01;03

Капиллярные колебания и неустойчивость по отношению к поверхностному заряду тонкой пленки вязкой жидкости на твердой подложке

© Д.Ф. Белоножко, А.И. Григорьев, С.О. Ширяева

Ярославский государственный университет,
150000 Ярославль, Россия

(Поступило в Редакцию 16 июня 1997 г.)

При численном анализе дисперсионного уравнения, описывающего капиллярные движения в тонком слое вязкой поверхносто заряженной жидкости с учетом влияния флуктуационных сил получено, что критические условия неустойчивости свободной поверхности жидкости при фиксированной толщине d жидкой пленки в области существенного влияния флуктуационных сил ($d < 100$ nm) сильно зависят от волнового числа и не зависят от вязкости жидкости, флуктуационные силы существенно сказываются на величине волнового числа наиболее неустойчивой длины волны и снижают величину инкремента неустойчивости, капиллярные движения жидкости допускают аналогию с гравитационно-капиллярным движением и могут рассматриваться, как флуктуационно-капиллярные.

Неустойчивость заряженной поверхности (неустойчивость Тонкса–Френкеля (НТФ)) тонкой жидкой пленки на твердой подложке встречается во многих академических, технических и технологических задачах: задача об устойчивости водяного слоя на поверхности ледяного ядра (тающей градины) в грозовом облаке или в жидкостном масс-спектрометре вакуумного типа; проблема устойчивости слоя жидкого металла в жидкометаллических источниках ионов, где имеет место электродиспергирование с боковой поверхности иглы эмиттера, по которой подается жидкий металл (см., например, [1–3]). Капиллярные колебания и НТФ жидкости конечной глубины неоднократно исследовались ранее [1–7]. Однако ценность имеющихся результатов, в особенности асимптотических переходов к тонкому слою [7], заметно снижается применительно к пленкам толщины $d \leqslant 100$ nm. Как показано в [5], для такой пленки необходимо учитывать межмолекулярное взаимодействие жидкости с твердой подложкой, приводящее к возникновению дополнительного, так называемого расклинивающего давления, быстро растущего с утоньшением жидкого слоя $\sim d^{-r}$ $(3 \leqslant r \leqslant 4)$, обусловленого действием сил флуктуационной природы. Правомерно ожидать изменения критических условий реализации НТФ для такой системы [8]. В имеющихся работах, посвященных НТФ [3,6,7,9], расклинивающим давлением пренебрегалось или же анализ электрогидродинамической неустойчивости проводился на модели идеальной жидкости [8].

1. Будем решать задачу о расчете спектра капиллярных волн на граничащей с вакуумом плоской заряженной поверхности идеально проводящего жидкого слоя толщины d, плотности ρ, вязкости ν, с коэффициентом поверхностного натяжения γ в поле тяжести $\mathbf{g}$ и в электростатическом поле. Верхняя среда обладает диэлектрической проницаемостью ε. Напряженность электрического поля $\mathbf{E}$ у поверхности жидкости определяется разностью потенциалов между электродами: нижним, расположенным при $z = -d$, на котором лежит слой жидкости, поддерживающийся при потенциале $\Phi_1 = 0$, и параллельным ему противоэлектродом, отстоящим от поверхности жидкости на b, имеющим потенциал $\Phi_2 = V$.

Пусть в декартовой системе координат с осью z, направленной вертикально в верх $\mathbf{n}_z \parallel -\mathbf{g}$ ($\mathbf{n}_z$ — орт декартовой координаты z), ось x определяет направление движения плоской капиллярной волны $\sim \exp(st + ikx)$, а плоскость $z = 0$ совпадает со свободной невозмущенной поверхностью жидкости (s — комплексная частота, k — волновое число, t — время, i — мнимая единица). Пусть функция $\xi(x,t) = \xi_0 \exp(st + ikx)$ описывает малое возмущение равновесной плоской поверхности жидкости, вызванное тепловым капиллярным волновым движением весьма малой ($\xi_0 \sim (kT/\gamma)^{1/2}$) амплитуды; k — постоянная Больцмана; T — абсолютная температура. Поле скоростей $\mathbf{U}(\mathbf{r},t)$ движения жидкости, вызванное возмущением $\xi(x,t)$, имеет тот же порядок малости.

