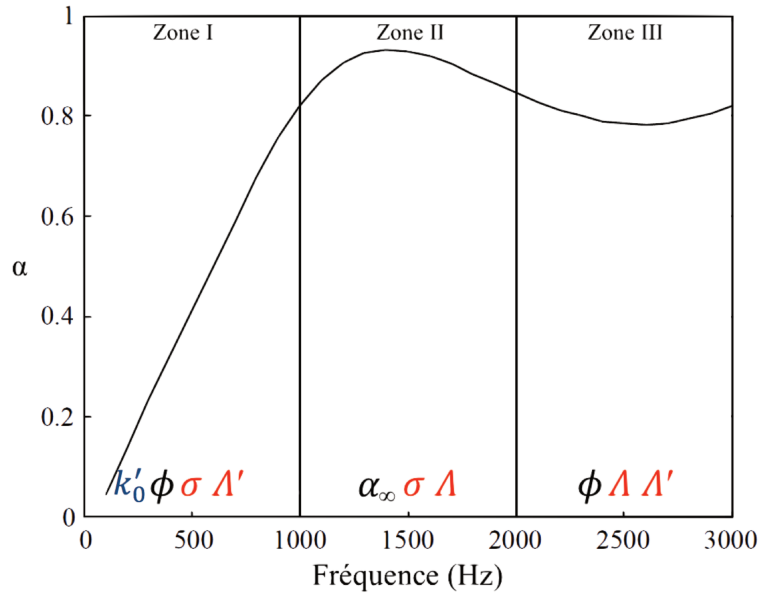


Figure 3.5 - Zones fréquentielles d'identification des paramètres [34].

Méthode indirecte [33, 35]

La méthode indirecte est basée sur la mesure de la densité et du module de compression effective du matériau en tube d'impédance. Elle nécessite la connaissance de la porosité et de la résistivité au passage de l'air. Cette méthode est aussi appelée la méthode d'inversion analytique et repose sur l'identification des paramètres du modèle JCAL (*cf.* section 3.2.1). Elle présente l'avantage d'évaluer la perméabilité thermique du matériau en plus des 3 paramètres α_∞ , Λ et Λ' . La définition de $\tilde{\rho}_{eq}$ et $\tilde{K}_{eq}$ dépend du nombre d'onde et de l'impédance caractéristique du matériau par :

$$\tilde{\rho}_{eq} = \frac{\phi Z_c k}{\omega}, \quad (3.18)$$

$$\tilde{K}_{eq} = \frac{\phi \omega Z_c}{k}. \quad (3.19)$$

Il est possible d'en déduire les propriétés non acoustiques du matériau :

$$\alpha_\infty = \frac{1}{\rho_0} \left(\operatorname{Re}(\tilde{\rho}_{eq}) - \sqrt{\operatorname{Im}(\tilde{\rho}_{eq})^2 - \left(\frac{\sigma\phi}{\omega}\right)^2} \right), \quad (3.20)$$

$$\Lambda = \alpha_\infty \sqrt{\frac{2\rho_0\eta}{\omega \operatorname{Im}(\tilde{\rho}_{eq}) (\rho_0\alpha_\infty - \operatorname{Re}(\tilde{\rho}_{eq}))}}, \quad (3.21)$$

$$\Lambda' = \delta_t \sqrt{2} \left(-\operatorname{Im} \left(\left(\frac{1 - \tilde{K}_{eq}/K_a}{1 - \gamma \tilde{K}_{eq}/K_a} \right)^2 \right) \right)^{-1/2}, \quad (3.22)$$

$$k'_0 = \phi \frac{\delta_t^2}{2} \left(-\operatorname{Re} \left(\left(\frac{1 - \tilde{K}_{eq}/K_a}{1 - \gamma \tilde{K}_{eq}/K_a} \right)^2 \right) \right)^{-1/2}, \quad (3.23)$$

avec ρ_0 , K_a et η la densité, le module de compression adiabatique et la viscosité dynamique du fluide ambiant (ici l'air). Ces valeurs sont dépendantes de la température, de la pression atmosphérique et du taux d'humidité. $\delta_t = \sqrt{2\eta/\rho_0\omega\operatorname{Pr}}$, où Pr est le nombre de Prandtl (0,71 pour l'air).

Nous venons de voir que la détermination expérimentale des paramètres intrinsèques des matériaux poreux s'appuie sur les modèles en fluide-équivalent, ceux-ci sont traités dans la section suivante. Il y sera également évoqué les modèles adaptés aux matériaux multicouches et à double porosité, qui seront développés dans le chapitre 4.

3.2 Modélisation des poreux

Le premier modèle permettant de décrire la propagation de l'air dans un matériau poreux [36] montrait l'importance de connaître la porosité et la résistivité au passage de l'air (ou la perméabilité) du matériau. Il décrit la propagation des ondes acoustiques dans des matériaux poreux à squelette rigide et immobile dont les pores sont cylindriques de même orientation. Les considérations introduites dans ce modèle sont toujours utilisées dans les modèles plus récents. Entre les années 1970 et 1990 de nombreux modèles ont été développés pour décrire le comportement acoustique des matériaux en fonction de leur complexité (cf. figure 3.6) [37].

Si Z_c et k sont suffisants pour décrire le comportement acoustique d'un matériau poreux d'épaisseur connue (cf. Eq. (3.7)), d'autres grandeurs liées aux effets de dissipation visco-inertiels et thermiques sont plus généralement utilisés.



Figure 3.6 - Les paramètres physiques des matériaux poreux : les modèles applicables [37].

Ainsi la perméabilité dynamique visco-inertielle est introduite. Elle est définie à partir de la vitesse macroscopique moyenne dans la loi de Darcy généralisée [38] :

$$\tilde{\Pi} = -\frac{\eta \langle v \rangle}{\nabla p}, \quad (3.24)$$

où $\langle v \rangle$ est la vitesse macroscopique moyenne et η la viscosité de cisaillement de l'air.

La densité dynamique est déduite à partir de la perméabilité dynamique par :

$$\tilde{\rho}_{eq} = \frac{\eta}{j\omega \tilde{\Pi}}. \quad (3.25)$$

Le module d'incompressibilité thermique est déterminé par :

$$\tilde{K}_{eq} = \rho_0 \frac{p}{\langle \rho \rangle}, \quad (3.26)$$

où ρ_0 est la masse volumique de l'air au repos et $\langle \rho \rangle$ la densité macroscopique moyenne du fluide.

$\tilde{K}_{eq}$ est relié à la perméabilité dynamique thermique par la relation :

$$\tilde{K}_{eq} = \frac{\gamma P_0}{\phi} \left[\gamma - j(\gamma - 1) \frac{k'_0}{\phi \delta_t^2} \right]^{-1}, \quad (3.27)$$

où γ est le rapport des capacités calorifiques de l'air à pression (C_p) et à volume (C_v) constant ($\gamma = C_p/C_v$) et P_0 la pression de l'air à l'équilibre.

La célérité du milieu poreux est définie à partir des deux propriétés intrinsèques $\tilde{\rho}_{eq}$ et $\tilde{K}_{eq}$ par :

$$c = \sqrt{\frac{\tilde{K}_{eq}}{\tilde{\rho}_{eq}}}. \quad (3.28)$$

L'impédance caractéristique et le nombre d'onde du matériau sont obtenus en remplaçant c dans les équations (3.3) et (3.4) :

$$Z_c = \sqrt{\tilde{\rho}_{eq} \tilde{K}_{eq}}, \quad (3.29)$$

$$k = \omega \sqrt{\frac{\tilde{\rho}_{eq}}{\tilde{K}_{eq}}}. \quad (3.30)$$

3.2.1 Modèles fluide-équivalent des milieux cellulaires

Comme nous venons de le voir, les premiers modèles permettent de décrire les interactions des phases fluide et solide d'un matériau à pores cylindriques droits. Ainsi, Zwikker et Kosten ont proposé le modèle suivant [36] :

$$\tilde{\rho}_{eq} = \frac{\rho_0 \alpha_\infty}{\phi} \left[1 - \frac{2}{\beta \sqrt{-j}} \frac{J_1(\beta \sqrt{-j})}{J_0(\beta \sqrt{-j})} \right]^{-1}, \quad (3.31)$$

$$\tilde{K}_{eq} = \frac{\gamma P_0}{\phi} \left[1 + \frac{2(\gamma - 1) J_1 \beta \sqrt{-j \text{Pr}}}{\beta \sqrt{-j \text{Pr}} J_0 \beta \sqrt{-j \text{Pr}}} \right]^{-1}, \quad (3.32)$$

où $\beta = \sqrt{8\omega\rho_0\alpha_\infty/\sigma\phi}$, J_0 et J_1 les fonctions de Bessel de première espèce d'ordre 0 et 1.

Afin de décrire les effets de forme de pores, un facteur de forme s est introduit. La densité dynamique et le module d'incompressibilité dynamique deviennent :

$$\tilde{\rho}_{eq} = \frac{\rho_0\alpha_\infty}{\phi} \left[1 - j \frac{\sigma\phi}{\rho_0\alpha_\infty\omega} F(\beta s) \right], \quad (3.33)$$

$$\tilde{K}_{eq} = \frac{\gamma P_0/\phi}{\gamma - (\gamma - 1) \left[1 - j \frac{\sigma\phi}{\rho_0\alpha_\infty\text{Pr}\omega} F(\sqrt{\text{Pr}}\beta s) \right]^{-1}}. \quad (3.34)$$

Johnson *et al.* [38] ont introduit la notion de longueur caractéristique visqueuse Λ afin de décrire de façon exacte le comportement hautes fréquences. Ce paramètre permet une amélioration de la description des effets visco-inertiels et intervient donc sur la densité dynamique décrite par :

$$\tilde{\rho}_{eq} = \frac{\rho_0\alpha_\infty}{\phi} \left[1 - j \frac{\sigma\phi}{\rho_0\alpha_\infty\omega} \sqrt{1 + j \frac{4\eta\alpha_\infty^2\rho_0\omega}{\Lambda^2\sigma^2\phi^2}} \right]. \quad (3.35)$$

Si l'intégration du facteur de forme s améliore la prédiction, celui-ci s'appuie sur le facteur forme des effets visqueux. Cependant pour un matériau dont la section des pores varie suivant son épaisseur, le modèle montre ses limites. La longueur caractéristique thermique Λ' permet de tenir compte de cette variation de section [39], le module d'incompressibilité devient :

$$\tilde{K}_{eq} = \frac{\gamma P_0/\phi}{\gamma - (\gamma - 1) \left[1 - j \frac{8\kappa}{\Lambda'^2 C_p \rho_0 \omega} \sqrt{1 + j \frac{\Lambda'^2 C_p \rho_0 \omega}{16\kappa}} \right]^{-1}}. \quad (3.36)$$

Ces deux derniers modèles permettent d'obtenir une bonne prédiction pour une grande partie des matériaux poreux à simple échelle, cependant l'introduction de la perméabilité thermique k'_0 permet un meilleur découplage des effets thermiques et visco-inertiels [32]. Le module d'incompressibilité s'écrit alors :

$$\tilde{K}_{eq} = \frac{\gamma P_0 / \phi}{\gamma - (\gamma - 1) \left[1 - j \frac{\phi \kappa}{k'_0 C_p \rho_0 \omega} \sqrt{1 + j \frac{4k_0'^2 C_p \rho_0 \omega}{\kappa \Lambda'^2 \phi^2}} \right]^{-1}}. \quad (3.37)$$

Comme nous le montrent les différents modèles, l'obtention d'un bon absorbant acoustique est possible en agissant sur les paramètres intrinsèques de ce dernier. Nous verrons dans le chapitre suivant que la porosité de notre matériau est relativement constante et proche de 1. Ainsi les paramètres sur lesquels nous pouvons agir et qui sont directement reliés aux dimensions du squelette sont Λ' et Λ . Ceux-ci étant dépendants de la taille des pores et des interconnexions, le contrôle du diamètre des billes de PMMA et du taux de compression de l'empreinte entraînent une modification de ces deux paramètres. D'autre part l'équation (3.17 (b)) nous montre que Λ' et Λ peuvent être reliés à σ . Ces trois paramètres étant prédominants dans les phénomènes d'absorption en dessous de 2 kHz (*cf.* figure 3.5), la variation de la taille des pores et des interconnexions pourrait nous permettre d'améliorer les performances basses fréquences de notre poreux. Leur influence est présentée dans la section 3.4.

Les performances du poreux peuvent également être améliorées par la mise en œuvre de différents concepts, comme l'empilement de couches de porosités différentes, l'incorporation de matériaux de différentes natures ou encore l'obtention d'une double porosité. L'étude de leur influence sur les performances acoustiques du matériau est traitée dans le Chapitre 4. La prédiction des performances acoustiques de ces types de matériaux est possible à l'aide des méthodes ci-après.

3.2.2 Les matériaux multicouches [19]

Les propriétés acoustiques des matériaux multicouches peuvent être prédites, pour cela les propriétés de chaque couche et le couplage des couches entre elles doivent être connus. La résolution d'un tel système peut se faire par la méthode de la matrice de transfert [19].

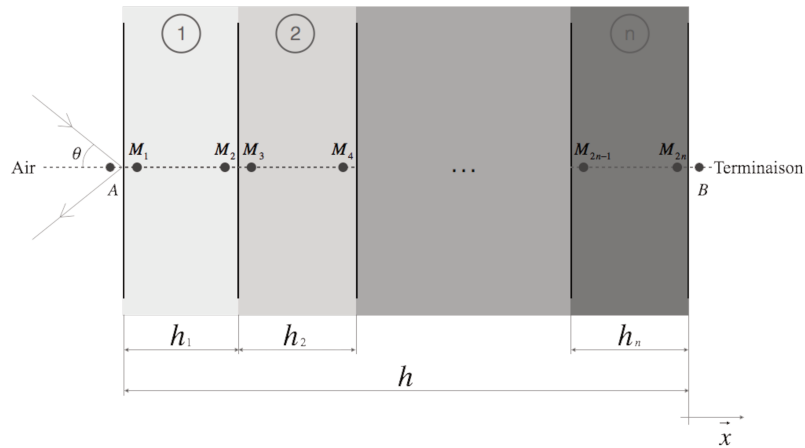


Figure 3.7 - Représentation d'un matériau multicouche.

Considérons un matériau composé de n couches. Chaque couche est supposée homogène, isotrope et de dimension latérale infinie. Pour un matériau soumis à une onde plane d'incidence θ (cf. figure 3.7), le champ acoustique peut être décrit par un vecteur $V(M)$. Sous l'hypothèse de fluide équivalent, une matrice de transfert $[T_i]$ lie alors les champs acoustiques de chaque couche :

$$V(M_{2i-1}) = [T_i]V(M_{2i}), \quad (3.38)$$

Le champ acoustique se précise en une pression acoustique $p(M)$ et une vitesse acoustique $v_x(M)$ (sur l'axe $\vec{x}$). Le vecteur décrivant ce dernier s'écrit :

$$V(M) = \begin{bmatrix} p(M) \\ v_x(M) \end{bmatrix}. \quad (3.39)$$

La matrice de transfert de la couche poreuse est donnée par :

$$[T] = \begin{bmatrix} \cos(k_x h) & j \frac{\omega \tilde{\rho}_{eq}}{k_x} \sin(k_x h) \\ j \frac{k_x}{\omega \tilde{\rho}_{eq}} \sin(k_x h) & \cos(k_x h) \end{bmatrix}, \quad (3.40)$$

avec $k_x = k \cos \theta$

Une fois que la matrice de transfert $[T_i]$ de chaque couche est évaluée, les matrices d'interface doivent être calculées. Elles permettent d'assurer la continuité des grandeurs acoustiques entre deux couches successives et dans notre cas à la continuité de p et de v_x . L'ensemble des matrices de transfert et d'interface sont ensuite transformées afin d'obtenir la

matrice de transfert globale. Pour résoudre le problème, une condition limite est fixée à l'extrémité du matériau : terminaison rigide (impédance infinie, d'où $v_x(M_{2n}) = 0$) ou terminaison anéchoïque (l'impédance caractéristique devient égale à Z_0).

3.2.3 Les matériaux à double porosité [19]

D'un point de vue acoustique, un matériau à double porosité peut être modélisé comme la superposition de deux milieux homogènes : le milieu micro-poreux et méso-poreux (cf. figure 3.8), chaque milieu étant caractérisé respectivement par sa perméabilité dynamique $\tilde{\Pi}_m$ pour le milieu poreux et $\tilde{\Pi}_p$ pour le réseau méso-poreux. Les indices m, p et dp font respectivement référence aux milieux micro-poreux, méso-poreux et au matériau double porosité dans sa globalité.

Considérons un matériau à double porosité caractérisé d'un point de vue macroscopique par son épaisseur L et par deux dimensions caractéristiques l_p à l'échelle mésoscopique et l_m à l'échelle microscopique (cf. figure 3.9). Le modèle à double porosité, tel qu'il est décrit par Olny & Boutin [3], repose sur les hypothèses suivantes :

- les hétérogénéités des méso-pores sont petites au regard de la longueur d'onde dans la bande de fréquences étudiée,
- la résistivité au passage de l'air du milieu micro-poreux doit être importante,
- la différence d'échelle entre les méso-pores et les micro-pores est suffisamment importante ($l_p/l_m > 10$).

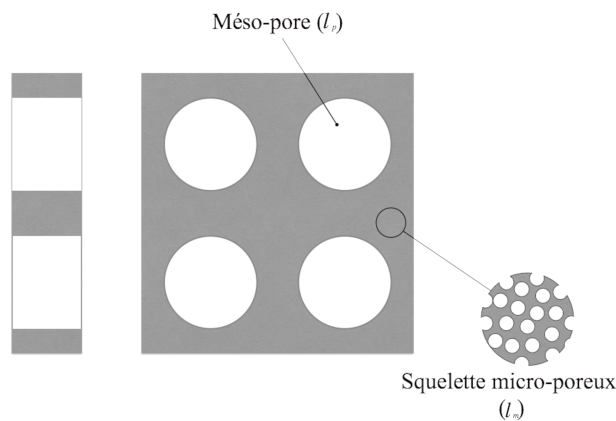


Figure 3.8 - Représentation des deux échelles de porosité.

La densité dynamique d'un matériau à double porosité ($\tilde{\rho}_{dp}$) est donnée par :

$$\tilde{\rho}_{dp} = \frac{\eta}{j\omega\tilde{\Pi}_{dp}}, \quad (3.41)$$

$$\tilde{\Pi}_{dp} = (1 - \phi_p)\tilde{\Pi}_m + \tilde{\Pi}_p, \quad (3.42)$$

où ϕ_p est la porosité du réseau micro-poreux.

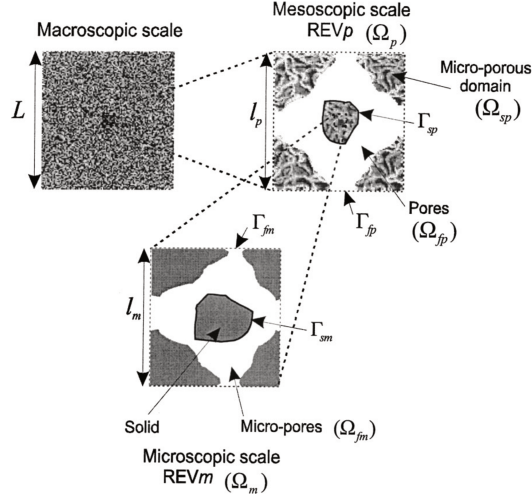


Figure 3.9 - Représentation des échelles d'un matériau à double porosité [3].

Deux cas sont distingués pour la détermination du module d'incompressibilité dynamique d'un matériau à double porosité ($\tilde{K}_{dp}$) : les réseaux microscopiques et mésoscopiques à faible et fort contraste de perméabilité. On parle de faible contraste lorsque le rapport l_p/l_m est aux alentours de 10 et de fort contraste pour un rapport l_p/l_m proche de 1000.

Dans le cas d'un faible contraste de perméabilité, $\tilde{K}_{dp}$ est déduit à partir des modules d'incompressibilité dynamique des réseaux micro-poreux ($\tilde{K}_m$) et méso-poreux ($\tilde{K}_p$) par :

$$\tilde{K}_{dp} = \left[\frac{1}{\tilde{K}_p} + (1 - \phi_p) \frac{1}{\tilde{K}_m} \right]^{-1}. \quad (3.43)$$

En revanche, pour un fort contraste de perméabilité, la variation de pression à l'échelle mésoscopique peut entraîner une variation de pression à l'échelle microscopique. Ce phénomène est appelé fonction de diffusion de pression (F_d). L'expression de l'incompressibilité dynamique devient :

$$\tilde{K}_{dp} = \left[\frac{1}{\tilde{K}_p} + (1 - \phi_p) \frac{F_d \left(\omega \frac{P_0}{\phi_m \tilde{K}_m} \right)}{\tilde{K}_m} \right]^{-1}, \quad (3.44)$$

où ϕ_m est la porosité du réseau micro-poreux.

F_d dépend de la fréquence et est donnée par la relation suivante :

$$F_d(\omega) = 1 - j \frac{\omega}{\omega_d} \frac{D(\omega)}{D(0)}, \quad (3.45)$$

$$D(\omega) = \frac{D(0)}{j \frac{\omega}{\omega_d} + \left(1 + j \frac{M_d}{2} \frac{\omega}{\omega_d} \right)^{1/2}}, \quad (3.46)$$

où $D(0)$ est la valeur statique de $D(\omega)$, ω_d est la fréquence de diffusion de pression et M_d est un facteur de forme. Ces valeurs peuvent être évaluées par les équations suivantes :

$$D(0) = O \left((1 - \phi_p) l_p^2 \right), \quad (3.47)$$

$$\omega_d = \frac{(1 - \phi_p) P_0 \tilde{\Pi}_m(0)}{\phi_m \eta D(0)}, \quad (3.48)$$

$$M_d = \frac{8D(0)}{\Lambda_d^2 (1 - \phi_p)}, \quad (3.49)$$

où Λ_d est directement relié à la longueur caractéristique thermique du réseau méso-poreux (Λ'_p) par $\Lambda_d = (1 - \phi_p) \Lambda'_p / \phi_p$.

