

无阀纳米泵中水流的反常堵塞*

李伟健 周晓艳[†] 陆杭军[‡]

(浙江师范大学, 凝聚态物理研究所, 金华 321004)

(2024 年 1 月 17 日收到; 2024 年 2 月 24 日收到修改稿)

对于颗粒物质, 在锥形通道的窄口处容易发生堵塞现象, 实验中通常利用机械振动进行疏通. 而对于无孔不入的水却不同, 即使在纳米尺度的碳纳米管中仍然可以快速通透. 本文利用分子动力学模拟研究了由锥形碳纳米管与石墨烯平面构成的无阀纳米泵, 发现水输运在一定条件下也会出现反常堵塞. 与颗粒物质截然不同, 振动方法无法恢复水流, 相反, 它促使水在纳米水泵的通道窄口处发生堵塞. 通过分析堵塞区水的密度分布、氢键寿命、水分子的结构特征, 揭示了反常堵塞是由腔体中振动膜的高频振动引发水的结构相变造成的.

关键词: 无阀纳米泵, 水流堵塞, 振动, 氢键网络**PACS:** 47.61.-k, 61.46.Np, 61.20.Ja, 83.10.Tv**DOI:** 10.7498/aps.73.20240115

1 引言

无阀微泵是一种小型化、高精度和可控的微流控器件, 由于其在化学、生物医药、信息技术、能源等众多领域具有广泛的应用前景而受到越来越多的关注^[1-5]. 近年来, 纳米科学和纳米技术的迅猛发展不断将流控器件的尺寸推向纳米量级. 2001 年, Hummer 等^[6]率先从理论上预言了水分子能够快速通透刚好能容纳一个水分子的 (6, 6) 碳纳米管. Ghosh 等^[7]在 2003 年从实验上证明了水可以在纳米尺度下的碳管中流动. 从此开启了对碳纳米管中受限水性及其应用的研究. 系列研究表明, 受限在纳米孔道里的流体呈现出许多不同于宏观状态下的性质^[8-12]. Holt 等^[9]发现, 通过直径为 1—2 nm 的碳纳米管中的水流量比连续流体力学模型计算的值高 3 个数量级以上, 进一步研究还发现当碳管直径小于一定值后, 碳管内水的摩擦力会消失^[13]. 利用水在碳纳米管中几乎无摩擦地流动的特性, 各

种基于碳纳米管的无阀纳米泵的设计被提出^[14-21]. 水流在纳米泵中表现出丰富的物理现象^[22-28]. 然而, 在纳米尺度下, 宏观流体力学规律的适用性将受到挑战, 尺度效应变得十分明显, 因此纳米流体器件中的流体行为及其背后的机理仍需进一步深入研究.

锥形通道常被作为无阀泵的重要部分, 由于其不对称的形状, 在整流振荡流体方面起着至关重要的作用^[29-31]. 而且, 不对称的锥形通道在生物系统中也很常见^[32-34], 主要负责控制生命活动所需的物质跨膜输运. 由于生物通道结构和化学组分的复杂性, 其微观机理仍未彻底弄清楚. 研究在纳米尺度下不对称性孔道中水的输运性质对理解跨膜输运过程及设计高效可控的纳米泵都有重要的意义.

在锥形通道的孔口, 由于颗粒与孔壁之间的摩擦以及颗粒内部之间的相互作用, 在一定条件下会形成阻塞拱门, 颗粒物质 (如粮食、沙子或白砂糖等) 会发生堵塞^[35,36]. 外部机械振动通常是恢复流动的一种常用方法^[37]. 而水与颗粒物质不同, 理论

* 基金: 国家自然科学基金 (批准号: 11875237) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: zxylyu@zjnu.cn

[‡] 通信作者. E-mail: zjlhjun@zjnu.cn

及实验研究表明水分子可以快速通透纳米级通道^[9,38]. 甚至对于直径仅为 0.81 nm 的 (6, 6) 碳纳米管, 水分子也能快速通透^[6]. 本文利用分子动力学模拟发现在无阀纳米泵的锥形碳纳米管中出现了反常的水分子堵塞现象. 值得注意的是, 纳米泵中所采用的开口锥形碳纳米管最窄区域的直径为 1.2 nm, 大于 (6, 6) 碳纳米管的直径, 更远大于一个水分子的直径 (约 0.28 nm). 在正常情况下, 水分子应该可以快速通过这样的纳米孔道. 模拟结果分析表明, 在外部高频振动驱动下, 水在纳米泵窄口处发生了无序到有序的转变. 其主要原因在于振动膜的高频振动大幅延长了锥形碳纳米管窄口区域内水分子间氢键的平均寿命, 促使受限在该区域的水分子形成了更加有序的氢键网络.