Современные представления о природе расклинивающего давления не имеют строгого теоретического обоснования и не допускают универсального аналитического описания феномена. Претендуя лишь на качественную оценку степени влияния этого явления на НТФ, ограничимся рамками модели расклинивающего давления, которое на возмущенной поверхности $\xi(x,t)$ связано с толщиной деформированного слоя зависимостью

$$P_d = \frac{A}{(d+\xi)^3},$$

что соответствует теоретической модели [5]. Значение константы $A \simeq 10^{-13}$ erg определено лишь по порядку величины. Для линеаризации задачи следует использовать линейное по ξ разложение P_d в окрестности $z=0$

$$z=0: \quad P_d = P_{d0} + P_{d1},$$

$$P_d = \frac{A}{d^3}, \quad P_{d1} = -\frac{3A}{d^4}\xi. \tag{1}$$

Линеаризованная система уравнений гидродинамики вязкой жидкости имеет вид

$$\frac{\partial \mathbf{U}}{\partial t} = -\frac{1}{\rho}\boldsymbol{\nabla} P(\mathbf{U}) + \nu\Delta\mathbf{U} + \mathbf{g}, \quad \operatorname{div}\mathbf{U} = 0, \qquad (2), (3)$$

$$z=-d: \quad \mathbf{U}=0, \tag{4}$$

$$z=0: \quad -\frac{\partial\xi(x,t)}{\partial t} + U_z = 0, \tag{5}$$

$$\mathbf{n}(\boldsymbol{\tau}\boldsymbol{\nabla})\mathbf{U} + \boldsymbol{\tau}(\mathbf{n}\boldsymbol{\nabla})\mathbf{U} = 0, \tag{6}$$

$$-P(\mathbf{U}) + \rho g\xi + 2\rho\nu\mathbf{n}(\mathbf{n}\boldsymbol{\nabla})\mathbf{U} - P_{d1}(\xi) - P_E(\xi) + P_\sigma(\xi) = 0, \tag{7}$$

где $P(\mathbf{U})$, $P_E(\xi)$, $P_\sigma(\xi)$ — добавки к гидростатическому, электростатическому и давлению сил поверхностного натяжения, вызванные возмущением поверхности ξ, имеющие первый порядок малости по ξ [10,11]; P_{d1} определено (1); $\mathbf{n}$ и $\boldsymbol{\tau}$ — единичные вектора нормали и касательной к поверхности жидкости.

Электрические потенциалы в жидкости Φ_1 и во внешней среде Φ_2 удовлетворяют уравнениям Лапласа

$$\Delta\Phi_i = 0 \quad (i=1,2) \tag{8}$$

с граничными условиями

$$z=-d: \quad \Phi_1 = 0, \tag{9}$$

$$z=b: \quad \Phi_2 = V, \tag{10}$$

$$z=\xi: \quad \Phi_1 = \Phi_2. \tag{11}$$

2. Решение задачи проводилось способом, подробно изложенным в [10], — разделение поля скоростей $\mathbf{U} = \mathbf{U}(\mathbf{r},t)$ на две компоненты: потенциальную (с потенциалом скоростей $\varphi(\mathbf{r},t)$) и вихревую (описываемую функцией тока $\Psi(\mathbf{r},t)$)

$$U_x = \frac{\partial\varphi}{\partial x} - \frac{\partial\Psi}{\partial z}, \tag{12}$$

$$U_z = \frac{\partial\varphi}{\partial z} + \frac{\partial\Psi}{\partial x}. \tag{13}$$

