

DOI: 10.3969/j.issn1000-4874.2014.04.001

自驱动 Janus 微球分数布朗运动的颗粒动力学模拟*

胡静¹, 张鸿雁¹, 郑旭², 崔海航¹

(1. 西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 陕西 西安 710055, Email: hujingdlu@163.com;
2. 中国科学院力学研究所 非线性力学国家重点实验室, 北京 100190)

摘要: 该文通过分析 Janus 微球的运动过程, 建立了包括随机布朗力、布朗力矩、自驱动力及 Stokes 阻力在内的颗粒动力学模型, 通过数值模拟手段研究了不同粒径和不同自驱动速度下 Janus 微球的分数布朗运动, 获得了不同的运动模式、均方位移及 Hurst 指数。模拟结果表明, Janus 微球的均方位移随时间非线性增加, 在不同观察时间下 Janus 微球可呈现出布朗运动、自驱动及类布朗运动的特征, Hurst 指数亦产生相应变化。数值模拟结果与实验结果很好地符合, 反映出 Janus 微球的分数布朗运动特性, 说明所建颗粒力学模型的合理性, 为今后 Janus 微球的操控与具体应用奠定了基础。

关键词: Janus 微球; 数值模拟; 自驱动; 分数布朗运动

中图分类号: O363.1

文献标识码: A

Particle dynamics simulation on fractional Brownian motion of self-propellant Janus microsphere

HU Jing¹, ZHANG Hong-yan¹, ZHENG Xu², CUI Hai-hang¹

(1. School of Environment and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Shan xi Xi'an 710055, China;

2. Laboratory of Nonlinear Mechanics, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract: Based on Janus microsphere's motion analysis, the particle dynamic model involving random Brownian force and torque, self-propulsion and Stokes drag are constructed. Through numerical solving, the effect of different diameters and different self-propulsion strength on fractional Brownian motion are studied. Different motion modes and the mean square displacement

* **收稿日期:** 2014-02-17(2014-04-24 修改稿)

基金项目: 国家自然科学基金(21005058, 11272322, 11202219), 高等学校博士学科点专项科研基金(20106120120011)和陕西省教育厅专项科研项目(11JK0530)

作者简介: 胡静(1989-), 女, 陕西宝鸡人, 硕士研究生。

通信作者: 崔海航, Email: cuihaihang@xauat.edu.cn

Received: February 17, 2014 (**Revised** April 24, 2014)

Project supported by foundations: Supported by the National Natural Science Foundation of China (21005058, 11272322, 11202219), Doctoral Program Foundation of Institutions of Higher Education of China (20106120120011) and Special Research Project of Shanxi Educational Committee (11JK0530)

Biography: HU Jing (1989-), Female, Master Candidate.

Corresponding author: CUI Hai-hang, Email: cuihaihang@xauat.edu.cn

$\langle \Delta L^2 \rangle$ and Hurst indexes are obtained. The simulation results show that $\langle \Delta L^2 \rangle$ increases with Δt nonlinearly, Janus particle may be characterized as the Brownian motion, self-propulsion and Brownian-like motion under the different Δt and Hurst indexes also change correspondingly. Numerical simulation and experimental observation are in good agreement, which proves the present model reasonable and also provides the foundation for the followed manipulation of Janus particle and the practice applications.

Key words: Janus microsphere; numerical simulation; self-propulsion; fractional Brownian motion

引言

悬浮于流体中的微小颗粒会永不停息地做无规则的运动,即布朗运动^[1]。通常布朗运动的均方位移 $\langle \Delta L^2 \rangle$ 与观察时间间隔 Δt 满足下式:

$$\langle \Delta L^2 \rangle = k(\Delta t)^{2H} \quad (1)$$

式中: H 为Hurst指数^[2],当 $H=0.5$ 时为标准布朗运动,此时 $\langle \Delta L^2 \rangle$ 与 Δt 为线性关系。随后,Mandelbrot将 H 指数推广到0—1之间的任意实数,引入了分数布朗运动的概念^[3], H 指数成为了描述广泛意义上的分数布朗运动的重要指标。当 $H=0.5$ 时,即为标准布朗运动;当 $H=1$ 时为直线运动;当 $0 < H < 0.5$ 时,轨迹曲线所构成的二维面较之标准布朗运动重叠的部分更多;当 $0.5 < H < 1$ 时,这一类布朗运动比标准布朗运动向周围空间扩散得更快。一直以来,有关分数布朗运动的研究内容在不断拓展,在椭圆布朗运动^[4]、极短时间下的布朗运动^[5]以及液体分子的布朗运动^[6]中均已获得了不同于典型布朗运动的运动特性。

