

Champs acoustiques en mélanges gaz-vapeurs saturées : diffusion moléculaire et précondensation aux parois

C. Guianvarc'H^a, M. Bruneau^b, R. Gavioso^c et L. Risegari^a

^aLaboratoire Commun de Métrologie LNE-Cnam, 61 rue du Landy, 93210 La Plaine Saint Denis, France

^bLaboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine UMR CNRS 6613, Avenue Olivier Messiaen, 72085 Le Mans, France

^cIstituto Nazionale di Ricerca Metrologica, Strada delle Cacce, 91, 10135 Torino, Italie
cecile.guianvarc_h@cnam.fr

Un nouveau modèle pour décrire le mouvement acoustique dans des mélanges gazeux est présenté ici en partant des équations fondamentales de l'hydrodynamique et de la thermodynamique, et en y associant des conditions aux frontières adaptées pour décrire les phénomènes d'évaporation et de condensation sur les parois quand un des composants du mélange se trouve au voisinage de son point de saturation. Les solutions analytiques générales de ces équations offrent à présent une description unifiée de la propagation acoustique en espaces infinis, semi infinis et confinés, loin de et dans les couches limites. Ces solutions tiennent compte des couplages forts entre le mouvement acoustique et les processus de diffusion de chaleur et de concentration, incluant les phénomènes de précondensation sur les parois. Les résultats théoriques ainsi obtenus sont comparés à ceux issus de modèles proposés et d'expériences effectuées par le passé, mais ne suffisent toujours pas à expliquer tous les résultats expérimentaux disponibles dans la littérature. Des expériences sont en cours de préparation, qui ont pour but de valider et compléter cette approche analytique par une caractérisation empirique de certains paramètres liés aux propriétés physiques des gaz utilisés et à l'état de surface des parois.

1 Introduction

Des phénomènes physiques complexes, fortement couplés entre eux, se trouvent liés au mouvement acoustique dans des mélanges gazeux, incluant des effets visqueux, thermiques et de diffusion moléculaire et de précondensation aux parois si un composant du mélange est une vapeur saturée, comme c'est le cas pour l'air humide. Chacun de ces phénomènes a déjà fait l'objet d'études spécifiques [1–4] sans pour autant qu'un modèle général, tenant compte des couplages de ces phénomènes entre eux, n'ait pu être proposé jusqu'à présent.

Ainsi, la nouvelle approche analytique présentée ici reprend les équations fondamentales de l'hydro- et de la thermodynamique en mélanges gazeux thermovisqueux, compte tenu de phénomènes de diffusion moléculaires, et y associe des conditions aux frontières adaptées pour décrire les phénomènes d'évaporation et de condensation sur les parois quand un des composants du mélange se trouve au voisinage de son point de saturation. Les solutions proposées tiennent compte de tous ces phénomènes couplés entre eux [5, 6].

Si les résultats théoriques obtenus sont cohérents avec ceux issus des modèles proposés par le passé, ils ne suffisent toujours pas à expliquer tous les résultats expérimentaux obtenus et disponibles dans la littérature. Des études expérimentales doivent donc être effectuées dans le but de valider et compléter cette approche analytique par une caractérisation empirique de certains paramètres liés notamment aux propriétés physiques des gaz utilisés et à l'état de surface des parois.

Après un rappel du modèle unifié proposé dernièrement [5, 6] (équations de propagation et de diffusion, conditions aux frontières), les formes de solutions retenues et les expressions des facteurs acoustiques accessibles à l'expérience (impédances pariétales, constantes de propagation) sont brièvement énoncées (§ 2,4). Une méthode de validation expérimentale de ces nouveaux modèles est ensuite présentée § 5.1, ainsi qu'une comparaison des résultats obtenus avec des résultats théoriques et expérimentaux disponibles dans la littérature (§ 5.2). Enfin, le paragraphe 5.3 propose une description de l'expérience en cours d'installation au Laboratoire Commun de Métrologie (LNE-Cnam) et des expériences envisagées aussi bien au LNE-Cnam qu'à l'Istituto Nazionale di Ricerca Metrologica (INRiM) pour la validation des différents paramètres des modèles proposés ici.

2 Equations linéaires de l'acoustique en mélanges gazeux binaire

Le mélange considéré ici est composé de deux gaz appelés 1 et 2, respectivement de masses molaires M_1 et M_2 , de concentrations molaires x et $(1 - x)$ et de concentrations massiques C_0 et $(1 - C_0)$.

Sa pression, masse volumique et température statiques totales sont notées P_0 , ρ_0 et T_0 respectivement. Les masses volumiques et pressions partielles de chaque composant sont notées respectivement $\rho_1 = C_0\rho_0$ et $\rho_2 = (1 - C_0)\rho_0$, et $P_1 = xP_0$ et $P_2 = (1 - x)P_0$.

