

Published in:
Comptes Rendus de l'Académie des
Sciences – Mécanique, Paris, 331
(9), pp. 601-607, September 2003

Cristallisation par onde acoustique : le cas de l'Hélium

Crystallization by acoustic waves: the case of Helium.

Martine Ben Amar^a Michael P. Brenner^b James R. Rice^b

^a *Laboratoire de Physique Statistique, Ecole Normale Supérieure
24 Rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France.*

^b *Division of Engineering and Applied Sciences and Department of Earth and Planetary Sciences
Harvard University Cambridge, MA 02138, USA*

Abstract

We establish a theoretical model to explain the nucleation of a crystal of helium by an acoustic over-pressure. We explain the interfacial law for this ultra-fast crystallization, close to the sound speed. Assuming spherical symmetry and taking into account the experimental data, we recover the dynamics of the growth and melting during an over-pressure impulse. *To cite this article: M. Ben Amar, M. Brenner, J.R. Rice, C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. I 336 (2003).*

Résumé

Nous proposons un modèle théorique pour expliquer la nucléation d'un cristal d'hélium par surpression acoustique. Nous explicitons les lois aux interfaces pour cette cristallisation ultra-rapide, proche des vitesses supersoniques. En supposant la symétrie sphérique et en nous appuyant sur les données expérimentales, nous retrouvons la dynamique de croissance et de fusion du cristal au cours d'une impulsion de surpression micro-onde. *Pour citer cet article : M. Ben Amar, M. Brenner, J.R. Rice, C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. I 336 (2003).*

Abridged English version

Recently, Chavanne *et. al.* [1] demonstrated that large positive pressure fluctuations in a liquid can trigger the production of a *solid* particle in a way similar to the formation of gaseous bubble by a large negative pressure. The experiments were performed in liquid helium 4, at very low temperatures (65mK) at a baseline pressure set to the solid-liquid melting pressure. A semispherical piezoelectric transducer

Email addresses: benamar@lps.ens.fr (Martine Ben Amar), brenner@deas.harvard.edu (Michael P. Brenner), rice@deas.harvard.edu (James R. Rice).

produces an oscillating acoustic wave which converges towards the focus. A sufficiently large pressure triggers the growth of a solid, which eventually melts when the oscillating pressure swings through the liquid melting pressure. The goal of these notes is to compute the dynamics of the growth of the solid, and understand the forces that influence the growth. In particular our goal is to explain the rather surprising observation of Chavanne *et. al.* suggesting that the solid begins to remelt about 100ns *before* the oscillating pressure passes through the melting pressure. Taking into account the conservation of mass, momentum and energy, we write the equations for the growth of the solid nucleus. The specific thermodynamics of superfluid liquid helium simplifies the analysis of the thermal transport and we derive a modified Gibbs-Thomson relation which gives the difference between the average pressure at the interface and the equilibrium pressure. The equations governing the dynamics of the crystal are close to the Rayleigh-Plesset for an oscillating gaseous bubble in a liquid but with two important differences: first waves in the solid may play an important role and cannot be neglected. Second, the density contrast in this case is weak. Although the model does reproduce the qualitative features of the time dependence of the radius of the solid nucleus observed experimentally, it does not account for the early melting observed experimentally. Possible explanations for the experimental observations are given in this paper.

1. Introduction

Il est bien connu qu'une dépression importante dans un liquide peut provoquer la formation de bulles ou cavitation. La dynamique de ces bulles est un sujet important pour les ingénieurs [2], puisque ces bulles ont tendance à s'effondrer, créant ainsi des forces énormes qui endommagent les proches parois. La raison de cet effondrement a été établi par Lord Rayleigh, qui a montré que l'inertie du fluide au moment du "collapse" conduisait à des vitesses supersoniques. Récemment, Chavanne *et. al.* [1] ont montré que des surpressions importantes dans un liquide pouvaient produire une cristallisation. L'expérience était réalisée dans un bain d'Hélium 4, à très basse température (65mK). La pression statique est celle de l'équilibre liquide-solide. Un générateur piezoelectrique hémisphérique produit une onde acoustique oscillante qui converge sur une fenêtre d'observation. Une pression suffisamment forte conduit à la croissance d'un cristal qui éventuellement refond quand la pression surajoutée devient négative. Nous présentons un modèle de la dynamique de croissance du solide. En particulier, notre but est de comprendre l'observation de Chavanne *et. al.* du solide qui refond environ 100ns avant que la pression ne devienne inférieure à la pression d'équilibre.

