

纳米尺度下气泡核化生长的分子动力学研究

张龙艳 徐进良 雷俊鹏

Molecular dynamics study of bubble nucleation on a nanoscale

Zhang Long-Yan Xu Jin-Liang Lei Jun-Peng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 234702 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180993

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180993>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I23>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[限位液滴瞬时失重自激振荡](#)

Self-excited oscillation of droplets on confined substrate with instantaneous weightlessness

物理学报.2015, 64(19): 196801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.196801>

[零质量射流激励下诱发液体相变及其格子 Boltzmann 方法模拟](#)

Phase transition in liquid due to zero-net-mass-flux jet and its numerical simulation using lattice Boltzmann method

物理学报.2014, 63(2): 024702 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.024702>

[高生长速度条件下的“层片↔棒状”共晶转变机理研究](#)

“Lamellar↔rod” transition mechanism under high growth velocity condition

物理学报.2013, 62(21): 216801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.216801>

[小攻角下三维细长体定常空化形态研究](#)

Cavitation shape of the three-dimensional slender at a small attack angle in a steady flow

物理学报.2013, 62(20): 204701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.204701>

[液滴在气固交界面变形移动问题的光滑粒子流体动力学模拟](#)

Numerical implementation of deformation and motion of droplet at the interface between vapor and solid surface with smoothed particle hydrodynamics methodology

物理学报.2012, 61(20): 204701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.204701>

纳米尺度下气泡核化生长的分子动力学研究*

张龙艳 徐进良† 雷俊鹏

(华北电力大学, 低品位能源多相流与传热北京市重点实验室, 北京 102206)

(2018年5月22日收到; 2018年9月5日收到修改稿)

采用分子动力学方法模拟纳米尺度下液体在固体壁面上发生核化沸腾的过程, 主要研究壁面浸润性对气泡初始核化过程和气泡生长速率的影响以及固-液界面效应在液体核化沸腾的能量传递过程中所起到的作用. 研究发现: 壁面浸润性越强, 气泡在固壁处越容易核化. 该结果与经典核化理论中“疏水壁面易于产生气泡”的现象产生了明显的区别. 其根本原因是在纳米尺度下, 固-液界面热阻效应不能被忽略. 一方面, 在相同的壁温下, 通过增强固-液相互作用, 可以显著降低界面热阻, 使得热量传递效率提高, 导致靠近壁面处的流体温度升高, 气泡核化等待时间缩短, 有利于液体沸腾核化. 另一方面, 气泡的生长速率随着壁面浸润性的增强而明显升高. 当气泡体积生长到一定程度时, 会在壁面处形成气膜, 从而导致壁面传热性能恶化. 因此, 通过壁面的热流密度呈现出先增大后减小的规律.

关键词: 纳米尺度, 气泡核化, 浸润性, 界面效应**PACS:** 47.55.dp, 44.35.+c, 68.08.-p, 02.70.Ns**DOI:** 10.7498/aps.67.20180993

1 引言

随着微纳米技术在不同领域中的广泛应用, 微纳设备中因高热流密度的产生而导致各种微纳器件的热管理问题成为亟待解决的核心难题. 工质核化相变原理因具有高效换热特性, 而作为一种理想方案被应用于微纳制造领域^[1-3]. 利用相变原理进行换热将导致气泡产生及两相流的形成. 因此, 对微纳尺度下流体的相变诱导气泡形核生长及脱离等现象的研究成为传热传质领域一项具有挑战性的研究课题. 深入研究其物理机制并优化微系统内部的热质传递过程, 是节约资源和提高能源利用效率的重要手段. 众所周知, 纳米尺度下固-液界面效应对微纳系统传热传质及工质相变现象具有显著影响. 已有研究^[4-6]发现, 在微米通道的单相流动中, 壁面浸润性影响固-液界面结构及流体原子与固体原子的黏附情况, 进而影响界面能量与动量的传递. 同时, 界面效应也会对纳米尺度相变过程

产生影响. 因此, 有必要对微纳设备中涉及的异质核化的机理及影响因素进行深入的分析与探讨.

壁面浸润性对于异质核化具有重要的影响, 根据经典核化理论, 表面沸腾中液体在光滑固体加热表面上形成气泡所需的活化能与过热度及表面接触角有关. 当壁面接触角越大时, 气泡核化所需的活化能越少, 发生沸腾的极限过热度越低. 此结论已被大量实验数据及理论分析证实. Bourdon等^[7]通过实验研究固体表面浸润性对池沸腾起始核化点的影响规律, 发现起始核化过热度随表面接触角的增大呈单调递减趋势. Jo等^[8]认为在低热流密度区域, 虽然疏水壁面更加有利于核化的发生, 但是临界热流密度(CHF)却很低. 此外, 异质浸润性壁面与均质浸润性壁面相比, 更有利于核化沸腾. Quan等^[9]对固壁上异质核化沸腾进行理论分析, 发现当近壁区液体存在温度梯度时, 在异质核化的初始核化阶段, 其临界核化半径随着接触角的增大而减小, 可以促进气泡核化. Xu和Qian^[10]采用范德瓦耳斯理论分析单气泡异质成核过程, 得到与之

* 国家自然科学基金(批准号: 51436004)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xjl@ncepu.edu.cn

类似的结论: 当壁面为均质浸润性时, 增大接触角或者过热度将促使气泡在加热壁面处膨胀扩展, 增大气泡脱离直径, 易于产生膜态沸腾. 在常规尺度范围, 传热传质以连续介质力学为理论依据, 而微观尺度则以纳米级微观粒子理论作为依据, 界面特性影响尤为突出, 使得微纳相变过程明显区别于常规尺度.

目前, 已有学者对微纳尺度的相变传热问题展开研究. 由于尺寸限制, 在纳米尺度下开展实验研究存在很大的困难, 而分子动力学方法直接面向原子层面, 是研究原子尺度物理现象的有效手段. 在均质核化方面, Kinjo 和 Matsumoto^[11]采用分子动力学方法研究负压情况下的气泡空化过程, 发现核化速率比经典核化理论预测值大 8 个数量级. Kimura 和 Maruyama^[12]研究平板上的异质核化规律, 模拟结果与经典核化理论预测的一致. Kinjo 等^[13]采用分子动力学方法研究受限微通道内流体的核化过程, 发现壁面浸润性导致流体出现 3 种不同的核化过程, 即弱吸附力壁面处的气膜形成过程、中等吸附力通道内的异质核化过程以及强吸附力通道内的均质核化过程. Mao 和 Zhang^[14]模拟气泡均质成核过程, 结果显示气泡生长规律与用 Raleigh-Plesset 方程预测的结果不一致. 研究发现采用经典核化理论预测的极限过热度、临界核化半径、核化速率及气泡生长速率等数据与纳米尺度下获取到的实验结果相比, 在某些情况下会相差很大的数量级^[15]. 目前学术界对于该问题产生的深层原因仍然没有统一的定论.

