HAL
open science

Détection de la nucléation de cristaux de glace au voisinage d'une bulle de cavitation

William Montes, Fabien Baillon, Olivier Louisnard, Fabienne Espitalier, Bruno Boyer

▶ **To cite this version:**

William Montes, Fabien Baillon, Olivier Louisnard, Fabienne Espitalier, Bruno Boyer. Détection de la nucléation de cristaux de glace au voisinage d'une bulle de cavitation. Cristal 7, Cristallisation et Précipitation Industrielles, May 2013, Toulouse, France. Art. 26-7 p. hal-01686073

HAL Id: hal-01686073

https://imt-mines-albi.hal.science/hal-01686073v1

Submitted on 4 May 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Récents Progrès en Génie des Procédés, Numéro 103 - 2013
ISSN: 1775-335X ; ISBN: 2-910239-77-2, Ed. SFGP, Paris, France

Détection de la nucléation de cristaux de glace au voisinage d'une bulle de cavitation.

MONTES William, BAILLON Fabien, LOUISNARD Olivier, ESPITALIER Fabienne et BOYER Bruno
Centre RAPSODEE, UMR CNRS 5302, Université de Toulouse, École de Mines d'Albi
81013 Albi Cedex 09, France

Résumé

L'application des ultrasons de puissance dans un liquide produit des milliards de bulles. Ce phénomène est appelé cavitation acoustique. Les bulles formées ne font pas toutes la même taille, leurs oscillations ne sont pas en phase, et leur densité spatiale dans le fluide est très inhomogène: ce phénomène très complexe implique donc de nombreuses variables difficiles à isoler. Même si le phénomène est chaotique, ses effets macroscopiques sur la nucléation et la croissance des cristaux de glace dans une solution sous-refroidie sont notables. Ces effets sont d'une importance capitale pour des applications industrielles comme la congélation ou la lyophilisation. Bien que les effets des ultrasons sur la cristallisation soient réputés, leur origine reste mal connue. Les expériences impliquant des milliards de bulles ne fournissent aucune piste sur les mécanismes microscopiques mis en jeu. Afin d'isoler l'acteur essentiel de ces effets, l'étude menée vise à créer et observer une bulle unique de cavitation. Pour cela, une cellule de lévitation carrée en verre a été conçue. Dans cette cellule, pour maintenir une bulle unique en lévitation, une onde de pression est imposée par un piézoélectrique positionné à la base de la cellule. Un microphone est collé sur une face latérale afin d'enregistrer sa réponse qui est fortement liée à la dynamique de la bulle. Lorsque un corps étranger apparaît ou s'approche de la bulle, il la perturbe et affecte sa périodicité. Nous souhaitons exploiter cette perturbation pour détecter la formation des premiers cristaux au voisinage de la bulle. Dans un premier temps, afin de simuler cette perturbation, une micro-fibre de diamètre inférieur à 50 µm est approchée de la bulle. L'étude de l'auto-corrélation du signal du microphone nous permet de détecter la perturbation engendrée sur la périodicité de la dynamique de bulle. Dans un second temps, des expériences de cristallisation seront menées, et le principe de détection sera alors mis à profit pour déclencher l'enregistrement d'images dans la phase initiale de formation des cristaux.

Mots-clés : Cristallisation, Ultrasons, Cavitation, Bulle unique, Corrélation, Détection.

1. Introduction

Différents travaux ont montré l'impact des ultrasons sur la cristallisation ou la précipitation de produits minéraux ou organiques : notamment leur effet sur le temps d'induction, sur la largueur de la zone méta-stable, sur la taille et le faciès des cristaux formés (Lyczko et al., 2002 ; Luque de Castro et al., 2007 ; Na-kagawa et al., 2006 ; J. Dodds et al., 2007). Bien que ces effets présentent un grand intérêt tant sur le plan fondamental que pour des applications industrielles, leur origine reste encore mal connue.

