

01.1;03.5

Вязкость газов в наноканалах© В.Я. Рудяк^{1,2}, Е.В. Лежнев¹¹Новосибирский государственный архитектурно-строительный университет, Новосибирск, Россия²Новосибирский государственный университет, Новосибирск, Россия

E-mail: valery.rudyak@mail.ru

Поступило в Редакцию 23 июня 2020 г.

В окончательной редакции 21 июля 2020 г.

Принято к публикации 24 июля 2020 г.

Изучается вязкость разреженного газа в наноканалах при нормальных условиях. Коэффициент вязкости вычисляется с помощью формулы Грина–Кубо с использованием стохастического молекулярного метода. Взаимодействие молекул газа со стенкой описывается зеркальным, диффузным или зеркально-диффузным законами. Варьируются температура газа и высота канала. Показано, что вязкость в наноканале существенно не изотропна. Вдоль канала она практически всегда совпадает с ее соответствующим значением в объеме. Варьируя коэффициент аккомодации, полную вязкость газа можно как уменьшать в несколько раз, так и увеличивать.

Ключевые слова: вязкость, наноканал, моделирование, разреженный газ.

DOI: 10.21883/PJTF.2020.20.50158.18434

Миниатюризация различных устройств и технологий диктует необходимость исследования протекающих в них течений жидкостей и газов. Характер этих течений определяется соответствующими процессами переноса, экспериментальное изучение которых по понятным причинам затруднено. Удастся получать лишь некоторую интегральную информацию, интерпретация которой выполняется с использованием классических гидродинамических представлений. В результате указывается, что в таких течениях, с одной стороны, может существенно возрастать длина скольжения, а с другой — наблюдается значительный рост коэффициента вязкости (см., например, [1–5]). Вообще говоря, два этих вывода противоречат друг другу: первый фиксирует значительное снижение гидравлического сопротивления, а второй — его увеличение. В работе [6] из первых принципов построена теория процессов переноса жидкостей и газов в микро- и наноканалах и получены формулы для коэффициентов переноса. С их помощью в [7] методом молекулярной динамики было показано, что вязкость жидкостей в наноканалах существенно отличается от соответствующего значения в объеме. Применение метода молекулярной динамики, однако, не доступно для моделирования процессов переноса разреженных газов в наноканалах, он требует огромного числа молекул. Авторами для моделирования коэффициентов переноса разреженного газа разработан метод стохастического молекулярного моделирования (СММ) [8,9]. Он позволяет с высокой точностью моделировать коэффициенты переноса разреженных газов и наногазовзвесей в объеме [8–11]. Метод СММ идеологически близок к известному методу Берда [12], с помощью которого в [13] изучаются тепловые флуктуации в разреженном газе. Цель настоящей работы состоит в моделировании

методом СММ вязкости разреженного газа в наноканалах.

Ячейка моделирования выбиралась в виде прямоугольного параллелепипеда с квадратным сечением. Вдоль оси ячейки использовались периодические граничные условия. Взаимодействие молекул газа со стенками канала описывается зеркальным или зеркально-диффузным законами. В первом случае скорость молекулы вдоль поверхности не меняется, а нормальная изменяет знак. При зеркально-диффузном отражении вводится коэффициент аккомодации θ , определяющий долю молекул, взаимодействующих со стенкой диффузно, оставшаяся часть $(1 - \theta)$ молекул отражается зеркально. Скорость диффузно отраженной молекулы разыгрывается по функции распределения Максвелла с заданной температурой. Взаимодействие молекул между собой описывается потенциалом Леннарда–Джонса 6-12.

Коэффициент вязкости η вычисляется с помощью формулы Грина–Кубо [14]:

$$\eta = \frac{1}{3VkT} \int_0^{\tau_p} \chi(0, t) dt \equiv \frac{1}{3VkT} \int_0^{\tau_p} \langle \sigma(0) : \sigma(t) \rangle dt,$$

$$\sigma(t) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{t_s} \sum_{i=1}^N m[\mathbf{v}_i(j\Delta t)\mathbf{v}_i(j\Delta t)], \quad (1)$$

где τ_p — время выхода на плато значение; m — масса молекулы; V — объем системы; \mathbf{v}_i — скорость молекулы i ; T — температура газа; k — постоянная Больцмана; Δt — шаг интегрирования; N — число молекул в системе; t_s — время расчета одной фазовой траектории; угловые скобки означают усреднение по ансамблю. Эквивалентность (1) формуле, традиционно используемой в кинетической теории [15], показана в работе [16].

