



HAL
open science

Résonances acoustiques multipolaires dans des émulsions contrôlées

Thomas Brunet, Benoit Mascaro, Simon Raffy, Olivier Mondain-Monval,
Jacques Leng, Olivier Poncelet, Christophe Aristegui

► To cite this version:

Thomas Brunet, Benoit Mascaro, Simon Raffy, Olivier Mondain-Monval, Jacques Leng, et al.. Résonances acoustiques multipolaires dans des émulsions contrôlées. CFM 2013 - 21ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2013, Bordeaux, France. hal-03439017

HAL Id: hal-03439017

<https://hal.science/hal-03439017>

Submitted on 22 Nov 2021

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

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

Résonances acoustiques multipolaires dans des émulsions contrôlées

T. Brunet^a, B. Mascaro^a, S. Raffy^{b,c}, O. Mondain-Monval^b, J. Leng^c, O. Poncelet^a,
C. Aristégui^a

a. Université de Bordeaux, CNRS UMR 5295, I2M-APy - 33405 Talence - FRANCE

b. Université de Bordeaux, CNRS UPR 8641, CRPP - 33800 Pessac - FRANCE

c. Université de Bordeaux, CNRS/Rhodia UMR 5258, LOF - 33806 Pessac - FRANCE

Résumé :

Dans ce travail, nous étudions un régime de diffusion des ondes acoustiques, dit « de Mie », pour lequel la longueur d'onde est proche de la taille des particules en suspension ($ka \sim 1$). Dans ce régime de diffusion, peuvent se manifester une large collection de résonances acoustiques complexes dont nous faisons ici une étude expérimentale approfondie grâce à la fabrication de matériaux modèles multi-diffusants. Ces derniers sont des émulsions constituées de gouttelettes d'huile fluorée dispersées dans un fluide de Bingham qui ont été élaborées par voie microfluidique autorisant un parfait contrôle de leur structure (taille, polydispersité, forme et fraction volumique des gouttelettes). Les mesures acoustiques portant sur la dispersion en phase et l'atténuation dans ces milieux complexes sont analysées dans le cadre d'un modèle de diffusion simple révélant un excellent accord théorie/expérience.

Abstract :

In this work, we focus our attention on the Mie scattering regime for acoustic waves expected when the wavelength is comparable to the size of the scatterers ($ka \sim 1$). We evidence here a large collection of complex acoustic resonances occurring in this resonant scattering regime thanks to the synthesis of « model scattering media ». The latter are emulsions made of fluorinated-oil droplets dispersed in a Bingham fluid that have been synthesized by means of microfluidics, allowing a perfect control of their structure (size, polydispersity, shape and volume fraction of droplets). Acoustical measurements (dispersion and attenuation) performed in such complex media have been analyzed in the framework of single scattering revealing an excellent agreement between experiments and theoretical predictions.

Mots clefs : Diffusion de Mie, Résonances Acoustiques, Spectroscopie Ultrasonore

1 Introduction

La diffusion des ondes acoustiques dans les suspensions et les émulsions constitue un sujet d'intérêt depuis de nombreuses décennies [7, 2] en raison d'un vaste champ d'applications telle que le "particle-sizing" [1, 4, 6]. Contrairement au régime de grandes longueurs d'onde ($ka \ll 1$) généralement considéré pour l'étude ultrasonore de suspensions de particules, le régime intermédiaire pour lequel la longueur d'onde est proche de la taille des objets en suspension ($ka \sim 1$) a fait l'objet de peu d'études expérimentales à cause des effets complexes liés aux résonances acoustiques se manifestant à ces fréquences. Pour les mettre en évidence, la fabrication d'échantillons multi-diffusants parfaitement monodisperses est une condition *sine qua none*. Dans le cas contraire, ces résonances multipolaires, prédites pour des particules uniques [8, 16, 18], tendent à disparaître à cause des effets de la polydispersité. Depuis les premiers travaux expérimentaux portant sur des sphères métalliques millimétriques [5, 13], des résonances multipolaires ont pu être observées dans des suspensions de microsphères de polystyrène calibrées [9, 12]. Récemment, la microfluidique nous a permis de fabriquer des émulsions extrêmement monodisperses révélant une large collection de résonances acoustiques multipolaires [3].

