

LÍQUIDOS VISCOELÁSTICOS COMO FILTROS PASO BANDA EN LA PROPAGACIÓN DE ONDAS DE CIZALLA

Jorge Torres Perez^{1*}
Gabrielle Laloy-Borgna²
Guillermo Rus Carlborg¹
Stefan Catheline²

¹Ultrasonics Lab (TEP-959), Departamento de Mecánica de Estructuras, Universidad de Granada, Granada, España

²LabTau (INSERM), Lyon, Francia

RESUMEN

Desde una perspectiva acústica, medios como los líquidos viscoelásticos, que contienen estructuras internas como cadenas poliméricas, se ha demostrado que pueden fluir o deformarse como sólidos dependiendo de la escala temporal de deformación. En este estudio, se exploraron los rangos de frecuencia para los que un medio se considera como sólido clásico, donde las ondas de cizalla se propagan, o líquido, donde las ondas de cizalla no se propagan. Una solución acuosa de goma xantana a diferentes concentraciones se convirtió en un líquido viscoelástico. La generación y seguimiento de ondas de cizalla se realizó mediante elastografía dinámica con un sistema de investigación Verasonics, utilizando la fuerza de radiación acústica (ARF) como fuente de excitación. Con un método de transformada de Fourier 2D se estimaron la velocidad de fase y la atenuación, y con ello se reconstruyeron los módulos de almacenamiento (G') y de pérdida (G''). Este medio podría considerarse como un filtro pasa banda con bandas de transición para las ondas de cizalla. El modelo reológico de Jeffreys se ajustó con precisión a la respuesta del medio en casi todo el rango de frecuencias.

ABSTRACT

From an acoustic standpoint, substances like viscoelastic liquids, which have internal structures like polymer chains, can exhibit both fluid-like and solid-like behavior depending on the time scale of deformation. This study delves into the frequency ranges that define whether a substance behaves as a classic solid, allowing shear waves to propagate, or as a liquid where shear waves remain restricted. To conduct this research, an aqueous solution of xanthan gum at varying concentrations was transformed into a viscoelastic liquid. We

applied dynamic elastography, utilizing a Verasonics research system with acoustic radiation force (ARF) as the excitation source, to generate and track shear waves. A 2D Fourier transform method was then employed to deduce phase velocity and attenuation, enabling the reconstruction of the storage modulus (G') and loss modulus (G''). In essence, this medium acted akin to a bandpass filter with transition bands for shear waves. The rheological Jeffreys model was employed to precisely align with the medium's response over nearly the entire frequency range.

Palabras Clave— líquidos viscoelásticos, elastografía, frecuencia de corte.

1. INTRODUCCIÓN

Inicialmente, un sólido se define como un medio en el cual las ondas de cizalla de volumen pueden propagarse, ya que existe una relación física directa entre este tipo de ondas y el módulo de cizalla [1]. En contraste, en un líquido con módulo de cizalla cercano a cero, a menudo no se observa la propagación de ondas de cizalla de volumen.

Por su parte, existen materiales complejos, como los que combinan una fase líquida con estructuras internas como cadenas de polímeros, que soportan la propagación de ondas de cizalla. Comúnmente se les denomina líquidos viscoelásticos, lo que implica que pueden fluir o deformarse como sólidos dependiendo de las escalas de longitud y tiempo de la deformación [2].

La evaluación experimental de estos líquidos se ha realizado principalmente mediante medidas de reometría rotativa. El problema es que debido a los efectos inerciales de los instrumentos a frecuencias superiores a varias decenas de Hz se limitan las frecuencias de análisis a < 20 Hz [3].

* *Autor de contacto:* geresez@ugr.es

Copyright: ©2023 Jorge Torres et al. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution 3.0 Unported License, which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original author and source are credited.

Para explorar frecuencias más elevadas se han empleado métodos de propagación de ondas de cizalla. Se han utilizado métodos ópticos, ultrasónicos o mecánicos para detectar ondas de corte en fluidos micelares [4]–[6]. En otro estudio de Gennisson et al. [7] monitorearon la coagulación de la sangre a lo largo del tiempo y detectaron el momento de transición de fase de líquido a sólido.

Estos estudios han dejado varias cuestiones abiertas sobre los fenómenos observados en líquidos viscoelásticos. Nosotros nos interesamos en estudiar mediante elastografía dinámica los rangos de frecuencia en los que un medio se considera un sólido clásico ($G' > G''$) o un líquido clásico ($G' < G''$), en otras palabras, transiciones de fase líquido-sólido. Asimismo, se probó la capacidad de diferentes modelos reológicos para predecir estas frecuencias de transición de fase.