В итоге получаются скалярные уравнения относительно φ и Ψ

$$\frac{\partial\Psi}{\partial t} - \nu\Delta\Psi = 0, \tag{14}$$

$$\Delta\varphi = 0 \tag{15}$$

и выражение для $P(\mathbf{r},t)$

$$P(\mathbf{U}) = -\rho\frac{\partial\varphi}{\partial t} - \rho g z. \tag{16}$$

Подстановка (12), (13) в (2)–(7) приводит к граничным условиям относительно φ и Ψ

$$z=-d: \quad \frac{\partial\varphi}{\partial x} - \frac{\partial\Psi}{\partial z} = 0, \tag{17}$$

$$\frac{\partial\varphi}{\partial z} + \frac{\partial\Psi}{\partial x} = 0, \tag{18}$$

$$z=0: \quad \frac{\partial\xi}{\partial t} = \frac{\partial\varphi}{\partial z} + \frac{\partial\Psi}{\partial x}, \tag{19}$$

$$2\frac{\partial^2\varphi}{\partial x\partial z} + \frac{\partial^2\Psi}{\partial x^2} - \frac{\partial^2\Psi}{\partial z^2} = 0; \tag{20}$$

$$\rho\frac{\partial\varphi}{\partial t} + \rho g\xi + 2\rho\nu\left\{\frac{\partial^2\varphi}{\partial z^2} - \frac{\partial^2\Psi}{\partial x\partial z}\right\}$$

$$- P_{d1}(\xi) - P_E(\xi) + P_\sigma(\xi) = 0. \tag{21}$$

Система уравнений (14)–(16) с граничными условиями (17)–(21) представляет гидродинамическую часть задачи в скаляризованном виде. Электрическая часть задачи (8)–(11) решается методами классической электродинамики, и несложно показать [12], что

$$P_E(\xi) = Wk\xi\operatorname{cth}(kb), \quad W = \frac{\varepsilon E_0^2}{4\pi}, \quad E_0 \equiv V/b.$$

Параметр W пропорционален поверхностной плотности заряда на невозмущенной поверхности. Выражение для добавки к давлению сил поверхностного натяжения P_σ имеет в линейном по ξ приближении вид [10]

$$P_\sigma(\xi) \approx -\sigma\frac{\partial^2\xi}{\partial x^2}.$$

3. Ограниченные, периодические по x решения системы (14), (15) в выбранной системе координат будем искать в форме

$$\varphi = \big(C_1\operatorname{sh}(mz) + C_2\operatorname{ch}(mz)\big)\exp(st-ikx), \tag{22}$$

$$\Psi = \big(C_3\operatorname{sh}(qz) + C_4\operatorname{ch}(qz)\big)\exp(st-ikx), \tag{23}$$

где C_1, C_2, C_3, C_4, s — комплексные величины.

Подстановка (22), (23) в граничные условия (17)–(21) приводит к однородной системе пяти линейных алгебраических уравнений относительно неизвестных констант C_1, C_2, C_3, C_4, ξ_0

$$GC_1 + 2\rho\nu qC_3 + F\xi_0 = 0,$$

$$2\rho\nu kC_2 + GC_4 = 0,$$

$$-C_1\operatorname{sh}(kd) + C_2\operatorname{ch}(kd) - C_3\operatorname{sh}(qd) + C_4\operatorname{ch}(qd) = 0,$$

$$kC_1\operatorname{ch}(kd) - kC_2\operatorname{sh}(kd) + qC_3\operatorname{ch}(qd) - qC_4\operatorname{sh}(qd) = 0,$$

$$C_2 + C_4 - s\xi_0 = 0,$$

где

$$G \equiv \frac{\rho\nu}{k}(k^2+q^2), \quad q^2 \equiv k^2 + s/\nu,$$

$$F \equiv \rho g + \frac{3A}{d^4} + \gamma k^2 - Wk\operatorname{cth}(kb).$$

Необходимым и достаточным условием существования нетривиального решения полученной системы уравнений является равенство нулю ее определителя, составленного из коэффициентов, стоящих при искомых величинах C_i и ξ_0,

