

# Fusion bidimensionnelle d'un cristal de pics de ferrofluide

François Boyer<sup>1</sup> & Eric Falcon<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Institut Universitaire des Systèmes Thermiques Industriels (IUSTI), Université de Provence, CNRS (UMR 6595), 5 rue Enrico Fermi 13453 Marseille cedex 13, France

<sup>2</sup> Laboratoire Matière et Systèmes Complexes (MSC), Université Paris-Diderot, CNRS (UMR 7057), 10 rue A. Domon et L. Duquet 75013 Paris, France

francois.boyer@polytech.univ-mrs.fr ; eric.falcon@univ-paris-diderot.fr

**Résumé.** Nous présentons l'observation de la transition entre une phase ordonnée (dite solide) et une phase désordonnée (dite liquide) d'un réseau de pics à la surface d'un ferrofluide soumis à des vibrations horizontales sinusoïdales. La transition de fusion se produit pour un déplacement critique des pics dont on montre expérimentalement qu'il suit le critère de Lindemann, pour deux topologies différentes (hexagonale et carrée) et sur une large plage de mailles du réseau. Une phase intermédiaire hexatique entre les phases solide et liquide est également observée et caractérisée par les fonctions de corrélation. Ce système dissipatif hors-équilibre présente de fortes similitudes avec la fusion bidimensionnelle (2D) en physique des solides.

**Abstract.** We report the observation of the transition from an ordered solid-like phase to a disordered liquid-like phase of a lattice of peaks on a ferrofluid surface submitted to horizontal sinusoidal vibrations. The melting transition occurs for a critical peak displacement which is experimentally found to follow the Lindemann criterion, for two different lattice topologies (hexagonal and square) and over a wide range of lattice wavelengths. An intermediate hexatic-like phase between the solid and isotropic liquid phases is also observed and characterized by the correlation functions. This dissipative out-of-equilibrium system exhibits strong similarities with 2D melting in solid-state physics.

## 1 Introduction

La fusion des solides a constitué un important champ de recherche de la physique de la matière condensée depuis plus d'un siècle [1]. En 1910, Lindemann fait l'hypothèse que la fusion se produit lorsque les atomes entrent en collision sous l'effet des vibrations thermiques [2]. Il a ensuite été proposé que le déplacement atomique efficace à la transition de fusion est plutôt donné par une fraction constante (environ 10 %) de la distance interatomique [3]. Le succès prédictif de cette hypothèse, désormais connu comme le critère de Lindemann, a permis le calcul des températures de fusion d'un large éventail de cristaux 3D [4].

Par ailleurs, la fusion d'un solide 2D est un phénomène bien moins compris et la nature de la transition demeure une question ouverte. A la fin des années 60, une théorie de la fusion 2D a été développée par Kosterlitz, Thouless, Halperin, Nelson et Young (KTHNY) [5], mais sa validité reste controversée. Des études numériques ont également montré la validité du critère de Lindemann en 2D [6], et la cohérence avec le scénario KTHNY [7]. Bien que la plupart des observations expérimentales soient conformes au scénario KTHNY, il est généralement assez difficile d'exclure tout autre mécanisme [8]. Par conséquent, la transition de fusion dans des systèmes 2D reste un domaine de recherche actif en physique du solide [9], et dans de nombreux domaines : suspensions colloïdales confinées [10,11], films liquides [12], gaz granulaires [13,14], films magnétiques solides [15], et réseaux de vortex dans les supraconducteurs [16].