Janus颗粒是由物理或化学性质不同的两部分所构成颗粒的总称,由De Gennes在1991年提出^[7]。当Janus颗粒具有催化/非催化表面结构时,与反应溶液混合后会在反应侧与未反应侧形成分子数的梯度,在扩散泳力的作用下将产生自发的运动,将化学能转变为机械能^[8]。Janus颗粒的自驱动在微能源系统^[9]、生物细菌趋向性^[10]、靶向药物运输^[11]、污水处理与水质检测^[12]等领域具有重要应用前景。对于微米尺度的Janus颗粒,自驱动会不可避免地和无规则布朗运动相叠加,使得颗粒的运动变得异常复杂,对此国内外开展了大量的相关研究。近年来,Golestanian等^[13]、Howse等^[14]、Hua Ke等^[15]和Zheng Xu等^[16]从不同角度通过实验手段研究了Janus微球的运动,但迄今对Janus微球的运动还没有形成统一的认识。目前,国内在Janus颗粒的制备加工方面已开展了许多工作^[17,18],但与Janus颗粒动力学特性相关的研究尚不多。

数值模拟是研究颗粒布朗运动的另一重要手段,可以更深层次地认识其力学规律。引入随机布朗力利用朗之万方程来描述颗粒的无规则运动已

成为模拟球形颗粒布朗运动的常见方法^[19]。而对于不规则颗粒的布朗运动则需要专门的数值算法,如聂德明、林建忠等人^[20]通过基于BGK模型的涨落—格子波尔兹曼方法研究了非球形颗粒的布朗运动,获得了二维的椭圆形、矩形颗粒的速度均方位移与速度自相关函数等。Janus微球作为一种形状规则而表面性质非对称的颗粒具有其特殊性,目前与之相关的数值模拟工作主要集中在自驱动的机理上,如扩散泳力的模拟^[21],但有关布朗运动与自驱动叠加后的颗粒动力学模拟工作尚不多。

目前实验研究已注意到Janus微球的复杂运动行为,并从均方位移、有效扩散系数等方面对运动特性进行了描述,在数值模拟方面尽管开展了自驱动机理方面的研究工作,但有关Janus微球分数布朗运动的模拟工作还很少。鉴于此,本文将在分析颗粒运动与受力的基础上,建立包含主要外力的朗之万方程,针对几何形状为球形但组成不对称的微米级颗粒,研究自驱动与布朗运动相叠加后的复杂运动行为。通过颗粒动力学模拟手段研究不同粒径、不同自驱动强度下Janus微球的运动。进一步分析颗粒的 $\langle \Delta L^2 \rangle$ 、 H 指数与 Δt 的关系,并通过与实验结果的对比检验力学模型和数值模拟的正确性。研究将有助于加深目前在Janus微球运动上的认识,并为后续操控与应用建立有效的研究手段。

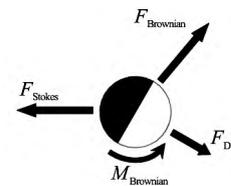


图1 Janus颗粒受力示意图

Fig.1. Schematic drawing of forces applied to Janus particle

1 颗粒动力学模拟

根据运动分析,认为Janus微球自驱动过程应该包括三个动力学因素的贡献:随机撞击的布朗力、随机撞击产生的布朗力矩以及由于自建浓度梯度所引起的自驱动力,它们与流体的黏滞阻力相平衡,如图1所示,将在此基础上建立了包含这些贡献的力学模型。

1.1 平动运动

Langevin 引入随机热扰力, 然后从牛顿第二定律出发建立了无界流场中单颗粒的随机运动方程朗之万方程。该方程的特点是将流体分子与颗粒的热力学作用表述为随机涨落的热扰力。在该公式中还可以进一步引入其他作用力, 如本文所研究的自驱动力等。通过求解朗之万方程就可以模拟出颗粒的布朗运动, 方程为

$$m \frac{d^2x}{dt^2} = F_{\text{Drag}} + F_{\text{Brownian}} + F_{\text{Diff}} \quad (2)$$

其中: F_{Brownian} 代表随机热扰力, 其时均值为零; F_{Drag} 为颗粒所受的流体黏滞阻力, 即 Stokes 阻力 F_{Stokes} , $F_{\text{Drag}} = 6\pi R_p \mu V_p$, μ 为流体动力黏滞系数, R_p 为颗粒半径, V_p 为颗粒速度; F_{Diff} 为产生自驱动的扩散泳力, 下面分别具体确定。

流体分子撞击颗粒产生的随机布朗运动, 可将其等效为通过颗粒形心的随机布朗力^[19], 其表达式为

$$F_{\text{Brownian}} = \xi_1 \sqrt{\frac{12\pi k_B T \mu R_p}{\Delta t}} \quad (3)$$

式中: ξ_1 为随机数, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为热力学温度, Δt 为观察时间间隔。显然, 布朗力将随观察时间间隔的增大而减小, 在短时间间隔内这一瞬时力更大, 长时间间隔下则趋近于零。

Pt-SiO₂ 型 Janus 微球在 H₂O₂ 溶液中, 颗粒表面将发生催化分解反应, 使得颗粒两侧产生浓度梯度, 驱动颗粒从高浓度一侧向低浓度一侧运动, 扩散泳力一般正比于浓度梯度。由于本文不关注自驱动的机理, 而是侧重于研究不同自驱动强度下的颗粒运动行为, 因此将通过实验中的自驱动速度范围