Dans ce travail, nous nous intéressons à la cristallisation de cristaux de glace assistée par ultrasons. Le contrôle de la nucléation et des caractéristiques des cristaux de glace demeure un enjeu majeur dans les opérations de congélation et de lyophilisation. L'application d'ultrasons pendant la congélation de la glace permet par exemple de travailler à des sous-refroidissements plus faibles et d'obtenir des cristaux plus gros (Saclier et al., 2009).

Il y a quelques années, plusieurs travaux ont été menés pour étudier la cristallisation de la glace induite par l'immersion d'une sonotrode dans des liquides sous-refroidis, en présence d'un nombre important de bulles. Les nombreux évènements de nucléation induits par les bulles de cavitation acoustique rendent impossible une observation détaillée de la nucléation (voir Figure 1). Une autre difficulté expérimentale majeure de cette méthode est la nucléation hétérogène inévitable à la surface du transducteur plongé dans le liquide sous-refroidi (comme l'indique K. Ohsaka et E. Trinh, 1998).

Il est possible de s'affranchir de ces difficultés en se plaçant dans des conditions où une seule bulle de cavitation est générée, et maintenue isolée pendant des heures. Cette technique, initiée par Gaitan et al., (1992) consiste à faire léviter une bulle dans une cellule résonante produisant une onde stationnaire.

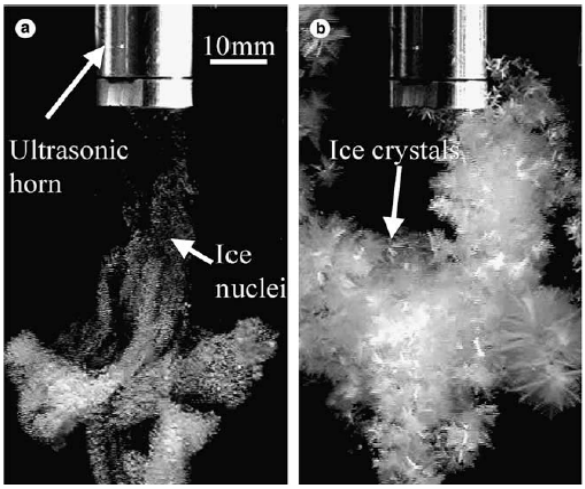

Figure 1. Photographies de cristaux de glace générés dans une solution de saccharose, par une sonotrode commerciale : (a) Les premiers cristaux de glace apparaissent juste après l'émission de l'onde ultrasonore, (b) Cristaux observés 5 secondes plus tard. (d'après Chow et al, 2005)

La technique a largement été utilisée depuis pour des études sur la sonoluminescence (Brenner et al., 2002). Ces expériences constituent la base de notre étude pour explorer le phénomène de nucléation de la glace induite par une bulle acoustique dans l'eau sous-refroidie. Cette technique devrait permettre de déterminer l'effet d'une bulle de cavitation sur la nucléation de cristaux, et d'apporter des réponses sur les effets observés en situation multi-bulles (telles que celle de la Figure 1). Il est à noter que les résultats et les modèles théoriques concernant ces expériences sont à ce jour contradictoires (Hickling, 1994 ; Ohsaka et Trinh, 1998 ; Saclier et al., 2009).
Cette étude présente la mise au point du dispositif expérimental pour l'étude de la cristallisation de la glace dans de l'eau sous-refroidie en présence d'une bulle unique d'ultrasons. Nous nous intéressons plus particulièrement à la détection des premiers cristaux formés.