$$\begin{vmatrix} G & 0 & 2\rho\nu q & 0 & F \\ 0 & 2\rho\nu q & 0 & G & 0 \\ -\operatorname{sh}(kd) & \operatorname{ch}(kd) & -\operatorname{sh}(qd) & \operatorname{ch}(qd) & 0 \\ k\operatorname{ch}(kd) & -k\operatorname{sh}(kd) & q\operatorname{ch}(qd) & -q\operatorname{sh}(qd) & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 1 & -s \end{vmatrix} = 0.$$

Это условие дает дисперсионное отношение для спектра капиллярных движений жидкости в анализируемой системе, которое в безразмерных переменных, в которых $\rho = \gamma = d = 1$, имеет вид

$$4qk^2(k^2+q^2) + (k^2+q^2)^2 \times \big(k\operatorname{sh}(k)\operatorname{sh}(q) - q\operatorname{ch}(k)\operatorname{ch}(q)\big) + 4k^3q\big(q\operatorname{sh}(k)\operatorname{sh}(q) - k\operatorname{ch}(k)\operatorname{ch}(q)\big) - \frac{Z(k,W)}{\nu^2}\big(q\operatorname{ch}(q)\operatorname{sh}(k) - k\operatorname{ch}(k)\operatorname{sh}(q)\big) = 0,$$

$$q^2 \equiv k^2 + s/\nu,$$

$$Z(k,W) \equiv kg + 3Ak + k^3Wk^2 \operatorname{cth}(kb). \qquad (24)$$

Здесь за всеми безразмерными величинами, измеряемыми в единицах своих характерных масштабов, $g_* = \gamma/\rho d$, $A_* = \gamma d$, $\nu_* = \sqrt{\gamma d/\rho}$, $k_* = 1/d$, $s_* = \sqrt{\rho d/\gamma}$, $W_* = \gamma/d$, $b_* = d$ сохранены прежние обозначения.

4. Уравнение (24) отличается от дисперсионного уравнения подобной же задачи без учета расклинивающего давления [12] лишь определением параметра $Z(k,W)$, и несложно заметить, что ему присущи многие аналогичные свойства. Так, из свойств гиперболических функций [13,14] следует, что если (k,q) — решение (22), то $(k,-q)$ и (k,q) — также решения (24) ($\mathbf{q}$ — величина, комплексно сопряженная q). Простейшими очевидными решениями (24) являются $s = 0$ $(q = k)$ и $s = -\nu k^2$ $(q = 0)$. Все решения дисперсионного уравнения (24) определены на верхнем листе римановой поверхности и теоретически могут быть наблюдаемы.

5. Критерием проявления НТФ системы является условие $Z(k,W) < 0$ [10,11]

$$Z(k,W) \equiv kg + 3Ak + k^3 - Wk^2 \operatorname{cht}(kb) < 0.$$

Очевидно, уравнение $Z(k,W) = 0$ описывает в координатах (k,W) границу между устойчивыми $(Z(k,W) \geqslant 0)$ и неустойчивыми $(Z(k,W) < 0)$ состояниями системы. На рис. 1 и 2 представлены кривые, соответствующие границе устойчивости при различных значениях расстояния до верхнего электрода b соответственно с учетом и без учета расклинивающего давления. Видно, что при длине волны $\lambda < 10\,\mathrm{d}$ критические условия практически