在异质核化方面, Nagayama 等^[16]认为气泡核化位置受壁面浸润性影响, 在亲水性微通道内发生均质核化, 气泡在主流液体区域产生; 在疏水性微通道内发生异质核化, 气泡在固体壁面处产生; 此外, 对于超疏水壁面, 则不会在壁面处产生气泡, 而是在固-液之间形成一层气膜. Bai 和 Li^[17]研究发现对于浸润性较强的壁面, 近壁区中能量较高的分子向主流液体区的运动受到限制, 能量传递效率较低, 从而导致界面接触热阻增大, 固体界面温差也大幅增加, 因此不利于核化发生. Novak 等^[18]通过模拟流体氩在固体壁面处的异质核化过程, 发现气泡在浸润性弱的壁面处发生异质核化的时间有所减少, 其原因是随着固-液相互作用增强, 流体在近壁区呈类固体的形式排列, 从而导致气泡在类固体排列流体区域上产生. Carey 和 Wemhoff^[19]

修正了 Redlich-Kwong 流体状态方程, 用于预测受固壁影响的近壁区流体物性. 近壁区流体由于受固壁的作用, 导致该区域内的流体压力增高, 流体发生核化所需的临界过热度显著提高. 因此, 距离固体壁面有一定距离的液体反而先达到核化条件开始沸腾, 进而发生均质核化. 然而也有部分文献研究得出相反的结果, Hens 等^[20]认为在非浸润壁面上气泡难以形成, 亲水性壁面为气泡核化提供有利场所并促进了气膜的形成. Yamamoto 和 Matsumoto^[21]推断固-液相互作用影响界面能量传递, 从而调控沸腾核化行为. 当壁面浸润性越强时, 流体吸收的能量越多, 因而更加易于核化的发生.

综上所述, 微纳尺度界面效应影响突出, 使得微纳相变具有显著区别于常规尺度的行为特点. 尽管对于纳米尺度下核化相变的研究已经取得了一定成果, 但是目前的研究手段多数都是在初始时刻给定系统一个过饱和状态, 最终达到一个稳定型态, 整个研究过程类似等温系统中的空化反应, 对于由壁面传热产生热纳米气泡的核化生长过程, 仍然缺乏完整深入的研究, 未能全面揭示固-液界面效应在沸腾相变过程中所起的作用. 此外, 不同学者对壁面浸润性与气泡核化之间的内在联系经常会持有相反的意见. 因此, 关于壁面浸润性对液体核化沸腾的影响还有待进一步验证分析. 本文利用分子动力学方法模拟了纳米尺度下液体在不同浸润性壁面发生异质核化沸腾的完整过程, 并着重分析探讨了固体壁面浸润性对气泡核化生长的作用机制. 分析两者之间的关系, 有助于加强对纳米尺度下气泡核化机理的理解, 同时能为实际应用提供可靠的理论支撑. 本模拟采用开源分子动力学模拟软件 LAMMPS 实现, 原子位型实现可视化采用 VMD 软件.

2 物理模型及模拟细节

图 1 为模拟系统分别在初始、核化以及终了状态的分子模型 xz 平面分布图, y 方向与 xz 平面垂直. 本文模拟的是二维气泡的核化过程, 模拟体系尺寸为 $L_x \times L_y \times L_z = 172.9\sigma \times 5.76\sigma \times 461.2\sigma$ (σ 为流体氩原子之间的尺寸参数), x 和 z 方向的尺度显著大于 y 方向. 系统沿着 x, y 方向均采用周期性边界条件, z 方向为固定边界条件. 固体壁

面原子按照面心立方 (FCC) 晶格排列, 晶格常数为 1.15σ , 其 (100) 晶面与流体原子接触, 共有 29100 个固体原子. 壁面厚度 $d = 4.61\sigma$, 纳米凹槽的深度 $h = 17.29\sigma$, 宽度 $w = 18.45\sigma$. 固体壁面最外两层原子固定不动, 作为边界壁来维持系统的稳定. 对其余固体原子施加弹簧力作用, 使其在初始位置附近振动, 本文中采用的弹簧系数为 $3249.1\epsilon \cdot \sigma^{-2}$ (ϵ 为流体氩原子之间的能量参数). 沿着 z 方向, 流体氩原子分为两部分被置于固壁间, 在上下侧液膜之间有一段真空区域. 靠近下壁面流体液膜的厚度为 115.29σ , 上侧液膜厚度为 11.52σ . 初始氩原子按照 FCC 晶格排列方式布置, 晶格常数为 1.72σ , 共有 95035 个流体原子.

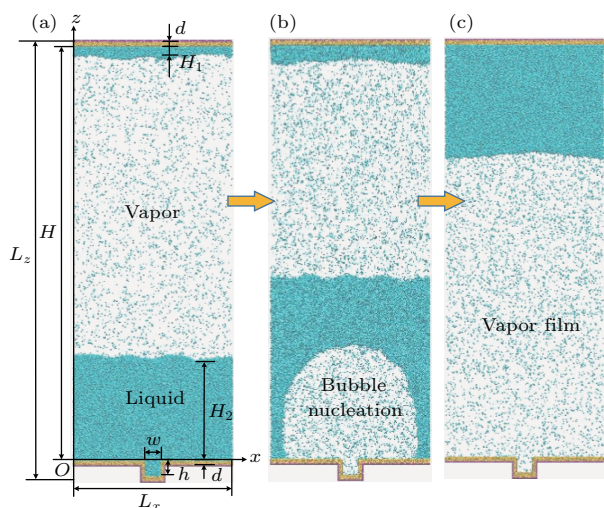


图1 模拟系统在 (a) 初始、(b) 核化和 (c) 终了状态的分子模型 x - z 平面图

Fig. 1. Molecular distribution in x - z plan of system at the (a) beginning, (b) nucleation, and (c) final period.

流体氩原子之间的相互作用采用 Lennard-Jones (L-J) 势能模型, 表达式为

$$\phi(r) = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right], \quad (1)$$

式中 r 为原子间的距离; 流体氩原子之间的尺寸参数 $\sigma = 0.3405$ nm, 能量参数 $\epsilon = 1.67 \times 10^{-21}$ J; 原子质量 $m = 6.69 \times 10^{-23}$ g. 固体原子之间的相互作用也采用 L-J 势能模型, $\sigma_s = 0.2475$ nm, $\epsilon_s = 8.35 \times 10^{-20}$ J.

固-液之间的势能作用通过对 L-J 势能模型进行修正^[22]:

$$\phi(r) = 4\alpha\epsilon_{sl} \left[\left(\frac{\sigma_{sl}}{r} \right)^{12} - \beta \left(\frac{\sigma_{sl}}{r} \right)^6 \right], \quad (2)$$

式中由 Lorentz-Berthelot 守则得到能量参数 $\epsilon_{sl} = \sqrt{\epsilon_s\epsilon_l}$, 尺寸参数 $\sigma_{sl} = (\sigma_s + \sigma_l)/2$, 下标 s 表示固体, l 表示流体. 调节能量系数 α 与尺寸系数 β 的值可以得到不同的浸润性. 本文算例参数设置分别为 $\alpha = 0.14, \beta = 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1.0$ 及 $\alpha = 0.2, \beta = 1.0$, 在模拟过程中势能截断半径为 3.5σ . 超过此距离的原子, 其相互作用忽略不计.

采用 Velocity-Verlet 算法求解运动方程, 时间步长取为 0.0023τ , 其中 $\tau = \sqrt{m\sigma^2/\epsilon}$ 为特征时间, m 为质量. 在模拟过程中首先对整个系统采用正则系综 (NVT), 维持其温度为恒定值 $T = 0.827\epsilon k_B^{-1}$, k_B 为玻尔兹曼常数, 运行 100 万步, 使系统达到平衡后撤掉系统整体温度热浴, 仅对壁面施加温度控制, 将下壁面温度升高到 $T = 1.4\epsilon k_B^{-1}$, 上壁面温度降低至 $T = 0.72\epsilon k_B^{-1}$, 流体原子采用微正则系综 (NVE). 根据固-液壁面浸润性, 算例运行时间在 40—600 万步范围内, 观察流体的核化轨迹. 本文为了直观展示流体被壁面加热发生核化的过程, 忽略了控制初始温度阶段的时间步统计, 直接从加热阶段开始记录时间.

