

Un modèle diphasique self-consistant pour la propagation du son dans des solutions concentrées de particules rigides.

Michaël Baudoin^{1,2}, Jean-Louis Thomas¹, François Coulouvrat² & Daniel Lhuillier²

¹ Institut des NanoSciences de Paris, UMR CNRS, 7588, Université Pierre et Marie Curie, 140 rue de Lourmel, 75015 Paris France

² Institut Jean le Rond d'Alembert, UMR CNRS 7190, Université Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05, France

Résumé :

Un modèle diphasique self-consistant est proposé pour modéliser la propagation du son dans des suspensions de particules rigides concentrées (en régime grande longueur d'onde) et ainsi tenir compte des effets de diffusion multiple. A partir des équations locales, des équations moyennes sont écrites pour chaque phase et la fermeture est obtenue à l'aide d'un schéma self-consistant initialement développé par Buyevich & Shchelchkova [Prog. Aerospace Sci., 1978] pour des écoulements incompressibles. Ainsi, les interactions entre les particules sont prises en compte à tous les ordres. De plus, les corrélations de position, c'est à dire la modification de la répartition des particules induite par leur non-recouvrement, ont également été incluses dans la modélisation de manière simplifiée. Au final, l'introduction de ces effets permet d'obtenir des courbes d'atténuation et de dispersion très proches des courbes expérimentales obtenues par Hipp et al. [Langmuir, 2002] pour des nanoparticules de silice dans de l'eau, avec des fractions volumiques allant jusqu'à 30% et une gamme de fréquence comprise entre 1 et 100 MHz.

Abstract :

A self-consistent coupled phase theory is proposed to study the propagation of acoustic waves in concentrated suspensions of rigid particles in the long wavelength regime. Rigorous ensemble averaged equations are derived for each phase and closure is achieved by introducing a self-consistent scheme initially developed by Buyevich & Shchelchkova [Prog. Aerospace Sci., 1978] in the case of incompressible flows. With this model, mutual interactions of group of spheres are taken into account at all orders. Moreover the correlations of particles in position, that is to say the modification of particles repartition due to their non-overlapping property, have been integrated in a simple way. The introduction of these effects in the theory allows us to obtain a close agreement of the calculated attenuation with experimental data by Hipp et al. [Langmuir, 2002] in colloidal suspensions of silica in water for volume fraction up to 30% and frequency range between 1 et 100 MHz.

Mots-clefs :

acoustique - diffusion multiple - self-consistant

1 Introduction

De nombreux phénomènes peuvent être à l'origine de l'atténuation et de la dispersion du son dans les suspensions selon la nature des particules, du fluide et la gamme de fréquences considérée. On peut notamment distinguer les mécanismes de diffusion qui correspondent à une redirection géométrique de l'onde incidente, et les phénomènes dissipatifs, c'est à dire les pertes visqueuses et thermiques. Dans cet exposé nous nous intéresserons à la propagation dans des solutions de nanoparticules rigides pour lesquelles les phénomènes visco-inertiels dominant [7]. Dans ce cas la diffusion dipolaire de l'onde induite par le mouvement différentiel entre la phase dispersée et la phase continue est couplée à la dissipation visqueuse correspondant au freinage de ce mouvement.

Si la propagation dans les suspensions diluées est relativement bien modélisée, les phénomènes d'interactions entre les particules apparaissant dans les suspensions concentrées font l'objet de nombreux travaux. Certains auteurs utilisent la théorie de la diffusion multiple [5, 8] pour tenir compte des boucles de diffusion. D'autres se basent sur des modèles empiriques [4, 9] pour intégrer les interactions visqueuses. Dans cet exposé, nous montrerons comment la théorie du milieu effectif self-consistante développée par Buyevitch [3, 2] pour les écoulements incompressibles peut être étendue à la propagation des ondes acoustiques. Celle-ci permet alors de tenir compte de tous les ordres d'interactions, contrairement à la théorie de la diffusion multiple qui reste limitée aux concentrations plus faibles.

