par H. D. PARBROOK (*) et E. G. RICHARDSON

King's College, Newcastle upon Tyne, à l'Université de Durham, Angleterre (Recu le 10 Février 1953)

Introduction. Des mesures de la vitesse de propagation ultrasonore dans des liquides à haute pression étaient faites par SWANSON [1] jusqu'à 300 kg/cm² et BIQUARD [2] jusqu'à 1000 kg/cm². Le dernier a employé la méthode de la diffraction de la lumière par le liquide, irradié d'un faisceau d'ondes ultrasonores. En ce qui concerne l'état gazeux, HERGET [3] et ensuite NOURY [4] ont étudié la vitesse du son à une seule fréquence dans l'acide carbonique aux pressions et températures qui abordaient l'état critique. Ils ont remarqué le minimum caractérisque dans la vitesse à la transition gaz-liquide. Pendant les dernières années, un nombre d'auteurs ont etudié l'absorption dans ce gaz: SCHNEIDER [5] au point critique même, ANDERSON et DELSASSO [6] dans une région plus étendue mais encore à une seule fréquence.

Le travail actuel se réfère aux consequences thermodynamiques des résultats obtenus dans deux gaz, l'acide carbonique et l'éthylène à trois fréquences et sous pressions entre 1 et 100 atmosphères.

Ensemble expérimental. Le dispositif d'expérience, dont la figure 1 montre l'ensemble générale, comprend:

1) une bombe qui contient le gaz sous pression,

2) un interferomètre ultrasonore type Pierce avec un émetteur de quartz en forme de disque monté en face d'un réflecteur d'acier capable d'être mis en marche par moyen d'une manivelle accordée à un moteur électrique qu'on voit au-dessus,

3) une deuxième chambre à gaz d'un volume variable qui permet la compensation du volume total quand le piston qui porte le réflecteur descend dans l'interferomètre,

(*) Maintenant a l'Université de Liverpool.

4) un oscillateur tipe HARTLEY, assuré à 1 c/s pendant une série de mesures, qui alimente le quartz à sa fréquence fondamentale. Cette fréquence, qui change un peu avec la pression, est mesurée grâce à un fréquencemètre verifié de temps en temps sur les émissions de la B. B. C.,

5) un thermostat qui entoure l'appareil.

Un essai préalable dans lequel le quartz et le réflecteur formaient un interferomètre optique de MICHELSON assure que la location du quartz était juste et perpendiculaire à la face émetteur. Toute variation pendant le mouvement se révèla par l'arrivée des sommets et crevasses «satellites» entre les sommets principaux dans la marche du courant de plaque du circuit alimentaire.

Un sutre dispositif (fig. 2) servait à mesurer la viscosité du fluide. Il comprend un cylindre ou une bouteille d'acier contenant le gaz et tenu par un suspension bifilaire dans un vase de verre, qu'on peut évacuer. L'appareil ainsi forme un viscosimètre à cylindre oscillant dont HELMHOLTZ a donné la théorie.

Marche d'une expérience. La bombe est evacuée et, remplie du gaz expérimental, soigneusement sêché. Nous étions soucieux de la pureté d'un gaz comme l'acide carbonique au point de vue d'éviter des adultérants comme l'air et l'eau qui pourraient provoquer une dispersion de la vitesse avec la fréquence, differente à celle du gaz pur.

Pendant la marche régulière du réflecteur, les déviations du galvanomètre étaient inscrites, par l'intervention d'un faisceau lumineux, sur papier photographique roulant dans une camera. La figure 3 en donne un exemplaire. Les locations des sommets dans le courant I donne la longueur d'onde; leurs hauteurs ∂I_1 et ∂I_2 pour deux distances l_1 et l_2 du réflecteur donnent le coefficient d'absorption α dans la formule:

$$\delta I_1/\delta I_2 = exp. 2\alpha (l_2 - l_1)$$

prenant garde aux conditions de HARDY [7], c'est-à-dire (1) $\partial I/I$ petit, (2) αl grand.

Après une série de telles observations, on laisse échapper une quantité de gaz pour reprendre les mesures à une pression plus basse. Pendant tous ce temps on observe la température, assurée contre fluctuations à 0.02 degré par un contrôleur SUNVIC.

Passant maintenant aux mesures de viscosité, on donne au cylindre suspendu une déviation légère par moyen des aimants inté-



Fig. 1 — Ensemble générale de l'interferomètre.



Fig. 2 - Viscosimètre à cylindre oscillant.

rieurs et on laisse osciller le cylindre, regardant les déviations en diminuant sur une echelle (fig. 4). L'étalonnage résulte d'une autre expérience dans laquelle la bouteille était remplie d'huile de densité et viscosité connues.



Fig. 3-Déviations du galvanomètre dans le circuit de l'interferomètre.





Résultats. D'abord, nous avons obtenu une serie de résultats dans l'air dans laquelle la vitesse et l'absorption vont en diminuant regulièrement avec la pression et ne montrent aucune dispersion. Après



Fig. 5 - Vitesse dans l'acide carbonique en fonction de la pression.

nos tentatives avec l'air, nous avons jusqu'à présent, concentré nos efforts sur l'acide carbonique et l'éthylène qui ont tous les deux des températures critiques près de la température atmosphérique. Il est bien connu que, le premier nommé, manifeste une dispersion de la vitesse qui pour les basses pressions s'exprime en fonction de f/p, avec une

augmentation au voisinage d'une valeur f/p = 2; f étant en kc./s. et p en atmosphères. On remarque une dispersion semblable dans ces expériences-ci, avec la fréquence 500 kc./s. entre 1 et 3 atmos. mais à pressions plus hautes (f/p moins que 1.5) les valeurs pour trois fréquences se confondent et passent en diminuant vers un minimum au point critique pour reprendre ensuite une allure montante (fig. 5); même jeu pour l'éthylène (fig. 6) dans lequel nos résultats



Fig. 6 - Vitesse et absorption dans l'éthylène.

ne touchent pas la région de dispersion signalée par Nомото, Iкеда, et Кізнімото [8] aux pressions ordinaires.