Dans la suite, quand il est question de mélange gaz-vapeur, cela suppose que les conditions de température T_0 et de pression P_2 du composant 2 sont telles que P_2 est proche de la pression de saturation $P_s(T_0)$ du composant 2. Dans le mélange binaire, le composant 2 est alors une « vapeur saturée », et le composant 1 un « gaz sec ».

Les propriétés et la nature du mélange sont exprimés par la vitesse du son adiabatique a_0 , le rapport des chaleurs massiques γ , la capacité calorifique massique isobare C_p , le coefficient d'augmentation de pression isochore β , les coefficients de viscosité de volume η et de cisaillement μ , la conductivité thermique λ_h , le coefficient de diffusion mutuelle D et les coefficients de thermodiffusion α_T et de barodiffusion α_P .

Les équations décrivant le comportement acoustique du mélange gazeux binaire sont déduites des équations fondamentales de l'hydrodynamique et de la thermodynamiques disponibles dans les références [5, 6], elles-mêmes issues du formalisme décrit par Landau et Lifchitz [7]. Elles sont composées de :

- (a) l'équation de Navier-Stokes, qui reste inchangée pour un gaz pur ou un mélange gazeux,
- (b) l'équation de conservation de la masse, écrite pour le mélange et pour chacun de ses composants,
- (c) l'équation de diffusion moléculaire (ou diffusion mutuelle) du composant 1 dans le composant 2, lié aux mouvements de compression/détente (barodiffusion) et aux flux de chaleurs (thermodiffusion) auxquels le mélange est soumis lors d'un cycle acoustique,
- (d) l'équation de diffusion de la chaleur, où les flux de concentration des composants 1 et 2 se trouvent liés aux flux de chaleur dans le mélange,
- (e) l'équation d'état du mélange gazeux, considéré comme un gaz parfait.

Dans le cas où seules sont conservées les variables associées à la vitesse particulière \vec{v} , et aux écarts instantanés de pression p , de température τ et de concentration massique normalisée b du composant 1, le comportement acoustique du mélange binaire gazeux est alors entièrement décrit par le système d'équations linéaires suivant :

$$\frac{1}{a_0} \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = -\frac{1}{\rho_0 a_0} \text{grad } p + \ell_v \text{grad div } \vec{v} - \ell'_v \text{rot rot } \vec{v}, \quad (1)$$

$$\text{div } \vec{v} = \frac{1}{T_0} \frac{\partial \tau}{\partial t} - \frac{1}{P_0} \frac{\partial p}{\partial t} + \alpha_P \frac{\partial b}{\partial t}, \quad (2)$$

$$\left(\frac{1}{a_0} \frac{\partial}{\partial t} - \ell_h \Delta \right) \tau = \frac{\gamma - 1}{\gamma \beta} \frac{1}{a_0} \frac{\partial}{\partial t} (p + P_0 \alpha_T b), \quad (3)$$

$$\left(\frac{1}{a_0} \frac{\partial}{\partial t} - \ell_D \Delta \right) b = \ell_D x(1-x) \left[\frac{\alpha_P}{P_0} \Delta p + \frac{\alpha_T}{T_0} \Delta \tau \right]. \quad (4)$$

les longueurs caractéristiques $\ell_v = (\eta + 4\mu/3)/(\rho_0 a_0)$, $\ell'_v = \mu/(\rho_0 a_0)$, $\ell_h = \lambda/(\rho_0 a_0 C_P)$ et $\ell_D = D/a_0$ étant liées respectivement aux phénomènes visqueux de volume et de cisaillement (significatifs seulement dans les couches limites), et aux processus de diffusion thermique et de diffusion mutuelle.

Ces équations sont valables pour tout mélange gazeux binaire, que ses composants soient proches ou non de la saturation, dans la mesure où, tout comme les effets liés à la viscosité de cisaillement, les processus de condensation et d'évaporation qui peuvent avoir lieu lors d'un cycle acoustique sont ici supposés négligeables loin des parois. En effet, aucun des composants du mélange n'étant en conditions de sursaturation, l'énergie de nucléation reste beaucoup plus grande dans le volume du mélange qu'au voisinage des parois.

Loin des couches limites, et pour un mouvement harmonique ($e^{j\omega t}$, de pulsation ω et de nombre d'onde $k_0 = \omega/a_0$), la combinaison et la simplification de ces équations permettent d'exprimer la variation de pression p comme la superposition d'un champ de pression acoustique p_a , entropique p_h , et de concentration p_b , soit $p = p_a + p_h + p_b$, où $p_a \gg p_h, p_b$ satisfait à l'équation de propagation [5]

$$(\Delta + k_a^2) p_a \approx 0, \quad (5)$$

le nombre d'onde acoustique étant donné par

$$k_a^2 = k_0^2 (1 - j k_0 \ell_{vhd}), \quad (6)$$

où $\ell_{vhd} = \ell_v + (\gamma - 1)\ell_h + \gamma x(1-x)\alpha^2 \ell_D$ exprime les effets de la viscosité de volume, de la conduction thermique et de la diffusion mutuelle dans le mélange gazeux (effets exclusivement dissipatifs).