Cette technique est très adaptée à la conception de matériaux exhibant des propriétés acoustiques ciblées (absorption et dispersion). En effet, le contrôle de la structure interne de l'émulsion (taille, polydispersité et fraction volumique des gouttelettes) autorise l'obtention de valeurs particulières de l'atténuation et de la célérité de phase.

Dans ce papier, nous rappelons en premier lieu la technique microfluidique permettant de fabriquer des émulsions parfaitement contrôlées. Nous présentons alors des mesures ultrasonores des propriétés acoustiques effectives (atténuation et dispersion) de ces milieux multi-diffusants modèles. Enfin, nous analysons ces résultats expérimentaux dans le cadre d'un modèle de diffusion simple appelé ISA pour *Independent Scattering Approximation*.

2 Synthèse et caractérisation ultrasonore des émulsions

Grâce à la microfluidique [3], nous pouvons réaliser des émulsions calibrées constituées de gouttelettes d'huile fluorée (FC-40, Fluorinert®) dispersées dans un gel aqueux¹ (Carbopol®, ETD 2050) se comportant comme un fluide de Bingham doté d'une faible contrainte seuil (10 Pa). En injectant l'huile fluorée de manière continue dans la matrice avec un débit constant ($Q = 20 \mu\text{L}/\text{min}$), *via* une seringue se déplaçant à vitesse constante dans le gel ($V = 100 \text{ mm}/\text{s}$), des gouttelettes parfaitement sphériques se décrochent avec une excellente reproductibilité le long d'une même ligne (Fig. 1.a.). Leur rayon ne dépendant que du rapport Q/V , il est possible d'ajuster précisément leur taille en modifiant ces deux paramètres de contrôle. Comme illustré sur la figure 1.a., plus l'aiguille se déplace rapidement, plus les gouttelettes sont petites pour un même débit. Ainsi, il est possible de fabriquer des émulsions avec une distribution en taille bien précise en mélangeant différentes lignes de gouttelettes (Fig. 1.b.). Pour chaque échantillon, la distribution en taille des gouttelettes est mesurée par microscopie optique avec une précision de l'ordre du micron pour le rayon (Fig. 1.c.).

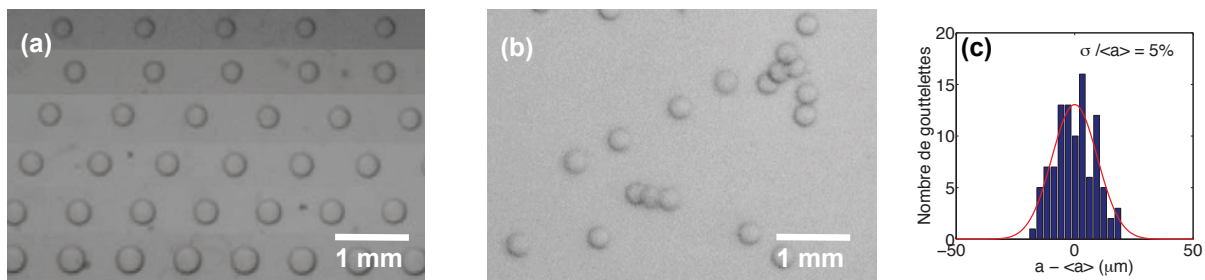


FIGURE 1 – (a) Rangées de gouttelettes d'huile fluorée parfaitement sphériques avec différents rayons, obtenues par microfluidique. Toutes les gouttelettes ont été produites avec le même débit ($Q = 20 \mu\text{L}/\text{min}$) mais avec différentes vitesses de déplacement V de l'aiguille d'injection ($V = 72, 61, 49, 38, 25, 14 \text{ mm}/\text{s}$, du haut vers le bas). (b) Exemple d'une émulsion (répartition aléatoire des gouttelettes) obtenue après mélange de plusieurs rangées de gouttelettes de différentes tailles. La fraction volumique Φ est de l'ordre de 1%. Le rayon moyen $\langle a \rangle$ de cette émulsion est $170 \mu\text{m}$ et la polydispersité $\sigma / \langle a \rangle$ est de l'ordre de 5% comme illustré sur l'histogramme (c).