2. MATERIALES Y MÉTODOS

Para crear un líquido viscoelástico se disolvió goma xantana (XG) en agua, proceso que crea una estructura polimérica interna en el líquido [8]. Se calentó agua destilada y se añadió una mezcla de XG y grafito, con concentraciones de 0.5% y 0.1% (w/w), respectivamente, mientras se agitaba magnéticamente durante 30 minutos. Tras esto se desgasificó el medio. El grafito se usó para proporcionar dispersión acústica.

La generación y seguimiento de ondas de corte se realizó mediante elastografía dinámica con un sistema de investigación Verasonics (Vantage 256, USA) y una sonda lineal L11-5v (Figura 1). La excitación se realizó mediante un push de fuerza de radiación acústica (ARF) para provocar una respuesta de ancho de banda amplio [9]. Los parámetros de ARF fueron 1000 ciclos, frecuencia central de 7.6 MHz y distancia focal de 25 mm. Inmediatamente después, se realizó una imagen ultra rápida utilizando ondas planas con una frecuencia de 3 kHz. Para eliminar el efecto del ruido aleatorio, se promediaron 10 adquisiciones consecutivas.

El campo de desplazamiento se reconstruyó utilizando un algoritmo de seguimiento de fase [10](Figura 2a). Se aplicó un filtro direccional y un filtro de frecuencia espacial para remover componentes con velocidades superiores a 0.5 m/s [11]. La atenuación geométrica se tuvo en cuenta multiplicando la amplitud de señal por la distancia al origen del push (\sqrt{r}). Se promedió en una región de interés a la derecha del push y se mediante diferenciación temporal se obtuvo el perfil de velocidad de partícula (Figura 2b).

Para detectar las frecuencias de transición de fase de líquido a sólido, en primer lugar, se estimaron la velocidad de fase y atenuación mediante la transformada de Fourier 2D [12]. Los datos espacio-temporales reconstruidos ($v_z(t,x)$) se transformaron al espacio $\tilde{v}_z(f,k)$. El modo de propagación principal se determinó identificando pares de número de onda k y frecuencia f asociados con los valores máximos de amplitud.

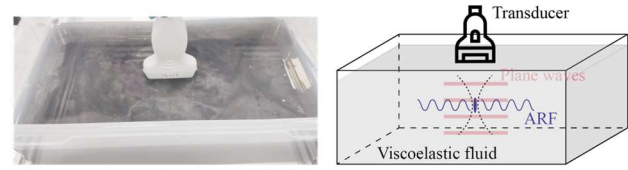


Figura 1. Izquierda: Solución de XG con partículas de grafito. Derecha: Setup experimental combinando ARF + ondas planas.

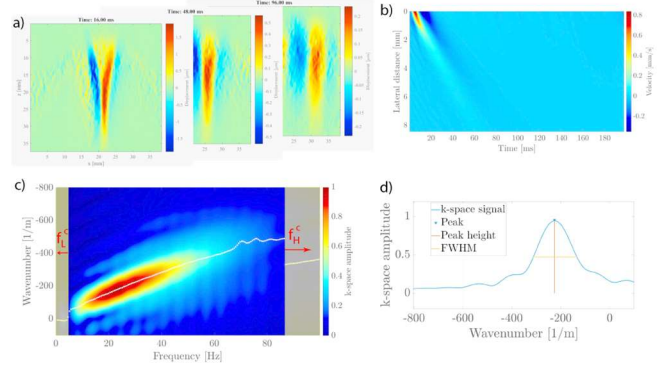


Figura 2. a) Propagación de la onda de cizalla a 16, 48 y 96 ms. b) Mapa de velocidad de partículas para una muestra del 0,5%. c) Espacio (f,k) que muestra los picos (puntos blancos) que corresponden a la velocidad de fase para cada frecuencia, y las zonas de frecuencia de corte. d) Cálculo de FWHM a 30 Hz para la estimación de la atenuación.