La fonction de diffusion de pression peut être séparée en deux zones, celle des basses fréquences ($\omega \ll \omega_d$) et les hautes fréquences ($\omega \gg \omega_d$) :

- aux basses fréquences, F_d tend vers 1 quand la fréquence diminue. La pression dans le matériau est uniforme à l'échelle mésoscopique,
- aux hautes fréquences, F_d tend vers 0 quand la fréquence augmente, ce qui signifie que le réseau micro-poreux ne participe pas au comportement macroscopique du matériau.

Au voisinage de ω_d la pression dans les pores et les micro-pores est du même ordre de grandeur. Il y a diffusion de pression des pores vers les micro-pores qui entraîne un déphasage

entre les pressions à l'échelle microscopique et mésoscopique. Ces phénomènes entraînent une augmentation du coefficient d'absorption par rapport au réseau micro-poreux seul [40].

3.3 Contrôle de la structure du squelette

Comme évoqué dans le premier chapitre, le confort acoustique dans le bâtiment regroupe deux domaines : l'isolation et la correction acoustique. Le premier domaine pourrait être caractérisé sommairement par le coefficient de perte en transmission, le second par le coefficient d'absorption. Comme nous sommes ici dans le cadre du développement d'un matériau absorbant, les mesures sont faites sous incidence normale en tube d'impédance. Le but est de mettre en évidence les possibilités de modification dimensionnelle du squelette et d'estimer les performances maximales du poreux de cellulose. Les propriétés des échantillons sont données dans le tableau 3.1. Les paramètres qui varient lors de la fabrication sont : le diamètre des billes de PMMA (qui rend compte du diamètre des pores), la compression du squelette pendant la phase de formage (Δ/H) qui influe sur le diamètre théorique des interconnexions (ε).

Tableau 3.1 - Propriété des poreux de cellulose pour la détermination de l'influence de la structure du squelette sur les performances acoustiques.

Échantillon	Diamètre des billes de PMMA (μm)	Masse (g)	Épaisseur (mm)	Diamètre (mm)	Δ/H (%)	Interconnexions théorique ε (μm)
SP2_09-I05	200-400	0,1697	$18,01 \pm 0,07$	$29,02 \pm 0,16$	9,09	126,61
SP5_05-I07	500-600	0,218	$20,29 \pm 0,16$	$29,27 \pm 0,08$	5,01	179,44
SP5_11-I08	500-600	0,2143	$19,11 \pm 0,18$	$29,29 \pm 0,12$	11,49	260,62
SP6_05-I03	600-710	0,2315	$20,94 \pm 0,15$	$29,33 \pm 0,11$	5,00	215,63
SP7_06-I04	710-800	0,2059	$19,12 \pm 0,14$	$29,29 \pm 0,07$	5,94	269,02

3.3.1 Coefficient d'absorption

Dans un premier temps, seules les propriétés acoustiques de notre poreux sont traitées afin de déterminer l'influence de la modification des paramètres physiques de celles-ci (taille de pores, taille des interconnexions). Les courbes d'absorption sous incidence normale (cf. figure 3.10) montrent que la modification de ces paramètres influe sur les performances acoustiques des mousses. De manière générale, la diminution de la taille des pores améliore l'absorption ($\alpha_{\text{norm}} = 0,51$ pour SP2_09-I05 et $\alpha_{\text{norm}} = 0,20$ pour SP7_06-I04). Les meilleures

performances étant obtenues avec l'échantillon SP2_09-I05 dont le diamètre des pores est compris entre 200 μm et 400 μm avec un pic d'absorption de l'ordre de 0,8 à 5000 Hz.

Pour les échantillons SP5_05-I07 et SP5_11-I08 dont la plage de diamètres de billes utilisée est la même, nous constatons une différence de performances acoustiques qui pourrait être due au diamètre des interconnexions. En effet plus ce diamètre est grand, plus le milieu est réticulé. Il est donc plus perméable à l'onde acoustique et présente une moins bonne absorption. Les performances du poreux de cellulose sont donc dépendantes des caractéristiques dimensionnelles de son squelette. Afin de mieux comprendre son influence, la détermination de ses paramètres intrinsèques est nécessaire et sera traitée dans la section 3.4 avec la modélisation du poreux de cellulose.

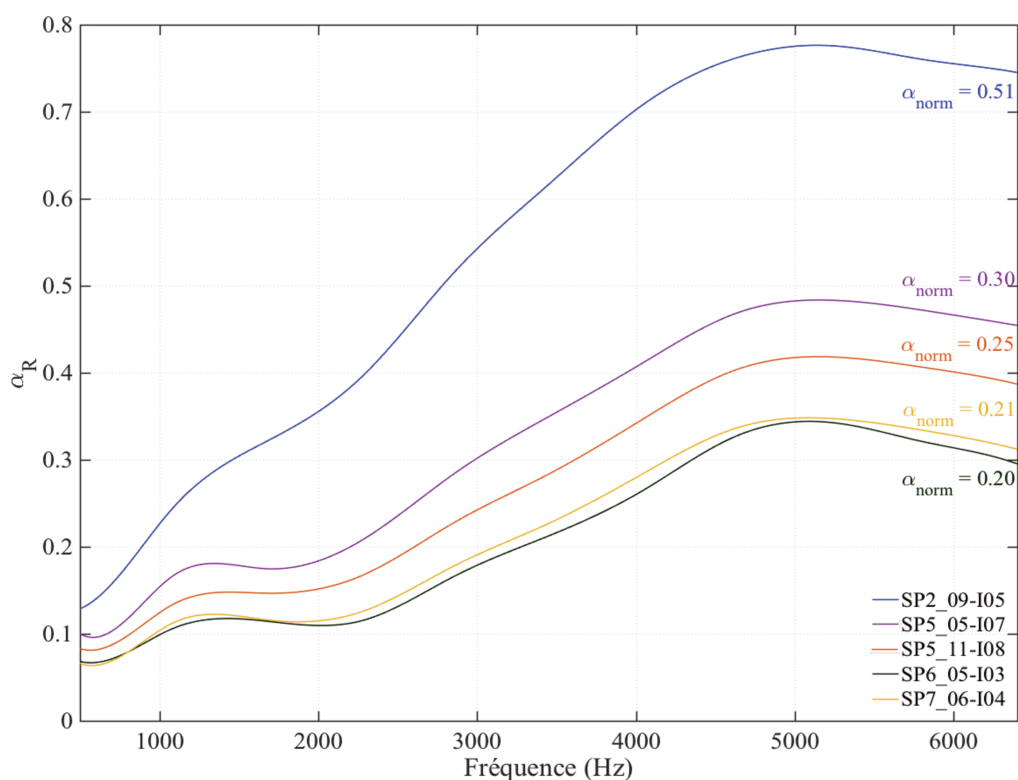


Figure 3.10 - Courbes d'absorption sur fond rigide des échantillons du tableau 3.1.

3.3.2 Isolation acoustique

La détermination de l'indice d'affaiblissement acoustique sous incidence normale (TL_N) est réalisée par la méthode de fonction transfert à 4 microphones selon la norme ASTM E2611-09 (*cf.* annexe A.1.1). Nous comparons ici les valeurs des poreux de cellulose

et de la mélamine en prenant comme référence l'indice d'affaiblissement d'une laine de verre. Cette dernière ayant une épaisseur de $20,23 \pm 0,14$ mm et la mélamine $20,88 \pm 0,24$ mm.

La figure 3.11 montre que les indices d'affaiblissements obtenus pour les poreux de cellulose sont inférieurs en moyenne de 6 dB avec la plus forte atténuation pour l'échantillon SP2_09-I05 qui est légèrement plus bas que la mélamine. Ces valeurs montrent que si notre matériau a un intérêt dans le domaine de la correction acoustique, son efficacité comme isolant est limitée, en partie à cause de sa faible masse volumique (16 kg/m^3 en moyenne).

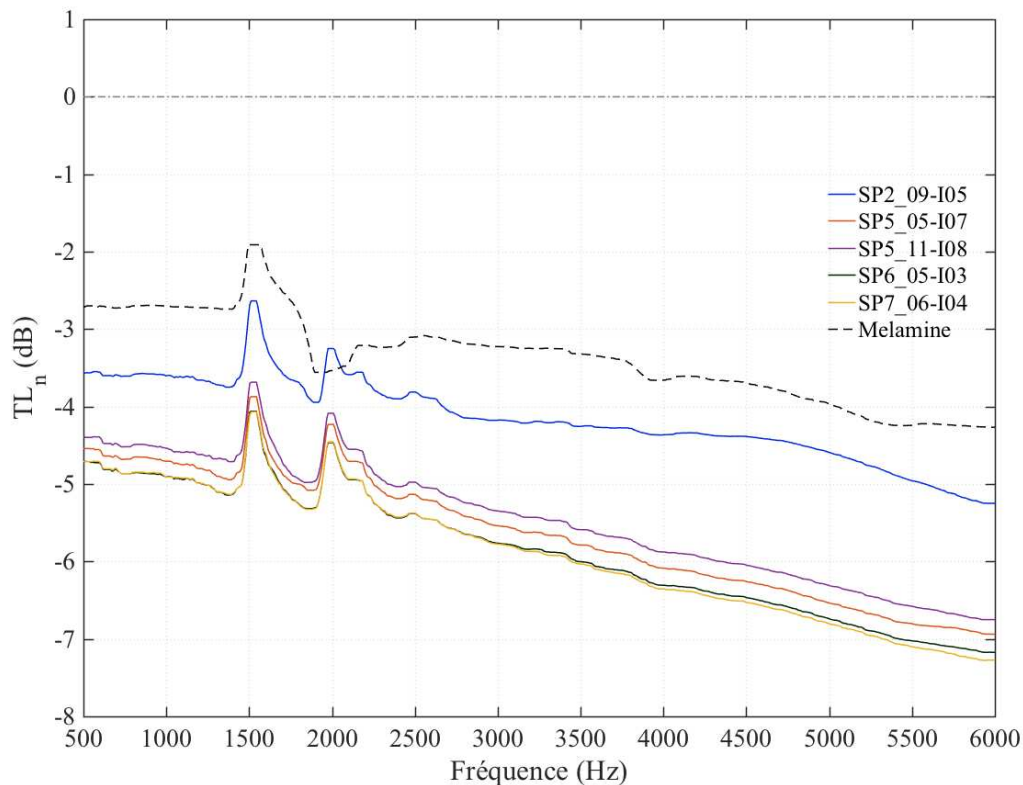


Figure 3.11 – Comparaison relative des échantillons du tableau 3.1 et d'une mousse de mélamine avec une laine de verre.

3.4 Caractérisation des poreux de cellulose

La caractérisation va nous permettre de comprendre quels paramètres intrinsèques influent sur les performances acoustiques du poreux de cellulose. Seule la résistivité est mesurée directement au moyen d'un résistivimètre. Les autres paramètres sont obtenus analytiquement pour la porosité du matériau et numériquement (par les méthodes inverse et indirecte en tube d'impédance) pour la tortuosité, les longueurs caractéristiques thermique et visqueuse et la perméabilité thermique (*cf.* section 3.1.3).

Une série de mesures a été effectuée au laboratoire d'acoustique et matériaux Roberval de l'Université de Technologie de Compiègne dont les valeurs sont données dans le tableau 3.2. Si la méthode indirecte permet de récupérer un paramètre supplémentaire (la perméabilité thermique k'_0) nécessaire au modèle de Johnson-Champoux-Allard-Lafarge, des incohérences apparaissent pour certains échantillons. Ainsi, SP7_06-I04 présente une longueur caractéristique visqueuse supérieure à sa longueur caractéristique thermique, ce qui est certainement due à la résonance du squelette. Il serait intéressant de connaître le module d'Young de notre matériau pour évaluer le rapport Module d'Young / masse volumique [41]. Le modèle JCA ne nécessitant pas de connaître la perméabilité thermique, il sera donc privilégié et employé dans la suite.

Tableau 3.2 - Caractérisation des propriétés intrinsèques

Échantillon	Porosité* ϕ	Résistivité à l'air* σ (N s m ⁻⁴)	Méthode	Tortuosité α_∞	Longueur caractéristique visqueuse Λ (μm)	Longueur caractéristique thermique Λ' (μm)	Perméabilité thermique k'_0 (10 ⁻⁹ m ²)
SP2_09-I05	0,990	5192	Inverse	1,05 ± 0,047	113,7 ± 7,3	192,2 ± 1,2	-
			Indirect	1,03 ± 0,05	106,2 ± 15,6	154 ± 16,6	5,1 ± 2,3
SP5_05-I07	0,989	2045	Inverse	1 ± 0	273,1 ± 13	312,6 ± 4,5	-
			Indirect	1,08 ± 0,02	267,7 ± 25,7	348,1 ± 97,1	7,2 ± 1,3
SP5_11-I08	0,989	1194	Inverse	1,067 ± 0,051	340,1 ± 11,5	456,4 ± 17,7	-
			Indirect	1,09 ± 0,012	344,5 ± 50,6	380 ± 107	6,66 ± 1,27
SP6_05-I03	0,989	685	Inverse	1,018 ± 0,01	467,6 ± 1	709,9 ± 47,1	-
			Indirect	1,09 ± 0	549,8 ± 76,8	372,4 ± 32,7	7,4 ± 4,7
SP7_06-I04	0,989	750	Inverse	1,116 ± 0,012	448,6 ± 0	590,5 ± 8,5	-
			Indirect	1,7 ± 0,01	826,5 ± 308,3	125,7 ± 32,9	1,2 ± 0,7

* La porosité est déterminée analytiquement et la résistivité au passage de l'air est obtenue par la mesure directe (cf. section 3.1.3).

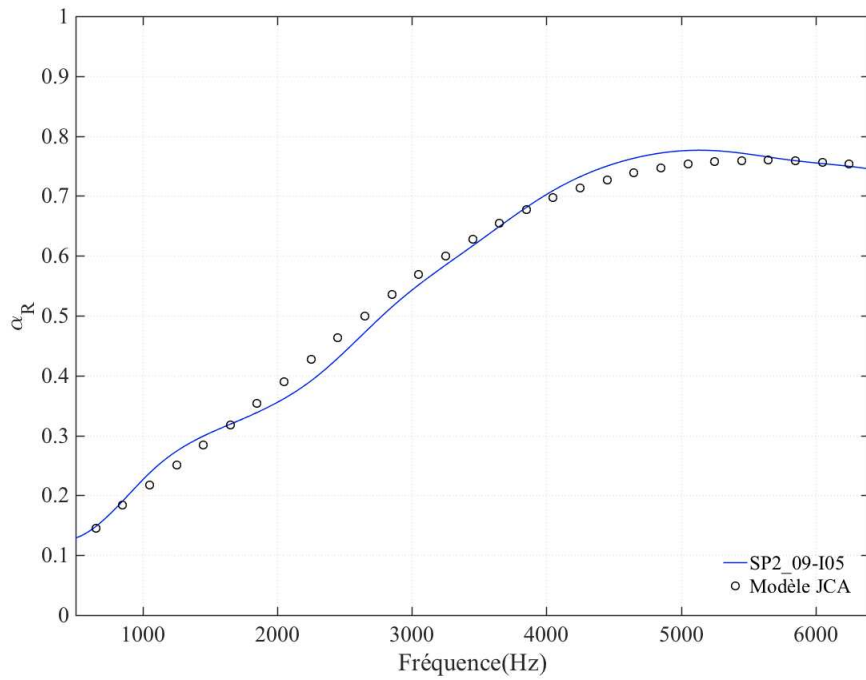


Figure 3.12 - Comparaison du coefficient d'absorption expérimental avec le modèle JCA et évaluation de la performance acoustique maximale.

La figure 3.12, où le modèle JCA est appliqué à l'échantillon SP2_09-I05, témoigne d'une forte corrélation avec les résultats expérimentaux. En effet, k'_0 n'a qu'une faible importance dans l'intervalle de fréquence utilisée ici (*cf.* figure 3.5).

Comme le montre le tableau 3.2 et la figure 3.10, l'efficacité acoustique du poreux de cellulose est essentiellement due à sa résistivité au passage de l'air. Pour un matériau poreux à pores cylindriques obliques, cette valeur est liée au rayon des pores par la relation [19] :

$$\sigma = \frac{8\eta\alpha_\infty}{\phi R^2} \quad (3.50)$$

où R est le rayon des pores.

Même si notre matériau ne présente pas cette structure idéalisée, la comparaison du rayon R obtenu par l'Eq. (3.50) et les valeurs des longueurs caractéristiques visqueuse et thermique (Λ et Λ') en fonction de la résistivité au passage de l'air peut nous donner une indication sur les paramètres à faire varier afin d'optimiser les performances acoustiques du poreux de cellulose (*cf.* figure 3.13). Ainsi plus la taille des pores diminue, plus la résistivité est dépendante de leur rayon ($\approx \Lambda'$). Aussi lorsque la taille des pores augmente, c'est le rayon des interconnexions ($\approx \Lambda$) qui devient prépondérant. D'après les essais réalisés pour la fabrication

des poreux de céramique, la limite de résistance mécanique de l'empreinte est atteinte pour $\varepsilon < 0,2 \times \bar{r}$ [28], ce qui implique une faible diminution du rayon des interconnexions pour les échantillons dont le diamètre des pores est supérieur à 400 μm . L'objet de cette thèse étant de proposer un matériau poreux efficace aux basses fréquences (inférieur à 1000 Hz) pour un encombrement réduit, l'obtention d'un diamètre de pores inférieurs à 200 μm pourrait améliorer les performances acoustiques de notre matériau. Cependant l'imprégnation de la solution de cellulose avec de tels diamètres n'est pas possible avec le procédé actuel (imprégnation partielle et effondrement du squelette).

Par contre il est possible de mettre en œuvre différents concepts pour optimiser ces performances. Ce sont ces solutions qui sont traitées dans le chapitre suivant par l'encapsulation et l'inclusion d'aérogel, la fabrication d'échantillons à gradient de propriétés et à double porosité.

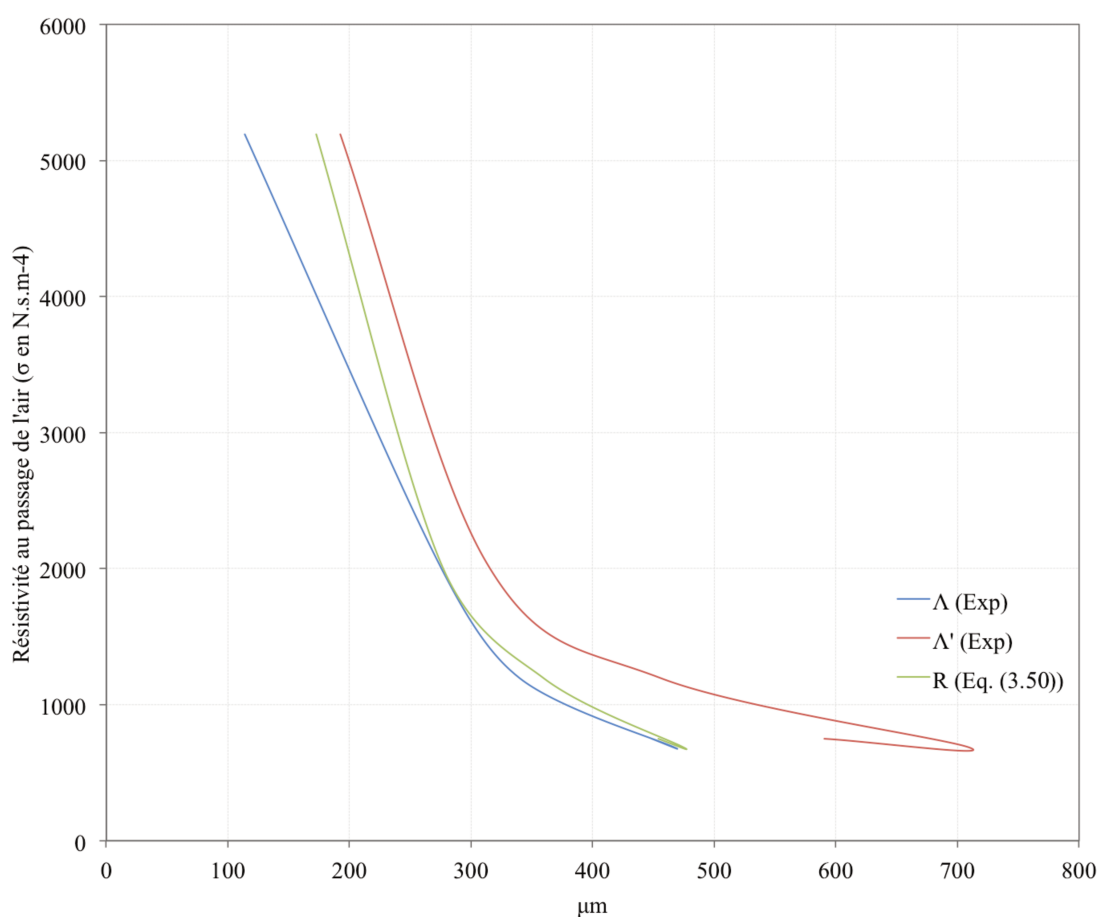


Figure 3.13 - Définition de R en fonction de la résistance au passage de l'air (pour $\phi = 0,99$ et $\alpha_{\infty} = 1,05$).

