

# 稀释体系气溶胶粒子近壁动力特性及壁面影响

杨怡菲 姜泽毅 张欣欣 张欣茹 柳翠翠

北京科技大学机械工程学院, 北京 100083

**摘要** 以极端稀释气溶胶体系中单个粒子为研究对象,建立了考虑受重力浮升力、表面势力和布朗热动力作用的运动控制方程,运用布朗动力学方法数值模拟了近壁处气溶胶粒子的动力特性规律.结果表明,壁面之上一定范围内(约50个气溶胶粒子半径)存在一个壁面影响区,区域中气溶胶粒子的动力特性有别于无界大空间中的气溶胶粒子,且其厚度远大于壁面对粒子作用力的范围(约1个粒子半径).最后讨论了不同表面特性、不同粒子半径时壁面影响区的变化规律.

**关键词** 气溶胶体系; 气溶胶粒子; 动力特性; 壁面效应

**分类号** TK121; O359<sup>+</sup>.1

## Dynamics of wall-adjacent aerosol particles in a dilute system and wall effect

YANG Yifei, JIANG Zeyi, ZHANG Xinxin, ZHANG Xinru, LIU Cuicui

School of Mechanical Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China

**ABSTRACT** The trajectory function of a single aerosol particle in a dilute gas system close to a wall was theoretically studied with consideration of different forces such as gravity-buoyancy, particle-wall interaction and Brownian force. The results indicate that there is a wall effect layer in which the particle shows a different dynamic characteristic from that in unlimited space. The wall effect layer is about 50 radii of the particle, which is much higher than the effective range of particle-wall interaction, about 1 radius. Finally, associated discussion was made to understand the effects of surface characteristic and particle size on the wall effect layer.

**KEY WORDS** dilute system; aerosol particles; wall-adjacent movement; wall effect layer

气溶胶由气体介质和悬浮于其中的微、纳米级粒子组成,由于粒子的存在,其物化特点和传输规律同经典流体力学中满足连续介质假设的普通流体有很大不同,粒子-粒子间作用、粒子-介质间作用和粒子-表面间作用往往成为影响体系性质和行为的主要因素.近年来,随着科技的发展,气溶胶体系的输送涉及到越来越细微的空间尺寸内,如微机电系统加工制造中的污染物控制、过滤膜堵塞<sup>[1-2]</sup>、换热器结垢、药物颗粒或污染物在气管内的运动沉积<sup>[3]</sup>,因此考虑粒子-表面间作用对气溶胶体系动力性质的影响已经成为目前气溶胶科学的热点问题之一.

鉴于气溶胶制备、维持及观测等方面的诸多困难,气溶胶粒子近壁运动实验研究比较少见<sup>[4-5]</sup>.相比之下,采用数值模拟,如布朗动力学、分子动力

学、蒙特卡罗方法<sup>[6]</sup>,来探析近壁处气溶胶粒子运动规律,就成为诸多学者的常用手段和工具<sup>[7-11]</sup>.实际研究中往往针对不同背景,所选实验对象、模拟参数等差别亦很大,从而造成各研究结果重复性不高,甚至出现较大的相互差异.

尽管如此,目前对近壁处气溶胶粒子运动也已形成一些初步共识:颗粒在小于一定尺度时不可忽略其布朗(Brown)运动<sup>[1]</sup>;小颗粒对流体介质跟随性较好,而大颗粒易在速度边界层滞留;在近壁一定范围内,颗粒-表面间相互作用对粒子运动有重要影响<sup>[7]</sup>等.

