

# CFA/VISHNO 2016

## **Propagation d'Ondes Acoustiques dans les Milieux Poreux Adsorbants**

R. Venegas et C. Boutin

LGCB - UMR CNRS 5513 - CeLyA, Ecole Nationale des Travaux Publics de l'Etat, Rue Maurice Audin, 69518 Vaulx-En-Velin Cedex, France, Metropolitan  
rodolfogustavo.venegascastillo@entpe.fr



LE MANS

La propagation d'ondes acoustiques dans les milieux poreux conventionnels à structure rigide est affectée principalement par la viscosité et les transferts thermiques. Ce papier traite des propriétés acoustiques des milieux poreux au sein desquelles se développent des phénomènes d'adsorption et de diffusion, en plus des phénomènes physiques mentionnés ci-dessus. La méthode d'homogénéisation des milieux périodiques est utilisée pour établir la description macroscopique. Cette description permet de conclure que l'écoulement du fluide n'est ni affecté par l'adsorption ni par la diffusion. Par contre, la compressibilité dynamique du milieu est modifiée significativement. Plus précisément, la partie réelle du module d'incompressibilité dynamique à basse fréquence peut atteindre des valeurs plus faibles que celles des milieux poreux conventionnels, tandis que sa partie imaginaire est augmentée autour de la fréquence caractéristique de diffusion. En conséquence les ondes acoustiques sont ralenties et plus atténuées à basses fréquences. Ces résultats sont illustrés pour des milieux poreux ayant des morphologies différentes. De plus, les conditions qui maximisent l'influence de l'adsorption et de la diffusion sur la propagation des ondes acoustiques dans le milieu poreux sont également discutées.

## 1 Introduction

La dissipation de l'énergie sonore dans les matériaux poreux rigides conventionnels est affectée principalement par la viscosité du gaz et les transferts thermiques avec le squelette [1, 2]. Dans certaines circonstances détaillées dans ce travail, une troisième source de dissipation d'énergie associée à un mécanisme de sorption et diffusion de masse peut coexister. La sorption est un terme général qui désigne l'adsorption, la désorption, et l'absorption (pénétration du gaz dans la phase solide). L'adsorption est un phénomène de surface par lequel des molécules de gaz se fixent sur une paroi solide où elles se concentrent en un état local plus dense. La désorption est le phénomène inverse par lequel les molécules adsorbées s'en détachent [3]. L'adsorption/désorption s'accompagne de la diffusion qui gouverne le flux de molécules d'une région de concentration élevée à une région de concentration faible [3].

L'influence de l'adsorption et de la diffusion sur la propagation du son dans un tube a été étudiée dans [4]. Dans cet article, il est supposé que la compressibilité du fluide est affectée par l'augmentation de densité liée l'adsorption et que celle-ci se communique aux pores par diffusion. La principale conclusion présentée dans [4] est que les contributions à la dissipation dues à la viscosité, à la conduction de la chaleur, et à la diffusion de masse induite par l'adsorption se cumulent et sont du même type général. Des conclusions similaires ont été obtenues dans [5], où l'influence de l'adsorption et de la diffusion sur la propagation du son à travers de deux plaques micro-poreuses adsorbantes infinies a été étudié. Cependant, l'applicabilité de ces modèles à matériaux poreux est limitée et leurs domaines de validité n'ont pas été rigoureusement établis.

Par ailleurs, l'adsorption a été considérée comme un phénomène physique possible permettant d'expliquer les propriétés acoustiques inhabituelles du charbon actif granulaire [6, 7, 8]. La particularité du charbon actif est que sa compressibilité à basse fréquence atteint une valeur supérieure à la valeur isotherme prédite par la théorie actuelle de l'acoustique des milieux poreux. Dans [6] il a été suggéré que les écarts peuvent être expliqués par l'addition d'une micro-échelle supplémentaire et d'un phénomène d'adsorption à cette échelle. Cette idée a été développée dans [7] où l'effet de l'adsorption a été inclus dans un modèle multi-échelle de propagation du son à travers du charbon actif. Cependant, ce modèle suppose que la diffusion se produit instantanément. Cette hypothèse est relaxée dans le présent travail.

Ce papier traite des propriétés acoustiques de milieux

poreux au sein desquels se développent des phénomènes d'adsorption et de diffusion, en plus des phénomènes de viscosité et de transferts thermiques. La description macroscopique est établie par méthode d'homogénéisation des milieux périodiques [9] en section 2. Les paramètres effectifs sont analysés en section 3. Les résultats sont illustrés pour différentes morphologies de milieux poreux dans la section 4, et ils sont discutés en conclusion.

## 2 Homogénéisation de l'acoustique des matériaux adsorbants

Considérons un milieu poreux périodique hiérarchique à structure rigide saturé par un gaz Newtonien. La Figure 1 montre un diagramme des échelles du matériau et des descripteurs géométriques pertinents. La longueur

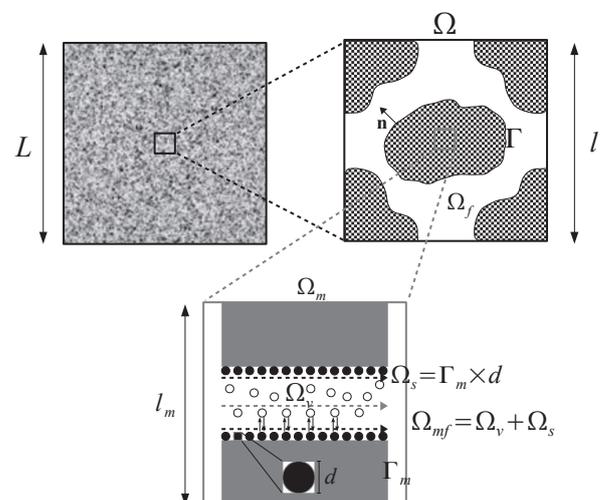


FIGURE 1 – Échelles d'un matériau poreux hiérarchique adsorbant.