Chapitre 4 Optimisation des propriétés acoustiques

Sommaire

4.1	Utilisation de l'aérogel de silice pour améliorer les performances acoustiques ..	87
4.1.1	Les aérogels : super-isolants thermiques	87
4.1.2	Propriétés acoustiques des aérogels	88
4.1.3	Propriétés de l'aérogel de silice utilisé	88
4.1.4	Encapsulage d'aérogel.....	89
4.1.4.1	Procédé de fabrication.....	89
4.1.4.2	Détermination du ratio aérogel-cellulose	90
4.1.4.3	Performances acoustiques.....	97
4.1.5	Matériau composite cellulose / aérogel	100
4.1.5.1	Procédé de fabrication.....	100
4.1.5.2	Résultats expérimentaux.....	101
4.1.5.3	Caractérisation.....	102
4.1.6	Conclusion	105
4.2	Vers l'obtention de matériaux poreux à gradient de propriétés	105
4.2.1	Gradient d'interconnexions continu	107
4.2.1.1	Procédé de fabrication.....	107
4.2.1.2	Résultats expérimentaux.....	108
4.2.2	Gradient de porosité	109
4.2.2.1	Procédé de fabrication.....	109
4.2.2.2	Résultats expérimentaux.....	111

4.3 Absorbant à double porosité.....	113
4.3.1 Procédé de fabrication	113
4.3.2 Résultats expérimentaux	114
4.4 Conclusion	115

4.1 Utilisation de l'aérogel de silice dans un poreux de cellulose

4.1.1 Les aérogels : super-isolants thermiques

Actuellement, parmi les matériaux à haut pouvoir isolant, les aérogels présentent un intérêt croissant. Depuis leur première découverte dans les années 1930 [42], ils ont été largement développés, et plus particulièrement dans la dernière décennie. En raison de leurs caractéristiques supérieures, ils sont utilisés dans de nombreux secteurs : bâtiment, électronique, vêtements, applications spatiales, etc. Les plus courants sont les aérogels de silice.

Les aérogels de silice, obtenus par séchage de gels de silice sont des matériaux à porosité élevée (95 à 98%), à faible densité et faible conductivité thermique (0.014 W/(mK)) [43]. Deux types d'aérogels de silice sont ainsi couramment utilisés dans la fabrication d'isolants pour le bâtiment. Ibrahim *et al.* [44] ont détaillé les différentes applications de ces deux types d'aérogel (opaque et translucide) dans le secteur de la rénovation.

Les aérogels opaques ont été introduits dans la construction de bâtiments comme un matériau isolant pour les murs et les sols. Ainsi un tissu combiné à de l'aérogel de silice présente une conductivité thermique 2 fois moins élevée (16.5 mW/(m K) à 37.5°C) qu'un matériau isolant classique [45]. Une étude sur les enduits de façades chargés d'aérogel de silice montre que l'épaisseur d'enduit nécessaire pour l'obtention d'un même coefficient de transmission thermique ($U=0.4 \text{ W/(m}^2\text{.K)}$) est de 2 à 4 fois plus fine que pour les enduits d'isolation de façade du marché [46].

Les aérogels translucides sont utilisés dans l'isolation des parois vitrées. Ces matériaux combinent la faible conductivité thermique à un facteur de transmission de l'énergie solaire élevé [47 – 50]. D'autres résultats prometteurs sur l'utilisation des aérogels de silice pour les différents secteurs économiques et industriels sont donnés dans le livre « Nanotechnology in Eco-efficient Construction »[51].

En raison de l'augmentation de la demande et du coût de l'énergie, les produits à base d'aérogel sont voués à un avenir prometteur, spécialement dans le domaine du bâtiment.

Actuellement, le coût de ces matériaux super isolants est beaucoup plus élevé que les matériaux traditionnels. Cependant il est amené à décroître dans les années à venir grâce aux avancées technologiques liées à leurs fabrications, et, à la production à grande échelle qui réduira les coûts unitaires. En effet, une étude [52] montre une augmentation de production de 50% par an contre 5% pour les matériaux isolants du marché.

4.1.2 Propriétés acoustiques des aérogels

En parallèle des qualités thermiques des aérogels, leur utilisation dans un contexte de confort acoustique reste marginale. On trouve peu d'études sur leurs propriétés acoustiques dans le domaine de l'audible. Les quelques études portent essentiellement sur l'adaptation d'impédances [53], sur des absorbants ultrasonores [54] ou encore la fabrication de méta matériaux [55] ici considéré comme une plaque épaisse élastique. Une étude de M. Gronauer et J. Fricke [56] montre que, malgré un squelette rigide, la vitesse du son mesurée dans les aérogels de silice est de l'ordre de 100 m.s^{-1} , soit 3 fois moins élevée que pour l'air. Elle peut descendre jusqu'à 60 m.s^{-1} pour des tailles de granules d'aérogels homogènes de $80 \mu\text{m}$, avec une augmentation de l'atténuation acoustique de 10 dB en comparaison à de la laine de verre de même épaisseur [53]. Des mesures in situ ont montré que l'incorporation de granules d'aérogels dans un double vitrage améliore les performances thermiques, acoustiques et la qualité d'éclairage [57].

Cependant, l'utilisation des aérogels de silice en tant que tel est délicate au vu de leur faible résistance mécanique. De plus, l'aérogel seul est capable de dissiper fortement l'énergie acoustique mais la taille réduite de ses pores empêche un transfert efficace de cette énergie de l'air vers l'aérogel. Le couplage de l'aérogel de silice avec une enveloppe poreuse (ici cellulose) permettrait d'améliorer ce transfert.

4.1.3 Propriétés de l'aérogel de silice utilisé

L'aérogel utilisé est un aérogel de silice qui se présente sous une forme granulaire, dont la taille varie de 1 à 3,5 mm. Sa porosité est comprise entre 0,90 et 0,98 avec une taille de pores de 5 à 12 nm (*cf.* figure 4.1).

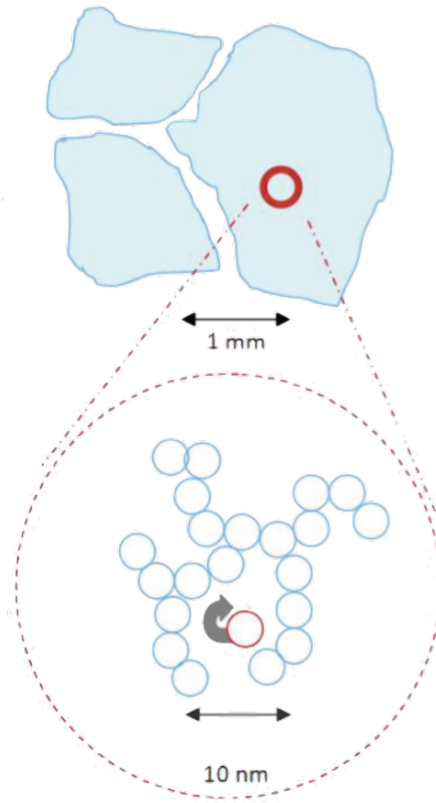


Figure 4.1 - Aérogel de silice utilisé (source : www.enersens.fr).

4.1.4 Encapsulage d'aérogel

4.1.4.1 Procédé de fabrication

Le procédé de fabrication du poreux de cellulose permet d'inclure de l'aérogel au centre de la mousse. L'inclusion se fait en enfermant l'aérogel (en grains ou en poudre) dans une capsule en acide polylactique (PLA). Le PLA est une matière entièrement biodégradable et est utilisée dans la fabrication par ajout de matière (impression 3D). Le PLA présente l'avantage de réagir comme le PMMA au contact de l'acétone (utilisé lors de la phase de construction de l'empreinte) et du solvant contenu dans la solution de cellulose. La capsule en PLA est placée sur un premier lit de billes de PMMA au centre du moule et est ensuite recouverte de billes (*cf.* figure 4.2). La réalisation du squelette et la dissolution de l'empreinte se font comme pour la fabrication du poreux décrite dans le chapitre 2.2. Cependant, l'aérogel étant majoritairement composé d'air et la capsule de PLA étant hermétiquement fermée, lors de la construction de l'empreinte il est nécessaire de mettre celle-ci sous pression avant de l'immerger dans l'acétone. Cette fonction est remplie par un piston évidé (*cf.* figure 4.3).

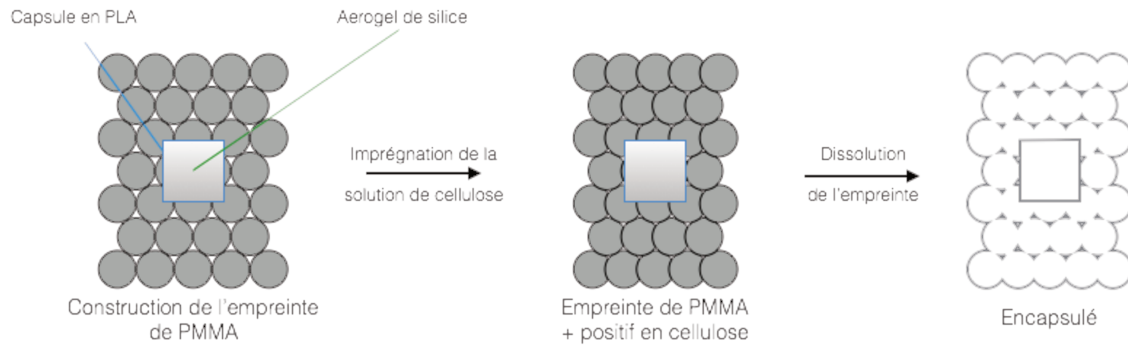


Figure 4.2 - Procédé de fabrication d'un poreux à encapsulage d'aérogel.

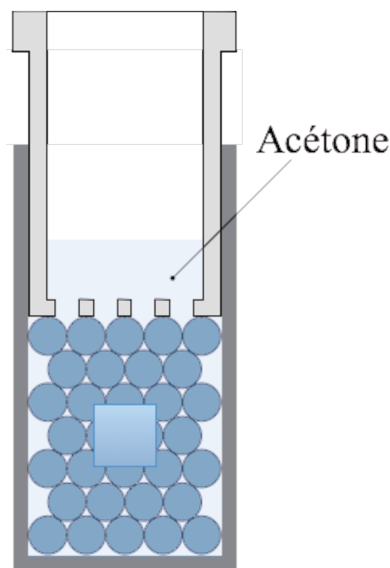


Figure 4.3 - Procédé d'imprégnation de l'empreinte.

4.1.4.2 Détermination du ratio aérogel-cellulose

Afin de déterminer le meilleur ratio (φ) entre volumes de poreux et d'aérogel, des mesures sont effectuées avec un matériau poreux du marché à savoir une mousse de polyuréthane (PU). Pour cette expérience, un volume d'aérogel est mis entre deux couches de poreux (*cf.* figure 4.4). L'aérogel est utilisé sous sa forme granulaire (*cf.* figure 4.5 (a)) avec une taille de grain millimétrique (1 à 3,5 mm) et sous forme de poudre obtenue par un broyage manuel (*cf.* figure 4.5 (b)) dont la granulométrie est micrométrique (100 à 600 μm).

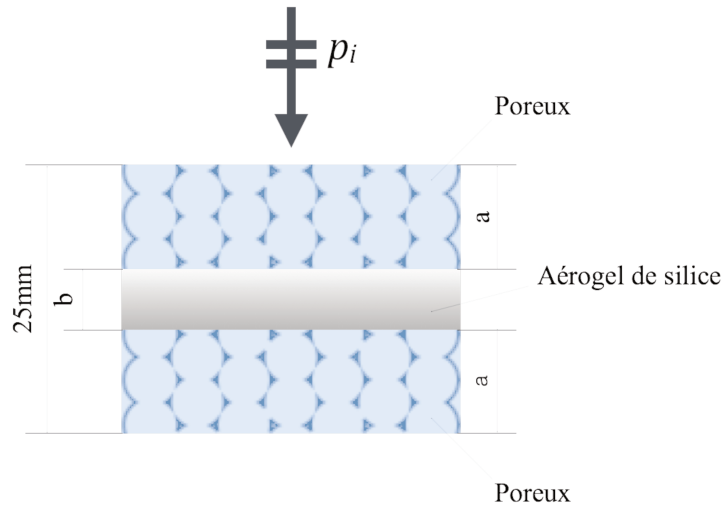


Figure 4.4 - Procédure expérimentale.



(a) Granulaire



(b) Poudre

Figure 4.5 - Type d'aérogel de silice.

Les dimensions des échantillons sont données dans le Tableau 4.1 pour un ratio variant de 5 à 50% pour chaque forme d'aérogel. Les échantillons multicouches obtenus ont tous la même épaisseur de 25 mm.

La figure 4.6 compare les échantillons contenant de l'aérogel avec un échantillon de mousse de polyuréthane, un comparatif des activités acoustiques (*cf.* Eq. (2.2)) en fonction du ratio ϕ d'aérogel est tracé sur la figure 4.8. Pour l'aérogel sous sa forme granulaire, le meilleur résultat est obtenu pour un ratio de 20% (MC-PU_AE20G), avec un gain de l'ordre de 1,6 en comparaison avec PU et une absorption complète aux alentours de 2 kHz, le gain est moins significatif vers les hautes fréquences. L'échantillon MC-PU_AE10G (10% d'aérogel) possède un pic d'absorption moins élevé que les autres et décalé vers les hautes fréquences (0,9 aux alentours de 3000 Hz) mais présente de meilleures performances vers les hautes

fréquences. Ce gain permet de maintenir une activité acoustique quasi identique à l'échantillon MC-PU_AE20G (de l'ordre de 0,7 sur la plage de fréquence 500 Hz à 6,4 kHz). En revanche au dessus de 20% d'aérogel, les pics d'absorption restent sensiblement aux mêmes fréquences et décroissent plus rapidement derrière ceux-ci. L'échantillon MC-PU_AE50G ($\varphi = 50\%$) montre même une perte d'absorption entre 3,4 et 4,8 kHz par rapport à PU.

Tableau 4.1 - Dimensions des échantillons pour la détermination du ratio φ d'aérogel.

Échantillon	Forme d'aérogel	$\varphi = \frac{V_{Aero}}{V_T}$ (%)	a (mm)	b (mm)
MC-PU_AE10G	Granulaire	10	11,25	2,5
MC-PU_AE20G	Granulaire	20	10	5
MC-PU_AE30G	Granulaire	30	8,75	7,5
MC-PU_AE40G	Granulaire	50	6,25	12,5
MC-PU_AE05G	Poudre	5	11,875	1,25
MC-PU_AE10P	Poudre	10	11,25	2,5
MC-PU_AE20P	Poudre	20	10	5
MC-PU_AE30P	Poudre	30	8,75	7,5
MC-PU_AE40P	Poudre	50	6,25	12,5
MC-PU_AE05P	Poudre	5	11,875	1,25
PU	-	-	25	0

Pour l'aérogel sous forme de poudre (*cf.* figure 4.7), de manière générale on constate des pics d'absorption moins élevés que pour l'aérogel sous sa forme granulaire mais avec un décalage plus important vers les basses fréquences. Le gain le plus significatif en terme d'amélioration des performances vers les basses fréquences et d'amélioration de l'activité acoustique est obtenu par l'échantillon contenant 10% d'aérogel (MC-PU_AE05P) avec un pic de 0,88 à 1,4 kHz pour $\alpha_{norm} = 0,7$.

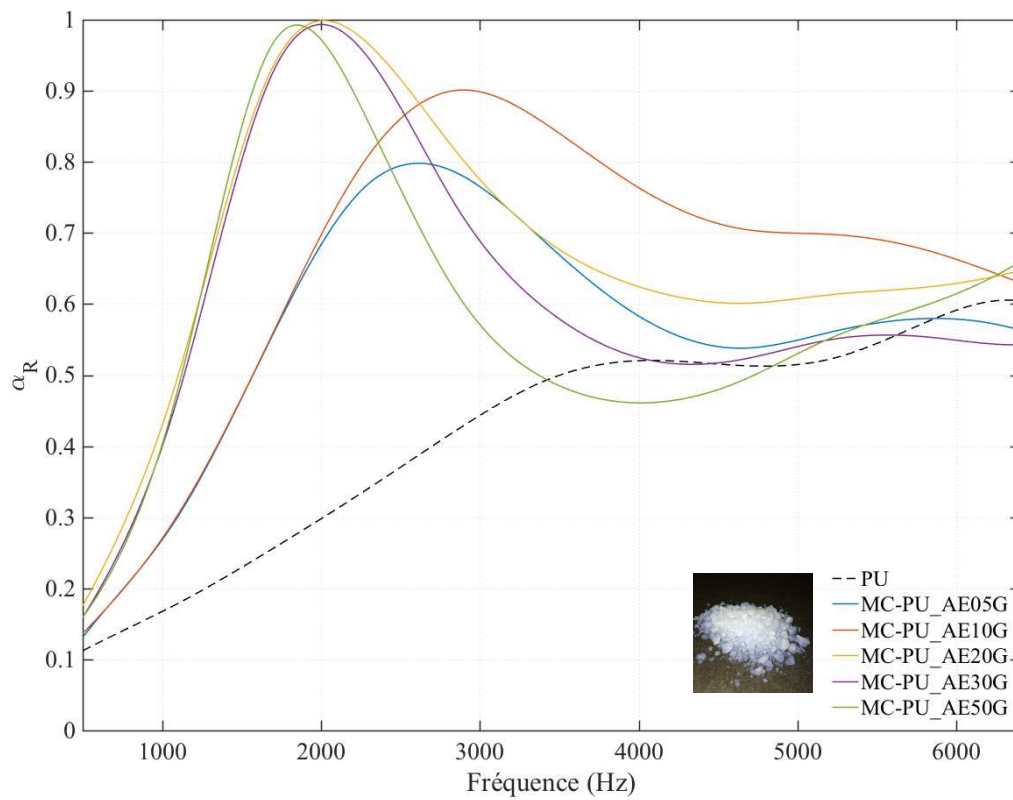


Figure 4.6 - Coefficient d'absorption α pour un multicouche PU / Aérogel granulaire / PU.

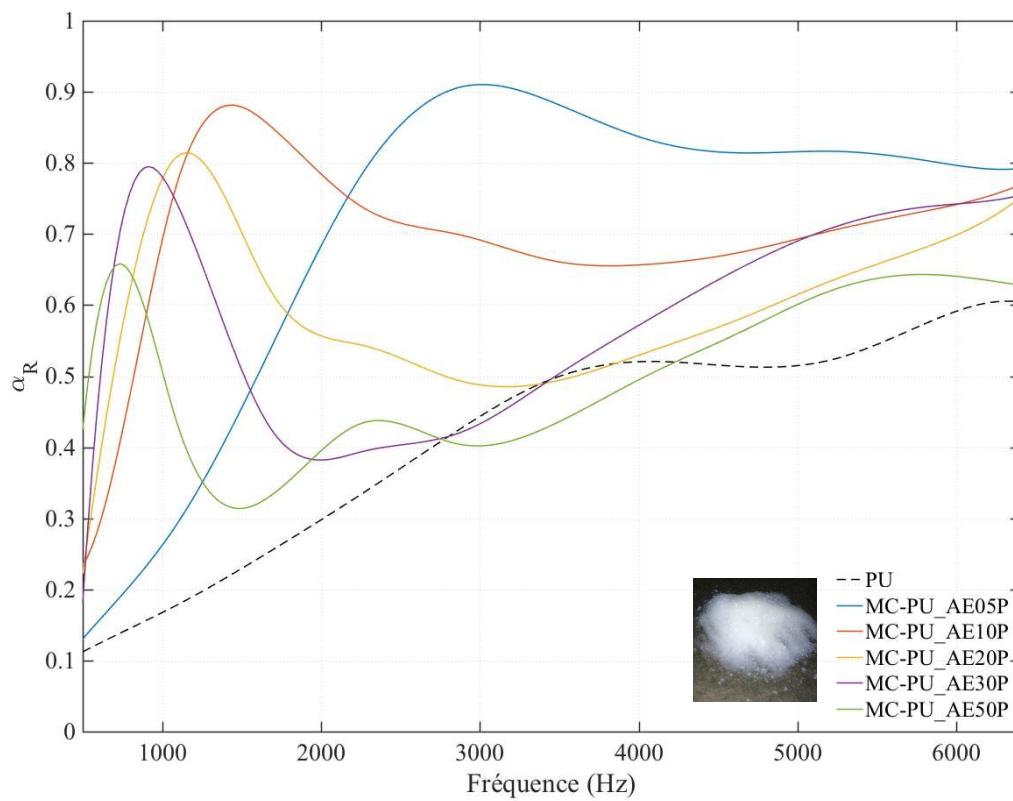


Figure 4.7 - Coefficient d'absorption α pour un multicouche PU / Aérogel en poudre / PU.

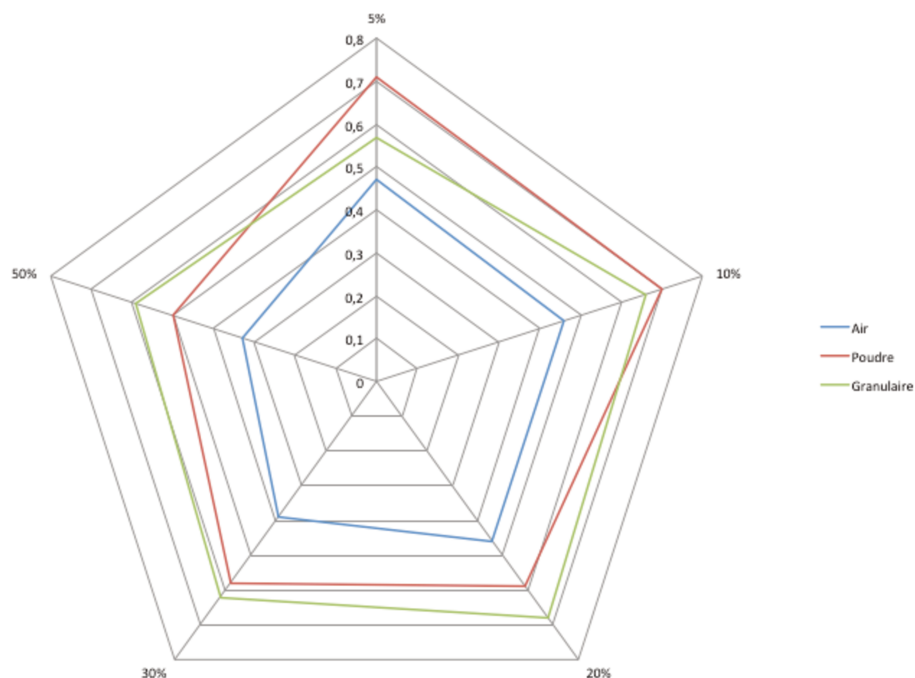


Figure 4.8 - Comparaison de l'activité acoustique en fonction du ratio φ d'aérogel ou d'air contenu dans les échantillons ($\alpha_{norm}(PU) = 0,42$).