来直接定义自驱动力的强度, 即 $F_{\text{Diff}} = 6\pi R_p \mu V_{\text{Diff}} \cdot \theta$, V_{Diff} 为单纯自驱动作用下微球在流体中的运动速度, θ 为任一时刻颗粒的指向矢量, 由 Pt 侧指向 SiO₂ 一侧。

1.2 转动方程

由于任一时刻自驱动力的方向取决于该颗粒在这一时刻的姿态 θ , 这时必须考虑外部流体分子随机碰撞所产生的瞬时转角变化, 即随机布朗力矩的作用, 这一力矩产生的原因在于随机布朗力一般不通过球形颗粒的圆心。通常需要采用转动角速度 Ω 来描述转角变化的快慢, 其大小取决于转动力矩与颗粒表面流体黏滞力的比值, 可表示为

$$\Omega = \frac{d\theta}{dt} = \frac{\Gamma_\theta}{f_r} = \frac{F_{\text{Brownian}} \cdot R_p}{8\pi \mu R_p^3} = \xi_2 \sqrt{\frac{3k_B T}{16\pi \mu R_p^3 \Delta t}} \quad (4)$$

式中: Γ_θ 为力矩, f_r 为黏性流体的转动摩擦系数 ($8\pi \mu R_p^3$)。这里, 假设产生 Janus 微球随机转动力矩的力与布朗力为同一量级, 力臂为颗粒半径。在由方程 (2) 与方程 (4) 构成的支配方程组中, 二者通过 F_{Diff} 中的 θ 耦合在一起。特别地, 对于无自驱动的标准布朗运动, 当球形颗粒受到外界流体分子的随机撞击时, 尽管会同时发生平移与旋转, 但由于自驱动的速度 V_{Diff} 为零, 这时平移运动与旋转运动方程是解耦的。因此, 可以看出自驱动将使 Janus 微球的运动不同于普通颗粒的布朗运动。

1.3 数值模拟

本文的数值模拟在 Comsol Multiphysics 4.3a 多物理场耦合模拟平台上进行, 该软件内置了颗粒追踪模块。颗粒追踪模拟基于离散元算法, 可以快速求解有质量颗粒在外力作用下的运动轨迹。对于转角的模拟则采用软件提供的自定义常微分方程模块。基于各态历经假设, 在模拟过程中仅需针对一

表 1 数值模拟的主要参数

Table 1. Main parameters in numerical simulation

| V_{Diff} ($\mu\text{m/s}$) | D_{p1} (1 μm) | | | D_{p2} (2 μm) | | |
|---|-----------------------------|---|-----------------------------|--|---------------------------|-----------------------------|
| | F_{Diff} (N) | F_{Brownian} (N) | F_{Brownian} (1/s) | F_{Diff} (N) | F_{Brownian} (N) | F_{Brownian} (1/s) |
| 0 | 0 | | | 0 | | |
| 3 | 2.82×10^{-14} | | | 5.65×10^{-14} | | |
| 5 | 4.71×10^{-14} | 8.73×10^{-14} | 13.898 | 9.42×10^{-14} | 1.23×10^{-13} | 4.91 |
| 10 | 9.32×10^{-14} | | | 1.88×10^{-13} | | |
| $\rho_{\text{SiO}_2} = 2600 \text{ kg/m}^3$ | | $\rho_{\text{H}_2\text{O}} = 1000 \text{ kg/m}^3$ | | $\mu_{\text{H}_2\text{O}} = 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ | | $T = 293 \text{ K}$ |

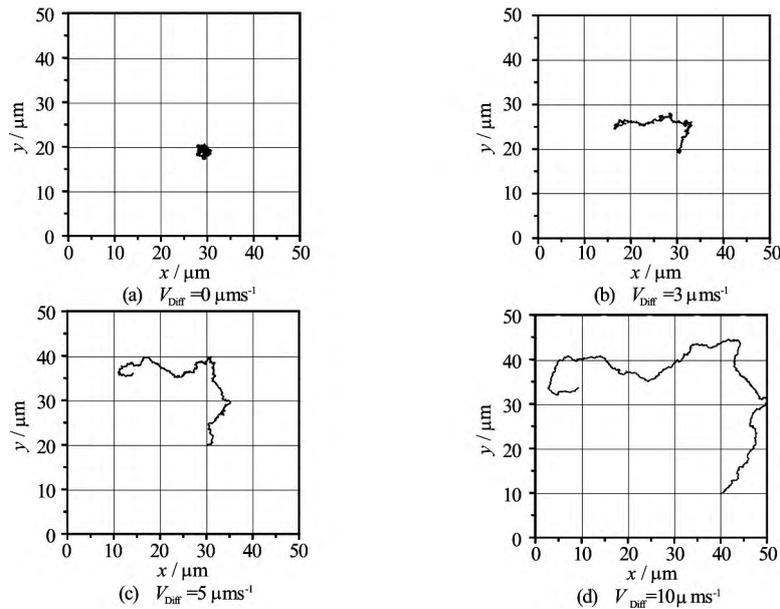


图2 Janus 颗粒 ($D_p = 1 \mu\text{m}$) 10 s 内的运动轨迹, 图示范围为 $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$