2. Méthodes

2.1 La cellule de lévitation et la bulle unique

Une cellule carrée de lévitation acoustique est l'élément central du montage expérimental. Elle permet l'obtention d'une bulle de cavitation en son milieu stable durant plusieurs heures.
Pour obtenir une bulle de cavitation dans cette cellule, il est tout d'abord nécessaire d'employer de l'eau pure (distillée et déminéralisée) dont le taux de saturation en gaz est contrôlé (entre 10% et 20% de sa saturation en oxygène) (Brenner et al., 2002). Ceci est réalisé par un système de dégazage. Une mesure de la teneur en oxygène est réalisée en fin de dégazage avant le remplissage de la cellule. Une céramique piézoélectrique (PZT) de puissance collée à la base de la cellule permet de créer une onde stationnaire tridimensionnelle au sein du volume d'eau. Toute bulle créée au sein de ce volume fluide ira se positionner au ventre de pression par l'action de la force de Bjerknes (Akhatov et al., 1996), et y effectuera des cycles d'oscillations radiales à la fréquence du champ acoustique imposé par le PZT.
Afin de déterminer la taille de la cellule de lévitation, les matériaux à utiliser et la position du ventre de pression, des simulations 3D de l'ensemble couplé cellule, piézoélectrique et eau ont été réalisées à l'aide du logiciel COMSOL® (Figure 2, gauche). Ces simulations ont permis de calculer la fréquence propre intéressante pour la lévitation de bulle (Figure 2, droite), de montrer que le verre est le matériau le plus adapté à notre étude, et que l'assemblage permet d'obtenir des pressions acoustiques suffisantes au centre de la cellule pour permettre l'observation correcte des différents régimes d'oscillation de la bulle.

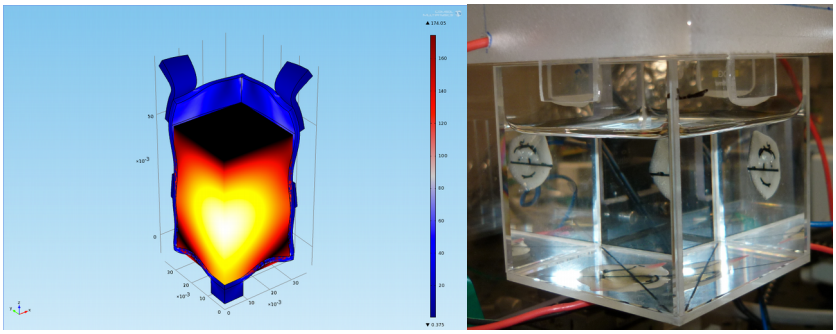

Figure 2. Gauche : Simulation par COMSOL de la pression dans la cellule de lévitation, où la zone la plus jaune est le ventre de l'onde stationnaire. Droite : Expérience dans la cellule de cavitation.

2.2 Détection de la bulle

D'un point de vue optique, si la position du ventre de pression est connue, la position de la bulle dans la cellule de lévitation est alors connue. Il est possible de la filmer avec une caméra rapide. Pour la caractérisation acoustique, un autre PZT collé sur une face latérale fait office de microphone et permet la détection de la présence du champ acoustique, de la résonance du système et de la présence d'une bulle.

2.3 Corrélation croisée et caractérisation de la bulle

Le signal du microphone comporte la composante du champ acoustique imposé par le PZT. Si on filtre cette composante à la fréquence d'excitation, un signal représentant le « bruit » que fait la bulle peut être isolé. Le signal du microphone filtré est fortement lié à la dynamique de la bulle, et peut révéler si elle est dans un régime instable ou stable dans l'espace des paramètres (Gaitan et al., 1992). Dans le régime stable, les signaux émis par la bulle sont parfaitement périodiques. Cette périodicité peut être évaluée en utilisant la corrélation croisée entre le signal sur un cycle acoustique et celui sur un cycle ultérieur. Si le coefficient de corrélation est égal à 1, cela indique que les signaux ont une corrélation parfaite et que la bulle est dans un régime d'oscillations stable.

2.4 Perturbation artificielle

On crée tout d'abord une bulle dans le régime stable, puis on utilise une micro-fibre de carbone de diamètre inférieur à 50 µm collé sur un support pouvant être piloté par une platine à trois axes située au-dessus de la cellule de lévitation. Le déplacement vertical est contrôlé par ordinateur, et la fibre est descendue progressivement le long de l'axe vertical passant par le centre de la bulle. Au dessous d'une certaine distance entre la fibre et la bulle, cette dernière perdra sa périodicité et son coefficient de corrélation chutera significativement en-dessous de 1. Cette modification sera détectée par l'analyse en continu de la corrélation afin d'identifier la distance critique au-dessous de laquelle la fibre perturbe la bulle.