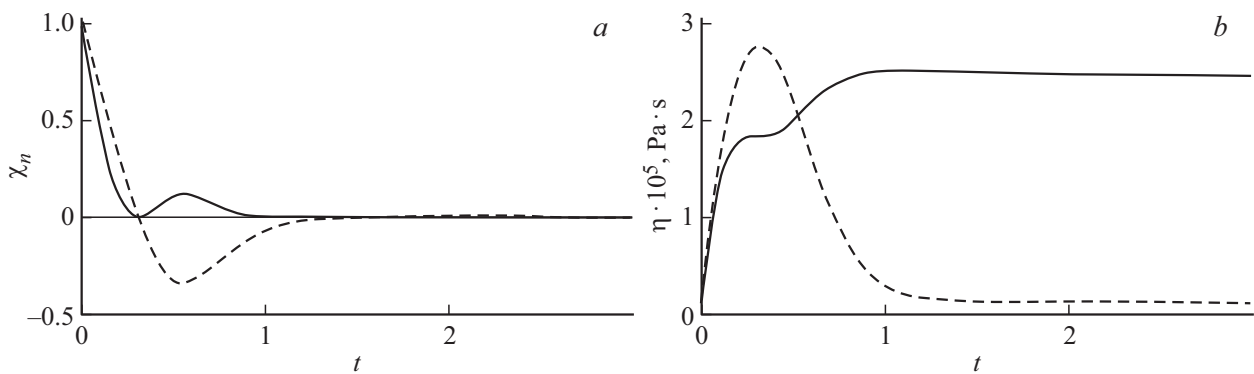


Рис. 1. Эволюция нормированной корреляционной функции (а) и коэффициента вязкости (б) аргона вдоль (сплошная линия) и поперек (штриховая линия) наноканала.

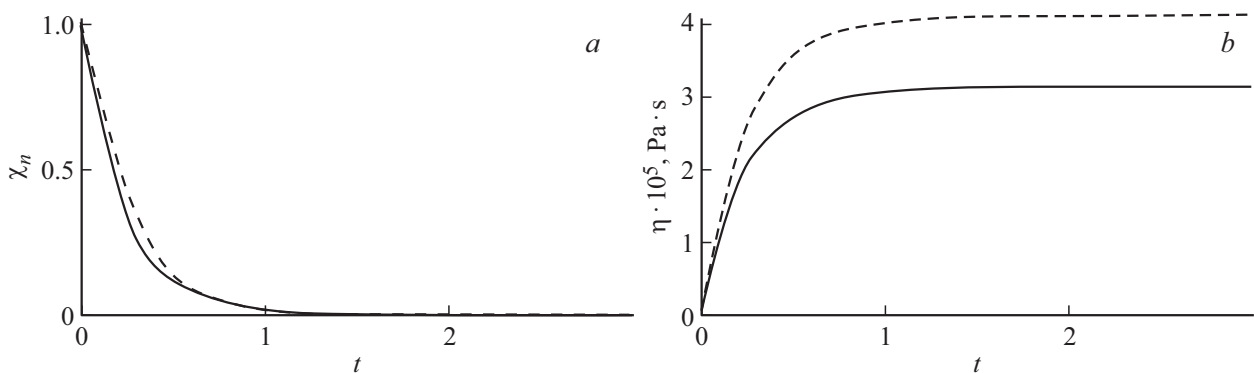


Рис. 2. Эволюция нормированной корреляционной функции (а) и коэффициента вязкости (б) аргона вдоль (сплошная линия) и поперек (штриховая линия) наноканала. $\theta = 1$.

Моделируется течение в канале квадратного сечения, его высота варьировалась от 6.81 до 510.75 nm. Поскольку газ разреженный, его коэффициент вязкости зависит лишь от скоростей молекул (см. (1)). Эти скорости, однако, могут меняться не только от взаимодействия молекул друг с другом, но и от их взаимодействия со стенками канала. По этой причине необходима информация обо всех динамических переменных молекул, включая координаты. Начальное состояние молекул газа по скоростям равновесное и соответствует распределению Максвелла при заданной температуре.