Au vu des résultats préliminaires, il a été décidé de travailler avec un φ de 10% et 20% pour les deux types d'aérogels. Le remplacement de la mousse de polyuréthane par le poreux de cellulose (*cf.* figure 4.4) permet de vérifier si la tendance est la même que pour la mousse de polyuréthane. Afin de s'assurer que les gains obtenus sont bien la conséquence de la couche d'aérogel, des mesures du coefficient d'absorption de deux échantillons où la couche d'aérogel est remplacée par de l'air sont effectuées. Les dimensions des différents échantillons sont données dans le tableau 4.2, l'épaisseur totale des échantillons est de 25 mm. Cette étude permet de dimensionner les capsules de PLA (*cf.* figure 4.2).

Tableau 4.2 - Dimension des échantillons pour vérification de l'influence de l'aérogel sur la mousse de cellulose.

Échantillon	Couche centrale	$\varphi = \frac{V_{Aero}}{V_T}$ (%)	a (mm)	b (mm)
MC6_AE10G_05	Aérogel granulaire	10	11,25	2,5
MC6_AE20G_05	Aérogel granulaire	20	10	5
MC6_AE10P_05	Aérogel en poudre	10	11,25	2,5
MC20_AE20P_05	Aérogel en poudre	20	10	5
SP6_05_E01	-		24,64±0,12	-
MC6_A10_05	Air	10	11,25	2,5
MC6_A20_05	Air	20	10	5
MC6_PM810_05	PMMA 800-1000	10	11,25	2,5
MC6_PM210_05	PMMA 200-400	10	11,25	2,5

Les courbes d'absorption obtenues avec les échantillons du tableau 4.2 montrent un gain de performance important pour les deux types d'aérogel de silice (*cf.* figure 4.9). L'activité acoustique est de l'ordre de 0,65 pour nos échantillons avec aérogel, ce qui représente un gain de 1,8 en comparaison à la cellulose seule. D'autre part, le volume d'aérogel n'influe pas de manière significative sur l'activité acoustique (α_{norm} comprise entre 0,60 et 0,69).

Il y a pourtant des différences en fonction du type d'aérogel utilisé. Ainsi, dans sa forme granulaire (MC6_AE10G_05 et MC6_AE20G_05), le meilleur gain est obtenu pour $\varphi = 20\%$ avec des performances 4 fois supérieures à celle de la mousse de cellulose seule autour de 2000 Hz et une absorption complète à cette même fréquence. Le gain est moins significatif vers les hautes fréquences. L'aérogel en poudre permet de décaler les performances vers les basses fréquences. Pour $\varphi = 20\%$ (MC6_AE20P_05), un facteur de 6 est appliqué aux performances de la mousse de cellulose seule autour de 1200 Hz, avec un pic d'absorption à 0,85 pour cette même fréquence.

Si le matériau multicouche composé de cellulose et d'aérogel apparaît comme efficace, il est maintenant intéressant de vérifier l'apport de ce dernier sur les performances. Pour cela deux expériences sont menées, l'une en remplaçant la couche d'aérogel par de l'air et l'autre par des billes de PMMA. Les mesures effectuées sur les échantillons contenant de l'air (*cf.* figure 4.9, échantillons MC6_A10_05 et MC6_A20_05) montrent un gain très faible en comparaison à l'échantillon référence à simple porosité (de l'ordre de 1,2). En revanche l'incorporation d'un matériau de caractéristiques géométriques proches (ici des billes de PMMA de même ordre de grandeur), permet d'avoir une activité acoustique relativement semblable (*cf.* figure 4.10). Cependant si l'aérogel sous sa forme de poudre permet d'avoir une absorption quasi complète aux alentours de 2 kHz, les échantillons contenant des billes de

PMMA n'atteignent pas le même niveau. Aussi pour une meilleure compréhension de l'influence de l'aérogel, la connaissance de ses caractéristiques intrinsèques s'avère nécessaire. Nous proposons dans cette thèse de voir les diverses possibilités du procédé de fabrication du poreux de cellulose, la caractérisation de l'aérogel de silice est une des perspectives associée à ce travail.

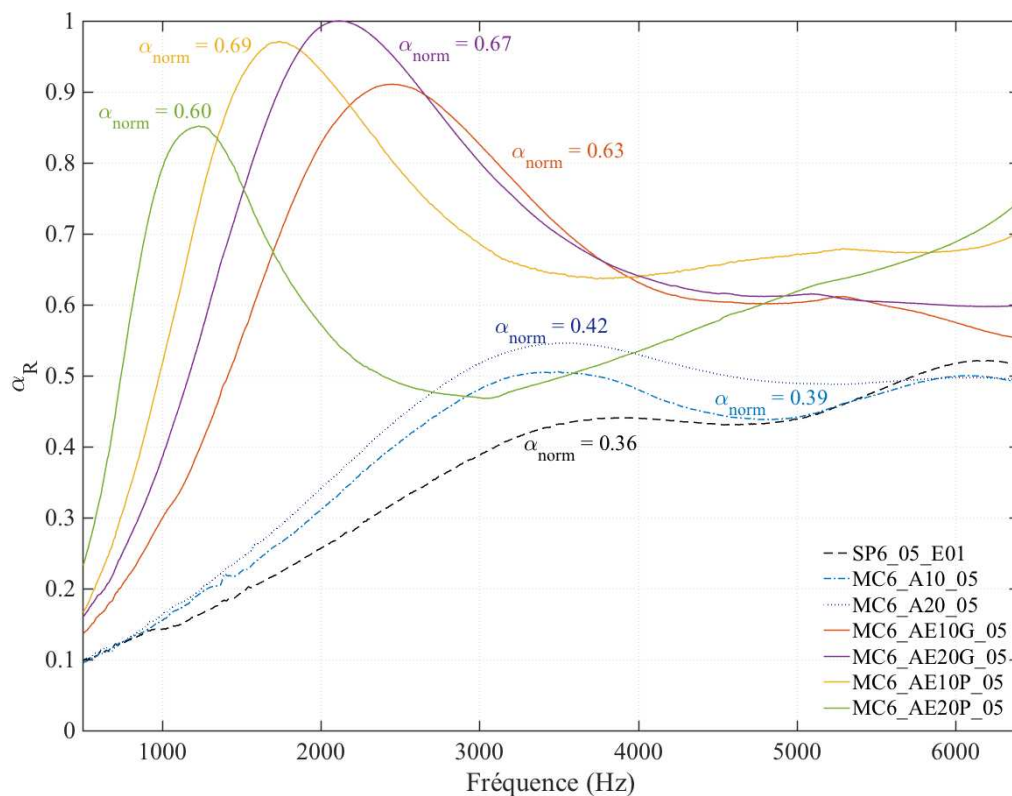


Figure 4.9 : Coefficient d'absorption des échantillons multicouches à base de cellulose et d'aérogel.

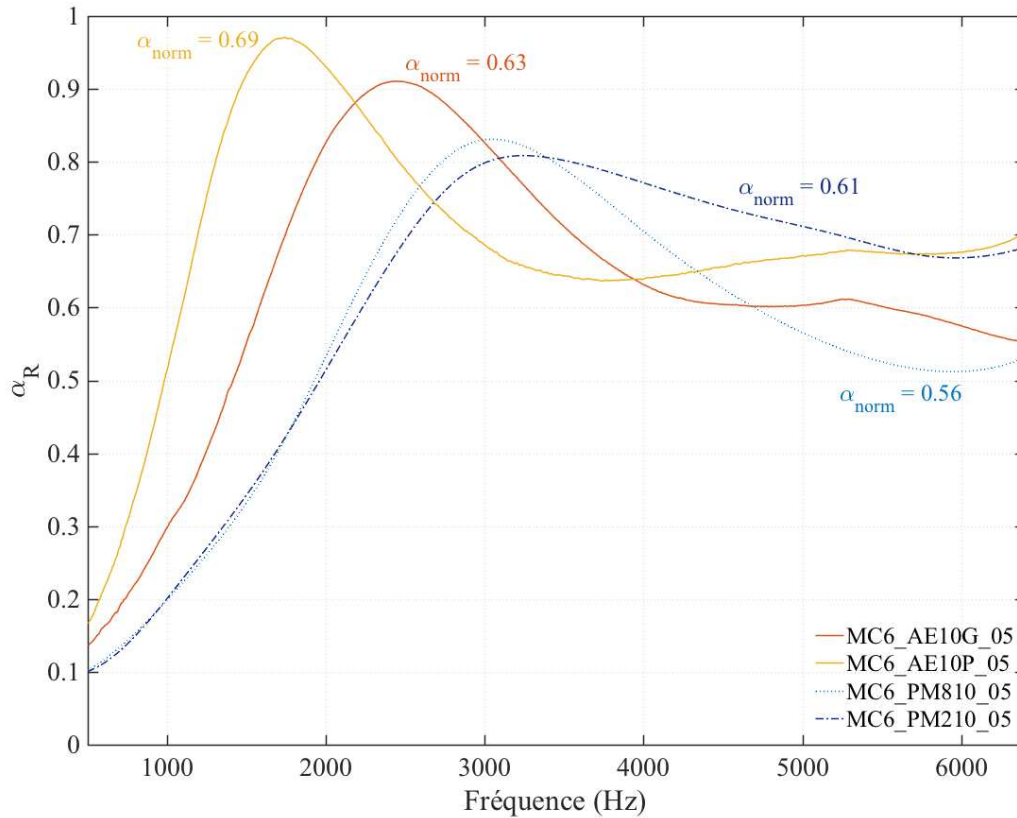


Figure 4.10 - Comparaison multicouches de cellulose et d'aérogel avec multicouches de cellulose et billes de PMMA.

4.1.4.3 Performances acoustiques

Afin de minimiser la quantité d'aérogel et suivant les performances obtenues lors de l'étude préliminaire, il est décidé de restreindre notre domaine d'étude à un φ de 10% aussi bien pour l'aérogel sous sa forme granulaire qu'en poudre (cf. tableau 4.3).

Tableau 4.3 - Dimensions des échantillons avec encapsulage d'aérogel.

Échantillon	Forme d'aérogel	$\varphi = \frac{V_{Aero}}{V_T}$ (%)	h (mm)
MCE6_AE10G_05-F01	Granulaire	10	21,57±0,08
MCE6_AE10P_05-F02	Poudre	10	20,39±0,31
SP6_05_E01	-	-	24,64±0,12

La comparaison faite entre le poreux de cellulose et l'encapsulage d'aérogel de silice montre une augmentation d'un facteur 2 sur l'activité acoustique (cf. figure 4.11). Le type d'aérogel influence très peu celle-ci (0,76 pour l'aérogel en poudre et 0,68 pour sa forme granulaire). Cependant l'aérogel en poudre permet une absorption complète aux alentours de 2200 Hz avec un second pic d'absorption proche de 1 à 6400 Hz. Les courbes d'absorption

concordent bien avec celles trouvées lors de la vérification de l'influence de l'aérogel (cf. figure 4.9), même si l'activité acoustique est plus élevée pour l'encapsulage (0,76 et 0,68 contre 0,69 et 0,63). Ceci peut s'expliquer par une meilleure absorption vers les hautes fréquences, due vraisemblablement à la création d'une enveloppe d'air autour de l'aérogel lors de la dissolution de la capsule de PLA.

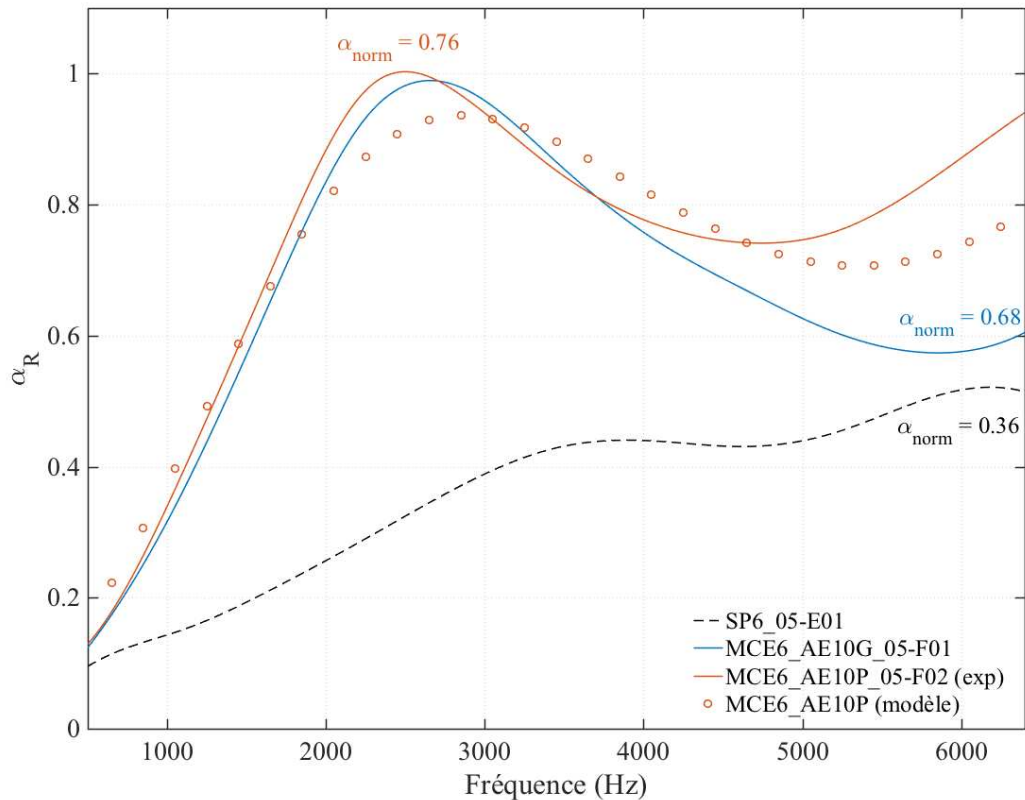


Figure 4.11 : Coefficient d'absorption d'échantillons d'aérogel encapsulé en grain et en poudre / Modélisation de l'échantillon encapsulé en poudre.

Même si les méthodes de mesures inverse et indirecte ne permettent pas de caractériser les matériaux non uniformes, elles permettent néanmoins de rendre compte des évolutions des paramètres intrinsèques du poreux de cellulose après encapsulage de l'aérogel sous ses deux formes (cf. Tableau 4.4).

Tableau 4.4 - Paramètres intrinsèques des échantillons d'aérogel encapsulé.

Échantillon	σ^*	α_∞	Λ	Λ'
MCE6_AE10G_05-F01	12628	$1,774 \pm 0,022$	$77,7 \pm 0,5$	$359 \pm 32,9$
MCE6_AE10P_05-F02	17223	$1,802 \pm 0,047$	$52,1 \pm 3$	$362,3 \pm 9,8$

Ainsi la comparaison des valeurs obtenues avec celles du Chapitre 3 (*cf.* tableau 3.2) montre que l'encapsulation d'aérogel dans le poreux de cellulose augmente considérablement la résistivité au passage de l'air. Pour les deux échantillons d'aérogel en grain et en poudre, un facteur respectif de 18 et 25 est appliqué au σ de l'échantillon SP6_05-I03 (même taille de pores et d'interconnexions). Si la résistivité est mesurée de manière directe et permet de montrer que l'aérogel est responsable de l'augmentation des performances acoustiques, les autres valeurs ne permettent pas d'avoir un modèle prédictif du matériau, même si la courbe obtenue (*cf.* figure 4.11) pour la modélisation de l'échantillon d'aérogel encapsulé en poudre (MCE_AE10P_05-F02) rend compte d'une bonne corrélation avec la courbe expérimentale. Elles rendent compte de la réaction du fluide équivalent avec l'aérogel et montrent que celui-ci ralentit la propagation du fluide dans le squelette. Il serait par conséquent intéressant de caractériser l'aérogel en tant que tel pour mieux comprendre les mécanismes en jeu dans un tel matériau et pouvoir établir un modèle prédictif de l'encapsulation d'aérogel.

Une mesure en transmission a également été réalisée (*cf.* figure 4.12). Le facteur de perte de transmission est nettement plus élevé avec l'encapsulation d'aérogel. La comparaison relative à une laine de verre d'épaisseur sensiblement égale ($20,23 \pm 0,14$ mm) montre une isolation acoustique légèrement supérieure de l'échantillon encapsulé avec de l'aérogel en poudre sur la plage de fréquence 0,5 à 4 kHz. Les qualités thermiques de l'aérogel couplé au coefficient de perte en transmission obtenu par son encapsulage dans le poreux de cellulose, pourraient permettre d'avoir un matériau à double fonctionnalité (thermique et acoustique).

* La résistivité au passage de l'air est obtenue par la mesure directe (*cf.* section 3.1.3).

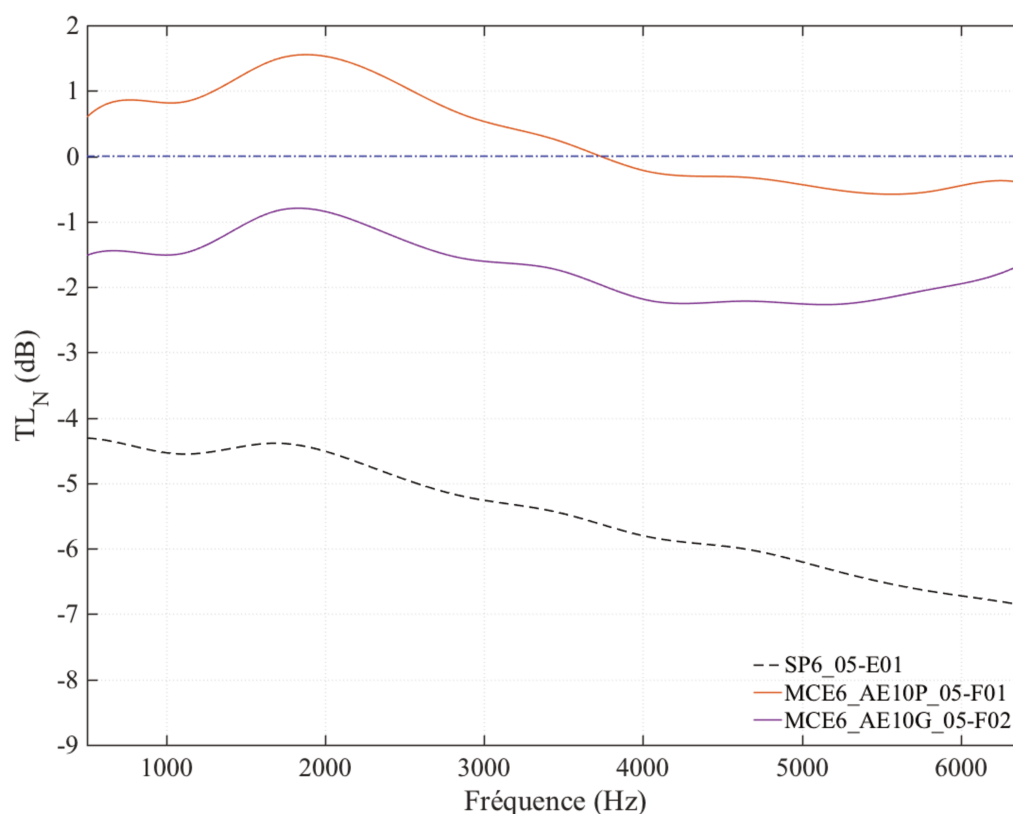


Figure 4.12 : Comparaison relative du facteur de perte en transmission avec une laine de verre de même épaisseur (---).

4.1.5 Matériau composite cellulose / aérogel

4.1.5.1 Procédé de fabrication

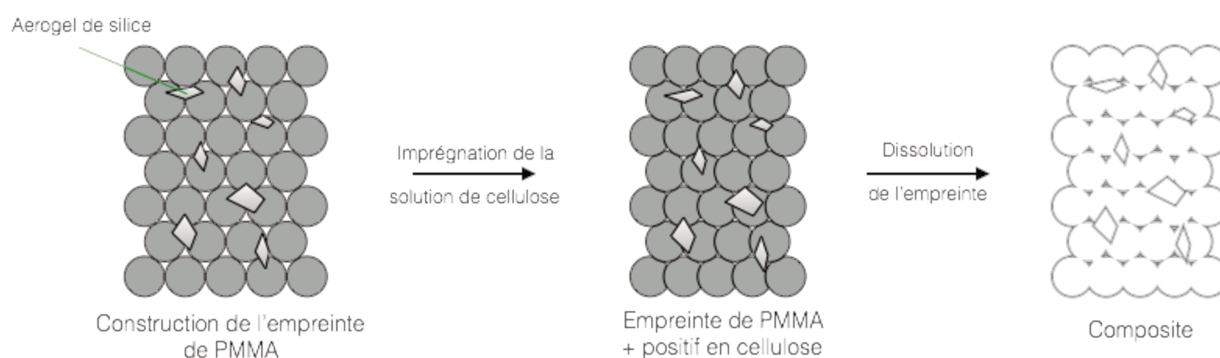


Figure 4.13 - Procédé de fabrication du composite cellulose / aérogel.

L'obtention d'un composite cellulose / aérogel de silice se fait par le mélange des granules d'aérogel avec les billes de PMMA avant la construction de l'empreinte (cf. figure 4.13). L'aérogel n'étant pas dégradé lors des attaques chimiques, il reste incorporé

dans la mousse de cellulose (*cf.* figure 4.14 (a) et (b)). Comme pour l'encapsulage d'aérogel, afin d'éviter la remontée en surface de ce dernier lors du remplissage du moule de fabrication de l'empreinte avec l'acétone, un piston évidé est utilisé (*cf.* figure 4.3).

