大温差气固相互作用模型的分子动力学研究

吴晓妍, 王子敬, 秦丰华*, 罗喜胜

中国科学技术大学近代力学系先进推进实验室, 合肥 230026

*联系人, E-mail: qfh@ustc.edu.cn

收稿日期: 2021-04-06; 接受日期: 2021-06-04; 网络出版日期: 2021-12-27

国家自然科学基金(编号: 11972338, 11625211, U1730124, 11621202)资助项目

摘要 气固相互作用是许多物理问题的基础, 描述气体分子反射速度分布的散射核模型在宏、微观流动研究中都有重要的应用. 经典散射核模型大都依赖于待定的调节参数, 且仅适用于气固温度相同或相近的情形. 本文针对不同温度气体分子在固定温度壁面上的相互作用问题, 利用分子动力学(MD)方法直接模拟气体分子的散射过程, 获得气体分子反射速度与入射状态的对应关系, 进而应用机器学习方法, 以Cercignani-Lampis-Lord模型为基础, 从直接模拟数据中重建出更精确的、考虑气固温度差影响的修正散射核模型, 分析气体分子散射特性及模型参数随气固温度比的变化规律. 结果表明, 在所讨论温度范围内, 与MD模拟结果相比较, 修正散射核模型能准确重现反射速度与同方向入射速度的概率密度分布; 气固温度差异对散射核的影响体现在特征温度调整为气体温度、调节系数随入射速度及气固温度比变化等两个方面. 随着气固温度比变大, 气体分子入射速度对散射特征的影响增强, 当温度比超过2.5时切向反射速度分布不再受温度影响, 而法向速度持续缓慢变化.

关键词 气固相互作用, 散射核, 分子动力学, 机器学习

PACS: 47.45.Nd, 34.50.Dy, 05.20.Dd

1 引言

气固相互作用是许多物理问题的基础, 宏观上通过镜面反射、漫反射等经验模型来描述气体分子在壁面上的散射特性. 为了更好地从微观上描述气固相互作用, 引入了散射核的概念^[1], 即气体分子以确定的初始条件(一般是入射速度)入射时, 与壁面碰撞后的反射速度满足的分布规律.

实验研究表明, 镜面反射和完全漫反射模型不足

以描述氮气(N₂)、氦气(He)分子在单晶硅(Si)表面的散射^[2,3]. 1971年, Cercignani与Lampis^[4]构造了一个满足归一化条件和互易性原理的相互作用模型, 分别为气体分子反射速度分量建立散射核, 每个散射核中均包含一个调节系数(AC). 如果壁面为各向同性, 则可以减少一个切向散射核; 剩下两个系数是切向动量调节系数(TMAC)和法向能量调节系数(EAC). 1995年, Lord^[5]发展了这一模型, 并将其应用于直接模拟蒙特卡罗(DSMC)算法. 因此, 该模型被称为CLL模型, 是

引用格式: 吴晓妍, 王子敬, 秦丰华, 等. 大温差气固相互作用模型的分子动力学研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2022, 52: 224712
Wu X Y, Wang Z J, Qin F H, et al. Numerical study of gas-solid interactions with large temperature differences based on molecular dynamics (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2022, 52: 224712, doi: [10.1360/SSPMA-2021-0106](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2021-0106)

目前应用最为广泛的气固相互作用模型.

随着稀薄气体动力学^[6]、微尺度力学的发展, 对气固相互作用模型提出了更高的要求. 近年来不少学者采用分子动力学(MD)方法或者与MD相关的混合算法模拟气固相互作用过程, 建立更准确的散射核模型, 如Yamanishi等人^[7]提出的多层次模型、Yamamoto等人^[8]得到的Maxwell扩展模型, Yakunchikov等人^[9]则修正了CLL模型. 也有学者考察更真实物理条件对散射核的影响, 如WashBorad模型考察壁面粗糙度的影响^[10], Liang等人^[11]基于此建立了新的气固相互作用模型, 比传统唯象模型准确, 比MD模拟高效. 目前为止, 散射核的研究仍然以经典模型, 特别是CLL模型为基础展开.