3 Comportement acoustique au voisinage des parois

Le problème considéré ici est le mouvement acoustique au voisinage d'une paroi solide parfaitement rigide, supposée localement plane, et recouverte ici par un film liquide dû à la précondensation du composant 2 (cf. infra) [Fig. 1]. La normale à la paroi orientée vers l'intérieur du domaine est notée u ($u = d$ à l'interface liquide/gaz, et $u = 0$ à l'interface liquide/paroi), et la tangente à la paroi est notée \vec{w} (composantes w_1, w_2).

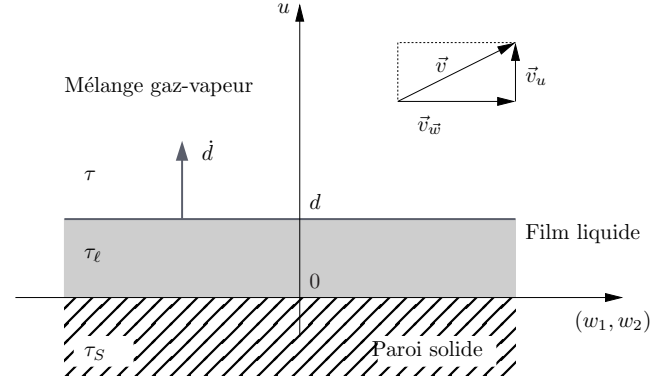


FIGURE 1 – Ecart instantané de température et vitesse particulière dans un mélange gaz-vapeur au voisinage d'une paroi recouverte d'un film liquide.

Au voisinage de la paroi, les équations de l'acoustique (1) à (4) peuvent être simplifiées en considérant que la variation spatiale de la vitesse particulière \vec{v} , ainsi que des écarts instantanés de température τ et de concentration b , sont beaucoup plus grandes selon la composante u que selon les composantes tangentes w_1, w_2 .

Après simplification, l'équation de Navier-Stokes (1) conduit à une équation de diffusion pour la vitesse particulière tangentielle \vec{v}_w , exprimant les effets de la viscosité de cisaillement sur le mouvement acoustique au voisinage des parois. Cette équation reste inchangée pour un gaz pur ou un mélange gazeux et sa résolution nécessite une seule condition aux frontières sur \vec{v}_w .

Les équations (3) et (4), quant à elles, illustrent le fort couplage entre les écarts instantanés de température τ et de concentration b , et conduisent finalement à une équation d'ordre 4 de la variable d'espace u pour la variation de température τ . Deux conditions aux frontières pour τ sont donc nécessaires pour exprimer la variable τ .

4 Conditions aux frontières, solutions

Dans le cas d'un mélange gaz-vapeur, du fait des interactions moléculaires entre la vapeur et la paroi solide, le composant 2 est sujet à des phénomènes de précondensation. Un film liquide du composant 2 se forme donc en paroi et coexiste avec son état gazeux quand bien même celui-ci n'a pas atteint le point de condensation (Fig. 1). Le film liquide ainsi formé a une épaisseur d qui croît quand P_2 se rapproche de la pression de vapeur saturante $P_s(T_0)$ selon la loi suivante, issue d'une théorie cinétique, [1] :

$$(d_0/d)^\nu \approx \ln[P_s(T)/P_2], \quad (7)$$

où d_0 est constant et égal à 1 nm et l'exposant ν prend une valeur comprise entre 3 et 4 selon l'épaisseur du film liquide.

La validité de cette loi de comportement est sérieusement remise en question en particulier parce qu'elle suppose la paroi parfaitement lisse, ce qui n'est jamais le cas en pratique. Sur des parois rugueuses, ou présentant des aspérités, le film liquide devrait être plus épais que ne le prévoit ce modèle. Les quelques résultats expérimentaux disponibles montrent, en effet, que les modèles théoriques actuels sous-évaluent manifestement les

effets sur le mouvement acoustique des phénomènes liés à la précondensation et à l'existence de ce film liquide [1].

En premier lieu, il est évident que ce film liquide est à l'origine d'échanges de chaleur, d'un côté avec le milieu gazeux, et de l'autre avec la paroi solide, et qu'en conséquence, les conditions aux frontières isothermes usuelles ne s'appliquent donc pas ici.

