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

# Etude Expérimentale de la Déformation de la Surface Libre d'un Liquide Isolant Chargé

A. T. Ahmed El-Haddad<sup>a</sup>; J. Fornazéro<sup>a</sup>; G. Mesnard<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Université Claude Bernard de Lyon, Laboratoire de Physique Electronique, Villeurbanne, France

**To cite this Article** El-Haddad, A. T. Ahmed , Fornazéro, J. and Mesnard, G.(1980) 'Etude Expérimentale de la Déformation de la Surface Libre d'un Liquide Isolant Chargé', Physics and Chemistry of Liquids, 9: 3, 201 – 217 **To link to this Article: DOI:** 10.1080/00319108008084777

URL: http://dx.doi.org/10.1080/00319108008084777

## 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 doese 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.

Phys. Chem. Liq., 1980, Vol. 9, pp. 201-218 0031-9104/80/0903-0201\$04.50/0 © 1980 Gordon and Breach Science Publishers, Inc. Printed in the U.S.A.

# Etude Expérimentale de 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, 69621 Villeurbanne, France

(Received July 26, 1979)

L'étude, qui met en évidence l'existence de déformations variées, est faite en relation avec des considérations théoriques développées antérieurement. On met d'abord en évidence les phénomènes de base en examinant trois cas fondamentaux : goutte de forte viscosité, couches minces de faible et de forte viscosités. On précise le comportement de liquides particuliers. On indique enfin l'influence de divers paramètres, tels que l'épaisseur de la couche, sur les types de déformation observés.

This work, which shows that various deformations may be obtained, is connected with theoretical considerations previously developed. Basic phenomena are firstly explained with a discussion of three fundamental experiments: drop of high viscosity, thin layers of low and high viscosities. The behaviour of particular liquids is stated precisely. Finally the influence of various parameters, such as depth of the layer, is shown for the typical deformations obtained.

#### **1 INTRODUCTION**

La déformation cellulaire obtenue lorsqu'un flux continu de charges arrive sur la surface libre d'un liquide isolant déposé en couche mince sur un substrat conducteur horizontal est un phénomène bien connu, cité par divers auteurs.<sup>1</sup> Des explications diverses en ont été données, souvent schématiques.

Or l'expérience montre que des déformations très variées sont observées suivant les cas. L'explication exige alors de tenir compte de divers effets. Nous avons présenté les bases théoriques susceptibles de conduire à une interprétation détaillée des observations.<sup>2</sup> Elle s'appuie sur deux types d'effets:

des effets statiques correspondant à la seule intervention de forces électriques et mécaniques, pouvant rendre compte de l'obtention d'un état d'équilibre à structure périodique;

des effets dynamiques correspondant à l'existence d'un mouvement continuel du liquide qui tend à s'organiser en "tourbillons convectifs."

Nous nous proposons de décrire les divers types de déformations obtenus et de les interpréter. Ceci permettra de préciser notre théorie antérieure et de mettre en évidence les variables fondamentales.

Une telle analyse n'a pas encore été présentée. On peut toutefois citer le travail d'Herrick,<sup>3</sup> qui a considéré des couches plus minces que celles que nous envisagerons (leur épaisseur variait de 3 à 30 microns) et qui a, par ailleurs, introduit une brève discussion sur l'influence de la viscosité. Il distingue trois types de cellules, I, II et III, les cellules I ne se manifestant que très exceptionnellement. Les cellules II et III d'Herrick rentreront dans le cadre de notre analyse.

#### 2 TECHNIQUE EXPERIMENTALE

Pour l'essentiel nos observations seront qualitatives. L'observation directe est possible, mais l'examen détaillé d'une déformation exige l'emploi du microscope afin de profiter du grandissement. On peut aussi projeter sur un écran. Une graduation permet de faire des mesures. Nous présenterons essentiellement des photographies.

L'observation a été faite en général par réflexion, quelquefois par transmission; dans ce dernier cas le substrat conducteur est transparent (verre conducteur). Dans certains cas l'emploi d'une optique de Schlieren, avec formation d'une image réelle sur un écran facilitait l'observation. Mais cette technique relativement délicate n'était généralement pas nécessaire, car les déformations que nous étudions sont fortes.