本文基于布朗动力学理论,考虑粒子所受重力浮升力、表面势力和布朗热动力,导出描述近壁处气溶胶粒子运动规律的数理方程,数值模拟单分散极端稀释液态气溶胶体系中液体微粒近壁运动,得出

收稿日期: 2007-09-17 修回日期: 2007-10-31

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(No. 50506005)

作者简介: 杨怡菲(1983-),女,硕士研究生;姜泽毅(1973-),男,副教授,博士, E-mail: yangyifei1983@yahoo.com.cn

近壁处粒子浓度分布等参数, 以确定壁面对气溶胶粒子产生影响的区域, 进一步探讨不同表面特性、不同粒子半径下壁面影响区的变化。

## 1 数理模型

### 1.1 基本考虑

主要考虑单分散稀液态气溶胶体系中近壁处液体颗粒运动规律。体系由亚微米级球形水滴悬浮在空气中形成, 空气介质流速为零; 认为除发生碰并或沉积, 粒子保持形状、大小不变, 忽略蒸发凝结; 壁面为水平放置的理想光滑表面。

近壁处单粒子运动满足经典牛顿力学, 可通过受力分析确定运动规律。一般而言, 近壁处气溶胶粒子所受力包括重力浮升力  $F_g$ 、表面势力  $F_{ps}$ 、粒子间势力  $F_{pp}$  和布朗热动力  $F_b$  等。表面势力是固体壁面对粒子作用力, 由原子分子间范德瓦尔斯力及界面电荷作用产生; 粒子间势力是气溶胶粒子间相互作用; 布朗热动力表征周围气体分子对粒子的无规则撞击。本文研究极端稀释气溶胶体系, 粒子间距较大, 粒子间势力极小, 相对其他作用力忽略不计。

### 1.2 受力分析

(1) 重力浮升力  $F_g$ 。

$$F_g = \frac{4\pi}{3} \Delta \rho g a^3 \quad (1)$$

其中,  $\Delta \rho = \rho_p - \rho_f$  是胶体粒子和周围介质之间的密度差,  $a$  为粒子半径。

(2) 表面势力  $F_{ps}$ 。根据经典 DLVO 理论, 平板对胶体粒子的作用力是范德瓦尔斯力 (van der Waals) 和双电层力 (electrical double layer) 的和<sup>[12]</sup>, 可表示如下:

$$F_{ps} = F_{ps\_vdw} + F_{ps\_edl} \quad (2)$$

本文忽略气溶胶粒子带电, 即不考虑双电层力。

另外因所模拟空间较大, 需考虑范德瓦尔斯力长程效应, 即迟滞和屏蔽效应不可忽略, 此时球形气溶胶粒子和平板间范德瓦尔斯势  $W_{ps\_vdw}$  表达如下 ( $h < a$ )<sup>[7]</sup>:

$$W_{ps\_vdw} = -\frac{A_{ps}}{6} \left[ \frac{2a}{h} + \frac{h+a}{h+2a} - \ln \left( \frac{h+2a}{h} \right) \right] \quad (3)$$

其中,  $h$  是粒子与平板表面的最近距离;  $A_{ps}$  是表面和粒子间相互作用的 Hamaker 常数, 包含了相互作用两物体 1、2, 及分隔 1、2 的介质 3 的所有物理化学性质。若其他条件相同, 当 Hamaker 常数较大时, 固体表面和粒子间的作用力亦较大。对式 (3) 微分导得相应势力  $F_{ps\_vdw}$  表达式 ( $h < a$ ):

$$F_{ps\_vdw} = -\frac{A_{ps}}{6} \frac{2a^2}{h(h+2a)} \left( \frac{1}{h} - \frac{1}{h+2} \right) \quad (4)$$

(3) 布朗热动力。布朗 (Brown) 热动力使气溶胶粒子运动具有随机性, 显著区别于大颗粒一流体的确定性运动。气溶胶力学中一般认为, 粒子半径小于  $1 \mu\text{m}$  时, Brown 运动不可忽略<sup>[1]</sup>, 其统计效果可以用 Brown 热动力描述。

