

## CFA/VISHNO 2016

**Propagation acoustique dans les milieux granulaires non consolidés : influence de la cohésion entre grains**F. Ruiz<sup>a</sup>, A. Castellanos<sup>a</sup>, L. Grekova<sup>b</sup> et V. Tournat<sup>c</sup><sup>a</sup>Université de Sevilla, Avenue Reina Mercedes s/n, Faculté de physique, 41012 Sevilla, Espagne<sup>b</sup>Institute for Problems in Mechanical Engineering of Russian, V.O., Bolshoj pr., 61, 199178 St. Petersburg, Communauté des États indépendants (ex-URSS)<sup>c</sup>LAUM, UMR-CNRS 6613, Avenue Olivier Messiaen, Université du Maine, 72085 Le Mans, France  
pacobo86@gmail.com

LE MANS

La modélisation de la propagation acoustique dans les milieux granulaires non consolidés, assemblages de grains élastiques en contact, est traditionnellement effectuée en première approche à partir de la loi de Hertz. Cette dernière a permis d'expliquer certaines observations comme la dépendance de la vitesse de propagation sur la pression statique. Les modèles existants qui fournissent les vitesses de propagation longitudinale et de cisaillement en fonction des paramètres du milieu granulaire sont cependant limités (grains sphériques et assemblages monodisperses, loi de contact de Hertz-Mindlin), et même les mesures effectuées dans ce cadre sont fortement dépendantes de la préparation du milieu [1], de l'humidité ambiante, de la taille des grains, des mouvements non affines, par exemple. C'est dans ce contexte que nous avons réalisé un travail expérimental de mesure des vitesses de propagation acoustique dans différents milieux granulaires et poudres, en environnement contrôlé, par deux méthodes différentes. Les milieux granulaires choisis sont plus ou moins cohésifs et soumis à des faibles pressions statiques. Leur caractérisation physique préalable permet de modéliser les forces de contact en jeu pour chaque milieu et d'interpréter les grandes différences de vitesses de propagation observées [2]. L'objectif de ces travaux est de guider les développements théoriques en cours prenant en compte les forces d'adhésion ou les micro-rotations entre autres.

## 1 Introduction

Un matériau granulaire est un milieu multiphasique qui consiste en un assemblage de grains en contact avec un liquide ou un gaz [3]. Un exemple typique est le sable sec (solide-air), sable humide (solide-air-eau) ou sable saturé (solide-eau). Contrairement aux solides ou liquides, un milieu granulaire peut se comporter comme un solide, un liquide ou un gaz selon ses propriétés et les conditions externes [4, 5]. De plus un milieu granulaire présente une élasticité globale dépendante de la pression appliquée sur le réseau inhomogène de contacts inter-grains [6, 7, 8]. Nous pouvons distinguer deux grands groupes : les empilements granulaires cohésifs et non cohésifs. Un milieu granulaire est considéré cohésif quand la force attractive est plus grande que le poids de la particule. Un indicateur de cette caractéristique est représenté par le nombre de Bond qui est défini comme le rapport entre la force attractive inter-grains,  $F_a$ , et le poids de la particule,  $mg$ . Les forces attractives entre particules peuvent être les forces de Van der Waals pour les poudres sèches, des forces électrostatiques, des forces capillaires, des forces magnétiques, etc [9, 10, 11, 12, 13]. Les matériaux granulaires et les poudres sont de plus en plus importants dans les processus industriels. A cause de cela, la compréhension des effets de la cohésion aussi bien que le développement de méthodes permettant leur caractérisation sont nécessaires. Les poudres fines sont très complexes à caractériser car leur état macroscopique dépend de nombreuses variables comme l'adhésion inter-grains, l'inélasticité et les irrégularités de surface. Cela a conduit les physiciens à étudier des matériaux granulaires idéaux qui n'ont pas de cohésion et qui ont une géométrie simple (billes sphériques lisses) [4, 5, 14].

