

## Influence du retard d'apparition du champ de cavitation inertielle sur la production d'iode en mode découpé d'irradiation ultrasonore.

S. Labouret<sup>1</sup>, L. De Raes<sup>2</sup>, J. Frohly<sup>3</sup>, T. Lepoint<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Service de physique-électricité, <sup>2</sup> Service de chimie analytique, <sup>4</sup> LASEC, Institut Meurice, av E. Gryzson 1, B-1070 Bruxelles, Belgique. Email : labouret@meurice.heldb.be

<sup>3</sup> IEMN-OAE, UMR CNRS 8520, Université de Valenciennes, le mont Houy, F-59313 Valenciennes cedex 9, France. Email : Jacques.frohly@univ-valenciennes.fr

### Introduction.

Plusieurs études ont montré que la fréquence de découpage de l'émission ultrasonore influe sur l'importance des effets biologiques et chimiques de la cavitation [1, 2]. Par ailleurs nous avons remarqué que pour des pressions acoustiques de l'ordre du bar, le champ de cavitation inertielle ou régime B [3] n'apparaît pas immédiatement après le début de l'irradiation acoustique, mais avec un retard qui dépend également de la fréquence de découpage [4]. En outre, le maximum des effets de la cavitation et le minimum du retard d'apparition du régime B se manifestent pour des fréquences de découpage très voisines. Dans ce travail, nous évaluons dans quelle mesure ces deux phénomènes sont liés. Pour cela nous avons dosé l'iode formé par sono-chimie dans une solution de KI (réaction de Weissler [4]) en relevant les retards d'apparition du régime B.

### Dispositif expérimental.

Le réacteur est constitué d'un tube de verre (diamètre 30 mm) fermé par deux plaques inox parallèles distantes de 30 mm. Un transducteur collé à l'extérieur du réacteur sur une des plaques inox couvre toute la section du tube. Ce transducteur est utilisé à 1,133 MHz. Une gaine en inox (diamètre 3 mm), qui contient un hydrophone aiguille (Dapco NP 10-3) coulé dans un gel d'agar-agar, pénètre de 10 mm dans le réacteur. L'hydrophone recueille les émissions acoustiques du milieu. Cela permet de repérer l'instant d'apparition de la composante de bruit large bande dans le spectre acoustique, composante qui est caractéristique de l'apparition du régime B. Nous avons pu vérifier que l'apparition de ce régime B correspond à l'apparition d'un grand nombre de bulles visibles à l'œil nu dans le réacteur.

L'irradiation effective des échantillons dure 60 secondes pour différentes demi-périodes de découpage  $\tau_{1/2}$  ( $\tau_{1/2}$  = durée des trains d'onde = durée des silences) et pour différentes puissances électriques. Lorsque l'émetteur travaille en onde progressive, les puissances électriques 5,5 W, 8 W, 13 W et 23 W correspondent respectivement à des pressions acoustiques proche de 0,7 bar, 0,85 bar, 1,1 bar et 1,5 bar. La pression acoustique de l'onde stationnaire dans le réacteur n'a pas été déterminée. Le réacteur et le ballon contenant la solution sont thermostatés à 21 °C.

### Mesure de l'iode

L'iode est formé à partir d'une solution de KI (iodure de potassium) 0,005 M préparée avec de l'eau déminéralisée. Cette solution est saturée en  $\text{CCl}_4$  (tétrachlorure de carbone) ; il n'y a pas de phase liquide de  $\text{CCl}_4$  dans le réacteur durant l'irradiation acoustique. La présence de  $\text{CCl}_4$

dissous augmente la production d'iode d'environ un ordre de grandeur.

À l'issue de l'irradiation, la concentration en iode ( $\text{I}_2$ ) est obtenue en deux étapes : la mesure de  $[\text{I}_3^-]$  par spectrophotométrie d'absorption moléculaire à la longueur d'onde 351 nm, puis en calculant la quantité totale d'iode produit ( $[\text{I}_3^-] + [\text{I}_2]$ ) à partir de l'équation d'équilibre de la réaction de complexation  $\text{I}_2 + \text{I}^- \rightleftharpoons \text{I}_3^-$ .