3. Résultats de la recherche et aspects nouveaux

Les principaux résultats de ce travail sont les signaux récupérés sur le microphone, avec ou sans perturbation, et les traitements consécutifs qui nous permettent de caractériser les différents régimes de la bulle en lévitation.

3.1 Quand y-a-t-il une bulle de cavitation acoustique ?

Dans un liquide dégazé, même en présence d'un champ acoustique, aucune bulle ne se forme naturellement, c'est pourquoi il est nécessaire de la générer artificiellement.
Même si la bulle en lévitation est observable à l'œil nu, le signal enregistré à l'aide du microphone donne des informations plus riches qu'une simple observation visuelle. Cependant, ces informations ne sont pas directes : la différenciation entre une trace avec ou sans bulle (voir Figure 3 (a) et (c)) n'est pas évidente *a priori*, mais à partir de ce signal, nous pouvons isoler les informations spécifiquement dues à la présence d'une bulle, en utilisant un filtre électronique du signal acoustique (voir Figure 3 (b) et (d)).

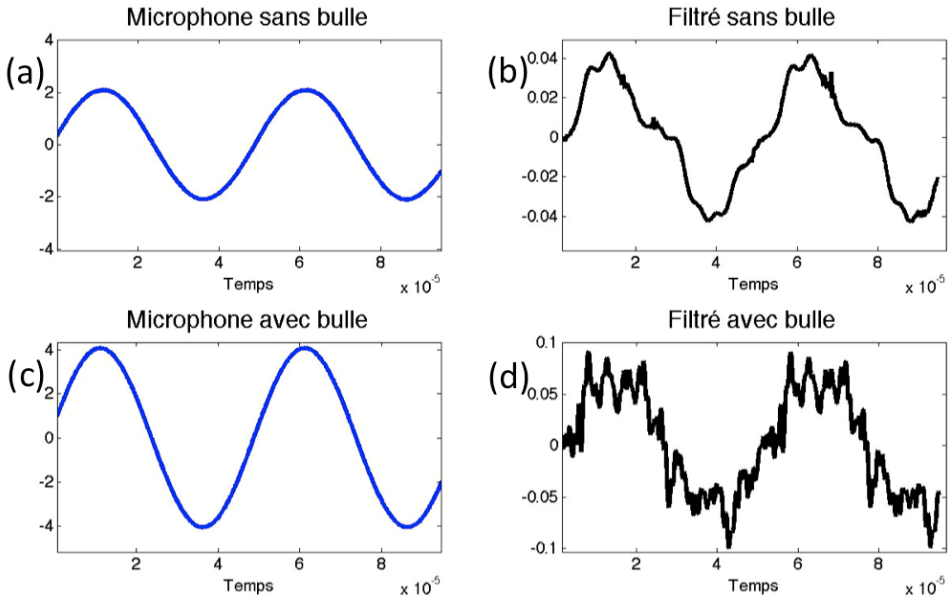

Figure 3 : Signal caractéristique de la trace d'un microphone au cours de temps, en présence d'un champ acoustique (a) sans bulle (c) avec une bulle. Signal d'un microphone filtré à la fréquence d'excitation du PZT (b) sans bulle (d) avec une bulle.