CLL模型应用的一大困难在于如何确定调节系数的取值. 调节系数不仅与气、固材料属性有关, 也与热力学状态有关. 早在1943年, Thomas等人^[12]采用实验手段探究了气固之间存在50 K温差的情况下, 氩气(Ar)对铂(Pt)丝的调节系数, 发现气体温度变化对其影响较大. 2014年, Reinhold等人^[13]采用MD方法数值研究了不同温度下Ar在Pt, Si等固壁上的散射规律, 发现TMAC随温度呈指数次衰减规律. 随后, Yousefi-Nasab等人^[14]针对稀有气体与聚合物表面的工作发现了同样的规律. 这些工作中气体与固壁的温度都保持相同, 没有考虑气固温度差的影响. 2017年, Yamaguchi等人^[15]采用MD数值研究了稀有气体与固壁Pt存在50 K温差下调节系数的变化规律, 发现能量调节系数EAC、法向动量调节系数NMAC和TMAC随气体质量增加对温度的敏感性表现出不同的形式, Ar相较于Ne对温度更敏感. 从实验和数值上均发现温度对调节系数的影响较大, 然而目前的研究大多针对气体与固壁等温或温差较小的情况展开. 而实际稀薄气体流动, 如高超声速飞行器等重入大气层边界会出现超高温, 周围绕流流场的空气温度高达4000 K以上^[16,17], 即使考虑边界层的影响, 近壁区温度有所降低, 稀薄气体效应可能导致的温度跳跃使得壁面附近温度仍高于壁面温度, 采用等温或小温差散射参数可能使边界条件等产生很大偏差.

本文针对气固之间存在温度差且温度差在较大范围内变化的情况, 采用分子动力学方法模拟气固相互作用过程, 以CLL模型为基础, 结合机器学习方法^[18], 建立改进的相互作用模型, 重点考察调节系数的确定

方法及气固温差的影响.

2 计算模型与方法

2.1 计算模型

一般情况下, 气体分子间的平均自由程远大于分子间相互作用的截断半径, 因此气体分子与固体表面的碰撞几乎不受其他气体分子的影响. 假设固体壁面处于平衡状态, 宏观上气体流动与固体表面的相互作用, 可以看作是单个气体分子与固体表面的大量独立碰撞. 因此, 对气固相互作用的模拟可以被分成一系列独立的算例, 每个算例只包括一个气体分子和固体壁面, 如图1所示. 所有算例壁面状态是类似的, 气体分子的入射状态各不相同, 但所有气体分子的统计特征必须与气体保持一致.

设定壁面处于平衡状态, 温度 $T_w = 300$ K, 由铂原子组成, 以面心立方(FCC)晶体结构排列, 气固相互作用面在(1, 0, 0)平面. 切向(x, y方向, 下文也用下标 $d=1, 2$ 表示)各布置6个晶胞, 法向(z或 $d=3$)3个晶胞. 壁面各向同性, 因此在切向边界处应用周期性边界条件.

本文选取氩气作为入射气体. Ar分子位于壁面上方, 随机确定其切向入射位置, 且所有气体分子入射高度相同, 离壁面距离 h 略大于截断半径. 由于目前的工作关注散射核, 亦即统计特征的表达, 因此在一系列模拟中气体分子的初始状态应保持气体的统计特征, 即模拟中的每个气体分子都可以看作是来流所有分子

图 1 (网络版彩图) Ar原子与Pt壁面相互作用模型示意图
Figure 1 (Color online) Diagram of the interaction of Ar with the Pt wall surface.

的样本. 来流处于平衡状态, 分子速度满足Maxwell分布^[1]

$$f_c(U_{i,d}) = \begin{cases} e^{-U_{i,d}^2} / \sqrt{\pi}, d = 1, 2, \\ 2U_{i,d}e^{-U_{i,d}^2}, d = 3, \end{cases} \quad (1)$$

其中下标*i*代表入射状态, U 是以最可几速率 $V_m = \sqrt{2R_g T_g}$ 归一化的气体分子速度, 分布函数则以 $1/V_m$ 归一化. R_g 为气体常数, 气体温度 T_g 在[300 K, 4500 K]范围内变化. 由于模拟中只考虑入射到固体表面的气体分子, 所以入射速度的法向分量范围为 $[-\infty, 0]$. 基于平衡态分布, 通过随机采样方法^[19]生成大量气体分子的初始速度. 如图2所示, 当样本数量达到100000时, 入射速度各分量的概率分布都会很好地收敛到Maxwell分布.

2.2 MD方法

Ar与Pt壁面的碰撞过程采用分子动力学方法模拟. 所有分子间的相互作用都以Lennard-Jones势函数来描述

$$U_{ij} = 4\varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right] \quad (2)$$

其中能量参数 ε 和距离参数 σ 的取值如表1所示^[20]. 分别选取Pt原子质量 m_{Pt} 、势函数参数 σ_{Pt} 、 ε_{Pt} 以及壁面温度 T_w 作为质量、长度、能量和温度的特征量, 对本文涉及的所有变量进行无量纲化处理. 此外, 当固壁分子偏离其平衡位置距离 Δx 时, 将对其施加一个类似弹簧回复力 $F_{spr} = -k\Delta x$ 作用, 以保持壁面模型的稳定性, 这

一方法也得到了广泛的应用^[21]. 其中 k 为弹簧回复系数, 本文设定 $k = 5000$.