caractéristique macroscopique  $L$  est liée à la longueur d'onde  $\lambda$  par la relation  $L = |\lambda|/2\pi$ . La longueur caractéristique associée aux pores (ou la période de la microstructure) est notée  $l$ . Le volume des pores et du Volume Élémentaire Représentatif (VER) sont  $\Omega_f$  et  $\Omega$ , respectivement. Le domaine  $\Omega_m$ , de longueur caractéristique  $l_m$ , représente un matériau homogénéisé avec des micropores au sein desquelles se développent des phénomènes d'adsorption et de diffusion. Le processus de diffusion se décompose en la diffusion dans les micropores  $D_m$  et la diffusion de surface  $D_s$  (représentées sur la Figure 1 par les lignes grises et

noires horizontales en pointillés, respectivement). L'échange de masse entre le gaz (cercles creux) et la phase adsorbée (cercles noirs) est représenté par les lignes verticales avec des flèches. Les deux phases sont supposées être à l'équilibre. Le volume de la phase adsorbée est noté  $\Omega_s = \Gamma_m N d$ , où  $\Gamma_m$  est la surface spécifique des micropores,  $d$  le diamètre des molécules, et  $N$  le nombre de couches. Il est supposé que  $N = 1$ , i.e. une couverture adsorbée monocouche. L'espace disponible pour le transport de molécules libres est noté  $\Omega_v$ . La porosité totale du matériau est  $\Phi = \phi + (1 - \phi)\phi_m$ , où  $\phi = \Omega_f/\Omega$  et  $\phi_m = \Omega_{mf}/\Omega_m$  sont la porosité associée aux pores et aux micropores, respectivement. La disparité des échelles s'exprime par un petit paramètre  $\epsilon = l/L \ll 1$ . En outre, on suppose que  $l_m/l \ll 1$  et  $d/l_m < 1$ .

La propagation d'ondes acoustiques au travers d'un matériau à simple porosité est déterminée, à l'échelle des pores, par les équations linéarisées, en régime harmonique ( $e^{j\omega t}$ ), de conservation de la quantité de mouvement, de la masse, et de l'énergie; ainsi que par l'équation d'état d'un gaz parfait [1, 2, 9]. Ces équations sont complétées par les conditions limites isotherme et d'adhérence sur  $\Gamma$ . Pour modéliser les effets de l'adsorption et de la diffusion, ces équations doivent être couplées à celles décrivant ces phénomènes. En particulier la condition limite d'adhérence doit être modifiée.

L'équation constitutive de flux incluant les phénomènes de la diffusion de surface et de la diffusion dans les micropores est donnée par [3] :

$$J = -\phi_m \varphi D_m \nabla c_m - \phi_m (1 - \varphi) D_s \nabla c_s \quad , \quad (1)$$

où  $c_m$  et  $c_s$  sont la concentration du gaz et de la phase adsorbée respectivement. La portion d'espace du matériau micro-poreux disponible pour le transport de molécules libres est défini comme  $\varphi = \Omega_v/\Omega_{mf}$ . De manière similaire,  $(1 - \varphi) = \Omega_s/\Omega_{mf}$  représente l'espace disponible pour le transport de molécules adsorbées. Le bilan de masse dans l'espace microporeux fournit l'équation suivante dans  $\Omega_m$  :

$$j\omega \phi_m (\varphi c_m + (1 - \varphi) c_s) = \phi_m \varphi D_m \nabla^2 c_m + \phi_m (1 - \varphi) D_s \nabla^2 c_s. \quad (2)$$

La phase adsorbée est supposée en équilibre dynamique avec la phase gazeuse. Cette hypothèse est valable lorsque la cinétique d'adsorption locale est plus rapide que la diffusion. Cette situation se rencontre communément dans des solides micro-poreux et est justifié par le fait que les temps de séjour de l'adsorption physique varient de  $10^{-13}$  à  $10^{-9}$  s [3]. La relation d'équilibre entre les deux phases est donc donnée par l'isotherme locale de sorption, soit :

$$c_s = H c_m \quad \text{dans} \quad \Omega_m \quad , \quad (3)$$

où  $H$  est la constante de Henry. Cette constante adimensionnelle mesure la concentration de la phase adsorbée par rapport celle de la phase gazeuse.

La substitution de l'Eq. (3) dans (2) et l'écriture de la concentration  $c_m$  en terme de densité  $\rho_m$  permet d'obtenir l'équation de Fick suivante :

$$j\omega \rho_m H_e = D_e \nabla^2 \rho_m \quad \text{dans} \quad \Omega_m \quad , \quad (4)$$

où  $D_e = \phi_m (\varphi D_m + (1 - \varphi) D_s H)$  est la diffusivité effective, et  $H_e = \phi_m (\varphi + (1 - \varphi) H)$  est la constante de stockage effective.

De plus, on suppose qu'en compression (raréfaction) le gaz saturant à proximité des parois des pores augmente

(diminue) localement la densité du gaz dans le domaine micro-poreux [5]. Dans ce processus, le flux de masse total est égal à zéro, soit

$$\rho_0 \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = D_e \nabla \rho_m \cdot \mathbf{n} \quad \text{sur} \quad \Gamma, \quad (5)$$

où  $\rho_0$  est la densité d'équilibre et  $\mathbf{u}$  est la vitesse du fluide. Cette condition limite associée à la condition de vitesse tangentielle nulle sur  $\Gamma$  remplacent la condition limite usuelle d'adhérence.

La description locale est complétée par la condition de pression,  $p_m = p$  sur  $\Gamma$ . En terme de densité  $\rho_m$  cette condition limite s'écrit de la manière suivante ( $P_0$  est la pression d'équilibre) :

$$\rho_m = \rho_0 p / P_0 \quad \text{sur} \quad \Gamma \quad . \quad (6)$$

On notera de plus que comme l'impédance thermique du solide est nettement inférieure à celle du fluide la condition limite isotherme reste valable.