Les paramètres acoustiques des échantillons sont identifiés grâce à une technique classique de spectroscopie ultrasonore [14]. Le principe de cette méthode repose sur l'acquisition de plusieurs signaux temporels réfléchis (échos) sur les parois d'une cellule de mesure dont les faces sont parallèles à l'émetteur/récepteur ultrasonore. Nous avons utilisé un capteur centré à 5 MHz large bande [1-7 MHz]. Après avoir mesuré soigneusement les propriétés acoustiques de chacun des deux constituants du milieu inclusionnaire (gel aqueux et huile fluorée), nous avons alors caractérisé la réponse acoustique (atténuation et dispersion) d'échantillons présentant diverses polydispersités (cf. Fig. 2.).

1. Pour des fréquences ultrasonores de l'ordre du MHz, ce fluide de Bingham se comporte comme de l'eau. Ainsi, seules les ondes longitudinales (ondes de pression) peuvent se propager dans ce gel aqueux contrairement aux ondes transversales (ondes de cisaillement).

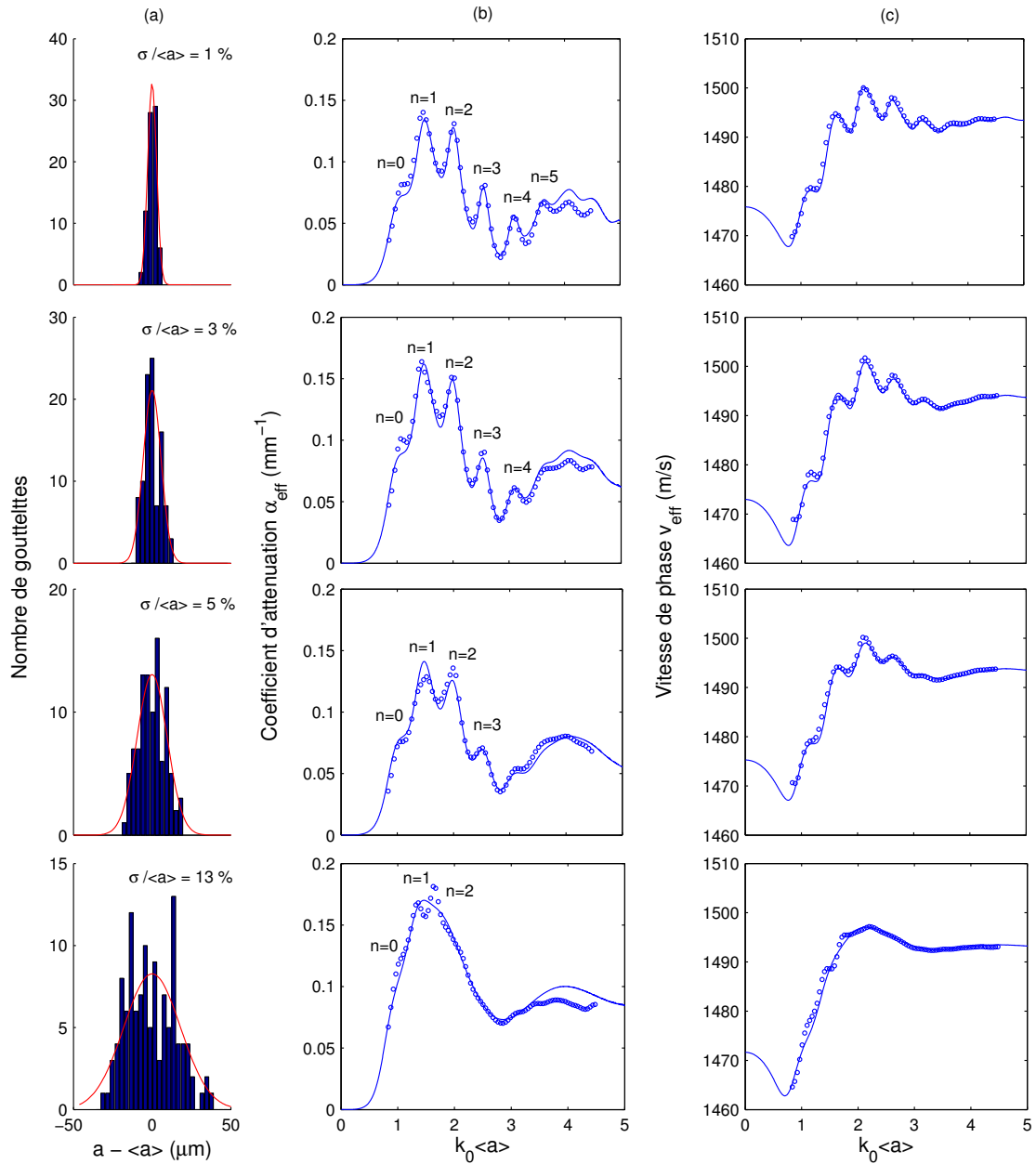


FIGURE 2 – Mesures optiques et acoustiques réalisées dans des émulsions avec une polydispersité croissante, du haut vers le bas : 1%, 3%, 5% et 13%. (a) Histogrammes des tailles de gouttelettes mesurées par microscopie optique et les distributions gaussiennes ajustées correspondantes. (b) Coefficient d’atténuation α_{eff} et (c) vitesse de phase v_{eff} versus la fréquence réduite $k_0 \langle a \rangle$: mesures acoustiques (o) et courbes extraites d’après la procédure d’inversion (-).

3 Résultats et discussions

Les mesures ultrasonores révèlent l'apparition de plusieurs pics d'atténuation associés à des variations rapides de la vitesse de phase qui tendent à disparaître à mesure que la polydispersité de l'émulsion augmente (Fig. 2). Pour comprendre ces phénomènes, il nous faut ici invoquer des modèles de diffusion, c'est-à-dire considérer l'interaction d'une onde acoustique avec plusieurs diffuseurs sous forme de gouttelettes liquides. Divers