时间推进格式选用Velocity Verlet算法^[22]用于更新分子位置和速度. 时间步长设置为 $dt=0.001$, 相当于0.61635 fs. 经过足够长时间的弛豫过程, 铂壁面达到平衡后, 开始计算Ar与壁面的碰撞过程. 当Ar原子与壁面的法向距离再次超过初始高度 h 时, 则认为碰撞完成, 记录反射状态信息, 终止模拟.

对于每个气体温度, 都要计算一组10万个独立算例, 但每个算例仅包含数百个原子, 计算量并不大. 利用图形处理器(GPU)并行线程众多的特点^[23], 开发了多算例并程序, 使用单GPU卡可同时运行近千个算例, 每组算例可在3 d以内完成, 这使得对气固相互作用过程的直接模拟成为可能.

2.3 基于机器学习的散射核建立方法

MD模拟数据中包含了气体分子散射的所有信息, 只有从这些大量的离散数据中构建出解析表达的散射核, 才能在其他工作中方便的应用. 传统散射核如Maxwell模型, 假设反射速度不同方向分量的分布概率是相互独立的, CLL模型进一步假设任意分量的分布只受同方向入射速度分量的影响, 其无量纲散射核如下:

$$R_{CL,d} = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{\pi}\sigma_t(2-\sigma_t)} e^{-\frac{[u_{r,d}-(1-\sigma_t)u_{i,d}]^2}{\sigma_t(2-\sigma_t)}}, & d = 1, 2, \\ \frac{2u_{r,d}}{\alpha_n} e^{-\frac{u_{r,d}^2 + (1-\alpha_n)u_{i,d}^2}{\alpha_n}} I_0 \left(\frac{2\sqrt{1-\alpha_n}u_{r,d}u_{i,d}}{\alpha_n} \right), & d = 3, \end{cases} \quad (3)$$

图 2 (网络版彩图)入射分子切向(a)、法向(b)速度概率分布

Figure 2 (Color online) Probability distribution of tangential (a) and normal (b) velocity of incident molecules.

表 1 L-J势函数参数及相对分子量^[20]

 Table 1 Parameters in L-J potential function and relative molecular mass^[20]

Interaction	σ (nm)	E (J)	Mass (amu)
Ar-Ar	0.340	1.654×10^{-21}	39.95
Pt-Pt	0.247	5.207×10^{-20}	195.08
Ar-Pt	0.294	1.093×10^{-21}	—

其中 u 是以 $V_w = \sqrt{2R_g T_w}$ 归一化的气体分子速度, 相应地, 散射核以 $1/V_w$ 归一化, V_w 是壁面温度对应的最可几速率, 可认为是散射核的特征速度, 体现了壁面状态对气体分子散射特性的影响. 下标 r 表示反射.

$I_0(z) = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi e^{z \cos \theta} d\theta$ 为第一类零阶Bessel函数. σ_i 和 α_n 分别是切向动量和法向能量调节系数, 常规应用中假定为常数, 通过其他方法如分子束实验等来确定其取值. 本文散射核同样针对任一反射速度分量及相同方向的入射速度分量建立, 可记为

$$R_d = R(u_{r,d} | u_{i,d}). \quad (4)$$

由于散射核描述的是分子入射速度一定时反射速度的分布概率, 这里使用了条件概率的形式. 散射核的具体形式待定, 其中包含一些参数, 这些参数可能与入射速度所有分量相关. 当大量分子以不同的入射速度碰撞壁面, 若入射速度的分布已知, 如前述平衡态分布, 则能根据散射核计算速度对 $(u_{r,d}, u_{i,d})$ 的分布概率密度

$$(Rf)_d^{(i,r)} = \frac{\iint R_d f(u_{i,d}) f(u_{i,m}) f(u_{i,n}) du_{i,m} du_{i,n}}{\iint f(u_{i,m}) f(u_{i,n}) du_{i,m} du_{i,n}}, \quad (5)$$

其中 m, n 表示与 d 不同的另两个方向. 当散射核只与 d 方向速度分量相关时, 上式可退化为

$$(Rf)_d^{(i,r)} = R_d f(u_{i,d}). \quad (6)$$

同时, 反射速度的分布概率密度也可以从MD模拟数据中统计得到

$$P_d^{(i,r)} = \frac{N_s^{(i,r)}}{N_s \Delta u_i \Delta u_r}, \quad (7)$$

其中 N_s 是与固壁作用散射的分子总数, $N_s^{(i,r)}$ 是入射、反射速度分别在区间 $(u_i - \Delta u_i/2, u_i + \Delta u_i/2)$, $(u_r - \Delta u_r/2, u_r + \Delta u_r/2)$ 内的分子数目. 显然, 区间范围 $\Delta u_i, \Delta u_r$ 大小的

选取会直接影响概率密度: 太小会导致统计散差过大, 太大则可能掩盖概率密度的变化. 经过测试, 本文选择 $\Delta u_i = \Delta u_r = 1/50$.