2 模拟方法

2.1 纳米泵模型与参数

模拟系统如图 1 所示, 无阀纳米泵由左右两个锥形碳纳米管和中间的泵体腔构成. 中间的泵体腔, 由上下 2 片 (5 nm × 5 nm) 单层石墨烯及左右 2 片相同尺寸的碳平面组成, x 方向上采用周期性边界条件. 其中, 底部的石墨烯固定, 而顶部的石墨烯作为振动膜, 除了边缘一圈碳原子固定外其余的碳原子并不固定. 左边的碳平面中间开有直径为 1.5 nm 的孔, 与左边的锥形碳纳米管相连. 右边的碳平面中间开有直径为 3.5 nm 的孔, 与右侧的锥形碳纳米管相连. 作为通道的两个锥形碳纳米管尺寸相同, 左端管口直径为 3.2 nm, 右端管口直径为 1.2 nm, 管长为 3.2 nm. 在纳米泵的两端通

过 2 个中间开口的碳平面分别连接左右两侧的水浴. 为了纳米泵的稳固, 除了泵体顶部的振动膜, 其余组件在模拟过程中被固定. 整个体系里的水分子数为 9935 个. 位于泵体顶部石墨烯 (振动膜) 中心的标记碳原子 (橘色小球) 为振动原子, 用来提供驱动力, 振动原子沿着 y 轴运动, 其运动方程为 $y = y_0 + A\cos(\omega t + \varphi)$, 其中 y_0 是振动碳原子的初始位置, A 是振幅, ω 是角频率, φ 是初始相位. 频率 f 为 $\omega/(2\pi)$. 因此, 当振动原子周期性振荡时, 其所在的石墨烯平面上的其他碳原子由于共价键的作用会协同振动. 为了研究小幅微扰产生的影响, 而非力学形变产生的排空效应, 本文中选取振幅 A 为 0.18 nm^[11]. 黄色标记的部分代表左右两个锥形纳米管窄口端厚度为 0.4 nm 的区域, 分别记为 LP (left pore) 和 RP (right pore).

对于上述系统, 利用分子动力学软件 Gromacs4.0.7^[39], 在正则系综下进行模拟. 模拟盒子大小为 5.1 nm × 5.0 nm × 18.2 nm. 采用 V-rescale 方法使系统温度保持在 300 K, 温度耦合系数 $\tau = 0.1$ ps^[40]. 系统中的水分子采用 TIP4P 模型. 本文中石墨烯均不带电, 石墨烯平面的总势能包括碳原子间的范德瓦耳斯相互作用及成键相互作用, 可以用以下势能函数来表示:

$$V_{\text{total}} = \sum_{\text{VDW}} 4\epsilon_{\text{cc}} \left[\left(\frac{\sigma_{\text{cc}}}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{\text{cc}}}{r} \right)^6 \right] + \sum_{\text{bonds}} \frac{1}{2} k_b (r - r_0)^2 + \sum_{\text{angles}} \frac{1}{2} k_\theta (\theta - \theta_0)^2 + \sum_{\text{dihedrals}} \frac{1}{2} k_\xi (\xi - \xi_0)^2,$$

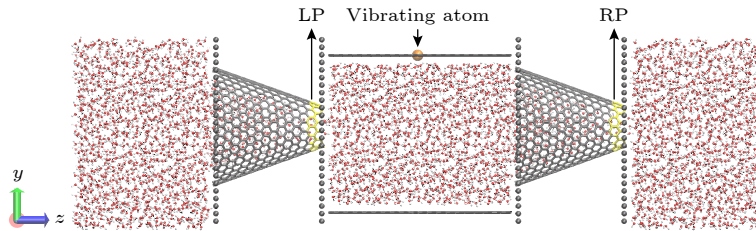


图 1 模拟系统图, 由左右两个锥形碳纳米管及中间泵体组成的无阀纳米泵, 通过两个碳平面 (灰色小球) 连接左右水浴, 红色小球和白色小球分别表示水分子中的氧原子和氢原子; 橘色小球代表振动原子; 左右锥形碳纳米管的窄口端用黄色标记, 分别记为 LP (left pore) 和 RP (right pore)

Fig. 1. Simulation system. A valve-less nanopump consists of carbon nanocones on both sides, a fluid cavity in the center, connected by carbon planes (gray spheres) to two reservoirs. Red and white spheres represent oxygen and hydrogen atoms in water molecules, respectively. The orange sphere represents the vibrating atom. The narrow ends of the carbon nanocones are marked in yellow and labeled as LP (left pore) and RP (right pore), respectively.