L'analyse de la physique et les estimations des nombres adimensionnels est effectuée en prenant la longueur caractéristique macroscopique  $L$  comme longueur de référence. L'estimation des nombres adimensionnels qui permet la normalisation des équations de conservation de la quantité de mouvement, de la masse, de l'énergie et de l'équation d'état d'un gaz parfait est un résultat classique (voir par exemple [1, 9]). La diffusion de masse varie à l'échelle des pores, i.e.  $O(\omega \rho_m H_e) = O(D_e \rho_m / l^2)$ . En conséquence,  $\mathcal{D}_L = |j\omega \rho_m H_e| / |D_e \nabla^2 \rho_m| = O(\omega \rho_m H_e / D_e \rho_m / L^2) = O(\epsilon^{-2})$ . D'autre part, les termes dans l'équation (6) sont de même ordre de grandeur, i.e.  $O(P_0 \rho_m / \rho_0 p) = O(1)$ . L'estimation du nombre adimensionnel  $\mathcal{J}$  qui concerne le rapport entre les fluxes de masse par advection et par diffusion dans l'équation (5) s'obtient de la manière suivante. De l'équation de conservation de la quantité de mouvement on déduit que  $O(L \eta u / l^2 p) = O(1)$ , où  $\eta$  est la viscosité dynamique. En conséquence, le ratio entre la vitesse et la densité  $\rho_m$  est estimé par  $O(u / \rho_m) = O(l^2 P_0 / \eta L \rho_0)$ . Donc l'estimation de  $\mathcal{J}_L$  est donnée par :

$$\mathcal{J}_L = \frac{|\rho_0 \mathbf{u}|}{|D_e \nabla \rho_m|} = O\left(\frac{u}{\rho_m} \frac{L \rho_0}{D_e}\right) = O\left(l^2 \frac{P_0}{\eta D_e}\right) \quad (7)$$

Afin d'estimer l'ordre de grandeur de  $D_e$ , on notera que  $D_m$  est généralement plus grand que  $D_s$ . On peut donc considérer que la diffusion effective est dominée par  $D_m$ , à condition que  $\varphi D_m \gg (1 - \varphi) D_s H$ . En fonction de la taille des micropores,  $D_m$  est soit de l'ordre de l'auto-diffusivité  $D_{sf}$  soit de la diffusivité de Knudsen  $D_K$ . Pour le matériau en considération,  $D_m \approx D_K = \frac{1}{3} l_m v_T$ , où  $v_T = \sqrt{8 k_B T_0 / \pi m}$  est la vitesse moyenne des molécules (laquelle est d'ordre de la vitesse du son dans le gaz saturant  $c_0$ ),  $k_B$  la constante de Boltzmann, et  $m$  la masse moléculaire. D'autre part, la viscosité est liée à  $v_T$  et au libre parcours moyen  $\ell$  par la relation  $2\eta = \rho_0 \ell v_T \sqrt{3\pi/8}$ . Nous avons donc  $P_0 / \eta D_e = O(l_m^{-1} \ell^{-1})$  avec  $l_m = O(\ell)$ . Enfin, l'estimation de  $\mathcal{J}_L$ , qui établit le domaine de validité de la description macroscopique recherchée, est donc :

$$\mathcal{J}_L = O(l^2 l_m^{-2}) = O(\epsilon^{-2}) \quad (8)$$

Au bilan, la description locale adimensionnelle de la propagation des ondes acoustiques dans les matériaux adsorbants est donnée par :

$$\epsilon^2 \eta \nabla^2 \mathbf{u} - \nabla p = j\omega \rho_0 \mathbf{u} \quad (9)$$

$$j\omega\rho + \rho_0\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (10)$$

$$\epsilon^2\kappa\nabla^2\tau = j\omega C_p\rho_0\tau - j\omega p \quad (11)$$

$$p/P_0 = \rho/\rho_0 + \tau/\tau_0 \quad (12)$$

$$\epsilon^2 D_e \nabla^2 \rho_m = j\omega \rho_m H_e \quad (13)$$

$$\rho_0 \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = \epsilon^2 D_e \nabla \rho_m \cdot \mathbf{n} \quad \text{sur } \Gamma \quad (14)$$

$$\rho_m = \rho_0 p/P_0 \quad \text{et} \quad \tau = 0 \quad \text{sur } \Gamma. \quad (15)$$

Les équations (9)-(12) sont définies dans  $\Omega_f$ , tandis que l'équation (13) l'est dans  $\Omega_m$ . Dans ces équations,  $\kappa$ ,  $C_p$ ,  $\rho$ ,  $\tau$ , et  $\tau_0$  représentent la conductivité thermique, la capacité calorifique du gaz à pression constante, les variations de masse volumique et de température et la température d'équilibre, respectivement. D'autre part, les variables spatiales sont définies par  $y = \mathbf{X}/l$  et  $x = \mathbf{X}/L$ , où  $\mathbf{X}$  est la variable physique spatiale du système. Les opérateurs différentiels dans les équations ci-dessus prennent la forme  $\nabla = \nabla_x + \epsilon^{-1}\nabla_y$  et  $\nabla^2 = \nabla_x^2 + 2\epsilon^{-1}\nabla_{xy} + \epsilon^{-2}\nabla_y^2$ . Les variables physiques sont cherchées sous la forme d'un développement asymptotique en puissances de  $\epsilon$ , soit  $\Xi(x, y) = \sum_{i=0}^{\infty} \epsilon^i \Xi^{(i)}(x, y)$ , où  $\Xi = p, \mathbf{u}, \tau, \rho, \rho_m$ . Ensuite, les développements sont introduits dans les Eqs. (9)-(15) et les termes du même ordre de grandeur sont identifiés. De l'Eq. (9), à  $\epsilon^{-1}$ , on obtient  $\nabla_y p^{(0)} = 0$ , c'est-à-dire que la pression est une variable macroscopique, i.e.  $p^{(0)} = p^{(0)}(x)$ . Les ordres suivants du développement fournissent les problèmes suivants :