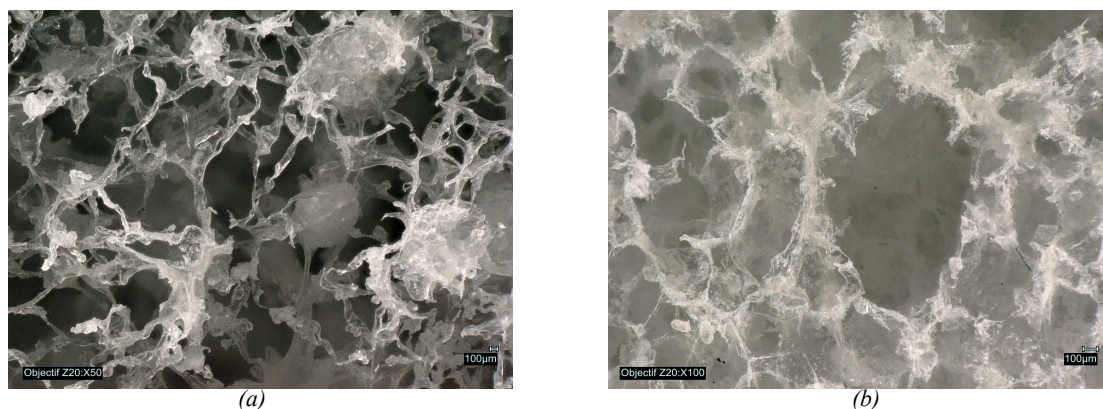


Figure 4.14 - Vue microscopique d'un composite de cellulose et d'aérogel en grains (a) et en poudre (b).

4.1.5.2 Résultats expérimentaux

Tableau 4.5 - Dimensions des composites aérogel / cellulose.

Échantillon	Forme d'aérogel	$\phi = \frac{V_{Aero}}{V_T}$ (%)	a (mm)
MCC6_AE10P_05-G01	Poudre	10	18,14±0,26
MCC6_AE20P_05-G02	Poudre	20	17,82±0,16
MCC6_AE30P_05-G03	Poudre	30	17,03±0,18

Les échantillons composites aérogel / cellulose, dont les caractéristiques sont données dans le tableau 4.5, sont comparés au poreux de cellulose SP6_05-E01 (même taille de pores et d'interconnexions). Comme le montre la figure 4.15, l'incorporation d'aérogel améliore la correction acoustique. Notons que l'échantillon SP6_05-E01 a une épaisseur de 25 mm contre les 18 mm en moyenne de nos composites. Un facteur de 1,6 sur l'activité acoustique est observé pour l'échantillon contenant 30% de son volume total en aérogel (MCC6_AE30P_05-G03). Un pic d'absorption à 0,85 est présent à 4000 Hz avec une meilleure absorption avant et après cette fréquence en comparaison avec le poreux de cellulose. Pour les deux autres composites (MCC6_AE10P_05-G01 et MCC6_AE20P_05-G02) contenant respectivement 10 et 20% d'aérogel le gain est moins significatif (de l'ordre de 130% pour l'activité acoustique) mais montre néanmoins que l'incorporation d'aérogel dans le poreux de cellulose est intéressante du point de vue de l'absorption. Si ce composite montre un gain d'absorption non négligeable, la rigidité induite par l'incorporation d'aérogel rend ses performances moins

élevées que pour l'encapsulage avec des gains décalés vers les hautes fréquences et nécessite une plus grande quantité d'aérogel.

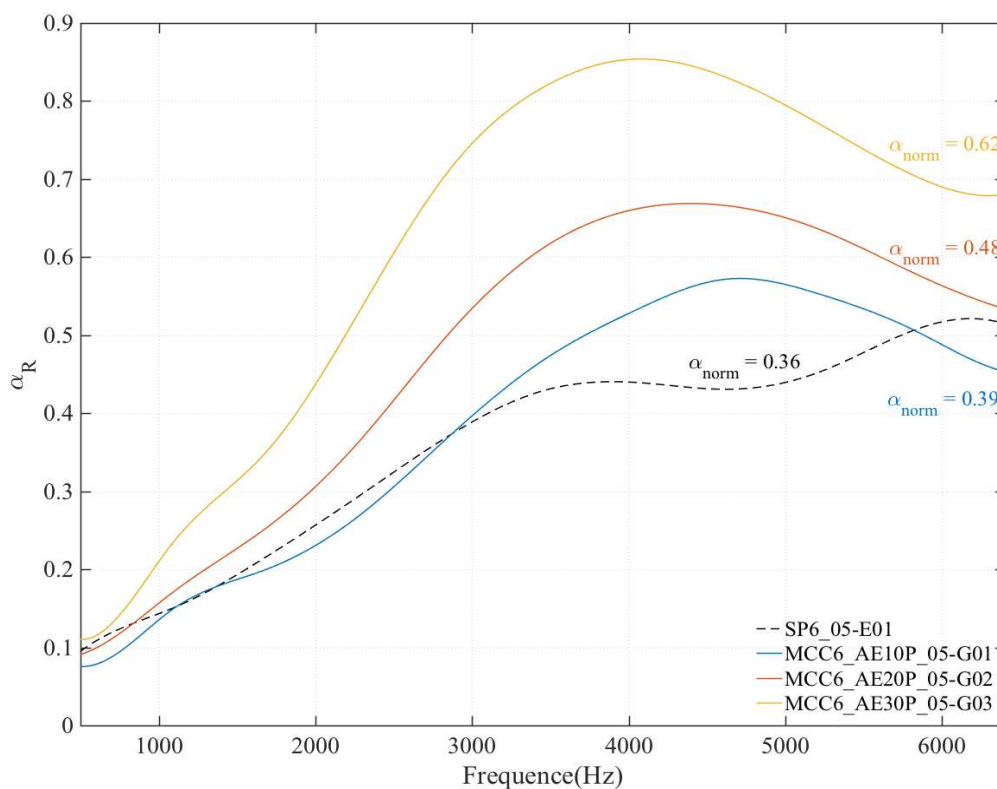


Figure 4.15 - Coefficient d'absorption d'échantillons composites pour un ratio variant de 10 à 30 % d'aérogel en poudre.

4.1.5.3 Caractérisation

Tableau 4.6 - Propriétés intrinsèques des composites cellulose / aérogel ($\phi = 0,99$).

Échantillon	Méthode	σ^*	α_∞	Λ	Λ'	k'_0 ($1E-9$ m2)
MCC6_AE10P_05-G01	Inverse	957	$1,45 \pm 0,05$	$265,4 \pm 8,4$	$342,9 \pm 12,3$	-
	Indirect		$1,23 \pm 0,03$	$235,6 \pm 15,5$	$150,2 \pm 23,9$	$5,8 \pm 2,8$
MCC6_AE20P_05-G02	Inverse	2473	$1,445 \pm 0,023$	$172,3 \pm 0,8$	$287,9 \pm 6,5$	-
	Indirect		$1,26 \pm 0,02$	$169,1 \pm 8,4$	$98,4 \pm 12,3$	$2,1 \pm 1,4$
MCC6_AE30P_05-G03	Inverse	5725	$1,477 \pm 0,029$	$100,6 \pm 0,5$	$220,8 \pm 6,9$	-
	Indirect		$1,44 \pm 0,07$	$94,5 \pm 8,7$	$264,6 \pm 109,4$	$3,9 \pm 0,9$

Si les courbes obtenues avec le modèle JCA (cf. figure 4.16) sont cohérentes avec les courbes expérimentales, comme pour l'encapsulage d'aérogel, les méthodes de détermination

* La résistivité au passage de l'air est obtenue par la mesure directe (cf. section 3.1.3).

inverse et indirecte permettent uniquement de rendre compte de l'évolution des paramètres intrinsèques en fonction du pourcentage d'aérogel contenu dans le matériau. De plus pour la méthode indirecte les valeurs de Λ' sont nettement différentes de celle obtenues par la méthode inverse avec, pour les échantillons MCC6_AE10P_05-G01 et MCC6_AE20P_05-G02 un $\Lambda' > \Lambda$. Il est possible que les effets thermiques soient faibles, la détermination des paramètres associés peut être par conséquent compliquée. La méthode inverse est donc privilégiée pour comprendre le mécanisme de dissipation acoustique dans les matériaux composites aérogel / cellulose. Ainsi l'apport d'aérogel montre une diminution de Λ' pouvant être associée au rayon moyen des pores du matériau, ce qui est également en adéquation avec l'augmentation de σ (cf. Eq. (3.25)) obtenue par la mesure directe.

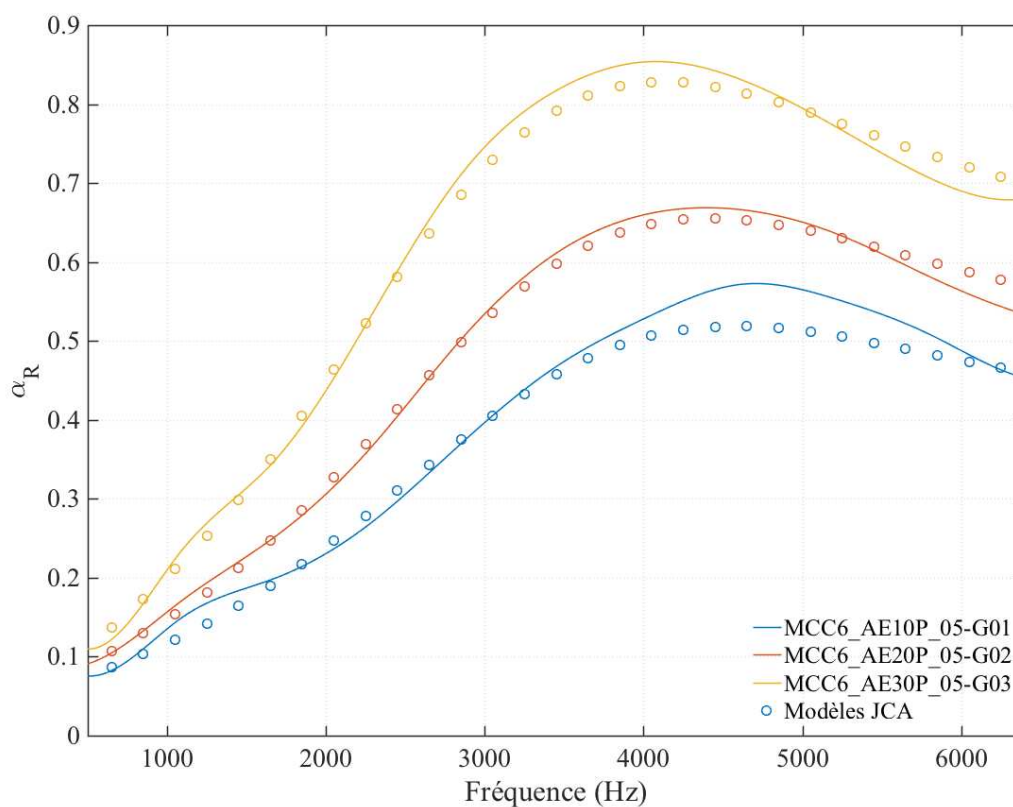


Figure 4.16 - Modélisation composites cellulose / aérogel.

4.1.6 Composite cellulose / filler calcaire

Un filler calcaire est une fine minérale obtenue par broyage d'une roche calcaire, ils sont utilisés pour combler les vides du squelette poreux d'un béton. Dans le but de vérifier l'apport de l'aérogel sur les performances acoustiques, un composite cellulose / filler calcaire est réalisé.

La comparaison est faite avec l'échantillon MCC6_AE30P_05-G03, contenant 30% de son volume total en aérogel. Le filler calcaire utilisé (S.A.S. Carrières du Boulonnais) a une granulométrie proche de celle l'aérogel broyé (63 à 500 μm). La méthode de fabrication est la même que pour le composite cellulose / aérogel (*cf.* section 4.1.5.1).

L'échantillon MCC6_FC30_05-K01 obtenu à une hauteur de $22,83 \pm 0,57$ mm et contient 30 % de son volume total de filler calcaire. Afin de comparer ses performances avec un composite cellulose / aérogel de même épaisseur, le modèle JCA de l'échantillon MCC6_AE30P_05-G01 est utilisé.

Les courbes d'absorption obtenues avec ces deux échantillons (*cf.* figure 4.17) rendent compte de gains relativement proches et légèrement plus élevés pour l'aérogel sur la bande de fréquences 500 – 3000 Hz. Comme pour l'aérogel, l'incorporation du filler calcaire dans les pores du matériau doit traduire une augmentation de la résistivité au passage de l'air (diminution du diamètre des pores induit par la place prise par le filler calcaire). Cette dernière n'ayant pu être mesurée, il est difficile de savoir si la structure interne de l'aérogel participe également à l'augmentation des performances du composite. Cependant l'incorporation de filler calcaire diminue la résistance mécanique de la mousse de cellulose qui a tendance à s'effriter contrairement au composite aérogel/cellulose. De plus, comme pour l'encapsulage d'aérogel, il serait intéressant d'évaluer les propriétés thermique du composite.

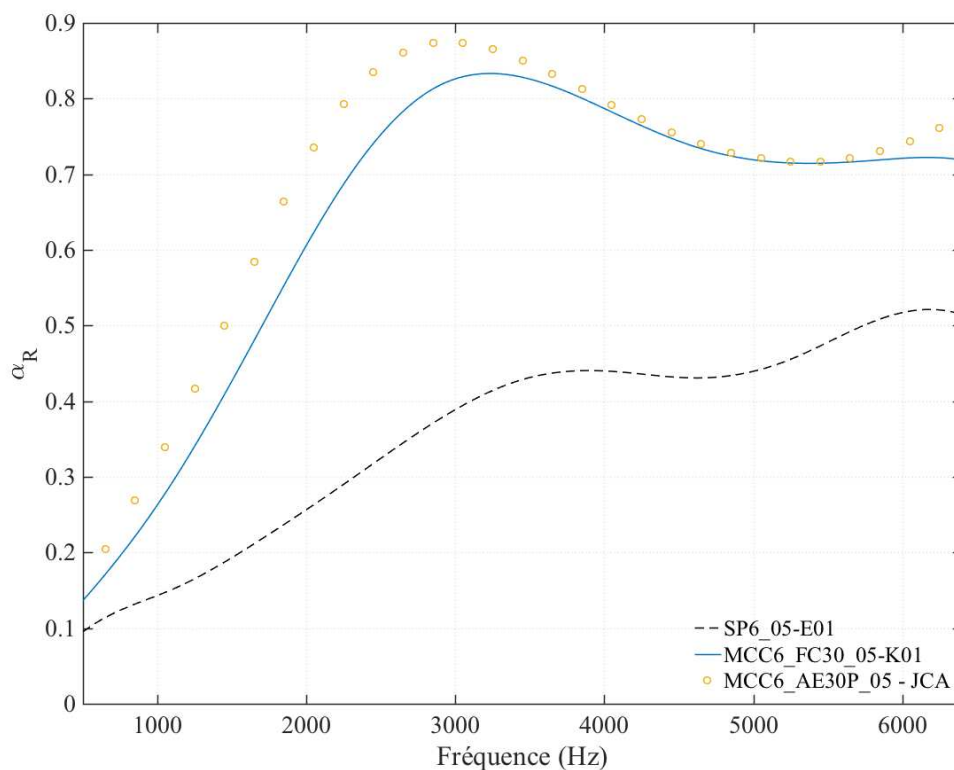


Figure 4.17 - Comparaison des performances du composite cellulose / filler calcaire avec le composite cellulose / aérogel.

4.1.7 Conclusion

Les résultats expérimentaux montrent l'intérêt du couplage aérogel de silice et cellulose dans le domaine de l'audible. L'augmentation de l'activité acoustique est de l'ordre de 2 avec une absorption totale autour de 2200 Hz, pour l'encapsulage d'aérogel de faible épaisseur (22 mm).

Alors que la fabrication et les résultats de l'encapsulage montrent l'intérêt de l'emploi d'aérogel, le procédé d'obtention du composite aérogel de silice-cellulose doit être amélioré. Si un échantillon à base de granules d'aérogel est possible (*cf.* figure 4.14 (a)), celles-ci ne peuvent pas se lier avec les billes de PMMA, ce qui implique une tenue mécanique du poreux obtenu aléatoire et tributaire de la place prise par les grains d'aérogel (formation possible de vides à certains endroits). Les mesures acoustiques de cet échantillon ne peuvent donc pas être exploitées.

D'autre part, la comparaison d'un échantillon composite à base d'aérogel avec celui contenant un filler calcaire de mêmes caractéristiques dimensionnelles montre que l'aérogel a un intérêt mécanique et que ses caractéristiques thermiques pourraient permettre le développement d'un matériau multifonctionnel.

4.2 Vers l'obtention de matériaux poreux à gradient de propriétés

Le procédé de fabrication de macroporeux en céramique [28] montre qu'il est possible de contrôler la taille des pores et leurs interconnexions. Il est donc possible de fabriquer des gradients de porosité et d'interconnexions. La mise en œuvre des gradients de propriétés s'effectue uniquement sur la première étape de fabrication du poreux de cellulose, à savoir l'étape de construction de l'empreinte. C'est pourquoi les procédés de fabrication décrits ci-après ne portent que sur cette étape, la réalisation du squelette et la dissolution de l'empreinte restent identiques à celles décrites dans les sections 2.2.2 et 2.2.3.

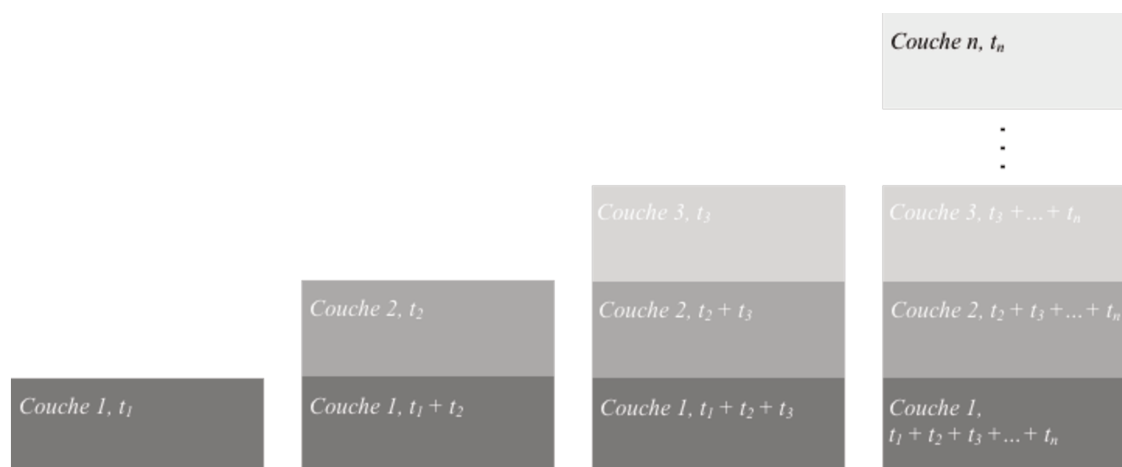


Figure 4.18 - Principe d'obtention d'un gradient d'interconnexions discret.

Le gradient d'interconnexions discret s'obtient en empilant des couches de billes de PMMA de même diamètre mais avec des temps d'imprégnation différents (*cf.* figure 4.18). La première couche est imprégnée pendant un temps t_1 , la seconde couche est alors introduite dans le moule pendant une durée t_2 et ainsi de suite. La première couche étant en contact avec le solvant pendant la durée $t_1 + t_2 + \dots + t_n$, le diamètre des interconnexions de celle-ci est plus grand que celui de la seconde couche et des suivantes.

Les échantillons obtenus avec ce procédé de fabrication présentent des diamètres d'interconnexions différents pour chaque couche (*cf.* figure 4.19). Cependant, le changement entre chaque couche induit une rupture d'impédance. Or une étude sur le contrôle des propriétés internes de mousses de polyuréthane montre l'intérêt d'avoir un gradient d'interconnexions continu [7, 58]. C'est pourquoi nous proposons une modification du procédé de fabrication des macroporeux afin d'obtenir cette continuité.

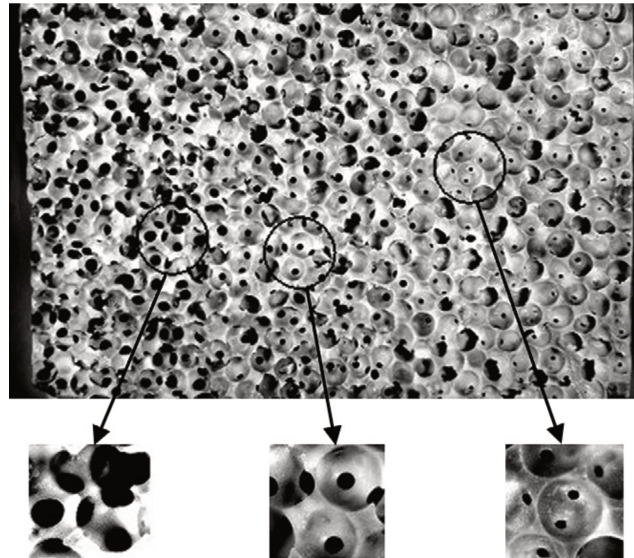


Figure 4.19 – Echantillon à gradient d'interconnexions [28].

4.2.1 Gradient d'interconnexions continu

4.2.1.1 Procédé de fabrication

Pour obtenir un gradient d'interconnexions continu, l'empreinte de PMMA est mise dans un moule à fond percé. Comme pour le procédé de base, le piston permet de comprimer le négatif afin de réaliser les interpénétrations entre les billes. Le moule est ensuite mis dans un cristallisateur dans lequel est versé l'acétone. Le négatif est imprégné jusqu'à ce que le niveau d'acétone atteigne sa face supérieure par capillarité (cf. figure 4.20).