Le sondage ultrasonore est une technique éprouvée pour caractériser les paramètres élastiques des solides et des fluides. Afin d'étudier les propriétés élastiques des milieux granulaires, des techniques ultrasonores ont été récemment mises en œuvre [15, 16]. Il y a très peu de travaux expérimentaux sur la façon dont la cohésion entre particules affecte la propagation du son. Par exemple pour étudier le rôle de la force capillaire attractive, quelques gouttes de différents liquides ont été ajoutées dans divers échantillons [17, 18, 19]. L'augmentation de la cohésion provoque un changement de vitesse qui dépend en général du nombre de coordination (c'est-à-dire le nombre moyen de particules en contact avec une particule donnée), de la fraction solide et de la raideur du contact entre autres [17].

D'autres études ont été réalisées dans des fines poudres cohésives en raison des forces de Van der Waals. Ces poudres sont seulement comprimées avec la pression induite par la gravité. Dans ce cas, la vitesse augmente avec la cohésion quand les particules ont un diamètre inférieur à  $110 \mu m$  [2] et la poly-dispersité joue un rôle important [1].

L'originalité de ce travail est que nous comparons deux échantillons identiques mais avec une cohésion différente. Ils sont soumis à un échelon de pression modéré ( $< 40 kPa$ ) pour observer l'influence de la cohésion sur la transmission de l'onde ultrasonore.

L'article est organisé de la manière suivante. Premièrement, dans la section 2 nous présentons les matériaux et leurs propriétés, la méthode acoustique utilisée avec le dispositif expérimental et les résultats. Ensuite, nous donnons une explication qualitative des résultats expérimentaux précédents dans la section 3 et finalement un résumé des résultats trouvés est présenté dans la section conclusion.

## 2 Matériaux et méthode

### 2.1 Propriétés de la poudre

Nos mesures acoustiques ont été développées pour un matériau granulaire qui est constitué de poudre de maïzena ( $d_p \simeq 15 \mu m$ ,  $\rho_p = 1.55 g/cm^3$ ). Cette poudre est très irrégulière comme nous pouvons le voir sur l'image 1 et très cohésive car le nombre de Bond est largement supérieur à 1 ( $Bo_g \gg 1$ ). Plusieurs travaux ont démontré que le nombre de Bond  $Bo_g$  est un paramètre qui permet de connaître la flottabilité et contrôler le comportement de fluidisation du matériau granulaire [20, 21, 22]. La cohésion entre nos particules est due aux forces attractives qui proviennent des forces de Van der Waals. Il est possible d'estimer la force d'adhésion entre deux particules dont les rugosités ( $r_1, r_2$ ) au contact sont supérieures à la distance de séparation  $z$  entre elles, avec l'équation :

$$F(z) = -\frac{A}{6z^2} \left( \frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right)^{-1}, \quad (1)$$

avec  $A$  la constante de Hamaker qui est liée à la constante de London  $\lambda$  par :

$$A = \pi^2 \rho_1 \rho_2 \lambda, \quad (2)$$

où  $\rho$  est le nombre volumique de molécules dans chaque corps (c'est-à-dire le nombre de molécules par unité de

volume). Donc, la constante de Hamaker est une constante caractéristique de chaque substance et elle prend des valeurs de  $10^{-9}J$  environ. La valeur de  $z$  ne peut pas être inférieure à 0.4 nm, car la force répulsive de Van der Waals n'a pas été prise en compte dans l'équation (1).

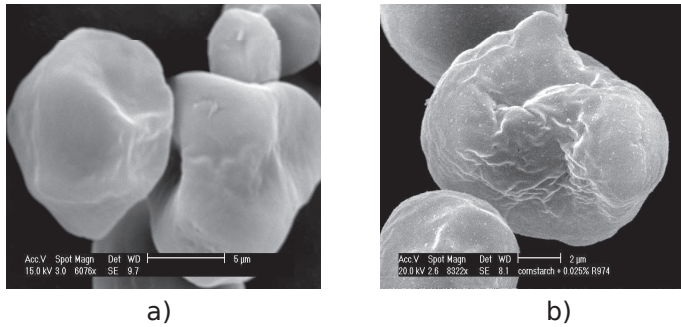


FIGURE 1 – Images de maïzena sans recouvrement de silice (a) et avec silice (b) prises par SEM.