Алгоритм предполагает расчет l фазовых траекторий, по которым затем проводится усреднение определяемой наблюдаемой. Необходима информация о динамических переменных молекул газа в последовательные моменты времени. Для этого время t_s разбивается на интервалы длительностью $\tau_i = \sigma/v_{\max}$, где σ — эффективный размер молекул, а v_{\max} — максимальное значение скорости молекул в данный момент времени. Молекулы вносятся в список, в который входят их координаты и скорости в начальный момент времени. Пусть в начальный момент молекулы имеют скорости v_1, v_2, \dots, v_N и координаты r_1, r_2, \dots, r_N . Необходимо найти соответствующие их значения в следующий момент времени τ_1 . Сначала определяется положение молекулы 1, она сдвигается в

пространстве по закону $\mathbf{r}'_1 = \mathbf{r}_1 + \mathbf{v}_1\tau_1$. Если молекула достигает стенки, то ее скорость изменяется в соответствии с принятым законом взаимодействия со стенкой. Если же она не достигает стенки, разыгрывается ее соударение с молекулами газа. Соответствующая процедура подробно описана в [8–11]. Генерируется равномерно распределенное на отрезке $[0;1]$ число u . Если оно меньше или равно вероятности соударения за время τ_1 , то столкновение происходит (вероятность соударения определяется на основе кинетической теории [15]). Из оставшихся $(N - 1)$ молекул тогда выбирается молекула j , с которой это столкновение реализуется, и скорости молекул 1 и j меняются согласно законам сохранения. В противном случае скорость молекулы 1 в течение времени τ_1 не меняется. Эта процедура выполняется последовательно для всех N молекул и формируется список динамических переменных системы в момент τ_1 . Аналогично определяются динамические переменные в последующие интервалы времени до тех пор, пока не закончится время расчета. С использованием полученных динамических переменных и вычисляется коэффициент вязкости (1).

Далее с помощью описанного алгоритма моделируется коэффициент вязкости аргона при атмосферном давлении. Эффективный диаметр молекулы потенциала

Зависимость вязкости аргона от коэффициента аккомодации наноканала

θ	$\eta, \text{Pa} \cdot \text{s}$
0	$0.82 \cdot 10^{-5}$
0.1	$1.16 \cdot 10^{-5}$
0.5	$2.76 \cdot 10^{-5}$
1.0	$5.07 \cdot 10^{-5}$
	$2.14 \cdot 10^{-5}$

Леннарда–Джонса равнялся $\sigma = 0.3405 \text{ nm}$, а глубина потенциальной ямы — $\varepsilon/k = 119.8 \text{ K}$ [17]. Канал имел квадратное сечение, его высота варьировалась от 20σ до 1500σ . Усреднение коэффициента вязкости выполнялось по тысяче независимых фазовых траекторий, каждая из которых рассчитывалась в течение примерно наносекунды.

Перенос импульса вдоль и поперек канала (а значит, и соответствующие вклады в коэффициент вязкости) существенно неізотропен. В первом случае он определяется преимущественно взаимодействием молекул газа в объеме, а во втором — и их взаимодействием со стенками канала. Эта неізотропия проявляется у соответствующих корреляционных функций (см. (1)). Эволюция нормированных на начальные значения корреляционных функций χ_n (см. (1)) вдоль и поперек канала представлена на рис. 1, а. Корреляционная функция поперек канала имеет характерный отрицательный хвост, обусловленный взаимодействием молекул со стенкой. Время здесь и везде далее обезразмерено на время свободного пробега молекул аргона. В данном примере (на рис. 1) взаимодействие со стенкой описывалось зеркальным законом, а высота канала равнялась 50σ . Наличие отрицательного хвоста приводит к тому, что вклад в коэффициент вязкости молекул поперек канала оказывается почти в 20 раз меньше, чем вдоль. Соответствующие значения приведены на рис. 1, б. Таким образом, полный коэффициент вязкости газа в канале почти втрое ниже, чем в объеме.

Закон взаимодействия молекул газа со стенкой будет определяющим образом менять перенос импульса в системе. Действительно, на рис. 2 представлена эволюция нормированной корреляционной функции (а) и коэффициента вязкости (б) при чисто диффузном отражении молекул от стенки. Обе корреляционные функции затухают экспоненциально за время порядка времени свободного пробега. Значение коэффициента вязкости поперек канала почти на 50% больше, чем вдоль, а полный коэффициент вязкости практически втрое выше, чем в объеме.

Варьируя коэффициент аккомодации, можно изменять полное значение вязкости в канале. В таблице приведены данные зависимости коэффициента вязкости от величины коэффициента аккомодации в канале

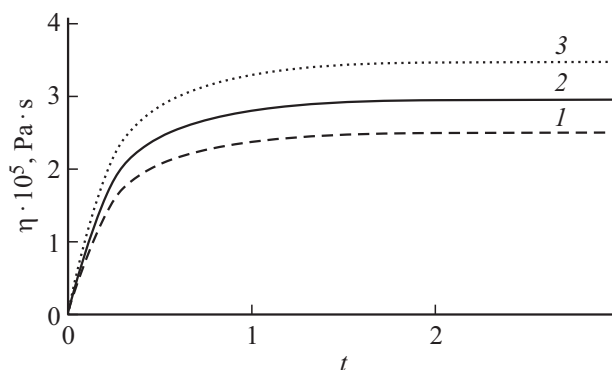


Рис. 3. Эволюция коэффициента вязкости вдоль канала. T, K : 1 — 243, 2 — 273, 3 — 303.