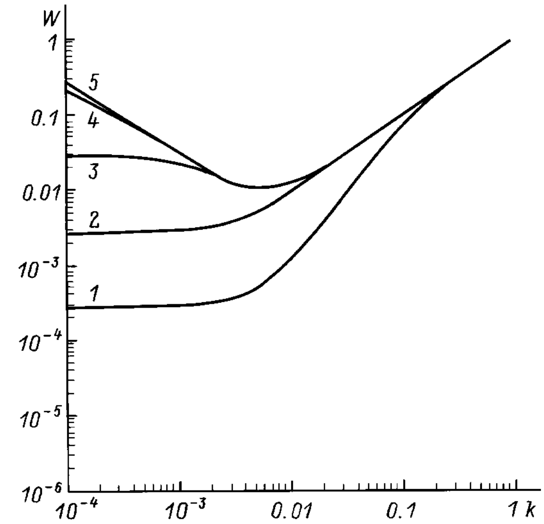

Рис. 1. Граница устойчивости заряженной свободной поверхности жидкости $(Z(k,W) = 0)$ при учете флуктуационных сил: $A = 10^{-5}$, $g = 10^{-9}$; b: *1* — 10, *2* — 10^2, *3* — 10^3, *4* — 10^4, *5* — 10^5.

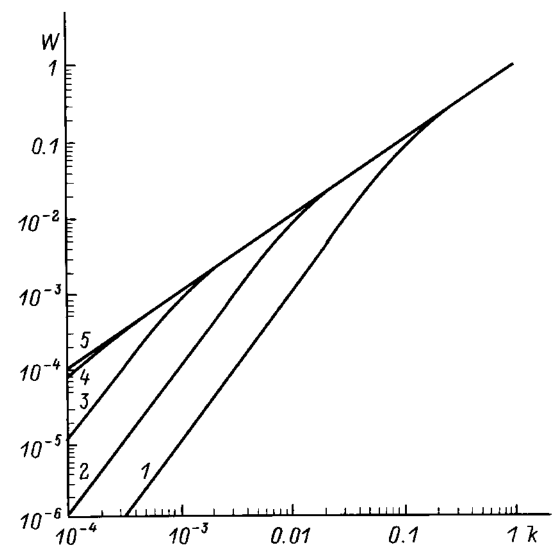

Рис. 2. Граница устойчивости заряженной свободной поверхности жидкости $(Z(k,W) = 0)$ без учета флуктуационных сил при $g = 10^{-9}$: *1–5* — то же, что и на рис. 1.

не зависят от флуктуационных сил. Наличие расклинивающего давления существенно сказывается на критических условиях неустойчивости свободной поверхности лишь в области длин волн, значительно превышающих толщину пленки, но именно в этом случае, как видно из рисунков, критические условия в представленной постановке оказываются в сильной зависимости от геометрии системы, характеризуемой безразмерным параметром b. Из рис. 1 и 2 следует, что в рассмотренных ситуациях влияние флуктуационных сил на критические условия НТФ следует исследовать при значениях волновых чисел $k < 0.01$.