其中所有参数来自文献 [7], $\sigma_{\text{CC}} = 0.34 \text{ nm}$, $\varepsilon_{\text{CC}} = 0.3612 \text{ kJ/mol}$, 键长 $r_0 = 0.142 \text{ nm}$, 键角 $\theta_0 = 120^\circ$, 劲度系数分别为 $k_b = 393\,960 \text{ kJ}/(\text{mol} \cdot \text{nm}^2)$, $k_\theta = 527 \text{ kJ}/(\text{mol} \cdot (^\circ)^2)$ 和 $k_\xi = 52.718 \text{ kJ}/(\text{mol} \cdot (^\circ)^2)$. 碳与水分子的范德瓦耳斯相互作用参数 $\sigma_{\text{CO}} = 0.3275 \text{ nm}$, $\varepsilon_{\text{CO}} = 0.4802 \text{ kJ/mol}$. 截断半径选取为 1.4 nm . 对于水-水之间的长程静电相互作用, 利用 PME (particle-mesh ewald) 方法进行统计, 截断半径为 1.4 nm . 系统在 3 个方向均采用周期性边界条件. 运动方程采用 Leapfrog 方法进行积分, 时间步长为 1.0 fs .

2.2 流量的统计

本文设计了一个由 2 个开口的碳纳米锥 (锥形碳纳米管) 和 1 个泵体构成的纳米泵 (图 1), 泵体中膜的振动使系统远离平衡态, 而左右 2 个不对称的锥形碳纳米管则破坏了空间对称性, 根据棘轮理论, 这个系统可以形成水的定向流. 定向流的大小由平均净水通量来描述, 其定义为

$$\text{flux}(t) = \frac{N_{\text{right}}(t) - N_{\text{left}}(t)}{t},$$

其中, t 是总模拟时间, $N_{\text{right}}(t)$ 指在 t 时间内从纳米泵的左端进入后从右端出去的水分子总数, 而 $N_{\text{left}}(t)$ 则表示从纳米泵的右端进入后从左端出去的水分子总数. 本文选取频率范围 $0\text{--}1667 \text{ GHz}$ 内的 24 个频率进行模拟研究, 每个频率对应的模拟时间不少于 20 ns , 最后 5 ns 的数据用来分析统计.

2.3 氢键的平均寿命

水分子之间的氢键定义本文采用几何方法: 当两个水分子的氧原子间距小于 3.5 \AA , 同时 $\text{O} \cdots \text{H}$ 角小于 30° 时, 则形成一个氢键. 氢键的平均寿命由氢键维持时间的概率分布积分得到, 设寿命为 t 的氢键的概率分布函数为 $P(t)$, 氢键平均寿命计算公式如下:

$$\tau_{\text{HB}} = \int_0^\infty tP(t)dt,$$

且 $P(t)$ 满足归一化条件, $\int_0^\infty P(t)dt = 1$. 具体地, 在模拟过程中, 每一个状态氢键的统计时间为 5 ns , 保存步长为 1 fs , 对于每个时间步, 检查系统中的所有可能氢键, 记录氢键形成和断裂的事件, 计算出它们的寿命, 通过直方图进行统计分析,

最后根据寿命分布通过加权平均算出氢键的平均寿命.

3 结果与讨论

本文设计的纳米泵可利用外部振动实现定向流. 图 2 显示了纳米泵中的水流量随振动频率变化的规律. 显然, 当系统处于平衡态时, 纳米泵中的水流量为 0. 在低频范围 ($0\text{--}300 \text{ GHz}$) 内, 水流量在零附近小幅波动. 当振动频率继续增大, 水分子定向流动明显增强, 在 625 GHz 时, 纳米泵中流量达到峰值, 约为 83 ns^{-1} , 相当于生物水通道中水流量 ($3.9 \pm 0.6 \text{ ns}^{-1}$) 的 20 倍 [41]. 有趣的是再进一步提高振动频率时, 水流量反而迅速减小, 并在 1000 GHz 时减小至 0, 而且, 在振动频率大于 1000 GHz 的范围内流量始终为零. 通过分析模拟数据, 发现从左侧 (右侧) 水浴通过纳米泵到达右侧 (左侧) 水浴的水分子数 $N_{\text{right}}(t)$ 和 $N_{\text{left}}(t)$ 竟然为 0, 这意味着纳米水泵中的锥形纳米管被水堵塞了! 值得注意的是, 本研究采用的锥形纳米管小口直径为 1.2 nm , 远大于一个水分子的尺度 ($\sim 0.28 \text{ nm}$), 比水分子可以快速通透的 (6, 6) 碳纳米管的直径也要大 0.4 nm 左右, 但是水流却被堵住. 通常, 在宏观世界里, 当颗粒物质在通过孔口被堵住时, 通常采用机械振动来恢复流动状态 [37]. 但是, 在本文中无阀纳米泵中的水分子却因为高频振动而导致从流动状态转变为堵塞状态.