À  $\epsilon^0$ , le problème d'écoulement est donné par :

$$\eta \nabla_y^2 \mathbf{u}^{(0)} - \nabla_y p^{(1)} = j\omega \rho_0 \mathbf{u}^{(0)} + \nabla_x p^{(0)} \quad \text{dans } \Omega_f \quad (16)$$

$$\nabla_y \cdot \mathbf{u}^{(0)} = 0 \quad \text{dans } \Omega_f \quad (17)$$

$$\mathbf{u}^{(0)} = \mathbf{0} \quad \text{sur } \Gamma \quad (18)$$

À  $\epsilon^0$ , le problème de la conduction de la chaleur est donné par :

$$\kappa \nabla_y \cdot \nabla_y \tau^{(0)} = j\omega C_p \rho_0 \tau^{(0)} - j\omega p^{(0)} \quad \text{dans } \Omega_f \quad (19)$$

$$\tau^{(0)} = 0 \quad \text{sur } \Gamma \quad (20)$$

À  $\epsilon^0$ , le problème de diffusion est donné par :

$$D_e \nabla_y \cdot \nabla_y \rho_m^{(0)} = j\omega \rho_m^{(0)} H_e \quad \text{dans } \Omega_m \quad (21)$$

$$\rho_m^{(0)} = \rho_0 p^{(0)}/P_0 \quad \text{sur } \Gamma \quad (22)$$

Les autres équations qui seront utilisées dans le processus d'homogénéisation sont les équations d'état et de bilan de masse à  $\epsilon^0$ , et la condition limite (14) à  $\epsilon^1$ , soit

$$p^{(0)}/P_0 = \rho^{(0)}/\rho_0 + \tau^{(0)}/\tau_0 \quad \text{dans } \Omega_f \quad (23)$$

$$j\omega \rho^{(0)} + \rho_0 (\nabla_x \cdot \mathbf{u}^{(0)} + \nabla_y \cdot \mathbf{u}^{(1)}) = 0 \quad \text{dans } \Omega_f \quad (24)$$

$$\rho_0 \mathbf{u}^{(1)} \cdot \mathbf{n} = D_e \nabla_y \rho_m^{(0)} \cdot \mathbf{n} \quad \text{sur } \Gamma \quad (25)$$

Il convient de souligner que les trois problèmes sont découplés. Le problème d'écoulement, i.e. Eqs. (16)-(18), et de la conduction de la chaleur, i.e. Eqs. (19)-(20), correspondent au cas classique de la propagation du son dans les matériaux non-adsorbants. La solution de ces problèmes est donnée par [1, 2, 9] :

$$\mathbf{u}^{(0)} = -\frac{\bar{\mathbf{k}}(y, \omega)}{\eta} \cdot \nabla_x p^{(0)} \quad (26)$$

$$p^{(1)} = -\bar{\pi}(y, \omega) \cdot \nabla_x p^{(0)} + \bar{p}^{(1)}(x) \quad (27)$$

$$\tau^{(0)} = \frac{\bar{\theta}(y, \omega)}{\kappa} j\omega p^{(0)} \quad (28)$$

où  $\bar{\mathbf{k}}(y, \omega)$  et  $\bar{\theta}(y, \omega)$  sont  $\Omega$ -périodique et représentent les champs locaux de vitesse et température, respectivement.

Le problème de diffusion, i.e. Eqs.(21)-(22), est formellement identique au problème de diffusion de pression dans les matériaux à double porosité avec un fort contraste de perméabilité [10, 11]. En conséquence, la solution est donnée par :

$$\rho_m^{(0)} = \frac{\rho_0}{P_0} p^{(0)} \left( 1 - \frac{j\omega \bar{g}(y, \omega)}{D_{app}} \right), \quad (29)$$

où  $\bar{g}(y, \omega)$  est  $\Omega$ -périodique et représente la distribution microscopique de densité dynamique diffusée. La diffusivité apparente  $D_{app}$  est donnée par :

$$D_{app} = D_e H_e^{-1} = (\varphi D_m + (1 - \varphi) D_s H) / (\varphi + (1 - \varphi) H) \quad (30)$$

La description macroscopique est obtenue comme suit. Premièrement, le bilan de masse (24) est intégré sur le VER :

$$\frac{1}{\Omega} \int_{\Omega_f} \frac{j\omega \rho^{(0)}}{\rho_0} + \nabla_x \cdot \mathbf{u}^{(0)} d\Omega + \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega_f} \nabla_y \cdot \mathbf{u}^{(1)} d\Omega = 0 \quad (31)$$

Étudions la seconde intégrale (notée  $I$ ). En appliquant le théorème de la divergence, puis en utilisant la condition limite (25) on notera que l'intégrale est nulle sur les limites périodiques. Ainsi l'intégrale  $I$  devient :

$$I = \frac{1}{\Omega} \int_{\Gamma} \mathbf{u}^{(1)} \cdot \mathbf{n} d\Gamma = \frac{1}{\Omega} \int_{\Gamma} \frac{D_e}{\rho_0} \nabla_y \rho_m^{(0)} \cdot \mathbf{n} d\Gamma \quad (32)$$

En appliquant de nouveau le théorème de la divergence et en utilisant l'équation (21), on obtient :

$$I = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega_m} \frac{D_e}{\rho_0} \nabla_y \cdot \nabla_y \rho_m^{(0)} d\Omega = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega_m} \frac{j\omega \rho_m^{(0)} H_e}{\rho_0} d\Omega \quad (33)$$

Cette expression remplacée dans l'équation (31) conduit à :

$$j\omega \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega_f} \frac{\rho^{(0)} + H_e \rho_m^{(0)}}{\rho_0} d\Omega + \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega_f} \nabla_x \cdot \mathbf{u}^{(0)} d\Omega = 0 \quad (34)$$

