

# 纳米颗粒多相流体动力学研究及应用<sup>1)</sup>

于明州<sup>2)</sup> 林建忠

(中国计量学院, 杭州 310018)



于明州, 男, 副研究员, 2008 年在浙江大学获博士学位, 现以洪堡访问学者身份, 在德国卡尔斯鲁厄理工学院进行合作研究. 研究方向为微纳米颗粒多相流, 发表 SCI/EI 检索论文近 20 篇. 与林建忠教授合作提出的一般动力学方程泰勒展开矩方法, 被国际相关领域专家评介为自 1997 年以来矩方法研究的一个重要突破, 该方法目前应用于欧盟纳米颗粒研究项目. 目前参与国家自然科学基金重点项目一项, 欧盟联合项目一项, 主持国家自然科学基金青年基金及浙江省自然科学基金各一项.

**摘要** 纳米颗粒多相流研究是目前多相流研究中新的研究方向及重点发展领域. 为探索纳米尺度多相流相间作用机理及内部存在机制, 采用理论分析及数值计算手段, 对一般动力学方程的封闭处理、颗粒碰撞率宏观模型的有效构建、颗粒凝并系统动力学演变特性的机理分析、非稀相问题碰撞率的求取、双变量问题求解方法的建立以及一些实际应用进行了系统研究, 提出了新的针对纳米尺度颗粒动力学演变的一般动力学方程求解方法, 并将其应用于实际工业过程问题的研究. 该文对上述研究工作进行了综述.

**关键词** 纳米颗粒, 多相流, 动力学, 矩方法

中图分类号: O359 文献标识码: A 文章编号: 1000-0879(2010)03-001-09

## THE DYNAMICS OF NANOPARTICLE-LADEN MULTIPHASE FLOW AND ITS APPLICATIONS<sup>1)</sup>

YU Mingzhou<sup>2)</sup> LIN Jianzhong

(China Jiliang University, Hangzhou 310018, China)

**Abstract** The dynamics of nanoparticle-laden multiphase flow is a new and important research field. To understand the basic interaction between phases and their physical nature, some problems are studied, including the closure for particle general dynamic equations; the construction of the coagulation kernel; the fundamental interaction between particle dynamics and flow coherent structures; the theoretical analysis on collision rate and some engineering applications. A new general mathematical method for solving the general dynamic equation is proposed, and applied in some engineering problems.

**Key words** nanoparticle, multiphase flow, dynamic, method of moments

2010-03-23 收到第 1 稿, 2010-05-12 收到修改稿.

1) 国家自然科学基金重点项目 (10632070), 国家自然科学基金青年项目 (10802083) 和浙江省自然科学基金项目 (Y7080394) 资助.

2) E-mail: yumingzhou1738@yahoo.com.cn

## 引 言

多相流体动力学是流体力学研究领域的重要组成部分, 它从微观和宏观两个尺度探索相间质量、动量以及能量转换的本质, 并以此为基础, 揭示多相流体行为变化的产生机理<sup>[1-2]</sup>. 通过热力学以及分子动力学相关理论, 建立相间相互作用关系, 是解决多相流问题的关键. 迄今为止关于相间作用的研究, 已由最初的单向耦合发展到最近的四向耦合. 在颗粒对多相湍流的湍动调制问题上, 目前虽已取得许多突破性的进展, 并提出了涉及浓相和颗粒

碰撞问题的理论模型. 但是, 现有的许多研究仍局限于较大尺度颗粒的系统, 而较少考虑系统内部颗粒的 Brownian 运动和湍动导致颗粒的凝并和破碎问题<sup>[3]</sup>. 实际上, 纳米颗粒系统 Brownian 凝并、湍动剪切凝并及破碎等现象极大地影响复相系统的宏观物质特性, 如物质黏性、湍动特性等, 并使复相系统呈现出局部聚集现象<sup>[4]</sup>. 因此, 对纳米复相系统相间耦合问题进行分析时, 应重点考虑纳米颗粒系统在热运动、湍动等因素主导下的动力学特征量的变化. 纳米颗粒多相流涉及动力学过程如图 1 所示.