Les résultats obtenus à l'aide de cette méthode seront comparés aux résultats précédemment obtenus lorsque les interactions sont négligées, et aux expériences réalisées par Hipp *et al.* [6] dans des solutions de nanoparticules de silice. Enfin nous montrerons l'importance des corrélations de position, lorsque la présence d'une particule en un point modifie la répartition de ses voisines. Celles-ci peuvent être négligées en hydrodynamique pour des concentrations allant jusqu'à 25% mais se révèlent fondamentales pour la propagation des ondes acoustiques à certaines fréquences.

2 Equations diphasiques moyennées

A partir des équations locales, et en introduisant la fonction de présence :

$$\chi_k(\mathbf{x}, t) = \begin{cases} 1 & \text{si } \mathbf{x} \text{ est dans la phase } k \text{ à l'instant } t \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (1)$$

et une moyenne statistique notée $\langle \rangle$, des équations moyennes de conservation de la masse et de la quantité de mouvement peuvent être dérivées pour chaque phase. Dans la suite les champs locaux seront notés G' , les moyennes phasiques d'un champ $G_k = \langle G' \rangle_k / \langle \chi_k \rangle$ et les fluctuations autour de la moyenne $G'' = G' - \langle G' \rangle$ avec $k = c$ dans la phase continue (le fluide) et d dans la phase dispersée (les particules).

Si ces fluctuations sont négligées ainsi que la force de pesanteur et les effets de tension de surface, les équations moyennes prennent la forme :

conservation de la masse :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_c \rho_c) + \text{div}(\alpha_c \rho_c \mathbf{v}_c) = 0 \quad (2)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_d \rho_d) + \text{div}(\alpha_d \rho_d \mathbf{v}_d) = 0 \quad (3)$$

conservation de la quantité de mouvement :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_c \rho_c \mathbf{v}_c) + \text{div}(\alpha_c \rho_c \mathbf{v}_c \otimes \mathbf{v}_c) = \text{div}(\mathbf{\Pi}) - \mathbf{F} \quad (4)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_d \rho_d \mathbf{v}_d) + \text{div}(\alpha_d \rho_d \mathbf{v}_d \otimes \mathbf{v}_d) = \mathbf{F} \quad (5)$$

où les expressions du tenseur des contraintes effectif $\mathbf{\Pi} = \langle \mathbf{\Pi}' \rangle$ et de la force effective \mathbf{F} sont données par :

$$\mathbf{\Pi} = -\alpha_c p_c \mathbf{I} + 2\mu_c \mathbf{D} + \lambda_c \text{div}(\mathbf{v}) \mathbf{I} + \langle \chi_d \mathbf{\Pi}' \rangle \quad (6)$$

$$\mathbf{F} = \langle \chi_d \text{div}(\mathbf{\Pi}') \rangle \quad (7)$$

Dans ces équations, $\alpha_k = \langle \chi_k \rangle$, ρ_k et \mathbf{v}_k désignent (respectivement) la fraction volumique, la masse volumique, et la vitesse moyenne de la phase k , p_c , μ_c et λ_c la pression moyenne, la viscosité de cisaillement et la viscosité de volume de la phase continue et enfin $\mathbf{v} = \alpha_c \mathbf{v}_c + \alpha_d \mathbf{v}_d$ et $\mathbf{D} = 1/2(\nabla \mathbf{v} + \nabla^t \mathbf{v})$ les vitesse et tenseur des taux de déformation moyens de la solution.

Pour fermer le problème il reste donc à exprimer $\langle \chi_d \mathbf{\Pi}' \rangle$ et $\langle \chi_d \text{div}(\mathbf{\Pi}') \rangle$ en fonction des grandeurs moyennes.