2. Lois aux interfaces.

La croissance du cristal est gouvernée par la conservation de la masse, de l'impulsion et de l'énergie (pour un traitement complet incluant la dynamique dans chaque phase et les déformations élastiques [3] et [4]). La densité est discontinue à l'interface solide-liquide, (ρ_s la densité de la phase solide étant légèrement supérieure à celle de la phase liquide ρ_f). Nous allons donner les conditions à la traversée de l'interface. Soit V la vitesse dans le repère du laboratoire et $v = V - \dot{R}(t)$ celle dans le repère du cristal supposé sphérique, $\dot{R}(t)$ étant la vitesse de l'interface à $r = R(t)$ au temps t . La conservation de la masse implique :

$$\rho_s(V_s - \dot{R}(t)) = \rho_s v_s = \rho_f v_f = \rho_f(V_f - \dot{R}(t)). \quad (1)$$

où V_s, V_f sont les vitesses dans la phase solide/fluide. De même, la conservation de l'impulsion à l'interface implique que :

$$\rho_s v_s^2 + P_s = \rho_f v_f^2 + P_f + \frac{2\gamma}{R} \quad (2)$$

où P_s , (resp. P_f) représente la pression dans la phase solide (resp. fluide), γ étant la tension de surface. Ces deux lois sont dites de Rankine-Hugoniot dans la littérature des chocs [5]. A ces équations, on doit ajouter une relation thermodynamique caractérisant la conservation de l'énergie et le transfert de chaleur. D'après la première loi de la thermodynamique :

$$P_f v_f - q_f - P_s v_s + q_s = \rho_s v_s (e_s - e_f) + \frac{1}{2} \rho_s v_s (v_s^2 - v_f^2), \quad (3)$$

où q_f, q_s (e_f, e_s) sont les flux de chaleur (les énergies internes) du fluide et du solide, respectivement. Nous devons maintenant discuter les échanges de chaleur qui sont particuliers dans l'Hélium superfluide. Le nombre déterminant est le nombre de Péclet $Pe = \dot{R}R/\kappa_f$, où κ_f est la conductivité thermique. Elle vaut $\kappa_f \sim ac_f$, où a est une taille moléculaire et c_f la vitesse du son dans le fluide. Etant donné que l'interface se meut presque à la vitesse du son, $\dot{R} \sim c_f$, le nombre de Péclet vaut $Pe \sim \frac{R}{a} \gg 1$. Dans cette expérience, l'échange de chaleur est "adiabatique" (elle ne peut s'échapper du solide) et les flux de chaleur sont négligeables. En conséquence, la température est discontinue à l'interface. Elle vaut T_0 dans le liquide, et $T_s = T_0 - \delta T$ dans le solide. Dans les études habituelles de solidification, la diffusion de la chaleur contrôle la croissance de cristaux en aiguille (pour une revue [8,9]) mais il n'y a pas d'ondes acoustiques surajoutées. De plus, la convection dans le fluide due à la différence de densité est négligée dans la plupart des études. Ici nous couplons ondes acoustiques, convection et thermique tout en nous restreignant à l'approximation adiabatique. Il n'est pas possible de détailler ici l'ensemble des relations thermodynamiques qui conduisent au résultat explicité ci-dessous, et nous renvoyons le lecteur à une présentation plus détaillée [10]. Nous obtenons finalement la loi de Gibbs-Thomson modifiée par la surpression suivante :

$$\frac{(L + C_{p,s}\delta T)\delta T}{T_0} = -\frac{\gamma}{R}\left(\frac{1}{\rho_f} + \frac{1}{\rho_s}\right) - \frac{\Sigma T}{\rho_s |v_s|} + (P_m - P_0)\left(\frac{1}{\rho_f} - \frac{1}{\rho_s}\right) \quad (4)$$