Diverses méthodes peuvent être utilisées pour l'apport des charges. Nous avons voulu dans cette étude maintenir des conditions pratiquement toujours identiques, afin de mettre en évidence l'influence des autres facteurs. La méthode adoptée est d'ailleurs la plus simple; c'est la méthode de la décharge couronne, celle-ci étant réalisée dans l'air. Le substrat est à la masse et on porte à une tension suffisamment élevée une pointe de tungstène préalablement formée par voie électrolytique. Pratiquement le courant de décharge est pulsé,<sup>4</sup> mais on peut raisonner comme s'il était continu.

La décharge étant essentiellement contrôlée par la pointe, le flux est relativement uniforme, avec toutefois une diminution progressive lorsqu'on s'éloigne de l'axe du système. Pour éviter que le gradient soit trop fort, la pointe est positionnée à une distance de la surface libre (par exemple 2 à 3 cm) très grande par rapport à l'épaisseur du liquide et à la période de la déformation. Un point essentiel est l'impédance du milieu qui fournit les charges par rapport à celle de la couche liquide. Ceci intervient en effet dans la théorie. Pour le préciser, nous avons étudié les caractéristiques courant-tension de la décharge, en l'absence de liquide, pour plusieurs distances pointe-plan. C'est l'influence de la distance qu'il faut examiner tout particulièrement. On peut en effet considérer que, pour un courant de décharge I donné, la variation de la tension appliquée E avec la distance d donne la chute de tension dans la région de la décharge qui est immédiatement au-dessus du liquide.

Les courbes donnant  $\sqrt{I}$  en fonction de *E* sont pratiquement rectilignes:  $E = E_0 + A\sqrt{I}$ . Et, dans la zone concernée, *A* varie de façon sensiblement linéaire avec *d*, d'où

$$E = E_0 + a \sqrt{I(d - d_0)}$$

Par exemple, pour une pointe donnée, on a obtenu  $E_0 = 0.75$ , a = 1,  $d_0 = 0.75$ , les tensions étant en kV, les courants en  $\mu A$  et les distances en cm. Autour de  $l = 1 \mu A$ , on a, avec les unités précédentes, dE/dd = 1: la résistance effective du milieu d'introduction des charges est donc de 1000 M $\Omega$ par cm d'épaissieur près du liquide. Des renseignements plus précis peuvent être obtenus en utilisant un substrat muni d'un anneau de garde. Mais il apparaît que la résistance propre des liquides sera en général beaucoup plus forte. Toutefois en régime d'injection la résistance équivalente diminue rapidement quand le courant augmente.

On a étudié divers liquides organiques, surtout des liquids assez visqueux (de quelques dixièmes à plusieurs dizaines de poises). Le liquide est limité par une paroi isolante, ou bien il n'y a pas de bords. Nous présenterons d'abord des phénomènes typiques qui sont directement en relation avec la théorie.

#### **3 ETUDE D'UNE GOUTTE D'UN LIQUIDE VISQUEUX**

L'intérêt de cette expérience par rapport au cas d'une couche mince réside dans le fait que les effets collectifs et de corrélation ne peuvent se développer ce qui permet de suivre les mécanismes de base. On limite seulement l'étalement de la goutte à l'aide d'un anneau isolant.

Dans cette expérience la pointe de la décharge couronne, polarisée négativement, est placée dans l'axe de la goutte. L'effet do non uniformité de la charge se manifeste. Nous ferons le raisonnement en termes de charges, en rappelant que les charges sont surtout près de la surface. Nous appliquons une tension E progressivement croissante au dispositif de décharge et nous décrirons les phases successives de l'évolution illustrées par des photographies typiques.



FIGURE 1 Amorçage de la déformation d'une goutte liquide visqueuse.

Tout d'abord on observe un aplatissement au centre avec élargissement de la goutte. Ce comportement (pour lequel il n'y a pas de seuil) résulte de l'effet de répulsion latérale combiné à l'existence d'une force verticale. Le potentiel de surface étant à peu près uniforme, le courant et les forces augmentent dans la zone aplatie; le creux et l'étalement s'accusent.

Puis apparaît une instabilité, pour une tension bien déterminée; le liquide est fortement entraîné par le courant dans la zone aplatie. Un puits tend à se former (Figure 1); d'importants mouvements de convection s'y produisent. Le profil du creux n'est pas conique, après la phase initiale; il y a un effet d'élargissement au fond, en raison de la répulsion électrostatique. La limitation de l'effet par la pesanteur conduit à l'obtention d'une "cheminée" (Figure 2).