Fig.2. Motion trajectories in 10 s for Janus particle with $1 \mu\text{m}$ diameter (the range of drawing is $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$)

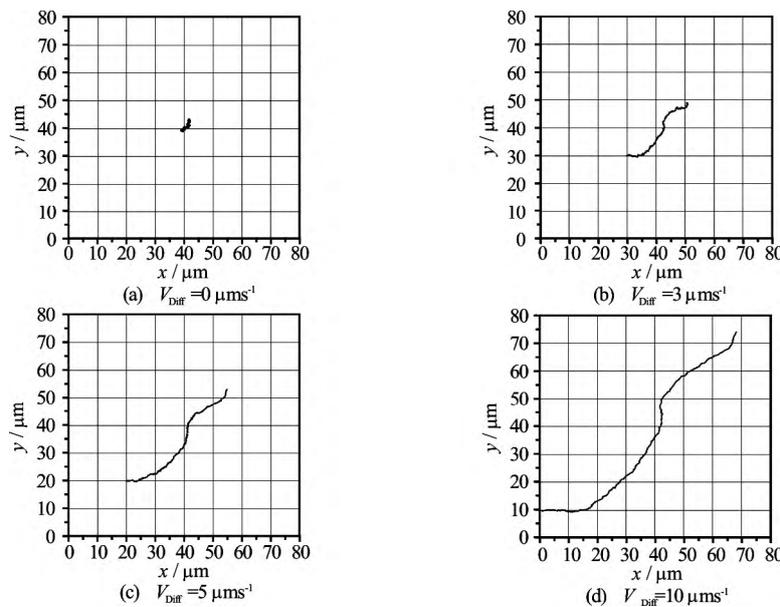


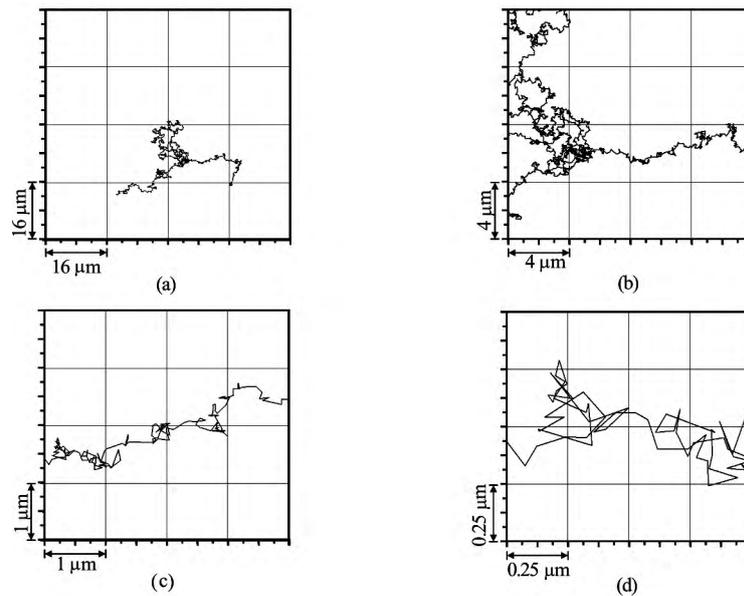
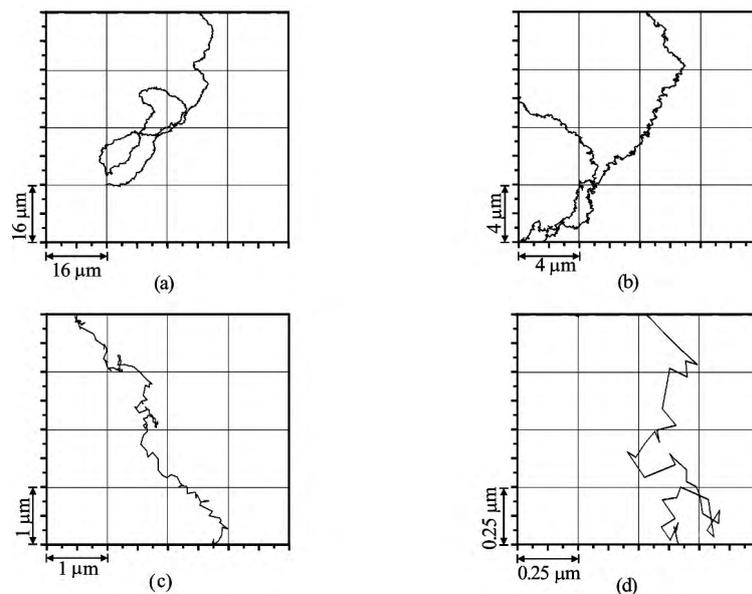
图3 Janus 颗粒 ($D_p = 2 \mu\text{m}$) 10 s 内的运动轨迹, 图示范围为 $80 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$

Fig.3. Motion trajectories in 10 s for Janus particle with $2 \mu\text{m}$ diameter (the range of drawing is $80 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$)

个颗粒进行模拟。各态历经假设是指, 当颗粒数目很大时, 系统的某一性质在同一时间内对所有颗粒的平均应等同于该性质对一个颗粒在不同时刻的平均, 是统计物理学中的常用假设。