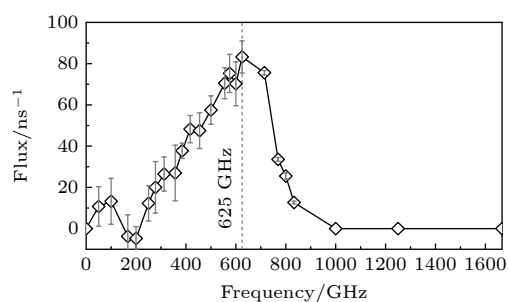


图 2 水流量随振动频率的变化

Fig. 2. Average water flux as a function of the vibration frequency.

为了更深入地理解纳米泵从流动到堵塞的转变机制, 在最易引起堵塞的锥形纳米管的窄口区域里研究了水分子概率密度分布在不同频率下呈现的特征. 所选窄口区域的厚度为 0.4 nm , 为了讨论方便, 将左右两个纳米管的窄口区分别标记为左

孔 LP 和右孔 RP, 如图 1 所示. 分析结果显示水分子概率密度分布特征在 LP 和 RP 两个区域类似. 图 3 展示了水分子在左孔 LP 区域的概率密度分布, 其中蓝色代表低密度, 红色代表高密度. 图 3(a) 显示, 在 $f = 384$ GHz 的情况下, 水的密度分布几乎是按角度均匀分布的, 这表明水分子可以自由地通过锥形碳纳米管的窄口, 即水处于流动状态. 在 $f = 625$ GHz 的情况下也可以看到类似的水分子密度分布, 见图 3(b). 当振动频率进一步升高至 833 GHz 时, 水分子的概率密度分布发生了显著的变化. 由图 3(c) 可观察到水分子的密度分布不再均匀而是出现 4 个高密度区域, 这种非均匀的分布特征表明在 LP 区中的水分子出现了有序的结构. 而这种有序结构使得纳米泵中的水流量迅速减小 (见图 2). 当 $f = 1250$ GHz 时, 水分子的分布仍然呈现出非均匀性, 形成 5 个较规则的高密度区域, 相对于 $f = 833$ GHz 时的形态, 其高密度区域的数量增加. 相应地, 水流量为零, 通道已完全被堵塞.

由上述分析知, 当振动频率达到一定的值后, 水分子在锥形碳纳米管窄口区域的分布会出现局

部高密度, 而且高密度区域的数目会随频率的升高而增加. 为了对水分子的分布有更清晰的认识, 进一步分析了 LP 和 RP 区域中的平均水分子个数随频率的变化. 每个分析区域的厚度为 0.4 nm, 大约可容纳 2 层水分子. 为了便于讨论, 称右侧的一层水为第 1 水分子层 (记为 L_1 和 R_1), 左侧相邻的另一层水为第 2 水分子层 (记为 L_2 和 R_2). 如图 4 所示, 在 L_1 中, 当振动频率不超过 625 GHz 时, 平均水分子数几乎保持不变, $\langle N \rangle$ 约为 4.4 个. 当振动频率从 625 GHz 增加到 1250 GHz 时, $\langle N \rangle$ 从 4.4 个增加到 5.4 个, 进一步升高振动频率时, 该水层的分子数不再增加. 第 2 水层 L_2 的平均分子数随频率变化也经历一个类似的过程, 从低频到高频水分子数增幅约为 1.5 个. LP 区域右边的 RP 里, 第 1 水层和第 2 水层的平均水分子数同样也出现了阶梯型变化, 相应的水分子数的增幅分别为 1 个和 2 个. 第 2 层水的平均水分子数增幅比第 1 层水大是由于第 2 层水所处的纳米管的横截面积更大所致. 可见, 锥形碳纳米管窄口区域的水分子数增加引起了该区域里水分子概率密度的空间分布的