3 Fermeture du modèle et méthode self-consistante

Une première étape consiste à exprimer ces tenseurs en fonction de quantités calculées pour une particule test (cf Buyevitch et Shchelchkova [3]) :

$$\mathbf{F} = \langle \chi_d \text{div}(\mathbf{\Pi}') \rangle \approx \frac{3\alpha_d}{4\pi a^3} \oint \langle \mathbf{\Pi}' \rangle_{\mathbf{x}} \cdot \mathbf{n} dS \quad (8)$$

$$\langle \chi_d \mathbf{\Pi}' \rangle \approx \frac{3\alpha_d}{4\pi a^3} \oint^{(s)} \mathbf{a} \otimes (\mathbf{n} \cdot \langle \mathbf{\Pi}' \rangle_{\mathbf{x}}) dS \quad (9)$$

où $\langle \rangle_{\mathbf{x}'}$ désigne la moyenne statistique d'un champ local conditionnée par la présence d'une particule en \mathbf{x}' . L'équation (8) montre que \mathbf{F} est bien la force appliquée sur une particule test positionnée en \mathbf{x}' par un milieu effectif dont les propriétés diffèrent de celles du liquide pur car il inclue l'influence des autres particules. La deuxième équation de fermeture est obtenue en supposant qu'aucun moment externe n'agit sur les particules et que l'inertie en rotation des particules peut être négligée (ce qui est le cas en acoustique pour le type de solutions considérées).

Pour calculer ces quantités, il faudrait donc disposer d'équations régissant l'évolution des champs conditionnels. Les mêmes équations peuvent être obtenues pour les champs conditionnels que pour les champs moyens mais cette fois-ci, les équations de fermeture vont s'exprimer en fonction des champs moyens conditionnés par la connaissance des positions de deux particules $\langle \rangle_{\mathbf{x}', \mathbf{x}''}$:

$$\mathbf{F}_{\mathbf{x}'} = \int_{\mathbf{x}''} \int_{|\mathbf{x}-\mathbf{x}'| \leq a} n(t, \mathbf{x}', \mathbf{x}'') \langle \text{div}(\mathbf{\Pi}') \rangle_{\mathbf{x}', \mathbf{x}''} d\mathbf{x}' d\mathbf{x}''$$

$$\langle \chi_d \mathbf{\Pi}' \rangle_{\mathbf{x}'} = \int_{\mathbf{x}''} \int_{|\mathbf{x}-\mathbf{x}'| \leq a} n(t, \mathbf{x}', \mathbf{x}'') \langle \langle \mathbf{\Pi}' \rangle \rangle_{\mathbf{x}', \mathbf{x}''} d\mathbf{x}' d\mathbf{x}''$$

On pourrait de même calculer les équations d'évolution de ces champs moyens conditionnés par la position de deux particules et ainsi de suite ... On obtiendrait ainsi ainsi une hiérarchie infinie d'équations inter-dépendantes, similaire à celles rencontrées dans de nombreux domaines de la physique (physique des liquides, turbulence, théorie de la diffusion multiple). Ainsi se pose le problème de fermeture efficace de cette hiérarchie. La fermeture classique dans les modèles diphasiques consiste à tronquer cette hiérarchie au premier ordre, c'est à dire à calculer \mathbf{F} et $\langle \chi_d \text{div}(\mathbf{\Pi}') \rangle$ dans le liquide pur, avec pour condition aux limites les champs moyens conditionnels tendent vers les champs moyens $\langle G' \rangle_{\mathbf{x}'} \rightarrow \langle G' \rangle$ lorsque l'on s'éloigne de la particule test. Cette condition traduit tout simplement le fait que l'influence de la particule test disparaît lorsque l'on s'éloigne suffisamment de celle-ci. Cette fermeture au premier ordre néglige les interactions dans les groupes de deux particules ou plus mais permet tout de même de tenir compte du premier ordre de la diffusion multiple au sens de Foldy [5]. Une fermeture à

l'ordre suivant permettrait d'intégrer les interactions de paires mais négligerait les interactions d'ordre supérieur ...