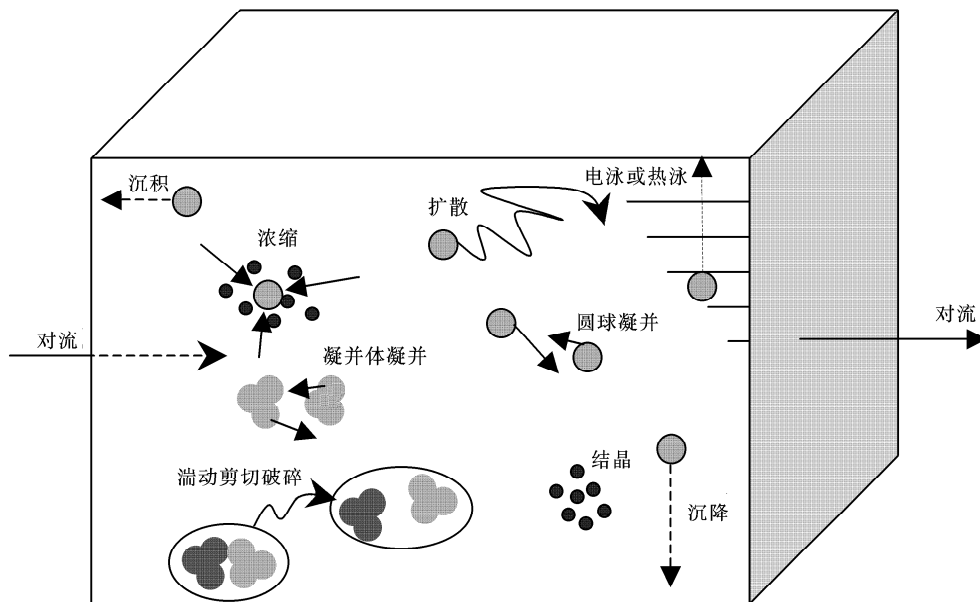


图 1 纳米颗粒多相流研究中涉及颗粒动力学事件以及传输特性示意图

纳米颗粒多相流动力学的演变过程在空间上呈现非均匀、时间上呈现非平衡的特征, 且受控于各种非线性、多尺度、非稳态以及离散相与连续相强相互耦合等机制. 对上述现象进行数学描述, 由于涉及巨量颗粒数浓度等问题, 不适合采用 Lagrangian 框架的颗粒追踪方法, 而应在 Eulerian 框架内对颗粒复相系统所表征的宏观量进行研究. 基于此, 本课题组采用 Smoluchowski 平均场理论, 对纳米尺度颗粒动力学演变问题进行研究, 并首次在一般动力学方程封闭问题上引进泰勒展开技术, 得到一种用以描述纳米尺度颗粒动力学事件演变过程的通用模型. 该模型已被应用于分形凝并体颗粒的 Brownian 凝并、湍动凝并和破碎等问题, 并用于以发动机尾气污染物生成及后期演化的机理分析. 为揭示离散相与连续相强相互作用的物理本质, 本课题组拓展了经典的 Smoluchowski 平均场理论的应用范围, 在

修正 Stokes 阻力和渗透压力的基础上, 给出了颗粒间相关的单尺度谱分布颗粒系统碰撞率表达式, 并在四向耦合问题框架内, 通过耦合两相控制方程, 建立了用以研究非稀相问题的四向耦合控制方程. 另外, 本课题组的研究还涉及双变量模型构建以及复杂多相、多组分、强化学反应系统纳米颗粒的合成研究, 并把理论研究应用到实际的工业过程中.

## 1 圆球纳米颗粒 Brownian 凝并率模型构建

在气溶胶多相流体动力学研究中, Brownian 凝并率问题一直是核心内容. 纳米尺度颗粒凝并率的正确与否, 直接决定了 Smoluchowski 平均场理论的有效性. 自 Smoluchowski 于 1917 年首次以概率的观点构建凝并问题方程以来, 人们在凝并率问题上进行了大量的研究, 内容涉及颗粒间的范德华力、非连续润滑力、静电力等多种因素对颗粒的作用,

研究对象也由圆球颗粒发展到分形结构的凝并体。但是，针对频繁碰撞过程中由颗粒变形而产生的弹性力，相关研究却较少。

针对颗粒间碰撞时弹性力的作用问题，本课题组在考虑范德华力和弹性变形力的前提下，建立并数值求解了直径范围为 100~760 nm 圆形颗粒的碰撞方程，结果表明颗粒的碰撞效率总体上随着颗粒直径的增大而降低，但在直径为 510 nm 处有一峰值；在研究 Brownian 凝并率问题时，弹性变形力不可忽略。在此基础上，建立了颗粒直径与碰撞效率的新关系式<sup>[5]</sup>。

## 2 一般动力学方程的封闭问题

基于 Smoluchowski 的平均场理论，离散系统动力学事件在时间尺度上服从概率统计假设，系统在演化过程中可被一般动力学方程进行精确描述。但是，该方程在数学形式上具有强非线性微积分的特征，本质上属于 Boltzmann 统计方程的范畴，难以进行解析处理，必须数值求解。在针对一般动力学方程的数值求解方法中，矩方法在计算效率方面具有明显优势，且能有效地给出颗粒系统的宏观平均量。但是，数学方程难以封闭及模型建后难以重构是制约矩方法进一步发展的两大难题。本课题组采用泰勒展开技术，对 Smoluchowski 方程中难以积分的项及非整数项进行封闭处理，首次提出泰勒展开矩方法 (TEMOM)，并给出了模型建后的重构方法<sup>[6]</sup>。通过与其他方法比较，泰勒展开矩方法在计算精度与计算效率方面具有明显优势。

### 2.1 圆球纳米颗粒凝并问题

经典 Smoluchowski 平均场理论的核心是 Smoluchowski 方程，该方程是颗粒系统凝并演化的控制方程。Smoluchowski 于 1917 年首次给出了该方程的离散形式 (SE 方程)。1928, Muller 在 Smoluchowski 工作的基础上，给出了该问题的微积分形式

$$\frac{\partial n(v, t)}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v_1, v - v_1) n(v_1, t) n(v - v_1, t) dv_1 - n(v, t) \int_0^\infty \beta(v_1, v) n(v_1, t) dv_1 \quad (1)$$

其中， $n(v, t)$  为  $t$  时刻、体积  $v$  的颗粒数浓度， $\beta(v_1, v)$  为体积为  $v$  和  $v_1$  两种颗粒的碰撞核函数，这里仍称方程 (1) 为 SE 方程。在 Stokes-Einstein 理论框架内，目前尚未有人给出该方程的未加任何假设的解析解。把微积分形式的 SE 方程转换成微分形

式的矩方程是解决该问题的关键。为此，需在 SE 方程的两边同时乘以  $v^k$ ，并对  $v$  积分，由此可得各阶矩随时间的变化

$$\frac{dm_k}{dt} = \frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty [(v + v_1)^k - v^k - v_1^k] \beta(v, v_1) n(v, t) n(v_1, t) dv dv_1 \quad (2)$$

其中各阶矩的定义为

$$m_k = \int_0^\infty v^k n(v) dv \quad (3)$$

在 Stokes-Einstein 扩散理论框架内，颗粒间复杂的碰撞核函数  $\beta(v_1, v)$  会使得方程 (2) 难以自动封闭。事实上，对离散系统矩方法研究的所有重点和难点都是集中在对这一问题的处理上。

