

液态金属热输运过程的分子动力学模拟^{*}

张龙艳, 王增辉[†]

(中国科学院大学物理学院, 北京 100049)

(2014 年 1 月 27 日收稿; 2014 年 4 月 18 日收修改稿)

Zhang L Y, Wang Z H. Molecular dynamics simulation of thermal transport process of liquid metal[J]. Journal of University of Chinese Academy of Sciences, 2015,32(1):25-30.

摘 要 采用分子动力学模拟方法对平板间液态金属的流动换热过程进行模拟. 研究液态金属的微观热输运过程, 左右两侧平板采用 Cu 原子作为恒温固壁, 液态金属 Pb 处于平板间, 以 FCC 结构为初始排列. 模拟结果表明, 在平板间的液态金属温度分布呈线性变化; 不同温度下液态金属在恒温平板间的热输运模拟过程表明, 平板间液态金属的热导率随温度的升高而增加, 呈现线性变化. 当在系统上施加一个重力加速度时, 平板间未出现明显的自然对流, 表明在微尺度下, 边界阻力和粘滞力抑制了液态金属的自然对流.

关键词 分子动力学模拟; 热输运; 热导率; 液态金属

中图分类号:TK124 文献标志码:A doi:10.7523/j.issn.2095-6134.2015.01.005

Molecular dynamics simulation of thermal transport process of liquid metal

ZHANG Longyan, WANG Zenghui

(College of Physics, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract In order to study the thermal transport process of liquid metal in micro scale, liquid metal flow and heat transfer process between two constant-temperature plates is simulated by using molecular dynamics simulation method. Cu atoms are used in the two plates as different constant-temperature solid walls, and liquid metal Pb is arranged in initial alignment as FCC structure between the two plates. The simulation results show that the liquid metal temperature has a linear distribution between two plates. At different temperatures, thermal transport processes of liquid metal show linear temperature distributions and thermal conductivity of the liquid metal linearly increases with temperature. By exerting gravity acceleration, liquid metal does not show obvious natural convection temperature distribution because boundary resistance and viscous force of liquid metal suppress the natural convection of liquid metal in micro scale.

Key words molecular dynamics simulation; heat transfer; thermal conductivity; liquid metal

^{*} 国家自然科学基金(51176201)和 973ITER 项目(2013GB114001)资助

[†] 通信作者, E-mail: wzhawk@ucas.ac.cn

随着现代微尺度制造技术、高集成度微电子器件以及微加工技术和微电子机械系统等的发展,探究微通道内流体流动和传热的规律,并将其服务于工业生产已变得越来越重要。随着尺度的微细化,微通道内的流体流动和传热,呈现出不同于常规尺度的现象。

微尺度下流体传热和流动出现异常现象,主要是基于 2 个原因。一方面当分子平均自由程变得和流动的特征尺度相当时,流体连续性假设不再成立。傅里叶导热定律、流动的 Navier-Stokes 方程和宏观能量方程已不能准确反映流动和传热的规律。另一方面流动和换热的主要影响因素已经发生变化。由于尺度的微细化,表面积与体积比大大增加,因此表面效应不可忽略,与表面有关的各种力也变得越来越重要。在液固之间,表面力是由流体分子与固体表面原子之间的相互作用产生的,主要包括表面张力、分子极化产生的范德华力、空间位形力等。

在微尺度流动中,针对微尺度流动中流体与界面的相互作用,以及该情况下边界条件是否满足连续性方程,引起了研究人员的讨论^[1],已有研究开展了流体的边界滑移、密度、湿润性和通道尺寸等因素对流动的影响,在微通道内热边界条件多采用热浴维持流体系统的能量平衡,同时为了研究微观尺度的流体与界面流动换热的物理机理,分析流固界面的分子结构及流体与固体壁面间的相互作用对于流体的流动换热的影响,近年来众多研究者建立多种固壁模型,以解释流动换热的机理^[2-6]。