Brown 热动力可看作如下均值为零的高斯白噪声<sup>[13-15]</sup>, 表达式如下:

$$F_b = m_p \alpha Z \quad (5)$$

其中,  $m_p$  为粒子质量,  $\alpha$  是表征 Brown 热动力加速度大小的特征量,  $Z$  是表征随机方向的量纲为 1 的矢量, 其取值分别如下:

$$Z = Z_x e_x + Z_y e_y + Z_z e_z \quad (6)$$

$$\alpha = \sqrt{\frac{432 \mu k_b T}{\pi (2a)^2 \rho_p^2 C_s \Delta t}} \quad (7)$$

$$C_s = 1 + A \frac{2\lambda}{D_p} + Q \frac{2\lambda}{D_p} \exp \left( -\frac{bD_p}{2\lambda} \right) \quad (8)$$

这里,  $e_x$ 、 $e_y$  和  $e_z$  分别为  $x$ 、 $y$  和  $z$  方向上的单位矢量,  $D_p$  为气溶胶粒子直径,  $\mu$  为空气动力黏度,  $k_b$  为玻尔兹曼常数,  $T$  为环境温度,  $\Delta t$  为时间步长,  $\lambda = 9.332 \times 10^{-6} \text{ cm}$ ,  $A = 1.234$ ,  $Q = 0.413$ ,  $b = 0.904$ 。

### 1.3 运动方程

根据上述受力分析及数学描述, 结合牛顿第二定律, 可得单粒子运动控制方程如下:

$$\begin{cases} m_p \frac{d\mathbf{u}(t)}{dt} = \Sigma \mathbf{F} \\ \frac{d\mathbf{r}(t)}{dt} = \mathbf{u}(t) \end{cases} \quad (9)$$

其中,  $m_p$  为颗粒质量;  $\mathbf{u}(t)$ 、 $\mathbf{r}(t)$  分别为颗粒在  $t$  时刻的速度和位置;  $\Sigma \mathbf{F}$  表示近壁处单个气溶胶粒子所有受力的和, 包括重力浮升力、表面势力和 Brown 热动力:

$$\Sigma \mathbf{F} = \mathbf{F}_g + \mathbf{F}_{ps} + \mathbf{F}_b \quad (10)$$

将受力描述结果代入式 (9), 得  $Oxyz$  坐标系下三个方向的方程分别为:

$$\begin{cases} m_p \frac{du(t)}{dt} = m_p \alpha Z_x \\ \frac{dx(t)}{dt} = u(t) \\ m_p \frac{dv(t)}{dt} = m_p \alpha Z_y \\ \frac{dy(t)}{dt} = v(t) \end{cases} \quad (11)$$

$$\begin{cases} m_p \frac{dv(t)}{dt} = m_p \alpha Z_y \\ \frac{dy(t)}{dt} = v(t) \end{cases} \quad (12)$$

$$\begin{cases} m_p \frac{dw(t)}{dt} = -\frac{4\pi}{3} \Delta \rho g a^3 - \\ \frac{A_{ps}}{6} \frac{2a^2}{h(h+2a)} \left( \frac{1}{h} - \frac{1}{h+2a} \right) + m_p \alpha Z_z \\ \frac{dz(t)}{dt} = w(t) \end{cases} \quad (13)$$

## 2 数值求解

### 2.1 数值方法

Brown 热动力项具有随机特性,这使得式(9)与常规微分方程相区别,成为“随机微分方程”(SDE). 为求解上述问题,假设一积分时间步长内,粒子所受各种力保持常数,粒子运动问题可用四阶龙格库塔方法求解,具体求解流程如图 1.