avec $P_m = (P_s + P_f)/2$, L est la chaleur latente, C_p , la capacité calorifique, $\Sigma T \geq 0$, le taux de dissipation de l'entropie produite à l'interface, signe d'irréversibilité de la transition de phase, que l'on appelle encore effets cinétiques. Dans le cas de l'Hélium $L \sim 0$ et $C_p \sim 0$, ce qui donne :

$$P_m - P_0 = \frac{\gamma}{R} \frac{\rho_s + \rho_f}{\rho_s - \rho_f} + \frac{\Sigma T}{\rho_s |v_s|} \quad (5)$$

Notons que dans le modèle adiabatique, la moyenne de la pression à l'interface vaut la pression d'équilibre, aux effets capillaires et cinétiques près.

3. Ondes : Elasticité et Hydrodynamique.

Etant donné les conditions expérimentales et les données propres de l'hélium, les ondes sont présentes à la fois dans le solide et le liquide, ce qui n'est pas le cas de la cavitation classique concernant les bulles.

La dynamique dans la phase solide est caractérisée par la pression P_s et la vitesse $V_s = \partial_t U_s$, où U_s est le déplacement élastique. Nous supposons que le cristal est sphérique, aussi le déplacement (et la vitesse) ne dépendent que de r . Seul existe le déplacement longitudinal et on peut l'exprimer sous la forme : $U_s = \partial_r \Phi_s$ où Φ_s est le potentiel élastique qui satisfait à l'équation des ondes classiques avec pour vitesse des ondes : $c_s^2 = E(1 - \sigma)/[\rho_s(1 + \sigma)(1 - 2\sigma)]$. Cette vitesse est celle des ondes longitudinales, E étant le module d'Young et σ le coefficient de Poisson. Un traitement complet des ondes à l'intérieur d'une

cavité sphérique est complexe surtout lorsque les résonances d'Helmoltz interviennent. Ce n'est pas le cas ici puisqu'au maximum le rayon du cristal atteint 15μ tandis que la longueur d'onde acoustique λ est de l'ordre de 300μ . Nous simplifierons l'analyse en utilisant une approche quasi-statique : nous utiliserons le résultat concernant le déplacement statique d'une sphère sous pression supposée lentement variable : ceci donne pour les efforts à l'intérieur de la sphère : $U_s = -P_s(t)r(1 - 2\sigma)/E$, résultat valable si $R(t) < \lambda$.

La vitesse du fluide V_f satisfait l'équation de Navier-Stokes compressible. Dans la limite où l'amplitude des ondes sonores dans le liquide est faible (aussi les nonlinearités peuvent être négligées) le potentiel des vitesses (défini par $V_f = \nabla\Phi_f$) satisfait l'équation des ondes dont la solution générale est de la forme :

$$\Phi_f = -\frac{F(t - r/c_f)}{r} + \Phi_\infty[\sin(kr)/kr]\cos(kct),$$

où F est une fonction arbitraire. Φ_∞ doit représenter le champ acoustique imposé, supposé sphérique, étant donné la géométrie du générateur à ultrasons. Supposons que les vitesses dans le liquide sont bien plus petites que la vitesse du son, on peut développer $F(t - r/c_f)$ au petit r près du cristal. La vitesse dans le liquide devient :

$$V_f = \nabla\Phi_f = \frac{F'(t)}{R(t)^2} - \Phi_\infty j_1(kr)\cos(kct) \quad (6)$$

On détermine la pression grâce à la loi de Bernoulli, supposé valable pour ce superfluide :

$$P_f = \rho_f \left(\frac{F'(t)}{r} - \frac{1}{2}V_f^2 \right) + P_\infty[\sin(kr)/kr]\sin(kct) \quad \text{avec} \quad P_\infty = \rho_f \Phi_\infty(kc) \quad (7)$$