L'objectif de ce travail est d'analyser quelle est l'importance de la cohésion sur les propriétés élastiques de milieux granulaires quand nous appliquons une pression externe au milieu granulaire. Pour réduire la taille de la rugosité de la poudre de maïzena ( $r \sim 100\text{ nm}$ ) et donc la cohésion, nous recouvrons la surface des particules de maïzena avec d'autres particules de tailles plus petites que la rugosité. Nous avons utilisé des particules additives de silice ( $d_a \approx 16\text{ nm}$ ,  $\rho_a = 2.5\text{ g/cm}^3$ ). De cette façon, nous pouvons réduire d'un facteur 10 la force d'adhésion entre particules selon l'équation (1) et par conséquent le nombre de Bond  $Bo_g$ .

## 2.2 Dispositif expérimental

L'expérience consiste à envoyer une brève impulsion ultrasonore de durée  $\Delta t = 2\mu\text{s}$ , générée par un transducteur émetteur (E), dans un milieu granulaire d'épaisseur  $L < 2R_{\text{cellule}}$  pour éviter la diffraction, soumise à une contrainte  $P$ . Le signal transmis à travers l'échantillon est alors détecté par un autre transducteur récepteur (R) placé au fond de la cellule. Le schéma du dispositif expérimental est indiqué sur la figure 2. Le transducteur émetteur est excité par une impulsion de haute tension chaque 50 ms, via un générateur impulsif. Ce générateur est aussi capable d'amplifier le signal reçu par le transducteur récepteur pour le visualiser sur un oscilloscope. Le signal électrique pour exciter le transducteur émetteur a un large spectre en fréquence. Les transducteurs émetteur et récepteur, tout deux à faible facteur de qualité, ont un diamètre de 30 mm. Cependant la fréquence principale des signaux envoyés et reçus est de 100 kHz qui est la fréquence à laquelle les transducteurs sont les plus sensibles.

## 2.3 Méthode acoustique de caractérisation

La méthode utilisée est classique et consiste en la mesure du "temps de vol" ou "time of flight" TOF. La vitesse de propagation d'une onde de compression s'obtient facilement par l'expression suivante :

$$V = \frac{L}{t_{\text{vol}} - t_0}, \quad (3)$$

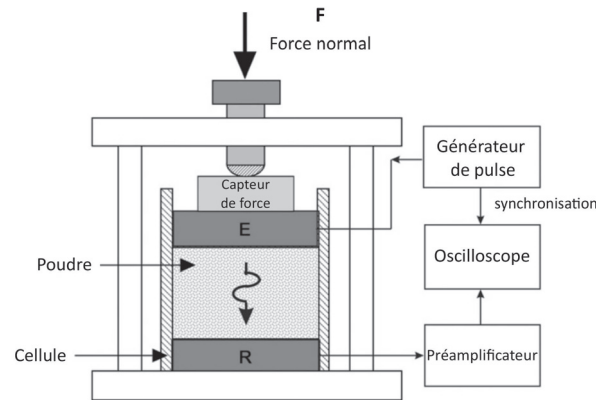


FIGURE 2 – Schéma du dispositif expérimental.

où  $t_0$  est l'instant initial d'émission du signal ou temps de référence donné par nos appareils électroniques synchronisés, voir la figure 3. Par exemple pour un échantillon constitué de poudre de maïzena avec une épaisseur  $L \approx 10\text{ mm}$  et soumis à une contrainte  $P = 30\text{ kPa}$ , l'onde de compression se propage à la vitesse  $V_L = 232.55 \pm 1.51\text{ m/s}$ .

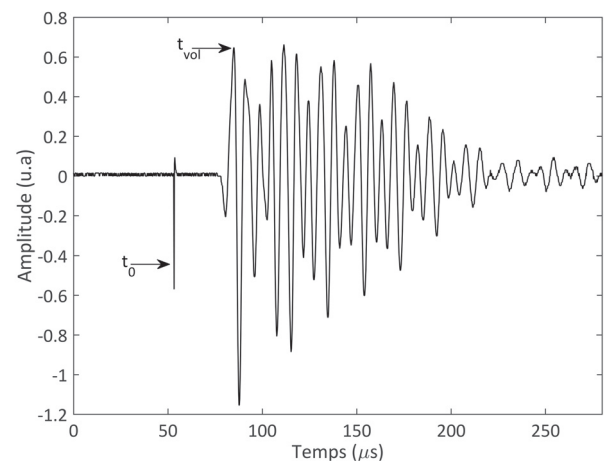


FIGURE 3 – Enregistrements caractéristiques de signaux ultrasonores de compression dans la maïzena avec silice à une pression statique de  $P=30\text{ kPa}$ .