Pour fermer le problème, Buyevitch a développé une approche originale qui permet de tenir compte de tous les ordres de la hiérarchie. Sa théorie repose sur le fait qu'avec la méthode précédente, on aboutit à des propriétés effectives de la suspension sous forme de développement de Taylor en puissance de la fraction volumique et dont l'ordre du polynôme est égal à l'ordre de troncature de la hiérarchie. Pour pouvoir fermer le problème, Buyevich [3] suppose que les particules baignent directement dans le milieu effectif final (qui tient compte de tous les ordres de la hiérarchie) défini par une viscosité effective μ_{eff} et deux masses volumiques effectives ρ_{eff1} et ρ_{eff2} associées respectivement aux phénomènes d'inertie et au changement de référentiel (lorsque l'on se place dans le référentiel de la particule) pour calculer les expressions des termes à fermer. Dans le cas incompressible, il obtient ainsi les expressions des intégrales (8) et (9) dans le milieu effectif.

$$\mathbf{F} = m_1^*(\mathbf{V}_c - \mathbf{V}_d) + m_2^*\Delta\mathbf{V}_c + m_3^*\nabla\Psi \quad (10)$$

$$\text{div} \langle \chi_d \mathbf{\Pi}' \rangle = -\nabla(\alpha_d p_c) + m_0^*\Delta\mathbf{V}_c \quad (11)$$

où \mathbf{V}_c et \mathbf{V}_d sont les vitesses dans le référentiel lié aux particules et $\Psi = \mathbf{x} \cdot \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{v}_d$

$$m_0^* = \frac{5\alpha_{do}\mu_{\text{eff}} \exp(\beta)}{2(1 + \beta)} \quad (12)$$

$$m_1^* = \frac{9\alpha_{do}}{2a^2}(1 + \beta + \beta^2/3)\mu_{\text{eff}} \quad (13)$$

$$m_2^* = \frac{9\alpha_{do}}{2\beta^2}(\exp(\beta) - (1 + \beta + \beta^2/3))\mu_{\text{eff}} \quad (14)$$

$$m_3^* = \alpha_{do}\rho_{\text{eff2}} \quad (15)$$

$$\text{et : } \beta^2 = -(i\omega)\rho_{\text{eff1}}a^2/\mu_{\text{eff}} \quad (16)$$

Le calcul de \mathbf{F} est tout simplement le calcul de la force qui s'exerce sur une sphère en mouvement plongée dans un champ de vitesse instationnaire et non-uniforme [1]. Dans cette expression, $m_1^*(\mathbf{V}_c - \mathbf{V}_d)$ correspond à la somme du terme de Stokes, de la force de Basset et des forces d'inertie, $m_2^*\Delta\mathbf{V}_c$ est la correction d'Oseen due à la non-uniformité du champ de vitesse et $m_3^*\nabla\Psi$ est induit par l'accélération de la particule. Le calcul de $\text{div} \langle \chi_d \mathbf{\Pi}' \rangle$ moins classique peut être trouvé dans des articles de Buyevich [1] [2].

Cependant à ce stade les propriétés effectives restent inconnues. Néanmoins en remplaçant les expressions des équations de fermeture obtenues ainsi (10) (11) dans les équations moyennes (2) à (5) simplifiées dans le cas incompressible et écrites pour les champs conditionnels, et en les combinant dans le but d'obtenir des équations pour le milieu effectif similaires à celle d'un milieu pur, c'est à dire sous la forme :

$$\text{div}(\mathbf{V}_{c,\mathbf{x}'}) = 0 \quad (17)$$

$$-\rho_{\text{eff1}}(i\omega)\mathbf{V}_{c,\mathbf{x}'} = -\nabla p_{c,\mathbf{x}'} + \mu_{\text{eff}}\Delta\mathbf{V}_{c,\mathbf{x}'} - \rho_{\text{eff2}}\nabla\Psi \quad (18)$$

