

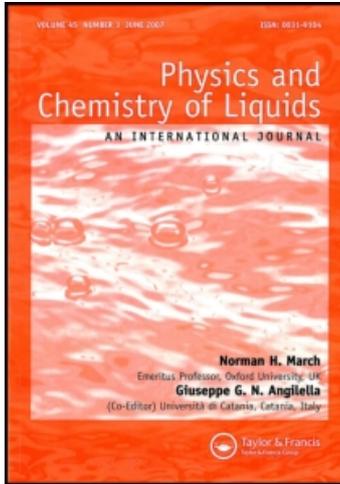
This article was downloaded by:

On: 28 January 2011

Access details: *Access Details: Free Access*

Publisher *Taylor & Francis*

Informa Ltd Registered in England and Wales Registered Number: 1072954 Registered office: Mortimer House, 37-41 Mortimer Street, London W1T 3JH, UK



Physics and Chemistry of Liquids

Publication details, including instructions for authors and subscription information:

<http://www.informaworld.com/smpp/title~content=t713646857>

Phénomènes Transitoires et Influence de la Nature du Substrat dans la Déformation de la Surface Libre d'un Liquide Isolant Chargé

A. T. Ahmed El-Haddad^a; J. Fornazéro^a; G. Mesnard^a

^a Laboratoire de Physique Electronique, Université Claude Bernard de Lyon, Villeurbanne, Cedex, France

To cite this Article El-Haddad, A. T. Ahmed , Fornazéro, J. and Mesnard, G.(1981) 'Phénomènes Transitoires et Influence de la Nature du Substrat dans la Déformation de la Surface Libre d'un Liquide Isolant Chargé', *Physics and Chemistry of Liquids*, 10: 4, 363 – 374

To link to this Article: DOI: 10.1080/00319108108079091

URL: <http://dx.doi.org/10.1080/00319108108079091>

PLEASE SCROLL DOWN FOR ARTICLE

Full terms and conditions of use: <http://www.informaworld.com/terms-and-conditions-of-access.pdf>

This article may be used for research, teaching and private study purposes. Any substantial or systematic reproduction, re-distribution, re-selling, loan or sub-licensing, systematic supply or distribution in any form to anyone is expressly forbidden.

The publisher does not give any warranty express or implied or make any representation that the contents will be complete or accurate or up to date. The accuracy of any instructions, formulae and drug doses should be independently verified with primary sources. The publisher shall not be liable for any loss, actions, claims, proceedings, demand or costs or damages whatsoever or howsoever caused arising directly or indirectly in connection with or arising out of the use of this material.

Phénomènes Transitoires et Influence de la Nature du Substrat dans la Déformation de la Surface Libre d'un Liquide Isolant Chargé

A. T. AHMED EL-HADDAD, J. FORNAZÉRO et G. MESNARD

*Université Claude Bernard de Lyon, Laboratoire de Physique Electronique,
43 Boulevard du 11 Novembre 1918, 69 622 Villeurbanne Cedex, France*

(Received January 14, 1981)

On étudie l'établissement du régime final dans l'évolution électrohydrodynamique d'un liquide isolant soumis à un flux de charges dans le cas d'un substrat conducteur et dans le cas d'un substrat plus ou moins isolant; le cas d'un substrat ferroélectrique est envisagé plus particulièrement. Dans le cas d'un substrat isolant on étudie des mouvements latéraux du liquide. On montre que l'analyse de la déformation du liquide permet des études de substrats.

The establishment of the final behaviour is studied concerning the electrohydrodynamical evolution of an insulating liquid submitted to a flux of charges, for a conducting and for an insulating substrate of variable resistivity. In the case of an insulating substrate, lateral movements of the liquid are studied. One shows that analysis of the deformation of the liquid allows studies of substrates.