依据控制方程, 模拟的关键在于随机布朗力的确定, 时间间隔 Δt 选取很重要。在实验中, Δt 为 CCD 记录两帧图像的时间间隔, 一般为 0.05 s。因此, 本文采用 0.01 s 时间间隔进行了数值模拟, 这样可以兼顾计算精度与计算效率, 模拟中这一时间间隔即为迭代求解的时间步长。模拟的总时长为 100 s, 数据分析范围为 0.05 s ~ 10 s, 这样可以保证

在 10 s 时间间隔下仍有至少 9×10^3 的统计数据。此外, 由于转角 θ 与颗粒的运动时间单向耦合关系, 因此模拟过程中将先求解出不同时刻的 θ , 随后将这一结果带入平动运动方程, 这样在不同自驱动强度下的颗粒将具有同样瞬时转角, 便于比较运动轨迹。其他模拟的主要参数如表 1 所示, 本文分别对两种粒径 ($D_p = 1 \mu\text{m}$, $2 \mu\text{m}$) 和四种自驱动速度 ($V_{\text{Diff}} = 0 \mu\text{m/s}$, $3 \mu\text{m/s}$, $5 \mu\text{m/s}$, $10 \mu\text{m/s}$) 进行模拟, 大体对应了实验中从纯水至 15% 的 H_2O_2 溶液的自驱动实验。

图4 $V_{Diff} = 3 \mu\text{m/s}$ 的 Janus 颗粒 ($D_p = 1 \mu\text{m}$) 不同尺度下的运动轨迹Fig.4. Motion trajectories under different scale observation windows for Janus particle with $1 \mu\text{m}$ diameter and $V_{Diff} = 3 \mu\text{m/s}$ 图5 $V_{Diff} = 3 \mu\text{m/s}$ 的 Janus 颗粒 ($D_p = 2 \mu\text{m}$) 不同尺度下的运动轨迹Fig.5. Motion trajectories under different scale observation windows for Janus particle with $2 \mu\text{m}$ diameter and $V_{Diff} = 3 \mu\text{m/s}$

2 结果与分析

2.1 运动轨迹与运动模式

首先, 本文研究了不同自驱动强度下颗粒的扩散范围, 结果如图 2、图 3 所示, 分别给出了两种 Janus 微球在 $t = 10 \text{ s}$ 内的运动轨迹图, 通过对比分析可以看出如下的规律或现象:

(1) 对于某一粒径的 Janus 颗粒其运动具有随机性, 表现为运动轨迹的无规则, 在自驱动速度为零的情况下为典型的布朗运动; 随着自驱动速度的

增大, 在相同的时间内, 颗粒的运动范围逐渐增加, 如根据颗粒轨迹所覆盖的方格数来计算, 自驱动速度与运动范围之间近似为线性关系。

(2) 比较 $1 \mu\text{m}$ 与 $2 \mu\text{m}$ 两种粒径下 Janus 颗粒运动轨迹, 可以看出, 小颗粒运动的随机性更加明显, 而大颗粒的定向性更加明显; 此外, 在同一时间、同一自驱动速度下, $2 \mu\text{m}$ 的 Janus 颗粒比 $1 \mu\text{m}$ 的 Janus 颗粒运动范围更大, 但二者之间并不是简单的线性关系。

本文还研究了不同空间尺度下的 Janus 颗粒的运动模式。如图 4、图 5 所示, 分别为两种粒径 Janus

颗粒在自驱动速度 $V_{Diff} = 3 \mu\text{m/s}$ 下的运动轨迹, 通过对比分析可以看出, 整体上两种粒径的 Janus 颗粒都表现出随机运动与定向运动两种形式, 但这两种形式的表现与所选取的观察窗的大小直接有关。其中, $1 \mu\text{m}$ 颗粒大约在 $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ 的观察窗下呈现出定向运动, 而 $2 \mu\text{m}$ 颗粒则在 $4 \mu\text{m} \times 4 \mu\text{m}$ 、 $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ 的观察窗下表现出定向运动, 即颗粒整体上沿某一方向运动。此外, 在最小和最大的观察窗下, 即 $16 \mu\text{m} \times 16 \mu\text{m}$ 、 $0.25 \mu\text{m} \times 0.25 \mu\text{m}$ 下, 二者则表现为随机运动居于主导的运动模式, 可以明显地看到颗粒具有各个方向的运动。由于观察窗的尺度大小直接与观察时间关联, 因此上述现象也可以认为是不同观察时间间隔下的运动模式。