## 2.4 Résultats

Avec la méthode TOF, la vitesse longitudinale dans le milieu granulaire est obtenue en considérant que la distance de propagation du son est l'épaisseur de l'échantillon. Si nous connaissons l'épaisseur de l'échantillon pour chaque pression appliquée, la fraction solide peut se calculer avec l'expression  $\phi = \frac{\rho_{\text{effective}}}{\rho_{\text{matériau}}}$ . Nous avons démontré que le processus de compaction dans un milieu granulaire composé de fines particules peut être décrit par la loi logarithmique  $1/\phi = 1/\phi_0 - \lambda \log(P/P_0)$ , où  $\lambda$  est une fonction de la porosité interne des agglomérats initiaux sans distorsion [3]. Nous pouvons observer sur la figure 4 que la fraction solide pour des poudres de maïzena sans recouvrement de silice n'est pas une fonction logarithmique de la pression parce que nous détectons des sauts brusques, alors que pour des poudres de



maïzena avec recouvrement cela semble être le cas. Nous pouvons supposer que cela est dû à la restructuration du milieu granulaire qui survient quand le niveau de force dépasse une certaine valeur critique. Cette valeur critique varie avec l'échantillon et la façon dont il est préparé. Nous supposons que la pression détruit les contacts entre les agglomérats changeant la structure des arches dans le milieu en plus d'expulser l'air de l'échantillon. Nous pouvons avoir plusieurs sauts dans le processus de compaction tel qu'il est réalisé. Un effet semblable d'instabilité du milieu est présent dans le modèle continu de Cosserat non linéaire pour le cas de la pression hydrostatique [23]. Cet effet est plus prononcé pour les milieux avec cohésion significative (comme pour la maïzena sans recouvrement) parce que le nombre de coordination diminue, et le milieu est donc plus poreux.

On doit aussi prendre en compte le fait que la valeur de  $P$ , surtout avant le saut, peut être surestimée à cause de la friction aux parois, et entre la poudre et le transducteur. Pour

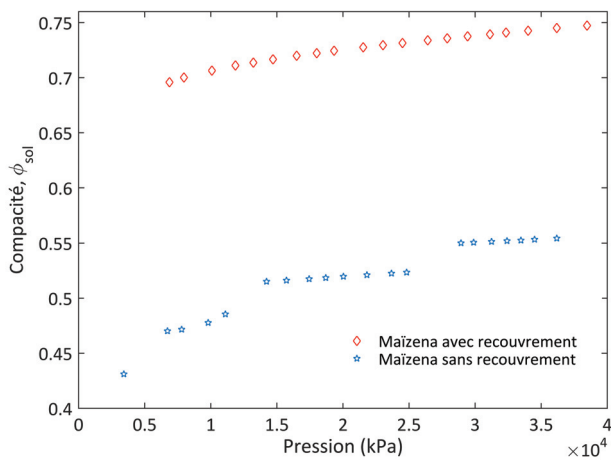


FIGURE 4 – Compacité de deux échantillons de maïzena en fonction de la contrainte appliquée.

la maïzena pure, le coefficient de frottement  $\mu$  est plus élevé que pour la maïzena avec des particules de silice et pourtant cet effet (surestimation de la pression) sera plus notable pour la maïzena sans recouvrement.

La vitesse de propagation dans nos échantillons pour différentes pressions appliquées est représentée sur la figure 5. Nous observons que la vitesse se comporte comme une fonction puissance dans les deux cas analysés. Le meilleur ajustement nous donne un exposant très proche de  $1/4$  pour les deux échantillons. La vitesse de propagation est plus élevée pour l'échantillon le moins cohésif, contrairement à l'étude réalisée précédemment avec des pressions uniquement dues à la gravité pour différents échantillons d'acier et de magnétite [2]. Dans la section suivante de l'article nous présentons une explication qualitative pour ces observations expérimentales.