1 INTRODUCTION

La déformation cellulaire obtenue quand une couche mince liquide isolante déposée sur un substrat conducteur relié à la masse est soumise à un flux de charges est un phénomène bien connu qui a fait l'objet d'études aussi bien théoriques¹ qu'expérimentales.² Dans ces études on a généralement considéré uniquement le cas des régimes permanents.

Nous nous proposons dans cette publication d'étudier l'influence de la nature du substrat sur la déformation cellulaire, le substrat n'étant plus nécessairement un conducteur idéal; nous envisagerons le cas où c'est un semi-conducteur et aussi un isolant. S'il s'agit d'un isolant parfait, on ne

peut obtenir un courant permanent; seul un courant transitoire traverse la couche. Nous serons donc conduits plus généralement à étudier des phénomènes transitoires et à envisager divers effets électromécaniques dus au flux de charges.

Il convient d'examiner d'abord comment s'établit le régime permanent dans le cas d'un substrat parfaitement conducteur, à partir de l'instant où la source des charges est mise sous tension. Nous raisonnerons sur le cas usuel où cette source fonctionne par effet couronne (ce sera aussi en général le cas dans tout le présent travail). En toute rigueur le courant, de densité J , varie au cours de la période d'établissement, puisque la tension aux bornes de la couche va en augmentant.

2 ETABLISSEMENT DU REGIME PERMANENT

Lorsqu'on applique le courant, la charge d'espace ne s'établit pas immédiatement dans la couche. C'est un comportement classique.³ Avant d'en rappeler les résultats, il convient de noter que le problème se pose dans la mesure où le temps de relaxation du milieu est supérieur au temps de transit. Nous ne considérons que des couches isolantes satisfaisant à cette condition et nous nous plaçons dans le cas d'une charge d'espace idéale résultant d'une injection parfaite.

Le charge injectée au bout du temps t par unité de section est Jt . On montre qu'elle se trouve dans une épaisseur $J\mu t^2/2\varepsilon$, μ étant la mobilité des charges et ε la permittivité du milieu. Au début la couche se comporte comme une capacité; le courant J qui la traverse est un courant de déplacement. On peut préciser la densité de charge et le champ derrière le front de charge qui se propage et en tirer le potentiel de surface $V(t)$. On trouve

$$V(t) = \frac{Jth}{\varepsilon} \left(1 - \frac{1}{3} \frac{J\mu t^2}{2\varepsilon h} \right) \quad (1)$$

où h est l'épaisseur du liquide au repos. Ce front atteint l'autre face au bout de temps de transit

$$\tau = \left(\frac{2\varepsilon h}{\mu J} \right)^{1/2} \quad (2)$$

qui varie en $J^{-1/2}$. Une valeur typique pour les liquides étudiés est obtenue en prenant $\varepsilon = 2,5 \cdot 10^{-11}$, $h = 0,4$ mm, $\mu = 10^{-6}$ cm³/Vs, $J = 1$ μ A/cm². On trouve $\tau = 0,14$ sec.

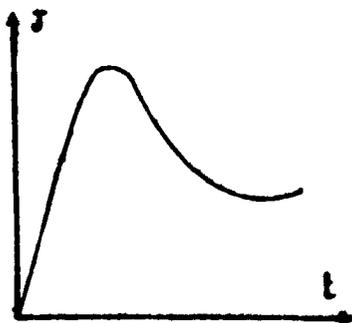


FIGURE 1 Evolution du courant après l'instant d'application de la tension dans le cas d'un substrat conducteur.

Nous avons suivi l'évolution du courant au cours du temps après l'instant d'application de la tension à la source de charge. On obtient l'allure de courbe donnée par la Figure 1. La montée progressive du courant est due à l'inertie de l'établissement de la décharge (l'inertie de l'appareillage de mesure est beaucoup plus faible), qui inclut l'inertie de la source de tension et l'inertie du phénomène physique. Mais on observe immédiatement après une baisse du courant; celle-ci est due à l'établissement progressif de la tension aux bornes du liquide et le temps d'évolution est tout à fait compatible avec les valeurs du temps de transit.