式(5)或(6)与(7)从不同角度计算相同的速度对分布概率密度, 前者包含了需要建立的散射核, 因此以式(7)为目标函数, 通过机器学习算法^[24]即可获得散射核的具体形式. 更进一步, 基于经典理论如CLL模型, 预先假定待求散射核的基本形式, 机器学习算法将简化为采用拟合算法确定散射核中待定参数, 大大降低学习难度. 拟合算法的误差函数定义为

$$\text{Error} = \sum_{i,r} \omega_d^{(i,r)} [P_d^{(i,r)} - (Rf)_d^{(i,r)}]^2. \quad (8)$$

为了提高拟合效率, 并将分布概率密度大的区域设定为优先拟合区域, 分别为切向和法向的误差函数引入权系数

$$\omega_d^{(i,r)} = \begin{cases} P_d^{(i,r)}, & d = 1, 2, \\ P_d^{(i,r)} + e^{-50 \cdot P_d^{(i,r)}}, & d = 3. \end{cases} \quad (9)$$

拟合算法通过迭代使函数误差逐渐逼近其极值点. 本文采用Nesterov加速梯度(NAG)算法^[25], 根据误差函数的梯度决定推进加速度, 而不是推进速度. 通过累积历史梯度, 大大提高拟合效率. 同时, 由于惯性, 使得拟合很容易在极小值点之后突破障碍到达一个新的极小值点, 增大了找到最小极值点的概率.

3 结果与讨论

3.1 散射核模型

应用广泛的CLL模型为重建散射核提供了首选形式. 然而遗憾的是, 无论如何调节其中的参数, 标准CLL模型与MD模拟结果都相差甚大. 为此, 本文放弃调节系数为常数的假设, 并引入额外的参数以反映气固温差的影响, 建立如下形式的修正散射核(下文简记为MCLL)

$$R_{C,d} = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{\pi} \tau_i \sigma_i (2 - \sigma_i)} e^{\frac{[u_{r,d} - (1 - \sigma_i) u_{i,d}]^2}{\tau_i \sigma_i (2 - \sigma_i)}}, & d = 1, 2, \\ \frac{2 u_{r,d}}{\tau_n \alpha_n} e^{-\frac{u_{r,d}^2 + (1 - \alpha_n) u_{i,d}^2}{\tau_n \alpha_n}} I_0 \left(\frac{2 \sqrt{1 - \alpha_n} u_{r,d} u_{i,d}}{\tau_n \alpha_n} \right), & d = 3. \end{cases} \quad (10)$$

调节系数与入射速度相关

$$\begin{cases} \sigma_t = \sigma_0 e^{-(\xi_1 u_{i,d}^2 + \xi_3 u_{i,3}^2)}, \\ \alpha_n = \alpha_0 e^{-\xi_2 (u_{i,1}^2 + u_{i,2}^2)}, \end{cases} \quad (11)$$

其中 d' 表示另一个切向方向. 本文主要讨论气固间存在温度差异的情形, T_g , T_w 均可以作为特征温度, 这里与标准CLL模型一样, 仍然选择以壁面温度对应的最可几速率 V_w 作为特征速度. 由此会导致气体温度不同时, $u_{i,d}$, $u_{r,d}$ 的分布范围不一致, 下文画图时为便于对比, 将其转化为以 V_w 归一化的 $U_{i,d}$ 和 $U_{r,d}$. 修正散射核中包含7个待定常数, 其中要指出的是, 从式(10)可以发现, 温度调节系数 τ_t 和 τ_n 并不是 σ_t 和 α_n 的修正因子. 这些参数需要基于MD模拟数据通过拟合算法确定, 具体取值及随温度的变化规律在3.3节讨论.

不同气体温度下, 切向速度对($U_{r,1}$, $U_{i,1}$)、法向速度对($U_{r,3}$, $U_{i,3}$)的概率密度分布分别如图3和4所示, 图

中同时显示了MD统计结果(颜色)和MCLL模型预测结果(等值线), 以便直接对比. 可见在所有温度下, 两者均吻合良好, 表明MCLL模型能准确重现MD数值模拟结果.