(où l'indice \mathbf{x}' signifie que le champ considéré est le champ conditionnel lié à la présence d'une particule en \mathbf{x}') on peut déterminer l'expression des propriétés effectives du milieu en fonction

des coefficients m_k^*

$$\rho_{\text{eff1}} = \alpha_{co}\rho_{co} + \frac{\alpha_{do}\rho_{do}m_1^*}{m_1^* - i\omega\alpha_{do}\rho_{do}} \quad (19)$$

$$\mu_{\text{eff}} = \alpha_{co}\mu_c + m_0^* + \frac{\alpha_{do}\rho_{do}i\omega m_2^* + \alpha_{do}\mu_c(m_1^* - i\omega m_2^*\rho_{\text{eff1}}/\mu_{\text{eff}})}{m_1^* - i\omega\alpha_{do}\rho_{do}} \quad (20)$$

$$\rho_{\text{eff2}} = \alpha_{co}\rho_{co} + \alpha_{do}\rho_{do} \frac{m_1^* - m_3^*i\omega}{m_1^* - i\omega\alpha_{do}\rho_{do}} \quad (21)$$

On obtient ainsi un système self-consistant constitué par les équations (12) à (16) et (19) à (21) où les coefficient m_k^* sont exprimés en fonction des propriétés effectives μ_{eff} , ρ_{eff1} , ρ_{eff2} qui elles-mêmes s'expriment en fonction de ces coefficients.

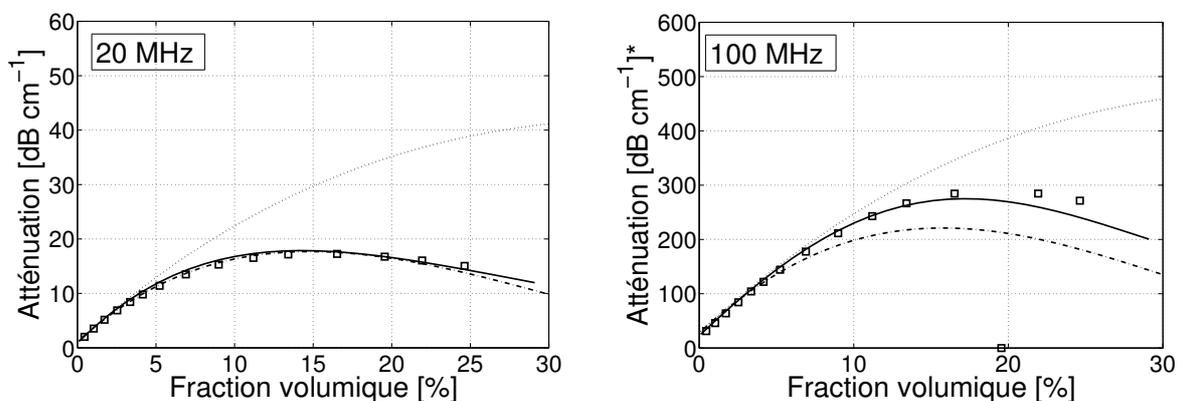
Il faut noter que ces expressions sont obtenues dans le cas où les corrélations de position, c'est à dire la modification de la répartition des particules induite par l'impossibilité que celles-ci se recouvrent, sont négligées. Nous verrons les implications de cette hypothèse lors de la comparaison avec les expériences.

4 Application à la propagation des ondes acoustiques

Pour pouvoir utiliser ces expressions des termes de fermeture (obtenues par Buyevich pour des écoulements incompressibles) dans le cas de la propagation d'ondes acoustiques, nous allons nous placer dans le régime grande longueur d'onde (devant la taille des particules). Ainsi, on peut introduire une distance l autour de la particule telle que $a \ll l \ll \lambda$ et sur laquelle les effets de compressibilité peuvent être négligés. Les expressions des termes de fermeture obtenues par Buyevich peuvent alors être remplacées dans le système d'équation (2) à (5) et celui-ci peut être linéarisé pour l'application aux ondes acoustiques. On peut enfin en déduire une relation de dispersion dans le cas de l'onde plane.