Mais il faut tenir compte de la déformation du liquide, qui tend à produire un accroissement du courant. Watson, Schneider et Till⁴ ont examiné si l'instabilité convective de la couche peut intervenir avant que la charge d'espace soit établie. C'est en gros le cas si la tension donnée par la formule (1) atteint la valeur critique conduisant à l'instabilité au bout d'un temps τ' inférieur au temps de transit. Ils ont trouvé alors pour le début de l'instabilité le temps $\tau' = (300\varepsilon\eta/J^2)^{1/3}$: on note que cette valeur augmente avec le coefficient de viscosité η . Elle varie en $J^{-2/3}$ avec le courant. En comparant avec la formule (2), on voit que τ' diminue plus vite que τ quand le courant augmente, de sorte que c'est aux forts courants que l'instabilité se produit avant l'établissement complet de la charge d'espace. L'épaisseur intervient, car τ varie en $L^{1/2}$ tandis que τ' n'en dépend pas. Une valeur typique de τ' obtenue pour $\varepsilon = 2,5 \cdot 10^{-11}$, $J = 1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$, $\eta = 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ est $\tau' = 10^{-3} \text{ s}$. Dans nos essais nous devons tenir compte de ce que l'instabilité apparaît souvent avant que le régime de charge d'espace permanent soit établi.

Dans certains cas la décroissance de la Figure 1 n'est pas observée; elle est masquée par l'effet inverse de croissance lié à la déformation qui s'établit. On note d'ailleurs que la chute du courant est moindre quand on refait passer le courant dans une couche non complètement déchargée, le courant maximal atteint étant plus faible.

3 DEFORMATION CELLULAIRE TRANSITOIRE AVEC SUBSTRAT ISOLANT

On a utilisé des plaques très isolantes (verre ou mica) interposées entre le substrat conducteur et la couche liquide. Le phénomène fondamental est le suivant: quand on applique la tension, la déformation cellulaire apparaît mais elle ne se développe pas complètement et elle disparaît au bout d'un temps de l'ordre de la seconde.

L'explication est la suivante. Lorsqu'on applique le courant, la plaque isolante se charge progressivement, le courant baisse et finit par s'annuler; ainsi la couche liquide, après s'être déformée, doit revenir au repos. Si on suit l'évolution du courant, on voit effectivement sa décroissance progressive. La Figure 2 la montre sans couche liquide; avec la couche liquide le résultat est analogue; le courant est seulement un peu plus faible. On vérifie aisément

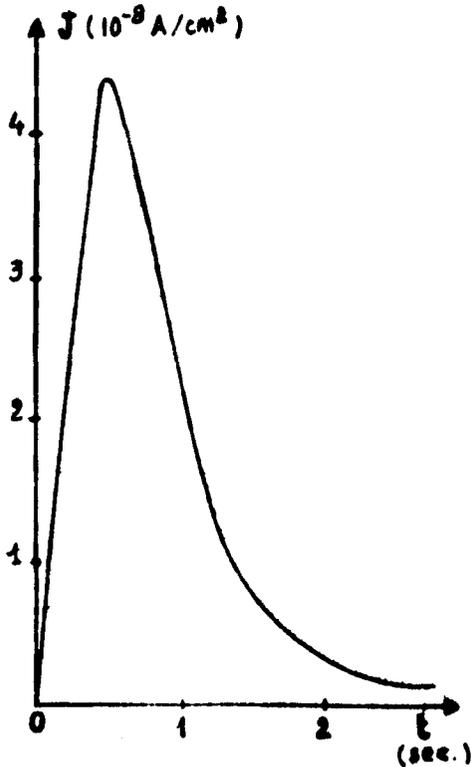


FIGURE 2 Evolution du courant après l'instant d'application de la tension dans le cas d'un substrat isolant, sans liquide.

que l'isolant s'est chargé: si, après l'expérience précédente, on approche de la couche un fil relié à la masse, une décharge apparaît.