développements théoriques ont été proposés concernant la propagation des ondes dans de tels milieux multi-diffusants [17]. Cependant, puisque la fraction volumique de gouttelettes est faible dans ces émulsions ($\Phi \sim 1\%$), les résultats peuvent être analysés dans le cadre d'un modèle simple appelé "ISA" pour *Independent Scattering Approximation*. Dans ce cas, les ondes thermiques peuvent être négligées [4] et les propriétés effectives du milieu inclusionnaire sont facilement accessibles sur le plan analytique.

Considérons un milieu inclusionnaire contenant une distribution aléatoire de sphères identiques de rayon moyen $\langle a \rangle$ avec une faible fraction volumique ($\Phi \ll 1$). Dans la suite, la masse volumique et le nombre d'onde à valeurs complexes d'une onde de pression seront notés ρ_0 et $k_0 (= \frac{\omega}{v_0} + i\alpha_0)$ pour la matrice et ρ_1 et $k_1 (= \frac{\omega}{v_1} + i\alpha_1)$ pour les inclusions. Notons que v_i et α_i sont les vitesses de phase et les coefficients d'atténuations² pour chaque milieu i ($= 0$ or 1), ω correspondant à la pulsation. Pour un milieu polydisperse [11], le nombre d'onde effectif $k_{eff} = \frac{\omega}{v_{eff}} + i\alpha_{eff}$ est alors donné par :

$$k_{eff}^2 = k_0^2 + \int_a 4\pi\eta(a)F(0, k_0a, k_1a)da \quad (1)$$

avec $\eta(a)$ la distribution en taille des particules, et $\Phi = \int_a \eta(a) \frac{4\pi a^3}{3} da$ la fraction volumique totale. Dans cette étude, les distributions sont gaussiennes $\eta(a) = \frac{N}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(a-\langle a \rangle)^2}{2\sigma^2}}$ avec σ l'écart-type de la distribution, $\langle a \rangle$ est le rayon moyen et $N = \int_a \eta(a)da$ le nombre total de particules par unité de volume. La fonction de diffusion "vers l'avant" $F(0, k_0a, k_1a)$ s'exprime de la manière suivante :

$$F(0, k_0a, k_1a) = \frac{1}{ik_0} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1)A_n, \quad (2)$$