在本文中, 为了观察气泡在核化过程中的密度以及温度变化, 将流体核化区域沿着 z 方向划分为 n 层, 第 k 个切片层 ($1 \leq k \leq n$) 在第 J_{Start} 到第 J_{End} 内时间段内的无量纲粒子密度为

$$\rho_k \sigma^3 = \frac{\sigma^3}{A\Delta z(J_{\text{Start}} - J_{\text{End}} + 1)} \sum_{j=J_{\text{Start}}}^{J_{\text{End}}} N_k, \quad (3)$$

式中 N_k 为第 k 层的液体原子数目; z 为各液体分层的厚度; A 为液体计算区域在 xy 平面的面积, $A = L_x \times L_y$.

第 k 个切片层 ($1 \leq k \leq n$) 在第 J_{Start} 到第 J_{End} 内时间段内的温度为

$$T(k) = \frac{\sigma^3}{A\Delta z(J_{\text{Start}} - J_{\text{End}} + 1)} \times \sum_{j=J_{\text{Start}}}^{J_{\text{End}}} \sum_{i=1}^{N_k} m_i (v_{i,j}^\alpha)^2, \quad (4)$$

式中 α 代表 x, y 和 z 三个方向; $v_{i,j}^\alpha$ 为粒子沿着 α 方向的热运动速度.

根据原子携带的能量和其具有的速度可获得通过流体的热流密度, 热流密度的微观表达采用 (5) 式计算:

$$\mathbf{q} = \frac{1}{V} \left[\sum_{i=1}^N \left(\mathbf{v}_i e_i + \frac{1}{2} \sum_{j=1, i \neq j}^N r_{ij} (\mathbf{F}_{ij} \cdot \mathbf{v}_i) \right) \right], \quad (5)$$

式中 V 为系统的容积; N 为流体原子数目; e_i 为每个原子的能量, 包括动能和势能的总和; F_{ij} 为第 i 个原子受到来自与第 j 个原子之间的相互作用力; v_i 为第 i 个原子的速度; r_{ij} 为第 i 个原子与第 j 个原子之间的距离.

3 结果与讨论

通过调节固-液势能参数来改变壁面浸润性, 图 2 表示两个粒子间的无量纲势能与相互作用力随无量纲距离的变化关系, Φ 为势能, F 为相互作用力. 图 2(a) 中势阱深度反映固体原子对流体原子的束缚强度, 势阱越深流体原子越不容易挣脱固体原子的束缚. 当吸收的热量不足以克服势能壁垒的限制时, 流体原子将在其平衡位置附近振动, 呈现出类固体排列方式. 图 2(b) 中无量纲力为正值

时, 固-液原子之间相互排斥; 无量纲力为负值时, 固-液原子之间相互吸引. 由图 2 可见, 当 α 一定时, β 越小, 固-液之间的作用力越弱, 壁面浸润性更趋向于疏水性; 当 β 一定, α 越大, 固-液之间的作用力越强, 壁面浸润性越趋向于亲水性. 上述结论与文献 [22] 的模拟结果一致.

本文研究对比不同浸润性壁面处气泡的核化生长过程, 可以用纯物质 T - ρ 相图分布中的状态点来观察液体氩的核化状态. 从气泡核化过程可知, 气泡核化位置沿着 z 方向主要分布在 $0-90\sigma$ 之间. 因而, 将此空间范围设置为成核区域, 统计该区域内流体的平均数密度和温度. 每 1000 步输出一次模拟结果. 由图 3 得知, 成核区域的原子数密度随着流体温度的升高逐渐减小, 从初始气液饱和态逐渐过渡到稳定过热态, 表明本文的成核条件符合核化动力学规律. 此外, 需要统计远离液体核化区域

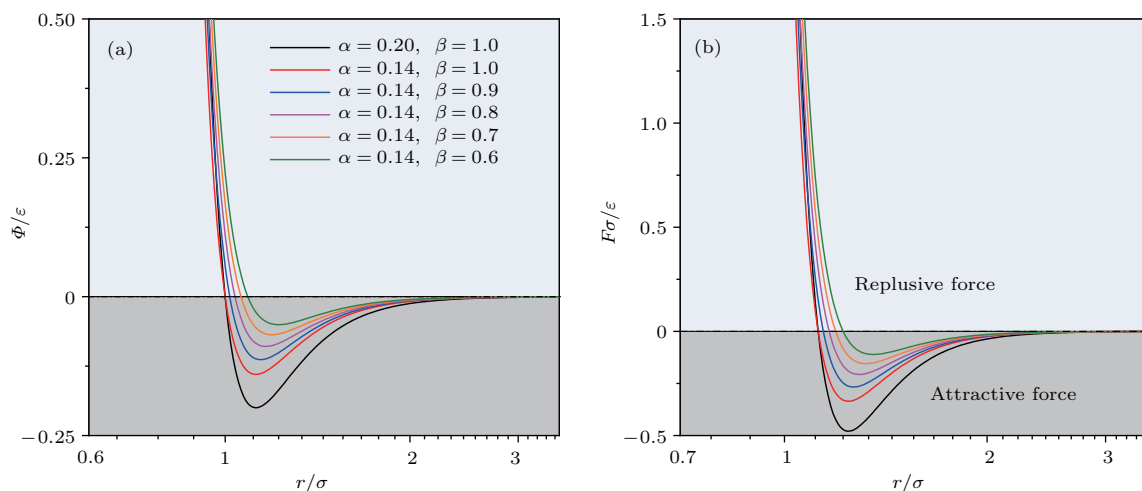


图 2 两个粒子间的无量纲 (a) 势能与 (b) 相互作用力随无量纲距离的变化关系

Fig. 2. Dimensionless (a) potential energy and (b) interaction force depends on the distance between two particles.

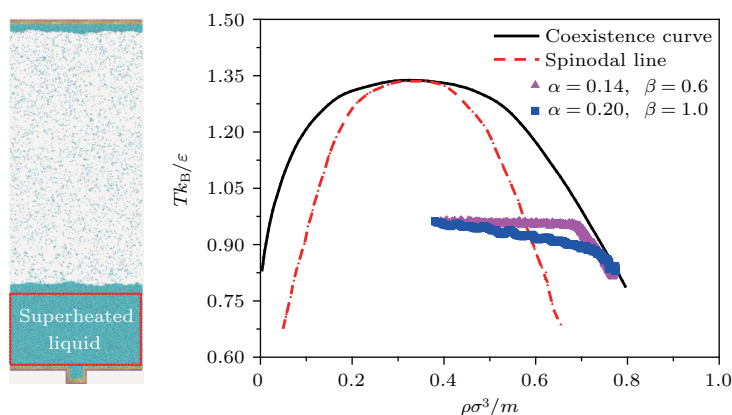


图 3 核化区域热力学状态点及饱和线与包络线相分布图

Fig. 3. Thermodynamic state point and phase diagram with coexistence curve and spinodal curve in nucleation region.

的蒸汽相空间内的温度与压力, 以便确定沸腾发生的状态. 监测沿着 z 方向 250σ — 300σ 气相区域内的温度与压力, 发现气相温度一直维持在 $0.827\epsilon k_B^{-1}$ 左右, 压力为其相应的饱和压力

$0.007654\epsilon\sigma^{-3}$. 因此, 本文着重研究过饱和和沸腾.