Ce phénomène rappelle les tourbillons instantanés signalés par Avsec.⁵ Si, ayant ainsi obtenu la déformation transitoire, on renverse le sens de la tension appliquée à la pointe, la déformation revient, plus intense que la précédente, puis elle disparaît à son tour. Cet effet s'explique aisément: lorsqu'on renverse la tension, celle-ci agit dans le même sens que la tension qui s'était établie aux bornes de l'isolant, un courant très intense passe, mais il disparaîtra encore progressivement au fur et à mesure que la plaque isolante se chargera dans le nouveau sens. Bien entendu la répétition sans changer le sens de la tension ne donne rien, sauf si l'on attend un temps suffisant pour que la décharge spontanée de la plaque ait lieu.

La question se pose de savoir si la déformation transitoire est exactement du même type qu'en régime permanent. Il apparaît que non indépendamment du fait que la déformation ne peut s'établir complètement. En particulier la séparation du liquide en gouttes est couramment obtenue pour un liquide suffisamment visqueux sans bords. Il faut noter qu'ici la charge totale apportée par le courant est emmagasinée dans le liquide près de la surface de la plaque isolante, au lieu de s'évacuer comme dans un régime permanent. Il en résulte un effet électrostatique de répulsion du liquide vers les bords qui est ici plus intense même si on tient compte de la charge opposée qui apparaît sur le métal. Il faut noter aussi qu'un substrat conducteur tendait à provoquer une répartition plus uniforme du courant. La séparation en gouttes est irréversible: le liquide ne se rassemble plus ensuite, quand le courant de charge disparaît. Si on inverse le sens de la tension, la séparation en gouttes s'accroît, avec obtention de gouttelettes plus petites.

4 ASPECTS PARTICULIERS DE LA DEFORMATION CELLULAIRE TRANSITOIRE

Influence de l'épaisseur de la plaque isolante

Plus la plaquette est mince plus la durée de la déformation est faible. C'est un résultat a priori anormal, si on remarque que la capacité de la plaquette augmente et par conséquent aussi la constante de temps de sa charge. Pour en rendre compte, il faut remarquer que la charge créant la différence de potentiel aux bornes de la plaquette (qui se trouve dans le liquide) s'oppose à la répartition qui provoquait la déformation cellulaire; on ne peut plus dire qu'elle est contrôlée par le courant comme dans un régime d'injection simple. Quand l'épaisseur de la plaquette diminue, sa capacité croît, le courant décroît moins vite, la charge qui se trouve introduite dans le liquide augmente plus rapidement; ainsi la déformation disparaît plus vite. En outre

la période spatiale de la déformation obtenue doit être plus grande, ce que l'on observe effectivement.

Emploi d'une plaquette ferroélectrique

Nous avons également fait des essais en utilisant une plaquette mince d'un cristal de titanate de baryum, préparé par la méthode classique de Remeika; ce cristal n'était d'ailleurs pas parfaitement isolant. L'intérêt de l'emploi d'une telle plaquette réside dans le fait que l'on obtient ainsi une constante diélectrique très élevée (cristal polydomaine), ce qui permet d'avoir des capacités de plaquettes très grandes et par conséquent des constantes de temps de charge élevées. On peut ainsi suivre aisément l'évolution de la déformation au cours du temps de la chute du courant.

La Figure 3, qui donne l'évolution du courant au cours du temps, montre bien cet accroissement de la constante de temps; on voit en même temps qu'il y a une conductivité de la couche. On obtient malgré cette conductivité des phénomènes tout à fait analogues à ceux que l'on a décrits précédemment, avec l'avantage que l'on a le temps d'observer les déformations et de mesurer la durée T de leur obtention, avant qu'elles disparaissent, qui est de quelques secondes.