由于碰撞率函数  $\beta$  的存在，方程 (2) 在形式上仍为微积分方程，并未实现由尺度谱空间到矩空间的绝对转变。针对该问题，本文以颗粒在自由分子区碰撞问题为例，对泰勒展开矩方法的具体封闭过程进行详细介绍。

在自由分子区，碰撞核表达式为<sup>[1]</sup>

$$\beta_{FM} = B_1 (1/v + 1/v_1)^{1/2} (v^{1/3} + v_1^{1/3})^2 \quad (4)$$

其中， $B_1 = (3/4\pi)^{1/6} (6k_b T/\rho)^{1/2}$ ， $k_b$  为玻尔兹曼常数， $T$  为气体温度， $\rho$  为颗粒密度。将方程 (4) 代入方程 (2) 中，为便于方程右侧尺度谱空间向矩变量空间转变，首先将方程 (4) 转化为以下形式

$$\beta_{FM} = B_1 (v + v_1)^{1/2} (v^{1/6} v_1^{-1/2} + 2v^{-1/6} v_1^{-1/6} + v^{-1/2} v_1^{1/6}) \quad (5)$$

并采用泰勒展开技术得到

$$(v + v_1)^{1/2} = \frac{3\sqrt{2}u}{8} + \frac{3\sqrt{2}v}{8\sqrt{u}} + \frac{3\sqrt{2}v_1}{8\sqrt{u}} - \frac{\sqrt{2}v^2}{32u^{3/2}} - \frac{\sqrt{2}vv_1}{16u^{3/2}} - \frac{\sqrt{2}v_1^2}{32u^{3/2}} \quad (6)$$

其中， $u$  为泰勒展开中心点。把方程 (5) 和 (6) 代入方程 (2)，则得

$$\left. \begin{aligned} \frac{dm_0}{dt} &= -\frac{B_1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty (\xi_1 \phi_1 + \xi_2 \phi_2 + \xi_3 \phi_3) \cdot \\ &\quad n(v, t) n(v_1, t) dv dv_1 \\ \frac{dm_1}{dt} &= 0 \\ \frac{dm_2}{dt} &= \frac{B_1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty (\zeta_1 \phi_1 + \zeta_2 \phi_2 + \zeta_3 \phi_3) \cdot \\ &\quad n(v, t) n(v_1, t) dv dv_1 \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

其中

$$\begin{aligned} \xi_1 &= v^{1/6}v_1^{-1/2} + 2v^{-1/6}v_1^{-1/6} + v_1^{1/6}v^{-1/2} \\ \xi_2 &= v^{7/6}v_1^{-1/2} + 2v^{5/6}v_1^{-1/6} + 2v_1^{5/6}v^{-1/6} + \\ &\quad v_1^{7/6}v^{-1/2} + v^{1/2}v_1^{1/6} + v_1^{1/2}v^{1/6} \\ \xi_3 &= 4v^{5/6}v_1^{5/6} + 2v_1^{7/6}v^{1/2} + v_1^{3/2}v^{1/6} + \\ &\quad v^{3/2}v_1^{1/6} + 2v^{1/2}v_1^{7/6} + v^{13/6}v_1^{-1/2} + \\ &\quad 2v^{11/6}v_1^{-1/6} + v_1^{13/6}v^{-1/2} + 2v_1^{11/6}v^{-1/6} \\ \varsigma_1 &= 4v^{5/6}v_1^{5/6} + 2v_1^{7/6}v^{1/2} + 2v^{7/6}v_1^{1/2} \\ \varsigma_2 &= 2v^{1/2}v^{13/6} + 4v_1^{5/6}v^{11/6} + 4v^{5/6}v_1^{11/6} + \\ &\quad 2v_1^{13/6}v^{1/2} + 2v_1^{7/6}v^{3/2} + 2v^{7/6}v_1^{3/2} \\ \varsigma_3 &= 8v_1^{11/6}v^{11/6} + 4v_1^{13/6}v^{3/2} + 2v_1^{5/2}v^{7/6} + \\ &\quad 2v^{5/2}v_1^{7/6} + 4v^{13/6}v_1^{3/2} + 2v_1^{1/2}v^{19/6} + \\ &\quad 4v_1^{5/6}v^{17/6} + 2v^{1/2}v_1^{19/6} + 4v^{5/6}v_1^{17/6} \\ \varphi_1 &= \frac{3}{8}(2u)^{1/2}, \quad \varphi_2 = \frac{3}{8}\left(\frac{2}{u}\right)^{1/2}, \quad \varphi_3 = -\frac{1}{32}\left(\frac{2}{u^3}\right)^{1/2} \end{aligned}$$

应用定义 (3), 方程 (7) 右边项可以通过积分而去掉积分符号. 但是, 经过这样处理后的方程中将含有大量的非整数矩量, 非整数矩量的存在仍会使得方程难以封闭. 因此, 还必须继续采用泰勒展开技术对非整数矩部分进行处理, 即通过处理方程 (3) 中  $k$  为非整数情况下的矩表达式而使封闭问题得以解决. 最终表达式为

$$\begin{aligned} m_k &= \int_0^\infty v^k n(v) dt = \left( \frac{u^{k-2}k^2}{2} - \frac{u^{k-2}k}{2} \right) m_2 + \\ &\quad (-u^{k-1}k^2 + 2u^{k-1}k) m_1 + \\ &\quad \left( u^k + \frac{u^k k^2}{2} - \frac{3u^k k}{2} \right) m_0 \end{aligned} \quad (8)$$