4. Dynamique de croissance du cristal.

Nous avons obtenu les équations pour la vitesse et la pression dans les deux phases à l'interface solide-liquide, à partir de trois fonctions inconnues que nous devons relier les unes aux autres : F, V_S and $R(t)$. D'un autre côté, dans la première partie, nous avons discuté la thermodynamique et avons établi trois conditions à l'interface : conservation de la masse, de l'impulsion et une troisième relation provenant du premier et du second principe ce qui nous a conduit dans le cas de l'Hélium à une relation sur la pression moyenne à l'interface. Nous utilisons désormais la faible différence de densité entre la phase solide et liquide pour simplifier les formules : en introduisant le paramètre $\beta = 2(\rho_s - \rho_f)/(\rho_s + \rho_f)$. Avec un peu d'algèbre, nous obtenons à l'ordre dominant en β :

$$\left(\frac{\dot{F}}{R} - \frac{\ddot{F}}{c_f} \right) - \frac{1}{2} \left(\frac{F}{R^2} - \Phi_\infty j_1(kR)\cos(kct) \right)^2 + P_\infty/\rho_f \sin(kR)/(kR)\sin(kct) = -\frac{\beta}{2} \left(\frac{F}{R^2} - \dot{R} \right)^2 + 2\frac{\gamma}{R\beta\rho_f} \quad (8)$$

$$P_s = \rho_s \beta / 2 \left(\frac{F}{R^2} - \Phi_\infty j_1(kr)\cos(kct) \right)^2 + 2\gamma/R\beta. \quad (9)$$

$$F = \beta \dot{R}R^2 + V_s R^2 \quad \text{et} \quad V_s = -\dot{P}_s r \frac{E}{1 - 2\sigma}. \quad (10)$$

5. Discussion des résultats.

Ce système d'équations, qui doit donner au final, le rayon $R(t)$ depuis le temps de nucléation t_n du cristal jusqu'à sa disparition ne peut être résolu que numériquement par une méthode de type Runge-Kutta. Pour comprendre les difficultés rencontrées, rappelons quelques ordres de grandeur typiques de cette expérience et de l'Hélium 4. L'onde donnée par le piezo-electrique n'est pas rigoureusement sinusoidale. Elle correspond à une fréquence moyenne de l'ordre du megahertz, donc une longueur d'onde de l'ordre de 500μ dans le solide, 360μ dans le liquide. En effet, les vitesses du son sont de l'ordre de $500m/s$, dans le solide et de $360m/s$ dans le liquide. On choisira cette longueur d'onde comme unité de longueur, l'unité de temps étant la demi-période de l'onde acoustique. De ce fait, la vitesse du son dans le solide est l'unité de vitesse, ce qui permet de calculer toutes les quantités de manière adimensionnée. Notons que la taille du cristal est estimée [1] à une dizaine de nanomètres au seuil de nucléation déduite de la pression de nucléation estimée à 4.5 bars. Les expérimentateurs partent de l'hypothèse que l'expérience est juste à la transition solide-liquide en l'absence de surpression acoustique.

Les difficultés numériques proviennent du fait que la taille du cristal va varier sur un temps (numérique) d'ordre 1 de 10 nanomètres à une vingtaine de microns, taille maximale supposée du cristal, ce qui donne des vitesses presque soniques pour ce cristal. On peut arguer qu'à ces vitesses, notre modèle est simpliste, en particulier pour les effets retardés dans la phase solide. Nous renvoyons le lecteur à [10] pour un modèle plus complet mais aussi nettement plus compliqué qui inclut également beaucoup d'effets non abordés .

Ce que nous pouvons déjà affirmer c'est qu'il est impossible d'obtenir un cristal de taille raisonnable en supposant que la pression de nucléation est due à la tension de surface par la relation : $P_n = 2\gamma/R\beta$, la valeur de la tension de surface étant $0.17mN/m$ [1]. Cette hypothèse conduit à une croissance explosive. En effet cela correspondrait à un effet ne se manifestant qu'au seuil de nucléation et qui disparaîtrait presque aussitôt au fur et à mesure de la croissance. La seule façon de rendre compte d'une croissance limitée et non explosive est d'imaginer que cette pression de nucléation est en fait une surpression constante nécessaire pour obtenir la nucléation, comme si en fait on ne se trouvait pas à l'équilibre liquide-solide sans pression acoustique. Nous avons obtenu des résultats raisonnables en supposant nécessaire cette surpression qui pourrait être provoquée par un déplacement de l'équilibre par des effets thermiques par exemple. Néanmoins, nous n'avons jamais, pour les valeurs de pression acoustique annoncée par les expérimentateurs au delà de la dizaine de bars, observé de collapse en zone de surpression. Le "collapse" en zone de surpression intervient seulement lorsque la pression acoustique est voisine de 4.5 bars par exemple 6 bars (voir la figure).