同时可以发现两对速度的概率密度分布关于对角线对称, 这正是互易性原理的直接反映^[26,27]. 切向速度对的概率分布呈纺锤形, 这与Spijker等人^[18]的结果相一致. 当入射速度较大时, 反射速度的分布范围越窄, 受入射状态的影响较大; 当入射速度较小时, 反射速度分布在更宽的范围, 壁面影响增强, 反射倾向于漫反射状态. 法向速度对的概率分布则呈叶片状, 两尖端锋利, 中间区域较宽, 这与分子束实验^[28]定性相符. 相对于切向速度, 法向反射速度分布于更宽的范围, 更容易受到壁面的影响.

随着气体温度升高, 不论是切向还是法向, 速度对的概率分布均逐渐向对角线集中, 而对角线表示了反

图 3 (网络版彩图)不同气体温度下切向速度对($U_{r,1}$, $U_{i,1}$)的概率密度分布. $T_g=300$ K (a), 400 K (b), 1800 K (c), 4500 K (d)
Figure 3 (Color online) Probability density distribution of ($U_{r,1}$, $U_{i,1}$) with different gas temperatures. $T_g=300$ K (a), 400 K (b), 1800 K (c), 4500 K (d).

图 4 (网络版彩图)不同气体温度下法向速度对($U_{r,3}$, $U_{i,3}$)的概率密度分布

Figure 4 (Color online) Probability density distribution of ($U_{r,3}$, $U_{i,3}$) with different gas temperatures.

射速度完全由入射速度决定的区域, 对应于镜面反射情形. 这表明, 气体温度显著高于壁面温度时, 壁面的影响变得很弱, 反射状态向镜面反射偏移.

3.2 不同方向上的散射核模型

标准CLL模型认为仅与相同方向速度对有关, 而MCLL散射核中任意方向的反射速度实际上与入射速度的所有分量都相关. 因此, 也可以由式(3)得到不同方向速度对的分布概率密度. 作为示例, 图5给出了不同方向的速度对($U_{r,1}$, $U_{i,2}$)和($U_{r,3}$, $U_{i,1}$)在不同温度下的概率密度分布.

由图可见切向速度对($U_{r,1}$, $U_{i,2}$)的概率密度等值线基本上是一组同心曲线. 若 $u_{r,1}$ 完全与 $u_{i,2}$ 无关, 且速度都满足平衡态分布, 则等值线应为规则圆形. 因此, 反射切向速度与另一切向的入射速度相关性确实较弱. 但从细节上看, MCLL模型与MD结果略有差异, 特别

是在温度较低时, 前者更接近圆形, 后者略偏方形. 随着温度升高, 这种差异变小. 但对于法向反射速度与切向入射速度对($u_{r,3}$, $u_{i,1}$)的概率密度分布, MCLL模型与数值结果存在明显差别, 特别是当气体温度与壁面温度接近时, 从等值线形状来看, 几乎是相反的. 不难验证, MCLL模型预测的概率分布非常接近 $u_{r,3}$ 与 $u_{i,1}$ 分布相互独立且均处于平衡状态时的情形. 因此, 与MCLL存在差异的数值结果表明 $u_{r,3}$ 与 $u_{i,1}$ 之间存在明显的相关性, 但这种相关性随着气体温度的升高而变弱, MD模拟得到的概率分布与MCLL模型预测结果差异变小.

3.3 模型参数与温度的关系

MD模拟结果清楚地显示出, 气体分子在固壁的散射特性会受到气固温度差别的影响, 在散射核模型中, 这种影响将通过模型参数来反映. 如前所述, MCLL模型包含7个参数, 可分为三组, 下面分别讨论

图 5 (网络版彩图)不同气体温度下不同方向速度对 $(U_{t,1}, U_{i,2})$ 和 $(U_{t,3}, U_{i,1})$ 的概率密度分布

Figure 5 (Color online) Probability density distributions of $(U_{t,1}, U_{i,2})$ and $(U_{t,3}, U_{i,1})$ with different gas temperatures.

这些参数的取值及变化规律.

第一组参数 σ_0 和 α_0 将直接决定切向动量调节系数 σ_t 、能量调节系数 α_n 的取值范围, 图6给出了其随气固温度比 $\tau=T_g/T_w$ 的变化趋势. 随着温度的升高, 气固温度相近时两参数均快速降低, 散射特征变化明显. 同

时, σ_0 和 α_0 变小意味着调节系数变小, 镜面反射的比重增加, 这与图3和4中同向速度对概率分布向对角线集中的现象是一致的.

随着气体温度升高, 当 $\tau>2.5$ 后, σ_0 基本上趋于一个常值, 约为0.659; 这时, 切向速度对的概率分布几乎不

图 6 (网络版彩图) σ_0 和 α_0 随气固温度比的变化关系
Figure 6 (Color online) Variation of σ_0 and α_0 with the gas-solid temperature ratio.