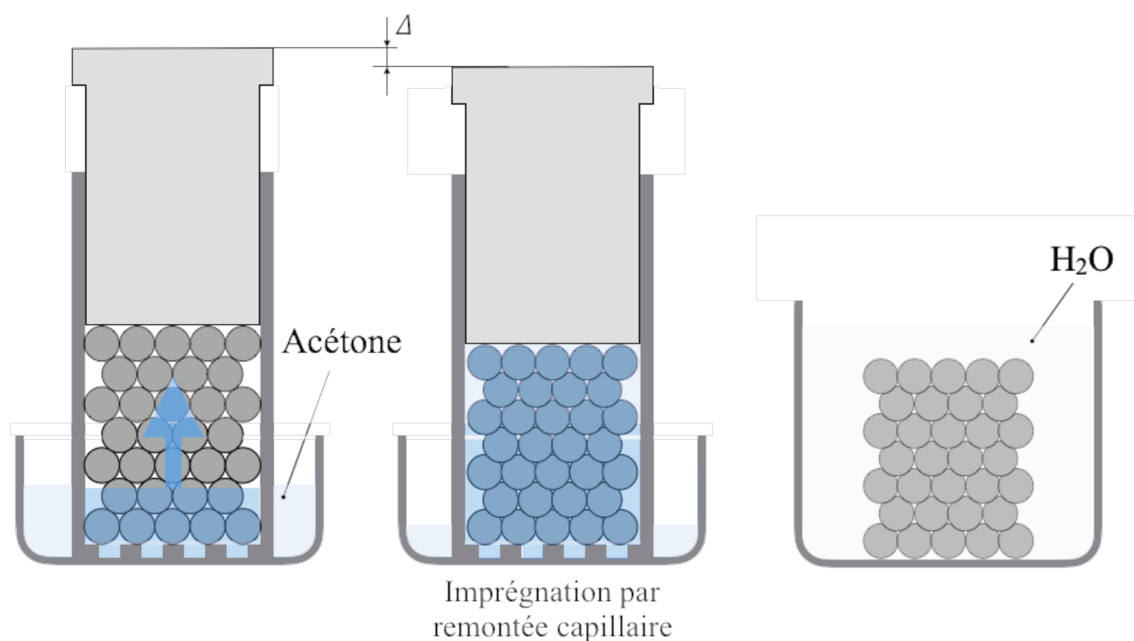


Figure 4.20 - Procédé de fabrication du gradient d'interconnexions continu.

Les vues microscopiques des deux faces de l'échantillon rendent compte de la différence de taille des interconnexions. Pour la face supérieure (temps d'impregnation le moins long) le diamètre des interconnexions se situe aux alentours de $135\ \mu\text{m}$ (cf. figure 4.21 (a)) alors que pour la face inférieure (cf. figure 4.21 (b)) leur valeur est d'environ $190\ \mu\text{m}$.

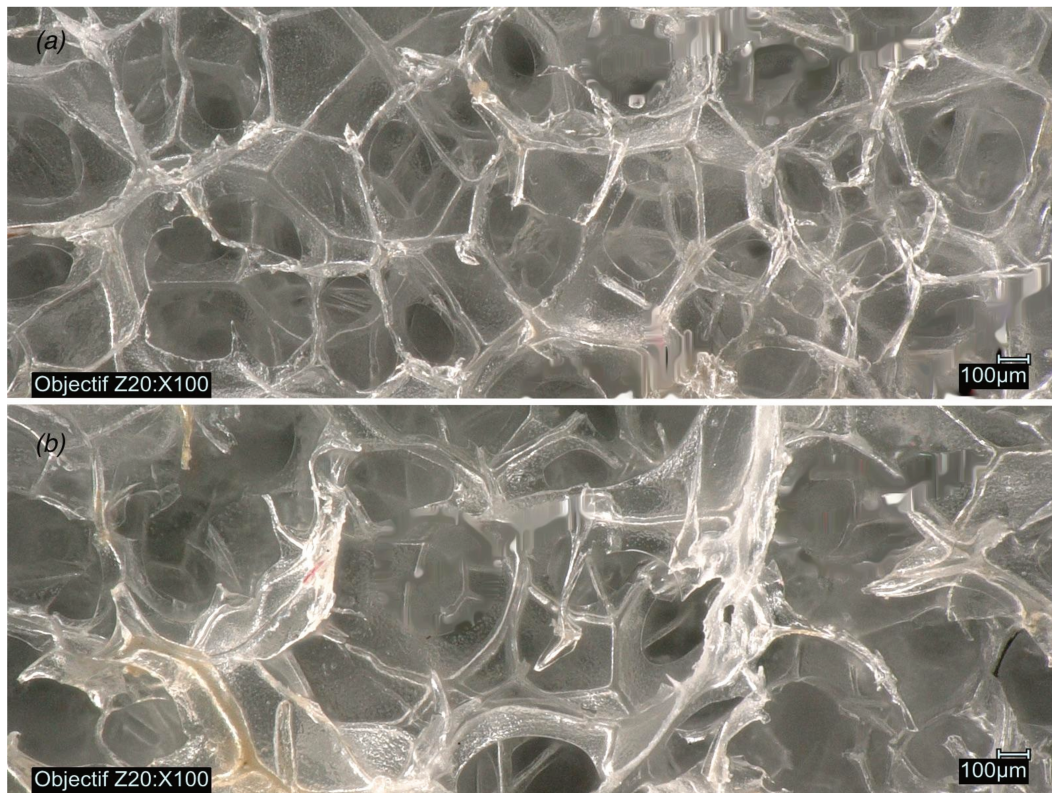


Figure 4.21 - Vue microscopique d'un poreux à gradient d'interconnexions continu : (a) petit rayon d'interconnexion
(b) grand rayon d'interconnexion.

4.2.1.2 Résultats expérimentaux

Le gradient d'interconnexions est confirmé par la différence d'absorption entre les deux faces de l'échantillon (cf. figure 4.22). Les meilleures performances sont obtenues pour la face dont les interconnexions les plus petites sont contre la terminaison rigide (GI6_xx-F06 ∇). La comparaison avec l'échantillon à propriétés constantes, de même diamètre de billes (SP6_05-I03) et d'épaisseur proche ($18,98 \pm 0,31$ pour GI6_xx-F06) rend compte d'une activité acoustique 3 fois plus élevée pour le gradient d'interconnexions avec un pic d'absorption de 0,94 à 2700 Hz. Pour GI_xx-F06 ∇ , dont les plus grandes interconnexions sont contre la terminaison rigide, le gain d'activité acoustique reste aussi

important avec toutefois une efficacité qui se situe plus vers les hautes fréquences. Notons que ces performances sont obtenues pour un échantillon ayant une taille de pores de 600-710 μm qui, dans le cas d'interconnexions constantes, est celui qui présente la plus faible absorption et la plus faible résistivité (*cf.* figure 3.10 et tableau 3.2). L'utilisation de billes de PMMA de diamètre inférieur pourrait permettre d'améliorer la correction acoustique du gradient d'interconnexions.

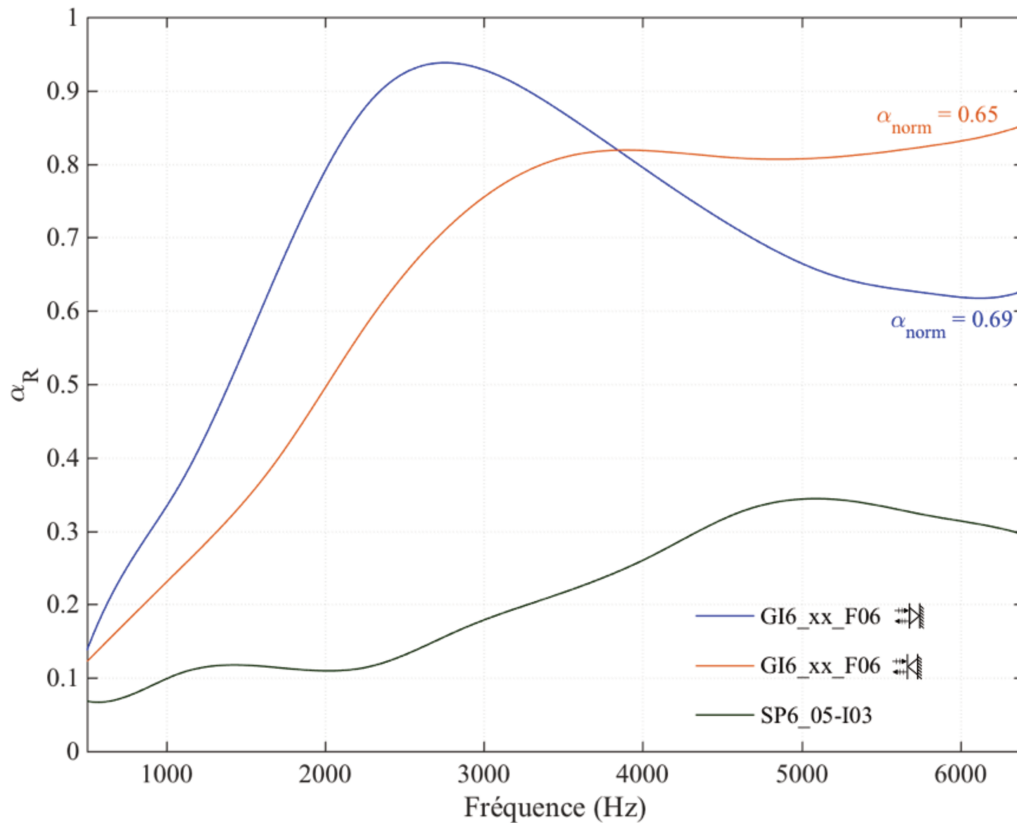


Figure 4.22 - Coefficient d'absorption d'un gradient d'interconnexions continu.

4.2.2 Gradient de porosité

4.2.2.1 Procédé de fabrication

Comme dans le procédé de fabrication des céramiques, le gradient de porosité est obtenu en superposant des couches de billes de PMMA de diamètres différents. Pour chaque diamètre de bille on imprègne un négatif de hauteur h ($h_1, h_2, \dots, h_n$) séparément, ils sont ensuite superposés dans le moule puis imprégnés pour réaliser les connexions entre eux. La vue microscopique d'une céramique à gradient de porosité (*cf.* figure 4.23) rend compte de la taille des pores de chaque couche. Afin d'obtenir l'empreinte en une seule étape, une première

couche de billes de diamètre $\varnothing_1$ et de hauteur h_1 est placée dans le moule, puis un nouvel étage de billes de diamètre $\varnothing_2$ et de hauteur h_2 est incorporé et ainsi de suite jusqu'à la dernière couche de diamètre $\varnothing_n$ et de hauteur h_n . Entre chaque couche la surface est aplanie par la mise en place du piston. Une grille est placée sur la dernière couche et le piston perforé est inséré pour maintenir les billes sous pression avant immersion par l'acétone (cf. figure 4.24).

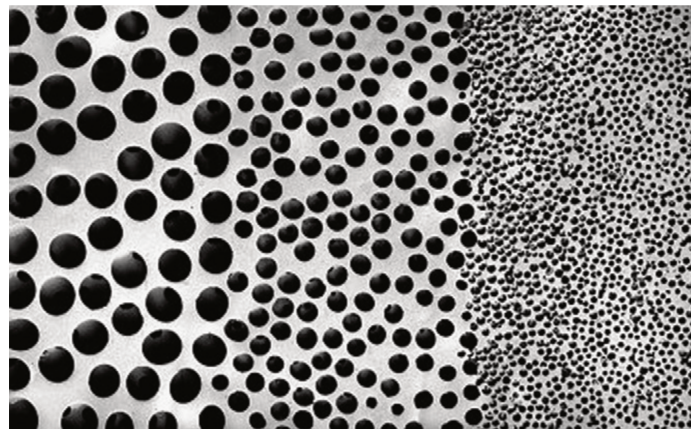


Figure 4.23 - Echantillon à gradient de porosité [28].

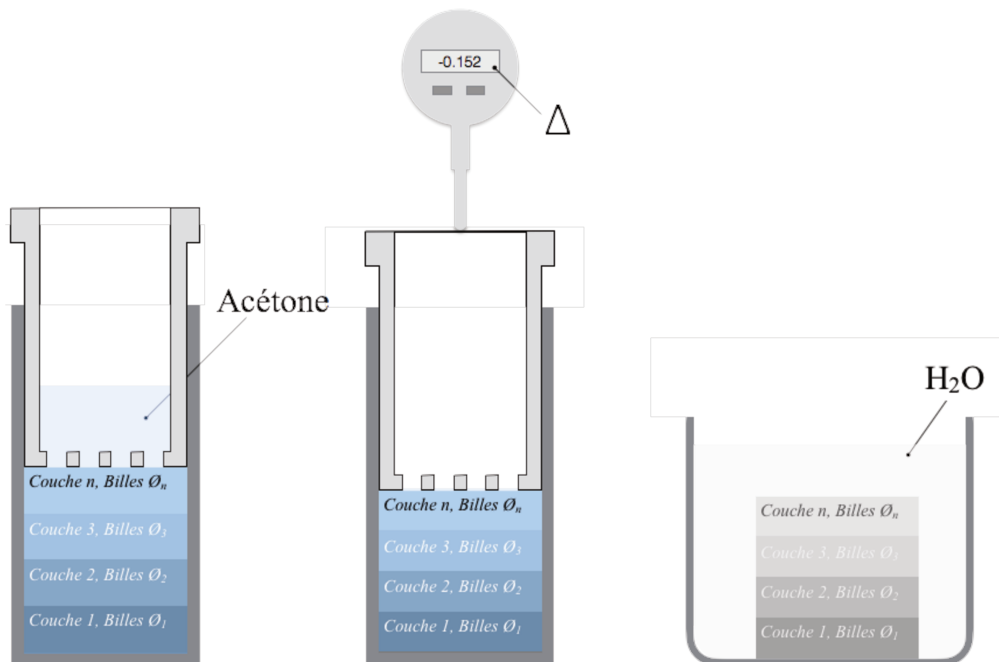


Figure 4.24 - Procédé de fabrication du gradient de porosité.

4.2.2.2 Résultats expérimentaux

Tableau 4.7 - Dimensions des échantillons à gradient de porosité.

Échantillon	Masse Cellulose (g)	Épaisseur (mm)	Diamètre (mm)	Porosité Φ
GP4-7_04_07-H01	0,3038	$37,44 \pm 0,17$	$28,63 \pm 0,15$	0,991
GP4-7_04_02-H02	0,8964	$42,46 \pm 0,3$	$44,46 \pm 0,3$	0,991

La répartition des diamètres de billes lors de la mise en place dans le moule pour les 2 échantillons est donnée sur la figure 4.25.

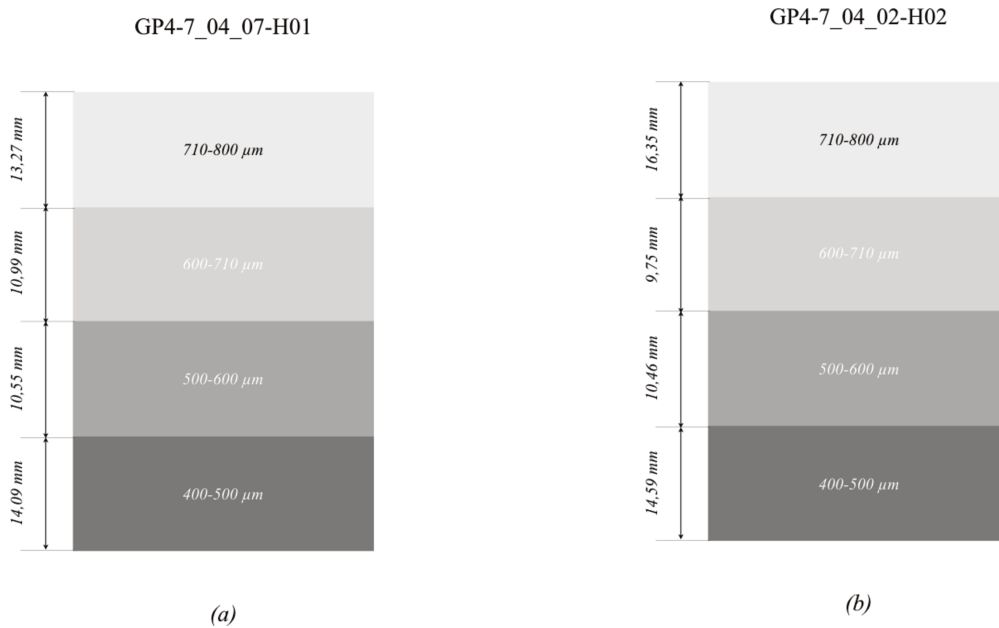
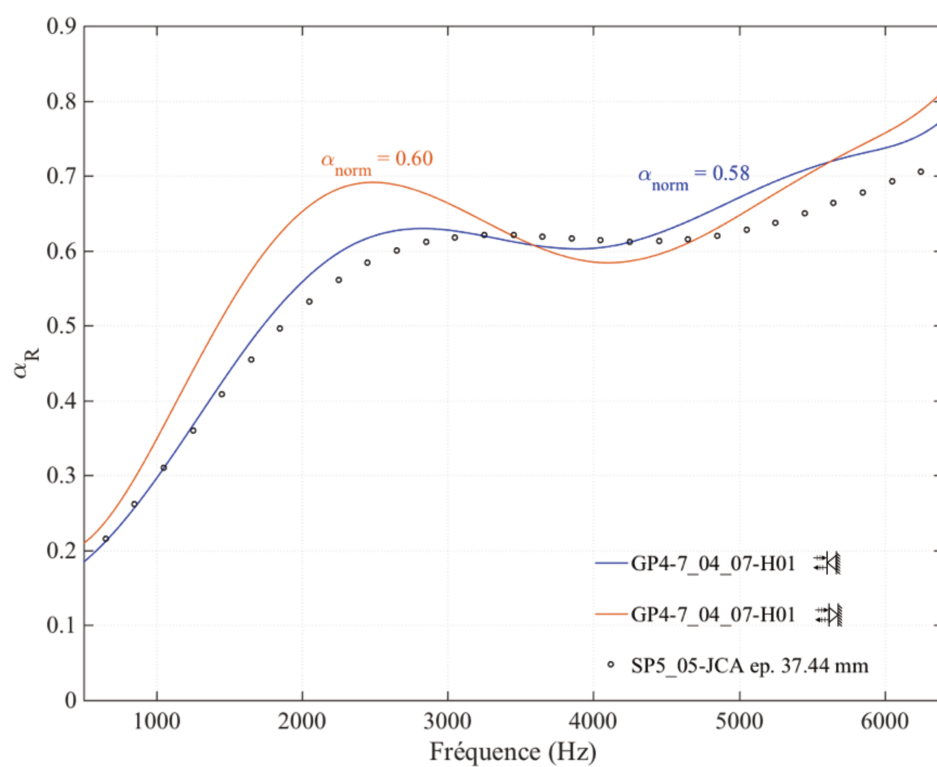
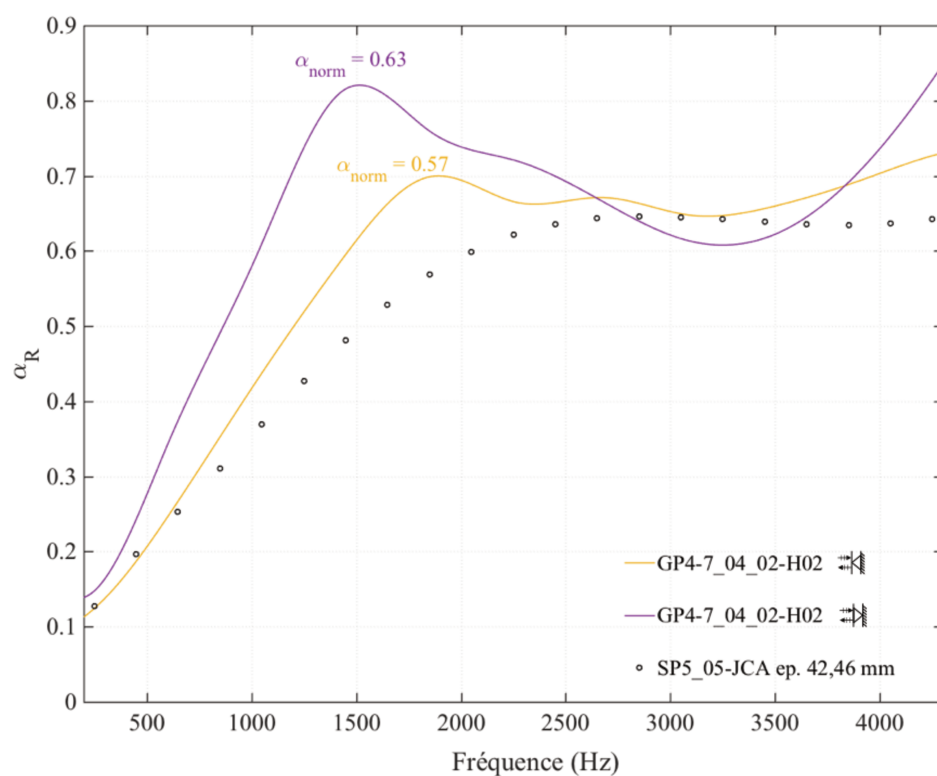


Figure 4.25 - Répartition des diamètres des billes dans le moule pour les échantillons.

Les résultats obtenus (cf. figure 4.26 (a) et (b)), sont comparés à la modélisation en fluide équivalent JCA de l'échantillon SP5_05-I07 (cf. tableau 3.2) dont le diamètre des pores est relativement proche des plus petits du gradient de porosité. Les deux échantillons présentent des courbes d'absorption différentes suivant la face soumise à l'onde acoustique ce qui confirme la présence d'un gradient de propriété. Pour $\Delta/H = 0,2$ (GP4-7_04_02-H01) un pic d'absorption de 0,82 est présent à 1500 Hz pour la face présentant les pores les plus petits contre la terminaison rigide. Les résultats obtenus pour les deux échantillons à gradient de porosité montrent une amélioration de l'absorption avec un décalage du pic vers les basses fréquences. Ceux-ci ayant une répartition de pores sensiblement identique sur les différentes couches, l'absorption semble dépendante du diamètre des interconnexions et de la face soumise à l'onde acoustique. Ainsi la diminution du diamètre des pores de la face en contact avec la terminaison rigide permettrait d'augmenter la résistance au passage de l'air pour obtenir de meilleures performances en basses fréquences.