En utilisant les équations (23) et (26), les expressions de  $\tau^{(0)}$  et  $\rho_m^{(0)}$  (Eqs. (28) et (29), respectivement), et l'identité thermodynamique  $P_0/\tau_0 = \rho_0 C_p (\gamma - 1)/\gamma$ , où  $\gamma$  est l'indice adiabatique ; on obtient finalement la description macroscopique :

$$\nabla_x \cdot \langle \mathbf{u}^{(0)} \rangle + j\omega p^{(0)} E^{-1}(\omega) = 0 \quad (35)$$

$$\langle \mathbf{u}^{(0)} \rangle = -\frac{\mathbf{k}(\omega)}{\eta} \cdot \nabla_x p^{(0)} \quad (36)$$

où  $\langle \cdot \rangle = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega_f} \cdot d\Omega$ . La perméabilité dynamique  $\mathbf{k}(\omega)$  est définie par  $\mathbf{k}(\omega) = \langle \bar{\mathbf{k}}(y, \omega) \rangle$ . Le module d'incompressibilité  $E(\omega)$  est la moyenne géométrique du module classique incluant les effets de transfert thermiques,  $E_t(\omega)$ , et d'un module supplémentaire qui résulte du mécanisme de diffusion adsorption,  $E_{ds}(\omega)$ , i.e.

$$E^{-1}(\omega) = E_t^{-1}(\omega) + E_{ds}^{-1}(\omega) \quad (37)$$

$$E_t(\omega) = \frac{\gamma P_0}{\phi \left( \gamma - j\omega \rho_0 C_p (\gamma - 1) \frac{\Theta(\omega)}{\phi \kappa} \right)} \quad (38)$$

$$E_{ds}(\omega) = \frac{\gamma P_0}{\phi \left( \gamma M_h \left( 1 - \frac{j\omega G(\omega)}{(1-\phi)D_{app}} \right) \right)} \quad (39)$$

La perméabilité thermique est définie par  $\Theta(\omega) = \langle \bar{\theta}(y, \omega) \rangle$ , et la fonction de diffusion par  $G(\omega) = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega_m} \bar{g}(y, \omega) d\Omega$ . Le rapport des concentrations dans les micropores et les pores,  $M_h$ , est donné par :

$$M_h = \frac{(1-\phi)H_e}{\phi} = \frac{(1-\phi)\phi_m(\varphi + (1-\varphi)H)}{\phi} \quad (40)$$

Pour un matériau isotrope, la perméabilité dynamique devient  $\mathbf{k} = \mathcal{K}\mathbf{I}$ , où  $\mathbf{I}$  est le tenseur du second ordre unitaire. En conséquence, le nombre d'onde  $k_c$  et la vitesse du son  $C$  sont donnés par :

$$k_c(\omega) = \omega \sqrt{\frac{\eta}{j\omega \mathcal{K} E}} \quad ; \quad C(\omega) = \frac{\omega}{k_c(\omega)}, \quad (41)$$

En résumé, la description macroscopique obtenue montre que le phénomène de diffusion/adsorption ne modifie pas l'écoulement macroscopique. Par contre, le module d'incompressibilité dynamique est significativement modifié. Ceci est analysé dans le paragraphe suivante.

### 3 Analyse des paramètres effectifs

Le comportement en fréquence de  $E_t(\omega)$  est déterminé par celui de la perméabilité thermique  $\Theta(\omega)$ . La fréquence caractéristique,  $\omega_t$ , qui détermine la transition entre propagation isotherme ou adiabatique du son et les comportements asymptotiques de  $\Theta(\omega)$  sont donnés par [2, 9] :

$$\omega_t = \frac{\phi \kappa}{\rho_0 C_p \Theta_0} \quad ; \quad \Theta_{(\omega \ll \omega_t)} = \Theta_0 \quad ; \quad \Theta_{(\omega \gg \omega_t)} = -j\phi \delta_t^2 \quad (42)$$

où  $\Theta_0$  est la perméabilité thermique statique et  $\delta_t = \sqrt{\kappa/\rho_0 C_p \omega}$  est l'épaisseur de couche limite thermique. En conséquence, les valeurs asymptotiques de  $E_t(\omega)$  sont :

$$E_{t(\omega \ll \omega_t)} = \frac{P_0}{\phi \left( 1 - \frac{\gamma-1}{\gamma} \frac{j\omega}{\omega_t} \right)} \quad ; \quad E_{t(\omega \gg \omega_t)} = \frac{\gamma P_0}{\phi} \quad (43)$$

De manière similaire, le comportement fréquentiel de  $E_{ds}(\omega)$  est dicté par celui de  $G(\omega)$ , lequel est déterminé par la fréquence caractéristique de diffusion  $\omega_d$ , i.e.

$$\omega_d = (1-\phi) \frac{D_{app}}{G_0} \quad (44)$$

$$G_{(\omega \ll \omega_d)} = G_0 \quad ; \quad G_{(\omega \gg \omega_d)} = -j(1-\phi)\delta_d^2 \quad (45)$$

Où  $G_0$  est la valeur statique de la fonction de diffusion et  $\delta_d = \sqrt{D_{app}/\omega}$  est l'épaisseur de couche limite diffusive. Donc,  $E_{ds}(\omega)$  varie comme suit :

$$E_{ds(\omega \ll \omega_d)} = \frac{P_0}{\phi M_h \left( 1 - \frac{j\omega}{\omega_d} \right)} \quad ; \quad E_{ds(\omega \gg \omega_t)} \rightarrow \infty \quad (46)$$

De Eqs. (43)-(46), on déduit le comportements limites suivant de  $E(\omega)$  :

$$E_{(\omega \ll \omega_d)} = \frac{P_0}{\phi(1+M_h - \frac{j\omega}{\omega_d})} \quad ; \quad E_{(\omega \gg \omega_t)} = \frac{\gamma P_0}{\phi}, \quad (47)$$

où la fréquence caractéristique thermo-diffuse  $\omega_{td}$  est définie par :

$$\frac{1}{\omega_{td}} = \frac{\gamma-1}{\gamma} \frac{1}{\omega_t} + M_h \frac{1}{\omega_d} \quad (48)$$

De Eq.(47), on conclut que la valeur statique du module d'incompressibilité en présence d'adsorption est donnée par :

$$E(\omega \rightarrow 0) = \frac{P_0}{\phi(1+M_h)} \quad (49)$$

Cette équation montre que le module d'incompressibilité dynamique à basse fréquence peut atteindre des valeurs plus faibles que celles des milieux poreux conventionnels. Un tel comportement anormal a été observé expérimentalement dans le charbon actif [6, 7, 8].