D'autre part, au cours d'un cycle acoustique, le film liquide est le siège de processus d'évaporation et de condensation du composant 2 (celui-ci étant proche de la saturation, une partie de celui-ci change de phase au cours d'un cycle acoustique), ce qui implique alors

- des échanges de chaleur additionnels entre le film liquide et le milieu gazeux, faisant intervenir la chaleur latente de vaporisation,
- des échanges de matière entre le film liquide et le milieu gazeux,
- une variation de l'épaisseur du film liquide,

En résumé, les conditions aux frontières associées aux équations (1-4) doivent tenir compte

- d'une condition de non-glissement en $u = d$ ($\vec{v}_w = \vec{0}$)
- de la continuité des vitesses particulières normales v_{u1} , v_{u2} et v_u (respectivement du composant 1, 2 et du mélange) en $u = d$, où la paroi est animée d'un mouvement vibratoire de vitesse $\dot{d} = j\omega d$ dû à la variation d'épaisseur du film liquide,
- de la continuité des variations de températures τ_ℓ et τ_s (respectivement du film liquide et de la paroi solide) ainsi que des flux de chaleur à l'interface liquide/solide ($u = 0$),
- de la continuité des températures τ et τ_ℓ ainsi que des flux de chaleur à l'interface liquide/gaz ($u = d$), qui implique les potentiels chimiques des deux composants ainsi que la chaleur latente de vaporisation du composant 2,
- de la continuité des flux de concentration du composant 1, non-nuls à l'interface liquide/gaz ($u = d$).

Finalement, compte tenu des lois qui gouvernent ces quantités physiques reliées entre elles, toutes ces conditions aux frontières se réduisent à

- une condition sur la vitesse tangentielle \vec{v}_w (inchangée par rapport au cas sans précondensation),
- deux conditions indépendantes sur la variation de température τ , elle-même directement liée à la variation de concentration b et à la variation de pression p .

Les solutions des équations (1-4) pour \vec{v}_w et τ , satisfaisant ces conditions aux frontières permettent déduire en conséquence toutes les solutions pour les variables v_u , b et p (dans le domaine de Fourier), puis les quantités d'intérêts spécifiques à différentes typologies de problèmes (impédance de paroi, constante de propagation, etc)

5 Validations expérimentales

Dans le modèle acoustique présenté ici, les phénomènes physiques considérés se trouvent fortement couplés entre eux et leur prise en compte fait intervenir de nombreux paramètres, portant notamment sur la nature et l'état thermodynamique des gaz utilisés, ainsi que sur la nature et l'état de surface de la paroi solide délimitant le milieu gazeux, qui conditionne l'ampleur des phénomènes de précondensation.

La validation du seul modèle acoustique nécessite donc des conditions expérimentales où tous ces paramètres sont parfaitement connus et contrôlés, ce qui est très difficile à obtenir en pratique avec une précision suffisante. Ceci explique le peu de résultats expérimentaux actuellement disponibles sur les effets de la précondensation et de la diffusion mutuelle sur le mouvement acoustique dans une vapeur saturée, un mélange gazeux ou un mélange gaz-vapeur saturée.

5.1 Analyse des propriétés de résonance acoustique d'une cavité sphérique

Parmi les méthodes expérimentales possibles, la mesure des propriétés de résonance acoustique (fréquences de résonance et facteurs de qualité) de gaz en cavité sphérique ou quasi sphérique semble la plus adaptée aux exigences liées à la validation de la modélisation présentée ici.

En effet, ces méthodes sont à présent bien connues, car beaucoup utilisées et constamment améliorées dans les dernières décennies, en particulier pour la thermométrie primaire (mesures de températures thermodynamiques avec le plus haut niveau de précision), et surtout pour la détermination de la constante de Boltzmann avec une incertitude relative inférieure à 2×10^{-6} . Ce sont également ces méthodes qui ont permis d'obtenir les résultats expérimentaux actuellement disponibles concernant les effets sur le mouvement acoustique de la précondensation d'une part, et de la diffusion mutuelle d'autre part.

En pratique, le champ acoustique p dans une cavité sphérique satisfait à l'équation de propagation (5), où les effets dissipatifs dans le volume sont exprimés dans le nombre d'onde k_a (eq. 6), associée à une condition aux frontières, admettant une paroi localement plane, de la forme :

$$\frac{\partial p}{\partial u} + jk_0(y_{vthd} + y_f)p = 0, \quad (8)$$

où l'admittance spécifique $y_{vthd} + y_f$ exprime les effets visqueux, thermiques et de diffusion mutuelle dans les couches limites, les effets exprimés dans l'admittance y_f étant spécifiquement liés à l'épaisseur du film liquide.

L'expression exacte de l'admittance spécifique $y_{tot} = y_{vthd} + y_f$, assez complexe, est donnée dans la référence [6] (eq. 33a-c) et tient compte également des effets liés à la précondensation, c'est-à-dire des changements de phase du composant 2 à l'interface liquide/gaz et des transferts de chaleur entre le milieu solide, liquide et gazeux.