(a)



(b)

Figure 4.26 - Coefficient d'absorption des poreux de cellulose à gradient de porosité.

4.3 Absorbant à double porosité

4.3.1 Procédé de fabrication

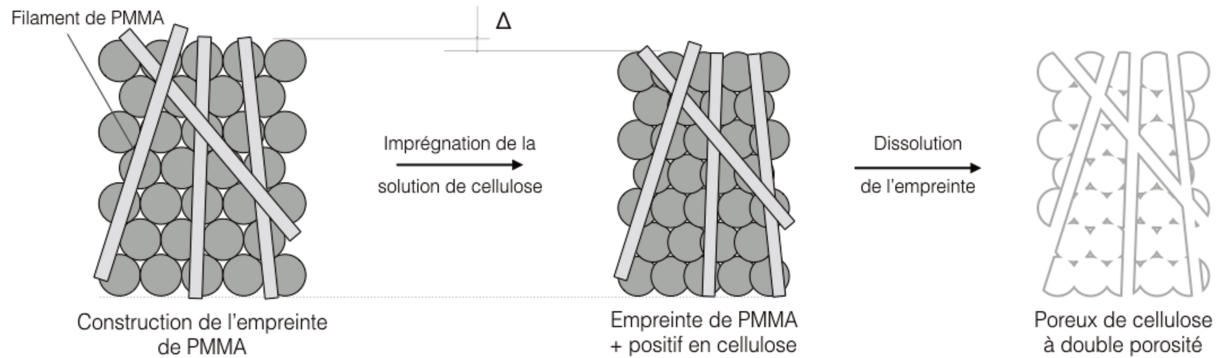
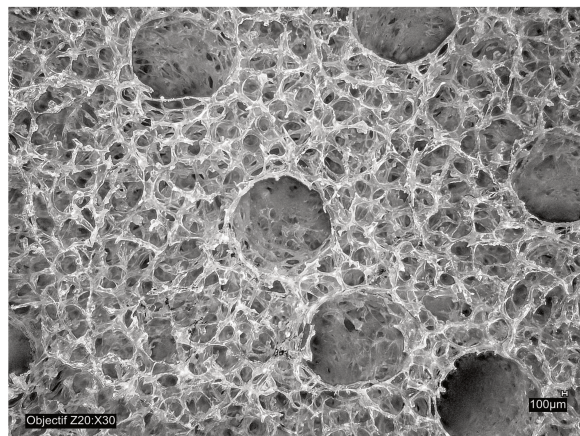


Figure 4.27 - Procédé de fabrication d'un absorbant à double porosité.

Le procédé de fabrication du poreux de cellulose à double porosité permet d'obtenir deux types de réseaux méso-poreux : (i) peu ordonné (*cf.* figure 4.28 (a) et (b)) ou (ii) très ordonné (*cf.* figure 4.29 (a) et (b)). Le premier est obtenu en insérant des filaments de PMMA ($\varnothing$ 1,75 mm) lors de la construction de l'empreinte (*cf.* figure 4.27), le second en ajoutant une structure en PMMA réalisée par impression 3D (*cf.* figure 4.29 (a)) à la place des filaments de PMMA. Il permet de contrôler les dimensions, la forme et la distribution du réseau méso-poreux, ce qui peut présenter un intérêt dans le but d'améliorer l'absorption vers les basses fréquences [59]. Les étapes suivantes de la fabrication sont identiques à celles des échantillons standards.



(a)



(b)

Figure 4.28 - Vue macroscopique (a) et microscopique (b) d'un poreux de cellulose à double porosité.



Figure 4.29 - Structure du réseau méso-poreux (a) / Mousse de cellulose à double porosité obtenue (b).

4.3.2 Résultats expérimentaux

L'échantillon testé est du premier type (peu ordonné), le réseau microporeux a un diamètre de pores compris entre 500 et 600 μm pour un réseau méso-poreux dont les pores cylindriques ont un diamètre de 1,75mm.

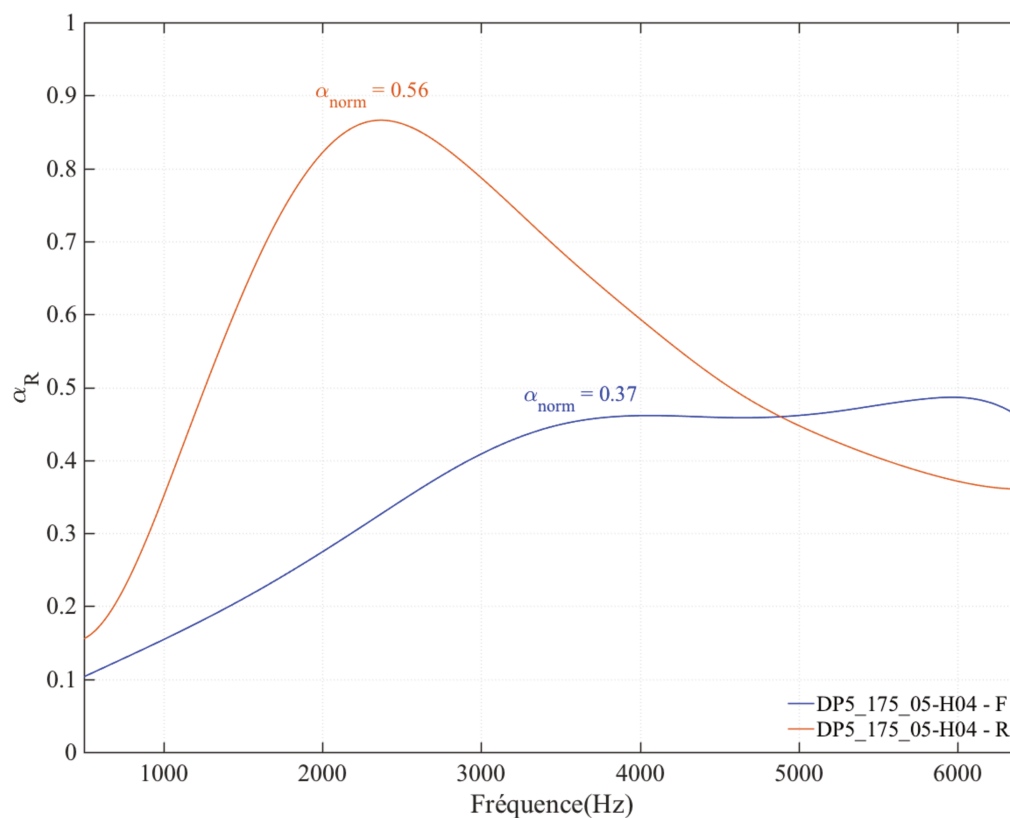


Figure 4.30 - Courbes d'absorption des faces avant et arrière de l'échantillon à double porosité.

La figure 4.30 montre les courbes d'absorption obtenues avec l'échantillon de diamètre peu ordonné de hauteur $18,46 \pm 0,27$ pour un Δ/H de 5%. Les performances acoustiques sont différentes suivant la face soumise à l'onde incidente. En effet, l'activité acoustique de notre échantillon est 1,5 fois plus importante pour DP5_175_05-H04 – R avec un pic d'absorption de 0,85 aux alentours de 2200 Hz. Cette différence reflète certainement la disposition aléatoire des tiges de PMMA dans le moule et des inclinaisons du réseau méso-poreux qui en résultent.

Cependant les matériaux à double porosité nécessitent une forte résistivité au passage de l'air, si le contrôle du réseau méso-poreux est possible il est maintenant nécessaire d'avoir un matériau dont le diamètre des pores est inférieur à celui obtenu actuellement.

4.4 Conclusion

Ce chapitre a permis de balayer les possibilités d'amélioration des performances de notre poreux. Trois concepts ont ainsi été étudiés : les matériaux à gradient de propriétés, à double porosité et à inclusion d'aérogel.

Parmi les matériaux à gradient de propriétés le gradient d'interconnexions est celui qui montre les meilleures performances (facteur 3 par rapport à un matériau à propriétés constantes) avec une courbe d'absorption différente suivant la face soumise à l'onde acoustique (*cf.* figure 4.22). Contrairement au gradient d'interconnexions, le gradient de porosité montre un gain moins significatif mais reste cependant intéressant par un décalage de l'absorption vers les basses fréquences et pourrait être amélioré en optimisant le diamètre des interconnexions et des pores de la face finale du matériau.

La double porosité améliore l'absorption du matériau avec une faible épaisseur (environ 19 mm). Cependant la faible résistivité au passage de l'air du réseau micro-poreux ne permet pas d'avoir des performances optimales et d'obtenir un matériau efficace à basses fréquences. La diminution de la taille des pores du réseau micro-poreux permettrait d'augmenter σ et d'avoir un contraste plus important avec le réseau macro-poreux ($l_p/l_m > 10$). Or, le diamètre minimal obtenu est de 200 μm , ce qui ne permet pas une augmentation significative de la résistivité.

L'inclusion d'aérogel se fait sous forme d'un composite aérogel/cellulose ou par encapsulage de l'aérogel au centre du poreux. Ce dernier apparaît comme étant le plus

prometteur avec une activité acoustique doublée par rapport à un échantillon sans aérogel et une absorption complète à 2500 Hz. La résistivité au passage de l'air pour ces échantillons (dont le diamètre des pores est compris entre 600 et 710 μm) varie entre 13 et 17 kNsm^{-4} contre les 0,7 d'un échantillon de mêmes caractéristiques dimensionnelles mais sans aérogel. Ainsi la fabrication d'échantillon avec un diamètre de pores compris entre 200 et 400 μm ($\sigma = 5 \text{ kNsm}^{-4}$) pourrait permettre d'accroître ces performances. D'autre part, une caractérisation complète de l'aérogel est nécessaire pour modéliser notre matériau et définir le meilleur ratio aérogel/cellulose. Le composite quant à lui montre une amélioration des performances qui est moindre et demande une plus grande quantité d'aérogel (30 %). Cette différence de gain est certainement due à la rigidité engendrée par l'inclusion d'aérogel.

Ainsi parmi les procédés étudiés celui qui présente le plus fort potentiel d'évolution avec le procédé de fabrication actuel est l'encapsulation d'aérogel. Plusieurs pistes de recherche sont à envisager avec ce dernier :

- la caractérisation de l'aérogel afin de mieux comprendre son mécanisme de dissipation de l'onde acoustique et son influence sur le poreux de cellulose,
- la modélisation du matériau obtenu avec l'encapsulation d'aérogel pour avoir un modèle prédictif,
- vérifier l'influence du diamètre des pores de l'enveloppe en cellulose sur la résistivité au passage de l'air et sur les performances du matériau,
- l'aérogel de silice faisant partie des super isolants thermiques, la caractérisation dans ce domaine permettrait de voir si ce dernier influe sur notre poreux et ainsi de savoir si il est possible d'obtenir un matériau multifonctionnel acoustique/thermique.

Conclusion générale et perspectives

Le travail de thèse décrit dans ce document porte sur la mise au point d'un matériau poreux bio-sourcé destiné au confort acoustique. Nous nous sommes focalisés sur deux familles d'absorbants : l'une formée d'échantillons entièrement constitués de cellulose et l'autre constitué d'un mélange de cellulose et d'aérogel.

La première phase du travail concerne la fabrication des échantillons. Elle repose sur la mise en forme d'une empreinte constituée de billes calibrées de PMMA, procédé initialement développé pour la fabrication de céramiques à porosité ouverte. L'empreinte est imprégnée d'une solution de cellulose puis dissoute afin d'obtenir le poreux. Lors de la mise en forme de l'empreinte il est possible d'obtenir trois familles d'échantillons : (i) à porosité et propriétés constantes, (ii) à gradient de propriétés et enfin (iii) les matériaux chargés en aérogel. Les procédés de fabrication de ces trois familles reposent uniquement sur la mise en forme de l'empreinte. Pour la deuxième catégorie, le gradient de propriété est obtenu par empilement de couches de billes de PMMA de diamètres différents pour le gradient de porosité et par imprégnation du solvant (permettant l'interpénétration des billes entre elles) pour le gradient d'interconnexions. Pour la troisième, les matériaux composites sont fabriqués soit par mélange de granules d'aérogel avec les billes de PMMA, soit par encapsulage de l'aérogel dans une capsule en PLA au centre de l'empreinte.

Lors de cette première phase, plusieurs problèmes sont apparus et sont essentiellement dus au changement d'échelle. Le procédé de fabrication (*cf.* § 2.1) est mis au point pour des échantillons de faibles diamètre et épaisseur. L'étape d'imprégnation de la solution de cellulose donne lieu à un effondrement et une imprégnation partielle de l'empreinte. La fabrication d'un moule dans lequel est placée celle-ci permet d'injecter la solution de cellulose avec une seringue. Le second effet de ce changement d'échelle porte sur la phase de dissolution de l'empreinte dans le CH_2Cl_2 , l'échantillon est placé dans un soxhlet, ce qui permet une faible consommation de solvant. Lors du remplissage entre deux cycles de

rinçage, les échantillons sèchent et provoque ainsi une rigidification du squelette de cellulose. Nous avons donc été contraint de plonger les échantillons dans le bain de CH_2Cl_2 , solution qui consomme plus de solvant même si 75 à 80 % du volume utilisé est recyclé. Enfin, une rétraction de l'ordre de 10 % apparaît après découpe de l'échantillon à l'emporte pièce. L'étude du vieillissement de plusieurs échantillons a permis de montrer qu'un temps de séchage de 15 jours doit être observé après la dissolution de l'empreinte.

La seconde phase a mis en évidence les propriétés acoustiques des matériaux à l'aide d'un tube d'impédance. Les mesures par la fonction de transfert à 2 et 4 microphones ont permis respectivement de déterminer le coefficient d'absorption (ainsi que l'activité acoustique) et l'indice d'affaiblissement des échantillons. Lors de cette phase, l'étude de l'influence des paramètres physiques (diamètres des pores et interconnexions) a montré que le meilleur résultat est obtenu avec l'échantillon dont le diamètre des pores est compris entre 200 et 400 μm . Dans ce cas l'activité acoustique est de 0,51 et le pic d'absorption d'environ 0,8 aux alentours de 5 kHz. En parallèle, la détermination des paramètres intrinsèques a permis des calculs basés sur des modèles en fluide équivalent, en particulier le modèle JCA qui a permis une meilleure compréhension du comportement acoustique des matériaux. Ces résultats ont montrés que notre matériau, dans sa configuration de base (à propriétés constantes), est fortement dépendant du diamètre de ses pores.

En conclusion, cette étude permet d'identifier divers échantillons en fonction de leurs performances acoustiques. Les deux types d'absorbants qui semblent s'imposer sont ceux à inclusion d'aérogel et ceux à gradient de propriété (interconnexions ou porosité). Avec l'encapsulage d'aérogel, l'activité acoustique est multipliée par 2 en comparaison à une mousse de cellulose seule. L'étude préliminaire portant sur le ratio aérogel/cellulose montre que son augmentation améliore les performances grâce à un décalage du pic d'absorption vers les basses fréquences. Le gradient d'interconnexions rend compte d'un gain moins important, cependant sa mise en œuvre est plus simple et plus facilement transposable à une plus grande échelle. Pour l'instant, ces résultats correspondent à des diamètres de pores de 600 à 710 μm . De meilleurs résultats devraient être obtenus en envisageant des diamètres inférieurs. Pour des fréquences plus élevées, le composite cellulose / aérogel est un bon candidat avec un gain de l'ordre de 1,7 sur l'activité acoustique. Au vu des qualités thermiques de l'aérogel, ce type de matériau pourrait présenter l'avantage d'être à la fois isolant acoustique et thermique.

PERSPECTIVES

Suite aux nombreuses expérimentations effectuées, les études suivantes mériteraient d'être poursuivies :

- le gradient d'interconnexions obtenu en imprégnant la solution de cellulose par capillarité montre des performances acoustiques intéressantes. Cette technique présente un atout écologique car constituée uniquement de cellulose. Il serait cependant nécessaire de mieux contrôler le profil du gradient sur la hauteur de l'échantillon. Afin d'établir l'impact exact du matériau sur l'environnement une analyse du cycle de vie de ce dernier apparaît comme nécessaire,
- d'un point de vue général, les performances acoustiques de notre matériau sont essentiellement dépendantes du diamètre de ses pores. Afin de pouvoir descendre sous les 200 μm , il est nécessaire de modifier l'étape d'imprégnation de la solution de cellulose. Différents essais ont été effectués dans ce but, et montrent qu'une infusion de cellulose conformément aux techniques d'imprégnation des tissus de fibres dans l'industrie du composite est possible,
- dans tous les cas, une étude thermique permettrait de répondre aux exigences des matériaux utilisés dans le domaine de l'habitat.

Ces perspectives nécessitant une connaissance plus fine des phénomènes mis en jeu, il faudra prévoir l'utilisation conjointe de modélisations numériques plus sophistiquées. En effet, la simulation permettra de prédire les comportements acoustiques avant fabrication de l'échantillon et, ainsi, apportera un gain de temps.

Annexe 1. Méthodes de mesure

A.1. Méthodes de mesure des propriétés acoustiques des matériaux

A.1.1. Le tube d'impédance

Le tube d'impédance ou tube de Kundt permet de déterminer le coefficient d'absorption α , l'impédance de surface Z_s et l'indice d'affaiblissement normal TL_n en se plaçant dans le cas d'une onde plane en incidence normale (cf. Figure A. 1).

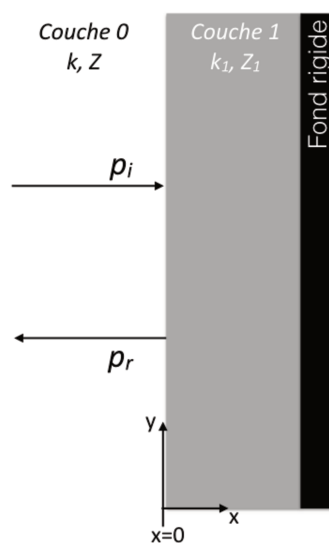


Figure A. 1 - Matériau soumis à une onde incidente normale.

La détermination du coefficient d'absorption α se fait à partir des deux composantes : incidente (p_i) et réfléchie (p_r).

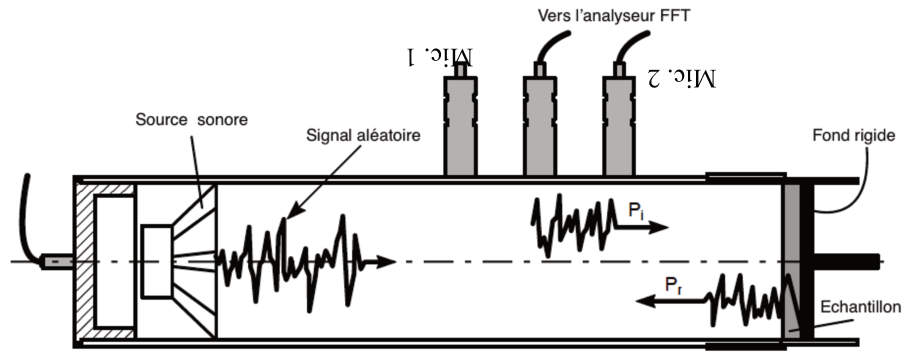


Figure A. 2 - Principe de mesure 2 microphones[60].

Un haut parleur placé en bout du tube d'impédance génère un bruit blanc sur une plage de fréquence allant de 50 à 6400 Hz. Les énergies incidente et réfléchie sont déterminées par la relation entre la pression acoustique mesurée par les microphones en deux positions du tube (*cf.* Figure A. 2). Cette méthode de mesure est décrite dans la norme ISO 10534-2 [61]. Le tube d'impédance utilisé permet la détermination du coefficient d'absorption sur deux plages de fréquences en fonction du diamètre des échantillons. Ainsi, pour une mesure sur la plage de fréquence 50-1600 Hz les échantillons ont un diamètre de 100 mm et pour la plage 500-6400 Hz un diamètre de 29 mm.

La mesure des pressions incidente et réfléchie permet le calcul de la réponse en fréquence H_1 , la réponse en fréquence associée à la pression incidente H_i et celle associée à la pression réfléchie H_r . En utilisant ces valeurs, il est possible de calculer le coefficient de réflexion :

$$R = \left(\frac{H_1 - H_i}{H_r - H_1} \right) e^{j2k(l+s)}, \quad (\text{A1.1})$$

où l est la distance entre le premier microphone (Mic. 1) et la face avant de l'échantillon en mm, et s est l'espacement entre les deux microphones en mm. Les relations données dans les équations (1.5) et (1.6) permettent d'en déduire α et Z .

Le tube d'impédance permet également de mesurer l'indice d'affaiblissement acoustique sous onde incidente normale par la fonction transfert à quatre microphones. Cette méthode est détaillée dans le standard international ASTM E2611-09. Le principe repose sur

la mesure des pressions acoustiques en quatre positions du tube d'impédance. On considère alors deux pressions acoustiques complexes, une avant l'échantillon (P_{up}) et une après l'échantillon (P_{down}). Comme représenté sur la Figure A. 3, ces pressions sont fonctions des amplitudes complexes A, B, C et D :

$$P_{up} = Ae^{-jkx} + Be^{jkx}, \quad (A1.2)$$

$$P_{down} = Ce^{-jkx} + De^{jkx}, \quad (A1.3)$$

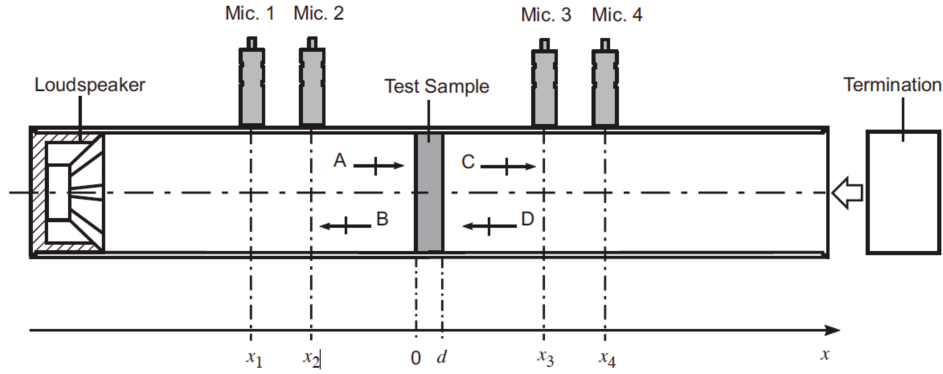


Figure A. 3 - Principe de mesure de l'indice d'affaiblissement acoustique normal (TL_n) en tube d'impédance [60].