由方程 (8) 可知, 任意阶矩均可以用  $m_0, m_1$  和  $m_2$  的线性组合进行表示. 把方程 (8) 代入方程 (7),

并定义平均颗粒体积为  $\bar{v} = m_1/m_0$  可得

$$\left. \begin{aligned} \frac{dm_0}{dt} &= \left[ \sqrt{2}B_1(65m_2^2m_0^{23/6} - \right. \\ &\quad \left. 1210m_2m_1^2m_0^{17/6} - 9223m_1^4m_0^{11/6}) \right] / \\ &\quad (5184m_1^{23/6}) \\ \frac{dm_1}{dt} &= 0 \\ \frac{dm_2}{dt} &= - \left[ \sqrt{2}B_1(701m_2^2m_0^{11/6} - \right. \\ &\quad \left. 4210m_2m_1^2m_0^{5/6} - 6859m_1^4m_0^{-1/6}) \right] / \\ &\quad (2592m_1^{11/6}) \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

显然, 方程 (9) 构成一个包含 3 个变量的一阶常微分方程组. 由于该方程组中只有 3 个变量, 所以能自动封闭. 需要指出的是, 上面公式推导过程中未出现对颗粒尺度分布的任何假设, 可见该方法要优于目前常用对数正态分布矩方法, 并且最终方程形式更为简单. 上述处理可以方便推广到连续区、连续 - 近连续区以及全尺度谱空间颗粒凝并问题研究.

## 2.2 分形凝并体凝并问题

具有分形结构的纳米颗粒动力学特性是一个新的研究领域. 欧盟 NANOPARTICLE 联合项目, 英国纳米技术研究协会工业纳米颗粒研究项目以及美国环保署纳米颗粒毒性研究, 均把纳米颗粒动力学特性作为环境能源以及污染治理方面的关键问题. 我国 2006 年《力学学科综合发展报告》同样把超常规颗粒动力学模型研究作为未来多相流研究的重点. 但是, 迄今为止, 在凝并体结构形态的演化以及与周围连续介质间的质量、动量和能量相互转移以及生物气溶胶系统中病毒成份、含量及其毒性程度等方面, 仍没有比较好的数学描述方法, 在非稀相、多组分的情况下更是如此. 虽然 Monte Carlo 方法 (MC), 朗之万动力学 (LD), 粒子方法 (PM) 以及分子动力学 (MD) 可以较好地给出分形结构的演化过程, 并能被试验结果验证, 但是与实际工业过程的要求仍相差甚远. 其主要原因是上述方法在实际问题的处理上, 需要极大的计算量, 现有的计算机水平难以达到这一要求. 此外, 上述方法在处理颗粒系统与流场相互耦合作用方面, 存在微观与宏观难以同时顾及的缺陷. 因此, 基于 Smoluchowski 平均场理论的颗粒动力学模拟与计算流体动力学的结合, 将是解决以上问题的有效途径, 该方法属于宏观范畴, 研究对象为单位体积内极大数目颗粒系统所

表征的综合效应，理论上可以给出凝并体颗粒系统在时空尺度上的宏观平均参数，如平均分形维数、平均颗粒大小等。

基于以上原因，本课题组拓展泰勒展开矩方法的研究范围，通过在经典 Smoluchowski 平均场理论框架内引入分形理论，构建了用以描述分形凝并体颗粒系统动力学演变过程的矩方法数学模型。针对分形凝并体问题，对一般动力学方程采用三阶泰勒展开技术进行封闭，重点推导了自由分子区和连续 - 近连续区三阶矩方法的表达式，并采用 Dahneke 平均方法以及调和平均方法，把模型应用范围推广到全尺度空间。研究结果表明，颗粒数浓度与时间的线

性演化关系以及颗粒尺度谱分布的自保持特征，均适用于自由分子区和连续 - 近连续区颗粒动力学的分析。凝并体分形结构对颗粒动力学特性演化影响较大，但影响程度随努森德数 ( $K_n$ ) 的减小而减小。

通过对连续区凝并体系统动力学的分析，发现不同分形结构系统之间的颗粒尺度相对偏差存在自保持特征，该特征与 Friedlander 所揭示的尺度谱分布自保持特征，对于分形凝并体系统动力学的分析具有同等重要的地位 [7-8]。另外，全尺度空间泰勒展开矩方法可以有效揭示颗粒系统尺度谱分布偏差从高努森德数 ( $K_n$ ) 到低努森德数的渐进变化过程，并可揭示不同分形维数对系统演化影响，如图 2 所示。