De manière générale, le module d'incompressibilité se réduit à celui de un matériau à simple porosité  $E(\omega) = E_t(\omega)$  lorsque  $\phi_m = 0$ , i.e.  $M_h \rightarrow 0$  et  $E(\omega \rightarrow 0) = P_0/\phi$ . Le cas de la diffusion sans adsorption est obtenu lorsque les concentrations des phases adsorbées et gazeuses sont identiques ( $H = 1$ ) ou lorsque le nombre de couches est nul ( $N = 0$ ). Dans ce cas, le module d'incompressibilité réduit à celui d'un matériau à double porosité avec diffusivité effective  $D_e = D_m$  et  $M_h(H = 1) = M_h(N = 0) = (1-\phi)\phi_m/\phi$ . Donc à basse fréquence,  $E(\omega \rightarrow 0) = P_0/\Phi$ . Il convient de mentionner que si la diffusivité effective est donnée par  $D_e = P_0 k_{m0}/\phi_m \eta$ , où  $k_{m0}$  est la perméabilité des micropores, la description macroscopique proposée dans ce travail coïncide avec celle des matériaux à double porosité avec un fort contraste de perméabilité [10, 11]. Ce résultat est justifié par le fait que dans ces matériaux le rapport meso/micro de flux de masse est estimée par  $\rho_0 u_p/\rho_0 u_m = \mathcal{K}_p/\mathcal{K}_m = O(\epsilon^{-2})$ . Cette estimation est identique à celle du rapport des flux de masse  $\mathcal{J}_L$  dans Eq. (8). On notera que bien que la physique examinée soit différente, la description macroscopique obtenue est similaire.

Par ailleurs, la perméabilité n'est ni affectée par l'adsorption ni par la diffusion (tant que  $\mathcal{J}_L = O(\epsilon^{-2})$ ). En conséquence, ses propriétés sont les mêmes que celles d'un matériau conventionnel, i.e.  $\mathcal{K}(\omega \rightarrow 0) = \mathcal{K}_0$  et  $\mathcal{K}(\omega \rightarrow \infty) = \phi\eta/j\omega\rho_0\alpha_\infty$ , où  $\alpha_\infty$  est la tortuosité [1]. Les comportements asymptotiques de  $E(\omega)$  et  $\mathcal{K}(\omega)$ , permettent d'établir que la vitesse du son et le nombre d'onde à basse fréquence tendent vers :

$$C(\omega \rightarrow 0) = \frac{C_{0\phi}}{\sqrt{1+M_h}} = \frac{C_{0\Phi}}{\sqrt{\phi(1+M_h)/\Phi}} \quad (50)$$

$$k_c(\omega \rightarrow 0) = k_{c0\phi} \sqrt{1+M_h} = k_{c0\Phi} \sqrt{\phi(1+M_h)/\Phi} \quad (51)$$

Cette expressions montre que les ondes acoustiques sont ralenties et plus atténuées à basses fréquences par un facteur  $\sqrt{1+M_h}$  et  $\sqrt{(\phi/\Phi)(1+M_h)}$  par rapport aux matériaux à simple (indice  $\phi$ ) et à double porosité (indice  $\Phi$ ), respectivement. À haute fréquence la contribution de la diffusion et de l'adsorption est négligeable. En conséquence,  $k_c(\omega \rightarrow \infty) = \omega/C_{\infty\phi} = \omega/C_{\infty\Phi} = \sqrt{\alpha_\infty\omega}/c_0$ , où  $c_0 = \sqrt{\gamma P_0/\rho_0}$  est la vitesse du son dans le gaz saturant.

### 4 Modèles et résultats

Supposons que les micropores sont cylindriques (de rayon  $r_m$ ) et que la diffusivité des micropores est estimée

par la diffusivité de Knudsen, i.e.  $D_m = D_K = 2r_m v_T / 3$ . Puisque le ratio  $\Gamma_m / \Omega_{mf}$  est inversement proportionnel à  $l_m$ , la fraction d'espace du matériau micro-poreux disponible pour le transport de molécules libres est approchée par  $\varphi = 1 - Nd/r_m$ , (avec  $N = 1$ ). La diffusivité de surface est estimée suivant [3] par  $D_s = v_T \zeta \exp(E_j / R_g \tau_0) / 4$ , où  $\zeta$  est la distance entre les sites adjacents (laquelle est voisine du diamètre des molécules, i.e.  $\zeta \approx d$ ),  $R_g$  est la constante du gaz et  $E_j$  est l'énergie d'activation nécessaire pour un saut.  $E_j$  vaut approximativement le tiers de la chaleur d'adsorption [3], laquelle est de l'ordre de 20-40 kJ/kg. Une valeur  $E_j = 20$  kJ/kg sera utilisée ici.

La perméabilité visqueuse et thermique et la fonction de diffusion pour un matériau adsorbant avec pores formés de fissures planes ("slit" pores) de demi-largeur  $h$  et porosité  $\phi$  sont données par :  $\mathcal{K}(\omega) = \chi(h, \phi, \delta_v)$ ,  $\Theta(\omega) = \chi(h, \phi, \delta_t)$ , et  $G(\omega) = \chi(h(1 - \phi)/\phi, (1 - \phi), \delta_d)$ , où  $\delta_v = \sqrt{\eta/\rho_0 \omega}$  est l'épaisseur de couche limite visqueuse. Les valeurs statiques sont  $\mathcal{K}_0 = \Theta_0 = \phi h^2 / 3$  et  $G_0 = (1 - \phi)^3 h^2 / 3\phi^2$ , et  $\chi$  vaut :

$$\chi(x, \vartheta, \delta) = -j\vartheta\delta^2 \left( 1 - \frac{\tanh(\sqrt{j}x\delta^{-1})}{\sqrt{j}x\delta^{-1}} \right), \quad (52)$$

Pour des contraintes de place les expressions pour d'autres géométries de pores ne sont pas écrites. Pour un matériau de porosité  $\phi$  ayant des pores cylindriques (de rayon  $R_p$ ), les perméabilités sont calculées par Eq. 24 dans [6] et  $G(\omega)$  est déterminé en remplaçant  $s\sqrt{N_{pr}}$  par  $\sqrt{j}R_p/\delta_d$  et  $\phi$  par  $(1 - \phi)$  dans Eq. 3.52 dans [7]. La valeur statique est  $G_0 = R_p^2(-\ln \phi - 3/2 + 2\phi - \phi^2/2)/4\phi$ . Pour un matériau granulaire (avec rayon de la particule  $R_g$  et porosité  $\phi$ ), les perméabilités sont calculées par Eq. 28 et 52 dans [12] et  $G(\omega)$  par Eq. 5.122 dans [7]. La valeur statique est  $G_0 = (1 - \phi)R_g^2/15$ .