où les coefficients A_n sont les coefficients modaux de diffusion d'une gouttelette d'huile fluorée placée dans le gel aqueux. Ces coefficients dépendent de k_0a et k_1a et des rapports ρ_1/ρ_0 et v_1/v_0 . L'indice n renvoie au mode d'ordre n . Ainsi, les modes $n = 0$, $n = 1$, $n = 2$ sont les modes de vibration monopolaire, dipolaire et quadripolaire des gouttelettes. Les fréquences de résonance de chacun de ces modes fixent les positions en fréquence des pics d'atténuation observés sur la figure 2. Les courbes expérimentales (coefficients d'atténuation α_{eff} et vitesses de phase v_{eff}) ont été tracées en fonction de k_0a car les divers échantillons n'ont pas le même rayon moyen $\langle a \rangle$. Cette représentation adimensionnelle est donc la plus appropriée pour observer des résonances aux mêmes positions. Ainsi, les premières résonances des trois premiers modes de vibration se manifestent pour $k_0\langle a \rangle = 1, 1.5$ et 2 , qui sont les seules observables pour l'échantillon présentant la plus grande polydispersité ($\sigma/\langle a \rangle = 13\%$). En revanche, la figure 2 révèle une large collection de résonances (jusqu'à $n = 6$) pour l'échantillon le plus monodisperse ($\sigma/\langle a \rangle = 1\%$). Les effets de polydispersité tendent donc à lisser les phénomènes résonants jusqu'à les annihiler complètement si cette dernière est trop importante.

Grâce à une procédure d'inversion classique [11], nous pouvons extraire les paramètres de la distribution en taille de chaque échantillon (rayon moyen $\langle a \rangle$ et polydispersité $\sigma/\langle a \rangle$) d'après les mesures de leurs propriétés effectives telles que l'atténuation effective α_{eff} . Les résultats obtenus par ces mesures acoustiques et les mesures optiques faites par microscopie sont résumés dans le tableau 1, révélant un excellent accord entre ces deux méthodes. Ainsi, contrairement au régime de grande longueur d'onde généralement utilisé [15], la spectroscopie ultrasonore conduite en régime résonant semble constituer un outil robuste quant à la caractérisation de la distribution en taille pour des systèmes présentant des contrastes acoustiques importants.

2. L'absorption des ondes acoustiques dans le gel aqueux est tellement faible que k_0 peut être pris à valeurs réelles.

Echantillon (numéro)	$\langle a \rangle_{opt}$ (μm)	$(\sigma/\langle a \rangle)_{opt}$ (%)	Φ (%)	$\langle a \rangle_{ac}$ (μm)	$(\sigma/\langle a \rangle)_{ac}$ (%)	Φ_{ac} (%)
1	185	1.4	≈ 1	181	2.41	0.95
2	174	3.1	≈ 1	173	3.60	1.10
3	172	4.9	≈ 1	170	4.82	0.98
4	128	12.7	≈ 1	142	13.4	1.19

TABLE 1 – Comparaison entre les mesures optiques et acoustiques des paramètres de la distribution gaussienne en taille de quatre émulsions de gouttelettes d’huile fluorée.

4 Conclusions

Ce travail expérimental constitue une étude approfondie du régime de diffusion résonante grâce à la fabrication de matériaux multi-diffusants modèles. Ces derniers, des émulsions présentant un fort contraste de vitesse de phase entre la matrice et les inclusions, ont été fabriqués par voie microfluidique autorisant un parfait contrôle de leur structure (taille, polydispersité et fraction volumique). La spectroscopie ultrasonore menée sur ces systèmes a révélé une grande sensibilité à tous les paramètres de la distribution en taille de ces milieux complexes, laissant à penser qu’elle pourrait constituer un outil puissant de caractérisation de systèmes présentant de forts contrastes acoustiques. Enfin, cette étude quantitative des effets de la polydispersité sur la réponse résonante de milieux inclusionnaires peut également toucher la communauté des ”métamatériaux” pour laquelle les milieux dits localement résonants peuvent présenter des comportements exotiques tels que la réfraction négative [10].

Remerciements

Les auteurs remercient l’Agence Nationale pour la Recherche (2011-BS0902101), l’European Office of Aerospace Research and Development (FA8655-11-M-4006), le Conseil Régional d’Aquitaine et le pôle de compétitivité Aerospace Valley.