在微纳尺度下流体流动的研究方面,已有研究者采用将固壁原子以晶体结构排列的方式,并且在整个模拟计算过程中固壁原子保持固定不动,而对流体原子施加恒温浴,使其达到特定温度^[7-9]。Yang^[10]使用分子动力学方法,模拟微通道内的表面粗糙度和界面作用对微尺度流动的影响时,墙原子在简谐力的作用下固定在晶格点上,并采用 Gaussian Isokinetic 热浴方法调整墙壁的温度使其维持恒定。Ziarani 和 Mohamad^[11]使用相似的简谐模型,但是在调整墙壁温度时采用直接速度调整法,代替热浴的使用。Maruyama 和 Kimura^[12]在分子模拟中,固体壁面由 3 层原子按照 FCC 结构排列,但在固体墙外又加设虚拟原子墙,利用类似 Langevin 热浴的原理,调整真实固体

墙的温度使其维持固定值。

在液态物质的热导率研究方面,Maroo 和 Chung^[13]提出流固热墙模型,模拟结果与热力学性质表进行了对比,此模型得到了很好的验证。Li 和 Liu^[14]使用简谐振动模型模拟研究不同湿润性情况下的界面热导率。这些论证与状态相关,且具有时间独立性。该模型计算时间少,适用于恒温墙。分子模拟和相关热流问题和部分墙壁加热冷却问题。但是在随后论证中该模型与一维热传导方程分析解的时间相关性相违背。Barisik 和 Beskok^[15]在研究液氩在银通道内的热运输性能时将最外层的 Ag 原子固定在晶格点上以维持系统稳定,其余的墙原子及流体原子在整个模拟区域均可自由移动,同时对墙原子进行 Langevin 热浴设置,以维持其恒定温度,在固液界面流体原子与墙原子通过相互作用传递热量。同时,他们研究水硅界面热阻随温度的变化规律时,采用类似的热墙模型,实现热墙边界与流体原子的能量交换^[16]。热墙边界模型在分子动力学的界面模拟中取得了很好的研究成果。

从以上研究现状可以看出,已有研究主要集中在纯流动研究,或通过施加恒温条件研究流体的能量输运过程,而采用分子动力学方法进行液态金属内部流动和换热的研究还较少;同时对于施加外部重力加速度下的液态金属流动和换热过程的讨论也少见报道,需进一步开展相关研究。本文拟采用分子动力学模拟方法,研究液态金属在微观尺度下的热输运过程,分析外部重力加速度对其热输运过程的影响规律。

1 分子动力学模拟模型

在分子动力学方法中,给定各个粒子的初始位置和初始动量,随着时间的推进,通过求解系统中粒子相互作用力和附加外力共同作用下,每个粒子的牛顿运动方程来数值模拟系统随时间推进的微观过程。分子的一系列位形是通过牛顿运动方程积分得到的。通过求解经典力学牛顿运动方程获得粒子运动位移:

$$M_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \mathbf{F}_i = - \frac{\partial \varphi}{\partial \mathbf{r}_i}, \quad (1)$$

其中, M_i 、 \mathbf{r}_i 和 \mathbf{F}_i 分别为分子 i 的质量、位移矢量和力矢量, φ 是系统的势能,分子所受的力可以通过势能函数得到。在本文的分子动力学模拟中,采

用了 Cu 原子和 Pb 原子,由于系统采用的都是金属原子,EAM 势能模型通过计算包括电子云密度函数的嵌入能,进而实现精确计算金属的总势能,且 EAM 势是多体势,能很好地计算 FCC 结构,众多学者对液态金属的物性进行分子动力学研究时均采用 EAM 势函数^[17-18],因此本文亦采用 EAM 势函数研究分子间的相互作用。

适用于分子动力学模拟的算法有 Euler 法、Gear 法、Beeman 法、Verlet 法和 Leap-frog 法等。本文采用 Verlet 算法,该算法虽然精度比高阶 Gear 算法稍差,但使用简便,占用存储量少,稳定性好。得到计算结果后,可以对流动换热的各种影响因素进行定量计算和定性分析,对对流换热过程进行观察,研究其内部流动和换热机理。

本文模拟体系设置如图 1 所示,由左右固体壁面及限制在壁面间的液态金属铅组成。分子模拟的三维微通道沿 y, z 方向长度均为 7.266 nm,流体沿着温差方向为 17.838 4 nm。在 y, z 方向固体壁面及流体区域均采用周期性边界条件,流体沿 x 方向为固壁条件。固体壁面 Cu 粒子按照 FCC 结构排列构成,且与流体区域的接触面为 (0,0,1) 晶面。固体壁面由 2 层固定 Cu 粒子及 6 层振动 Cu 粒子组成。最外层的 Cu 原子固定整个模拟系统,而其余 Cu 粒子按照固体原子震动规律自由运动。中间流体 Pb 粒子亦采用同样的 FCC 结构排列布置。模拟体系共有 12 800 个固体 Cu 粒子和 23 969 个流体 Pb 粒子。墙温度分别维持恒定温度 780 K (右侧固体粒子) 及 720 K (左侧固体粒子)。