La Figure 1 montre le module d'incompressibilité pour un matériau avec des pores formés de fissures planes. Les paramètres du matériau sont  $h = 10\mu\text{m}$ ,  $\phi = 0.4$ ,  $r_m = 10\text{nm}$ ,  $\phi_m = 0.1$ , et  $H = 250$  (on notera que  $H$  varie entre 10 et  $10^4$  [3]). Le fluide saturant est l'air ( $d = 3.8\text{\AA}$ ). On observe que l'adsorption induit trois effets : i) elle réduit la partie réelle du module d'incompressibilité dynamique à basses fréquences [cf. Eq. 49], ii) elle réduit la diffusivité apparente et, de ce fait, diminue la fréquence caractéristique de diffusion [cf. Eq. 44], et iii) elle augmente la partie imaginaire de  $E(\omega)$  [cf. le produit  $M_h G(\omega)$  dans Eq. 39] et, par conséquent, elle augmente l'atténuation causée par la diffusion. Ces effets se traduisent par une diminution de la vitesse du son et une augmentation de l'atténuation, comme prévu par les équations (50)-(51) et présenté sur les Figures 3 et 4, respectivement.

Le module d'incompressibilité pour des matériaux ayant différentes morphologies est présenté en Figure 5. Le rayon des pores pour un matériau à pores cylindriques est  $R_p = h$ , tandis que le rayon de la particule du matériau granulaire est choisi de telle sorte que la taille des vides intergranulaires est comparable à  $h$  et  $R_p$ , i.e.  $R_g = h\beta/(1 - \beta)$ , où  $\beta = (1 - \phi)^{1/3}$ . Les autres paramètres sont maintenus constants. Comme prévu,  $E(\omega \rightarrow 0)$  ne varie pas avec la longueur caractéristique de la géométrie des pores car il ne dépend que de la porosité. Cependant, la fréquence caractéristique de diffusion est affectée de manière significative en raison de la forte dépendance de  $G_0$  avec les descripteurs géométriques. Par exemple, le rapport des fréquences caractéristiques de diffusion d'un

matériau granulaire et d'un matériau à fissures planes est donné par  $\omega_d^g/\omega_d^s = 5((1 - \phi)h/\phi R_g)^2$ . Avec les paramètres des matériaux ci-dessus ce rapport vaut 0.387. De manière similaire ce ratio pour des matériaux à pores cylindriques et à fissures planes est  $\omega_d^c/\omega_d^s = 5.28$ . L'influence de la morphologie peut donc être très forte.

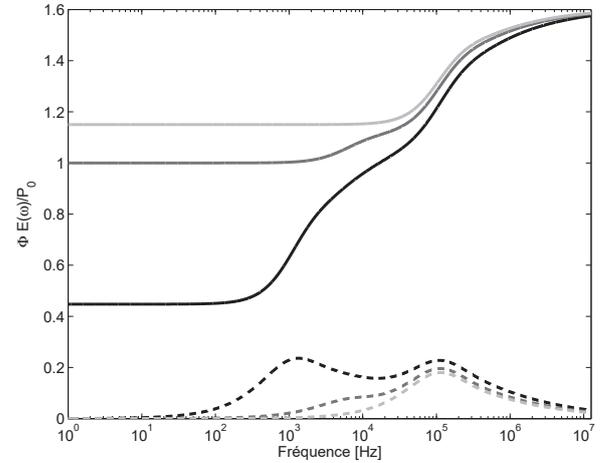


FIGURE 2 – Module d'incompressibilité normalisé  $\Phi E(\omega)/P_0$  pour un matériau avec des pores formés de fissures planes. Matériaux adsorbant (lignes noires) et non-adsorbant à double (lignes grises) et à simple (lignes grises claires) porosité. Ligne continue : partie réelle. Ligne pointillée : partie imaginaire.

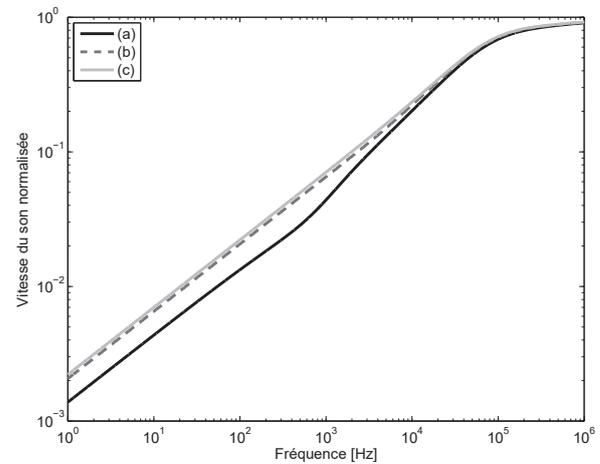


FIGURE 3 – Vitesse du son normalisée  $C(\omega)/c_0$  pour un matériau avec des pores formés de fissures planes. Matériaux adsorbant (a) et non-adsorbant à double (b) et à simple (c) porosité.