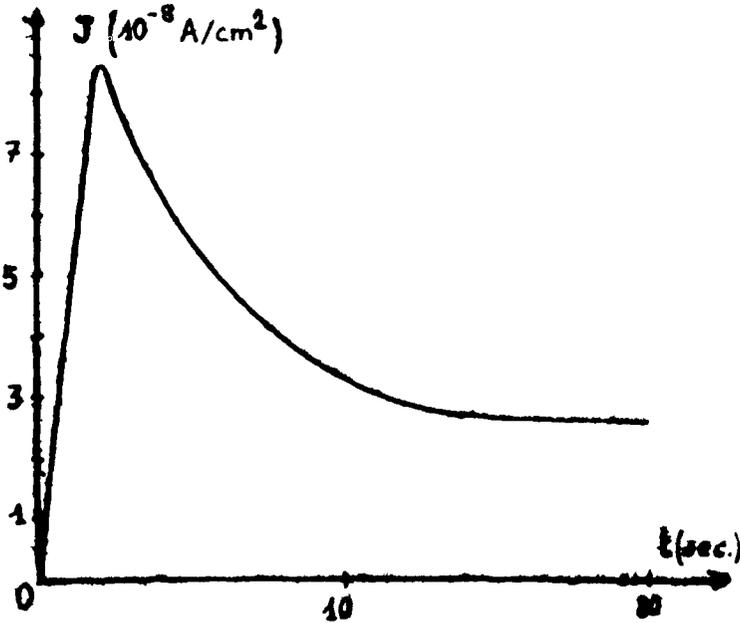


FIGURE 3 Evolution du courant après l'instant d'application de la tension dans le cas d'un substrat de titanate de baryum en présence de liquide.

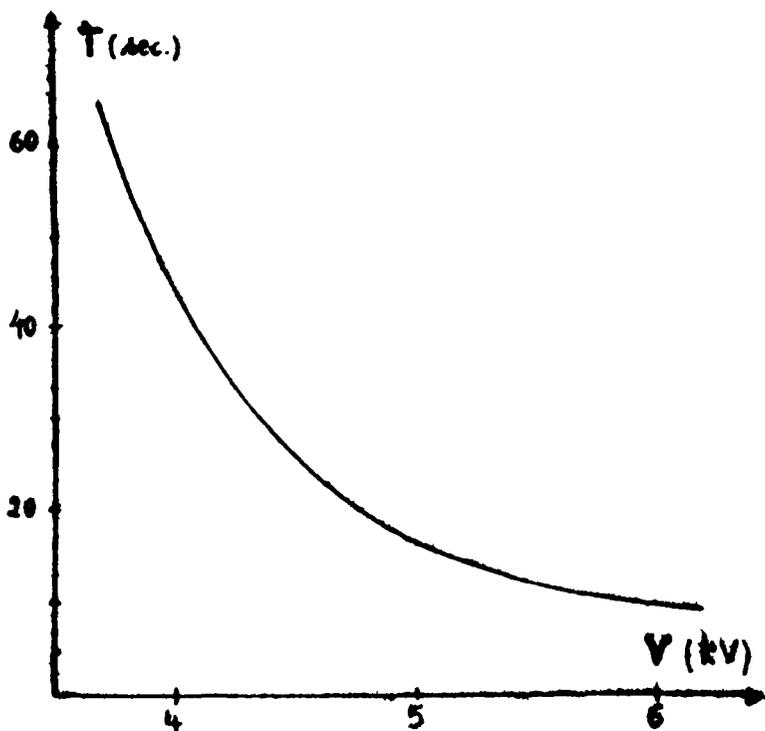


FIGURE 4 Variation de la durée des déformations en fonction de la tension appliquée.

On trouve d'abord que T est plus élevée et la taille des cellules plus grande quand la pointe de la décharge couronne est positive que quand elle est négative: c'est que le courant de décharge est plus faible et décroît moins vite. Mais l'observation la plus importante concerne l'influence de la valeur du courant avant décroissance, c'est-à-dire de la tension appliquée. T diminue quand E croît. La Figure 4 donne un exemple de cette variation. Ce résultat, a priori anormal, doit être expliqué en s'inspirant des considérations du début du paragraphe. Quand le courant initial augmente, l'isolant se charge plus rapidement et la charge qui s'accumule plus vite dans le liquide vers l'isolant fait disparaître plus tôt la déformation, bien que le courant soit plus élevé.