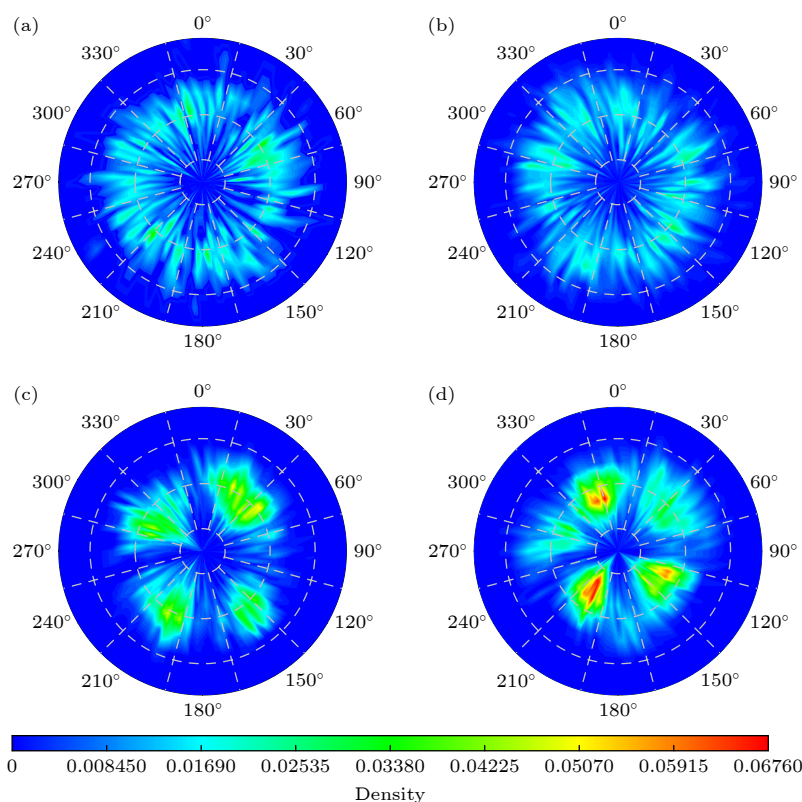


图 3 在锥形纳米管窄口端 0.4 nm 厚的区域内水分子的概率密度分布图 (a) $f = 384$ GHz; (b) $f = 625$ GHz; (c) $f = 833$ GHz; (d) $f = 1250$ GHz

Fig. 3. Probability density distributions of water molecules in LP for different vibrational frequency: (a) $f = 384$ GHz; (b) $f = 625$ GHz; (c) $f = 833$ GHz; (d) $f = 1250$ GHz.

突变, 即从无序的均匀分布到有序的规则分布. 对比图 2, LP 和 RP 区域中的平均水分子个数随频率增加的区间 (625—1250 GHz) 与纳米泵中水流开始减小并完全堵塞的区间是一致的.

本文计算了 LP 区域内氢键的平均寿命. 同时

还选取了泵体腔内氢键的平均寿命作为比较. 氢键寿命的定义和详细计算方法见模拟方法部分的介绍. 图 5(a) 显示了 LP 区域内水分子之间形成氢键的平均寿命随频率的变化规律. 中间腔室里氢键的平均寿命在 0.3 ps 附近小幅波动. 在 $f < 600$ GHz

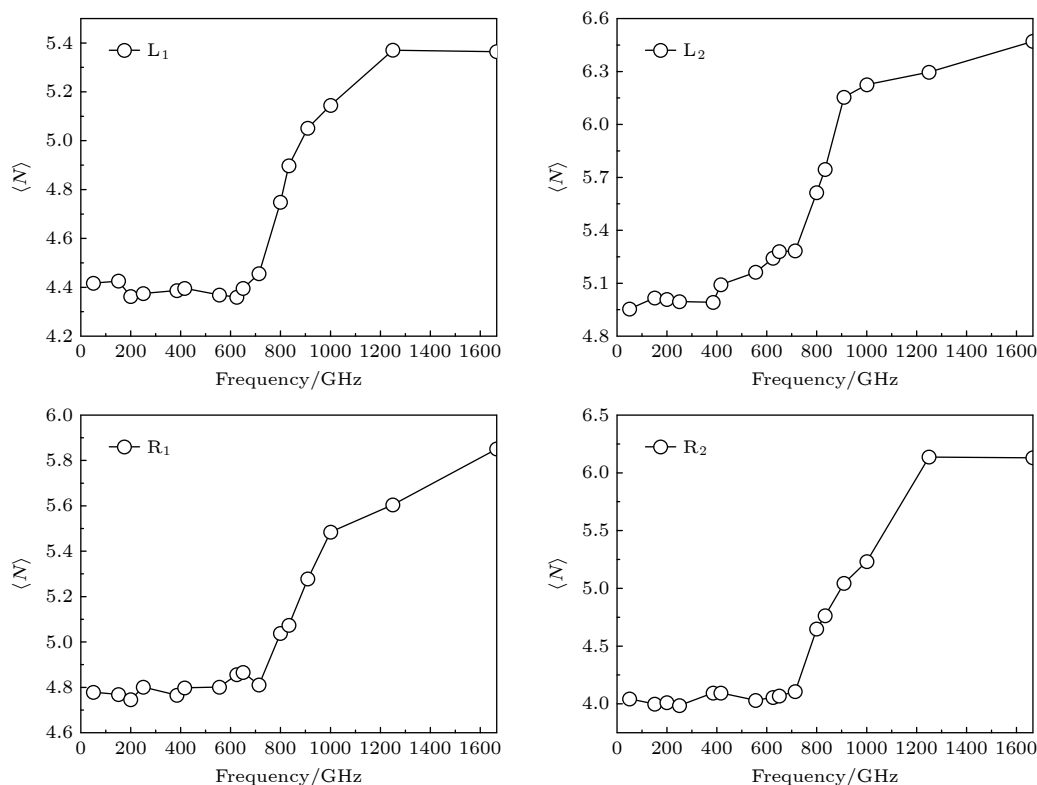


图 4 LP 和 RP 区域的平均水分子数, 两个区域厚度为 0.4 nm, 分别包含 2 层水分子, L_1 和 R_1 分别表示两个区域中右侧的 (管径最小) 水分子层; L_2 和 R_2 则表示左侧的水分子层

Fig. 4. Average number of water molecules in each water layer in LP and RP. L_1 and R_1 represent the right-side (minimum diameter) water molecule layers in the two regions, while L_2 and R_2 represent the left-side water molecule layers.