### 3 Discussion

#### 3.1 Comparaison avec le modèle de milieu effectif (EMT)

La théorie de milieu effectif (EMT) exposée ci-dessous a été utilisée dans de nombreuses études pour mettre en

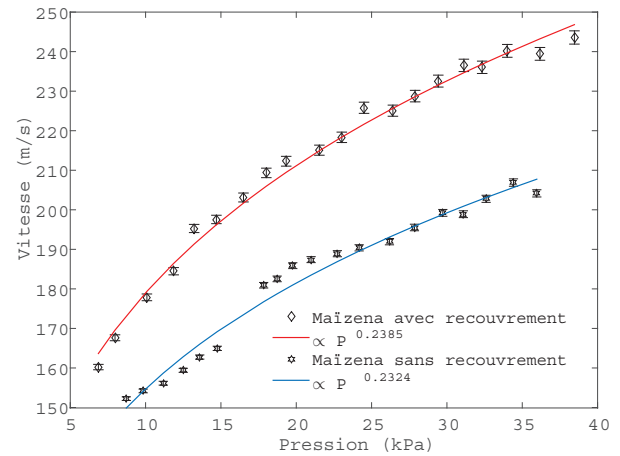


FIGURE 5 – Vitesse de propagation mesurée avec le temps de vol du premier pic du signal reçu en fonction de la contrainte appliquée.

relation des résultats expérimentaux avec les paramètres du milieu [19, 24, 25]. Le modèle repose sur 3 hypothèses qui sont : un contact de type Hertz entre toutes les particules sphériques de même taille, toutes les particules sont statistiquement identiques avec une distribution isotrope des contacts et une approximation affine est utilisée pour le mouvement des particules [24]. Dans notre cas, à une pression moyenne ( $< 40\text{KPa}$ ), la force d'attraction (cohésion) peut jouer un rôle important. Il existe des modèles de contact, DMT [26] et JKR [27] qui prennent en compte l'adhésion et qui introduisent un nouveau paramètre : l'énergie par unité de surface de contact  $\gamma$  qui quantifie la force entre particules quand il n'y a pas de force externe appliquée. Nous avons observé dans la section précédente présentant les résultats expérimentaux que l'exposant  $a$  qui lie la vitesse longitudinale et la pression statique ( $V_p \propto P^a$ ) est très proche de  $\frac{1}{4}$  lorsque l'on applique sur le milieu granulaire composé de billes de verre non cohésives, une pression variant de  $30\text{kPa}$  à  $200\text{kPa}$  [14]. C'est la raison qui nous conduit à utiliser le modèle EMT sans cohésion et considérant un contact de type Hertz entre les particules. Les vitesses longitudinale et de cisaillement sont liées aux propriétés de l'échantillon quand il se comporte comme un solide. Lorsque la longueur d'onde est bien plus grande que la taille de la particule, les relations suivantes s'écrivent pour un solide :

$$V_p = \sqrt{\frac{K + (4/3)\mu}{\rho}}, \quad (4)$$

$$V_s = \sqrt{\frac{\mu}{\rho}}, \quad (5)$$

$K$  étant le module de compression,  $\mu$  le module de cisaillement et  $\rho$  la masse volumique du matériau. Le modèle EMT est capable de prédire le module de compression et le module de cisaillement effectifs pour un milieu granulaire isotrope comprimé à une pression  $P$ . Nous considérons le cas le plus simple lorsque la friction entre les grains est nulle (le coefficient de raideur tangentielle  $k_t=0$ ) et la force tangentielle  $F_t = 0$ . Ainsi seule la force normale de contact

est prise en compte. Nous avons dans ce cas :

$$K_e(p) = \frac{k_n}{12\pi} (\phi z)^{2/3} \left( \frac{6\pi P}{k_n} \right)^{1/3}, \quad (6)$$

$$\mu_e(p) = \frac{k_n}{20\pi} (\phi z)^{2/3} \left( \frac{6\pi P}{k_n} \right)^{1/3}, \quad (7)$$

où  $k_n = 4\mu_g/(1 - \nu_g)$  représente le coefficient de raideur normale du contact. Il s'exprime en fonction du module de cisaillement  $\mu_g$  et du coefficient de Poisson  $\nu_g$  du matériau dont les grains sont faits.