Un ferrofluide est une suspension stable de particules magnétiques nanométriques dispersées dans un liquide porteur, pouvant être le siège de phénomènes caractéristiques : écoulement induit par un champ magnétique, instabilités de Rosensweig ou en labyrinthe, lévitation magnétique [17]. L'instabilité de Rosensweig se produit lorsque le champ magnétique appliqué dépasse une valeur critique : la surface libre devient instable et un réseau ordonné hexagonal de pics se développent à la surface. Suivant les travaux de Bragg concernant un assemblage de bulles de savon à la surface d'un liquide [18], on peut considérer

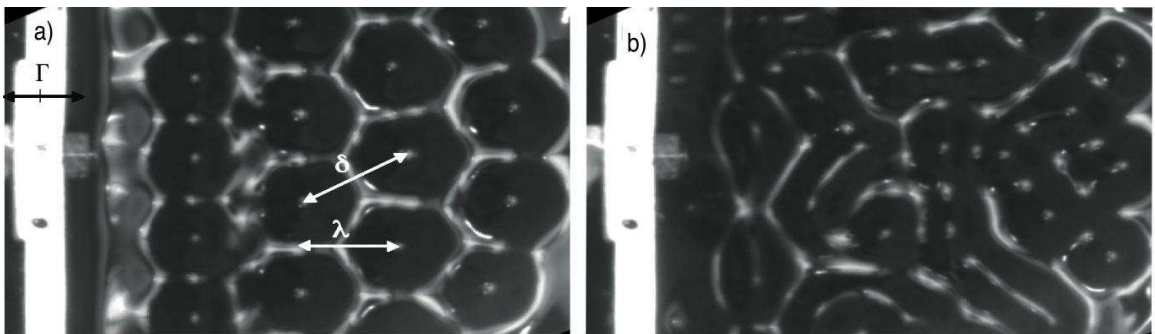
ce réseau comme un analogue macroscopique d'un cristal 2D. On étudiera alors son comportement sous l'effet de vibration sinusoïdales simulant l'effet de l'agitation thermique.

Dans cet article, nous rapportons la première observation d'une transition (fusion) entre une phase ordonnée (solide) et une phase désordonnée (liquide) d'un réseau de pics à la surface d'un ferrofluide soumis à des vibrations sinusoïdales. Nous étudions quel paramètre contrôle la transition et si un critère de Lindemann peut être appliqué. Nous caractérisons les changements structurels lors de cette transition en utilisant des concepts classiques de physique de la matière condensée. Notre système étant dissipatif et hors d'équilibre, la comparaison de nos résultats et de ceux des systèmes à l'équilibre est d'un intérêt primordial [13,14].

## 2 Dispositif expérimental

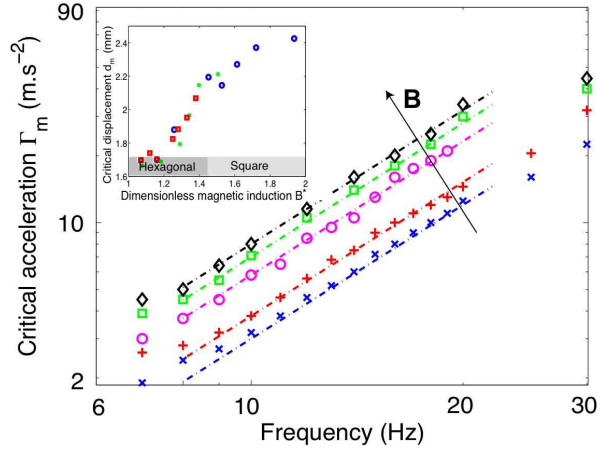
Le dispositif expérimental se compose d'une cuve remplie d'un ferrofluide jusqu'à une profondeur  $h = 2$  cm. Dans le but de discriminer les effets de taille finie et de conditions aux limites, des cuves de forme et de taille différentes sont utilisées : cylindriques i) 20 cm ou ii) 12 cm de diamètre intérieur, et iii) un récipient rectangulaire  $13 \times 9$  cm<sup>2</sup>. Le ferrofluide utilisé est une suspension aqueuse ionique de particules maghémite ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $7.6 \pm 0.36$  nm de diamètre) [19]. Les propriétés de ce fluide magnétique sont : (densité)  $\rho = 1324$  kg.m<sup>-3</sup>, (tension superficielle)  $\gamma = 59 \times 10^{-3}$  N.m<sup>-1</sup>, (susceptibilité magnétique initiale)  $\chi_i = 0,69$ , (aimantation à saturation)  $M_{sat} = 16,9 \times 10^3$  A.m<sup>-1</sup>. La cuve est placée entre deux bobines horizontales coaxiales, générant au niveau de la surface de ferrofluide une induction magnétique verticale, pouvant atteindre 780 G [20].