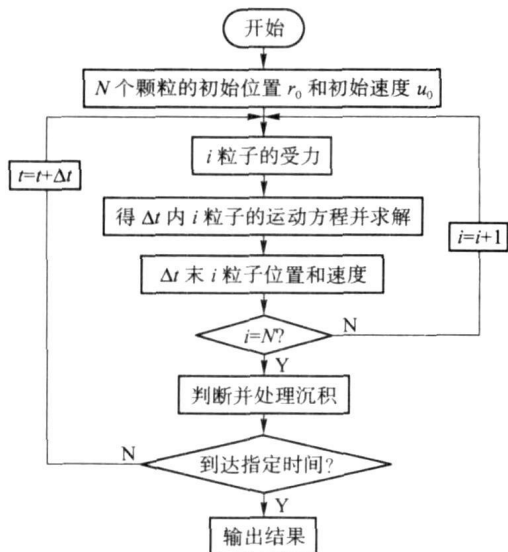


图1 数值求解流程图

Fig.1 Flow chart for numerical simulation

模拟中时间步长是重要参数,影响模拟精度和效率. 一般认为,一个时间步长内的布朗位移和粒子直径相当时,布朗热动力即不可忽略. 实际中常要求时间步长  $\Delta t$  远大于  $t^*$ , 其中  $t^*$  是粒子“忘记”初始速度的特征时间<sup>[13]</sup>.

$$t^* = \frac{m_p}{3\pi\mu d_p} = \frac{d_p^2 \rho_p}{18\mu} \quad (14)$$

代入相关数据,得  $t^* \approx 123 \text{ ns}$ .

本模拟中时间步长选  $10 \text{ ns}$ , 此时 Brown 位移量级约  $10^{-21} \text{ m}$ , 远小于粒子半径<sup>[10-11]</sup>.

### 2.2 模拟参数

假设初始时,边长  $30 \mu\text{m}$  的正方体模拟空间中随机均分布着 500 个半径为  $a$  的气溶胶粒子,初始速度满足均值为 0, 方差为  $k_b T / m_p$  的高斯随机分布<sup>[11]</sup>. 模拟空间上下边界分别满足绝对黏附和开口边界条件,其余四面满足周期性边界条件(如图 2). 绝对黏附边界条件的含义是:当粒子表面距平板的最近距离  $h$  等于或小于黏附距离时,粒子发生沉积,而不考虑反弹等情况. 根据模拟实际情况和已有经验<sup>[16]</sup>, 本文取黏附距离为  $0.2 \text{ nm}$ <sup>[17]</sup>. 模拟中所使用参数如表 1.

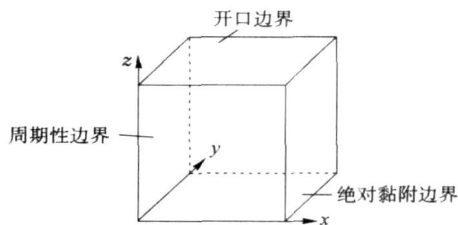


图2 模拟体系及坐标系示意图

Fig.2 Schematic drawing of the simulation cell

表1 模拟使用的参数

Table 1 Parameters for numerical simulation

计算参数	计算值	物性参数	计算值
粒子半径, $a/\mu\text{m}$	0.05, 0.1, 0.2	空气密度, $\rho_f/(\text{kg}\cdot\text{m}^{-3})$	1.23
模拟空间边长, $L/\mu\text{m}$	30	粒子密度, $\rho_p/(\text{kg}\cdot\text{m}^{-3})$	1000
粒子总数	500	空气动力黏度, $\mu/(\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1})$	$1.8 \times 10^{-5}$
时间步长, $\Delta t/\text{s}$	$10^{-8}$	Hamaker 常数, $A_{ps}/(10^{-21} \text{ J})$	0.5, 1.217, 2
温度, $T/\text{K}$	293		

## 3 结果与讨论

本文模拟 500 个半径为  $a$  的气溶胶粒子在不同特性(Hamaker 常数)壁面附近的运动,得到一段时间末粒子沿高度方向浓度分布. 分析发现粒子在近壁面处有明显富集,其运动和传输规律异于无界

大空间内的情况.