Las frecuencias de corte, cuando se consideró que no había una propagación de ondas de cizalla detectables, se determinaron cuando hubo cambios abruptos en la información del modo de propagación principal (Figura 2c). La Ec. 1 se obtuvo para obtener la velocidad, y la Ec. 2 para calcular la atenuación, como se muestra en la Figura 2d. La Ec. 3 muestra las expresiones para calcular G' y G'' .

$$c_{ph} = \frac{\omega}{k} \quad (1)$$

$$\alpha = FWHM \frac{\pi}{3} \quad (2)$$

$$G^* = G' + iG'' = \rho \left(\frac{\omega}{\omega/c_{ph} + i\alpha} \right)^2 \quad (3)$$

Se propusieron cuatro modelos reológicos (Kelvin-Voigt, Maxwell, Jeffreys y Extended Maxwell) para explicar el comportamiento observado. Para estimar los parámetros de los modelos se ajustó la curva de dispersión aplicando, se aplicó un método de ajuste no lineal. Luego, los parámetros ajustados se utilizaron para calcular la respuesta del modelo para G' y G'' .

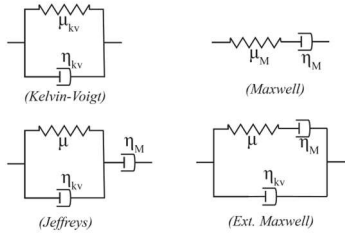


Figura 3. Modelos reológicos propuestos.

3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

La curva de dispersión se muestra en la Figura 4, junto con la atenuación calculada. Se obtienen velocidades muy bajas, en torno a 0.15 m/s, pero coherentes con las obtenidas en otros fluidos viscoelásticos [5], [6]. Las frecuencias de corte detectadas son 5 Hz (f_L^c) y 73 Hz (f_H^c). Se utilizó una adquisición de 10 s para permitir el tiempo suficiente de capturar ondas a tan baja frecuencia para confirmar f_L^c . En la misma figura se observa como la atenuación es creciente en todo el rango de frecuencia.

El ajuste de los cuatro modelos reológicos propuestos se muestra en la Figura 5. El modelo KV se utiliza con frecuencia para explicar comportamientos tipo sólido. Parece ser compatible en casi todo el rango, pero hay discrepancias significativas en frecuencias por debajo de 20 Hz. Por su parte, el modelo Mx a menudo describe líquidos. Sabiendo que el modelo Mx tiende a estabilizarse a altas frecuencias, el ajuste se realizó solo hasta 20 Hz. Se encuentra que este modelo reproduce adecuadamente los valores a bajas frecuencias.

Estos modelos reológicos simples no pueden el comportamiento en todo el espectro de frecuencias. El modelo de Maxwell extendido [6] consiste en conectar en paralelo un amortiguador con un modelo Mx. También se puede obtener conectando en serie un amortiguador con un KV, que es el modelo de Jeffreys, también llamado modelo estándar de líquido lineal. Este par de modelos sigue la misma ecuación constitutiva, pero con coeficientes diferentes. En este caso se aprecia como el modelo de Jeffreys describe correctamente las curvas experimentales. Los parámetros del modelo Jeffreys son $\mu=16.774$ Pa, $\eta_{kv}=0.042$ Pa·s, y $\eta_M=0.381$ Pa·s, en línea con los valores de los modelos simples. Esto permite sugerir que el modelo de tres elementos de Jeffreys se puede aproximar como un modelo Mx a bajas frecuencias, y un modelo KV a altas frecuencias. El modelo Extended Maxwell (línea verde en la Figura 5) se superpone perfectamente en todas las curvas del modelo Jeffreys, verificando que representan el mismo sistema, pero con diferentes parámetros.

La Figura 6 muestra el comportamiento del módulo complejo de cizalla. Para una frecuencia menor de 10 Hz (f_1^T , primera frecuencia de transición), G'' es mayor que G' , lo que indica que el término disipativo domina sobre el término de almacenamiento, y el medio se considera un líquido. Luego,

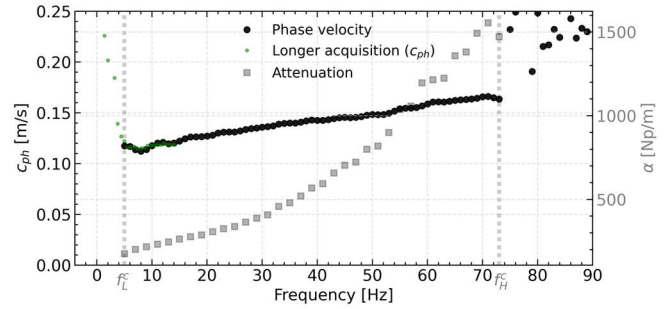


Figura 4. Curva de velocidad de fase con líneas verticales que representan las frecuencias de corte detectadas en el setup. La atenuación en función de la frecuencia está representada en el eje derecho.