высотой 50σ . В последней строке таблицы показано значение коэффициента вязкости в объеме. Это вычисленное значение согласуется с экспериментальным [18] с точностью около 2%. При изменении коэффициента аккомодации от нуля до единицы коэффициент вязкости газа меняется более чем в 6 раз. Наконец, ясно, что коэффициент вязкости зависит от температуры. Эту зависимость иллюстрирует рис. 3, здесь коэффициент аккомодации равен единице, а температуры стенки и газа одинаковы.

Реальные каналы обычно имеют шероховатости. Их наличие будет существенно влиять на характер течения газа. В частности, наличие шероховатостей приводит к увеличению площади поверхности канала. Это означает, что неізотропия переноса импульса в газе в таких каналах будет выражена сильнее, чем в канале с гладкими стенками. Поэтому наличие шероховатостей может приводить как к увеличению вязкости, так и к ее уменьшению. Все зависит от характера взаимодействия молекул газа с поверхностью. К подобному эффекту будет приводить и структурирование поверхности канала наночастицами. Варьируя материал наночастиц, можно управлять вязкостью. Наконец, отметим, что в канале высотой 1500σ вклад в коэффициент вязкости молекул поперек канала примерно в 12 раз меньше, чем вдоль. Увеличение высоты канала в 30 раз снизило неізотропию вязкости примерно в 1.5 раза.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 19-01-00399 и 20-01-00041).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *Tabeling P.* Introduction to microfluidics. Oxford University Press, 2005. 301 p.
- [2] Encyclopedia of microfluidics and nanofluidics / Ed. D. Li. Springer Science+Business Media, LLC, 2008. 2242 p.
- [3] *Bocquet L., Tabeling P.* // Lab. Chip. 2014. V. 14. N 17. P. 3143–3158. <https://doi.org/10.1039/C4LC00325J>
- [4] *Vo T.Q., Kim B.* // Sci. Rep. 2016. V. 6. P. 33881. <https://doi.org/10.1038/srep33881>
- [5] *Liakopoulos A., Sofos F., Karakasidis T.E.* // Microfluid. Nanofluid. 2016. V. 20. N 1. P. 24–32. <https://doi.org/10.1007/s10404-015-1699-5>
- [6] *Рудяк В.Я., Белкин А.А.* // ДАН. 2014. Т. 459. № 1. С. 696–698.
- [7] *Rudyak V., Belkin A.* // Nanosystems: Phys. Chem. Math. 2018. V. 9. N 3. P. 349–355. <https://doi.org/10.17586/2220-8054-2018-9-3-349-355>
- [8] *Rudyak V., Lezhnev E.* // J. Comp. Phys. 2018. V. 355. P. 95–103. <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2017.11.001>
- [9] *Рудяк В.Я., Лежнев Е.В.* // Мат. моделирование. 2017. Т. 29. № 3. С. 113–122.
- [10] *Rudyak V.Ya., Lezhnev E.V.* // J. Phys.: Conf. Ser. 2018. V. 1105. P. 012122. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1105/1/012122>
- [11] *Рудяк В.Я., Лежнев Е.В., Любимов Д.Н.* // Вестн. ТГУ. Мат. механика. 2019. № 3. С. 105–117. <https://doi.org/10.17223/19988621/59/11>
- [12] *Bird G.* Molecular gas dynamics. Oxford: Clarendon Press, 1976. 302 p.
- [13] *Bruno D.* // Phys. Fluids. 2019. V. 31. N 4. P. 047105. <https://doi.org/10.1063/1.5093369>
- [14] *Зубарев Д.Н.* Неравновесная статистическая термодинамика. М.: Наука, 1971. 415 с.
- [15] *Чепмен С., Каулинг Т.* Математическая теория неоднородных газов. М.: ИИЛ, 1960. 510 с.
- [16] *Ernst M.H.* // Physica. 1966. V. 32. N 2. P. 209–243. [https://doi.org/10.1016/0031-8914\(66\)90055-3](https://doi.org/10.1016/0031-8914(66)90055-3)
- [17] *Гиршфельдер Дж., Кертисс Ч., Берд Р.* Молекулярная теория газов и жидкостей. М.: ИИЛ, 1961. 929 с.
- [18] *Григорьев И.С., Мейлихова Е.З.* Физические величины. М.: Энергоатомиздат, 1991. 1231 с.