再变化, 如图3(c)和(d)所示. 而 α_0 在本文模拟的整个温度范围内均有变化, 只是温度较高时变化变慢.

MCLL模型中调节系数还与不同方向的入射速度分量有关, 如式(11)所示, ζ_1 , ζ_3 分别表示切向、法向速度对 σ_t 的影响; 由于壁面的各向同性, 两个切向方向的入射速度对 α_n 的影响是等同的, 仅包含一个参数 ζ_2 . 因此, 这三个参数实际上也反映了反射速度与不同方向入射速度之间的相关性. 如图7所示, 总体上看三个参数均随温度升高而减小, 表明较高温度时, 不同方向速度间的相关性变弱, 这与图5中MD模拟结果是一致的.

图 7 (网络版彩图) ζ_i 随气固温度比的变化关系
Figure 7 (Color online) Variation of ζ_i with the gas-solid temperature ratio.

同时, 应该指出的是, 这三个参数的引入, 主要目的仍然在于改进MCLL散射核预测同方向速度概率密度分布的准确性, 限于CLL模型固有的特点, 反射速度与不同方向入射速度的相关性很难仅通过调节系数修正而准确捕捉, 还需要进一步改进散射核的形式, 这部分工作将另文讨论.

最后, 为体现气固温度差效应而引入的参数 τ_t 和 τ_n 如图8所示, 可以发现这两个参数实际上可由气固温度比 τ 代替, 即 $\tau_t = \tau_n = \tau$. 若散射核式(10)中调节系数 σ_t 和 α_n 均为常数, 则切向散射核是标准的正态分布, 其数学期望对应于反射速度分布的最大概率, 标准差对应于反射速度分布范围; 随着温度比 τ 增大, 最大概率将变小、速度分布范围变宽, 而这与图3所示结果正好相反. 法向散射核也有类似现象.

观察修正散射核的形式, 若将特征速度调整为气体分子最可几速率 V_m , 则式(10)改写为

$$\tilde{R}_{C,d} = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{\pi\sigma_t(2-\sigma_t)}} e^{-\frac{[U_{r,d} - (1-\sigma_t)U_{i,d}]^2}{\sigma_t(2-\sigma_t)}}, & d = 1, 2, \\ \frac{2U_{r,d}}{\alpha_n} e^{-\frac{U_{r,d}^2 + (1-\alpha_n)U_{i,d}^2}{\alpha_n}} I_0\left(\frac{2\sqrt{1-\alpha_n}U_{r,d}U_{i,d}}{\alpha_n}\right), & d = 3. \end{cases} \quad (12)$$

形式上与标准CLL模型式(3)完全相同, 可见气固温度比并不直接影响速度分布范围及概率密度大小, 只是当气体与固壁之间存在温度差别时, 散射核的特

图 8 (网络版彩图) τ_t 和 τ_n 随气固温度比的变化关系
Figure 8 (Color online) Variation of τ_t and τ_n with the gas-solid temperature ratio.

征速度应选择气体温度对应的速率 V_m . 相应的, 调节系数的表达式(11)改写为

$$\begin{cases} \sigma_i = \sigma_0 e^{-\tau(\xi_1 U_{i,1}^2 + \xi_3 U_{i,3}^2)}, \\ \alpha_n = \alpha_0 e^{-\tau \xi_2 (U_{i,1}^2 + U_{i,2}^2)}. \end{cases} \quad (13)$$

调节系数不仅与入射速度有关, 也依赖于气固温度比, 壁面温度对散射核的影响正是通过调节系数得以体现. 前述反射速度概率密度分布随温度比变化也是调节系数随入射速度、温度比变化的直接结果.

如前所述, 修正散射核形式上与标准CLL模型相同, 因此完全遵循标准CLL模型的处理过程, 将其应用于DSMC方法. 只是标准CLL模型中的调节系数是预先指定且不变的, 而MCLL模型则需要根据入射分子速度与温度实时计算调节系数. 需要说明的是, 温度很难对单个分子进行定义, 考虑到散射核本质上是大量入射-反射过程的统计规律, 对大量的入射分子则可定义温度. 且散射核中温度来源于入射分子速度分布, 因此该温度对应于平动温度. 具体到DSMC中实际应用, 可由与壁面碰撞位置相邻的网格中统计平均所得平动温度来更新调节系数, 从而实现MCLL模型在DSMC中的直接应用.

4 结论

本文采用分子动力学方法对气体分子在固体壁面上的散射过程进行了直接模拟, 进而以标准CLL模型为基础, 放弃调节系数为常数的假设, 应用机器学习方法从模拟数据中重建出更准确的修正散射核模型, 获得了调节系数与入射速度的定量关系. 与数值模拟结果相比, 修正模型尽管在反射速度与不同方向入射速度的相关性方面有所欠缺, 但能准确地重现同方向

速度对的概率密度分布.