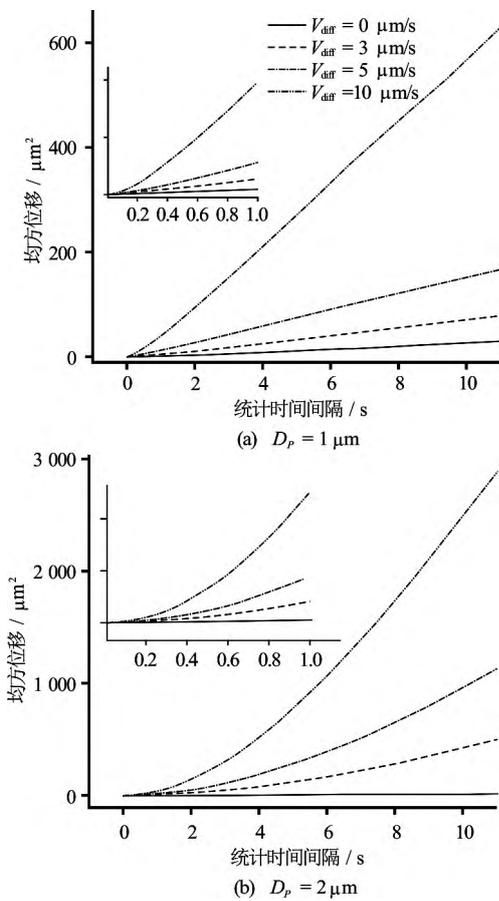


图 6 Janus 颗粒 $\langle \Delta L^2 \rangle \sim \Delta t$ 曲线：
(a) $D_p = 1 \mu\text{m}$, (b) $D_p = 2 \mu\text{m}$

Fig.6. The relationship curves of $\langle \Delta L^2 \rangle \sim \Delta t$ for Janus particles with $1 \mu\text{m}$ (a) and $2 \mu\text{m}$ (b) diameters

2.2 均方位移与 Hurst 指数

图 6 给出 Janus 微球的均方位移 $\langle \Delta L^2 \rangle$ 随时间间隔 Δt 的变化, 通过对比分析可以看出如下的规律或现象:

(1) 从整体上看, 对于 $1 \mu\text{m}$ 的颗粒(图 6(a)),

当 $V_{Diff} = 0 \mu\text{m/s}$ 时, $\langle \Delta L^2 \rangle \sim \Delta t$ 近似为一条直线, 具有布朗运动的典型特征; 随着 V_{Diff} 的增大, 一方面 $\langle \Delta L^2 \rangle$ 随 Δt 增加而快速增加, 另一方面曲线的斜率在不断地变化。对于 $2 \mu\text{m}$ 的颗粒(图 6(b)) 也表现出类似的规律。

(2) 从细部来看, 两种粒径的 Janus 微球在初始阶段 $\langle \Delta L^2 \rangle \sim \Delta t$ 为非线性变化, 且随着自驱动速度的提高差异更为明显。通过图 6 中的插图可以清楚地看出, 在初始阶段 $\langle \Delta L^2 \rangle \sim \Delta t$ 的变化不再为直线, 而更接近抛物线, 然后随着 Δt 增加近似趋于直线。更细节的观察可以看出, $2 \mu\text{m}$ 颗粒 $\langle \Delta L^2 \rangle \sim \Delta t$ 转变为直线的时间比 $1 \mu\text{m}$ 颗粒更长。

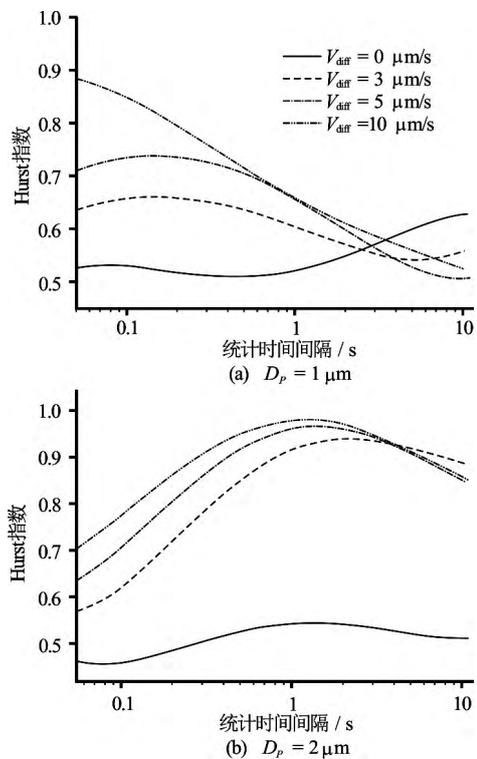


图 7 Janus 颗粒 $H \sim \Delta t$ 曲线 (a) $D_p = 1 \mu\text{m}$ (b) $D_p = 2 \mu\text{m}$
Fig.7. The relationship curves of $H \sim \Delta t$ for Janus particles with $1 \mu\text{m}$ (a) and $2 \mu\text{m}$ (b) diameters

为了更好地反应出分数布朗运动的特征, 图 7 分别给出两种粒径下的 Janus 微球在不同 V_{Diff} 下的 H 指数随时间间隔 Δt 的变化曲线, 通过对比分析可以看出如下的规律或现象:

(1) 对于两种颗粒, 当 $V_{Diff} = 0 \mu\text{m/s}$ 时, 其 H 指数均近似为 0.5, 表现为典型的布朗运动。其中 H 指数与理论值 0.5 之间的差别可以认为是对于单个颗粒模拟统计量不足所带来的随机误差。