La formation d'un réseau ordonné de pics de ferrofluide est observée lorsque l'induction magnétique appliquée  $B$  est supérieure à  $B_c = 294 \pm 2$  G. Cette valeur critique est proche de la valeur théorique  $B_c^{th} = 292,3$  G, seuil de l'instabilité de Rosensweig pour le ferrofluide utilisé [20]. Nous notons l'induction magnétique adimensionnée  $B^* = B/B_c$ . Notez qu'une transition du réseau hexagonal vers un réseau carré est observée à  $B^* = 1,45$ . À  $B^*$  fixé, le réseau de pics de ferrofluide est mis en vibration par un piston rectangulaire (9 cm x 4 cm) en PTFE (plongeant perpendiculairement dans le fluide au repos) et actionné parallèlement à la surface par un vibreur électromagnétique. Le déplacement du piston d'amplitude  $a$  et de fréquence  $f$  est alors piloté par une tension sinusoïdale basse fréquence ( $5 \leq f \leq 50$  Hz et  $0,5 \leq a \leq 7$  mm). Son accélération est mesurée à l'aide d'un accéléromètre fixé sur le piston. Une caméra haute résolution située au-dessus de la cuve nous permet d'observer le déplacement  $d$  de chaque pic de ferrofluide (Fig. ref (fig01) pour un cliché typique). Pour les trois cuves utilisées,  $d$  se trouve être une fonction linéaire du déplacement du piston  $a$ , avec un coefficient indépendant de la fréquence  $\alpha = d/a$  : i)  $\alpha = 0,77 \pm 0,04$  ; ii)  $\alpha = 0,85 \pm 0,05$  ; iii)  $\alpha = 0,65 \pm 0,05$ . Étant donné que les vibrations sont sinusoïdales, l'amplitude de l'accélération du piston est alors donnée par  $\Gamma = 4\pi f^2 a = 4\pi f^2 d/\alpha$ .



**Fig. 1.** Vues de dessus du réseau de pics de ferrofluide pour deux amplitudes de vibrations sinusoïdales : (a) phase "solide" hexagonale ( $\Gamma = 3$  m.s<sup>-2</sup>),  $\delta \simeq 15.8$  mm, (b) phase "liquide" ( $\Gamma = 20$  m.s<sup>-2</sup>).  $f = 8$  Hz,  $B^* = 1.2$ .

La figure 1 montre des vues typiques du réseau de pics à la surface du ferrofluide pour deux valeurs de l'accélération du piston  $\Gamma$ , à  $B^*$  fixé. Pour les faibles  $\Gamma$  (Fig. 1a), le réseau vibre à la même fréquence que le piston : chaque pic fluctuant autour de sa position d'équilibre comme le ferait un atome d'un cristal sous l'effet de l'agitation thermique. Lorsque  $\Gamma$  augmente (à fréquence constante), le réseau ordonné se destructure et "fond" : les pics de ferrofluide n'ont plus de position stable et des rangées de pics se mettent à glisser les unes contre les autres. Pour des accélérations encore plus élevées, les déplacements des pics devient complètement aléatoires et deux ou plusieurs pics peuvent fusionner transitoirement lors d'une collision (Fig. 1b). Pour chaque fréquence, on détermine alors l'accélération critique  $\Gamma_m$  pour laquelle les pics n'ont plus de position stable.