结合MD模拟和修正散射核模型, 考察了大范围变化气固温度差别对气体分子散射特征及模型参数的影响. 结果表明, 当气体温度与壁面温度接近时, 气体分子反射速度与不同方向的入射速度存在较为明显的相关性, 这是传统散射核完全忽略的, MCLL模型通过调节系数建立起反射速度与入射速度所有分量的关系, 但仍不足以完整地捕捉这种相关性. 随着气体温度升高, 这种相关性逐渐变弱; 分子散射速度分布范围逐渐变窄, 且概率密度分布向对角线集中, 表明反射状态受到入射状态的影响更大. 当气固温度比 $\tau > 2.5$ 以后, 切向反射速度分布概率密度几乎不再受温度影响, 但法向反射速度在本文研究范围内均随温度变化.

本文建立的修正散射核与标准CLL模型形式上的一致, 调节系数仅与入射状态有关, 并考虑了气固温差的影响, 可直接应用于分子类数值方法, 开展诸如高超稀薄气体流动的Monte Carlo (DSMC)直接模拟等工作. 调节系数与入射状态有关同时导致了基于散射核的理论分析变得复杂, 由此导出宏观流动边界条件比较困难. 另外, 本文采用无量纲形式进行MD计算及数据分析、模型建立, 特征量变化也会影响气固相互作用过程. 壁面温度 T_w 反映了壁面原子热运动剧烈程度, 距离参数 σ_{pt} 与壁面原子结构相关, 质量 m_{pt} 则直接影响加速度大小, 共同决定了气体分子在碰撞过程中的受力特征. 而能量参数 ϵ_{pt} 与气固相互作用强度密切相关, 当相互作用很强时, 气体分子有一定概率被壁面吸附, 从而显著改变散射规律. 特征量的影响尚需进一步研究. 同时, 为了捕捉反射速度分量与不同方向入射速度分量的相关性, 也需对散射核进行更深入的研究. 本文采用的MD直接模拟与机器学习相结合的方法为建立通用的气固相互作用模型提供了一条可能的途径.

参考文献

- 1 Bird G A. Molecular Gas Dynamics and the Direct Simulation of Gas Flow. Oxford: Clarendon Press, 1994
- 2 Ewart T, Perrier P, Graur I A, et al. Mass flow rate measurements in a microchannel, from hydrodynamic to near free molecular regimes. *J Fluid Mech*, 2007, 584: 337–356
- 3 Maurer J, Tabeling P, Joseph P, et al. Second-order slip laws in microchannels for helium and nitrogen. *Phys Fluids*, 2003, 15: 2613–2621
- 4 Cercignani C, Lampis M. Kinetic models for gas-surface interactions. *Transp Theor Statistical Phys*, 1971, 1: 101–114
- 5 Lord R G. Some further extensions of the Cercignani-Lampis gas-surface interaction model. *Phys Fluids*, 1995, 7: 1159–1161
- 6 Zhou H, Zhang H X. New problems of aerodynamics (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2015, 45: 104709 [周恒, 张涵信. 空气动力学的新问题. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2015, 45: 104709]