Les fréquences de résonance du champ acoustique dans la cavité sphérique ainsi que les largeurs à mi-hauteur associées dépendent fortement de la nature, de l'état thermodynamique et des propriétés physiques du gaz ou mélange gazeux utilisé.

Considérant un mode radial $(0, n)$, de fréquence de résonance f_{0n} , les effets visqueux sont nuls (champ acoustique en incidence normale à la paroi) et les effets thermiques, de diffusion mutuelle et liés à la précondensation impliquent une perturbation Δf_{0n} à la fréquence de résonance « idéale » f_{0n} . Ces effets contribuent également à l'amortissement du mode $(0, n)$, exprimé dans sa largeur à mi-hauteur g_{0n} .

Finalement, l'influence des effets thermiques, de diffusion mutuelle et liés à la précondensation sur les propriétés de résonance d'un mode radial $(0, n)$ est exprimée ainsi :

$$(\Delta f_{0n} + jg_{0n})/f_{0n} = jy_{tot}/z_{0n} + \frac{jk_0 l_{vhd}}{2}, \quad (9)$$

où z_{0n} est la valeur propre du mode $(0, n)$ (n -ième zéro de la fonction de Bessel sphérique de premier ordre j_0) et où l_{vhd} représente les effets de viscosité, de conduction thermique et de diffusion mutuelle des composants dans le volume de la cavité (en dehors des couches limites).

Si en pratique la détermination des perturbations en fréquence Δf_{0n} est délicate, car fortement liée à la vitesse du son dans le gaz utilisé, qui peut ne pas être connue avec une précision suffisante, la mesure des largeurs à mi-hauteur g_{0n} est, en revanche, beaucoup moins influencée par des paramètres sur lesquels l'incertitude reste importante. C'est l'analyse de cette grandeur en particulier qui est utilisée dans les résultats existants, et qui doit aussi être exploitée dans les expériences prévues pour la validation des modèles acoustiques présentés ici.

5.2 Résultats actuellement disponibles

5.2.1 Précondensation du propane

Les résultats les plus significatifs concernant l'influence de la précondensation d'une vapeur saturée sur le mouvement acoustique ont été obtenus dans du propane pur en 1982 par Mehl et Moldover [1].

Dans le but de déterminer la vitesse du son dans du propane, des mesures de fréquences de résonance acoustiques ont été faites en cavités sphériques et cylindriques, mais les pertes associées à chaque mode étaient toujours supérieures à celles prévues par les modèles. Les résultats expérimentaux obtenus [1] montrent que cette dissipation excessive est liée au rapport P_0/P_s de la pression statique P_0 du gaz sur sa pression de vapeur saturante $P_s(T_0)$ à la température T_0 : la dissipation augmente de manière exponentielle quand ce rapport tend vers 1 (l'égalité exacte $P_0 = P_s(T_0)$ ne peut jamais être atteinte en pratique). Elle semble de ce fait liée à des phénomènes de précondensation, dont l'ampleur augmente également quand $P_0/P_s(T_0)$ tend vers 1. L'influence de ces effets perturbateurs non prévus initialement par les modèles s'est révélée déjà significative pour des rapports $P_0/P_s(T_0) \approx 0,3$.

Ces travaux ont donc amené les auteurs à proposer un modèle analytique qui revient à exprimer les effets de la précondensation sur le champ acoustique en terme d'admittance spécifique de paroi, notée ici y_f^{MM} , qui ne tient pas compte de certains couplages existants entre les effets thermiques dans le gaz (dans les couches limites) et les processus d'évaporation-condensation qui ont lieu au cours d'un cycle acoustique.

Les résultats obtenus pour l'admittance spécifique totale de paroi $y_{tot} = y_{th} + y_f$, en l'absence d'effets visqueux (incidence normale) et de diffusion mutuelle (gaz pur), à partir du modèle de Mehl et Moldover [1] et du modèle proposé ici [6] présentent des écarts significatifs entre eux (Fig. 2).

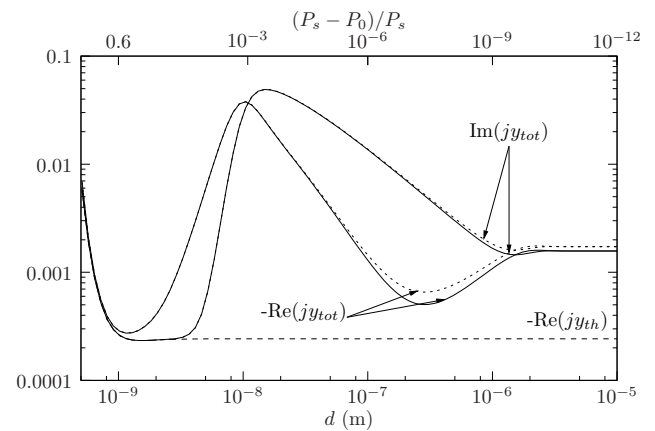


FIGURE 2 – Admittances spécifiques totales jy_{tot} issue du présent travail [6] (traits pleins) et jy_{tot}^{MM} issue du modèle Ref. [1] (pointillés), et admittance spécifique thermique jy_{th} (tirets, parties réelle et imaginaire égales) pour une paroi plane rigide recouverte d'un film liquide d'épaisseur d , dans du propane proche de la saturation à $f=24$ kHz.