3.1 气泡核化过程

图4(a)—(f)表示气泡在不同浸润性壁面处发

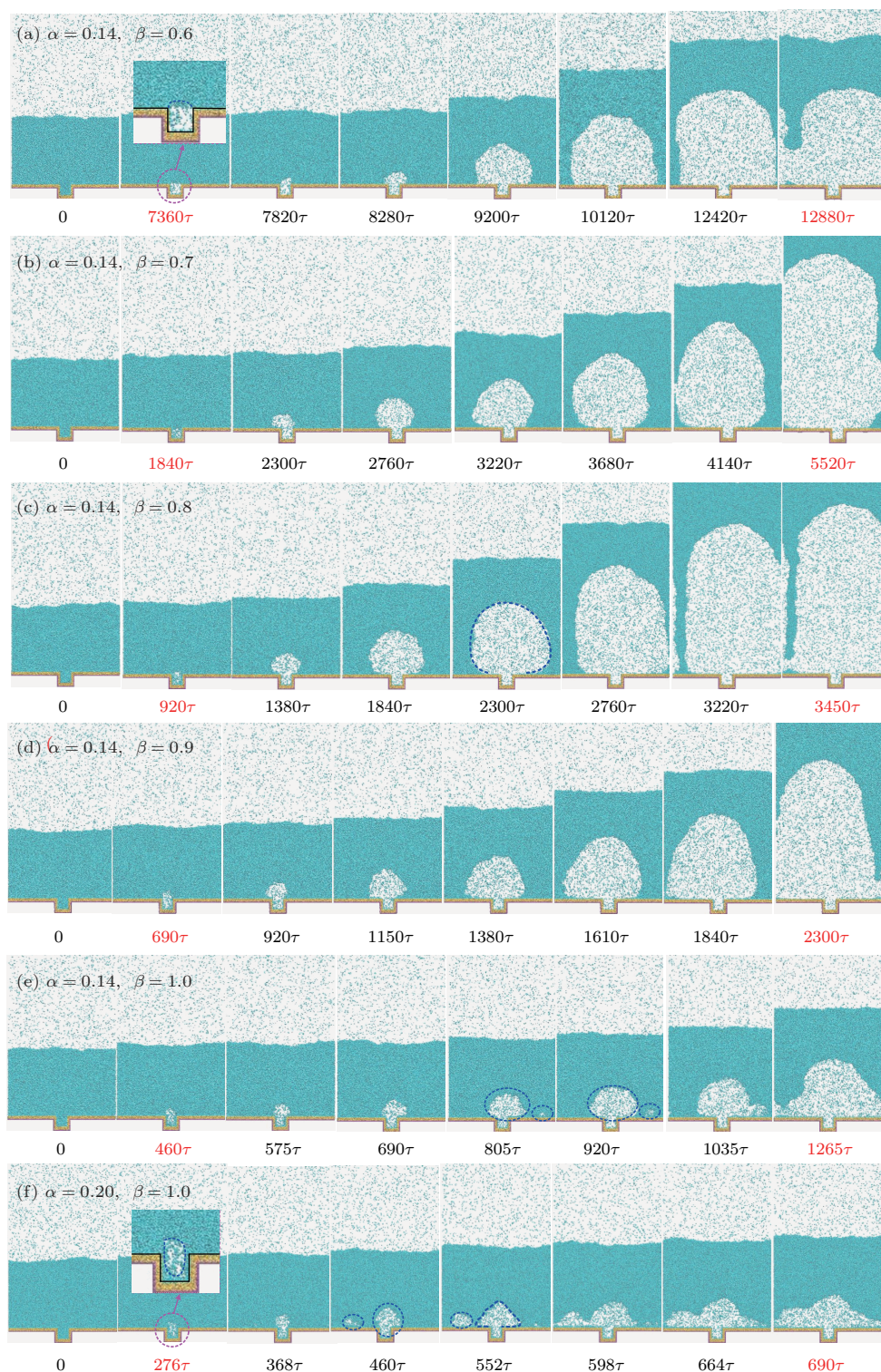


图4 不同壁面浸润性下异质核化过程 (a) $\alpha = 0.14, \beta = 0.6$; (b) $\alpha = 0.14, \beta = 0.7$; (c) $\alpha = 0.14, \beta = 0.8$; (d) $\alpha = 0.14, \beta = 0.9$; (e) $\alpha = 0.14, \beta = 1.0$; (f) $\alpha = 0.20, \beta = 1.0$

Fig. 4. Heterogeneous nucleation process with different wall wettability: (a) $\alpha = 0.14, \beta = 0.6$; (b) $\alpha = 0.14, \beta = 0.7$; (c) $\alpha = 0.14, \beta = 0.8$; (d) $\alpha = 0.14, \beta = 0.9$; (e) $\alpha = 0.14, \beta = 1.0$; (f) $\alpha = 0.20, \beta = 1.0$.

生异质核化的过程. 由图可见, 给壁面加热一段时间后, 气泡胚核首先在凹槽内部形成, 其体积随着壁面传热量的增多而增大. 当气泡足够大露出穴面后, 开始向两个方向生长, 一方面向上膨胀, 气泡高度增大; 另一方面气泡向侧面铺展扩张, 三相接触线逐渐向外延伸. 由于沿着 x, y 方向为周期性边界条件, 当气泡生长到一定程度会引起边界聚合, 在壁面处形成气膜, 推动液膜向上运动.

由图 4 可知, 随着 α 与 β 的增大, 固-液相互作用增强, 达到气泡初始核化所需过热度的时间缩短, 即核化等待时间减少. 当固-液势能参数为 $\alpha = 0.14, \beta = 0.6$ 时, 固-液相互作用最弱, 气泡发生核化的等待时间约为 7360τ ; 固-液势能参数取 $\alpha = 0.2, \beta = 1.0$ 时, 壁面浸润性最强, 核化等待时间仅 276τ . 根据图 3 不同浸润性壁面处核化区域过热状态的演化规律, 体系进入包络线区域的快慢程度有所差异, 即核化等待时间不同. 当势能参数为 $\alpha = 0.14, \beta = 0.6$ 时, 状态曲线在亚稳态过热区紧贴饱和线缓慢上升后才进入稳态过热区; 当势能参数为 $\alpha = 0.14, \beta = 1.0$ 时, 则迅速进入稳态过热区域, 气泡发生核化更快.

图 5 给出不同研究结果中气泡约化核化时间随壁面浸润性的变化关系, CA 表示接触角. 气泡核化时间包括核化等待时间与气泡生长时间. 由于不同尺度下, 气泡核化时间的数量级存在很大的差别, 本文为方便比较不同尺度下气泡核化时间随壁面浸润性的变化趋势, 均采用约化比值. Phan 等 [23] 与 Gong 和 Cheng [24] 的研究结果分别以接触角为 43.8° 与 28.1° 时的气泡核化时间为参考值, 对气泡核化时间进行约化. 本文的模拟结果则将势能参数为 $\alpha = 0.14, \beta = 0.6$ 的气泡核化时间作为参考值, 约化核化时间取为 1. Phan 等 [23] 采用实验方法研究水在 $100 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 纳米涂层壁面上的沸腾核化, 发现随着壁面浸润性的增强, 气泡脱离直径增大, 核化时间增长, 而气泡脱离频率却降低. Gong 和 Cheng [24] 使用格子玻尔兹曼方法探究介观尺度下固体表面浸润性对液体饱和和沸腾传热特性的影响机制. 综上可知, 在常规尺度范围, 壁面接触角越大, 即壁面浸润性越弱, 气泡核化时间越短, 越容易核化. 在纳米尺度下, α 与 β 值越大, 壁面浸润性越强, 核化等待时间与气泡生长时间均缩短, 核化周期减小, 反而更有利于核化发生. 这是由于尺度效应的存在, 导致核化规律在不同尺度

下呈现出截然相反的变化趋势.