3.2 Dynamique de bulle et changement de pression

Une bulle de cavitation acoustique dans une cellule de lévitation contenant de l'eau convenablement dégazée peut présenter différents régimes d'oscillation. La Figure 4 montre les zones d'existence de ces différents modes de lévitation comme décrits par Gaitan et al. (1992), en fonction de l'amplitude de la pression acoustique. À pression acoustique faible (P_a < 0,110 MPa), la bulle oscille en réponse au champ acoustique mais se dissout lentement (zone rouge). Si la pression augmente (0,110 < P_a < 0,122 MPa), la bulle a une dynamique errante et un « comportement dansant » (zone noire), lié à l'apparition d'instabilités de surface. Lorsque l'amplitude de la pression augmente encore (P_a > 0,122 MPa), la bulle semble rester à une position spatiale stable. Cette stabilité coïncide typiquement avec une émission de lumière (sonoluminescence, zone verte). Enfin, pour des amplitudes plus élevées, la bulle disparaît (zone bleue).

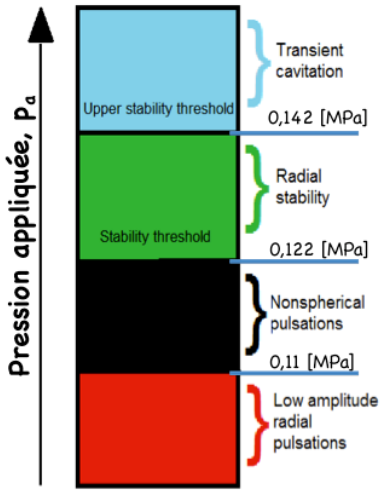

Figure 4. Schéma des dynamiques de la bulle en fonction de la pression acoustique.

Dans ce travail, nous proposons une méthode complémentaire pour caractériser la bulle de cavitation acoustique en utilisant les traces des coefficients de corrélation des signaux obtenus par le microphone filtré.

Comme nous pouvons le voir sur la Figure 5, lorsqu'une bulle est dans un état correspondant à la zone « dansante » (noire), les coefficients de corrélation sont inférieurs à 1 et non périodiques, en raison de la dynamique très fluctuante de la bulle. À l'inverse, dans la zone de sonoluminescence stable (verte), la bulle a une dynamique périodique, ce qui se traduit en une trace de corrélation avec des valeurs très proches de 1.

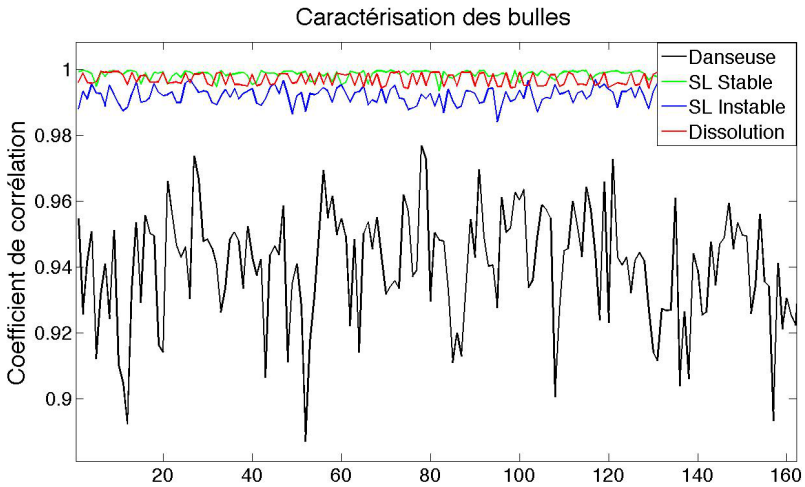

Figure 5. Caractérisation complémentaire de la dynamique d'une bulle de cavitation acoustique unique.

3.3 Perturbation de la dynamique de bulle

Une fois que la bulle est dans le régime stable, nous tentons de casser la symétrie sphérique en utilisant une fibre (simulant un corps étranger), causant une déstabilisation de la bulle engendrant une variation du coefficient de corrélation.

Dans cette expérience (Figure 6), nous nous approchons de la bulle lentement avec la fibre. Lorsque la fibre est très proche, la bulle change sa dynamique, comme l'indique la variation observée du coefficient de corrélation. Si nous retirons lentement la fibre, la bulle revient dans le régime stable après un certain temps, et récupère sa dynamique périodique, comme le montre la re-convergence du coefficient de corrélation vers 1. Nous pensons que ces premiers essais valident la méthode et devrait nous permettre de détecter la formation de cristaux de glace lors des expériences de cristallisation en eau sous-refroidie. Ces essais montrent de plus, de façon intéressante, qu'une perturbation par un corps voisin peut modifier la dynamique de la bulle sans la détruire.