Les mouvements convectifs sont surtout présents au fond de la cheminée et c'est vers les bords qu'ils ont leur efficacité maximale; une profonde dépression du liquide s'y produit. Quand les conditions de tension se trouvent remplies, une cellule, d'origine convective, se forme et se stabilise (Figure 3). Il est intéressant de noter que ce n'est pas au centre de la cheminée mais à sa périphérie que la dépression s'est développée. Le profil de la surface est bien sphérique, ce qui montre que les forces de tension superficielle interviennent. La dépression latérale s'est faire à partir de "piquetages" aléatoires qui se sont très vite organisés en une ligne circulaire de dépression (photographies des Figures 4 et 5).

Si l'on continue à augmenter la tension E, les creux où la convection est intense tendent à s'étendre vers l'intérieur (où la pesanteur gêne moins leur



FIGURE 2 Profil de la goutte chargée avec formation d'une "cheminée."



FIGURE 3 Profil de la goutte avec une cellule au fond de la cheminée.

développement). Pour une tension bien déterminée, une ligne de dépression traverse la cellule qui se trouve dédoublée sous l'effet d'une nouvelle instabilité (Figure 6). Il convient de noter le caractère asymétrique de la structure ainsi obtenue. L'augmention du courant sur la cellule, chassant le liquide du puits, rend possible la formation d'une structure convective de plus faible période; mais les cellules sont toujours bombées conformément



FIGURE 4 Photographie du centre de la goutte montrant l'amorçage de la dépression circulaire qui conduira à une cellule.



FIGURE 5 Photographie de la structure à une cellule.



FIGURE 6 Profil d'une goutte liquide avec deux cellules.

à la théorie statique, les courants de convection concernant surtout les zones de dépression.

Si on continue à augmenter le courant, à nouveau une nouvelle ligne de creux tend à se former: une ligne AO (Figure 7) se trouve privilégiée, repoussant les parties OB et OC et l'on arrive finalement à un ensemble régulier de 3 cellules. Les photographies des Figures 8 et 9 représentent les structures à deux et à trois cellules.



FIGURE 7 Mécanisme de formation d'un système de trois cellules.



FIGURE 8 Photographie d'une structure à deux cellules.

On peut continuer le raisonnement. Quand on augmente E, il apparaît de façon discontinue des cellules supplémentaires. Elles tendent toujours à prendre la forme de calottes sphériques, mais les contraintes géométriques font que leur pourtour n'est pas circulaire. La photographie de la Figure 10 correspond à cinq cellules.

D'une façon générale, l'ensemble du comportement remarquable qui a été observé s'interprète bien avec les idées théoriques que nous avions émises. Il faut noter tout particulièrement les conditions d'obtention de cellules de plus en plus petites, en relation avec une diminution de l'épaisseur moyenne sous l'influence des forces latérales qui chassent le liquide.



FIGURE 9 Photographie d'une structure à trois cellules.



FIGURE 10 Photographie d'une structure à quatre cellules.

#### 4 ETUDE D'UNE COUCHE MINCE FLUIDE

Pour montrer les comportements très différents que l'on obtient suivant la valeur de la viscosité, nous allons considérer dans ce paragraphe un liquide relativement fluide (par exemple 0,01 poise) et ensuite, au paragraphe suivant, nous considèrerons le cas d'un liquide très visqueux. Nous augmentons toujours de façon très progressive la tension E d'une décharge couronne dans l'air.

Rien ne se produit sur la couche mince, quasi indéfinie, qui reçoit un flux à peu près uniforme, jusqu'à ce qu'on atteigne un seuil d'instabilité bien



FIGURE 11 Vue de la surface d'un liquide peu visqueux avec structure piquetée.



FIGURE 12 Evolution de la structure piquetée précédente.

défini. On obtient alors une structure "piquetée" due à des puits de convection. Ceux-ci forment un quadrillage régulier à géométrie carrée comme on le voit sur la photographie de la Figure 11. C'est une structure compatible avec un ensemble de tourbillons de convection. Le liquide, relativement mobile, fluctue et toute la masse se trouve rapidement concernée par la convection; l'écartement des puits est contrôlé par la formation des tourbillons. Si on met le liquide en mouvement transversal global, l'ensemble de la structure se déplace.

En dehors des creux, la surface tend à devenir bombée et lisse sous l'action des forces de tension superficielle. Des cellules conformes à celles de la



FIGURE 13 Amorçage de la structure cellulaire du liquide précédent.

théorie statique tendent à apparaître; on est d'ailleurs dans le cas des déformations faibles, car les puits de convection ne sont jamais très profonds et ne se stabilisent pas rigoureusement en position.