On a aussi examiné l'influence de la température. T diminue et le mouvement du liquide s'accroît quand la température s'élève. On peut admettre qu'ici c'est la modification des propriétés de la couche liquide, plutôt que de la plaquette, qui intervient; on sait que, d'une façon générale, l'élévation de la température gêne la formation des cellules.

Alimentation de la pointe en alternatif

Grâce au renversement continu de la tension d'alimentation, aucune tension élevée ne peut apparaître aux bornes de la plaquette isolante (si la fréquence est suffisante) et l'on obtient une déformation cellulaire permanente. L'asymétrie du courant intervient dans le niveau de charge obtenu.

Aures méthodes d'apport des charges

Les phénomènes fondamentaux sont obtenus avec les autres procédés classiques d'apport de charges.

5 MOUVEMENTS LATÉRAUX DU LIQUIDE SUR SUBSTRAT ISOLANT

Dans le cas particulier de l'emploi d'un canon à ions, on a pu obtenir des réapparitions spontanées des déformations, après leur disparition, en maintenant le flux. En définitive il y a apparition et disparition périodique des cellules. Ceci est lié à un mouvement du liquide que nous allons préciser.

Le liquide est visqueux, sans bords, et la plaquette sur laquelle est déposé le liquide a des dimensions limitées. Nous avons opéré notamment avec des feuilles de mylar et de polyéthylène de diverses épaisseurs. La déformation cellulaire apparaît comme précédemment puis disparaît. On voit alors, la tension restant appliquée à la pointe, que le liquide s'étend : ceci résulte de la charge emmagasinée dans le liquide. Mais il ne s'étend pas régulièrement, il est entraîné vers la région où le bord de la plaquette est le plus proche. Ceci s'explique par les fuites qui interviennent lorsque le liquide s'approche des bords de la plaquette ; là où le liquide a perdu sa charge le mouvement d'entraînement s'accroît. Le liquide, relativement déchargé d'un côté, s'épaissit par l'effet de la tension superficielle et tend, de ce fait, à revenir vers la partie centrale.

Mais, le liquide étant déchargé, les phénomènes peuvent reprendre comme au début. Ainsi s'explique le mouvement alternatif du liquide avec apparitions et disparitions spontanées de la déformation cellulaire, dans le cas du canon à ions. Le mouvement de va-et-vient se produit souvent sans qu'il y ait de cellules très nettes.

L'emploi d'un canon à électrons est particulièrement commode pour étudier cet effet car on peut aisément décaler le faisceau. On a en particulier mesuré la période du mouvement de va-et-vient pour des substrats en mica de plusieurs épaisseurs et de plusieurs formes. Les quatre courbes de la Figure 5 correspondent respectivement aux conditions suivantes :

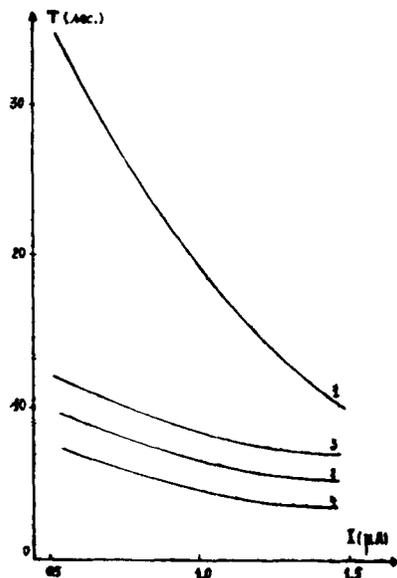


FIGURE 5 Variation de la période du mouvement en fonction du courant moyen.