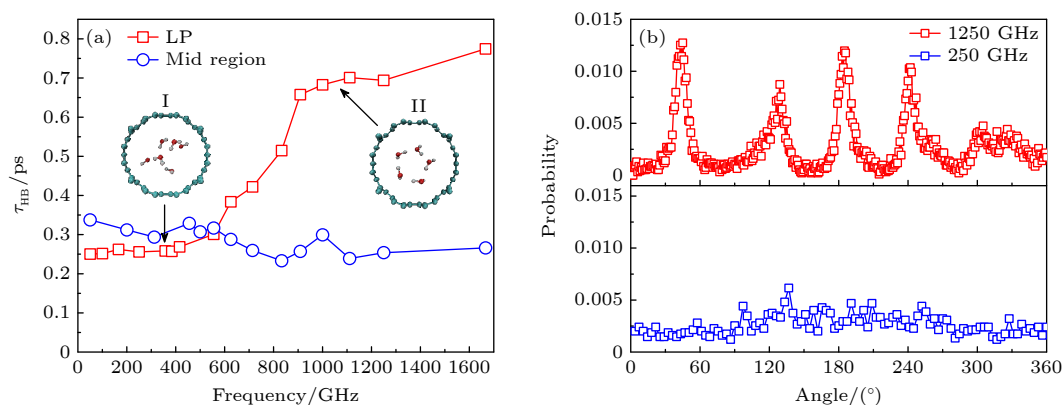


图 5 (a) 氢键的平均寿命随频率的变化, 插图分别为 $f = 250$ GHz 和 $f = 1250$ GHz 对应的 LP 里第 1 层水的模拟快照 (青色小球表示碳原子, 红色和白色小球分别表示水分子中的氧原子和氢原子); (b) LP 区域第 1 层水分子在横截面上的方位角概率分布图

Fig. 5. (a) Lifetime of hydrogen bonds as a function of the vibration frequency. Two typical snapshots are shown in insets. The cyan spheres represent carbon atoms, with red and white spheres representing oxygen and hydrogen atoms in water molecules. One is for the low frequency ($f = 250$ GHz) and the other is for the high frequency ($f = 1250$ GHz). (b) Probability distribution of the azimuthal angle of water molecules in the first layer in the LP region on the cross-section for $f = 250$ GHz and $f = 1250$ GHz.

的范围内, LP 区域里氢键的平均寿命保持在 0.27 ps 左右, 而在这个频率范围, 纳米管中的水流量随频率的增大明显增大 (见图 2), 可见管中水的流速对氢键寿命并无明显的影响, 而此时, 水分子空间概率分布处于一种无序的结构, 如图 5(a) 插图 I 所示. 当振动频率从 600 GHz 增至 1000 GHz, 氢键平均寿命急剧延长. 在 $f = 625$ GHz 的情况下, 氢键平均寿命约为 0.4 ps. 当频率为 833 GHz 时, 氢键平均寿命增加到约 0.51 ps. 氢键寿命的延长表明水分子之间形成更稳定的氢键网络. 当频率大于 1000 GHz 时, 氢键寿命在 0.68 ps 附近小幅变化, 意味着氢键网络基本达到稳定状态, 水分子形成了有序的结构. 图 5(a) 插图 II 显示了该频率范围内的一个典型的结构快照图, 可以清晰地看到水分子在管口 LP 区域形成了一个有序的五边形结构. 为了进一步研究 LP 区域水分子的有序结构, 详细统计了水分子方位角的概率分布. 水分子方位角的定义为, 以管口横截面的中心为参考点, 氧原子与参考点的连线与水平轴 x 轴的夹角 (见图 1). 概率分布如图 5(b) 所示. 当频率为 $f = 1250$ GHz 时, 分布图中出现了 5 个峰值, 其中角度位于第一、二、三象限中的 4 个峰值非常尖锐, 说明对应的水分子的空间方位非常稳定; 在第四象限的峰值相对平缓, 说明对应的水分子在约 20° 角度范围内运动. 相比于频率 250 GHz 时的分布情况, 水分子的分布有序度大大增强. 与图 3 中水分子概率密度分布从空间均匀到非均匀分布的转变相一致.

