

过渡区内纳米颗粒的曳力特性模拟研究*

刘旺旺 张克学 王军† 夏国栋

(北京工业大学, 传热强化与过程节能教育部重点实验室, 传热与能源利用北京重点实验室, 北京 100124)

(2023 年 12 月 14 日收到; 2024 年 1 月 11 日收到修改稿)

在过渡区内, 关于纳米颗粒曳力计算及输运特性的研究较为困难, 通常会采用一些近似方法, 将自由分子区或者连续介质区的理论计算式进行修正, 以适用于过渡区, 但是其准确性值得商榷. 本文基于分子动力学模拟方法, 研究了过渡区内纳米颗粒的曳力特性, 并与相关理论进行对比. 结果表明, 气-固分子间相互作用对纳米颗粒的曳力具有显著影响. 当气固结合强度较弱时, 理论计算结果与分子动力学模拟值吻合较好; 当气固结合强度较强时, 分子动力学模拟结果明显大于理论值, 这是由于气体分子在纳米颗粒表面的吸附所导致. 基于气体分子在颗粒表面的吸附特性, 提出引入有效颗粒半径修正, 其过渡区内曳力的理论计算结果与分子动力学模拟结果吻合较好.

关键词: 纳米颗粒, 过渡区, 曳力, 分子动力学模拟

PACS: 51.10.+y, 47.11.Mn, 47.61.Jd

DOI: 10.7498/aps.73.20231861

1 引言

当颗粒以一定的相对速度在气体中运动时, 气体会阻碍颗粒的运动, 这个阻碍颗粒运动的力被称为曳力^[1-3]. 关于颗粒曳力特性的研究在很多领域都有重要意义, 例如气溶胶科学、环境科学、燃烧学、纳米材料合成以及核安全等^[4-11]. 曳力通常被认为是悬浮颗粒在流体中受到的最主要的作用力, 根据 Stokes-Einstein 输运理论, 颗粒的布朗扩散系数与其曳力系数成反比. 近年来, 关于纳米颗粒在气体中曳力计算及输运特性的研究引起了广泛的关注^[12-18].

悬浮颗粒在气体中的受力及其输运特性与 Knudsen 数密切相关. Knudsen 数定义为气体分子平均自由程 λ 与颗粒半径 R 的比值, $Kn = \lambda/R$. 根据 Knudsen 数的大小, 可将颗粒的动力学行为划分为自由分子区 ($Kn \gg 1$)、连续介质区 ($Kn \ll 1$)

和过渡区 ($Kn \sim 1$). 在自由分子区, 气体分子平均自由程远大于颗粒半径, 因此可忽略被颗粒反射的气体分子与其他入射分子之间的碰撞, 即不考虑颗粒的存在对气体分子速度分布函数的影响. 基于气体动理论方法, Epstein^[19] 推导了自由分子区内球形颗粒的曳力. 在连续介质区, 气体分子之间的碰撞频率远大于气体分子与颗粒之间的碰撞频率, 因此, 气体介质可视为连续流体. Stokes^[20] 提出了球形颗粒在连续介质区内曳力的表达式. 在过渡区, 气体分子间的碰撞频率和颗粒与气体分子之间的碰撞频率相当, 连续介质假设不再适用, 自由分子区的处理方法同样也不再适用, 因此对曳力的求解比较困难. 通常会采用一些近似方法建立理论模型, 如矩方法和 Bhatnagar-Gross-Krook 方法等, 但其准确性值得商榷^[21]. 通过引入修正系数, 可以将连续介质区或者自由分子区的理论结果拓展, 以适用于过渡区, 例如 Stokes-Cunningham 曳力修正公式^[22]:

* 国家自然科学基金 (批准号: 51776007) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jwang@bjut.edu.cn

$$F_D = -\frac{6\pi\mu RV}{1 + Kn[A + B \exp(-E/Kn)]}, \quad (1)$$

式中, μ 为气体的黏度, V 为颗粒相对于气体的速度, A, B, E 为经验参数. 实际中常采用 $A = 1.155$, $B = 0.471$, $E = 0.596$ ^[23].

上述理论均基于气体分子与颗粒之间的刚体碰撞假设建立模型, 此假设对于微米量级的大颗粒来说是适用的, 但是当颗粒的尺寸逐渐降低到亚微米或纳米量级时, 刚体碰撞模型可能不再适用^[24-26]. 此时需要考虑气体分子与颗粒之间的非刚体碰撞效应, 例如范德瓦耳斯力等^[27-29]. 纳米颗粒与气体分子之间的非刚体相互作用会使气体分子的运动轨迹发生偏转, 从而影响碰撞过程中的动量传递, 最终影响颗粒的受力特性. Li 和 Wang^[30] 基于气体动理论和非刚体碰撞模型, 得到自由分子区内纳米颗粒所受的曳力表达式, 并采用半经验的处理提出了过渡区内纳米颗粒的曳力表达式^[31]:

$$F_D = -\frac{8}{3} \frac{\alpha'}{(1 + \alpha'^w)^{1/w}} \sqrt{2m_r k_B T \pi n R^2 \Omega_{\text{avg}}^{(1,1)*} V}, \quad (2)$$

$$\alpha' = \frac{9\sqrt{2\pi}\mu}{8\Omega_{\text{avg}}^{(1,1)*} \sqrt{m_r k_B T n R}}, \quad (3)$$

式中, w 是由实验数据得到的拟合值, 取为 1.143^[31], m_r 是约化质量, k_B 是玻尔兹曼常数, T 是系统温度, n 是气体数密度, $\Omega_{\text{avg}}^{(1,1)*}$ 是无量纲碰撞积分项. 但是, (2) 式的准确性尚未得到验证.

