

静电场驱动下液体薄膜的几何形状*

E·M·田, T·P·斯沃博德内, J·D·菲利普斯

(莱特州立大学 数学与统计学院,代顿,俄亥俄州 45435 美国)

摘要: 利用六边形-俯视图的弱非线性稳定性分析和数值仿真,在电场作用下,研究高分子薄膜表面静态模式的发展过程.在无限空间域上,空间和高分子薄膜之间的界面,由薄膜方程给出其随时间的演变,综合考虑了电力的驱动和表面张力的传播.非线性界面的增长包括:波幅方程的增长,以及在准对规律方向上,一维结构的叠合.模式的选择由亚临界不稳定性机理确定,高分子薄膜的相对厚度在其中起着决定性的作用.

关键词: 薄膜; 模式的形成; 电流体动力学不稳定性

中图分类号: O357.1 文献标志码: A

DOI: 10.3879/j.issn.1000-0887.2011.08.008

引言

在现代平版印刷术的自感应组装工艺中,电流体动力学(EHD)的不稳定性起着决定性的作用^[1-2].在亚微米的长度数量级上,在导向性的形成中,将横向结构复制到高分子薄膜的表面上.在一个平坦的硅质基层上,覆盖着一层光滑的高分子薄膜,薄膜上方放置一个没有图案的屏蔽罩.在基层和屏蔽罩上外加一个电场,产生一个驱动力,用来平衡薄膜界面上的表面张力,出现一个长波长的扰动.在相似的临界值下,出现了这样的不稳定性,常在界面上观察到一个六边形次序为特征^[2-3]的决定性模式.在模式形成的早期阶段,重力、分子引力和斥力的影响无关紧要,因此在该模型中忽略不计^[3].其物理构造可以用图1表示.

大量的分析成果是探究这种令人惊奇现象的机理^[4-11].线性稳定性分析发现,空隙与薄膜层之间的厚度比 ξ ,在确定界面模式中起着决定性作用^[12-14].在电场驱动下的薄膜,绝对是不稳定的,在所有可能的二维模式中,六边形模式占有增长率优势(见文献[3]).

Tian 应用一维弱非线性稳定性分析,找到了可以清楚地看到模式时 ξ 值的范围^[9].本文深入地研究出现六边形模式的条件,并检查该模式出现后,这种特殊的、周期性几何形状的稳定性.文中用到的方法论是二维的、六边形-俯视图弱非线性稳定性分析.在上世纪60年代,

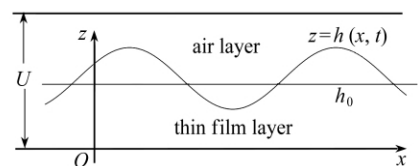


图1 物理构造: 常电位作用下,两基层之间涂上一层薄膜

Fig. 1 The physical configuration of thin film coated in between two substrates, with a constant electric potential applied

* 收稿日期: 2011-01-17; 修订日期: 2011-05-24

作者简介: Emily M. Tian, 副教授, 博士(联系人. E-mail: etian@math.wright.edu).

本文原文为英文,黄雅意译,张禄坤校.

研究热对流过程的六边形单元,是由 Segel 等^[15-17],Busse^[18]和 Palm^[19]等提出来的。后来被成功地应用到界面的研究中,如形成合金凝固图案、形成“图灵机”图案、形成自然薄膜图案等等^[20-22]。

由于弱非线性相互作用,出现在一个不稳定的基本 Fourier 方式和一个稳定的二谐波之间,初始激励的指数增长,迅速地被非线性影响所抑制,同时,有限次谐波的波数达到一个临界值。一个调整的非线性修正项,取代了线性的指数增长;长波长的波动,从而被慢慢地演化成相对稳定的二维特征。这样的周期性有限波幅的扰动,能够带走临界波数附近的波,出现一个统一的波特特性场,显现在表面上方。规则的有限波幅模式是长时间固定的。当波幅最终接触到上方带电的基层时,分子力开始影响界面的几何形状,同时,由于子谐波的不稳定性,邻近的波在断断续续位置上结合,在其他的统一波场中,造成缺失的碎片^[3, 23]。当 $t \rightarrow \infty$, 出现在表面上的模式将渐渐地结合在一起,并遭受到“熵的丢失”;然而,本研究聚焦在重要的中间时段,即六边形占支配地位的时期。