## 5 Conclusion

La propagation d'ondes acoustiques en milieux poreux adsorbant à structure rigide a été étudiée. La méthode d'homogénéisation des milieux périodiques a permis d'établir la description macroscopique. Celle-ci montre que l'écoulement du fluide n'est affecté par ni l'adsorption ni par la diffusion, à condition que le rapport de fluxes de masse par advection et par diffusion soit de l'ordre  $\mathcal{J}_L = O(\epsilon^{-2})$ . Par contre, la compressibilité dynamique du milieu est modifiée significativement. Au niveau microscopique,

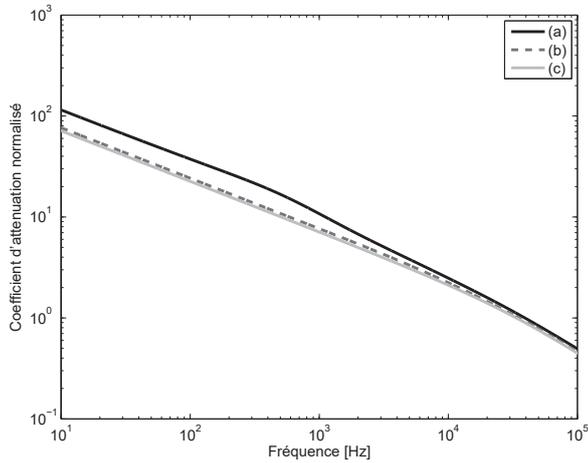


FIGURE 4 – Coefficient d'atténuation normalisé  $-c_0 \text{Im}(k_c(\omega))/\omega$ . Légende comme Figure 3.

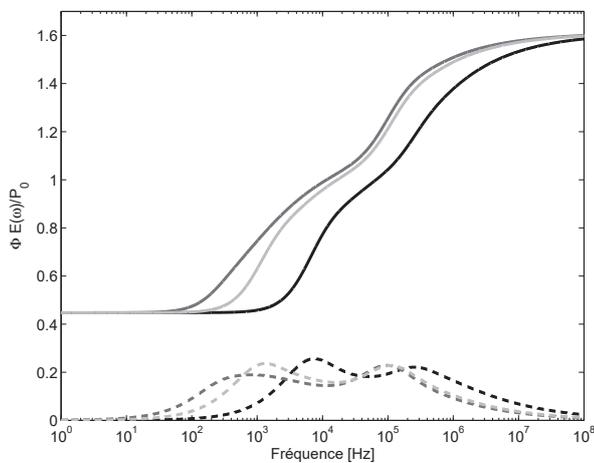


FIGURE 5 – Module d'incompressibilité normalisé pour des matériaux avec pores cylindriques (lignes noires), à fissures planes (lignes grises claires), et granulaire (lignes grises).

Ligne continue : partie réelle. Ligne pointillée : partie imaginaire.

l'adsorption augmente la concentration locale et ralentit la diffusion apparente. Macroscopiquement, ces effets se manifestent par i) une réduction de la partie réelle du module d'incompressibilité dynamique à basses fréquences, ii) une diminution de la fréquence caractéristique de diffusion  $\omega_d$ , et iii) une augmentation de la partie imaginaire du module d'incompressibilité dynamique autour  $\omega_d$  et, par conséquent, une augmentation de l'atténuation causée par la diffusion. En conséquence, les ondes acoustiques sont ralenties et plus atténuées à basses fréquences.

Les situations favorables pour augmenter les effets d'adsorption et de diffusion dans la gamme des fréquences audibles sont celles qui maximisent le rapport des concentrations dans les micropores et les pores  $M_h$ . Ainsi il est approprié de disposer : i) d'une grande valeur de microporosité  $\phi_m$ , ii) d'une petite valeur de porosité  $\phi$ , iii) d'une adsorption relativement forte, i.e. une grande valeur de la constante de stockage effectif  $H_e$ , mais pas trop grande pour que  $\omega_d$  se situe dans les fréquences audibles, et iv) d'une morphologie de pores soigneusement sélectionnée en raison de la forte dépendance de  $\omega_d$  avec la morphologie.

## Remerciements

Ce travail a bénéficié du soutien financier de l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) sous le projet METAUDIBLE (ANR 13-BS09-0003-03) et a été réalisée au sein du CeLyA (ANR-10-LABX-0060) de l'Université de Lyon dans le cadre du programme ANR-11-IDEX-0007 de l'Etat Français, géré par l'ANR.

## Références

- [1] J. L. Auriault et al., Dynamics of porous saturated media, checking of the generalized law of Darcy, *J. Acoust. Soc. Am.* **77** (5), 1641-1650 (1985).
- [2] D. Lafarge et al., Dynamic compressibility of air in porous structures at audible frequencies, *J. Acoust. Soc. Am.* **102** (4), 1995-2006 (1997).
- [3] D. D. Do, *Adsorption analysis : Equilibria and Kinetics*, Imperial College Press, London (1998).
- [4] J. G. Parker, Effect of adsorption on acoustic boundary layer losses, *J. Chem. Phys.*, **36**, 1547-1554 (1962).
- [5] M. Nori, S. Brandani, A model for sound propagation between two adsorbing microporous plates, *J. Acoust. Soc. Am.* **135** (5), 2634-2645 (2014).
- [6] R. Venegas, O. Umnova, Acoustical properties of double porosity granular materials, *J. Acoust. Soc. Am.* **130** (5), 2765-2776 (2011).
- [7] R. Venegas, Microstructure influence on acoustical properties of multiscale porous materials, Ph.D. dissertation, University of Salford, U.K., 2011.
- [8] F. Bechwati et al., Low frequency sound propagation in activated carbon, *J. Acoust. Soc. Am.* **132** (1), 239-248 (2012).
- [9] J. L. Auriault, C. Boutin, C. Geindreau, *Homogenization of Coupled Phenomena in Heterogeneous Media*, ISTE Ltd, London, UK and John Wiley & Sons, Hoboken, USA (2009).
- [10] C. Boutin, P. Royer, J. L. Auriault, Acoustic absorption of porous surfacing with dual porosity, *Int. J. Solids Struct.*, **35**, 4709-4737 (1998).
- [11] X. Olny, C. Boutin, Acoustic wave propagation in double porosity media, *J. Acoust. Soc. Am.* **113** (6), 73-89 (2003).
- [12] C. Boutin, C. Geindreau, Periodic homogenization and consistent estimates of transport parameters through sphere and polyhedron packings in the whole porosity range, *Phys. Rev. E*, **82**, 036313 (2010).