5 Comparaison avec les expériences et importance des corrélations de position

Nous pouvons donc maintenant comparer (cf figures ci-dessous) l'atténuation calculée à l'aide de cette méthode dans une solution de nanoparticules de silice de 56 nm (trait discontinu) avec ceux obtenus avec la théorie diphasique classique (pointillés) et les expériences réalisées par Hipp et al. [6] (carrés). Nous pouvons constater que l'intégration des interactions améliore



nettement les résultats en basse fréquence mais qu'en revanche, cette théorie donne de moins

bons résultats en haute fréquence. Nous avons donc ajouté les corrélations de position dans le modèle (courbe en trait plein). Cette fois-ci les courbes calculées sont très proches des résultats expérimentaux et ce quelle que soit la fréquence. Pour comprendre ce phénomène, il faut noter que si l'on tient compte des corrélations de position, il existe alors une couche d'exclusion de rayon a autour des particules, dans laquelle il ne peut y avoir de centre de particules. Par conséquent, les propriétés de cette couche diffèrent de celles du milieu effectif et se rapprochent de celles du milieu pur. Or pour calculer les termes de fermeture, ce qui est important, c'est la nature du fluide dans la couche limite visqueuse $\delta_v = \sqrt{2\mu_c/\omega\rho_c}$ (où ω désigne la pulsation). En basse fréquence, la couche limite visqueuse est très grande devant la couche d'exclusion et donc celle-ci n'a que peu d'importance. En revanche lorsque la fréquence devient telle que $\delta_v \approx a$, les corrélations de position ne peuvent plus être négligées.

6 Conclusion

L'utilisation de la méthode self-consistante initialement introduite par Buyevich et l'introduction des corrélations de position permet de modéliser correctement la propagation des ondes acoustiques dans des suspensions de particules rigides pour des concentrations relativement élevées. Cette théorie permet en effet d'introduire tous les ordres de diffusion multiple.

7 Remerciements

Les auteurs souhaitent remercier A.K. Hipp, G. Storti et M. Morbidelli (Department of Chemical Engineering, ETH Zürich) pour leur avoir fourni leurs résultats expérimentaux.

Références

- [1] Yu. A. Buyevich and V.G. Markov. Rheology of concentrated mixtures of fluids with small particles. *Appl. Math. Mech. (translation of PMM)*, 36(3) :452–464, 1972.
- [2] Yu.A. Buyevich. Interphase interaction in fine suspension flow. *Chem. Engng Sci.*, 50(4) :641–650, 1995.
- [3] Yu.A. Buyevich and I.N. Shchelchkova. Flow of dense suspensions. *Prog. Aerospace Sci.*, 18 :121–151, 1978.
- [4] A.S. Dukhin and P.J. Goetz. Acoustic spectroscopy for concentrated polydisperse colloids with high density contrast. *Langmuir*, 12 :4987–4997, 1996.
- [5] L.L. Foldy. The multiple scattering of waves. I. General theory of isotropic scattering by randomly distributed scatterers. *Phys. Rev.*, 67 :107–119, 1945.
- [6] A.K. Hipp, G. Storti, and M. Morbidelli. Acoustic characterization of concentrated suspensions and emulsions. 2. experimental validation. *Langmuir*, 18 :391–404, 2002.
- [7] H. Lamb. *Hydrodynamics*. Dover Publications, New York, 1945.
- [8] M. Lax. Multiple scattering of waves. II. The effective field in dense systems. *Phys. Rev.*, 85 :621–629, 1952.
- [9] D.J. McClements, Y. Hemar, and N. Herrmann. Incorporation of thermal overlap effects into multiple scattering theory. *J. Acoust. Soc. Am.*, 2 :915–918, 1999.