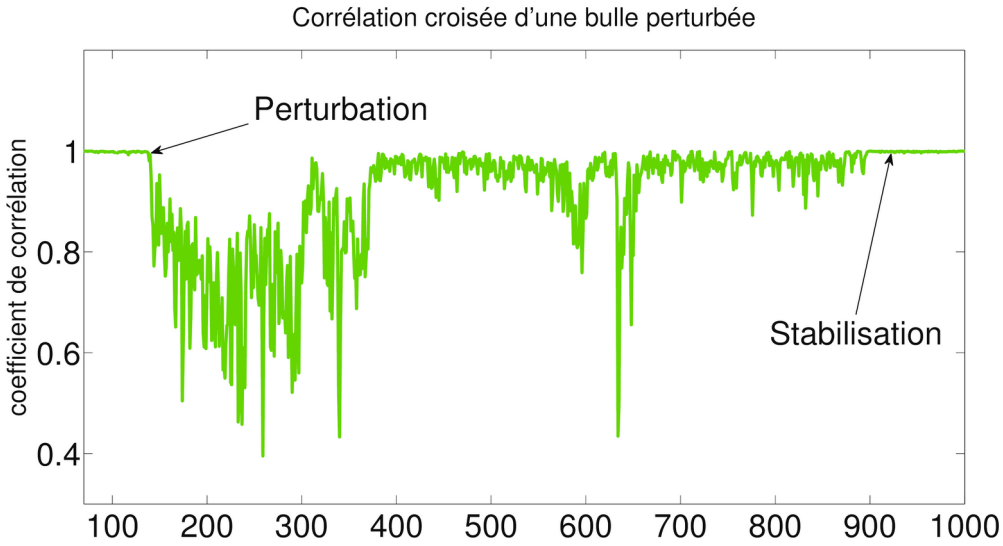

Figure 6. Trace des coefficients de corrélation d'une bulle de cavitation dans la zone stable. La perturbation est réalisée en approchant un fil, la stabilisation est récupérée après éloignement de la fibre.

4. Conclusions

Grâce aux simulations réalisées à l'aide de Comsol®, le verre a été identifié comme le matériau idéal pour la conception de la cellule de cavitation et qu'il permet d'atteindre des amplitudes de pression acoustique suffisantes pour observer correctement une bulle dans tous les régimes d'oscillations, jusqu'à sa disparition.

La méthode mise au point pour analyser les traces du coefficient de corrélation permet de caractériser le régime d'oscillations d'une bulle unique de cavitation acoustique. De plus, à l'aide de cette méthode, nous sommes capables de détecter la présence d'un corps étranger se trouvant à proximité d'une bulle unique de cavitation acoustique dans la zone stable. Comme étape suivante, nous souhaitons utiliser cette méthode pour détecter le plus rapidement possible les premiers cristaux de glace apparaissant au voisinage d'une bulle de cavitation acoustique stable dans de l'eau sous-refroidie, étudier l'influence des ultrasons sur la nucléation de la glace en fonction du sous refroidissement, et clarifier le mécanisme de nucléation par la bulle.

5. Références

I. Akhatov, R. Mettin, C. Ohl, U. Parlitz and W. Lauterborn, 1996, Bjerknes force threshold for stable single bubble sonoluminescence, 55(3), pp 3747-3750.

M. Brenner, S. Hilgenfeldt, D. Lohse, 2002, Single-bubble sonoluminescence, Reviews of modern physics, 74(2), 425-484.

J. Dodds, F. Espitalier, O. Louisnard, R. Grossier, R. David, M Hassoun, F. Baillon, C. Gatumel, N Lyczko, 2007, The effect of ultrasound on crystallization-precipitation processes: Some examples and a new segregation model, Particle & Particle Systems Characterization, 24, pp, 18-28.