在统计流体密度分布时, 将整个系统内流体区域沿着 z 方向均匀划分层, 每层的高度是 2.3σ . 图 6 表示不同浸润条件下流体沿 z 方向的密度分布随加热时间的变化趋势. 图中红色虚线表示固-液

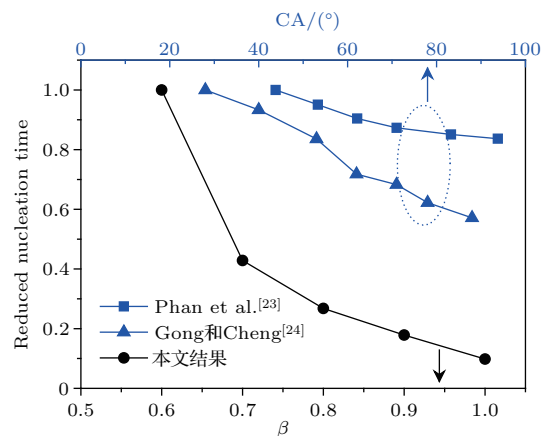


图 5 气泡约化核化时间与壁面浸润性的关系

Fig. 5. Relationship between reduced nucleation time and wall wettability.

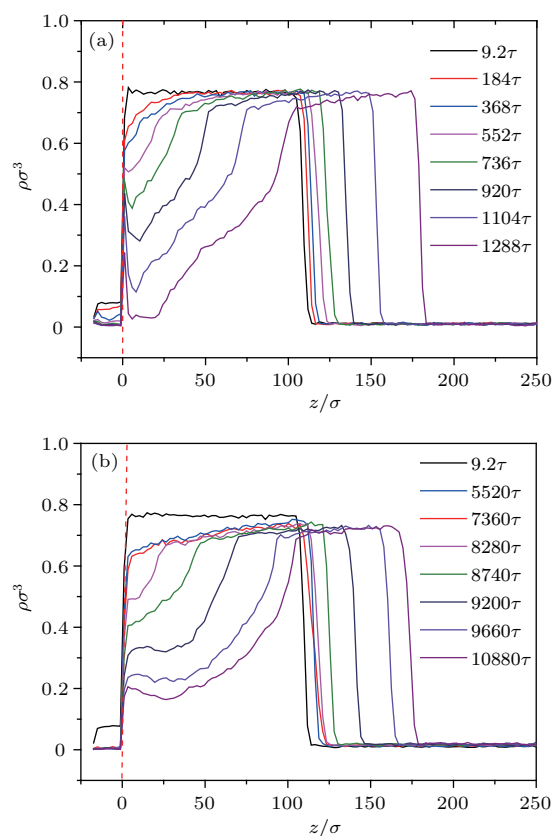


图 6 流体沿着 z 方向的密度分布图 (a) 势能参数为 $\alpha = 0.14, \beta = 1.0$; (b) 势能参数为 $\alpha = 0.14, \beta = 0.6$

Fig. 6. Density profile of argon along z coordinate: (a) Potential energy parameters is $\alpha = 0.14, \beta = 1.0$; (b) potential energy parameters is $\alpha = 0.14, \beta = 0.6$.

界面位置. 不同浸润条件下, 其流体数密度分布规律类似. 在初始时刻, 液体区域的密度 $\rho\sigma^3$ 维持在 0.78 附近. 随着加热时间增加, 气泡胚核在近壁区核化生长, 核化区域的流体数密度逐渐减小. 直到气泡消失, 在壁面处形成气膜且液体层脱离壁面后, 靠近高温壁面处的流体数密度接近气相密度. 对比图 6(a) 与图 6(b) 流体数密度变化规律, 可以看出壁面浸润性越强, 核化区域靠近密度减小越快, 反映出气泡核化生长速率随壁面浸润性的增强而增大.

为了对比不同浸润条件下的核化状态, 选取同一个时刻的流体数密度分布. 图 7 表示时间为 690τ 时流体沿着 z 方向的数密度分布. 结合上述核化过程原子位型图, 近壁核化区域的流体有 3 种状态, 即过热液体态、气泡核化态、过热气体态. 势能参数为 $\alpha = 0.14$, $\beta = 0.6$ 时核化区域流体氩的数密度最大. 保持 $\alpha = 0.14$ 不变, 增大 β 值, 当 $\beta = 0.7$ 和 0.8 时, 紧贴壁面处流体数密度有轻微的减小, 几乎维持不变; 当 $\beta = 0.9$ 时, 近壁处流体数密度呈大幅度下降趋势, 由图 4 可知, 此时气泡胚核露出穴面; 当固-液势能参数为 $\alpha = 0.2$, $\beta = 1.0$ 时, 流体的密度已经接近气相的密度值, 液膜脱离壁面, 在壁面附近形成气膜. 综上所述, 在浸润性强的壁面处液体核化时间短, 气泡核化速率快, 气泡胚核体积更大. 因此, 浸润性强的表面更有利于气泡成核.

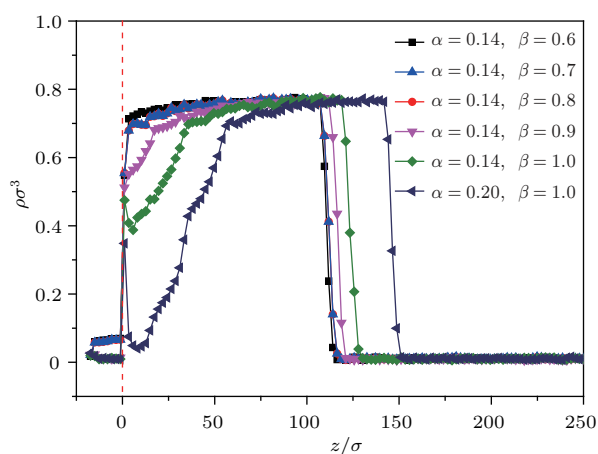


图 7 时间为 690τ 时氩流体沿着 z 方向的数密度分布
Fig. 7. Number density profile of argon along z coordinate at 690τ .

3.2 气泡生长规律

通过计算核化气泡的等效半径来定量分析壁面浸润性对气泡核化生长的作用. 由于本文模拟的

是二维气泡, 因此气泡体积相当于在 xz 平面上的面积, 为了计算气核的等效半径, 将液氩核化区域在 xz 平面内划分成二维小网格, 每个网格的尺寸为 $2\sigma \times 2\sigma$, 每 100 步统计一次网格内的流体原子数密度. 将液体数密度与蒸汽数密度之和的 1/2 作为判断网格是气态还是液态的阈值 [25]. 当网格内的无量纲原子数密度小于 0.39 时, 将此网格标记为气态; 当网格内的无量纲原子数密度大于 0.39 时, 则认为此网格为液体. 然后将核化区域内所有气态网格叠加起来得到气泡的二维面积 S^* , 计算气泡的等效半径 [26]: $R^* = \sqrt{S^*/(2\pi)}$. 图 8 表示气泡等效半径随加热时间的变化关系. 由图 8 可见, 不同浸润性壁面处的气泡生长规律类似, 在初始加热阶段, 液体没有发生核化, 气泡的等效半径为 0; 当流体吸收的热量聚集到一定程度时, 近热壁区发生核化, 气泡等效半径开始增大. 从图 8 可以看出, 当气泡核化进入稳定生长阶段, 气泡等效半径几乎遵循线性增长规律, 此过程中气泡等效半径的生长速率随着壁面浸润性的增强而显著提升, 势能参数为 $\alpha = 0.20$, $\beta = 1.0$ 时的气泡等效半径约等于势能参数为 $\alpha = 0.14$, $\beta = 0.6$ 的 3.27 倍. 值得注意的是, 本文将气膜在壁面处形成的时间记录为气泡停止生长的时间, 即气泡等效半径变化曲线的统计结束时间. 由图 8 可知, 图中每条曲线终止时刻的气泡等效半径值有所差异, 其随着壁面浸润性的增强反而减小. 结合图 4(e)–(f) 分析其原因: 一方面是壁面浸润性越强, 气泡胚核不止在凹槽产生, 还会在平壁面处形成, 进而多个气核迅速聚合形成气膜;