On peut alors obtenir une évolution spontanée de la déformation, en l'absence de toute modification des conditions géométriques et électriques. En effet la forme et la période des cellules de la théorie statique diffèrent de celles qui correspondent aux cellules convectives. On voit les cellules convectives initiales grossir et leurs limites s'arrondir, tendant vers un profil polygonal. Mais, si la période des déformations statiques est nettement plus grande que celle qui correspond aux cellules convectives, aucun état stable n'est atteint. La convection détruit la cellule à un certain moment, par un



FIGURE 14 Développement de la structure cellulaire.

flux convectif qui remonte dans sa partie bombée et tend à rétablir une période plus faible.

Les photographies des Figures 12, 13 et 14 donnent différents aspects obtenus au cours d'une évolution. On voit en particulier que la structure carrée est remplacée par une structure en losanges, puis en pentagones et enfin en hexagones. En augmentant la tension E on aboutit à une structure plus stable, le liquide restant toutefois très mobile avec des fluctuations continuelles. On peut estimer que ceci se produit lorsque les deux mécanismes conduisent à peu près à même période. Mais la forme des deux types de cellules n'étant pas le même, il y a toujours des fluctuations et les creux ne sont jamais très accusés. Ainsi se caractérise une déformation dominée par la convection qui est obtenue dans un liquide très mobile; pour un courant donné, les forces électriques y sont d'ailleurs beaucoup plus réduites que dans un liquide très visqueux et où la mobilité des charges est faible.

Si on augmente E, au delà de la zone précédente, l'instabilité s'accentue, les mouvements convectifs ne peuvent plus s'organiser et le liquide est le siège de mouvements de plus en plus intenses et incohérents.

#### 5 ETUDE D'UNE COUCHE TRES VISQUEUSE

La première phase de la déformation intervient sans qu'il y ait un seuil très net; le défaut d'uniformité d'introduction des charges suffit à provoquer la formation de creux qui s'autostabilisent. On obtient alors couramment au début une structure en "chenilles": il y a de grands îlots allongés, non réguliers, séparés par des lignes où existent de petites cellules. C'est une situation qui est tout à fait conforme aux indications données par la théorie : les premiers creux convectifs qui se forment tendent à se propager en lignes de convection entourant de grosses cellules irrégulières jouant un rôle passif.

Il n'y a pas de phénomène collectif au niveau de l'ensemble du liquide compte tenu de sa grande viscosité. La photographie de la Figure 15 donne un exemple d'une telle structure. Quand on coupe le courant les petites cellules disparaissent les premières.

Quand on augmente le courant, les lignes de convection supplémentaires prévues par la théorie s'établissent et tendent à régulariser la forme des



FIGURE 15 Structure en chenilles d'un liquide visqueux chargé.

cellules par coupure en deux des cellules les plus grosses, surtout si elles s'éloignent beaucoup de la forme sphérique.

Les effets de convection s'accentuant, les grosses cellules deviennent finalement de plus en plus petites et régulières. En même temps les petites cellules initiales grossissent et le calibrage s'effectue progressivement. Eventuellement de petites cellules peuvent disparaître sous la pression des plus grosses. La photographie de la Figure 16 montre la couche qui avait conduit à la Figure 15, dont les cellules sont devenues régulières.



FIGURE 16 Modification de la structure précédente quand on augmente le courant.



FIGURE 17 Structure d'un liquide visqueux avec cellules non calibrées.



FIGURE 18 Structure plus régulière du même liquide obtenue en augmentant le courant.

Les Figures 17 et 18 correspondent à un autre cas et à des courants un peu plus élevés; en augmentant le courant moyen, une structure hétérogène de cellules fait place à une structure plus régulière.

Aux tensions E élevées les cellules, régularisées, deviennent très stables, mais il faut introduire ici une distinction entre le cas où les cellules sont des calottes sphériques relativement bien séparées avec un pourtour assez circulaire et le cas où les cellules, pressées les unes contre les autres, conduisent à une ligne de séparation très fine et relativement peu profonde dont la forme est hexagonale.

#### 6 QUELQUES EXEMPLES PRECIS

Les descriptions précédentes sont assez générales, avec des distances pointeplan de l'ordre de 2 cm et des courants variant autour du microampère; il n'était donc pas nécessaire de préciser la nature du liquide (huile organique). Mais nous allons décrire ici sommairement des aspects spécifiques obtenus avec quatre liquides, de viscosités variant d'environ 0,5 à 10 poises. Ces liquides, qui n'ont pas subi de purification spéciale, sont, dans l'ordre des viscosités croissantes:

une huile de silicone pour pompe à diffusion de vapeur d'huile;

une huile de paraffine;

une huile de pompe à vide (à palettes);

une huile de ricin.