Ajouter des effets cinétiques ou même de la viscosité, avec des ordres de grandeur largement supérieurs à ce qu'il est raisonnable d'admettre pour l'Hélium améliore assez peu la comparaison précise : théorie-expérience. L'origine de la dissipation dans l'Hélium superfluide provient des vortex qui peuvent être nucléés autour de l'obstacle que constitue le système germe+paroi. Une estimation possible d'un coefficient de viscosité effectif est donné par une vitesse typique que multiplie la taille du cristal. Nous avons introduit des viscosités de l'ordre de 10^{-3} en unité réduite. Un effet important est donné par le contraste de densités : il est de 0.1 dans l'expérience. Si on le multiplie par deux, on obtient un amortissement de la croissance, plus proche des résultats expérimentaux. Notons que le contraste de densité est de 1 en cavitation classique .

Nous avons observé que notre modèle demeure assez peu sensible aux conditions initiales, que par ailleurs nous ignorons. Par exemple, la croissance du cristal dépend assez peu de la valeur du rayon initial de nucléation, nous supposons toutes les vitesses initiales nulles au seuil de nucléation. Deux effets ont conduit à atténuer sévèrement la croissance explosive du cristal : l'amplitude de l'onde acoustique comme le montre la figure ci-dessous mais également et de manière non négligeable les effets élastiques dans le solide. Peut-être que l'approximation proposée des effets élastiques serait à améliorer. Néanmoins, les

difficultés numériques limitent assez sévèrement les améliorations potentielles. En fait, nous ne pouvons nous permettre un algorithme nécessitant des ordres de dérivation plus élevés. Ceux-ci sont sources d'imprécision mais nécessitent également des suppositions sur les conditions initiales.

Un effet plus important pourrait être l'effet Bjerknes [11] qui est souvent étudié pour les bulles de cavitation sur de nombreux cycles. En fait, en dépit d'une certaine analogie entre la cavitation des bulles et la nucléation du cristal, on ne peut tout à fait reproduire les résultats connus pour ce dernier phénomène. Les études systématiques de cavitation portent sur un nombre très important de cycles micro-onde et s'intéressent peu aux transitoires, proche du seuil de nucléation. En particulier l'effet Bjerknes est souvent calculé sur un nombre important de cycles mais également en supposant une onde acoustique plane et stationnaire [12]. Dans le cas de la cavitation, si initialement la bulle apparaît décalée d'un ventre de tension, elle se trouve animée en régime périodique d'un mouvement continu d'oscillations non-linéaires qui contribuent au facteur d'amortissement. Rappelons que notre modèle pré-suppose une nucléation homogène et le germe de nucléation est supposé apparaître au ventre de pression. En nucléation inhomogène, on s'attend à ce que le germe apparaisse sur la paroi qui n'est pas nécessairement un ventre de pression. Par contre, très probablement le germe va rechercher ce ventre de pression et va peut être décoller de la paroi, là où les mesures sont effectuées.