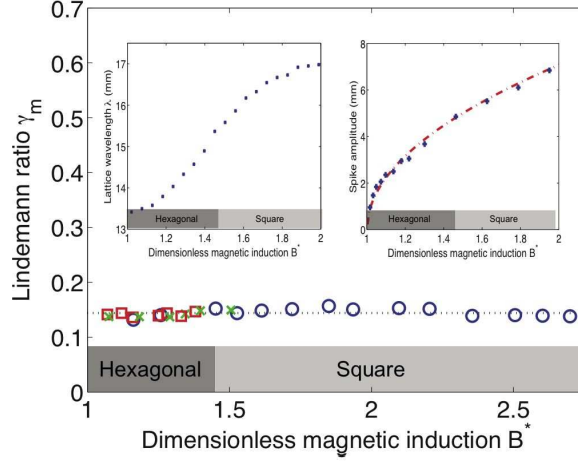
**Fig. 2.** . Accélération critique  $\Gamma_m$  à la transition de fusion en fonction de la fréquence d'excitation  $f$  pour différentes valeurs de l'induction magnétique appliquée  $B^*$  : (x) 1,09, (+) 1,39, (o) 1,52, (□) 1,77 and (◊) 2,03. Droites de pente 2 en pointillés (déplacement constant). Insert : Déplacement critique  $d_m$  en fonction de  $B^*$  pour 3 différentes cuves : (o) i, (x) ii, and (□) iii.

La figure 2 représente l'évolution de  $\Gamma_m$  avec la fréquence de vibration  $f$  (échelle logarithmique) pour cinq différentes valeurs de l'induction magnétique appliquée. On montre que  $\Gamma_m$  évolue comme le carré de la fréquence, c'est-à-dire que la quantité  $\Gamma_m/f^2$  reste constante le long de la transition. Cela signifie alors que l'amplitude du déplacement des pics à la transition  $d_m$  est le paramètre de contrôle pertinent de la fusion :

$$d_m = \frac{\alpha \Gamma_m}{4\pi f^2}. \quad (1)$$

Pour chaque  $B^*$ ,  $d_m$  est calculé à partir des courbes de la figure 2. L'insert de la figure 2 montre la dépendance du déplacement critique  $d_m$  (valeur rms) avec l'induction magnétique adimensionnée  $B^*$ . On trouve que  $d_m$  augmente avec  $B^*$ , de 1.6 mm à 2.6 mm. On note que ces valeurs sont un ordre de grandeur plus faible que la longueur caractéristique du réseau  $\lambda_c = 2\pi\sqrt{\gamma/(\rho g)} \simeq 13.4$  mm au seuil de l'instabilité de Rosensweig [17].

Afin d'établir un critère pour la transition de fusion, la longueur d'onde,  $\lambda$ , et la hauteur des pics,  $h$ , sont mesurées et comparées au déplacement critique,  $d_m$ . La hauteur  $h$  des pics de ferrofluide est mesurée grâce à un fil capacitif [20]. L'insert droit de la figure 3 montre l'évolution de  $h$  avec  $B^*$  : la courbe est bien ajustée par  $\sqrt{B^* - 1}$  (en pointillés) en accord avec de précédents résultats théoriques [21] et expérimentaux [22]. Le déplacement critique,  $d_m(B^*)$  (insert de la figure 2), ne suit clairement pas la même évolution que l'amplitude des pics,  $h(B^*)$ , à la fois qualitativement et quantitativement. Cela signifie que le mécanisme de fusion reste bidimensionnel et n'est pas induit par des ondes de surface devenant supérieur à la hauteur des pics. A  $B^*$  fixé, on détermine la longueur d'onde  $\lambda$  du réseau par la mesure de la distance pic-pic moyenne sur les images expérimentales (Fig. 1). A partir d'arguments