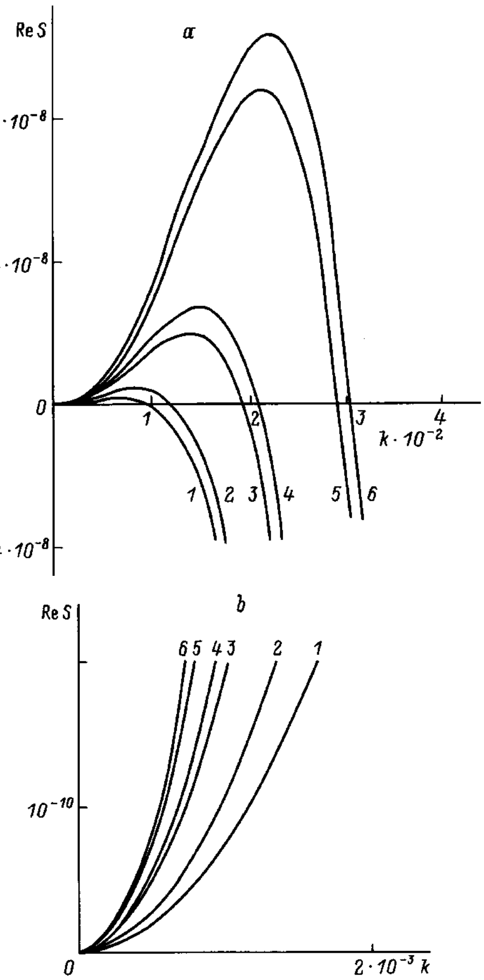

Рис. 3. Зависимости вещественной компоненты обезразмеренной частоты $\mathrm{Re}\,s$ от безразмерного волнового числа k при $\nu = 0.3$, $b = 100$, $A = 10^{-5}$, $g = 10^{-9}$, W: *1, 2* — 10^{-2}; *3, 4* — $2 \cdot 10^{-2}$; *5, 6* — $3 \cdot 10^{-2}$; *a* — в малом масштабе, *b* — левая часть в большем масштабе.

Для качественного исследования влияния расклинивающего давления на неустойчивость тонких пленок представляет интерес рассмотреть две ситуации: когда длина возбуждаемой волны сравнима с расстоянием до верхнего электрода $\lambda \simeq b$ и случай $b \gg \lambda$. При $k \simeq 0.01$ для моделирования этих двух ситуаций выбирались значения $b = 10^2$ и 10^5 соответственно. Результаты численного исследования уравнения (24) представлены на рис. 3 и 4 в виде зависимостей действительной части безразмерной частоты $\mathrm{Re}\,s$ от безразмерного волнового числа k при различных значениях параметра W. Ветви капиллярных движений, приведенные на этих рисунках, характеризуют поведение корней дисперсионного уравнения (24), связанных с апериодической неустойчивостью жидкой пленки. Ветви с нечетными номерами рассчитаны при существенном вкладе флуктуационных сил: а с четными — в отсутствие влияния таковых ($A = 0$). Рис. 3 и 4 позволяют сравнить характер влияния расклинивающего давления на НФТ при $b = 100$ и 10^5.

Из рисунков видно, что в обоих случаях учет флуктуационных сил приводит к уменьшению интервала волновых чисел неустойчивых длин волн со стороны больших k на величину, определяемую параметром W. Волновое число наиболее неустойчивой длины волны при учете расклинивающего давления уменьшается, что особенно заметно для ветвей *1* и *2* на рис. 3, 4, которые построены при меньших значениях W. Заметно снижается и максимальное значение инкремента неустойчивости.

Рис. 3, *b* и 4, *a* показывают в более крупном масштабе левую часть рис. 3, *a* и 4, *a* соответственно, демонстрируя, что учет расклинивающего давления в системе с параметром $b \gg \lambda$ ограничивает диапазон k неустойчи-