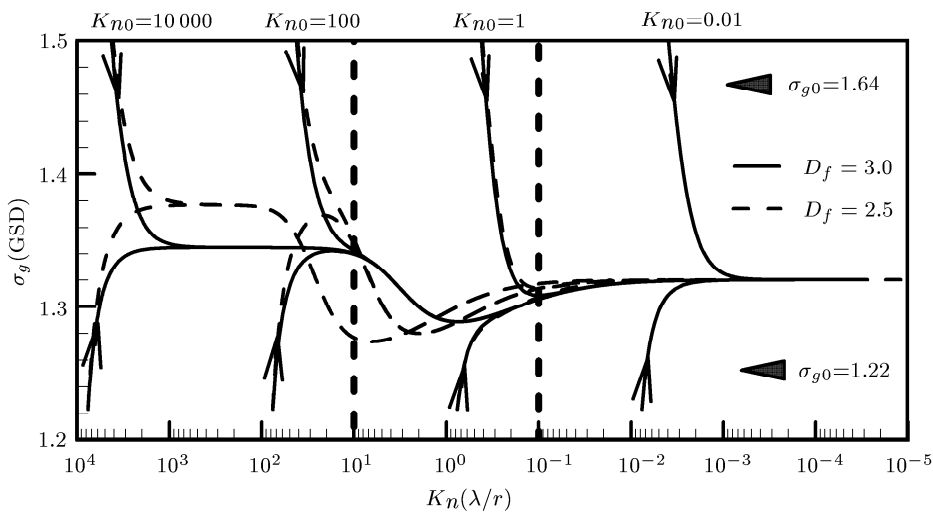


图 2 不同初始努森德数 ( $K_{n0}$ ) 及不同初始几何标准偏差 ( $\sigma_g$ ) 情况下系统尺度分布几何标准偏差演变

具有分形结构的纳米颗粒动力学特性所涉及的非线性方程，均建立在分形维变量 ( $D_f$ ) 为一常数的基础上。因此，通过求解三元一次常微分方程组，非线性方程的封闭问题可以解决。但是，分形维变量为常值这一假设，使得数值计算必然丢失分形结构的演化信息。事实上，系统颗粒分形结构是决定凝并率大小的关键参数之一，它同时还影响复合系统的物质黏性，并决定系统的热扩散属性。因此，为构建更为合理的数学模型，应在目前已有三维问题方程的基础上，增加用以描述分形结构的第四维方程。这样做的关键是在宏观框架内建立分形维与三阶矩量的对应关系。理论上，通过构建分形维变量与三阶矩量耦合的控制方程，可以对自然界中发生的分形凝并体动力学事件进行更为精确的描述。就目前研究情况看，该方面的研究工作较为欠缺，尤其是在宏观描述方法的框架内，相关工作有待进一步深入。

### 3 湍动条件下颗粒动力学分析及四向耦合控制方程的构建

湍动流场中分形凝并体颗粒系统微观动力学演化及传输过程决定了复相系统的宏观特性。深入了解该现象的产生原因及发生过程，有助于进一步揭示复相系统的传热传质本质。当凝并体的特征尺度小于 Kolmogorov 微尺度时，涡旋内部的速度间剪切将导致颗粒平均粒径及尺度谱分布的改变，并诱导颗粒局部聚集现象的产生，从而造成复相系统呈现非平衡状态。这一现象广泛存在于工业气溶胶、纳米流体强制换热及大气环境中。尤其是在非稀相情况下，离散相与连续相之间的耦合整体效应，决定了系统宏观演化的本质。因此，在针对凝并体复相系统的研究中，应同时考虑颗粒系统自身动力学演化与复相系统整体对流扩散问题。但目前针对此类问题的研究较少。

因此, 本课题组基于复相系统整体运动假设, 通过把复相系统处理为拟单相流体, 引入 Smoluchowski 平均场理论, 建立了满足质量、动量以及能量守恒的控制方程. 控制方程中所涉及的矩坐标变量、分形维数以及有效系统黏性等, 需通过平均场理论给出. 描述复相系统整体运动变化的流体力学控制方程与表示离散系统动力学演化的一般动力学方程需耦合进行求解, 研究对象为四向耦合问题. 在针对湍动凝并体动力学问题研究方面, 基于泰勒展开矩方法的思想, 建立了湍动剪切作用机制下矩方法的数学模型. 理论上, 通过对不同作用机制湍动模型的数值模拟, 可以深入揭示湍动情况下系统自保持特性、凝胶化特性等的演化规律.

#### 4 非稀相纳米颗粒系统碰撞率理论

采用经典 Smoluchowski 平均场理论可以对纳米颗粒在连续介质中的物理化学变化进行较为精确的描述. 但是, 这只局限在颗粒体积浓度非常小的情况下. 当复相系统远离稀相条件时, 颗粒间的相关性则不能忽略, 即经典理论不再适用. 目前, 由于众多的基础性问题没有解决, 对非稀相颗粒复相系统的研究已经成了一个热门方向.

本课题组通过构建颗粒在连续介质中的准稳态受力平衡, 修正了经典 Smoluchowski 平均场理论中的 Stokes 阻力和渗透压力表达式, 得到了适用于非稀相状态情况下的颗粒碰撞表达式. 研究表明, 所提出的碰撞模型不仅物理意义明确, 而且用于计算的结果与 LD 的数值模拟结果吻合很好. 在理论分析过程中, 通过提出由颗粒容积率求取渗透压的第二 Virial 数, 并用容积率求水力相互作用所产生的等效溶剂黏度, 得到非稀相时的扩散系数修正式. 另外, 在结合本文 2.1 节内容的基础上, 给出了适用于非稀相情况的全区间颗粒碰撞的 TEMOM 模型数学表达式. 由于该公式不受颗粒容积率和颗粒尺度大小的限制, 有望在以后的复相系统研究中得到广泛的应用. 由于颗粒间的相关处理较为困难, 目前的研究尚未涉及多分散性系统颗粒间的碰撞率问题, 这将在以后的工作中加以补充.

#### 5 纳米颗粒在拟序结构流场中的演化机理

目前, 多相流研究领域的研究主要以欧拉-欧拉框架以及欧拉-拉格朗日框架为主. 对于纳米尺度颗粒系统, 由于较大颗粒数浓度以及 Brownian 运动机理的存在, 以求解运动学方程的拉格朗日方法的

使用受到限制. 为获得变化流场中颗粒系统动力学演化信息, 基于欧拉框架, 耦合 Smoluchowski 平均场理论与大涡模拟方法已成为研究拟序结构流场中纳米尺度颗粒动力学特性的重要途径.

在湍动流场中纳米尺度颗粒动力学演变机理研究方面, 美国明尼苏达州大学 Garrick 教授课题组在国际上采用直接数值模拟(或大涡模拟)与矩方法(或分区方法)结合, 对平面射流以及简单混合层流场进行了研究. 本课题组采用大涡模拟方法和矩方法对平面自由射流、冲击射流、汽车尾气等流场进行研究<sup>[9]</sup>, 揭示了颗粒系统动力学特征量如颗粒数浓度分布、颗粒尺度分布等与流场拟序结构的关系, 进一步明确了颗粒动力学演变规律与怒森德数、Damköhler 数之间的关系.