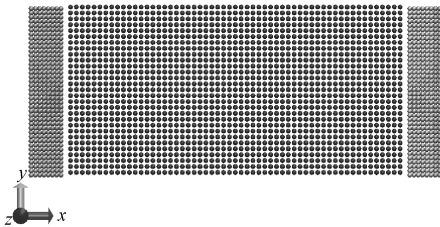


图 1 分子动力学模拟模型 ($48a \times 20a \times 20a$)

Fig.1 MD simulation model

2 热输运过程分析

在模拟过程中,首先整个系统采用 NVT 运行 300 ps 达到平衡状态,采用 Nose-Hoover 热浴维持系统的初始温度为 700 K。为了实现界面传热,获得界面热流,进一步对两侧的固体壁面设置不同

的温度,采用调整粒子速度的方法设置高低温墙的温度,维持 800 ps 使系统达到稳定状态。最后 200 ps 用来取样计算各个物理量的平均值,模拟过程中的积分时间步长为 1 fs。

本文中,采用非平衡分子动力学方法,研究微观尺度下流体界面热输运过程。在经典分子动力学中,区域温度由 Boltzmann 能量均分定理给出,即

$$T = \frac{\sum_{i=1}^N m_i v_i^2}{3Nk_B}, \quad (2)$$

其中, N 为区域中的粒子数。将平板间的流体 Pb 划分成 22 层,对其结果进行统计计算,得出液态金属 Pb 每层的温度分布图。

图 2 所示为不同层的液态金属 Pb 的温度、动能和原子数密度分布图,从图 2 可以看出,液态金属内部分层温度呈现直线分布,即与纯导热下的线性温度分布一致,该结果与流体 Ar 在 Ag 通道间的温度分布与数密度分布规律^[19]相似,验证了本文采用的壁面热墙模型的正确性。

同时从图 2 中可以看出,动能沿着温度梯度的方向呈线性变化趋势,与温度的变化趋势一致。由粒子的数密度分布图可知,Pb 粒子受到壁面原子 Cu 及其他 Pb 粒子的共同作用,且靠近壁面处的粒子密度明显比中间流体区域的粒子数密度大,Cu 与 Pb 的分子间相互作用强于流体粒子之间的内部分子力,局部 Pb 流体靠近高温壁面处的数密度低于靠近低温壁面处,显示在高温壁面处粒子的运动强烈。

文献[19]给出 Ar 在 Ag 通道间参数的分布,可以发现 Ar 流体具有明显的温度跳跃;而本文中的模拟结果显示,液态 Pb 与热墙之间未出现明显的跳跃。这是由于液态金属具有较大的粘度,阻止了液态金属动能较大的波动,因此温度分布表现为线性变化。

在分子动力学模拟过程中,根据原子携带的能量及其具有的速度可获得热流密度,热流密度的微观表达采用下式计算:

$$j = \frac{1}{\Omega} \left[\sum_{i=1}^N \left(\mathbf{v}_i e_i + \frac{1}{2} \sum_{j=1, i \neq j}^N r_{ij} (\mathbf{F}_{ij} \cdot \mathbf{v}_i) \right) \right], \quad (3)$$

其中, Ω 为系统的容积, e_i 为每个原子的能量,包括动能和势能的和, \mathbf{v}_i 为第 i 个原子的速度, \mathbf{F}_{ij} 为

第 i 个原子受到来自第 j 个原子的作用力, r_{ij} 为第 i 个原子和第 j 个原子的距离.