就长波长来说,薄膜厚度 $z = h(x, y, t)$ 随时间和空间的变化,可以由下面的薄膜方程来描述^[20, 24]:

$$3\mu \frac{\partial h}{\partial t} - \nabla \cdot [h^3 \nabla P] = 0, \quad (1)$$

在该方程中, μ 为聚合体材料的粘度常数, P 为界面上的压力分布。在我们的模型中,压力 P 包括大气压、表面张力和静电力^[9, 25-26]:

$$P = p_0 - \gamma \nabla^2 h - \frac{\epsilon_0 \epsilon_p (\epsilon_p - 1) U^2}{2 [\epsilon_p d - (\epsilon_p - 1) h]^2}, \quad (2)$$

其中, ϵ_0 为真空的介电常数, ϵ_p 为高分子薄膜的介电常数, γ 为表面张力系数, U 为常静电势, d 为两基层之间的距离。

对薄膜的长度和层厚,引入初始平均厚度 h_0 ,同时引入时间比例尺 $\mu h_0^2 / (\epsilon_0 U^2)$,将控制方程变为无量纲形式:

$$\frac{\partial H}{\partial t} + \alpha \nabla \cdot [H^3 \nabla (\nabla^2 H)] + \beta \nabla \cdot [H^3 (\epsilon_p \xi + \epsilon_p - (\epsilon_p - 1) H)^{-3} \nabla H] = 0, \quad (3)$$

其中, $\alpha = \gamma d / [3\epsilon_0 U^2 (\xi + 1)] > 0$, $\beta = \epsilon_p (\epsilon_p - 1)^2 / 3 > 0$ 。参数 $\xi = (d - h_0) / h_0$ 为空隙与薄膜的厚度比, ξ 值越大,表示空隙越大,因此,静电驱动力越弱,被认为不稳定性越弱。

在方程(3)的线性分析中,认为 H 在形式为 $H(x, t) - 1 \sim f(x, t) = A(t) \cos(kx)$ 中扰动,用 $dA/dt \sim \sigma A$ 描述其波幅函数,其中线性增长率 σ 如下给出:

$$\sigma = \beta (\epsilon_p \xi + 1)^{-3} k^2 - \alpha k^4. \quad (4)$$

临界波数 k_c 使线性增长率 σ 从正值向负值转变,由方程(4),可以确定如下:

$$k_c(\xi) = \sqrt{\frac{\beta}{\alpha (\epsilon_p \xi + 1)^3}}, \quad (5)$$

其中, ξ 与 α , β 和 ϵ_p 一样,为控制参数,并保持不变^[9]。

当增长率 σ 取正值时,根据线性理论,波幅 $A(t)$ 将随时间呈指数增长。实验观测显示,在一段较长的时间后,将得到一个简单,且高度规则的六边形模式。这种规律性是无法由线性指数增长理论得到的,必须考虑非线性的影响。希望通过模型方程的二维分析,对 ξ 在模式的形成和选择机理中的作用,提供一套完整的分析。

一维的弱非线性研究,归结为界面扰动这单一因素,增长率分析^[9]可以通过下面的波幅

方程来考虑:

$$\frac{dA}{dt} \sim \sigma A - a_1 A^3 = -\frac{\partial V}{\partial A}, \tag{6}$$