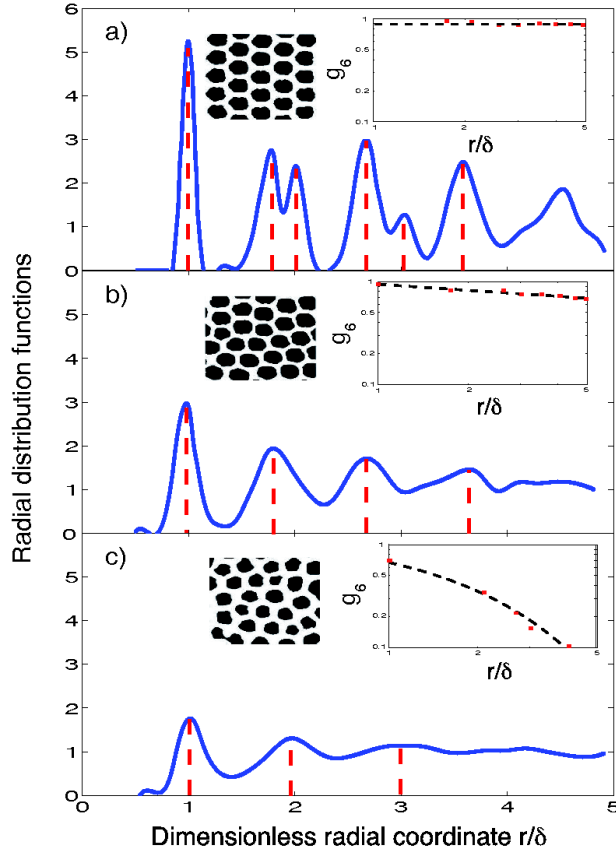
**Fig. 3.** Rapport de Lindemann  $\gamma_m$  en fonction de  $B^*$  pour 3 différentes cuves : (o) i, ( $\times$ ) ii, and ( $\square$ ) iii. Ligne horizontale :  $\gamma_m = 0.14$ . Insert gauche : Longueur d’onde du réseau,  $\lambda$ , en fonction de  $B^*$ . Insert droit : hauteur des pics,  $h$ , en fonction de  $B^*$ . Ajustement par  $\sqrt{B^* - 1}$  (en pointillés).

géométriques, on a  $\lambda = (\sqrt{3}/2)\delta$  pour le réseau hexagonal ( $1 < B^* < 1.45$ ), et  $\lambda = \delta$  pour le réseau carré ( $B^* > 1.45$ ). L’insert gauche de la figure 3 montre alors  $\lambda$  en fonction de  $B^*$ .  $\lambda$  augmente avec  $B^*$ , en accord avec une observation précédente [23]. On définit alors un analogue du rapport de Lindemann,

$$\gamma_m \equiv \frac{d_m(B^*)}{\lambda(B^*)}, \quad (2)$$

comme le rapport entre la valeur rms du déplacement critique des pics,  $d_m$ , et la longueur d’onde du réseau  $\lambda$ . Comme le montre la figure 3,  $\gamma_m$  a une valeur indépendante de  $B^*$ , même à la transition hexagone-carré. On trouve  $\gamma_m = 0,14 \pm 0.02$ , dans la gamme de valeurs (0,1 - 0,2) des solides cristallins 3D [3] et proche de la valeur rapportée pour les liquides granulaires bidimensionnels (0,15) [14]. On note que la définition du rapport de Lindemann à l’aide de la longueur d’onde,  $\lambda$ , au lieu de la distance pic-pic,  $\delta$ , mène à une valeur unique pour les deux topologies observées (hexagonale et carrée).