为在同一数学模型框架内解决纳米尺度颗粒与相对较大微米颗粒共存的问题, 本课题组对多相圆射流场采用离散涡方法模拟流场, 用不同模型模拟微米和纳米尺度颗粒的动力学演变过程<sup>[10]</sup>, 研究表明, 这一方法很好地解决了在同一系统中同时模拟微米和纳米尺度颗粒的问题. 采用类似方法, 还对圆射流中纳米尺度颗粒在拟序结构中的弥散机理进行了研究, 揭示了拟序结构的形成与演变对颗粒间的碰撞与扩散的影响, 说明了拟序结构的存在导致颗粒在空间的分布更不均匀<sup>[11]</sup>.

#### 6 矩方法在实际问题中的应用

通过对颗粒动力学矩方程与流体力学控制方程进行耦合处理, 可以将其应用于具体的实际问题中, 如发动机尾气颗粒污染物的分布、燃烧法合成纳米颗粒、圆管内部湍动流场条件下颗粒动力学的演变行为等. 在使用矩方程与具体流体力学湍流模型(如 RANS, LES 等)联立求解处理过程中, 由于较小颗粒尺度( $< 1\mu\text{m}$ )及稀相条件, 流场对颗粒相影响只体现在对流扩散输运一方面, 流场脉动对颗粒间凝并不予考虑.

##### 6.1 燃烧法合成凝并体纳米颗粒

以纳米团簇或者纳米颗粒为基体的纳米材料及其相应发展起来的纳米技术被公认是 21 世纪最有前途的研究和发展领域. 纳米尺度谱分布、结构、化学成分组成和分散程度等决定了纳米材料的品质特性. 所以, 纳米颗粒生产过程中的可设计性和可控性是该领域研究的重点和基础性问题. 最近, 燃烧喷雾分解、化学反应合成及化学反应裂解等气溶胶

方法在国际上被广泛关注,如图 3 所示.由于颗粒形成和增长是在较短时间尺度和较小空间尺度内完成,迄今为止,颗粒形成过程中的化学反应速率、颗粒动力学参数演化与燃烧流场的相关关系、前驱物浓度对所合成颗粒结构的影响、液滴表面蒸发和凝结的竞争关系等一些基础性问题,至今尚没有较为理想的研究结果.因此,有必要在试验研究的基础上,结合理论分析和数值模拟等有效手段,对以上问题进行综合性研究,给出燃烧流场发展过程中影响纳米颗粒动力学特征量如颗粒数浓度、表面积浓度等参数的关键性因素,在此基础上构建描述燃烧喷雾流场中纳米颗粒生成过程的数值计算模型.对这一问题进行研究需借助流体力学、气溶胶力学、颗粒动力学、燃烧动力学、化学动力学等学科的相关知识.

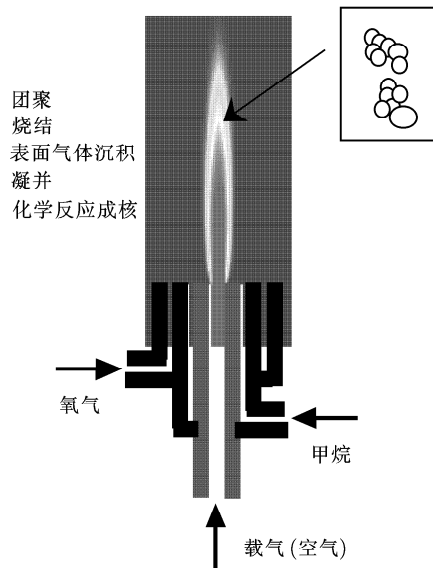


图 3 燃烧法合成纳米颗粒示意图

基于以上原因,本课题组采用数值计算手段,通过在 Smoluchowski 平均场理论框架内构建相应模型,对由 TTIP 裂解生成  $\text{TiO}_2$  凝并体纳米粒子的过程进行数值模拟,得到了纳米颗粒合成过程中的重要信息<sup>[12]</sup>.研究中对燃烧流场的求解,采用时均  $k-\epsilon$  湍流模型和涡耗散概念模型 (EDC);在对凝并体纳米粒子动力学特性的描述上,在积分矩方法框架内引入双变量处理,构建同时描述颗粒尺寸和表面积浓度的数学模型.为保证数值计算的有效性,计算条件与已有实验工况相同.研究结果给出了颗粒尺度和形状等重要物理量在燃烧流场中的演化信息,

并揭示了进口氧气流率对生成凝并体特性的影响.

## 6.2 发动机尾气颗粒污染物形成机理及在大气中的扩散特性

发动机或工业纳米颗粒污染物排放已成为影响自然环境和人类生存质量的重要因素.深入揭示颗粒污染物产生及其后期演化特点,有助于环境质量的合理制定和相应检测设备的研制开发.理论上,颗粒动力学演变在时空尺度上与当地的环境温度、相对湿度、气相饱和率、离子含量、尾气稀释率等参数相关,并受背景颗粒物浓度大小及颗粒物聚集程度的影响.对该问题进行理论研究,有必要引入气溶胶物理和气溶胶结晶理论的最新研究成果,通过综合考虑流体力学、气溶胶力学和热力学相关领域的相关内容,构建表征纳米颗粒污染物物理化学演化过程的计算模型.

本课题组在 TEMOM 模型框架内,综合考虑二元结晶成核、Brownian 凝并、浓缩和热泳等动力学过程,并与大涡模拟计算方法结合,构建了针对二次颗粒污染物传输及动力学演变过程的相关模型.通过理论分析及数值计算,重点研究了周围环境与二次颗粒动力学演变之间的关系,得出了颗粒物尺度谱分布在大气环境中最终达到自保持分布特征、颗粒数浓度和颗粒大小与环境温度、湿度等强烈相关等重要结论.研究表明,TEMOM 方法在兼具较高计算精度和计算效率情况下,可用于颗粒污染物机理及工程问题的研究.