M. Luque de Castro and Priego-Capote, 2007, Ultrasound assisted crystallization (sonocrystallization). Ultrasonics Sonochemistry, 14, pp, 717-724.

N. Lyczko, F. Espitalier, O. Louisnard, J Schwartzemtruber, 2002, Effect of ultrasound on the induction time and the metastable zone widths of potassium sulphate, Chemical Engineering Journal, 86,3.

K. Nakagawa, A. Hottot, S. Vessot and J. Andrieu, 2006, Influence of controlled nucleation by ultrasound on ice morphology of frozen formulation for pharmaceutical proteins freeze-drying. Chemical engineering and processing, 45, pp 783-791.

F. Gaitan, L Crum, Ch Church and R Roy, 1992, Sonoluminescence and bubble dynamics for a single, stable cavitation bubble, Acoustical society of America, 91 (6) pp 3166-3183.

R. Chow, R. Blindt, R. Chuvers, M. Povey, 2005, A study on the primary and secondary nucleation of ice by power ultrasound, 43, pp 227-230.
K. Ohsaka and E. Trinh, 1998, Dynamic nucleation of ice induced by a single stable cavitation bubble, Applied physics letters, 73(1), pp 129-131.
R. Hickling, 1994, Transient, High-Pressure solidification associated with cavitation in water, Physical review letters, 73(21), pp 2853-2856.
M. Saclier, R. Peczalski and J. Andrieu, 2009, A theoretical model for ice primary nucleation induced by acoustic cavitation. Ultrasonics sono-chemistry, 17(1), pp 98-105.

Remerciements
Les auteurs remercie l' « Agence Nationale de la Recherche » pour le financement du projet ANR-09-BLAN-0040-02.

Acoustic detection of crystal nucleation near a single bubble in a levitation cell

MONTES William, BAILLON Fabien, LOUISNARD Olivier, ESPITALIER Fabienne et BOYER Bruno
Centre RAPSODEE, UMR CNRS 5302, Université de Toulouse, École de Mines d'Albi
81013 Albi Cedex 09, France

Abstract

The application of power ultrasound in liquids produces thousands of bubbles. This phenomenon is called acoustic cavitation. The bubbles formed do not have the same size, their oscillations are not in phase, and their spatial density in the fluid is very not homogeneous: this phenomenon is thus very complex and involves multiple variables which are very difficult to isolate. Even if the phenomenon is chaotic, its macroscopic effects on the nucleation and growth of of ice crystals in undercooled solutions are noticeable. These effects have a crucial importance for industrial applications such as freezing and lyophilisation (also called freeze drying) of pharmaceutics products. Although the effects of ultrasound on crystallization are well-known, their physical origin remains unclear. Multi-bubble experiments do not give any hint in the microscopic mechanisms involved. Therefore, in order to isolate the main actor of these effects, this study aims at creating and observing a single cavitation bubble. To do so, a cubic levitation cell with optical glass walls was build. In this cell, in order to maintain a single bubble levitating, a pressure wave is imposed by a piezoelectric ceramic glued to the base of the cell. A piezoelectric microphone is also glued on the lateral wall in order to record the bubble response, which is strongly linked to the bubble dynamics. The presence or appearance of any foreign body near the levitating bubble may perturb the latter and alter the periodicity of its oscillation. We wish to exploit this loss of periodicity for early detection of crystals nucleation near the bubble. As a preliminary step, to simulate the later, a micro-fiber of diameter smaller than 50 µm is approached to the bubble. By performing an autocorrelation study of the microphone signal, we can detect the perturbation of the periodicity of the bubble dynamics. In a second step, crystallization experiments will be conducted, and the detection principle will be used to trigger the recording of images in the early phase of the crystals formation.

Keywords: Crystallization, Ultrasounds, Cavitation, Single Bubble, Autocorrelation and Detection.