En ré-injectant, les équations (6) et (7) dans (4), et  $\rho = \rho_p \phi$ , la vitesse longitudinale devient :

$$V_p = \frac{1}{\rho_p^{1/2}} \left( \frac{3k_n}{20} \right)^{1/2} \phi^{-1/6} z^{1/3} P^{1/6}. \quad (8)$$

Dans les expériences réalisées, nous avons trouvé que la vitesse longitudinale est plus grande dans le milieu composé de particules cohésives que dans celui composé de particules de maïzena seules et ce pour une pression identique. Ce phénomène est contradictoire avec celui observé aux faibles pressions dans les milieux granulaires cohésifs [2]. Pour essayer d'expliquer ce comportement, nous utilisons l'équation (8) déduite précédemment. Pour un échantillon donné,  $k_n$  est constant, et comme nous considérons une pression  $P$  constante, la vitesse peut s'écrire de la façon suivante :

$$V_p = A \phi^{-1/6} z^{1/3}, \quad (9)$$

où  $A$  est une constante pour tous nos échantillons (maïzena et maïzena recouverte). Pour calculer le nombre de coordination au sein de l'assemblage, nous utilisons  $z = 1.61(1 - \phi)^{-1.48}$  [28]. La fonction  $\phi^{-1/6} z^{1/3}$  est monotone croissante avec  $\phi$ . Si nous observons la fraction solide de la maïzena avec et sans recouvrement, il est possible de voir que la maïzena avec recouvrement a une fraction solide plus grande que la maïzena sans recouvrement, pour une même valeur de la pression. Bien que l'équation (9) prédise justement ce comportement, il s'agit d'une explication qualitative permettant d'expliquer pourquoi la vitesse obtenue avec le modèle EMT, est supérieure dans le milieu composé de particules moins cohésives.

## 4 Conclusion

Les résultats expérimentaux démontrent que la cohésion ne joue pas un rôle significatif dans les contacts inter-particules. La forme géométrique structurale de l'échantillon est différente selon que le milieu est cohésif ou pas. De même nous avons montré que la vitesse de propagation des ondes ultrasonores dépend de la nature du milieu. Elle est plus importante dans le cas des milieux moins cohésifs. Lorsque nous supposons des contacts de type Hertz, le modèle EMT prédit le comportement observé expérimentalement. Il convient d'améliorer le montage expérimental afin d'éviter la friction des particules avec les parois de la cellule ainsi qu'avec le transducteur et l'émetteur notamment pour les matériaux les plus cohésifs.

## Remerciements

Nous remercions le programme de financement des Projets Nationaux Espagnols FIS2011-25161, FIS2014-5439-P et la collaboration avec le Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine (CNRS UMR 6613, LAUM). Nous remercions aussi Dr. Miguel Angel Sánchez Quintanilla pour les discussions sur l'analyse des résultats expérimentaux, Jose Luis Benjumea Acevedo technicien de l'atelier de mécanique de la Faculté de Physique du Sevilla pour son aide sur le montage expérimental et Dr. Philippe Traoré pour les corrections de l'écriture en français.

## Références

- [1] L. Barguet, C. Pezerat, C. Bentehar, C. Bentahar, R. El Guerjouma and V. Tournat, Ultrasonic evaluation of the morphological characteristics of metallic powders in the context of mechanical alloying, *Ultrasonics* **60**, 11-18 (2015).
- [2] F. Ruiz-Botello, A. Castellanos and V. Tournat, Ultrasonic probing of cohesive granular media at very low consolidation, *Ultrasonics*, in press.
- [3] A. Castellanos, The relationship between attractive interparticle forces and bulk behaviour in dry and uncharged fine powders, *Advances in physics* **54(4)**, 263-376 (2005).
- [4] F. M. Jaeger, S. R. Nagel et al, Physics of the granular state, *Science* **255(5051)**, 1523 :1531 (1992).
- [5] F. M. Jaeger, S. R. Nagel and R. P. Behringer al, Granular solids, liquids, and gases, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 1529-1273 (Oct 1996).
- [6] P. Dantu, Contribution à l' étude mécanique et géométrique des milieux pulvérulents, (1957).
- [7] H. A. Makse, D. L. Johnson and L. M. Schwartz, Packing of compressible granular materials, *Physical review letters* **84(18)**, 4160 (2000).
- [8] F. Radjai and S. Roux, Contact dynamics study of 2d granular media : critical states and relevant internal variables, *The physics of granular media* **84(18)**, 165-187 (2003).
- [9] J. Y. Hristov, Magnetic field assisted fluidization - a unified approach part 5. A hydrodynamic treatise on liquid-solid fluidized beds, *Rev. Chem. Eng.* **22(4-5)**, 195-375 (2006).
- [10] P. C. Hamaker, The London-Van der Waals attraction between spherical particles, *Physica* **4(10)**, 1058-1072 (1937).
- [11] M. A. S. Quintanilla, M. J. Espin and J. M. Valverde, Effect of magnetic field orientation on fluidized beds of magnetic particles : theory and experiment, *Particuology* **12**, 54-63 (2014).
- [12] H. J. H. Clercx and G- Bossis, Many-body electrostatic interactions in electrorheological fluids, *Phys. Rev. E* **48**, 2721-2738 (October 1993).