Courbe	Surface du mica	Epaisseur du mica
1	$1,5 \times 1,5 \text{ cm}^2$	15μ
2	$1,5 \times 1,5$	80μ
3	$0,5 \times 0,5$	80μ
4	$1,1 \times 0,9$	80μ

Les courbes montrent que la période T du phénomène diminue quand le courant augmente; ce résultat est logique.

6 ETUDE DE SUBSTRATS SEMI-CONDUCTEURS

On a vu l'importante modification qui existe dans le comportement suivant que le substrat est isolant ou conducteur. Il est donc a priori intéressant d'envisager le cas d'un substrat semi-conducteur. Compte tenu de la difficulté d'obtention d'une plaquette de grandes dimensions à surface bien lisse, nous avons prévu d'utiliser des semi-conducteurs en couches minces. Nous avons opéré avec le germanium et avec le sélénium.

Substrat de germanium

La couche mince de germanium est déposée sur le côté non conducteur d'une plaque de verre conducteur par évaporation sous vide poussé. L'épais-

seur de la couche utilisée était de l'ordre de 1000 Å. Cette couche était limitée par un bord franc, ce qui a permis de faire des essais avec le liquide déposé en partie sur le germanium et en partie directement sur l'isolant, afin d'observer la différence de comportement.

Le cas où l'on dépose seulement une goutte d'un liquide visqueux à la limite est particulièrement instructif. Quand on augmente progressivement la tension appliquée à la pointe, c'est la partie qui se trouve sur le germanium qui est affectée la première; le courant s'y porte préférentiellement. Puis la déformation cellulaire se développe partout, mais la partie du liquide qui est directement sur le verre tend à s'étaler le long du germanium. Ceci s'explique comme au paragraphe précédent et la couche de germanium se comporte en gros comme une couche conductrice.

Substrat de sélénium

Nous avons préparé des couches minces de sélénium sur un support conducteur ou isolant. Dans le premier cas on a pu réaliser des dépôts par électrolyse; l'électrolyte est une solution d'oxyde de sélénium dans l'eau, à laquelle on a ajouté un peu de sel $C_{12}H_{25}NaSO_4$, pour éviter la réduction chimique de H_2SeO^3 (la solution est, avant l'électrolyse, chauffée à 80°C puis filtrée). L'anode est en graphite ou en platine pour éviter toute attaque; la cathode peut être en verre conducteur. Les couches ainsi obtenues ne sont pas très pures. Du point de vue de la déformation des liquides, elles se comportent comme des couches conductrices.

Nous avons réalisé d'autre part des couches par évaporation sous vide, en partant de sélénium très pur en grains placé dans un creuset de graphite. Contrairement aux couches électrolytiques, qui sont rougeâtres, celles-ci sont grises quand on les observe par réflexion et rouge foncé par transmission; elles sont d'autre part beaucoup plus isolantes. Plusieurs types d'essais ont été faits avec ces couches; nous précisons les cas intéressants.

Tout d'abord, la couche étant déposée sur une partie d'un support conducteur avec une limite franche, on a refait l'expérience décrite ci-dessus dans le cas du germanium. Le comportement est analogue, mais ici c'est la zone recouverte de sélénium qui joue le rôle de l'isolant. On observe aussi sur la couche des mouvements latéraux du liquide analogues à ceux du paragraphe précédent.

Mais nous avons fait aussi des essais dans lesquels on modifiait la conductivité de la couche de sélénium par éclairage. Un résultat prévisible, mais très instructif, est obtenu. Reprenons l'expérience dans laquelle le liquide est chassé contre la paroi. Quand on éclaire la couche de sélénium, le liquide revient et forme des cellules hexagonales. Si on augmente l'intensité de la lumière, le nombre de cellules augmente, leur taille diminue et la

stabilité est meilleure. Si l'on revient à l'obscurité, les cellules disparaissent et le liquide est chassé à nouveau.