其中

$$V = -\frac{1}{2}\sigma A^2 + \frac{1}{4}a_1 A^4 \tag{7}$$

表示波数 k 时的势能 σ 为其线性增长率, Landau 常数 a_1 衡量非线性对其的影响. 当势能 V 达到最小值, 波幅 A 达到非平凡平衡 $A_c^2 = \sigma/a_1$, 当 $\sigma/a_1 > 0$ 时为超临界稳定, 或者, 当 $\sigma/a_1 < 0$ 时为亚稳定. 事实上, 由于 Landau 常数 a_1 通常为负值, 正如文献 [9] 中所指出的, 由于扰动, 初始平面界面 (当 $A = 0$ 时) 通常是不稳定的, 因为开始阶段线性增长率 σ 为正值, 驱使高分子薄膜从不稳定平衡 $A = 0$ 增长到下一个平衡 $A_c^2 = \sigma/a_1$, 这里的 σ 转变成为负值. 由于 $a_1 < 0$, 亚稳定性继续驱使一维结构, 使波幅 A_c 呈现出二维的特征^[3, 20, 27]. Tian^[9] 预测, 当厚度比 ξ 在 0.6 ~ 1 之间时, 出现最多的可分辨波 (临界长度 $\lambda_c = 2\pi/k_c$), 取文献 [8, 14] 中所使用的典型数值: $\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12} \text{ C}^2/\text{Nm}^2$, $U = 70 \text{ V}$, $\epsilon_p = 2.5$, $\gamma = 3.8 \text{ mN/m}$, $d = 100 \text{ nm}$.

1 六边形单元的选择及其发展

若界面扰动 $H - 1 \sim f(x, y, t) = A(t) \cdot g(x, y)$ 满足

$$g(x, y) = \cos[kx] + \cos\left[\frac{k}{2}(x + \sqrt{3}y)\right] + \cos\left[\frac{k}{2}(x - \sqrt{3}y)\right] = \cos[kx] + 2\cos\left[\frac{k}{2}x\right]\cos\left[\frac{\sqrt{3}k}{2}y\right], \tag{8}$$

则界面上出现明显的六边形特征, 如图 2 所示.

结果成为 3 个相互作用的、平面高低起伏的、六边形外貌的模式. 起伏结构朝着夹角彼此为 $2\pi/3$ 的 3 个方向传播. 用 3 个波矢量 $k_i (i = 1, 2, 3)$ 来表示这 3 个高低起伏结构; 其大小 $|k_i|$ 均取其临界波数 k_c , 其线性增长率 σ 趋于 0. 考虑到总波数相同, 对于这 3 个相互作用的扰动带, 假设给出线性理论相同的放大率^[16]. 通过寻求薄膜方程 (3) 的六边形-俯视图解, 可以发现非线性的相互作用, 其一阶形式满足:

$$H(x, y, t) - 1 \sim f(x, y, t) = A_1(t) \cos[k_c x + \phi_1(t)] + A_2(t) \cos\left[\frac{k_c}{2}(x + \sqrt{3}y) - \phi_2(t)\right] + A_3(t) \cos\left[\frac{k_c}{2}(x - \sqrt{3}y) - \phi_3(t)\right], \tag{9}$$

其中, A_i 为起伏的波幅, ϕ_i 为起伏的相位差, 它们都是相互作用引起的. 我们认为在模式形成过程中, 相位的变化非常细微, 从而, 所有的相位函数 ϕ_i 都可以取为 0. 于是知道, 六边形单元的出现, 即达到平衡, 3 个起伏的波幅方程满足关系式 $A_1 = A_2 = A_3$. 可以在方程 (9) 中自然地引入变换 $A_2 = A_3 = B_1/2$, 进一步将表面扰动函数 $f(x, y, t)$ 简化为

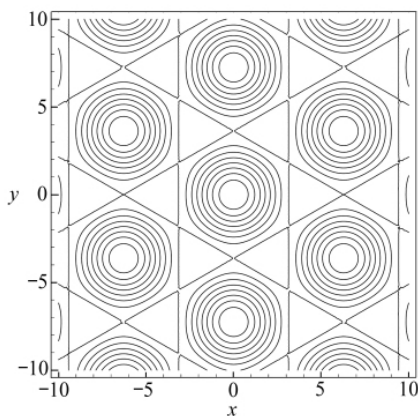


图 2 对称六边形的等值线视图
Fig. 2 Contour view of the hexagonal symmetry

$$f(x, y, t) = A_1(t) \cos(k_c x) + B_1(t) \cos\left(\frac{1}{2}k_c x\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_c y\right). \quad (10)$$

波幅 A_1 和 B_1 由下列方程所控制:

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dt} = \sigma A_1 - a_0 B_1^2 - A_1(a_1 A_1^2 + a_2 B_1^2), \\ \frac{dB_1}{dt} = \sigma B_1 - 4a_0 A_1 B_1 - B_1\left[2a_2 A_1^2 + \frac{1}{4}(a_1 + 2a_2) B_1^2\right], \end{cases} \quad (11)$$

其中, σ 和 a_1 与一维分析所给出的值相一致; a_0, a_2 为可计算系数, 也可以看作 Landau 常数. 对于方程(11)的更加详细情况, 可以参见 Scanlon^[15], Segel^[16] 和 Davis^[28] 的相关文献.