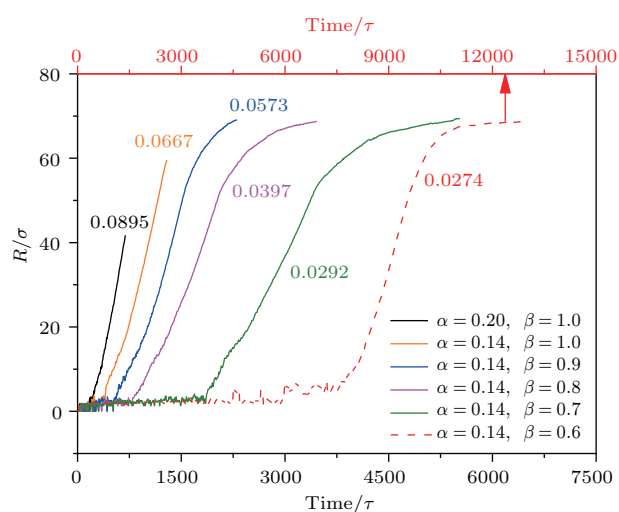


图 8 气泡等效半径随加热时间的变化关系
Fig. 8. Relationship between bubble equivalent radius and heating time.

另一方面, 流体原子在浸润性强的壁面形成气泡后, 蒸汽与固壁间的液体膜更容易蒸发相变, 三相接触线沿着 x 方向迁移, 气泡铺展直径增大. 当壁面浸润性弱时, 气泡反而更倾向于向上生长. 因此, 浸润性越强的壁面在液膜脱离壁面时气泡的体积与等效半径越小.

3.3 核化传热机理

为研究壁面浸润性对气泡核化生长的作用机理, 需要从固-液能量传递方面来进行分析. 图9表示靠近壁面处的流体沿着 z 方向的温度分布随时间的变化关系. 热量通过固-液界面扩散到流体区域, 近壁区的液温先升高, 在液体区域形成温度梯度, 直至流体内部的温度呈现线性分布. 当固-液势能参数为 $\alpha = 0.14$, $\beta = 1.0$ 时, 近壁区流体温度几乎在 920τ 就达到线性分布, 固-液界面温度约为 $1.13\epsilon k_B^{-1}$, 固-液温度阶跃约为 $0.27\epsilon k_B^{-1}$. 而固-液势能参数为 $\alpha = 0.14$, $\beta = 0.6$ 时, 其需要约 2760τ 才达到线性分布, 此时, 固-液界面处的流体温度值约为 $0.98\epsilon k_B^{-1}$, 固-液温度阶跃约为 $0.42\epsilon k_B^{-1}$. 据此推断, 界面热阻随固-液势能作用的减弱而增大, 导致通过固-液界面传递热量的效率降低, 进而使得流体温度升高达到线性分布的时间越来越长, 对气泡的核化生长时间产生了显著影响. 需要说明的是, 图9中在 $-20\sigma \sim 0$ 范围内流体温度随加热的进行出现减小现象, 这是由于此范围为凹槽中的液体原子核化变为气体, 粒子数大量减少, 造成统计误差.

根据核化动力学, 当活化分子团能量积累到临界活化能后, 才能形成稳定的气泡并开始生长. 由图9可知, 浸润性强的壁面传热效率高, 流体温度快速升高, 明显高于浸润性弱的情形, 使得核化区域液体能量迅速累积达到临界活化能, 满足核化条件. 而且气泡在生长过程中周围过热液体温度越高, 越容易蒸发相变. 该结论也可从核化区域流体总势能变化规律得到验证. 图10表示核化区域流体总势能随加热时间的变化规律. 值得注意的是, 图中势能值为负值. 初始加热阶段, 气泡尚未形成稳定的胚核, 液体原子仍紧贴壁面. 当势能参数为 $\alpha = 0.2$, $\beta = 1.0$ 时, 固-液作用最强, 核化区域的流体总势能值最小. 与之相反, 当势能参数为 $\alpha = 0.14$, $\beta = 0.7$ 时, 其总势能值最大. 随着加热进行, 前者的势能值显著增大, 反而高于后者, 促进

了气泡的核化生长. 此外, 壁面势能参数 α 与 β 越大, 能垒越深, 固-液相互作用越强, 液体原子越难挣脱固体壁面束缚, 导致气泡胚核的初始核化位置随浸润性变化而有所差异. 如图4所示, 气泡胚核在纳米凹槽内初始形成阶段, 壁面浸润性越弱, 越趋于在壁面处形成; 而浸润性越强, 则气核在偏离固体壁面的液体中央形成. 在气泡生长后期, 贴近壁面处的液膜受热蒸发. 对于浸润性强的壁面, 其热阻小, 近壁面处液膜温度高, 液体更容易相变成气体. 综上所述, 尽管能垒越深, 紧贴壁面的液体原子越难以挣脱束缚, 但是近壁区流体吸收能量增多, 明显利于形成气泡胚核, 只是紧贴壁面的流体原子受到固体壁面的束缚程度不同, 导致初始形核位置有所差异.

为进一步探究核化过程中热量传递的规律, 图11给出气泡核化区域流体的温度随时间的变化规律. 由图可知, 壁面浸润性越强, 通过界面传递

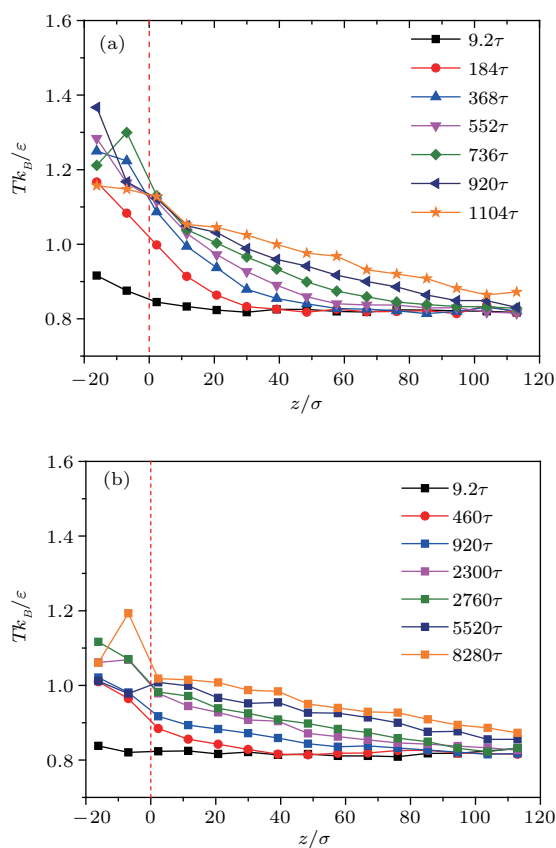


图9 核化区域氩流体沿着 z 方向的温度分布 (a) 势能参数为 $\alpha = 0.14$, $\beta = 1.0$; (b) 势能参数为 $\alpha = 0.14$, $\beta = 0.6$

Fig. 9. Temperature profile of argon along z -coordinate in nuclear boiling region: (a) Potential energy parameters is $\alpha = 0.14$, $\beta = 1.0$; (b) potential energy parameters is $\alpha = 0.14$, $\beta = 0.6$.