(2) 对于 $1 \mu\text{m}$ 的颗粒, 由图 7(a) 可见, 当 $V_{Diff} > 0 \mu\text{m/s}$ 时, 其 H 指数在小时间间隔下 ($\Delta t =$

0.05 s)均大于 0.5,且 V_{Diff} 越大相应的 H 指数越高。随着时间间隔的增加,可以看出 H 指数逐渐趋近于 0.5,重新具有了随机运动的特征,而且不同的 V_{Diff} 达到随机运动的时间基本一致,约为 $\Delta t = 10$ s。

(3) 对于 2 μm 的颗粒,由图 7(b)可见,当 $V_{Diff} > 0$ $\mu\text{m/s}$ 时,其 H 指数在小时间间隔下($\Delta t = 0.05$ s)也均大于 0.5,且 V_{Diff} 越大相应的 H 指数越高。但是,随着时间间隔的增加,其 H 指数并不是逐渐趋近于 0.5,而是先增加逐渐趋近于 $H = 1$ 所代表的直线,然后开始下降,重新具有随机运动的特征,但在同样的时间 $\Delta t = 10$ s内,尚未达到完全的随机运动状态。

结合不同粒径的结果,可以看出在不同的时间间隔下,颗粒可以具有不同的运动模式。小时间间隔下($\Delta t = 0.05$ s),尽管受自驱动速度的影响,但与典型的布朗运动非常接近,可以认为布朗运动居于主导。大时间间隔下($\Delta t = 10$ s),颗粒可能重新具有随机运动的特征,但是这种随机运动的强度不同与典型的布朗运动,这里称之为类布朗运动。在中等的时间间隔下,颗粒具有高于 0.5 甚至接近于 1 的 H 指数,说明这一阶段颗粒具有明显的定向运动特征。这些规律不但可以从 H 指数变化中定量得到,而且与图 2 图 5 的运动轨迹相印证。

3 讨论

针对所建立的数值模型与数值模拟结果,需要讨论这一模型的正确性以及模型的局限性,将从与实验对比和模型不足及改进方面分别进行说明。

(1) 如前所述,目前国内外从不同方面开展了 Janus 颗粒自驱动实验工作,获得了不同溶液浓度、不同大小颗粒的运动轨迹、均方位移等方面的数据,如文献[14-16]分别从位矢转角、转动特征时间、均方位移或有效扩散系数等方面刻画了 Janus 颗粒的复杂运动形式,通过对比可以看出这些数据均与本文模拟的结果大体一致。这充分证明了本文力学模型与数值模拟方法的正确性。

(2) 然而,与实验仍存在不完善之处类似,本文的数值方法仍需要不断地改进。首先,本文方法是基于耦合的平动方程与转动方程,这一处理方法仅对球形颗粒适用,而目前在自驱动领域,圆柱型、长方体、三角形等形状的 Janus 颗粒亦大量使用,本文的方法尚无法解决这一类几何形状与表面性质均不规则的颗粒,这就需要通过现有的专门模拟方法进行改进,如格子波尔兹曼算法,来实现对上述复杂颗粒的模拟;其次,本文依据各态遍历假设,仅针对单个颗粒进行了模拟,这一做法的优点

在于可以清楚地反映出颗粒的运动轨迹特征,但会存在统计数据量不足的问题,造成如典型的布朗运动的 H 指数围绕着理论值 0.5 波动这一情况的出现,尽管这不会严重影响模拟的可信度,但今后仍需通过增加颗粒的数量来避免这一问题;接下来,为了与现有实验进行对比,本文仅研究了时间间隔从 0.05 s—10 s 这一区间的颗粒运动问题,今后可以考虑开展更短或更长时间间隔的数值模拟工作,并据此开展针对性的验证实验;最后,本文的数值模型为二维模型,这主要是基于实验的测量结果,为了获得更加真实可靠的结果,需要考虑三维模型或计入近壁面的影响,开展这一工作将有助于澄清目前 Janus 颗粒的矛盾的结论,如旋转特征时间等问题。

4 结论

综上所述,本文依据实验观察和分析,建立了包括布朗力、自驱动力、随机布朗力矩以及流体黏滞阻力在内的二维颗粒动力学模型,并针对 Janus 微球的分数布朗运动开展了颗粒动力学数值模拟研究,它将有助于进一步开展 Janus 颗粒的基础研究与实际操控。主要结论如下:

(1) 文中针对不同粒径大小的 Janus 微球获得了不同自驱动强度下的运动轨迹,观测分析得出,随着自驱动强度的增大 Janus 微球的运动范围增大,运动的随机性减弱,运动方向性更加明显;并且粒径越大,这种特征越明显。采用该动力学模型所得模拟结果不但与典型布朗运动相一致,而且与现有自驱动实验结果符合得很好,同时验证了该方法的正确性。

(2) 数值模拟结果定量给出了 Janus 微球自驱运动在不同观察时间下的均方位移的变化规律。在初始阶段,均方位移随时间呈现抛物线增长趋势,经过一段时间,转变为线性增长,并且粒径越大,转变时间更长。该结果与现有实验结果吻合。