Pour chaque gaz nous avons calculé le produit pv, en nous servant des tables inédits de NEWITT, PAI et HUGGILL [9] pour CO_2 et de DICK et HEDLEY [10] pour $C_2 H_4$. indiquées sur les deux graphiques. Voici nos valeurs des ratios de vitesse adiabatique carré au vitesse isotherme carré calculées ainsi. Pour les pressions basses ces ratios doivent égaler les ratios des chaleurs specifiques, mais en approchant du transition il fraudrait une correction pour déviations de l'état de gaz parfait.

H. D. PARBROOK et E. G. RICHARDSON

Gaz	Temp.	P/1	30	40	50	60	70	80 atm.
$\rm CO_2$	38º C.	1.29	1.30	1.32	1.33	1.35	1.45	1.66
$\rm CO_2$	31º C.	1.29	1.31	1.32	1.35	1.40	1.68	2.78
CO2	26.5° C.	1.29	1.32	1.34	1.37	1.50	2.68	5.45
$\mathrm{C_2}\mathrm{H_4}$	18.7° C.	1.25	1.30	1.31	1.35	1.43	2.15	3.30

L'absorption diminue rapidement en passant par la transition (fig. 7) mais à l'état même elle est difficile à préciser, comme remarque SCHNEIDER. Du côté gaz on trouve, comme pour la plupart des fluides





134

 α/f^2 constante, mais du côté liquide, plutôt α/f constante, (fig. 8)(*). La loi dernière est caractérisque d'un système biphasale, contenant des éléments globales («striations») capables de diffuser l'énergie



Fig. 8 – α / f^2 dans l'état gazeux et α / f dans l'état liquide.

sonore, comme ROTH [11] a trouvé dans les alliages d'aluminium, ou des crystallites engloutis dans le matrix fonctionnent de la même façon que le fluide troublé qu'on rencontre au point critique. (Aux pressions plus hautes encore, la relation ci-citée doit passer en celle qui carac-

(*) On note le même jeu en optique (effet Mie) dans la domaine $0.3 < \pi d/\lambda < 1$ i.e. extinction de lumière proportionelle à λ^{-1} [12].

tèrise un liquide homogène; on est en train d'explorer ce domaine dans un autre appareil).

On peut aussi examiner les resultats pour l'absorption des ultrasons au point de vue de viscosité. La théorie de STOKES permet de prévoir le coefficient α en forme $2\pi f^{2\nu}/3V^{3}$, ν étant le coefficient de viscosité cinématique, V la vitesse du son et f la fréquence. (En vérité ν contient un terme thermodynamique que nous avons négligé). Nos expériences avec le viscosimètre (fig. 2) nous ont fourni des données numériques pour faire la comparaison entre ν ultrasonore, déduit de l'équation de STOKES, et ν hydrodynamique. La figure 9 en fait la com-



Fig. 9 -- Viscosité dynamique (-) et ultrasonore (---).

paraison (sauf pour l'état critique même) d'où l'on dérive une viscosité mille fois plus grande que celle propre à une oscillation lente, quoique les courbes ont à peu près la même allure. Ceci est aussi vrai pour l'éthylène que nous avons étudié dans une recherche plus restreinte.

136

Touchant l'origine de cette absorption anormale, nous ne pouvons que dire que ce n'est pas question de relaxation thermique, vu qu'à haute pression la vitesse ne depend pas de la fréquence (fig. 10). C'est



Fig. $10 - Absorption (\alpha)$ dans l'acide carbonique en fonction de la pression.

plutôt une propriété tout-à-fait spéciale d'un fluide au voisinage de sa transition, rappellant un phénomène semblable dans la propagation des ultrasons à la transition entre helium gazeux et liquide qu'ont signalé récemment ATKINS et CHASE [13].

BIBLIOGRAPHIE

- [1] SWANSON, J. C., J. Chem. Phys. 2, p. 689, 1934.
- [2] BIQUARD, P., Rev. d'Acoust. 8, p. 130, 1939.
- [3] HERGET, C. M., J. Chem. Phys. 11, p. 37, 1940.
- [4] NOURY, J. O., C. R. Acad. Sci. Paris. 223, p. 377, 1946.
- [5] SCHNEIDER, W. G., Canad. J. Chem. 29, p. 243, 1951.
- [6] ANDERSON, N. S. et DELSASSO, L. P., J. Acoust. Soc. Amer. 23, p. 155, 1951.
- [7] HARDY, H. C., J. Acoust. Soc. Amer. 15, p. 91, 1943.
- [8] NOMOTO, O., IKEDA, T. et KISHIMOTO, T., Bull. Kobayashi Inst.,
 1, p. 286, 1951.
- [9] NEWITT, D. M., PAI, M. U. et HUGGILL, J. A. W., D. S. I. R. Mech. Eng. Res. Brd. Rep. «Thermodynamic Properties of Carbon Dioxide».
- [10] DICK, W. F. L. et HEDLEY, A. G. M., I. C. I. Alkali Div. Rep. «Thermodynamic Properties of Ethylene».
- [11] Roth, W., J. App. Phys. 19, p. 901, 1948.
- [12] RICHRADSON, E. G., Proc. Phys. Soc. 55, p. 48, 1943.
- [13] ATKINS, K. R. et CHASE, C. E., Proc. Phys. Soc. A64, p. 826, 1951.