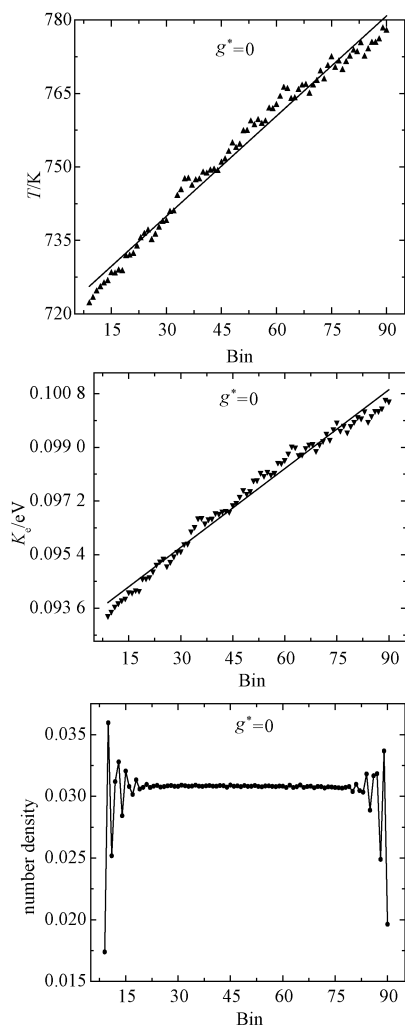


图 2 Pb 的温度、动能和原子数密度分布

Fig. 2 Fluid temperature, kinetic energy, and the atomic number density distribution

应用傅里叶导热定律,采用非平衡分子动力学方法计算液态金属热导率,如下式所示:

$$j = -k \cdot \nabla T, \quad (4)$$

其中, k 为热导率, ∇T 为液态金属不同层形成的温度梯度.

本文中设置左右两侧固体壁面的温差为 60 K,对不同平均温度下液态金属的热输运过程进行数值模拟.图 3 给出了液态金属 Pb 的热流密度和热导率随温度升高的变化图,发现液态金属的微观热导率受温度的影响比较大,随着温度的升高而显著增大,与宏观下的变化规律一致.

为进一步探讨微尺度下平板间液态金属的自

然对流现象,在热墙模型的基础上沿着与温差垂直的方向施加重力加速度,分析微观尺度下的自然对流,此时粒子将受到势函数、温度梯度产生的浮升力和重力加速度合力的作用.

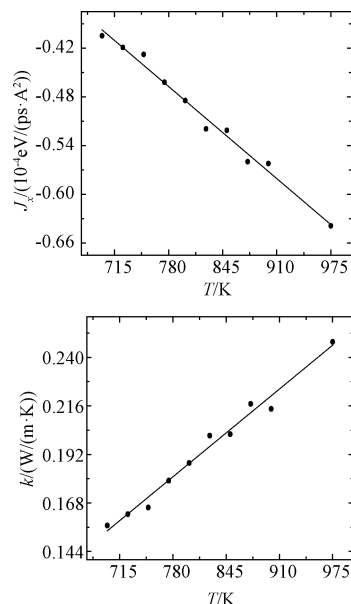


图 3 液态金属 Pb 的热流密度和热导率随温度的变化图

Fig. 3 Variation of heat flux and thermal conductivity of liquid metal Pb with temperature

图 4 给出了施加重力加速度情况下各参数的变化情况,从图 4 中可以看出,动能和原子数密度的分布规律与没有施加垂直向下的重力加速度的分布规律一致;随着施加重力加速度,温度分布图总体上仍呈现直线分布,平板间液态金属的温度分布只有轻微的波动.

图 5 给出了沿着 x 方向的速度分布,速度分布呈现为靠近低温区域速度比较小,靠近高温的区域运动比较剧烈.说明虽然液态金属随着温度升高,运动变得更加活跃了,该速度结果与宏观下的内部流速沿温度梯度变化不一致,宏观下的速度结果呈现为左低右高并在中部接近于零^[20].说明微尺度内部的液态金属在此温差大小产生的浮升力不足以驱动自然对流,系统的温度分布主要是由界面传热的温度差引起的,并非由自然对流换热引起.

从以上分析可以看出,流固耦合热墙边界能很好地应用于液态金属的分子动力学模拟.液态金属的微观热输运过程由于受到尺寸的限制,应用宏观下的统计规律获得热导率的微观统计参

数,呈现出显著的尺寸效应,比宏观小 1 ~ 2 个数量级,表现为边界处的热阻很大,导致了液态金属热导率偏小.