4 结 论

本文通过分子动力学模拟, 发现在无阀纳米泵的锥形孔道中水流堵塞的现象, 尽管孔道相对于水分子的尺寸足够大且并无其他杂质分子. 这易让人联想到宏观世界里常见的漏斗中颗粒物质堵塞现象. 然而, 与漏斗中颗粒物堵塞不同的是, 具有高频振动的外部扰动并不能恢复水流. 相反, 在高频振动的帮助下, 锥形通道孔口处的水表现出从无序到有序的结构相变. 引起这种结构相变的原因是, 在高频振动的推动下水分子快速挤入锥形孔道里, 水分子间形成了紧密的氢键网络, 而且, 随着振动频率的增大, 氢键平均寿命显著延长, 最终在孔口处形成了有序的多边形结构. 锥形通通常被作为无阀泵的重要部分, 由于其不对称的形状, 在整流振

荡流体方面起着至关重要的作用. 这项工作系统研究了振动频率对基于锥形纳米管构成的无阀纳米泵中水运输的影响, 发现了纳米级无阀泵中水流堵塞的新现象, 并揭示了堵塞背后的物理机制.

数据可用性声明

本篇论文的关联数据可在科学数据银行 <https://www.doi.org/10.57760/sciencedb.j00213.00014> 中访问获取.

参考文献

- [1] Squires T M, Quake S R 2005 *Rev. Mod. Phys.* **77** 977
- [2] Laser D J, Santiago J G 2004 *J. Micromech. Microeng.* **14** R35
- [3] Whitesides G M 2006 *Nature* **442** 368
- [4] Teh S Y, Lin R, Hung L H, Lee A P 2008 *Lab Chip* **8** 198
- [5] Jiang D, Li S J, Yang P 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 224703 (in Chinese) [蒋丹, 李松晶, 杨平 2013 物理学报 **62** 224703]
- [6] Hummer G, Rasaiah J C, Noworyta J P 2001 *Nature* **414** 188
- [7] Ghosh S, Sood A K, Kumar N 2003 *Science* **299** 1042
- [8] Chen X, Cao G, Han A, Punyamurtula V K, Qiao Y 2008 *Nano Lett.* **8** 2988
- [9] Holt J K, Park H G, Wang Y M, Stadermann M, Artyukhin A B, Grigoropoulos C P, Noy A, Bakajin O 2006 *Science* **312** 1034
- [10] Fang H P, Wan R Z, Gong X J, Lu H J, Li S Y 2008 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41** 103002
- [11] Lu H J, Li J Y, Gong X J, Wan R Z, Zeng L, Fang H P 2008 *Phys. Rev. B* **77** 174115
- [12] Fang H P 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 186101 (in Chinese) [方海平 2016 物理学报 **65** 186101]
- [13] Falk K, Sedlmeier F, Joly L, Netz R R, Bocquet L 2010 *Nano Lett.* **10** 4067
- [14] Liu C, Li Z G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 174501
- [15] Qiu H, Shen R, Guo W L 2011 *Nano Res.* **4** 284
- [16] Su J, Guo H 2011 *ACS Nano* **5** 351
- [17] Wang Y, Zhao Y J, Huang J P 2011 *J. Phys. Chem. B* **115** 13275
- [18] Li X P, Kong G P, Zhang X, He G W 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 143117
- [19] Feng J W, Ding H M, Ren C L, Ma Y Q 2014 *Nanoscale* **6** 13606
- [20] Cao W, Wang J, Ma M 2018 *Microfluid. Nanofluid.* **22** 125
- [21] Leng J T, Ying T Q, Guo Z R, Zhang Y Y, Chang T C, Guo W L, Gao H J 2022 *Carbon* **191** 175
- [22] Zhang Q L, Jiang W Z, Liu J, Miao R D, Sheng N 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 254501
- [23] Kou J, Lu H, Wu F, Fan J, Yao J 2014 *Nano Lett.* **14** 4931
- [24] Zhou X Y, Wu F M, Liu Y, Kou J L, Lu H, Lu H J 2015 *Phys. Rev. E* **92** 053017
- [25] Zhou X Y, Zhu F Q 2018 *Phys. Rev. E* **98** 032410
- [26] Zhu Z, Chang C, Shu Y, Song B 2020 *J. Phys. Chem. Lett.* **11** 256
- [27] Fan W, Chen J 2020 *Phys. Rev. E* **101** 010101
- [28] Zhang Z Q, Fan J W, Zhang F J, Cheng G G, Ding J N 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 110201 (in Chinese) [张忠强, 范晋伟, 张福