基于分子动力学 (molecular dynamics, MD) 模拟方法, 研究了过渡区内纳米颗粒的曳力特性. 研究发现, 对于纳米颗粒而言, 模拟结果与 (2) 式并不相符. 气固结合强度对纳米颗粒的曳力有显著影响, 当结合强度较强时, 需要考虑气体分子在颗粒表面的吸附效应. 使用修正的有效颗粒半径后计算 (2) 式的结果与分子动力学模拟结果吻合良好.

2 分子动力学模拟计算

2.1 分子动力学模型

本文采用分子动力学模拟方法计算纳米颗粒在过渡区内所受的曳力. 分子动力学模型如图 1 所示, 纳米颗粒悬浮于一定量的气体分子中, 其中纳米颗粒由 N_S 个铜原子组成, 气体分子由 N_F 个氩原子组成. 模拟系统在 x, y, z 方向上的长度分别为 $L_x = 270 \text{ \AA}$, $L_y = 80 \text{ \AA}$, $L_z = 80 \text{ \AA}$ ($1 \text{ \AA} = 10^{-10} \text{ m}$),

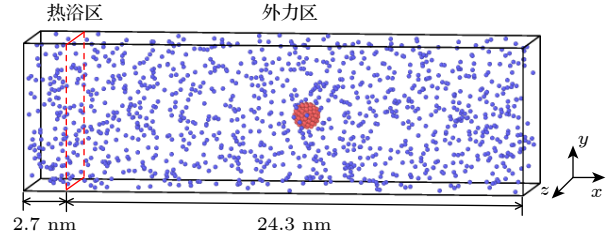


图 1 分子动力学模拟系统模型图 (红色: 纳米颗粒; 蓝色: 气体分子)

Fig. 1. Configuration of MD simulation system (Red: nanoparticle; blue: gas molecules).

3 个方向均采用周期性边界条件. 在本文的模拟系统中, 对铜原子之间的相互作用采用嵌入原子法 (embedded atomic method, EAM) 势能^[32]:

$$U_{\text{EAM}} = E_i \left[\sum_{j \neq i} \rho_j(r_{ij}) \right] + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \phi_{ij}(r_{ij}),$$

$$\phi_{ij}(r_{ij}) = \frac{P \exp[-\xi(r_{ij}/r_e - 1)]}{1 + (r_{ij}/r_e - \Omega)^{20}} - \frac{Q \exp[-\psi(r_{ij}/r_e - 1)]}{1 + (r_{ij}/r_e - \tau)^{20}}, \quad (4)$$

其中 E_i , ρ_i , r_e 分别代表嵌入能量、原子电子密度、最近邻之间的平衡间距, P, ξ, Q, ψ 是 4 个可调参数, ω 和 τ 是两个额外的截止参数. 对气-气和气-固原子之间的相互作用采用经典的 Lennard-Jones (LJ 12-6) 势能函数:

$$U_{ij}(r_{ij}) = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right], \quad (5)$$

其中, ϵ 表示 LJ 势阱深度, σ 是势能为零时的距离, r_{ij} 为原子 i 和 j 之间的距离. 气体与固体原子之间势能参数的选取, 遵循 Lorentz-Berthelot 混合原则:

$$\delta_{\text{SF}} = (\delta_S + \delta_F)/2, \quad (6)$$

$$\epsilon_{\text{SF}} = \sqrt{\epsilon_S \epsilon_F}. \quad (7)$$

表 1 列出了 LJ 势能函数的参数^[33]. 本文通过改变气-固分子之间势函数的能量参数来改变气固界面的结合强度:

$$\epsilon'_{\text{SF}} = k_{\text{SF}} \epsilon_{\text{SF}}, \quad (8)$$

式中, ϵ'_{SF} 为实际设定值, k_{SF} 为气固结合强度参数.

表 1 LJ 势函数参数值^[33]
Table 1. LJ potential parameters^[33].

	$\sigma/\text{\AA}$	ϵ/K
Ar-Ar	3.405	114
Cu-Cu	2.338	4753
Cu-Ar	2.871	736

本文使用 LAMMPS (large-scale atomic/molecular massively parallel simulator) 开源软件进行分子动力学模拟计算^[34]. 在模拟过程中, 时间步长取为 2 fs, 截断半径 $r_c = 0.9$ nm. 在弛豫阶段, 系统首先在 NVT 系综下运行 3 ns, 使用 Nosè-Hoover 热浴使得系统的温度保持在 180 K. 然后将模拟系统在 x 方向分为两个区域, 左端长度为 2.7 nm 的区域设定为热浴区, 右端长度为 24.3 nm 的区域设定为外力区, 如图 1 所示. 在热浴区施加 NVT 系综使其维持在 180 K, 在外力区域给每个气体分子添加一个外力, 5 ns 后系统内可以形成恒定的流速. 最后在 NVE 系综下运行 120 ns 并计算相关物理量. 基于遍历原理, 本文所给出的任何物理量都是在采样时间范围进行的长时间平均得到的. 为了提高计算结果的准确性, 本文采用不同初始微观条件 (即原子初始速度不同, 但需满足同一个 Maxwell 速度分布律) 下至少 8 次独立运行结果的算数平均值作为最终计算结果.