Les modèles proposés ici restent cependant encore largement insuffisants pour expliquer pleinement les résultats expérimentaux de 1982, les différences entre les résultats théoriques et expérimentaux pour l'admittance spécifique de paroi pouvant atteindre environ un facteur 10. Il n'en reste pas moins que les résultats théoriques semblent présenter qualitativement les mêmes caractéristiques que les résultats expérimentaux obtenus alors [1].

Ainsi, c'est à présent la pertinence du choix de la loi de comportement pour l'épaisseur d du film liquide en fonction du rapport $P_0/P_s(T_0)$ (éq. 7), valable seulement pour une paroi parfaitement lisse, qui est remise en cause compte tenu de l'état de surface réel des cavités utilisées pour effectuer ces mesures, et qui nécessitera une étude plus approfondie.

5.2.2 Diffusion moléculaire dans un mélange He-Ar

L'expérience réalisée à l'INRiM en 2010 [8] est identique à celle réalisée pour la détermination de la constante de Boltzmann [9, 10] et bénéficie à ce titre des mêmes techniques et équipements pour le contrôle et la mesure des pression et température du gaz et pour les mesures acoustiques et électromagnétiques nécessaires, à ceci près que c'est un mélange d'hélium et d'argon de composition variable qui est utilisé ici et non un gaz pur. Le mélange He-Ar est fait en amont de la cavité quasi sphérique et régulé automatiquement grâce un jeu de valves (Fig. 3).

La composition précise du gaz est déduite en temps réel de la valeur de sa permittivité diélectrique, elle-même déterminée par la mesure des fréquences de résonance électromagnétiques.

Cette méthode a l'inconvénient d'être très coûteuse en temps car l'état thermodynamique du mélange gazeux est long à se stabiliser après chaque modification de la

composition du gaz (aussi faible soit-elle), compte tenu de la sensibilité des propriétés de résonance acoustiques et électromagnétiques à ces variations, c'est pourquoi cette série de mesures reste encore à ce jour unique, malgré les imprécisions dont elle souffre (cf. infra).

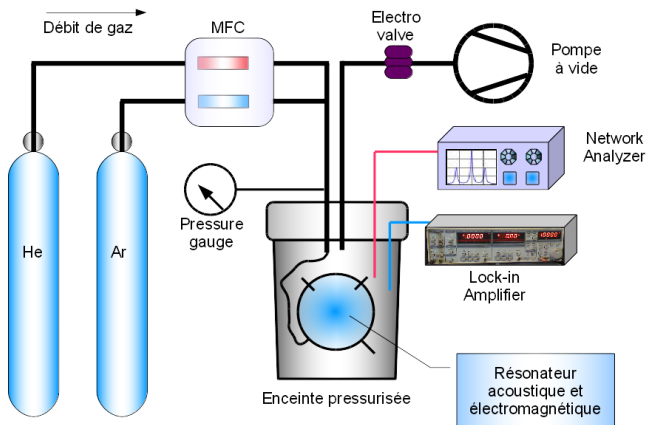


FIGURE 3 – Expérience réalisée à l'INRiM en 2010 pour l'étude d'un mélange gazeux He-Ar de composition variable à $T_0 = 273,16$ K et $P_0 = 690$ kPa [8].

Ces mesures ont été faites à l'origine pour déterminer les propriétés vibroacoustiques de la cavité sphérique en observant l'évolution des largeurs à mi-hauteur associées à plusieurs modes acoustiques radiaux en fonction de la fréquence. Ainsi, parmi les modes acoustiques étudiés dans le cadre de cette expérience, seul le septième mode radial, le mode (0, 8), ne se trouve pas fortement perturbé par les effets du couplage fluide/structure, et permet ainsi d'observer expérimentalement des particularités du mouvement acoustique propre en mélanges gazeux.

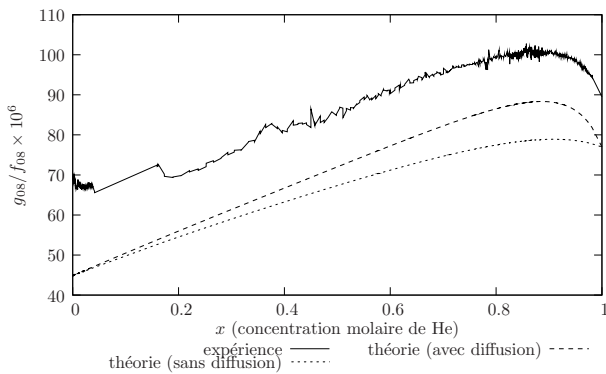


FIGURE 4 – Largeurs à mi-hauteur d'un mode radial mesurée (trait plein) et calculées à partir de modèles analytiques incluant ou pas les phénomènes de diffusion mutuelle (pointillés).