Comme précédemment, le haut-parleur génère un signal aléatoire sur une plage de fréquences allant de 50 à 6400 Hz. Les pressions en chaque microphone sont mesurées simultanément. Les coefficients A à B peuvent être estimés par les relations suivantes [62] :

$$A = \sqrt{G_{rr}} \frac{j(H_{1r}e^{jkx_2} - H_{2r}e^{jkx_1})}{2 \sin k(x_1 - x_2)}, \quad (A1.4)$$

$$B = \sqrt{G_{rr}} \frac{j(H_{2r}e^{-jkx_1} - H_{1r}e^{-jkx_2})}{2 \sin k(x_1 - x_2)}, \quad (A1.5)$$

$$C = \sqrt{G_{rr}} \frac{j(H_{3r}e^{jkx_4} - H_{4r}e^{jkx_3})}{2 \sin k(x_3 - x_4)}, \quad (A1.6)$$

$$D = \sqrt{G_{rr}} \frac{j(H_{4r}e^{-jkx_3} - H_{3r}e^{-jkx_4})}{2 \sin k(x_3 - x_4)}, \quad (A1.7)$$

où H_{ir} est la réponse en fréquence entre les pressions acoustiques complexes (P_i) et le signal de référence provenant du haut-parleur (r). G_{rr} est l'auto-spectre du signal de référence.

Une fois les amplitudes connues il est possible de calculer les pressions acoustiques et les vitesses d'écoulement de chaque côté de l'échantillon, à $x = 0$ et $x = d$ [63]:

$$P|_{x=0} = A + B, \quad (\text{A1.8})$$

$$V|_{x=0} = \frac{A - B}{\rho_0 c}, \quad (\text{A1.9})$$

$$P|_{x=d} = C e^{-jkd} + D e^{jkd}, \quad (\text{A1.10})$$

$$V|_{x=d} = \frac{C e^{-jkd} - D e^{jkd}}{\rho_0 c}, \quad (\text{A1.11})$$

ρ_0 étant la densité de l'air et c sa célérité.

La propagation à travers l'échantillon peut être décrite par la matrice de transfert [62] :

$$\begin{bmatrix} P \\ V \end{bmatrix}_{x=0} = \begin{bmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} P \\ V \end{bmatrix}_{x=d}. \quad (\text{A1.12})$$

La résolution de ce système dépend de la nature de l'échantillon. Pour un échantillon symétrique (les coefficients de réflexion sont identiques des deux côtés) et réciproque, les considérations suivantes sont prises en compte [64]:

$$T_{11} = T_{22}, \quad (\text{A1.13})$$

$$T_{11}T_{22} - T_{12}T_{21} = 1. \quad (\text{A1.14})$$

Dans le cas d'un échantillon non homogène, il est nécessaire d'effectuer deux mesures avec deux terminaisons de tube différentes (*cf.* Figure A. 3). Les exposants f et o indiquant la mesure avec la terminaison fermée ou ouverte, le système est alors décrit par [65] :

$$\begin{bmatrix} P^f & P^o \\ V^f & V^o \end{bmatrix}_{x=0} = \begin{bmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} P^f & P^o \\ V^f & V^o \end{bmatrix}_{x=d}. \quad (\text{A1.15})$$

Une transformation de la matrice en fonction des amplitudes complexes A à D obtenues par les deux mesures [65] :

$$\begin{bmatrix} A^f & A^o \\ B^f & B^o \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_{11} & a_{12} \\ a_{21} & a_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C^f & C^o \\ D^f & D^o \end{bmatrix}. \quad (\text{A1.16})$$

On en déduit l'indice d'affaiblissement normal TL_N :

$$TL_N = 20 \log_{10}(a_{11}) = 20 \log_{10} \left(\frac{A^f D^o - A^o D^f}{C^f D^o - C^o D^f} \right). \quad (\text{A1.17})$$

Le tube d'impédance permet mesurer l'absorption et l'indice d'affaiblissement acoustique. L'avantage du tube d'impédance est qu'il se contente d'échantillons de petite taille. Celle-ci dépend de la plage de fréquence visée. L'hypothèse de base de la mesure en tube d'impédance étant que le haut parleur engendre uniquement des ondes planes dans le tube. La fréquence maximale (f_{max}) sera dépendante du diamètre de l'échantillon (d) et donnée par le relation $f_{max} = c/2d$, où c est la célérité de l'air.

A.1.2. Autres méthodes

A.1.2.1. La chambre réverbérante

Dans le bâtiment, les matériaux isolants sont généralement soumis à des ondes incidentes provenant de multiples directions. La mesure la plus rapide et la plus précise permettant de déterminer le coefficient d'absorption en champ diffus est la mesure en chambre réverbérante. Cette dernière est une pièce dont les parois sont parfaitement réfléchissantes dans le but de renvoyer les ondes acoustiques dans toutes les directions.

Le coefficient d'absorption en champ diffus est le paramètre le plus utilisé dans la conception des salles, il permet d'avoir une indication sur la performance acoustique des

parois. Cette méthode ne permet cependant pas de mesurer l'impédance du matériau et requiert des échantillons de grande taille ainsi qu'une pièce de test dédiée.

A.1.2.2. La chambre anéchoïque

À l'inverse de la chambre réverbérante, la mesure en chambre anéchoïque va permettre de définir le coefficient d'absorption et l'impédance du matériau soumis à une onde incidente oblique. Les parois de la chambre étant parfaitement absorbantes le microphone ne mesure que les ondes directes et réfléchies à la surface du matériau. La Figure A. 4 [65] montre le principe de mesure pour un matériau homogène plat. Un haut-parleur émet une onde acoustique selon un angle ψ par rapport à l'axe z , l'onde réfléchi est mesurée par les microphones 1 et 2 respectivement en position z_1 et z_2 .

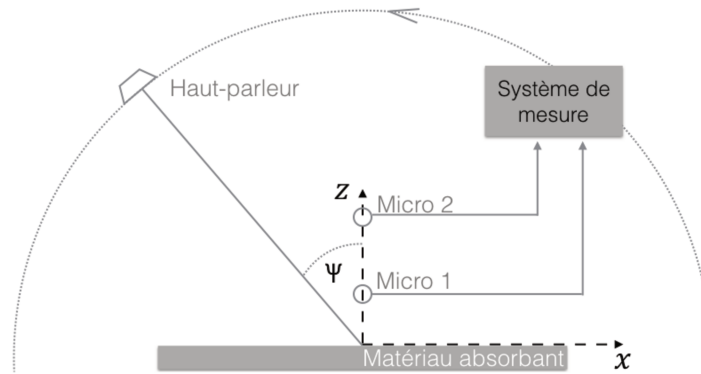


Figure A. 4 - Principe de mesure en chambre anéchoïde.

En considérant que les microphones 1 et 2 ont les mêmes coordonnées en x et y , le coefficient de réflexion pour une onde incidente d'angle ψ peut être déterminé par :

$$R = \frac{H_{12}e^{jkz_1 \cos \psi} - e^{jkz_2 \cos \psi}}{e^{-jkz_2 \cos \psi} - H_{12}e^{-jkz_1 \cos \psi}}, \quad (\text{A1.18})$$

où k est la longueur d'onde, z_1 et z_2 les distances respectives entre le matériau absorbant et les microphones 1 et 2, la fonction transfert H_{12} est le rapport des pressions, $H_{12} = p(z_1)/p(z_2)$.

Le coefficient d'absorption et l'impédance caractéristique relatifs à l'onde incidente oblique sont calculés en utilisant les équations (1.5) et (1.6).

Cette méthode nécessite des échantillons de plusieurs m^2 . De plus petits échantillons peuvent être caractérisés mais l'interprétation des résultats est plus compliquée.

Références bibliographiques

- [1] X. Yang, Y. Wang, et H. Yu, “Sound Performance of Multilayered Composites,” *Materials and Manufacturing Processes*, vol. 22, no 6, p. 721-725, 2007.
- [2] W. Chen, S. Liu, L. Tong, et S. Li, “Design of multi-layered porous fibrous metals for optimal sound absorption in the low frequency range,” *Theoretical and Applied Mechanics Letters*, vol. 6, no 1, p. 42-48, 2016.
- [3] X. Olny et C. Boutin, “Acoustic wave propagation in double porosity media,” *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 114, no 1, p. 73, 2003.
- [4] H. Ke, Y. Donghui, H. Siyuan, et H. Deping, “Acoustic absorption properties of open-cell Al alloy foams with graded pore size,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 44, no 36, p. 365405, 2011.
- [5] J.-P. Groby, C. Lagarrigue, B. Brouard, O. Dazel, V. Tournat, et B. Nennig, “Enhancing the absorption properties of acoustic porous plates by periodically embedding Helmholtz resonators,” *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 137, no 1, p. 273–280, 2015.
- [6] C. Lagarrigue, J. P. Groby, V. Tournat, O. Dazel, et O. Umnova, “Absorption of sound by porous layers with embedded periodic arrays of resonant inclusions,” *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 134, no 6, p. 4670–4680, 2013.
- [7] O. Doutres and N. Atalla, “Sound absorption properties of functionally graded polyurethane foam,” *Proceedings of Internoise 2012, New-York city, USA*, vol. 2012, pp. 679–688, 2012.
- [8] S. Mahasaranon, K. V. Horoshenkov, A. Khan, et H. Benkreira, « The effect of continuous pore stratification on the acoustic absorption in open cell foams », *Journal of Applied Physics*, vol. 111, n° 8, p. 084901, avr. 2012.
- [9] C. J. Sacristan *et al.*, « A mixture approach to the acoustic properties of a macroscopically inhomogeneous porous aluminum in the equivalent fluid approximation », *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 140, n° 4, p. 2847-2855, oct. 2016.

- [10] L. Gynther, B. Lapillone, et K. Pollier, « Energy efficiency trends and policies in the household and tertiary sectors », *An analysis based on the ODYSSEE and MURE databases*, 2015.
- [11] “Analyse bibliographique des travaux français et européens : le coût social des pollutions sonores,” *ADEME*, 2016.
- [12] S. Schiavoni, F. D'Alessandro, F. Bianchi, and F. Asdrubali, “Insulation materials for the building sector: A review and comparative analysis,” *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 62, pp. 988–1011, 2016.
- [13] O. Jolliet, M. Saadé, et P. Crettaz, *Analyse du cycle de vie: comprendre et réaliser un écobilan*. PPUR Presses polytechniques, 2010.
- [14] F. Asdrubali, S. Schiavoni, et K. V. Horoshenkov, “A review of sustainable materials for acoustic applications,” *Building Acoustics*, vol. 19, no 4, p. 283–311, 2012.
- [15] P. Glé, E. Gourdon, et L. Arnaud, “Evolution des paramètres acoustiques des bétons de chanvre sous l’effet du compactage,” *présenté à 20ème Congrès Français de Mécanique*, 2011.
- [16] H. Benkreira, A. Khan, et K. V. Horoshenkov, “Sustainable acoustic and thermal insulation materials from elastomeric waste residues,” *Chemical Engineering Science*, vol. 66, no 18, p. 4157-4171, 2011.
- [17] P. Glé, *Acoustique des matériaux du bâtiment à base de fibres et particules végétales-outils de caractérisation, modélisation et optimisation*, Thèse de doctorat, INSA de Lyon, 2013.
- [18] S. Léwy, *Acoustique industrielle et aéroacoustique*. Hermès science publications, 2001.
- [19] J. Allard et N. Atalla, *Propagation of Sound in Porous Media: Modelling Sound Absorbing Materials 2e*. John Wiley & Sons, 2009.
- [20] C.-A. Roulet, *Éco-confort: pour une maison saine et à basse consommation d’énergie*. PPUR Presses polytechniques, 2012.
- [21] J. Rouquerol et al., “Recommendations for the characterization of porous solids (Technical Report),” *Pure and Applied Chemistry*, vol. 66, no 8, 1994.
- [22] F. Asdrubali et K. V. Horoshenkov, “The acoustic properties of expanded clay granulates,” *Building Acoustics*, vol. 9, no 2, p. 85–98, 2002.

- [23] J. P. Arenas et M. J. Crocker, "Recent trends in porous sound-absorbing materials," *Sound & vibration*, vol. 44, no 7, p. 12–18, 2010.
- [24] D. N.-S. Hon et N. Shiraishi, *Wood and Cellulosic Chemistry, Second Edition, Revised, and Expanded*. CRC Press, 2000.
- [25] H. Tran et E. K. Vakkilainen, "The kraft chemical recovery process," *Tappi*, 2008.
- [26] C. Chirat, "Les bioraffineries lignocellulosiques : une opportunité pour l'industrie chimique," *l'actualité chimique*, n°378-379, 2013.
- [27] M. C. B. de Figueirêdo, M. de F. Rosa, C. M. L. Ugaya, M. de S. M. de Souza Filho, A. C. C. da Silva Braid, et L. F. L. de Melo, "Life cycle assessment of cellulose nanowhiskers," *Journal of Cleaner Production*, vol. 35, p. 130-139, 2012.
- [28] M. Descamps, T. Duhoo, F. Monchau, J. Lu, P. Hardouin, J. C. Hornez, A. Leriche, "Manufacture of macroporous β -tricalcium phosphate bioceramics," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 28, no 1, p. 149-157, 2008.
- [29] N. Joly, *Synthèse et caractérisation de nouveaux films plastiques obtenus par acylation et réticulation de la cellulose*, Thèse de doctorat, Université de Limoges, 2003.
- [30] R. Verdejo et al., "Enhanced acoustic damping in flexible polyurethane foams filled with carbon nanotubes," *Composites Science and Technology*, vol. 69, no 10, p. 1564-1569, 2009.
- [31] B. Brouard, B. Castagnède, M. Henry, D. Lafarge and S. Sahraoui, "Mesure des propriétés acoustiques des matériaux poreux," *Techniques de l'ingénieur*, vol. 6120, 2003.
- [32] D. Lafarge, P. Lemarinier, J. F. Allard, et V. Tarnow, "Dynamic compressibility of air in porous structures at audible frequencies," *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 102, no 4, p. 1995-2006, 1997.
- [33] O. Doutres, Y. Salissou, N. Atalla, et R. Panneton, "Evaluation of the acoustic and non-acoustic properties of sound absorbing materials using a three-microphone impedance tube", *Applied Acoustics*, vol. 71, no 6, p. 506-509, 2010.

- [34] Y. Atalla et R. Panneton, “Inverse acoustical characterization of open cell porous media using impedance tube measurements,” *Canadian Acoustics*, vol. 33, no 1, p. 11–24, 2005.
- [35] X. Olney and R. Panneton, “Acoustical determination of the parameters governing thermal dissipation in porous media,” *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 123, no. 2, pp. 814–824, Feb. 2008.
- [36] C. Zwikker et C. W. Kosten, *Sound absorbing materials*. Elsevier Publishing Company, 1949.
- [37] L. Jaouen, F.-X. Bécot, F. Chevillotte, P. Bonfiglio, and K. Horoshenkov, “The acoustic characterization of porous media and its standards,” *Proceedings of Internoise 2016, Hamburg*, 2016.
- [38] D. L. Johnson, J. Koplik, et R. Dashen, “Theory of dynamic permeability and tortuosity in fluid-saturated porous media,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 176, no 1, p. 379, 1987.
- [39] Y. Champoux et J. Allard, “Dynamic tortuosity and bulk modulus in air-saturated porous media,” *Journal of Applied Physics*, vol. 70, no 4, p. 1975-1979, 1991.
- [40] F.-X. Bécot, O. Dazel, et L. Jaouen, “Modélisation analytique des effets structuraux dans les matériaux acoustiques à double porosité,” *Présenté au 10ème Congrès Français d’Acoustique, Lyon, France*, 2010.
- [41] D. Pilon, R. Panneton, et F. Sgard, « Behavioral criterion quantifying the edge-constrained effects on foams in the standing wave tube », *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 114, n° 4, p. 1980-1987, oct. 2003.
- [42] Kistler et Stephens, Samuel, “Coherent Expanded Aerogels and Jellies,” *Nature*, vol. 127, p. 741, 1931.
- [43] A. Soleimani Dorcheh et M. H. Abbasi, “Silica aerogel; synthesis, properties and characterization,” *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 199, no 1-3, p. 10-26, 2008.
- [44] M. Ibrahim, P. H. Biwole, P. Achard, et E. Wurtz, “Aerogel-Based Materials for Improving the Building Envelope’s Thermal Behavior: A Brief Review with a Focus on

- a New Aerogel-Based Rendering,” in *Energy Sustainability Through Green Energy*, A. Sharma et S. K. Kar, Éd. New Delhi: Springer India, 2015, p. 163-188.
- [45] Spaceloft® Data Sheet. Aspen Aerogels Inc., 2016.
- [46] M. Ibrahim, P. H. Biwolé, P. Achard, E. Wurtz, et G. Ansart, “Building envelope with a new aerogel-based insulating rendering: Experimental and numerical study, cost analysis, and thickness optimization,” *Applied Energy*, vol. 159, p. 490-501, 2015.
- [47] Y. Huang et J. Niu, “Application of super-insulating translucent silica aerogel glazing system on commercial building envelope of humid subtropical climates – Impact on space cooling load,” *Energy*, vol. 83, p. 316-325, 2015.
- [48] M. Reim et al., “Highly insulating aerogel glazing for solar energy usage,” *Solar Energy*, vol. 72, no 1, p. 21–29, 2002.
- [49] J. Schultz, K. Jensen, et F. Kristiansen, “Super insulating aerogel glazing,” *Solar Energy Materials and Solar Cells*, vol. 89, no 2-3, p. 275-285, 2005.
- [50] N. Lolli et I. Andresen, “Aerogel vs. argon insulation in windows: A greenhouse gas emissions analysis,” *Building and Environment*, vol. 101, p. 64-76, 2016.
- [51] F. Torgal, S. Jalali, J. A. Labrincha, et V. M. John, *Eco-efficient concrete*. Woodhead Publishing, 2013.
- [52] M. Koebel, A. Rigacci, et P. Achard, « Aerogel-based thermal superinsulation: an overview », *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, vol. 63, n° 3, p. 315-339, sept. 2012.
- [53] L. Forest, V. Gibiat, et A. Hooley, “Impedance matching and acoustic absorption in granular layers of silica aerogels,” *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 285, no 1-3, p. 230-235, 2001.
- [54] L. Forest, V. Gibiat, et T. Woignier, “Biot’s theory of acoustic propagation in porous media applied to aerogels and alcogels,” *Journal of Non-Crystalline Solids*, p. 287-292, 1998.
- [55] M. D. Guild, V. M. García-Chocano, J. Sánchez-Dehesa, T. P. Martin, D. C. Calvo, et G. J. Orris, “On the use of aerogel as a soft acoustic metamaterial for airborne sound,” *Physical Review Applied*, vol. 5, n° 3, p. 034012, 2015.

- [56] M. Gronauer et J. Fricke, “Acoustic Properties of Microporous SiO₂-Aerogel,” *Acta Acustica United with Acustica*, vol.59, n°3, p. 177-181, 1986.
- [57] F. Cotana, A. L. Pisello, E. Moretti, et C. Buratti, “Multipurpose characterization of glazing systems with silica aerogel: In-field experimental analysis of thermal-energy, lighting and acoustic performance,” *Building and Environment*, vol. 81, p. 92-102, 2014.
- [58] A. Geslain, J. P. Groby, O. Dazel, S. Mahasranon, K. V. Horoshenkov, et A. Khan, « An application of the Peano series expansion to predict sound propagation in materials with continuous pore stratification », *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 132, n° 1, p. 208–215, 2012.
- [59] N. Atalla, C. K. Amédin, R. Panneton, et F. Sgard, *Étude numérique et expérimentale de l'absorption acoustique et de la transparence acoustique des matériaux poreux hétérogènes en basses fréquences dans le but d'identifier des solutions à fort potentiel d'applicabilité*, Montréal: Institut de recherche Robert-Sauvé en santé et en sécurité du travail du Québec, 2001.
- [60] Bruel & Kjaer, *Impedance/Transmission Loss Measurement Tubes Type 4206*. Bruël & Kjaer user manual, 2004.
- [61] *NF EN ISO 10534-2 - Acoustique - Détermination du facteur d'absorption acoustique et de l'impédance des tubes d'impédance - Partie 2 : méthode de la fonction transfert*, Librairie Lavoisier.
- [62] J. S. Bolton, T. Yoo, et O. Olivieri, *Transmission Loss Measurements in a Standing Wave Tube*, Bruël & Kjaer Technical Review, n°1, 2007.
- [63] J. S. Bolton et K. Hou, “A Transfer Matrix Method for Estimating the Dispersion and Attenuation of Plane Waves in a Standing Wave Tube,” *Journal of the Acoustical Society of America*, 2009.
- [64] B. H. Song et J. S. Bolton, “A transfer-matrix approach for estimating the characteristic impedance and wave numbers of limp and rigid porous materials,” *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 107, no 3, p. 1131–1152, 2000.
- [65] T. J. Cox and P. D'Antonio, *Acoustic Absorbers and Diffusers: Theory, Design and Application*. CRC Press, 2009.