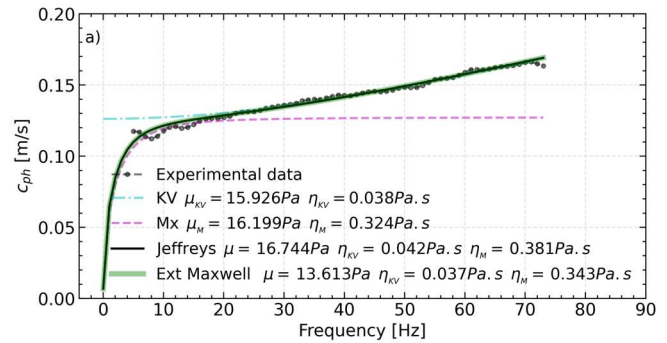


Figura 5. Curva de velocidad de fase junto con el ajuste de varios modelos reológicos.

el término G' domina hasta un segundo punto de cruce alrededor de 55 Hz (f_2^T , segunda frecuencia de transición), y el medio se puede considerar un sólido entre 10-55 Hz. Más allá de este rango intermedio, las ondas de corte comienzan a atenuarse nuevamente de manera significativa, y el medio se considera un líquido ($G''>G'$). En consecuencia, el medio investigado se comporta como un filtro pasa banda con bandas de transición. Por lo tanto, el ancho de banda de la fase sólida (10-55 Hz) define la región de atenuación mínima para la amplitud de la onda.

En las fases líquidas ($G''>G'$), los datos experimentales se desvían del modelo, lo que es atribuido a una fuerte atenuación. En la fase sólida ($G'>G''$), se observa que G' experimental se desvía del modelo a medida que aumenta la frecuencia. Estas diferencias pueden ser debidas a que el ajuste se realiza solo en c_{ph} y los pequeños errores se amplifican al transformarlos en G^* .

Aunque sería intrigante relacionar los parámetros reológicos estimados con la estructura interna del medio, en este momento es difícil dar una interpretación convincente. De manera simplificada, postulamos que la solución contiene una red de cadenas de polímero que muestran las características de un sólido KV. Este sistema reológico se coloca en serie con un amortiguador, para representar que el medio está incrustado en un fluido newtoniano, que es el modelo Jeffreys.

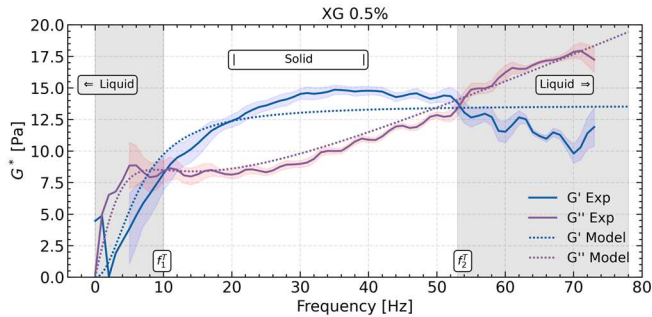


Figura 6. Módulos de almacenamiento experimentales G' y pérdida G'' que representan zonas de transición de fase sólido-líquido. También se representa el ajuste del modelo de Jeffreys.

Es importante destacar que, aunque hay estudios de reometría que obtienen valores en el mismo rango que nosotros para G^* [13], [14], hay dificultades para realizar comparaciones directas entre los métodos de ondas de cizalla y la reometría. La reometría se centra principalmente en la viscosidad intrínseca de los componentes del medio y las interacciones de fricción entre ellos. En cambio, los métodos de ondas de corte también son sensibles a la microestructura. Cuando las ondas se propagan, experimentan dispersión debido a su interacción con la microestructura del medio. Además, la adición de dispersores acústicos puede influir en la atenuación y en la dependencia de la velocidad de propagación con respecto a la frecuencia.

4. CONCLUSIONES

El medio de XG estudiado ha exhibido un comportamiento de filtro de paso de banda, y se ha identificado la transición de fase de sólido a líquido a altas frecuencias. Este logro ha sido posible gracias a la amplia gama de frecuencias en la que pueden operar los métodos de ondas de cizalla, a diferencia de las limitaciones de la reometría rotacional. También se ha investigado las frecuencias de corte de las ondas de cizalla para mejorar la comprensión de la propagación de ondas en líquidos viscoelásticos. El estudio de las ondas de cizalla en líquidos viscoelásticos biológicos representa una herramienta prometedora para evaluar sus propiedades mecánicas. Este enfoque podría utilizarse para distinguir estados patológicos, como el síndrome de hiperviscosidad sanguínea o la viscosidad del esputo, con el fin de diagnosticar enfermedades respiratorias crónicas.