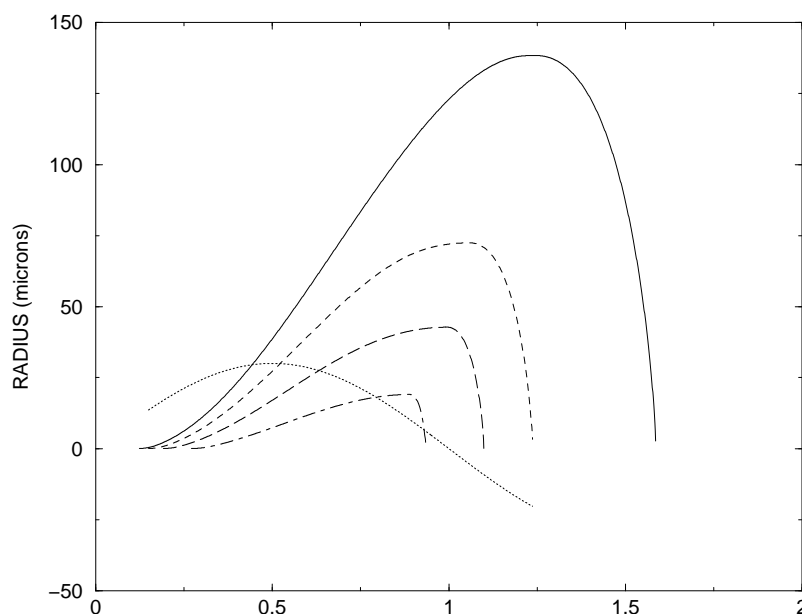


FIG. 1. Rayon du cristal au cours du temps pour différentes valeurs de la pression acoustique : 12 bars pour la courbe en trait plein, de 10 bars pour les tirets courts, de 8 bars pour les tirets longs et enfin de 6 bars. Egalement tracée en pointillé la pression acoustique qui donne l'échelle de temps (sans unité). Le défaut de pression statique est de 4.5 bars.

6. Conclusion

Nous proposons un modèle de nucléation de cristal par surpression acoustique. Dans le cas envisagé dans ce travail, celui de Hélium, les échanges de chaleur sont négligeables et la dynamique de croissance se trouve essentiellement pilotée par les ondes à la fois dans le liquide mais également dans le solide. Il

s'en suit une similarité certaine du jeu d'équations obtenu avec les équations dites de Rayleigh-Plesset, valable pour la cavitation des bulles. .

Remerciements

C'est un plaisir de pouvoir remercier ici les expérimentateurs à l'origine de ce travail : Sébastien Balibar et Frédéric Caupin ainsi que Paul Clavin, Yves Pomeau et Lev Truskinovsky. Ce travail et sa publication sont rendus possibles par l'invitation de M. Brenner and J. Rice à l'Université Pierre et Marie Curie.

Références

- [1] Chavanne, X., Balibar, S. & Caupin, F. Acoustic Crystallization and Heterogeneous Nucleation, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2001) 5506–5509.
- [2] Brennen, C.E. *Cavitation and bubble dynamics* (1995) Oxford University Press
- [3] Truskinovsky, L.M. Dynamics of non-equilibrium phase boundaries in a heat conducting non-linearly elastic medium, *Journ. of Appl. Math. and Mech.*, **51** issue 6 (1987),777-784.
- [4] Abeyaratne, R. and Knowles, J.K. On the driving traction acting on a surface of strain discontinuity in a continuum, *Journ. of the Mech. and Phys. of Solids*, **38** issue 3 (1990),345-360.
- [5] Mandel, J. *Cours de mécanique des milieux continus*, 2nd edition (1966)(Pergamon Press)
- [6] Langer, J. Instabilities and pattern formation in crystal growth *Rev. Mod. Phys.* **52** (1980)1–28.
- [7] Pelcé, P. *Dynamics of Curved Fronts.* (1988) (Perspectives in Physics, Academic Press).
- [8] Kessler, D., Koplik, J. & Levine, H. Pattern selection in fingered growth phenomena *Adv. in Phys.* **37** (1988) 255–339.
- [9] Pomeau, Y. & Ben Amar, M. Dendritic growth and related topics, *Solids far from equilibrium* (ed. C. Godrèche)(1992) 365–429, Aléa Saclay.
- [10] Ben Amar, M. Nucleation of a helium crystal by acoustic waves *Ecole Normale Supérieure preprint.* (2003)
- [11] Brenner, M.P., Higenfeldt S. & Lohse, D. Single-bubble sonoluminescence *Rev. Mod. Phys.* **74** (2002)425–484.
- [12] Doinikov, A.A Translational motion of a spherical bubble in an acoustic standing wave of high intensity *Phys. of Fluids*, **14** (2002)1420–1425.