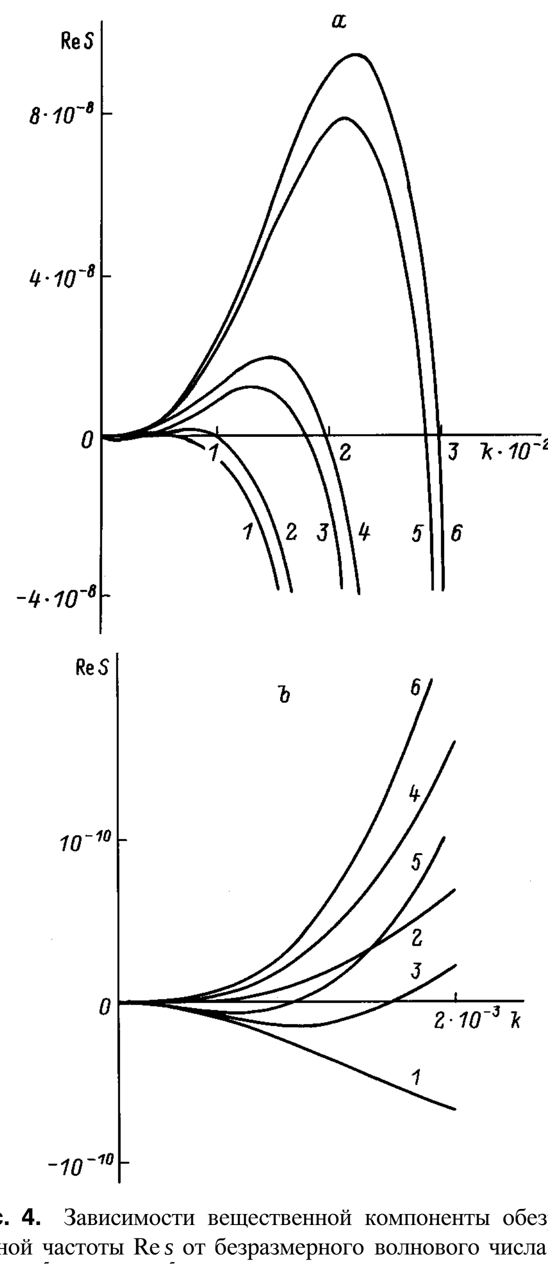

Рис. 4. Зависимости вещественной компоненты обезразмеренной частоты $\mathrm{Re}\,s$ от безразмерного волнового числа k при $b = 10^5$, $A = 10^{-5}$. Остальные параметры те же, что и на рис. 3; *a* — в малом масштабе, *b* — левая часть *a* в большем масштабе.

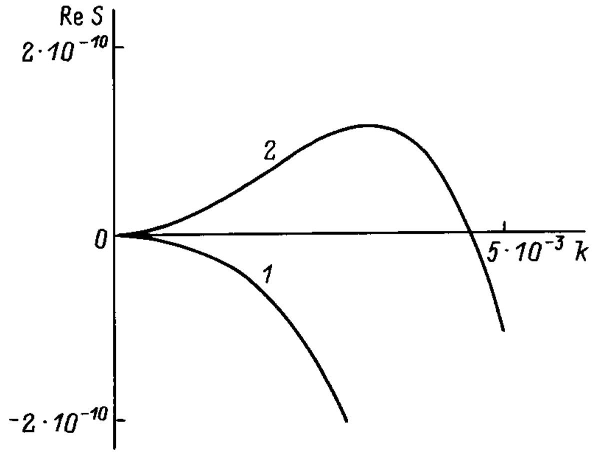

Рис. 5. Зависимости вещественной компоненты обезразмеренной частоты $\mathrm{Re}\, s$ от безразмерного волнового числа k с учетом (*1*) и без учета (*2*) флуктуационных сил при $\nu = 0.3$, $b = 100$, $A = 10^{-5}$, $g = 10^{-9}$, $W = 2 \cdot 10^{-3}$.

вых длин волн еще и со стороны малых волновых чисел. Это ограничение особенно заметно при $W = 2 \cdot 10^{-2}$ (ветвь *3* на рис. 4, *a*). При $W \leqslant 10^{-2}$ в системе с $b \gg \lambda$ благодаря флуктуационным силам движения жидкой пленки устойчивы во всем диапазоне значений k (рис. 1, 4, *a* и *b*). Подобный результат уже упоминался в работе [7], в которой, однако, не учитывалось влияние расклинивающего давления, а описываемый эффект обусловливался наличием в определении $Z(k, W)$ слагаемого gk, учитывающего влияние поля сил тяжести. Однако при выбранном обезразмеривании для реальных жидкостей безразмерное значение $g \simeq 10^{-9}$ на несколько порядков меньше безразмерного значения параметра $A = 10^{-5}$, тогда как в определение $Z(k, W)$ из (24) входит сумма $kg + kA$. Можно заключить, что эффекты, вызываемые в "толстых" пленках (в которых можно пренебрегать флуктуационными силами) полем **g**, имеют свои аналоги в случае тонких пленок, но обусловленные уже не гравитационными, а флуктуационными силами. Поэтому волновое движение в тонких пленках правильнее называть флуктуационно-капиллярным и говорить о неустойчивости флуктуационно-капиллярных волн, как в случае гравитационно-капиллярных аналогов.