2.2 计算方法

对于悬浮在气体中的纳米颗粒, 其布朗运动会给曳力的计算带来较大的困难. 因此, 本文在纳米颗粒上施加了一个额外的简谐回复势能 U_{har} ^[35-37]:

$$U_{\text{har}} = k_{\text{har}}|x_c - x_0|^2, \quad (9)$$

式中, k_{har} 表示简谐势能的弹性系数, x_c 和 x_0 分别表示纳米颗粒的质心位置和初始位置. 当系统达到稳定后, 纳米颗粒所受的曳力与简谐力平衡, 纳米颗粒相对于它的初始位置会具有一个相对位移 Δx , 此时, 纳米颗粒所受的曳力 F_D 可以通过下式计算:

$$F_D = -k_{\text{har}}\Delta x. \quad (10)$$

为研究外加简谐势弹性系数对纳米颗粒所受曳力的影响, 计算了曳力随弹性系数 k_{har} 的变化情况. 图 2 计算结果表明, 弹性系数的大小对纳米颗粒的曳力计算结果几乎没有影响, 这是由于本文采用的曳力计算方法是基于颗粒所受曳力与简谐回复力之间的平衡. 当弹性系数 k_{har} 增大时, 相对距离 Δx 会相应减小, 但是二者的乘积基本保持不变. 因此, 曳力不会受到弹性系数 k_{har} 的影响, 而是依赖于颗粒与流体的物性及它们之间的相互作用. 文献^[38]的研究结果表明, 只要 $k_{\text{har}} > 0.1\epsilon_F/\sigma_F^2$, 弹性系数对统计结果不会产生影响, 这与本文的结论一致. 本文选取 $k_{\text{har}} = 30\epsilon_F/\sigma_F^2$.

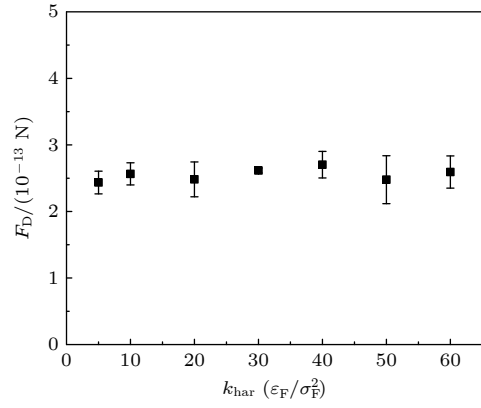


图 2 纳米颗粒的曳力随弹性系数 k_{har} 的变化

Fig. 2. Drag force on nanoparticles versus elastic coefficient k_{har} .

本文采用 Green-Kubo 公式对气体黏度进行计算^[39]:

$$\mu = \frac{1}{Vk_{\text{B}}T} \int_0^\infty \langle J_{\gamma\nu}(0)J_{\gamma\nu}(t) \rangle dt, \quad (11)$$

$$J_{\gamma\nu} = \sum_{i=1}^N m_i v_i^\gamma v_i^\nu - \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N r_{ij}^\gamma \frac{\partial U}{\partial r_{ij}^\nu}, \quad (12)$$

式中, V 为模拟盒子的体积, $\langle \dots \rangle$ 为系综平均值, $J_{\gamma\nu}$ 为 $\gamma\nu$ 应力张量的分量 ($\gamma\nu = xy, xz, yz$), N , m , v 分别为气体分子的数量、质量、速度.

球形纳米颗粒的半径可使用下式进行计算^[40]:

$$R = \sqrt{\frac{5}{3} \sum_{j=1}^{N_s} \frac{|x_j - x_c|^2}{N_s}}, \quad (13)$$

式中, x_j 为固体原子 j 的坐标.

3 纳米颗粒的曳力计算

3.1 纳米颗粒的有效粒径

在过渡区内, 纳米颗粒的曳力受 Knudsen 数的影响较大. 通过选取适当的气体分子数来改变系统的 Knudsen 数, 使得模拟区域处于过渡区内. 图 3 显示了 3 种气固结合强度下曳力随着 Kn 的变化. 可以看到, 纳米颗粒的曳力随着 Kn 而逐渐降低. 这是由于当 Kn 增大时, 气体分子数逐渐减少, 气体分子与颗粒之间的碰撞频率逐渐降低, 气固之间的动量传递随之减弱, 因而纳米颗粒受到的曳力逐渐减小. 此外, 当气固结合强度较大时, 气体分子与颗粒之间的相互作用较强, 气固之间的动量传递较强, 因而颗粒会受到更大的曳力.