的热量越多, 流体温度升高越快. 在气泡核化等待阶段, 底板传递的热量直接加热近壁区液体, 便于能量聚集使其发生核化. 当液体发生核化, 气泡生长到一定程度, 部分底板与气体直接接触, 气固直接传热效率较低, 气泡生长核化的热量主要来源于周围高温液体. 如图 11 温度曲线所示, 当核化区域流体温度上升到一定程度开始下降, 这是由于底板传给液体的热量不足以弥补气泡边界液体蒸发相变及气泡体积膨胀所需能量, 核化区域温度反而降低. 当势能参数为 $\alpha = 0.2, \beta = 1.0$ 时, 核化区域温度几乎没有下降过程, 在 1023τ 时刻温度又以不同速率迅速升高; 而 $\alpha = 0.14, \beta = 1.0, 0.9, 0.8, 0.7$ 时则分别在 $1280\tau, 1810\tau, 2450\tau, 3720\tau$ 时刻温度曲线陡然降低. 当核化区域流体温度值降到最小值时, 壁面完全被气膜覆盖, 通过壁面的热流开始减小, 随后壁面直接加热气体, 温度又开始持续上升.

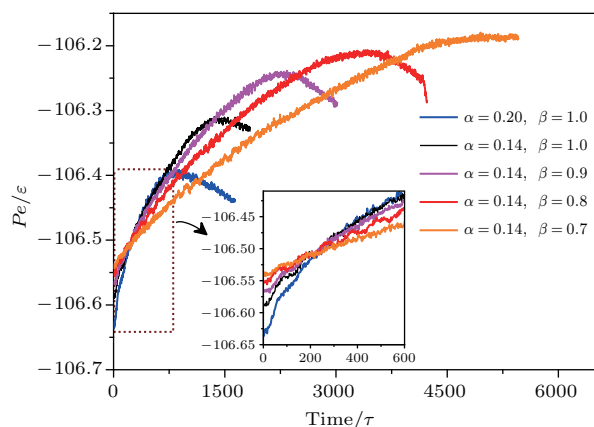


图 10 核化区域流体总势能随时间的变化规律

Fig. 10. Total potential energy variation of liquid in nuclear boiling region over time.

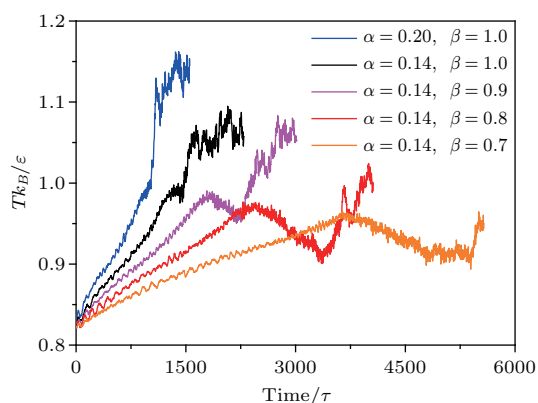


图 11 核化区域流体温度随时间的变化规律

Fig. 11. Temperature variation of liquid in nuclear boiling region over time.

图 12 表示通过高温壁面附近处液膜的热流密度及流体吸收的总热量随时间的变化规律. 由图 12(a) 可知, 不同浸润性壁面处的热流密度均呈现先增大后减小的规律. 这是因为当热流密度达到最大值时, 近壁区形成气膜, 导致膜态沸腾, 从而引发通过液膜的热流密度呈减小趋势. 值得注意的是, 在热流密度上升阶段, 会出现 3 种不同的上升速率. 在初始阶段, 热流密度缓慢上升, 此时没有气泡产生, 仅有气液界面处的蒸发相变. 而当发生核化沸腾时, 通过液膜的热流突然增大, 热流曲线由平缓变成陡峭. 从图 12(a) 可以看出, 当势能参数为 $\alpha = 0.2, \beta = 1.0$ 时, 热流密度直接迅速增大, 几乎没有经历平缓提升的阶段; 当 $\alpha = 0.14, \beta = 1.0, 0.9, 0.8, 0.7$ 时则分别在 $460\tau, 690\tau, 920\tau, 2070\tau$ 时刻热流密度突然增加, 与图 4 中气泡初始核化时刻一一对应, 然而由于热流密度统计有一定的振荡性, 热流突变时刻可能有轻微的偏差. 在气泡生长

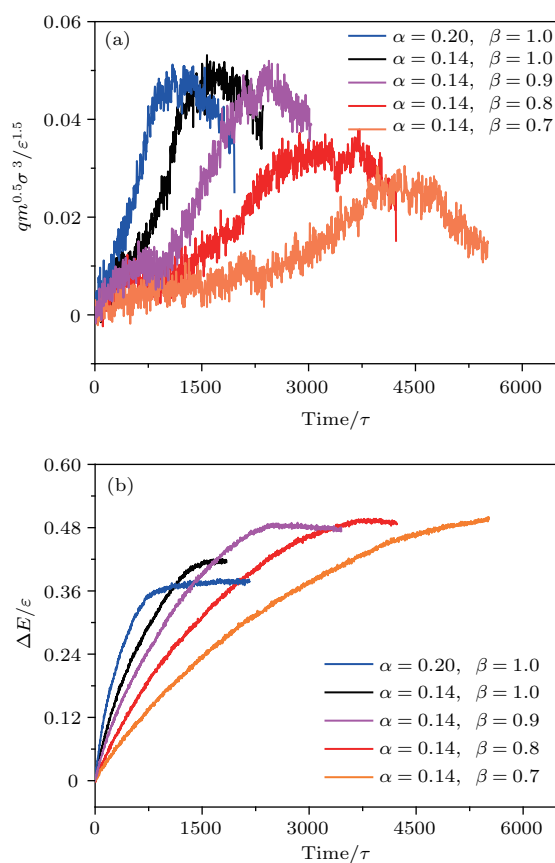


图 12 不同壁面浸润时流体氩的 (a) 热量密度和 (b) 吸收的总热量随时间的变化

Fig. 12. Variation of (a) heat flux and (b) total heat absorbed by argon on the different wetted wall over time.

后期阶段, 热流密度上升速度又开始平缓, 对应图 11 中核化区域温度曲线下降阶段, 此时壁面尚未完全被气膜覆盖. 图 12(b) 表示流体从高温壁面吸收的总热量, 一部分用于提升流体分子的动能, 提升系统的温度; 一部分用于克服液体原子之间的势能, 使其液体原子之间的间距增大, 转化为用来形成气核的潜热. 从图 12(b) 可知, 流体吸收的总热量随壁面浸润性增强而显著增大, 因此, 更多的能量可以用来提高液体温度, 增强克服液体势能壁垒束缚的能力, 更利于气泡的核化.

综上可知, 热流密度上升阶段的突变时刻可以反映出气泡核化沸腾过程中的等待时间长短. 突变后的热流密度曲线的斜率与气泡生长速率有关, 曲线越陡峭, 单位时间内壁面传给液膜的热流越多, 液体原子吸收的热量越多, 提供更多的能量用来克服液体原子之间的能垒限制, 气泡生长速率越大. 因此, 在纳米尺度下增强壁面浸润性, 可以缩短气泡核化等待时间, 提高气泡生长速率.