(3) 基于均方位移,文中给出了 H 指数随时间的变化规律,据此定量地划分了不同观察时间间隔或空间尺度下的三种运动模式,即布朗运动、自驱动和类布朗运动。这些运动规律和 Janus 微球的运动轨迹与运动模式相印证。

致谢

本文作者衷心感谢宫春亮、武美玲硕士在前期实验研究中的贡献。

参 考 文 献:

- [1] HIDA T. Brownian motion[J]. Applications of Mathematics, 1980, 11: 44-113.
- [2] BECKERSD J V L, DE LEEUW S W. Fractal structure and specific surface of nanoporous silica[J]. International Journal of Inorganic Materials, 2001, 3(2): 175-178.
- [3] MANDELBROT B, 文志英, 苏虹. 分形对象[M]. 北京, 中国: 世界图书出版公司, 1999: 23-25.
MANDELBROT B, WEN Zhi-ying, SU Hong. Fractal object[M]. Beijing, China: World Publishing Corporation, 1999: 23-25.
- [4] HAN Y, ALSAYED A M, NOBILI M, et al. Brownian motion of an ellipsoid[J]. Science, 2006, 314(5799): 626-630.
- [5] LI T, KHEIFETS S, MEDELLIN D, et al. Measurement of the instantaneous velocity of a Brownian particle[J]. Science, 2010, 328(5986): 1673-1675.
- [6] 万黎明, 刘朝, 刘方, 等. 液体分子分数布朗运动的研究[J]. 工程热物理学报, 2005, 26: 5-8.
WAN Li-ming, LIU Chao, LIU Fang, et al. Fractional Brownian motion of liquid molecular[J]. Journal of Engineering Thermophysics, 2005, 26: 5-8.
- [7] GRANICK S, JIANG S, CHEN Q. Janus particles[J]. Physics Today, 2009, 62: 68-69.
- [8] ISMAGILOV R F, SCHWARTZ A, BOWDEN N, et al. Autonomous movement and self-assembly[J]. Angewandte Chemie, 2002, 114(4): 674-676.
- [9] RUCKER G, KAPRAL R. Chemically powered nanodimers[J]. Physical Review Letters, 2007, 98(15): 150603.
- [10] DABIRI G A, SANGER J M, PORTNOY D A, et al. *Listeria monocytogenes* moves rapidly through the host-cell cytoplasm by inducing directional actin assembly[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 1990, 87(16): 6068-6072.
- [11] PATRA D, SENGUPTA S, DUAN W, et al. Intelligent, self-powered, drug delivery systems[J]. Nanoscale, 2013, 5(4): 1273-1283.
- [12] OROZCO J, GARCIA-GRADILLA V, D'AGOSTINO M, et al. Artificial enzyme-powered microfish for water-quality testing[J]. ACS Nano, 2012, 7(1): 818-824.
- [13] GOLESTANIAN R, LIVERPOOL T B, AJDARI A, et al. Designing phoretic micro-and nano-swimmers[J]. New Journal of Physics, 2007, 9(5): 126.
- [14] HOWSE J R, JONES R A L, RYAN A J, et al. Self-motile colloidal particles: from directed propulsion to random walk[J]. Physical review letters, 2007, 99(4): 048102.
- [15] KE H, YE S, CARROLL R L, et al. Motion analysis of self-propelled Pt-Silica particles in hydrogen peroxide solutions[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 2010, 114(17): 5462-5467.
- [16] ZHENG X, TEN HAGEN B, KAISER A, et al. Non-Gaussian statistics for the motion of self-propelled Janus particles: Experiment versus theory[J]. Physical Review E, 2013, 88(3): 032304.
- [17] 杨轶, 叶伟, 陈晓. 非对称性 Janus 粒子的制备与可控组装[J]. 物理化学学报, 2012, 28: 2525-2535.
YANG Yi, YE Wei, CHEN Xiao. Preparation and controlled assembly of asymmetric Janus particles[J]. Acta Physical-Chemistry. Science, 2012, 28(11): 2525-2535.
- [18] 王芹, 杨祥良, 杨亚江. Janus 颗粒表面活性剂的研究进展[J]. 应用化学, 2010, 27(7): 745-753.
WANG Qin, YANG Xiang-liang, YANG Ya-jiang. Research progress of Janus particles as a surfactant[J]. Chinese Journal of Applied Chemistry, 2010, 27(7): 745-753.
- [19] KIM M, ZYDNEY A L. Effect of electrostatic, hydrodynamic, and Brownian forces on particle trajectories and sieving in normal flow filtration[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2004, 269(2): 425-431.
- [20] 聂德明, 林建忠. 非球形颗粒布朗运动的涨落-格子 Boltzmann 数值研究[J]. 计算物理, 2012, 29(1): 101.
NIE De-ming, LIN Jian-zhong. Brownian motion of non-spherical particles: fluctuating-lattice Boltzmann investigation[J]. Chinese Journal of Computational Physics, 2012, 29(1): 101.
- [21] BRADY J F. Particle motion driven by solute gradients with application to autonomous motion: continuum and colloidal perspectives[J]. Journal of Fluid Mechanics, 2011, 667: 216-259.