Afin de caractériser les changements structuraux lors de la transition de fusion, on calcule les fonctions de corrélation de position et d’orientation à la coordonnée  $r$ , respectivement,  $g(r) = \langle n(r')n(r+r') \rangle / \langle n(r') \rangle^2$ , où  $n$  est la densité en particules (pics), la moyenne étant prise sur la variable spatiale  $r'$ , et  $g_6(r) = \langle \Psi_6^*(r')\Psi_6(r+r') \rangle / g(r)$  où l’étoile représente la conjugaison complexe et  $\Psi_6(r_j) = \langle \exp(i6\theta_{jk}) \rangle_k$  avec  $\theta_{jk}$  l’angle de la liaison entre le pic  $j$  et son voisin  $k$  [8]. Ces fonctions sont moyennées sur 200 images. La figure 4 montre les courbes expérimentales des fonctions de distribution radiales  $g(r)$  pour différentes valeurs du paramètre adimensionné  $\varepsilon = (\gamma - \gamma_m)/\gamma_m$  (écart au seuil). Pour  $\varepsilon < 0$  (avant la fusion), la fonction de distribution radiale  $g(r/\delta)$  est caractéristique d’une structure hexagonale : les positions des premiers pics sont en très bon accord avec les valeurs calculées à partir de considérations géométriques simples  $r/\delta = 1, \sqrt{3}, 2, \sqrt{7}, 3$  and  $\sqrt{12}$  (en pointillés sur la figure 4a). Pour  $\varepsilon = 0$ , l’ordre de position devient clairement à courte portée même si certains pics caractéristiques restent visibles :  $r/\delta = 1, \sqrt{3}, \sqrt{7}$  and  $\sqrt{12}$  (en pointillés sur la figure 4b). Lorsque  $\varepsilon$  augmente encore, la portée de l’ordre de position devient plus faible, et pour  $\varepsilon = 1$ , seul les pics caractéristique du liquide isotrope sont observés :  $r/\delta = 1, 2$  and  $3$  (en pointillés sur la figure 4c). Ces modifications structurales typiques sont fortement similaires avec les observations issues de simulations numériques de disques infiniment rigides à l’équilibre thermodynamique lors de la transition de phase bidimensionnelle solide-liquide [9]. Nos résultats sont aussi cohérents avec la théorie KTHNY qui prédit l’existence d’une phase hexatique entre les phases cristalline et liquide, caractérisée par un ordre d’orientation à longue portée (décroissance algébrique) et un ordre de position à courte portée [5]. Ainsi, les inserts droits de la figure 4 montrent le paramètre d’ordre d’orientation,  $g_6(r)$ . Légèrement au-dessus de la transition ( $\varepsilon \simeq 0$ ), l’ordre d’orientation à longue portée



**Fig. 4.** Fonctions de distribution radiale  $g(r/\delta)$  pour différents forçage : (a)  $\varepsilon = -0.4$ , (b)  $\varepsilon = 0$ , (c)  $\varepsilon = 1$ .  $B^* = 1.1$ .  $f = 10$  Hz.  $\delta = 15.5$  mm. En pointillés, positions théoriques des maximum de  $g(r)$ . Insert droit : fonctions de corrélation d'orientation  $g_6(r/\delta)$ , en pointillés : (a)  $g_6(r) = 0.89$ , (b)  $g_6(r) \sim r^{-0.20}$ , (c)  $g_6(r) \sim \exp(-r/1.54)$ . Inserts gauches : images caractéristiques (binaires, après seuillage) de la surface du ferrofluide .

(bien ajustée par une décroissance algébrique) est préservé et suggère la présence d'une phase hexatique (Fig. 4b). On note que pour discriminer sans ambiguïté une décroissance exponentielle (et donc un ordre à courte portée) un système plus grand serait rigoureusement nécessaire [13]. Lorsque  $\varepsilon$  augmente, le taux de décroissance augmente fortement, et pour  $\varepsilon = 1$ , l'ordre d'orientation est aussi à courte portée (bien ajustée par une décroissance exponentielle) comme attendu pour une phase liquide isotrope.

### 3 Conclusion

Une phase hexatique entre les phase solide et liquide a aussi été rapportée lors de la fusion 2D de cristaux colloïdaux [10]. Au-delà du bon accord avec la théorie KTHNY, la fusion 2D de ces systèmes dépend aussi bien de l'interaction entre particules que de leur interaction avec leur substrat [11]. Nos résultats suggèrent qu'à la fois le critère de Lindemann et la théorie KTHNY sont applicables dans un système 2D plus complexe, comme un cristal de pics de ferrofluide avec des interactions ferrohydrodynamiques encore mal connues. Une telle transition continue solide-hexatique-liquide est très différente de la transition du premier ordre observée dans les cristaux 3D. Enfin, notre travail met en évidence l'analogie entre la fusion 2D des systèmes à l'équilibre et celle des systèmes stationnaires hors équilibre. Une telle correspondance a déjà été observée dans un fluide granulaire 2D [13], où l'homogénéité spatiale du système d'injection d'énergie vaît été souligné comme le principal facteur de ces similarités avec la dynamique

à l'équilibre [14]. Notre travail suggère que des propriétés similaires à celles des systèmes à l'équilibre peuvent être observées même si l'injection d'énergie n'est pas homogène. Nous pensons que des études complémentaires permettrait d'avoir une description exhaustive de la transition de fusion 2D d'un cristal dissipatif.