- [13] V. Popov, Contact Mechanics and Friction : Physical Principles and Applications, *Springer Science + Bussines Media* , (October 2010).
- [14] V. Tournat and V. E. Gusev, Acoustics of unconsolidated "model" granular media : an overview of recent results and several open problems, *Acta Acust. United Acust.* **96(2)**, 208-224 (2010).
- [15] X. Jia, C. Caroli, B. Velicky , Ultrasound propagation in externally stressed granular media, *Phys. Rev. Lett.* **82(9)**, 1863 (1999).
- [16] V. Tournat and V. E. Gusev, Nonlinear effects for coda-type elastic waves in externally stressed granular media, *Phys. Rev. E* **80(1)**, 011306 (2009).
- [17] T. Brunet, Etude des milieux granulaires secs et mouilles à l'aide des ondes ultrasonores, *PHD thesis* , Université de Marne la Vallée (2006).
- [18] T. Brunet, X. Jia and P. Mills, Mechanisms for acoustic absorption in dry and weakly wet granular media, *Phys. Rev. Lett.* **101**, Université 138001 (2008).
- [19] V. Langlois and X. Jia, Acoustic probing of elastic behaviour and damage in weakly cemented granular media, *Phys. Rev. E* **89(2)**, 023206 (2014).
- [20] M. A. S. Quintanilla, J. M. Valverde and A. Castellanos, Adhesion force between fine particles with controlled surface properties, *AIChE J.* **52(5)**, 1715-1728 (2006).
- [21] S. T. Nase, W. L. Vargas, A. A. Abatan and J. J. McCarthy, Discrete characterization tools for cohesive granular material, *Powder Technol* **116(2)**, 214-223 (2001).
- [22] J. M. Valverde, A. Castellanos, P. Mills and M. A. S. Quintanilla, Effect of particle size and interparticle force on the fluidization behavior of gas-fluidized beds, *Phys. Rev. E* **67(5)**, 051305 (2003).
- [23] E. Grekova., Nonlinear isotropic elastic reduced Cosserat continuum as a possible model for geomedium and geomaterials, Spherical prestressed state in the semilinear material, *J Seismol* **16(4)**, 695-707 (2012).
- [24] H. A. Makse, David. L. Johnson, N. Gland and L. Schwartz, Granular packings :nonlinear elasticity,sound propagation, and collective relaxation dynamics, *Phys. Rev. E* **70**, 061302 (2004).
- [25] Y. Khidas and X. Jia, Anisotropic nonlinear elasticity in a spherical-bead pack :influence of the fabric anisotropy, *Phys. Rev. E* **81(2)**, 021303 (2010).
- [26] B. V. Derjaguin, V. M. Muller and Y. P. Toporov, Effect of contact deformations on the adhesion of particles, *Journal of Colloid and interface science* **53(2)**, 314-326 (1975).
- [27] K. L. Johnson, J. Kendall and A. D. Roberts, Surface energy and the contact of elastic solids, *In Proceeding of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **volume 324**, 301-313 The Royal Society (1971).
- [28] M. Suzuki, K. Makino, M. Yamada and K. Iinoya, A study on the coordination number in a system of randomly packed,uniform-sized spherical particles, *Int. Chem. Eng* **21(3)**, 482-488 (1981).