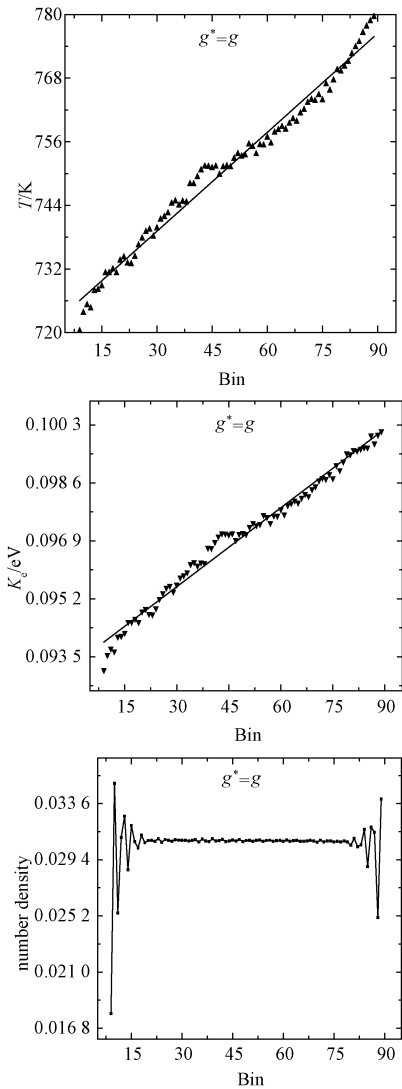


图 4 $g^* = g$ 时流体 Pb 的温度、动能和原子数密度分布图

Fig. 4 Temperature, kinetic energy and the atomic number density distribution of fluid Pb at $g^* = g$

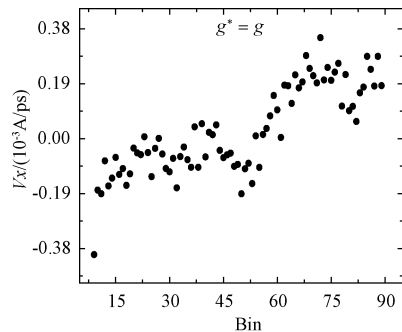


图 5 $g^* = g$ 时流体沿 x 方向速度分布

Fig. 5 Fluid velocity distribution along x direction at $g^* = g$

在液态金属的微观自然对流方面,由于边界处的阻力和流体的粘滞力很大,液态金属原子受到的浮升力难以克服这 2 种力对自然对流的抑制作用,流体温度分布表现出与静止流体导热相似 的分布规律. 在微观尺度下,液态金属无法出现自然对流,逐步增大尺度进行计算,可进一步研究其 自然对流换热过程和影响机理.

3 结论

本文应用分子动力学的方法,模拟液态金属 Pb 的微观热输运过程. 在总结已有文献研究的基础 上,建立了固壁换热模型,模拟液态金属 Pb 与 固体壁面间的界面换热. 在左右温差的作用下,区 域内液态金属的温度呈现线性分布,表现出很好 的导热状态.

通过对左右平板分别施加不同的恒温浴,模 拟不同温度场下的热输运过程,获得了不同温度 下液态金属的热流密度和导热率. 研究表明, 随温度的增加,热流密度呈现线性变化,而且随温 度的升高,热流逐渐降低;热导率随温度升高显著 增大,与宏观下的变化规律一致.

对液态金属施加重力加速度后,区域内的流 体 Pb 未见明显的流动,温度分布出现一定的波 动,但总体上流体温度分布表现出与静止流体导 热相似的分布规律. 这是由于边界处的阻力和流 体的粘滞力很大,液态金属原子受到的浮升力难 以克服这 2 种力对自然对流的抑制作用. 在大规 模并行计算支持下,需进一步研究验证通过增大 计算区域,液态金属的自然对流规律.

参考文献

[1] Maroo S C, Chung J N. A novel fluid-wall heat transfer model for molecular dynamics simulations [J]. Journal of Nanoparticle Research, 2010, 12 (5) : 1 913-1 924.

[2] Chen J, Liu C, Liu F, et al. Investigation of solid wall heating by molecular dynamic simulation [J]. Journal of Engineering Thermophysics, 2007, 28 (1) : 9-11.

[3] Kim B H, Beskok A, Cagin T. Thermal interactions in nanoscale fluid flow: molecular dynamics simulations with solid-liquid interfaces [J]. Microfluid Nanofluidics, 2008, 5 (4) : 551-559.