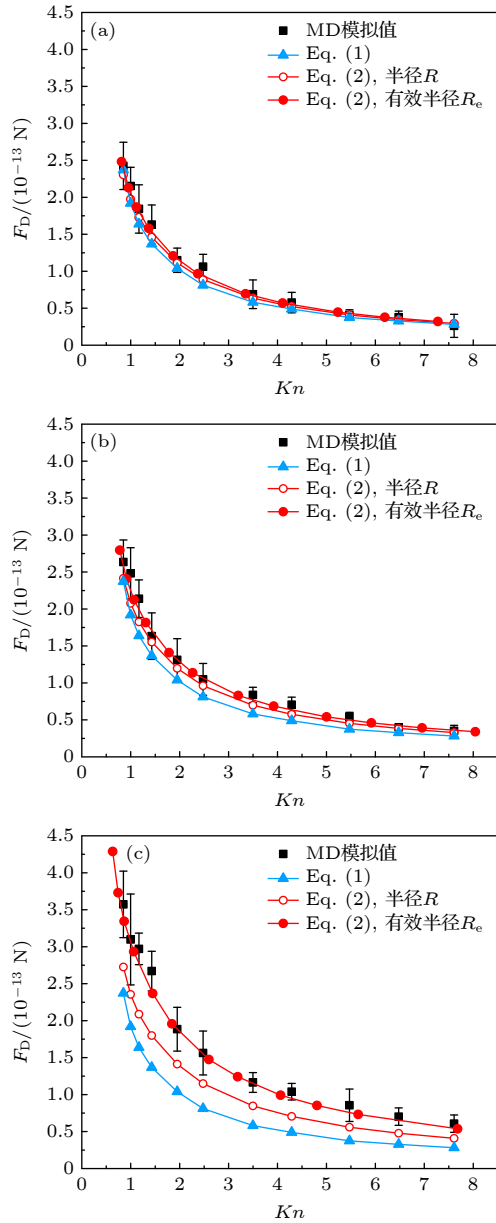


图3 MD模拟值与理论公式在3种气固结合强度下的对比结果 (a) $k_{SF} = 0.01$; (b) $k_{SF} = 0.1$; (c) $k_{SF} = 0.5$

Fig. 3. Comparison of MD simulation results of the drag force with theoretical values at various k_{SF} : (a) $k_{SF} = 0.01$; (b) $k_{SF} = 0.1$; (c) $k_{SF} = 0.5$.

为了便于将模拟结果与理论公式进行比较, 将(1)式和(2)式的计算结果也绘制在图3中. 当 $k_{SF} = 0.01$ 时, 气体分子与纳米颗粒之间的碰撞过程近似于刚体碰撞, 此时 MD 模拟结果与(1)式和(2)式的结果均吻合良好. 当 $k_{SF} = 0.1$ 和 $k_{SF} = 0.5$ 时, 气体分子与纳米颗粒之间的非刚体碰撞效应不可忽略, 相比于(1)式, MD 模拟值更接近于(2)式的结果, 这表明考虑气-固间非刚体相互作用的(2)式对纳米颗粒的曳力具有更好的预测. 此外,

当 $k_{SF} = 0.1$ 时, MD 模拟结果略大于(2)式的预测值, 而当 $k_{SF} = 0.5$ 时, MD 模拟结果明显大于(2)式的结果(见空心圆点). 由于气体分子与纳米颗粒之间的相互作用, 气体分子通常会被吸附在颗粒表面, 并在颗粒表面随机行走, 当气体分子获得足够多的能量后, 就会从颗粒表面离开, 在颗粒表面达到一个吸附与脱附的动态平衡^[41,42], 如图4所示. 此外, 气体分子在颗粒表面的吸附特性可由一个无量纲参数来表征, 即 $\epsilon'_{SF} / (k_B T)$, 其中 $\epsilon'_{SF} = k_{SF} \epsilon_{SF}$. 该比率体现了气固结合能与气体分子动能之间的相对大小^[42-44]. 当 $\epsilon'_{SF} / (k_B T)$ 较小时, 气固结合能低于气体分子的动能, 气体分子容易克服界面势垒而脱附. 当 $\epsilon'_{SF} / (k_B T)$ 逐渐增大时, 气固之间的结合能逐渐增大或者气体分子的动能逐渐降低, 因而大量气体分子被吸附于颗粒表面. 图4展示了4种 k_{SF} 下气体分子在纳米颗粒表面吸附的模拟快照. 当 $k_{SF} = 0.01$ 时, $\epsilon'_{SF} / (k_B T) \ll 1$, 几乎没有气体分子能被吸附在颗粒表面, 如图4(a)所示, 此时气体分子与颗粒之间的相互作用接近于刚体碰撞, 因此 MD 模拟结果与(1)式及(2)式的预测吻合良好; 当 $k_{SF} = 0.1$ 时, $\epsilon'_{SF} / (k_B T)$ 略小于1, 部分气体分子可吸附在颗粒表面, 见图4(b); 当 $k_{SF} = 0.5$ 时, $\epsilon'_{SF} / (k_B T) > 1$, 大量气体分子被吸附, 并在颗粒表面形成一个吸附层, 见图4(c); 当 $k_{SF} = 2.0$ 时, $\epsilon'_{SF} / (k_B T) \gg 1$, 颗粒表面吸附达到饱和. 这个吸附层会增大颗粒的尺寸, 并增大了气体分子与颗粒之间的碰撞面积, 更有利于二者之

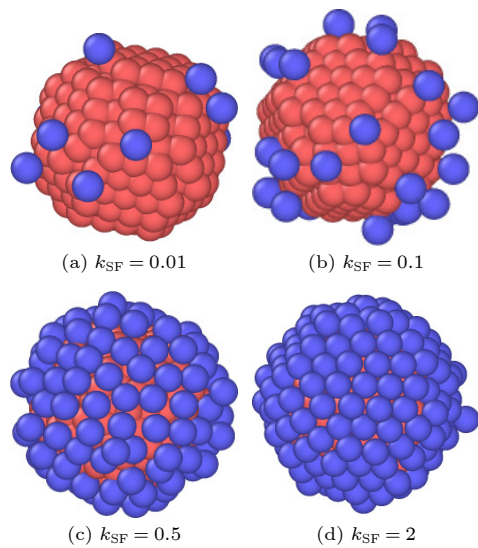


图4 气体分子在纳米颗粒表面吸附状况的模拟快照

Fig. 4. Snapshots of the adsorption of gas molecules (blue) on the nanoparticle (red) surface.