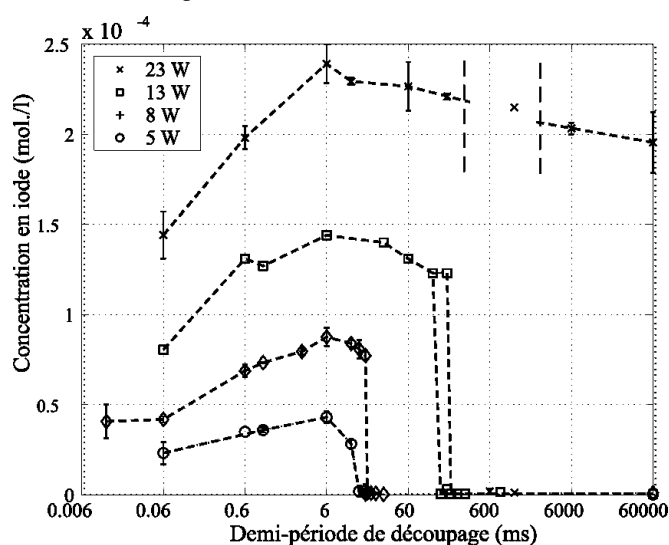


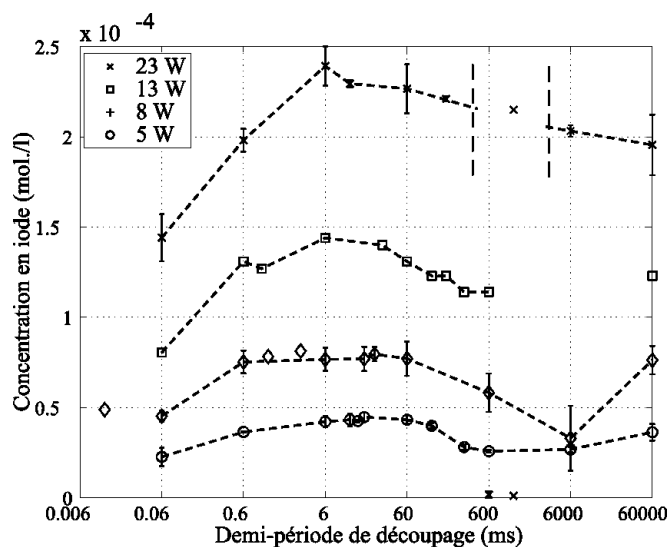
Figure 1: Concentration en iode selon la demi-période de découpage, pour plusieurs puissances électriques.

### Etude en fonction de $\tau_{1/2}$ .

La figure 1 représente la concentration en iode en fonction de  $\tau_{1/2}$  pour les différentes puissances. En partant des plus petites valeurs de  $\tau_{1/2}$ , la concentration en iode augmente jusqu'à un maximum qui précède de peu un arrêt rapide tant de la production d'iode, ainsi que de l'apparition du régime B. Il n'y a plus de production d'iode en l'absence du régime B. Les valeurs de  $\tau_{1/2}$  pour l'arrêt de la formation d'iode sont : 10 ms à 5,5 W, 20 ms à 8 W et entre 125 et 175 ms à 13 W. Cependant à 13 W la cavitation apparaît également parfois en irradiation continue.

Pour les puissances 5,5 W et 8 W le retard d'apparition du régime B commence à croître dès que le maximum de production d'iode est dépassé (par exemple à 8 W le retard est de 8 s pour  $\tau_{1/2} = 12$  ms et de 20 s pour  $\tau_{1/2} = 18$  ms). À 13 W, l'accroissement de ce retard n'apparaît qu'au-delà du maximum de formation d'iode.

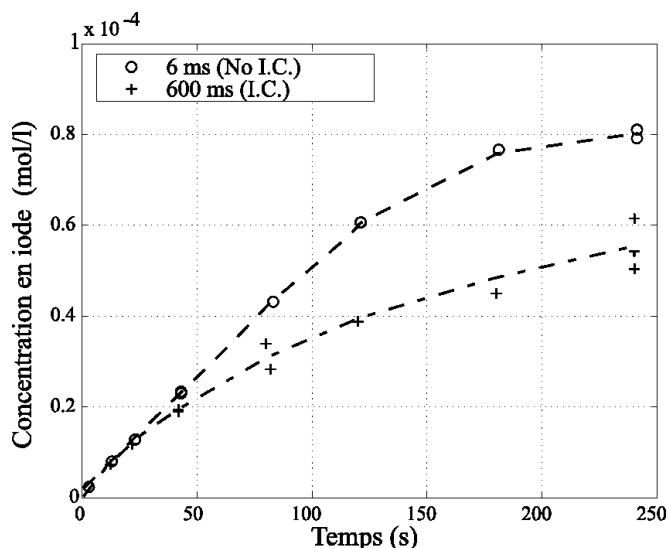
À ces mêmes puissances, il est possible de produire de l'iode pour toutes les valeurs de  $\tau_{1/2}$ , en initiant le régime B en début de traitement par 2 s d'irradiation à 8 W et  $\tau_{1/2} = 1$  ms.