- 建, 程广贵, 丁建宁 2020 *物理学报* **69** 110201]
- [29] Olsson A, Stemme G, Stemme E 2000 *Sens. Actuators A Phys.* **84** 165
- [30] Chinappi M, De Angelis E, Melchionna S, Casciola C, Succi S, Piva R 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 144509
- [31] Ai B Q, Liu L G 2008 *J. Chem. Phys.* **128** 024706
- [32] Tajkhorshid E, Nollert P, Jensen M O, Miercke L J W, O'connell J, Stroud R M, Schulten K 2002 *Science* **296** 525
- [33] Kosztin I, Schulten K 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 238102
- [34] Zhou M, Morais-Cabral J H, Mann S, Mackinnon R 2001 *Nature* **411** 657
- [35] Tang J, Behringer R P 2011 *Chaos* **21** 041107
- [36] Ma L D, Yang G H, Zhang S, Lin P, Tian Y, Yang L 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 044501 (in Chinese) [麻礼东, 杨光辉, 张晟, 林平, 田园, 杨磊 2018 *物理学报* **67** 044501]
- [37] Janda A, Maza D, Garcimartín A, Kolb E, Clément E 2009 *Europhys. Lett.* **87** 24002
- [38] Majumder M, Chopra N, Andrews R, Hinds B J 2005 *Nature* **438** 44
- [39] Lindahl E, Hess B, Van Der Spoel D 2001 *J. Mol. Model.* **7** 306
- [40] Bussi G, Donadio D, Parrinello M 2007 *J. Chem. Phys.* **126** 014101
- [41] Zeidel M, Ambudkar S, Smith B, Agre P 1992 *Biochemistry* **31** 7436

Abnormal blockage of water flow in valveless nanopumps^{*}

Li Wei-Jian Zhou Xiao-Yan[†] Lu Hang-Jun[‡]

(Institute of Condensed Matter Physics, Zhejiang Normal University, Jinhua 321004, China)

(Received 17 January 2024; revised manuscript received 24 February 2024)

Abstract

In the narrow orifice of a cone-shaped channel, blockage can occur for granular matter. However, water molecules can enter into and even permeate through carbon nanotubes of diameters down to 0.8 nm at ultrafast rates. Here we demonstrate by molecular dynamics simulations that clogging can also emerge unexpectedly in the water flowing through a nanoscale valve-less pump. The designed pump features two truncated carbon nanocones, with the narrowest region having a diameter of 1.2 nm (larger than that of (6, 6) carbon nanotube), linked to a fluid cavity volume, and is powered by the vibration of a graphene sheet. In the low frequency range, water molecules can be driven through the nanocones effectively by the vibration of the graphene sheet. The maximum flux reaches 83 ns^{-1} , which is approximately 20 times the measured value of $(3.9 \pm 0.6) \text{ ns}^{-1}$ for aquaporin-1. However, at higher frequencies, water molecules suffer blockage at the narrow exits. Much unlike granular matter, high-frequency vibration cannot restore water flow. The key to this phenomenon is that in the narrow exits of two nanocones acting as diffuser/nozzle, the number density of water molecules rapidly increases with frequency increasing, the tight hydrogen-bonding network is formed, and the mean lifetime of hydrogen bonds increases dramatically under high-frequency vibrations. High frequency fluctuations in the middle chamber make H-bond network between water molecules in the narrow exits more stable. The probability density distribution of water exhibits a non-equilibrium transition from a disordered state to ordered state. This work reveals a new mechanism of water flowing/blocking in a nanoscale valve-less pump based on two asymmetrical nanocones, offers valuable insights into understanding nonequilibrium jamming transition in nanoscale fluid.

Keywords: valveless nanopump, clogging, vibration, hydrogen bond network

PACS: 47.61.-k, 61.46.Np, 61.20.Ja, 83.10.Tv

DOI: 10.7498/aps.73.20240115

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11875237).

[†] Corresponding author. E-mail: zxylyu@zjnu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: zjlhjun@zjnu.cn



无阀纳米泵中水流的反常堵塞

李伟健 周晓艳 陆杭军

Abnormal blockage of water flow in valveless nanopumps

Li Wei-Jian Zhou Xiao-Yan Lu Hang-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 094702 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240115

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240115>

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

三维漏斗中颗粒物质堵塞问题的数值实验研究

Numerical experiment studies of clogging during the discharge of granular matter in a three-dimensional hopper

物理学报. 2018, 67(4): 044501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171813>

有限长管内包膜微泡在磁-声复合场作用下的振动行为

Vibrational behavior of coated microbubble in finite tube under magneto-acoustic composite field

物理学报. 2021, 70(21): 214303 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210559>

水的氢键网络动力学与其太赫兹频谱的关系

Relationship between hydrogen bond network dynamics of water and its terahertz spectrum

物理学报. 2021, 70(24): 248702 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211731>

冰的氢键振动研究

Investigation of hydrogen bond vibrations of ice

物理学报. 2021, 70(14): 146301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210013>

水流在旋转黑磷纳米管内轴向驱动特性

Axial driving characteristics of water in rotating black phosphorus nanotubes

物理学报. 2020, 69(11): 110201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200116>

离子浓度及表面结构对岩石孔隙内水流动特性的影响

Effects of salt concentrations and pore surface structure on the water flow through rock nanopores

物理学报. 2020, 69(5): 054701 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191742>