间的动量传递,从而增大了纳米颗粒所受的曳力.因此,当 $k_{\text{SF}} = 0.1$ 和 $k_{\text{SF}} = 0.5$ 时,MD 模拟值会大于 (2) 式的预测结果.

考虑到气体分子在颗粒表面的吸附效应,本文提出需要引入有效颗粒半径对 (2) 式进行修正.为了计算有效颗粒半径,首先需要评估吸附层厚度.吸附层厚度与界面处气体分子的分布情况紧密相关.当 k_{SF} 较小时,颗粒表面吸附的气体分子较少,其等效的吸附层厚度较小; k_{SF} 逐渐增大时,颗粒表面吸附的气体分子增多,吸附层厚度增大,颗粒的有效半径增大.本文引入一个吸附参数 α 来表征纳米颗粒表面气体分子的吸附强弱, $\alpha(k_{\text{SF}}) = N_{\text{a}}(k_{\text{SF}})/N_{\text{m}}$, 其中 $N_{\text{a}}(k_{\text{SF}})$ 为各种 k_{SF} 下吸附的气体分子数, N_{m} 为 $k_{\text{SF}} = 2$ 时的吸附气体分子数.图 5 展示了吸附率 α 随 k_{SF} 的变化情况.可以看到,吸附率 α 随着 k_{SF} 而逐渐增大,并在 k_{SF} 较大时逐渐趋于定值.当气固结合强度较弱时,只有很少的气体分子会被吸附在颗粒表面,因而随着气固结合强度的增强,吸附参数增大较快.对于较强的气固结合强度,由于纳米颗粒表面已经吸附了较多的气体分子并覆盖在颗粒表面,入射气体分子难以与纳米颗粒发生相互作用,而更可能与已被吸附的气体分子发生碰撞,此时入射气体分子不容易被颗粒吸附.

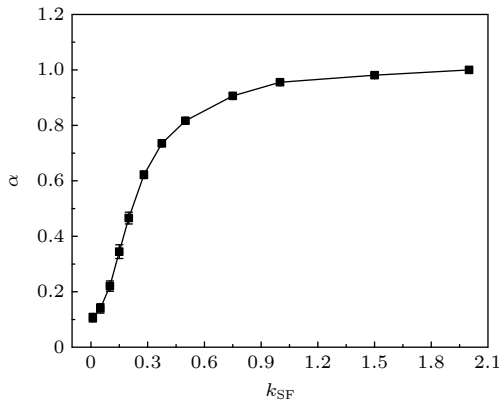


图 5 吸附率 α 随气固结合强度 k_{SF} 的变化

Fig. 5. Adsorption ratio α versus gas-particle coupling parameters k_{SF} .

吸附率 α 可表示各种 k_{SF} 下的吸附层厚度与颗粒表面被完全覆盖时吸附层厚度的比值,吸附层厚度与原始颗粒半径之和即为有效颗粒半径.有效颗粒半径可以近似基于下式计算:

$$R_{\text{e}} = R + \delta, \quad \delta = \alpha \delta_{\text{m}}, \quad (14)$$

式中, δ 是界面吸附层的有效厚度, δ_{m} 是当 $k_{\text{SF}} = 2$ 时的吸附层厚度. $k_{\text{SF}} = 2$ 时的吸附层厚度可以在图 4 中得到.考虑到气体分子在纳米颗粒表面的吸附对 Knudsen 数的计算也会有影响,因此本文对 Kn 也进行了修正, $Kn_{\text{e}} = \lambda/R_{\text{e}}$.把修正后的有效半径 R_{e} 和 Knudsen 数 Kn_{e} 代入 (2) 式中,将计算的曳力值重新绘制在图 3 中(见实心圆点).可以看到,修正后的理论公式结果与 MD 模拟值非常吻合.

3.2 颗粒尺寸对纳米颗粒曳力的影响

纳米颗粒所受曳力与其颗粒尺寸有关,本文通过改变固体原子数来改变纳米颗粒的大小.固体原子数分别选取 $N_{\text{S}} = 141, 225, 369, 555, 767$ 和 1061 , 根据 (13) 式可计算出对应颗粒半径 R 分别为 $0.724, 0.869, 1.014, 1.158, 1.303$ 和 1.448 nm.同时,气体分子数密度维持在 1.97 nm^{-3} ,以确保流动区域处于过渡区.图 6 展示了当 $k_{\text{SF}} = 0.01, 0.1$ 和 0.5 时纳米颗粒的曳力随着颗粒半径的变化图,其中气体流速维持在大约 1.5 m/s .结果表明,纳米颗粒的曳力随颗粒半径的增大而增大.这是由于当颗粒半径增大时,其表面积也会随之越大,气体分子更容易与颗粒发生碰撞,从而促进了气体分子与纳米颗粒之间的动量传递,因此颗粒会受到更大的曳力.此外,为了便于与理论公式进行比较,(2) 式的计算值也被绘制在图 6 中.可以看到,当 $k_{\text{SF}} = 0.01$ 时,MD 模拟结果与 (2) 式的预测值相当吻合,然而当 $k_{\text{SF}} = 0.1$ 和 $k_{\text{SF}} = 0.5$ 时,MD 模拟结果则大于 (2) 式的计算结果.如上所述,当气固结合强度较