REFERENCIAS

[1] K. F. Graff, *Wave Motion in Elastic Solids*. Dover Publications, 1991.

[2] R. B. Bird, R. C. Armstrong, et O. Hassager, 'Dynamics of polymeric liquids. Vol. 1, 2nd Ed.: Fluid mechanics', ian. 1987, Consultatus: 13 februarius 2023. [In linea]. Praestatus ad: <https://www.osti.gov/biblio/6164599>

[3] A. Kowalczyk, B. Hochstein, P. Stähle, et N. Willenbacher, 'Characterization of Complex Fluids at very low frequency:

Experimental Verification of the strain rate-frequency superposition (SRFS) method', *Appl. Rheol.*, t. 20, n. 5, p. 52340, 2010, doi: 10.3933/AppRheol-20-52340.

[4] H. Liu, P. Kijanka, et M. W. Urban, 'Acoustic radiation force optical coherence elastography for evaluating mechanical properties of soft condensed matters and its biological applications', *J. Biophotonics*, t. 13, n. 3, mar. 2020, doi: 10.1002/jbio.201960134.

[5] J. R. Gladden, A. M. Gamble, C. E. Skelton, et J. Mobley, 'Shear waves in viscoelastic wormlike micellar fluids over a broad concentration range', *J. Acoust. Soc. Am.*, t. 131, n. 3, pp. 2063–2067, mar. 2012, doi: 10.1121/1.3683538.

[6] C. Amador, B. L. Otilio, R. R. Kinnick, et M. W. Urban, 'Ultrasonic method to characterize shear wave propagation in micellar fluids', *J. Acoust. Soc. Am.*, t. 140, n. 3, pp. 1719–1726, sep. 2016, doi: 10.1121/1.4962531.

[7] J.-L. Gennisson, S. Lerouge, et G. Cloutier, 'Assessment by transient elastography of the viscoelastic properties of blood during clotting', *Ultrasound Med. Biol.*, t. 32, n. 10, pp. 1529–1537, oct. 2006, doi: 10.1016/j.ultrasmedbio.2006.06.008.

[8] N. M. Eren, P. H. S. Santos, et O. Campanella, 'Mechanically modified xanthan gum: Rheology and polydispersity aspects', *Carbohydr. Polym.*, t. 134, pp. 475–484, dec. 2015, doi: 10.1016/j.carbpol.2015.07.092.

[9] A. Sarvazyan, T. J. Hall, M. W. Urban, M. Fatemi, S. R. Aglyamov, et B. S. Garra, 'An Overview of Elastography-An Emerging Branch of Medical Imaging', *Curr. Med. Imaging Rev.*, t. 7, n. 4, pp. 255–282, nou. 2011, doi: 10.2174/157340511798038684.

[10] N. Benech, S. Catheline, J. Brum, T. Gallot, et C. A. Negreira, '1-D elasticity assessment in soft solids from shear wave correlation: the time-reversal approach', *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, t. 56, n. 11, pp. 2400–2410, nou. 2009, doi: 10.1109/TUFFC.2009.1328.

[11] H. Zhao *et al.*, 'External Vibration Multi-Directional Ultrasound Shearwave Elastography (EVMUSE): Application in Liver Fibrosis Staging', *IEEE Trans. Med. Imaging*, t. 33, n. 11, pp. 2140–2148, nou. 2014, doi: 10.1109/TMI.2014.2332542.

[12] I. Z. Nenadic *et al.*, 'Attenuation measuring ultrasound shearwave elastography and in vivo application in post-transplant liver patients', *Phys. Med. Biol.*, t. 62, n. 2, p. 484, dec. 2016, doi: 10.1088/1361-6560/aa4f6f.

[13] Guler Bengusu Tezel, 'A Study on Tunable Viscoelastic Properties of Xhantan Gum and Sodium Alginate Hyrogelling System', *Theor. Found. Chem. Eng.*, t. 55, n. 3, pp. 464–471, mai. 2021, doi: 10.1134/S0040579521030210.

[14] G. P. Mota et R. G. Pereira, 'A comparison of the rheological behavior of xanthan gum and diutan gum aqueous solutions', *J. Braz. Soc. Mech. Sci. Eng.*, t. 44, n. 4, p. 117, apr. 2022, doi: 10.1007/s40430-022-03406-0.