7 APPLICATIONS AUX ETUDES DE SUBSTRATS

L'influence de la nature du substrat, qui est exposée dans les paragraphes précédents, montre que la déformation d'un liquide déposé sur divers substrats est un moyen d'étude de ceux-ci, en ce qui concerne leur conductivité électrique et leur constante diélectrique.

Voici un autre exemple, dans lequel c'est une évolution structurale qui est mise en évidence par l'intermédiaire d'une modification des propriétés électriques. Nous raisonnons à nouveau sur une couche mince de sélénium. Celle-ci est normalement amorphe. Mais lorsqu'on la chauffe, il y a une cristallisation progressive qui s'accompagne d'une augmentation de la conductivité. Voici d'ailleurs quelques valeurs relevées en fonction de la température de traitement pour des couches déposées sur nickel:

Température de traitement	Tension aux bornes de la couche pour un courant de $2 \cdot 10^{-9}$ A
50°C	259 V
60°C	43 V
70°C	9,1 V
80°C	2,4 V

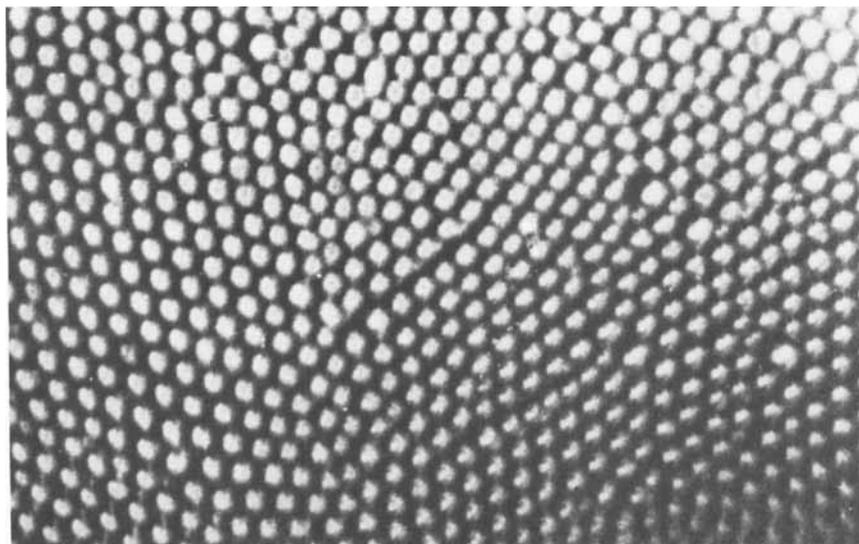


FIGURE 6 Image donnée par une plaque de laiton présentant des rayures.

On a constaté que la tension de source permettant d'obtenir une bonne déformation cellulaire diminue lorsque la couche a été traitée et ceci d'autant plus que le traitement a été plus long et a eu lieu à une température plus élevée. De même la taille des cellules diminue.

Même pour des substrats conducteurs, on peut tirer des renseignements qui concernent l'état de surface. Pour une telle étude il faut un liquide donnant une bonne déformation cellulaire, car ce sont les irrégularités dans leur arrangement qui servent à contrôler l'état de surface. Aussi la photographie de la Figure 6 correspond à une plaque de laiton présentant des rayures; on voit bien les irrégularités si l'on observe la photographie sous incidence rasante.

Références

1. Cf. A. T. Ahmed el-Haddad, J. Fornazéro et G. Mesnard, *The Physics and Chemistry of Liquids*, **9**, 1980.
2. Cf. A. T. Ahmed el-Haddad, J. Fornazéro et G. Mesnard, *The Physics and Chemistry of Liquids*, **9**, 1980.
3. Cf., par exemple, M. A. Lampert and P. Mark, *Current Injection in Solids*, Academic Press, N.Y., 1970.
4. P. K. Watson, J. M. Schneider and H. R. Till, *Phys. Fluid.*, **13**, 1970, 1955.
5. D. Avsec, *C.R. Acad. Sci., France*, **203**, 1936, 532 et 556; **204**, 1937, 549.