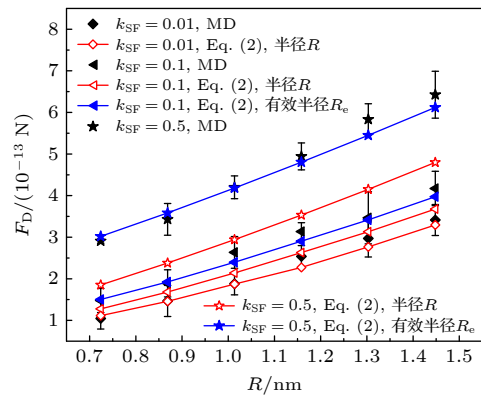


图 6 MD 模拟值与 (2) 式在 3 种气固结合强度下的对比结果

Fig. 6. Comparison of MD simulation results of the drag force with Eq. (2) at various k_{SF} .

大时, 气体分子在颗粒表面的吸附作用不容忽视, 需要对颗粒半径进行修正. 根据 (14) 式可得到修正的有效颗粒半径, 代入 (2) 式重新计算了曳力, 并绘制于图 6 中 (见蓝色点线). 由图 6 可知, 此时考虑颗粒粒径修正之后的计算结果与 MD 模拟值更加吻合.

3.3 气体流速对纳米颗粒曳力的影响

气体流速也是影响纳米颗粒所受曳力的重要因素之一. 在本文的模拟中, 通过调整外力区域内施加在每个气体分子上的外力从而形成不同的气体流速. 图 7 展示了在 3 种气固结合强度下曳力随着气体流速的变化图. 结果表明, 纳米颗粒的曳力随着气体流速而增大. 当气体流速增大时, 气体分子与颗粒的碰撞更加剧烈, 加强了二者之间的动量传递, 因而颗粒具有更大的曳力. 此外, (2) 式也被绘制在图 7 中并与 MD 模拟值进行对比. 当 $k_{SF} = 0.01$ 时, 气体分子难以吸附在颗粒表面, MD 模拟值能与 (2) 式的结果良好吻合. 而当 $k_{SF} = 0.1$ 和 $k_{SF} = 0.5$ 时, 气体分子与纳米颗粒之间的相互作用较强, 气体分子容易被吸附在颗粒表面, 并增大了纳米颗粒的半径, 使得 MD 模拟值大于 (2) 式的预测值, 这与上文结论一致. 考虑到气体分子的吸附, 需要采用修正的有效颗粒半径. 在过渡区, 由于气体分子比较稀薄, 可以忽略流速对气体分子吸附效应的影响. 根据 (14) 式可计算得到有效颗粒半径, 代入 (2) 式并将计算结果绘制在图 7 中 (见蓝色点线). 不难看出, 修正后的 (2) 式与 MD 模拟结果吻合更好.

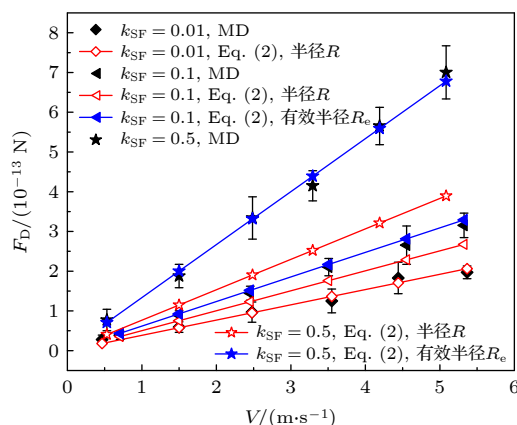


图 7 MD 模拟值与 (2) 式在三种气固结合强度下的对比结果

Fig. 7. Comparison of MD simulation results of the drag force with Eq. (2) at various k_{SF} .

4 结 论

本文基于分子动力学模拟方法, 计算了过渡区内纳米颗粒所受的曳力, 并与 Li 和 Wang^[31] 提出的纳米颗粒曳力计算式进行对比. 结果表明, 对于纳米颗粒而言, 当气固结合强度较弱时, 分子动力学模拟结果可以与理论计算结果吻合较好; 当气固结合强度较强时, 分子动力学模拟结果明显大于理论计算的结果. 进一步分析表明, 此差异是由气体分子在纳米颗粒表面的吸附行为所导致的. 本文基于气体分子在颗粒表面的吸附特性, 提出引入有效颗粒半径修正, 其过渡区内曳力的理论计算结果与分子动力学模拟结果可以更好地吻合. 因此, 对于纳米颗粒而言, 气体分子在颗粒表面的吸附效应不可忽略.