- 7 Yamanishi N, Matsumoto Y, Shobatake K. Multistage gas-surface interaction model for the direct simulation Monte Carlo method. *Phys Fluids*, 1999, 11: 3540–3552
- 8 Yamamoto K, Takeuchi H, Hyakutake T. Characteristics of reflected gas molecules at a solid surface. *Phys Fluids*, 2006, 18: 046103
- 9 Yakunchikov A N, Kovalev V L, Utyuzhnikov S V. Analysis of gas-surface scattering models based on computational molecular dynamics. *Chem Phys Lett*, 2012, 554: 225–230
- 10 Mateljevic N, Kerwin J, Roy S, et al. Accommodation of gases at rough surfaces. *J Phys Chem C*, 2009, 113: 2360–2367
- 11 Liang T, Li Q, Ye W. A physical-based gas-surface interaction model for rarefied gas flow simulation. *J Comput Phys*, 2018, 352: 105–122
- 12 Thomas L B, Olmer F. The accommodation coefficients of He, Ne, Ar, H₂, D₂, O₂, CO₂, and Hg on platinum as a function of temperature. *J Am Chem Soc*, 1943, 65: 1036–1043
- 13 Reinhold J, Veltzke T, Wells B, et al. Molecular dynamics simulations on scattering of single Ar, N₂, and CO₂ molecules on realistic surfaces. *Comput Fluids*, 2014, 97: 31–39
- 14 Yousefi-Nasab S, Safdari J, Karimi-Sabet J, et al. Determination of momentum accommodation coefficients and velocity distribution function for noble gas-polymeric surface interactions using molecular dynamics simulation. *Appl Surf Sci*, 2019, 493: 766–778
- 15 Yamaguchi H, Matsuda Y, Niimi T. Molecular-dynamics study on characteristics of energy and tangential momentum accommodation coefficients. *Phys Rev E*, 2017, 96: 13116–13123
- 16 Pezzella G, Votta R. Finite rate chemistry effects on the high altitude aerodynamics of an apollo-shaped reentry capsule. In: Proceedings of the AIAA/DLR/DGLR International Space Planes and Hypersonic Systems and Technologies Conference. Bremen: American Institute of Aeronautics and Astronautics, 2009. 7306–7321
- 17 Dong W Z, Gao T S, Ding M S, et al. Numerical study of coupled surface temperature distribution and aerodynamic heat for hypersonic vehicles (in Chinese). *Acta Aeronaut et Astron Sin*, 2015, 36: 311–324 [董维中, 高铁锁, 丁明松, 等. 高超声速飞行器表面温度分布与气动热耦合数值研究. *航空学报*, 2015, 36: 311–324]
- 18 Spijker P, Markvoort A J, Nedeau S V, et al. Computation of accommodation coefficients and the use of velocity correlation profiles in molecular dynamics simulations. *Phys Rev E*, 2010, 81: 11201–11203
- 19 Benjamin A S, Ewald S. Basic Concepts in Computational Physics. Cham: Springer, 2016
- 20 Prabha S K, Sathian S P. Calculation of thermo-physical properties of Poiseuille flow in a nano-channel. *Int J Heat Mass Transfer*, 2013, 58: 217–223
- 21 Hansen J S, Todd B D, Davis P J. Prediction of fluid velocity slip at solid surfaces. *Phys Rev E*, 2011, 84: 16313–16320
- 22 Swope W C, Andersen H C, Berens P H, et al. A computer simulation method for the calculation of equilibrium constants for the formation of physical clusters of molecules: Application to small water clusters. *J Chem Phys*, 1982, 76: 637–649
- 23 Li C G, Maa J P Y, Kang H G. Solving generalized lattice Boltzmann model for 3-D cavity flows using CUDA-GPU. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2012, 55: 1894–1904
- 24 Andric N, Meyer D W, Jenny P. Data-based modeling of gas-surface interaction in rarefied gas flow simulations. *Phys Fluids*, 2019, 31: 67109–67120
- 25 Nesterov Y E. A method for solving the convex programming problem with convergence rate $O(1/k^2)$. *Dokl Akad Nauk Sssr*, 1983, 269: 543–547
- 26 Wenaas E P. Equilibrium cosine law and scattering symmetry at the gas-surface interface. *J Chem Phys*, 1971, 54: 376–388
- 27 Kuščher I. Reciprocity in scattering of gas molecules by surfaces. *Surf Sci*, 1971, 25: 225–237
- 28 Shen C. Rarefied Gas Dynamics: Fundamentals, Simulations and Micro-Flows. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2006

Numerical study of gas-solid interactions with large temperature differences based on molecular dynamics

WU XiaoYan, WANG ZiJing, QIN FengHua^{*} & LUO XiSheng

*Advanced Propulsion Laboratory, Department of Modern Mechanics, University of Science and Technology of China,
Hefei 230026, China*

The scattering of gas at different temperatures on a solid surface with a specified temperature was directly simulated using the molecular dynamics (MD) method. Then, based on the Cercignani-Lampis-Lord (CLL) model, a more accurate modified scattering kernel considering the effect of the gas-solid temperature difference was reconstructed from the MD simulation data using the machine-learning method. The scattering characteristics of gas molecules and the dependency of the parameters in the scattering kernel on the gas-solid temperature ratio were analyzed. The results showed that the probability density of the reflection velocity with the incidence velocity in the same direction predicted by the modified scattering kernel agreed very well with the value counted from MD simulation data. Unlike the traditional kernels in which wall temperature is considered, the characteristic temperature in the modified kernel is the gas temperature. The adjustment coefficients (ACs) depend on both the incident velocity and gas-solid temperature ratio. The analytic expressions for ACs are obtained. The larger the gas-solid temperature ratio, the stronger is the influence of the molecular incidence velocity on the scattering characteristic. When the temperature ratio is greater than 2.5, the probability density of reflection velocity in the tangential direction remains almost constant, but that in the normal direction changes slowly with temperature.

gas-solid interaction, scattering kernel, molecular dynamics, machine learning

PACS: 47.45.Nd, 34.50.Dy, 05.20.Dd

doi: [10.1360/SSPMA-2021-0106](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2021-0106)