Из рис. 1 можно заключить, что при $W = 2 \cdot 10^{-3}$ и $\lambda \simeq b$ флуктуационные силы также могут обеспечить устойчивость движения в рассматриваемой системе при всех возможных значениях волновых чисел в отличие от ситуации, когда влиянием расклинивающего давления пренебрегается. Этот вывод подтверждается численными расчетами по уравнению (24), представленными на рис. 5. При указанном значении W и учете расклинивающего давления наблюдаются лишь апериодические движения (ветвь *2*), в то время как отсутствие флуктуационных сил приводило бы к апериодической неустойчивости (ветвь *1*).

Заключение

Флуктуационные силы оказывают значительное влияние на устойчивость и капиллярные движения жидкости с длиной волны $\lambda \gg d$ на заряженной поверхности жидкой пленки толщины $d \leqslant 100$ nm. Характер проявления такого влияния зависит от величины безразмерного параметра b. При $b \simeq \lambda$ и фиксированном W влияние расклинивающего давления проявляется в снижении критического значения k, при котором движение в системе становится устойчивым, уменьшении значения k, соответствующего наиболее неустойчивой длине волны, снижении максимальной величины инкремента неустойчивости. Если $b \gg \lambda$ в дополнение к указанным эффектам, то наблюдается ограничение диапазона значений k неустойчивых гармоник со стороны весьма малых волновых чисел. Флуктуационные силы обеспечивают устойчивость капиллярных движений в жидкой пленке при значениях параметра $W \leqslant 10^{-2}$ в случае $\lambda \ll d$ и при $W \leqslant 10^{-3}$, когда $b \simeq \lambda$. Движение жидкости в тонких пленках следует считать флуктуационно-капиллярным. Феномен флуктуационно-капиллярного движения допускает аналогию с гравитационно-капиллярными явлениями.

Список литературы

[1] *Габович М.Д.* // УФН. 1983. Т. 140. № 1. С. 137–151.
[2] *Bailey A.G.* // Atomisation and Spray Technology. 1986. Vol. 2. P. 95–134.
[3] *Григорьев А.И., Ширяева С.О.* // Изв. РАН. МЖГ. 1994. № 3. С. 3–22.
[4] *Дерягин Б.В.* Теория устойчивости коллоидов и тонких пленок. М.: Наука, 1986. 205 с.
[5] *Френкель Я.И.* Кинетическая теория жидкости. Л.: Наука, 1975. 592 с.
[6] *He J., Miskovsky N.M., Citler P.H, Chung M.* // J. Appl. Phys. 1990. Vol. 68. N 4. C. 1475–1482.
[7] *Surgy N.C., Chabrerie J.-P., Denoux O., Wesfreid J.E.* // J. Phys. II France. 1993. Vol. 3. N 8. P. 1201–1225.
[8] *Grigor'ev A.I., Munichev M.I., Shiryaeva S.O.* // J. Coll. Int. Sci. 1994. N 166. P. 267–274.
[9] *Лазарянц А.Э., Григорьев А.И.* // ЖТФ. 1990. Т. 60. Вып. 6. С. 29–36.
[10] *Левич В.Г.* Физико-химическая гидродинамика. М.: Физматгиз, 1959. 699 с.
[11] *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1992. 661 с.
[12] *Белоножко Д.Ф., Григорьев А.И., Муничев М.И., Ширяева С.О.* // Письма в ЖТФ. 1996. Т. 22. Вып. 10. С. 84–89.
[13] *Бронштейн И.Н., Семендяев К.А.* Справочник по математике для инженеров и учащихся втузов. М.: Наука, 1980. 976 с.
[14] *Григорьев А.И., Григорьев О.А., Ширяева С.О.* // ЖТФ. 1992. Т. 62. Вып. 9. С. 12–21.