为揭示大气中气溶胶的形成机理,在充分考虑背景颗粒物、结晶、凝并以及浓缩等物理化学过程的基础上,通过引入泰勒展开技术对所得通用动力学方程进行封闭处理,获得了颗粒形成过程中不同作用机理的相互影响关系<sup>[13]</sup>.为从根本上揭示结晶颗粒在扩散系统中所发生的物理化学变化过程,同时考虑了复相系统的动量、热量和质量传递,  $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$  二元结晶成核, Brownian 凝并, Brownian 和湍流扩散,浓缩和由于温度在空间上的差异所导致的热泳迁移等现象,如图 4 所示.研究结果表明,浓缩过程的存在在一定程度上减弱了结晶成核强度,并使结晶成核发生的过程延长.背景颗粒物浓度和尺度的分布对结晶、凝并以及浓缩速率有很大的影响.研究结果也表明,TEMOM 模型可以作为气溶胶多相流体动力学理论研究的重要工具来使用.

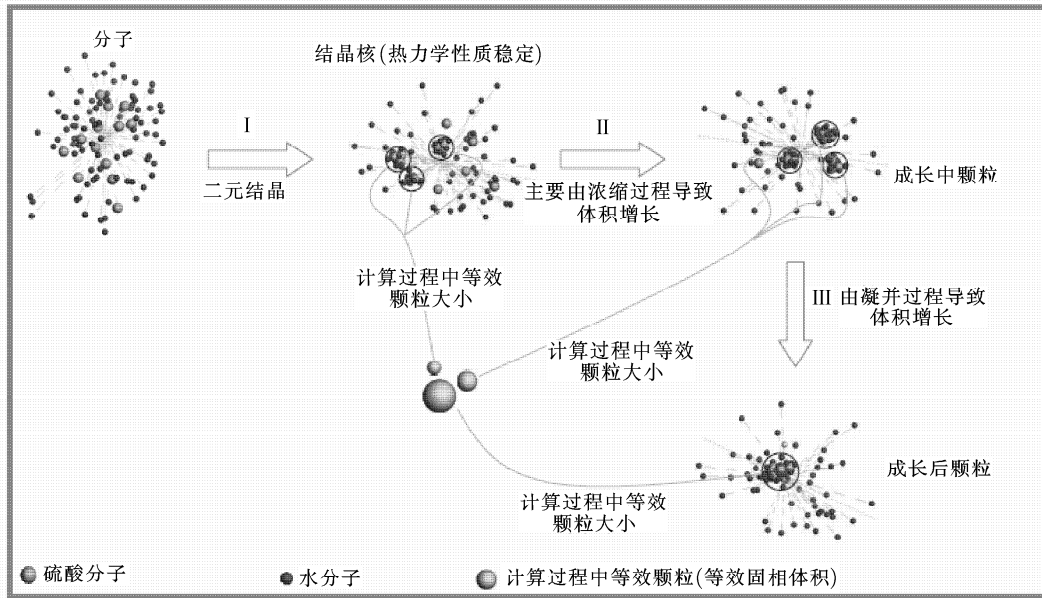


图 4  $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$  二元系统结晶成核及其颗粒生长示意图

### 6.3 纳米颗粒在管道中的扩散沉积

管道系统纳米尺度颗粒的传输特性涉及 MEMS 技术、纳米药物制备以及相关传输医疗设备的研制、纳米流体强制换热以及纳米气溶胶颗粒在人呼吸道沉积等重要领域。这方面研究需综合考虑流场内部结构以及颗粒物的热运动、凝并、壁面沉积等动力学特性。本课题组以数值模拟手段为主，以理论分析为辅，首次对多种截面（圆截面、方截面）旋转（或静止）平面曲线管道系统中的纳米粒子两相流进行了研究，详细讨论了多个无量纲参数如无量纲曲率、Reynolds 数、Schmidt 数等对管道截面上纳米粒子的质量分布、管道壁面上的沉积增强、沉积效率的影响；给出了管道内时空尺度上的颗粒粒径、几何分布偏差等的演变信息，确定了纳米粒子在管道壁面上不同方位角处沉积增强因子的解析表达式以及弯曲相对沉积效率表达式<sup>[14]</sup>，为后续对诸如颗粒碰撞、颗粒表面生长等的研究提供了一个可行的方法。

## 7 结束语

纳米尺度粒子多相流的研究有着重要的理论和工程意义。有别于一般常规多相流，纳米尺度粒子多相流在研究方法、目的及其需要重点关注的基本物理量方面，存在着特殊性。在对涉及到流场结构变化的实际工程问题的求解方面，需要借助宏观框架下的 Smoluchowski 平均场理论，同时还要涉及到化学动力学、物理学、医学、材料科学、流体力学、

燃烧动力学、气溶胶力学、光学、热力学和电磁学等领域的相关知识。

在多分散颗粒系统中，如何快速有效地对强非线性 Smoluchowski 方程进行求解一直是该领域研究的重点和难点问题。尤其是在非稀相条件下，经典 Smoluchowski 平均场理论不再适用。本课题组在揭示纳米粒子复相系统物理本质、提高算法求解精度和效率及其对实际问题进行模型构建方面做了一些基础性工作。但是，由于纳米颗粒多相流是一个涉及多学科的交叉性研究，在一些基本物理现象没有搞清楚之前，提出绝对意义上的高精度物理模型还不现实。所以，将来在纳米颗粒多相流研究方面值得关注以下内容：

(1) 流场湍动问题。现代湍流理论尚不能在微观尺度上有效地对化学反应、颗粒间的碰撞、均质或者异质性凝并及其凝并体湍动剪切破碎等现象进行描述。现有的湍动凝并和破碎模型均是基于湍动动能和耗散两个基本物理量，在物理本质上对该问题进行精确的描述还需要借助湍流问题的最新研究成果。迄今为止，湍动条件下，针对纳米尺度颗粒动力学方面的实验研究仍较少有研究者涉及。采用现代流体力学测试技术如 Micro-PIV, PDPA 与气溶胶动力学测试技术如 SMPS 相结合，将为该问题的解决提供新的途径。

(2) 相间的耦合问题。从能量守恒及其动量运输的角度考虑，纳米粒子多相流与单相流存在一定的差异，差异的大小与颗粒容积率、颗粒物理属性及



其颗粒形状有关. 在对连续介质相动量方程的模型构建上, 用来体现应力应变关系的本构方程如何体现颗粒相的影响仍是一个值得探讨的问题, 尤其是在分形凝并体颗粒以及纤维纳米颗粒系统. 颗粒间的凝并过程在时间尺度上严重影响连续介质的物理黏性.