*Remerciements* Nous remercions D. Talbot pour la synthèse du ferrofluide, J.-C. Bacri et A. Cebers pour leurs commentaires pertinents, A. Lantheaume et C. Laroche pour l'assistance technique. Ce travail a été financée par ANR Turbonde BLAN07-3-197846. Ces travaux ont été publiés dans *Physical Review Letters* [24].

## Références

1. A. EINSTEIN, *Annalen der Physik* (Leipzig) **327**, 180 (1906) — P. DEBYE, *Annalen der Physik*, (Leipzig) **344**, 789 (1912)
2. F. A. LINDEMANN, *Physik Zeitschrift* **11**, 609 (1910).
3. J. J. GILVARRY, *Physical Review* **102**, 308 (1956).
4. G. GRIMVALL & S. SJODIN, *Physica Scripta*, **10**, 340, (1974) — A. R. UBBELOHDE, *Melting & Crystal Structure* (Clarendon Press, Oxford, 1965).
5. J. M. KOSTERLITZ & D. J. THOULESS, *Journal de Physique C* **5**, L124 (1972) — B. I. HALPERIN & D. R. NELSON, *Physical Review Letters* **41**, 121 (1978) ; A. P. YOUNG, *Physical Review B* **19**, 1855 (1979).
6. X. H. ZHENG & J.C. EARNSHAW, *Europhysics Letters* **41**, 635 (1998).
7. K. CHEN, T. KAPLAN & M. MOSTOLLER, *Physical Review Letters* **74**, 4019 (1995) — K. BINDER, S. SENGUPTA & P. NIELABA, *J. Phys. : Condens. Matter* **14**, 2323 (2002).
8. P. M. CHAIKIN, *Principles of Condensed Matter Physics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1995).
9. F. MOUČKA & I. NEZBEDA, *Physical Review Letters* **94**, 040601(2005).
10. C. A. MURRAY & R. A. WENK, *Physical Review Letters* **62**, 1643 (1989) — K. ZAHN, R. LENKE & G. MARET, *Physical Review Letters* **82**, 2721 (1999) — E. J. STANCIK *et al.*, *Journal of Rheology* **48**, 159 (2004).
11. M. BRUNNER & C. BECHINGER, *Physical Review Letters* **88**, 248302 (2002).
12. J. KLEIN & E. KUMACHEVA, *Physica A* **249**, 206 (1998).
13. J. S. OLAFSEN & J. S. URBACH, *Physical Review Letters* **95**, 098002 (2005) — F. V. REYES & J. S. URBACH, *Physical Review E* **78** 051301 (2008).
14. P. M. REIS, R. A. INGALE & M. D. SHATTUCK, *Physical Review Letters* **96**, 258001 (2006)
15. R. SESHADRI & R. M. WESTERVELT, *Physical Review B* **46**, 5150 (1992).
16. S. SCHEIDL & V. M. VINOKUR, *Physical Review B* **57**, 13800 (1998).
17. R. E. ROSENSWEIG, *Ferrohydrodynamics* (Dover, New York, 1997).
18. L. BRAGG & J. F. NYE, *Proceedings of the Royal Society of London A* **190**, 474 (1947).
19. The ferrofluid synthesis has been performed by the Laboratory LI2C, University Paris 6.
20. F. BOYER & E. FALCON, *Physical Review Letters* **101**, 244502 (2008).
21. A. G. GAILITIS, *Journal of Fluid Mechanics* **82**, 401 (1977).
22. J.-C. BACRI & D. SALIN, *Journal de Physique Lettres* (France) **45**, L-559 (1984).
23. B. ABOU, J.-E. WEISFREID & S. ROUX, *Journal of Fluid Mechanics* **416**, 217 (2000).
24. F. BOYER & E. FALCON, *Physical Review Letters* **103**, 144501 (2009).