为了确保 dA_1/dt 和 dB_1/dt 关系 A_1 和 B_1 的幂次展开式收敛, 认为 A_1 和 B_1 值不大, 要求一次项和二次项系数 σ 和 a_0 也不大. 在这种情况下, 完全可以略去方程(11)的3阶及其更高阶的项.

非线性波幅的变化, 描绘出了高低起伏间的竞争及其六边形结构的形态, 形成一个相对稳定的模式. 作为竞争的结果, 允许波幅方程(11)有两个非平凡平衡:

(I) $A_1^2 = \sigma/a_1, A_2 = A_3 = 0$, 一个二维起伏特征(与一维起伏对应)的模式;

(II $^\pm$) $A_1 = A_2 = A_3 = \{-2a_0 \pm [4a_0^2 + (a_1 + 4a_2)\sigma]^{1/2}\}/(a_1 + 4a_2)$, 一个单独的、六边形包装的结构: 被压低的边界然后向着中心依次上升的“堆”(II $^+$), 或者, 被抬高的边界然后向中心依次下降的“坑”(II $^-$).

Landau 常数按 $a_0 = 0, a_2 = a_1$ 计算, 将界面函数 $f(x, y, t)$ ^[22] 的3阶展开式代入方程(3), 而 σ 和 a_1 仍保持与一维展开式相同; 特别地,

$$a_1(\xi) = \frac{3}{4}k_c^4 \alpha - \frac{3(\epsilon_p \xi + \epsilon_p)(\epsilon_p \xi + 2\epsilon_p - 1)\beta k_c^2}{4(\epsilon_p \xi + 1)^5} + \left(\frac{21}{2}k_c^4 \alpha - \frac{3k_c^2 \beta(\epsilon_p \xi + \epsilon_p)}{2(\epsilon_p \xi + 1)^4}\right) \frac{3\beta(\epsilon_p \xi + \epsilon_p) - 3k_c^2 \alpha(\epsilon_p \xi + 1)^4}{14k_c^2 \alpha(\epsilon_p \xi + 1)^4 - 2\beta(\epsilon_p \xi + 1)}. \quad (12)$$

形成稳定的轨道模式, 意味着平面中解集的成员能够彼此互换, 但是不能够从一个不同的解集增长或衰减^[21]到另一个解式. 每一个独立平衡状态(I)或(II $^\pm$)稳定条件的检查, 需要考虑这些平衡状态时, 波幅方程(11)右边函数的 Jacobi 矩阵的本征值.

假设波幅方程的二次项可以不计, 达到平衡状态(I)时, 方程(11)的 Jacobi 矩阵为

$$J = \begin{pmatrix} -2\sigma & 0 \\ 0 & \sigma - 2\frac{a_2\sigma}{a_1} \end{pmatrix},$$

其两个本征值为 $\lambda_1 = -2\sigma, \lambda_2 = -\sigma$. 考虑到演变至后面阶段时 $\sigma < 0$, 我们可以推断, 平衡状态(I)的两个本征值都是正的, 因此该平衡状态是不稳定的, 同时, 横向起伏的模式在线性增长后将进入衰减. 这个结果与一维分析的结论是一致的.

另一个平衡状态(II $^\pm$)的 Jacobi 矩阵为

$$J = \begin{pmatrix} \frac{-2a_1\sigma}{a_1 + 4a_2} & \frac{-4a_2\sigma}{a_1 + 4a_2} \\ \frac{-8a_2\sigma}{a_1 + 4a_2} & \frac{(-2a_1 - 4a_2)\sigma}{a_1 + 4a_2} \end{pmatrix},$$

其本征值为 $\lambda_1 = -2\sigma$ 和 $\lambda_2 = 2\sigma/5$; 因此 $\lambda_1 \cdot \lambda_2 < 0$, 平衡状态(II $^\pm$)为半稳定的鞍点. 当 σ