(3) 非稀相多分散性颗粒凝并问题的模型构建. 虽然已有非稀相单分散性颗粒凝并问题的理论表达式, 但是这一理论仍保留有较多的假设, 并不能从根本上解决问题. 从微观的角度给出与颗粒容积率相关的碰撞率表达式, 并使之应用于宏观框架下的经典 Smoluchowski 平均场理论, 将具有非常重要的理论价值. 目前, 在气溶胶研究领域, 颗粒碰撞率均基于两体碰撞假设, 浓相情况下多体碰撞问题是一个不容忽视的研究方向.

(4) 多变量问题. 在对结构形状具有较强各向异性的凝并体进行研究时, 采用多变量对模型进行构建是必须的, 合理的颗粒形状的数学表达将是问题求解的关键. 在矩方法理论框架内, 目前仅有的两种多变量模型存在计算量大或丢失重要信息等缺陷, 构造一种兼顾精度和效率的多变量矩方法模型非常必要.

### 参 考 文 献

- Crow CT. Multiphase flow handbook. New York: Taylor & Francis Group, 2006
- 周琨, 林建忠. 两相流中圆柱状粒子阻力的研究. 力学与实践, 2003, 25(3): 15-17 (Zhou Kun, Lin Jianzhong. The drag of Cylindrical partide in two phase flow. *Mechanics in Engineering*, 2003, 25(3): 15-17 (in Chinese))
- Balachandar S, Eaton JK. Turbulent dispersed multiphase flow. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 2010, 42: 111-133
- Salazar JPLC, Jong JD, Cao L, et al. Experimental and numerical investigation of inertial particle clustering in isotropic turbulence. *Journal of Fluid Mechanics*, 2008, 600: 245-256
- Feng Y, Lin JZ. The collision efficiency of spherical dioctyl phthalate aerosol particles in the Brownian coagulation. *Chinese Physics B*, 2008, 17: 4537-4553
- Yu MZ, Lin JZ, Chan TL. A new moment method for solving the coagulation equation for particles in Brownian motion. *Aerosol Science and Technology*, 2008, 42: 705-713
- Yu MZ, Lin JZ. Taylor-expansion moment method for agglomerate coagulation due to Brownian motion in the entire size regime. *Journal of Aerosol Science*, 2009, 40: 549-562
- Yu MZ, Lin JZ. Solution of the agglomerate Brownian coagulation using Taylor-expansion moment method. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2009, 336: 142-149
- Yu MZ, Lin JZ. Nanoparticle-laden multiphase flows via moment method: a review. *International Journal of Multiphase Flow*, 2009, 36(2): 144-151
- Chan TL, Lin JZ, Zhou K, et al. Simultaneous numerical simulation of nano and fine particle coagulation and dispersion in a round jet. *Journal of Aerosol Science*, 2006, 37: 1545-1561
- Lin JZ, Chan TL, Liu S, et al. Effects of coherent structures on nanoparticle coagulation and dispersion in a round jet. *International Journal of Nonlinear Sciences and Numerical Simulation*, 2007, 8: 45-54
- Yu MZ, Lin JZ, Chan TL. Effect of precursor loading on non-spherical TiO<sub>2</sub> nanoparticle synthesis in a diffusion flame reactor. *Chemical Engineering Science*, 2008, 63: 2317-2329
- Yu MZ, Lin JZ. Binary homogeneous nucleation and growth of water-sulfuric acid nanoparticles using a TEMOM model. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2010, 53(4): 635-644
- Lin JZ, Lin PF, Chen HJ. Research on the transport and deposition of nanoparticles in a rotating curved pipe. *Physics of Fluids*, 2009, 21: 121001

(责任编辑: 刘俊丽)

~~~~~  
(上接第 15 页)

- 柳春图, 蒋持平. 板壳断裂力学. 北京: 国防工业出版社, 2000
- 吕品, 黄茂光. Reissner 板弯曲的复变函数分析方法. 力学学报, 1990, 22 (6): 689-699 (Lü Pin, Huang Maoguang. Complex variable analytic method for solving reissners plate bending problems. *Acta Mechanica Sinica*, 1990, 22 (6): 689-699 (in Chinese))
- 周勇, 王鑫伟. 压电材料平面裂纹尖端场的杂交应力有限元分析. 力学学报, 2004, 36 (3): 354-358 (Zhou Yong, Wang Xinwei. Analyses of crack-tip fields of plane piezoelectric materials by the hybrid stress finite element method. *Acta Mechanica Sinica*, 2004, 36 (3): 354-358 (in Chinese))
- 王其申. 由泛复函构造弹性力学平面问题的特解. 力学与实践, 1995, 17 (4): 56-58 (Wang Qishen. Special solutions of plane problems of elasticity mechanics constructed by general complex variable functions. *Mechanics in Engineering*, 1995, 17 (4): 56-58 (in Chinese))
- 王省哲, 怡晓玲. 弹性力学问题复变函数解法的应用与发展. 力学与实践, 2008, 30(6): 110-113 (Wang Xingzhe, Yi Xiaoling. Application and development of complex variable method for elasticity mechanics. *Mechanics in Engineering*, 2008, 30(6): 110-113 (in Chinese))

(责任编辑: 刘俊丽)