**Figure 2 :** Concentration en iode selon la demi-période de découpage lorsque la cavitation est initiée dès le début du traitement par 2 s d'irradiation à 8 W et  $\tau_{1/2}=1$  ms. A 23 W, la cavitation n'est pas initiée (même résultats qu'à la figure 1).

Dans ces conditions, on observe (figure 2) que les maxima de formation pour les puissances 5,5 W et 8 W se trouvent décalés, ou tout au moins prolongés, vers des valeurs de  $\tau_{1/2}$  supérieures aux limites indiquées précédemment pour l'arrêt de la formation d'iode. A 13 W la position du maximum ne change pas.

En considérant que la production d'iode se fait avec une vitesse sensiblement constante (Figure 3) sur les 120 s que durent les expériences, on peut conclure que le retard d'apparition de la cavitation influe sur le maximum de la concentration en iode jusqu'à une puissance électrique comprise entre 8 et 13 W.



**Figure 3 :** Concentration en iode au cours du temps ; puissance électrique 5,5 W, pour deux valeurs de  $\tau_{1/2}$  : 6ms, cavitation non initiée, et 600 ms, cavitation initiée. La durée des expériences pour les figures précédentes est 120 s.

A 23 W, le régime B apparaît en irradiation continue ( $\tau_{1/2}=60$  s). L'examen de l'évolution de la puissance électrique absorbée par le transducteur montre que l'apparition de ce régime prend environ entre 1 et 2 s. Cette durée de latence explique pourquoi le régime B n'apparaît

pas immédiatement à  $\tau_{1/2}=600$  ms ; le fait que ce régime n'apparaisse pas non plus par la suite indique que les phases de silence sont suffisamment longues pour annuler les modifications subies par les germes de cavitation durant les trains d'onde.

On observe également pour des  $\tau_{1/2}$  supérieures à la seconde que le régime B, qui apparaît lors du premier train d'onde subsiste quelques trains d'onde avant de se dissiper. L'interruption prématurée du régime B entraîne une dispersion importante de la concentration en iode (par exemple pour 8 W et  $\tau_{1/2}=6$  s).

## Discussion - Conclusion.

Nous avons observé que le retard d'apparition du champ de cavitation inertielle, ou régime B, a une influence sur la concentration finale d'iode formée pour un intervalle de puissance et de fréquence de découpage de l'irradiation ultrasonore.

Lorsque le régime B est initié dès le début de l'irradiation ultrasonore, nous observons comme Ciarravino *et al.* [1] que la valeur de  $\tau_{1/2}$  pour le maximum de concentration en iode se déplace de 60 ms vers 6 ms lorsque la puissance ultrasonore augmente. Cependant les maxima que nous observons ont un profil plus arrondi, et surtout nous constatons une bien moins grande différence entre la concentration maximum d'iode en régime d'irradiation découpée et la concentration en régime d'irradiation continue. Par exemple à 23 W, cette différence est d'environ 20 %, alors que pour une concentration d'iode maximum similaire Ciarravino *et al.* [1] observent une différence de l'ordre de 70 %.

La comparaison avec les résultats de Ciarravino *et al.* reste délicate en raison des différences entre les deux expériences. La première différence est que ces auteurs ont utilisé des tubes à essais plongés dans un faisceau ultrasonore. La deuxième différence est qu'ils introduisent une phase de  $\text{CCl}_4$  liquide dans les échantillons traités ; cela est de nature à augmenter la production d'iode par rapport à l'utilisation d'une solution juste saturée en  $\text{CCl}_4$  [5]. Enfin, les pressions acoustiques ne sont pas connues avec précision dans les deux cas.

Ce travail est actuellement poursuivi dans deux directions. D'abord des expériences en présence d'une phase de  $\text{CCl}_4$  liquide dans le réacteur sont en préparation afin de permettre une meilleure comparaison entre les différents travaux. Ensuite, la détermination de la pression acoustique dans le réacteur sera menée avec un hydrophone dont la calibration est en cours de réalisation.

## Références

- [1] Ciarravino V., Flynn H.G., Miller M.W. : *Ultras. Med. Bio.* **7**, 159-166 (1981).
- [2] Clark P.R. And Hill C.R. : *J. Acoust. Soc. Am.* **50**, 649-653 (1970).
- [3] Labouret S., Frohly J. : Influence de la fréquence de découpage de l'irradiation ultrasonore sur la vitesse d'apparition d'un champ de cavitation inertielle, Actes du CFA/DAGA 04 (2004).
- [4] Labouret S., Frohly J. : Actes du 6<sup>ème</sup> CFA, (2002).
- [5] Weissler A., Cooper H.W., Snyder S. : *Am. Chem. Soc. J.* **72**, 1769-1775 (1950).