参考文献

- [1] Li Z G 2009 *Phys. Rev. E* **80** 061204
- [2] Wong R Y M, Liu C R, Wang J, Chao C Y H, Li Z G 2012 *J. Nanosci. Nanotechnol.* **12** 2311
- [3] Livi C, Staso G D, Clercx H J H, Toschi F 2022 *Phys. Rev. E* **105** 015306
- [4] Qiu J, Qiu T T 2015 *Carbon* **81** 20
- [5] Zhang Y Y, Li S Q, Yan W, Yao Q 2012 *Powder Technol.* **227** 24
- [6] Breddan M J D, Wirz R E 2023 *J. Aerosol Sci.* **167** 106079
- [7] Westmeiera D, Solouk-Saranb D, Vallet C 2018 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **115** 7087
- [8] Pankhurst Q, Jones S, Dobson J 2016 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49** 501002
- [9] Mackus A J M, Weber M J, Thissen N F W, Garcia-Alonso D, Vervuurt R H J, Assali S, Bol A A, Verheijen M A, Kessels W M M 2015 *Nanotechnology* **27** 034001
- [10] Linic S, Aslam U, Boerigter C, Morabito M 2015 *Nat. Mater.* **14** 567
- [11] Givehchi R, Tan Z 2015 *J. Aerosol Sci.* **83** 12
- [12] Liu C R, Li Z G, Wang H 2016 *Phys. Rev. E* **94** 023102
- [13] Liu D J, Zhou F, Chen S Y, Hu Z L 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 157901 (in Chinese) [刘东静, 周福, 陈帅阳, 胡志亮 2023 物理学报 **72** 157901]
- [14] Wang J, Su J J, Xia G D 2020 *Phys. Rev. E* **101** 013103
- [15] Gutiérrez-Varela O, Santamaria R 2021 *J. Mol. Liq.* **338** 116466
- [16] Guo R X, Ai B Q 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 200501 (in Chinese) [郭瑞雪, 艾保全 2023 物理学报 **72** 200501]
- [17] Liao M J, Wei M T, Xu S X, Ouyang D H, Sheng P 2019 *Chin. Phys. B* **28** 084701
- [18] Liu C H, Liu T Y, Huang R Z, Gao T F, Shu Y G 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 240501 (in Chinese) [刘晨昊, 刘天宇, 黄仁忠, 高天附, 舒咬根 2019 物理学报 **68** 240501]
- [19] Epstein P S 1924 *Phys. Rev.* **23** 710
- [20] Stokes G G 1851 *Proc. Cambridge Philos. Soc.* **9** 8
- [21] Bird G A 1994 *Molecular Gas Dynamics and the Direct*

- Simulation of Gas Flows* (Oxford: Clarendon Press) p55
- [22] Cunningham E 1910 *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **83** 357
- [23] Allen M D, Raabe O G 1982 *J. Aerosol Sci.* **13** 537
- [24] Liu C R, Wang H 2019 *Phys. Rev. E* **99** 042127
- [25] Su J J, Wang J, Xia G D 2021 *Chin. Phys. B* **30** 075101
- [26] Liu W, Wang J, Xia G D, Li Z G 2023 *Phys. Fluids* **35** 083316
- [27] Luo S, Wang J, Xia G D, Li Z G 2016 *J. Fluid Mech.* **795** 443
- [28] Wang J, Yu S, Luo S, Xia G D, Zong L 2018 *Phys. Fluids* **30** 063302
- [29] Luo S, Wang J, Yu S, Xia G D, Li Z G 2018 *J. Fluid Mech.* **846** 392
- [30] Li Z G, Wang H 2003 *Phys. Rev. E* **68** 061206
- [31] Li Z G, Wang H 2003 *Phys. Rev. E* **68** 061207
- [32] Zhou X W, Johnson R A, Wadley H N G 2004 *Phys. Rev. B* **69** 144113
- [33] Kröger M 2004 *Phys. Rep.* **390** 453
- [34] Plimpton S 1995 *J. Comput. Phys.* **117** 1
- [35] Galliero G, Volz S 2008 *J. Chem. Phys.* **128** 064505
- [36] Liu W, Cui J, Wang J, Xia G D, Li Z G 2023 *Phys. Fluids* **35** 032004
- [37] Cui J, Su J J, Wang J, Xia G D, Li Z G 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 055101 (in Chinese) [崔杰, 苏俊杰, 王军, 夏国栋, 李志刚 2021 物理学报 **70** 055101]
- [38] Tsuji T, Iseki H, Hanasaki I, Kawano S 2016 *30th International Symposium on Rarefied Gas Dynamics* **1786** 110003
- [39] Hess B 2002 *J. Chem. Phys.* **116** 209
- [40] Gomez A, Rosner D E 1993 *Combust. Sci. Technol.* **89** 335
- [41] Ma A J, Chen S J, Li Y X, Chen Y 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 148201 (in Chinese) [马奥杰, 陈颂佳, 李玉秀, 陈颖 2021 物理学报 **70** 148201]
- [42] Li Z G, Wang H 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 014502
- [43] Liu C R, Li Z G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 174501
- [44] Li Z G 2009 *Phys. Rev. E* **79** 026312

Simulation study of drag force characteristics of nanoparticles in transition regime*

Liu Wang-Wang Zhang Ke-Xue Wang Jun[†] Xia Guo-Dong

(Beijing Key Laboratory of Heat Transfer and Energy Conversion, MOE Key Laboratory of Enhanced Heat Transfer and Energy Conservation, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China)

(Received 14 December 2023; revised manuscript received 11 January 2024)