4 结 论

本文采用分子动力学方法模拟了纳米尺度下液体在固体壁面处发生核化沸腾的过程, 主要研究了固-液界面作用强度对气泡初始核化与气泡生长速率所产生的影响以及固-液界面效应在沸腾核化过程中能量传递所起到的作用. 研究结果显示: 固-液相互作用越强, 即壁面浸润性越强, 界面热量传递效率越高. 因此, 核化区域液膜在较短的时间内可以聚集更多的热量, 使得气泡在固壁处容易核化. 此结果明显区别于经典核化理论中“疏水壁面易于产生气泡”的论述, 一方面其原因是在纳米尺度下, 固-液界面热阻不能被忽略, 浸润性的增强导致界面热阻减小, 在相同的壁面温度下, 靠近壁面处流体温度的提高缩短了气泡发生核化的等待时间, 使流体更容易核化. 另一方面, 壁面浸润性还会影响气泡生长速率, 浸润性越强, 生长速率越大, 当气泡增长到一定程度时, 会在壁面处形成气膜. 此外, 在整个核化过程中, 通过壁面的热流先增大到一定值, 当在壁面处形成气膜后, 又会呈现逐渐减小的趋势. 在热流上升期间由于核化沸腾的发生, 热流曲线变陡峭, 斜率出现突变过程.

参考文献

- [1] Agostini B, Fabbri M, Park J E, Wojtan L, Thome J R, Michel B 2007 *Heat Transfer Eng.* **28** 258
- [2] Riofrio M C, Caney N, Gruss J A 2016 *Appl. Therm. Eng.* **104** 333
- [3] Zhang S W, Yuan W, Tang Y, Chen J L, Li Z T 2016 *Appl. Therm. Eng.* **104** 659
- [4] Marable D C, Shin S, Nobakht A Y 2017 *Int. J. Heat Mass Transf.* **109** 28
- [5] Xu J L, Li Y X 2007 *Int. J. Heat Mass Transf.* **50** 2571
- [6] bin Saleman A R, Chilukoti H K, Kikugawa G, Shibahara M, Ohara T 2017 *Int. J. Therm. Sci.* **120** 273
- [7] Bourdon B, Bertrand E, di Marco P, Marengo M, Rioboo R, de Coninck J 2015 *Adv. Colloid Interface Sci.* **221** 34
- [8] Jo H J, Ahn H S, Kang S H, Kim M H 2011 *Int. J. Heat Mass Transf.* **54** 5643
- [9] Quan X J, Chen G, Cheng P 2011 *Int. J. Heat Mass Transf.* **54** 4762
- [10] Xu X P, Qian T Z 2014 *Phys. Rev. E* **89** 063002
- [11] Kinjo T, Matsumoto M 1998 *Fluid Phase Equilib.* **144** 343
- [12] Kimura T, Maruyama S 2002 *Microscale Thermophys. Eng.* **6** 3
- [13] Kinjo T, Gao G T, Zeng X C 2000 *Prog. Theor. Phys. Suppl.* **138** 732
- [14] Mao Y J, Zhang Y W 2013 *Nanoscale Microscale Thermophys. Eng.* **17** 79
- [15] Theofanous T G, Tu J P, Dinh A T, Dinh T N 2002 *Exp. Therm. Fluid Sci.* **26** 775
- [16] Nagayama G, Tsuruta T, Cheng P 2006 *Int. J. Heat Mass Transf.* **49** 4437
- [17] Bai B F, Li S J 2010 *Proceedings of the 14th International Heat Transfer Conference* Washington, United States of America, August 8–13, 2010 p177
- [18] Novak B R, Maginn E J, McCready M J 2008 *J. Heat Transfer* **130** 042411
- [19] Carey V P, Wemhoff A P 2005 *Int. J. Heat Mass Transf.* **48** 5431
- [20] Hens A, Agarwal R, Biswas G 2014 *Int. J. Heat Mass Transf.* **71** 303
- [21] Yamamoto T, Matsumoto M 2012 *J. Therm. Sci. Technol. Jpn.* **7** 334
- [22] Nagayama G, Kawagoe M, Tokunaga A, Tsuruta T 2010 *Int. J. Therm. Sci.* **49** 59
- [23] Phan H T, Caney N, Marty P, Colasson S, Gavillet J 2009 *Int. J. Heat Mass Transf.* **52** 5459
- [24] Gong S, Cheng P 2015 *Int. J. Heat Mass Transf.* **85** 635
- [25] Leroy F, MüllerPlathe F 2010 *J. Chem. Phys.* **133** 044110
- [26] Okumura H, Ito N 2003 *Phys. Rev. E* **67** 045301

Molecular dynamics study of bubble nucleation on a nanoscale*

Zhang Long-Yan Xu Jin-Liang[†] Lei Jun-Peng

(Beijing Key Laboratory of Multiphase Flow and Heat Transfer for Low Grade Energy, North China Electric Power University,
Beijing 102206, China)

(Received 22 May 2018; revised manuscript received 5 September 2018)

Abstract

With the rapid development of nanotechnology, nucleate boiling has been widely applied to the thermal management of nanoelectronics, owing to its highly-efficient heat transfer characteristics. Considering the scale effects, such as temperature jump at solid-liquid interface, a further study of nucleation boiling mechanism at a microscopic level is needed. At present, extensive studies have been carried out for providing a significant insight into the formation of nano-bubbles in a nanoscale thermal system, but the effect of heat transfer efficiency affected by the surface wettability on bubble nucleation over solid substrate is rarely available in the literature. Therefore, in this paper, the effect of surface wettability on the initial nucleation process and growth rate of bubbles are investigated and the mechanism of bubble nucleation on a nanoscale is analyzed, by the molecular dynamics simulation. The modified Lennard-Jones potential is used for investigating the solid-liquid interaction. Changing the potential parameters α and β can obtain different surface wettability. The atomic sites, liquid density profiles and bubble nucleus volumes are computed to compare the processes of bubble nucleation on different surfaces. The variation of liquid temperature, potential and absorbed heat flux with heating time are evaluated to explore the mechanism of bubble nucleation. The simulation results show that the surface wettability influences the bubble nucleation and heat transfer at liquid-solid interface significantly. On the one hand, the bubble nucleation is promoted by properly increasing the liquid-solid interaction, which is distinctly different from the existing classical theory related to nano-bubble preferably formed on a hydrophobic surface. This is because the thermal resistance of the solid-liquid interface on a nanoscale cannot be neglected. The interface thermal resistance will decrease with the increase of wettability. Therefore, the heat transfer efficiency is higher for a stronger liquid-solid interaction so that the liquid over the hot wall obtains more energy to make bubble nucleus generated earlier. On the other hand, the surface wettability also influences the bubble growth rate. The stronger the liquid-solid interaction, the faster the bubble grows. When the volume of bubble reaches a certain value, a vapor film is formed on the substrate, leading to film boiling. Furthermore, it also illustrates that initial heat flux increases with time. In this stage, the heat flux curve shows two kinds of slopes, corresponding to the occurrence of evaporation and bubble nucleation, respectively. Then, after a certain time, the heat flux profile presents a declining trend, indicating a change into film boiling.

Keywords: nanoscale, bubble nucleation, wettability, interface effect

PACS: 47.55.dp, 44.35.+c, 68.08.-p, 02.70.Ns

DOI: 10.7498/aps.67.20180993

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51436004).

[†] Corresponding author. E-mail: xjl@ncepu.edu.cn