Références

- [1] Alba, F., Crawley, G., Fatkin, J., Higgs, D., Kippax, P. 1999 Acoustic spectroscopy as a technique for the particle sizing of high concentration colloids, emulsions and suspensions. *Colloids Sur. A* **153** 495-502
- [2] Allegra, J.R., Hawley, S.A. 1972 Attenuation of sound in suspensions and emulsions : Theory and experiments. *J. Acoust. Soc. Am.* **51** 1545-1564
- [3] Brunet, T., Raffy, S., Mascaro, B., Leng, J., Wunenburger, R., Mondain-Monval, O., Poncelet, O., Aristégui, C. 2012 Sharp acoustic multipolar-resonances in highly monodisperse emulsions. *Appl. Phys. Lett.* **101** 011913
- [4] Challis, R.E., Povey, M.J.W., Mather, M.L. 2005 Ultrasound techniques for characterizing colloidal dispersions. *Rep. Prog. Phys.* **68** 1541-1637
- [5] Dragonette, L.R., Flax, L., Neubauer, W.G. 1974 Acoustic reflection from elastic spheres and rigid spheres and spheroids. II. Transient analysis. *J. Acoust. Soc. Am.* **55** 1130-1137
- [6] Dukhin, A.S., Goetz, P.J. 2002 *In Ultrasound for Characterizing Colloids - Particle Sizing, Zeta Potential, Rheology* (ed. D. Möbius et R. Miller) pp. 1-372, Elsevier, Amsterdam.
- [7] Faran, J. J. 1951 Sound scattering by solid cylinders and spheres. *J. Acoust. Soc. Am.* **23** 405-418
- [8] Flax, L., Dragonette, L.R., Überall, H. 1978 Theory of elastic resonance excitation by sound scattering. *J. Acoust. Soc. Am.* **63** 723-731
- [9] Hay, A.E., Schaafsma, A.S. 1989 Resonance scattering in suspensions *J. Acoust. Soc. Am.* **85** 1124-1138
- [10] Li, J., Fung, K. H., Liu, Z. Y., Sheng, P., Chan, C.T. 2007 *Physics of Negative Refraction and Negative Index Materials* (ed. C. M. Krowne et Y. Zong) pp. 183-215, Springer, Berlin.

- [11] Mascaró, B., Brunet, T., Poncelet, O., Aristégui, C., Raffy, S., Mondain-Monval, O., Leng, J. 2013 Impact of polydispersity on multipolar resonant scattering in emulsions. *J. Acoust. Soc. Am.* **133** 1996-2003
- [12] Mobley, J., Waters, K.R., Hall, C.S., Marsh, J.N., Hughes, M.S., Brandenburger, G.H., Miller, J.G. 1999 Measurements and predictions of the phase velocity and attenuation coefficient in suspensions of elastic microspheres. *J. Acoust. Soc. Am.* **106** 652-659
- [13] Neubauer, W.G., Vogt, R.H., Dragonette, L.R. 1974 Acoustic reflection from elastic spheres. I. Steady-state signals. *J. Acoust. Soc. Am.* **55** 1123-1129
- [14] Norisuye, T., Sasa, S., Takeda, K., Kohyama, M., Tran-Cong-Miyata, Q. 2011 Simultaneous evaluation of ultrasound velocity, attenuation and density of polymer solutions observed by multi-echo ultrasound spectroscopy. *Ultrasonics* **51** 215-222
- [15] Richter, A., Babick, F., Ripperger S. 2005 Polydisperse particle size characterization by ultrasonic attenuation spectroscopy for systems of diverse acoustic contrast in the large particle limit. *J. Acoust. Soc. Am.* **118** 1394-1405
- [16] Sage, K.A., George, J., Überall, H. 1979 Multipole resonances in sound scattering from gas bubbles in a liquid. *J. Acoust. Soc. Am.* **65** 1413-1422
- [17] Sheng, P. 2006 *Introduction to Wave Scattering, Localization, and Mesoscopic Phenomena*. pp. 1-349, Springer, Berlin.
- [18] Werby, M.F., Überall, H., Nagl, A., Brown, S.H., Dickey, J.W. 1988 Bistatic scattering and identification of the resonances of elastic spheroids. *J. Acoust. Soc. Am.* **84** 1425-1436