L'huile de silicone conduit à des calottes sphériques assez régulières, de plus en plus compactes quand le courant croît. Puis on obtient une structure hexagonale, mais il subsiste dans les creux de petites cellules convectives.

L'huile de paraffine conduit très vite à des calottes sphériques, mais leurs diamètres sont variés. Leur nombre va en augmentant et la structure se régularise quand le courant augmente; mais les cellules restent assez mobiles dans une structure peu compacte.

L'huile de pompe à palettes donne des bosses quasi-sphériques dès les faibles courants. Il y a en outre de petites cellules, mais celles-ci disparaissent progressivement et on aboutit à une très bonne structure cellulaire hexa-gonale compacte.

L'huile de ricin donne d'abord des bosses irrégulières et de petites calottes sphériques, puis il y a une calibration conduisant à une bonne structure cellulaire.

#### 7 INFLUENCES DIVERSES SUR LES REGIMES DE DEFORMATION ET CONCLUSION

Nous allons analyser ici l'évolution des déformations suivant la valeur du courant, dans une très large gamme de variation, et en fonction de divers paramètres. Nous nous bornons à des couches minces pas trop fluides. On peut schématiser les régimes successifs obtenus quand le courant croît, conformément aux phénomènes de base précisés par ailleurs, en les numérotant de la façon suivante:

- 1. Déformation non encore amorcée.
- 2. Cellules irrégulières.
- 3. Cellules régulières et stables.
- 4. Convection accrue. Cellules déformées en mouvement.
- 5. Mouvements de convection désordonnés.
- 6. Courants très élevés: dégradation de la couche.

Nous allons préciser comment les limites de ces régions évoluent en fonction de divers paramètres.

La hauteur h du liquide est un paramètre particulièrement important. La zone 3, la plus intéressante, se réduit au profit des zones 2 et 4 quand h croît et finit par disparaître. Au contraire les zones 2 et 4 (et même 5) sont quasiéliminées quand h est faible, la déformation cellulaire étant correcte dans une large gamme de courants. Il faut voir là l'influence stabilisatrice de la tension superficielle qui intervient aux faibles valeurs de h et ceci montre le rôle de la capillarité dans l'explication des déformations cellulaires. Les conditions aux limites imposées à la couche liquide interviennent. La région 3 s'étend quand le diamètre du récipient augmente. C'est que les contraintes de bords gênent l'établissement de la structure cellulaire stable. Ceci est particulièrement vrai aux courants modérés qui conduisent à un nombre réduit de cellules. Par exemple si la couche est limitée circulairement on aura des structures à quelques cellules du genre de celles qui ont été obtenues à partir d'une goutte.

L'influence de la température du liquide est très instructive. La stabilité cellulaire est meilleure quand la température diminue. Or la température influence les propriétés électriques ainsi que la viscosité et la tension superficielle. La baisse de la tension superficielle quand on chauffe paraît jouer un rôle important dans la plus grande difficulté d'obtention de la déformation cellulaire.

Par ailleurs quand la viscosité du liquide augmente, il est logique que la zone 5 soit atteinte plus difficilement et en même temps que des courants plus élevés soient nécessaires pour atteindre un bon calibrage des cellules.

Il faut enfin signaler que lorsqu'on ne limite pas le liquide (ce qui suppose qu'il est assez visqueux), la couche s'étale progressivement, pour un courant donné. En même temps, l'épaisseur diminuant, l'allure de la déformation change progressivement. Le fait important est la séparation du liquide en gouttes; le rôle de la tension superficielle apparaît nettement. Ces gouttes peuvent ou non être le siège de mouvements convectifs.

En conclusion, il apparaît que des phénomènes complexes sont mis en évidence par l'expérience; nous avons pu en donner une explication satisfaisante.

#### References

- 1. Cf. notamment, D. Avsec et M. Luntz, *Comptes Rendus*, 204, 420 (1937). G. Sabra, J. Fornazero et G. Mesnard, Phys. and Chem. of Liq., 5, 125 et 267 (1976).
- 2. A. T. Ahmed El-Haddad, J. Fornazero et G. Mesnard, Phys. and Chem. of Liq., 1979.
- 3. C. S. Herrick, Proc. R. Soc. Lond., A 336, 487-494 (1974).
- A. Kip, Phys. Rev., 54, 139 (1938).