[4] Kamali R, Kharazmi A. Molecular dynamics simulation of surface roughness effects on nanoscale flows [J]. International Journal of Thermal Sciences, 2011, 50 (3) : 226-232.

[5] Kharea R, Keblikskib P, Yethiraje A. Molecular dynamics

- simulations of heat and momentum transfer at a solid-fluid interface; Relationship between thermal and velocity slip[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2006, 49 (19/20): 3 401-3 407.
- [6] Nagayama G, Cheng P. Effects of interface wettability on microscale flow by molecular dynamics simulation [J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2004, 47 (3): 501-513.
- [7] Xu J, Li Y. Boundary conditions at the solid-liquid surface over the multiscale channel size from nanometer to micron [J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2007, 50(13/14): 2 571-2 581.
- [8] Yin C Y, Mohamad E H. Simulation of liquid argon flow along a nanochannel; effect of applied force[J]. Fluid Flow and Transport Phenomena Chinese Journal of Chemical Engineering, 2009, 17(5): 734-738.
- [9] Priezjev N V. Rate-dependent slip boundary conditions for simple fluids[J]. Physical Review E, 2007, 75: 051 605.
- [10] Yang S. Effects of surface roughness and interface wettability on nanoscale flow in a nanochannel[J]. Microfluidics and Nanofluidics, 2006, 2(6): 501-511.
- [11] Ziarani A S, Mohamad A A. Effect of wall roughness on the slip of fluid in a microchannel[J]. Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering, 2008, 12(2): 154-169.
- [12] Maruyama S, Kimura T. A study on thermal resistance over a solid-liquid interface by the molecular dynamics method[J]. Thermal Science and Engineering, 1999, 7(1): 63-68.
- [13] Maroo S C, Chung J N. Molecular dynamic simulation of platinum heater and associated nanoscale liquid argon film evaporation and colloidal adsorption characteristics [J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2008, 328(1): 134-146.
- [14] Li Q b, Liu C. Molecular dynamics simulation of heat transfer with effects of fluid-lattice interactions [J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2012, 55(25/26): 8 088-8 092.
- [15] Barisik M, Beskok A. Boundary treatment effects on molecular dynamics simulations of interface thermal resistance [J]. Journal of Computational Physics, 2012, 231 (23): 7 881-7 892.
- [16] Barisik M, Beskok A. Temperature dependence of thermal resistance at the water/silicon interface [J]. International Journal of Thermal Sciences, 2014, 77: 47-54.
- [17] Hoyt J J, Garvin J W, Webb III E B, et al. An embedded atom method interatomic potential for the Cu-Pb system[J]. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2003, 11(3): 287-299.
- [18] Belashchenko D K, Kravchunovskaya N E, Ostrovski O, Molecular dynamics calculation of surface tension of liquid metals using the embedded atom model [J]. CALPHAD: Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry, 2010, 34: 45-50.
- [19] Shi Z Y, Barisik M, Beskok A. Molecular dynamics modeling of thermal resistance at argon-graphite and argon-silver interfaces [J]. International Journal of Thermal Sciences, 2012, 59: 29-37.
- [20] Turan O, Poole R J, Chakraborty N. Influences of boundary conditions on laminar natural convection in rectangular enclosures with differentially heated side walls [J]. International Journal of Heat and Fluid Flow, 2012, 33: 131-146.

+++++
(上接第 12 页)

- [3] Braeken A, Lano J, Mentens N, et al. SFINK: a synchronous stream cipher for restricted hardware environments [R/OL]. [2013-12-20]. eStream, ECRYPT Stream Cipher Project, Reprot 2005/035, 2005. <http://www.ecrypt.eu.org/stream>.
- [4] Si W P, Ding C S. A simple stream cipher with proven properties [J]. Cryptography and Communications, 2012, 4 (2): 79-104.
- [5] Wu B F, Liu Z J. Linearized polynomials over finite fields revisited[J]. Finite Fields and Their Applications, 2013, 22: 79-100.
- [6] Wu B F. Linearized and linearized derived permutation polynomials over finite fields and their compositional inverses [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2013 (in Chinese).
- [7] Dembowski P, Ostrom T. Planes of order n with collineation groups of order n^2 [J]. Design, Codes and Cryptography, 1968, 193(3): 239-258.
- [8] Liu M L. Geometry of alternate matrices [J]. Acta Mathematica Sinica, 1966, 16(1): 104-135 (in Chinese).