Les valeurs relatives de largeurs à mi-hauteur, représentée Figure 4, déterminées expérimentalement et calculée à partir du modèle présenté ici montrent en premier lieu que les effets liés à la diffusion mutuelle dans le mélange devraient avoir une contribution d'environ 10×10^{-6} en valeurs relatives sur la dissipation totale (effets de volume principalement), ce qui est faible mais significatif. Par ailleurs, les résultats obtenus grâce au modèle complet présenté ici présentent un accord aussi bien qualitatif que quantitatif avec les résultats

expérimentaux (différences maximales d'environ 20×10^{-6} en valeurs relatives).

Ceci étant, ces excès de largeurs à mi-hauteurs d'environ 20×10^{-6} existent même en gaz pur (pour $x = 0$ et $x = 1$), ce qui indique que la cavité quasi sphérique utilisée présente des sources de perturbation significatives et indépendantes de la nature du gaz, qui n'ont pas été prises en compte dans le modèle, très probablement liées à des ouvertures non prévues et non caractérisées géométriquement autour des antennes électromagnétiques, mais des perturbations de vibroacoustiques ne sont pas non plus à exclure.

Finalement, ces résultats montrent bien les limites de cette expérience qui n'était pas optimisée à l'origine pour observer les seuls effets de la diffusion mutuelle sur le mouvement acoustique, d'où la nécessité de les compléter par des résultats issus d'expériences dédiées.

5.3 Expériences envisagées

Une expérience est actuellement en préparation au LNE-Cnam pour étudier les propriétés de résonance acoustique de l'argon en cavité quasi sphérique au voisinage du point de saturation dans le but de valider le modèle présenté ici pour décrire les effets des phénomènes de précondensation sur le mouvement acoustique dans une vapeur saturée.

Cette expérience fait usage des techniques et équipements, en particulier la cavité quasi sphérique, déjà mis en oeuvre pour une précédente détermination de la constante de Boltzmann avec des incertitudes relatives de l'ordre de quelques dizaines de parties par million [11]. Ainsi ce dispositif expérimental est parfaitement caractérisé et contrôlé de manière à éliminer des sources d'incertitudes importantes.

Les mesures sont prévues sur une gamme de températures d'environ 84 K à 100 K, donc à des pressions statiques voisines de 70 kPa à 320 kPa (Fig. 5).

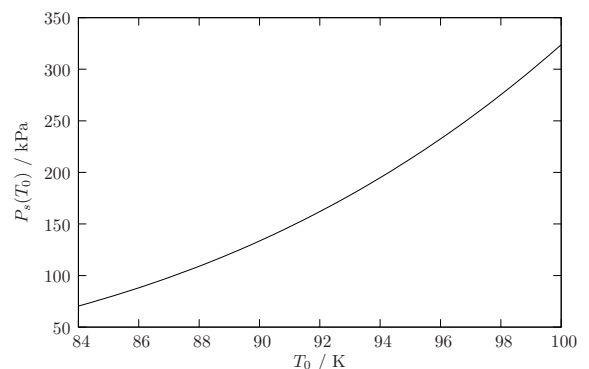


FIGURE 5 – Pression de vapeur saturante de l'argon en fonction de la température.

Le dispositif expérimental pour effectuer les mesures électromagnétiques et acoustiques ainsi que le maintien et le contrôle des conditions ambiantes est similaire à celui représenté Figure 3, à ceci près qu'il s'agit ici d'argon pur et que la température est stabilisée et maintenue dans la cavité quasi sphérique grâce à une circulation d'azote gazeux froid autour de l'enceinte pressurisée.

Pour chaque température T_0 , les mesures acoustiques seront effectuées à des pressions statiques P_0 variables allant d'environ $0,3P_s(T_0)$ à des valeurs les plus proches possibles

de la pression de vapeur saturante de l'argon $P_s(T_0)$ afin de déterminer la validité de la loi de comportement (7) de l'épaisseur d du film liquide en fonction du rapport $P_0/P_s(T_0)$, et éventuellement d'en proposer une nouvelle reposant sur des bases empiriques. L'objectif ici est de mieux comprendre et caractériser le phénomène de précondensation et son influence sur le mouvement acoustique dans des conditions expérimentales bien maîtrisées.