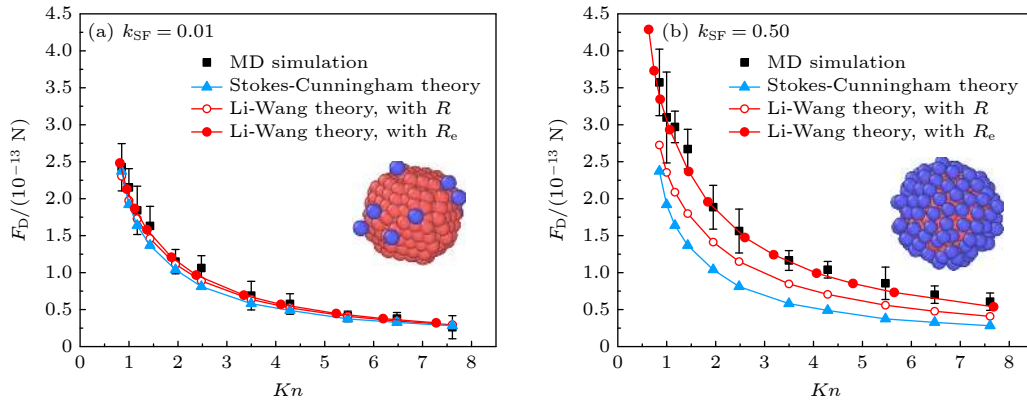
Abstract

Transport properties of nanoparticles in gases have many practical applications, such as aerosol science, combustion, and micro- and nano-scale fabrication. A nanoparticle moving in a fluid is expected to experience a drag force, which determines the transport property of the particle. According to the Einstein relationship, the diffusion coefficient of a particle is inversely proportional to the drag force coefficient. However, in the transition regime, it is usually difficult to evaluate the drag force of suspended particles. A typical method is to extend the asymptotic solution of the free molecular or continuum limit to the transition regime. According to the gas kinetic theory, Li and Wang proposed a theoretical expression for drag force on nanoparticles in the free molecular regime, which is then extended to the entire range of Knudsen number following a semi-empirical approach [Li Z G, Wang H 2003 *Phys. Rev. E* **68** 061207]. For nanoparticles, it is necessary to verify the theoretical predictions since the gas-particle non-rigid-body interactions must be taken into account. In this work, the drag force on nanoparticle in the transition regime is investigated by using molecular dynamics (MD) simulation. To evaluate the drag force, a harmonic potential is used to the nanoparticle to constrain its Brownian motion in our MD simulation. In the steady state, the drag force can be obtained by the balance between the drag force and harmonic force. It is found that the gas-particle non-rigid-body interaction has a significant influence on the drag force of nanoparticle. For weak gas-solid coupling, the MD simulation results can be in good agreement with the prediction of Li-Wang theory. However, for strong coupling, there exists significant discrepancy between the MD simulation results and the theoretical results. Due to the gas-solid

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51776007).

[†] Corresponding author. E-mail: jwang@bjut.edu.cn

intermolecular interactions, gas molecules can be adsorbed on the nanoparticle surface, and after a time period, they may be re-emitted from the surface when they gain sufficient kinetic energy. Therefore, an adsorption-desorption equilibrium and an adsorption layer can be established on the particle surface. The adsorption layer enlarges the collision cross-sectional area and enhances the momentum transfer between gas molecules and the particle, and thus the drag force increases. This can explain the inconsistencies between the theoretical results and MD simulations. In this work, we introduce an adsorption ratio to evaluate the thickness of the adsorption layer. Then, the effective particle radius can be defined by the sum of particle radius and the thickness of the adsorption layer. By using the effective particle radius, the simulation values are in very good agreement with the theoretical predictions. The results of this work provide insights into the applications of nanoparticles in aerosol science.



Keywords: nanoparticle, transition regime, drag force, molecular dynamic simulations

PACS: 51.10.+y, 47.11.Mn, 47.61.Jd

DOI: 10.7498/aps.73.20231861



过渡区内纳米颗粒的曳力特性模拟研究

刘旺旺 张克学 王军 夏国栋

Simulation study of drag force characteristics of nanoparticles in transition regime

Liu Wang-Wang Zhang Ke-Xue Wang Jun Xia Guo-Dong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 075101 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231861

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231861>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

自由分子区内纳米颗粒的热泳力计算

Thermophoretic force on nanoparticles in free molecule regime

物理学报. 2021, 70(5): 055101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201629>

带电纳米颗粒与相分离的带电生物膜之间相互作用的分子模拟

Molecular simulation of interaction between charged nanoparticles and phase-separated biomembranes containing charged lipids

物理学报. 2019, 68(2): 028701 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181891>

纳米颗粒布朗扩散边界条件的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of Brownian diffusion boundary condition for nanoparticles

物理学报. 2021, 70(14): 148201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202240>

脱氧核糖核酸柔性的分子动力学模拟:Amber bsc1和bsc0力场的对比研究

Molecular dynamics simulations on DNA flexibility: a comparative study of Amber bsc1 and bsc0 force fields

物理学报. 2018, 67(10): 108701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180326>

纳米液滴撞击柱状固体表面动态行为的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation on dynamic behaviors of nanodroplets impinging on solid surfaces decorated with nanopillars

物理学报. 2021, 70(13): 134704 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210094>

不同尺寸Cu₆₄Zr₃₆纳米液滴的快速凝固过程分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of rapid solidification of Cu₆₄Zr₃₆ nanodrops of different sizes

物理学报. 2021, 70(24): 246401 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211235>