Les résultats obtenus seront mis en application, et certainement approfondis, dans le cadre d'une étude en cours au LNE-Cnam pour la mise au point d'un thermomètre acoustique à hélium pour la mesure de températures thermodynamiques en dessous de 4 K, donc dans des conditions où l'hélium est susceptible de se condenser sur les parois, entraînant d'importantes perturbations au champ acoustique dans la cavité. Une telle expérience pose de nombreux problèmes pratiques liés à la gamme de températures extrêmes (techniques et électronique de conditionnement propres à la cryogénie, basses pressions statiques, signaux de très faible amplitude), qui vont se superposer aux effets des phénomènes de précondensation dans la cavité.

Une des finalités importantes doit être d'effectuer des mesures dans de l'air humide, qui reste le mélange gaz-vapeur présentant le plus grand nombre d'applications potentielles. Cependant la mise en oeuvre de telles expériences pose d'importants problèmes pratiques, en grande partie parce cela nécessite des opérations de mélanges successifs, tout d'abord pour obtenir de l'air sec de composition connue, puis un mélange air-vapeur d'eau à différentes concentrations, la vapeur d'eau étant maintenue proche de son point de saturation, dans différentes conditions de température. Ainsi, l'étude expérimentale de champs acoustiques en mélanges gazeux sera dans un premier temps limitée à un approfondissement de l'expérience déjà menée à l'INRiM sur les mélanges d'hélium-argon et un prolongement sur les mélanges hélium-xénon, afin de valider les modèles proposés et d'explorer les possibilités de ces méthodes acoustiques et électromagnétiques en cavités pour déterminer les propriétés de mélanges gazeux (composition, propriétés de transport et de diffusion mutuelle, ...).

6 Conclusion

Les derniers modèles analytiques unifiés de propagation acoustique qui tiennent compte des effets couplés de diffusion thermique, de diffusion mutuelle et de changements de phases au niveau du film liquide qui recouvre la paroi solide en présence de phénomènes de précondensation. Ces modèles, qui donnent des résultats qualitatifs cohérents avec ceux déjà disponibles, demandent encore à être validés avec une précision expérimentale suffisante afin s'en prendre la pleine mesure.

Ces travaux ont des applications directes en métrologie des gaz et en physique fondamentale, les propriétés de transport et de diffusion mutuelle étant liées aux diamètres de collision et aux forces d'interaction moléculaires. Mais ils ouvrent également la voie vers des applications beaucoup plus larges, par exemple pour l'environnement par la mise au point de nouvelles techniques de contrôle temps réel de conditions atmosphériques, la thermoacoustique et l'acoustique en milieux poreux.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier Laurent Pitre (LNE-Cnam) pour ses conseils éclairés et son aide précieuse à la mise au point du dispositif expérimental.

Références

- [1] J. B. Mehl, M. R. Moldover, Precondensation phenomena in acoustic measurements, *Journal of Chemical Physics* **77**, 455–465 (1982).
- [2] Y. Mao, Sound attenuation in a cylindrical tube due to evaporation-condensation, *Journal of Acoustical Society of America* **104**, 664–670 (1998).
- [3] R. Raspet, C. J. Hickey, J. M. Sabatier, The effect of evaporation-condensation on sound propagation in cylindrical tubes using the low reduced frequency approximation, *Journal of Acoustical Society of America* **105**, 65–73 (1999).
- [4] G. W. Swift, P. S. Spoor, Thermal diffusion and mixtures separation in the acoustic boundary layer, *Journal of Acoustical Society of America* **106**, 1794–1800 (1999).
- [5] C. Guianvarc'h, M. Bruneau, Acoustic fields in binary gas mixtures : mutual diffusion effects throughout and beyond the boundary layers, *Journal of Acoustical Society of America* **131**, 4252 (2012).
- [6] C. Guianvarc'h, M. Bruneau, R. M. Gavioso, Acoustics and precondensation phenomena in gas-vapor saturated mixtures, *Physical Review E* **89**, 023208 (2014).
- [7] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, *Fluid mechanics*, Pergamon Press, Oxford (1982).
- [8] R. M. Gavioso, D. Madonna Ripa, C. Guianvarc'h et al, Shell Perturbations of an Acoustic Thermometer Determined from Speed of Sound in Gas Mixtures, *International Journal of Thermophysics* **31**, 1739–1748 (2010).
- [9] R. M. Gavioso, G. Benedetto, P. A. Giuliano Albo et al, A determination of the Boltzmann constant from speed of sound measurements in helium at a single thermodynamic state, *Metrologia* **47**, 387–409 (2010).
- [10] L. Pitre, F. Sparasci, D. Truong et al, Measurement of the Boltzmann constant k_B using a quasi-spherical acoustic resonator, *International Journal of Thermophysics* **32**, 1825–1886 (2011).
- [11] L. Pitre, C. Guianvarc'h, F. Sparasci et al, Progress towards an acoustic/microwave determination of the Boltzmann constant at LNE-INM/CNAM, *International Journal of Thermophysics* **29**, 1730–1739 (2008).