### 3.1 粒子沿高度方向浓度分布和壁面影响区确定

图 3(a) 显示了  $a = 0.1 \mu\text{m}$ ,  $A_{ps} = 1.217 \times 10^{-21} \text{ J}$  时,近壁粒子浓度分布随时间的变化,壁面的存在引起近壁处气溶胶粒子浓度增加. 为更明显地看出壁面的影响,对图 3(a)的曲线进行拟合,结果

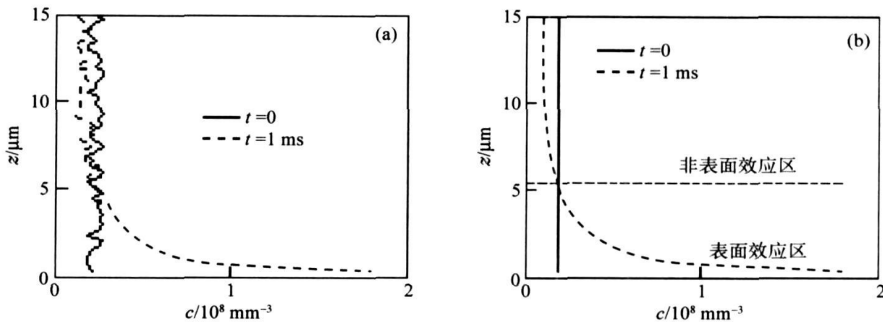


图 3 壁面影响区 ( $\alpha=0.1\mu\text{m}$ ,  $A_{ps}=1.217\times 10^{-21}\text{J}$ ): (a)  $t=1\text{ms}$  时气溶胶粒子浓度; (b) 由(a)得到的拟合浓度曲线

Fig.3 Wall effect layer ( $\alpha=0.1\mu\text{m}$ ,  $A_{ps}=1.217\times 10^{-21}\text{J}$ ): (a) particle concentration when  $t=1\text{ms}$ ; (b) fitting curves obtained from (a)

如图 3(b)所示.

本文假设壁面对气溶胶体系的影响发生于壁面影响区,此区域内粒子浓度分布不同于无壁面存在时的情况.取粒子沿平板法向浓度  $c$  大于等于初始浓度  $c_0$  ( $c \geq 1.01c_0$ ) 的区域为壁面影响区,则图 3(b)中水平虚线示意的壁面影响区高度  $z^*$  为  $5.4\mu\text{m}$ .

一般情况下,表面势力  $F_{ps}$  作用范围约一个粒子半径,本文条件下即为  $0.1\mu\text{m}$ ;但其却使壁面以上  $5.4\mu\text{m}$  范围内,也即壁面以上 50 个粒子半径范围内气溶胶粒子运动规律产生变化.这一现象反映了气溶胶体系作为软凝聚态物质区别于普通物质的一大特点,即对外界环境的微小变化可以产生十分敏感的反应.对此,可用表面势力作用引起的粒子扩散加以解释.

模拟初始时,粒子在模拟空间随机均匀分布,距

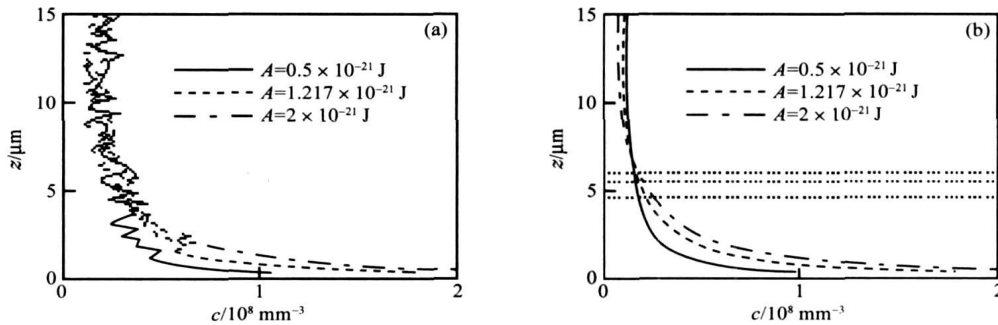


图 4 不同特性壁面的壁面影响区 ( $\alpha=0.1\mu\text{m}$ ): (a) 不同 Hamaker 常数下的粒子浓度曲线; (b) 由(a)得到的拟合浓度曲线

Fig.4 Wall effect layer at different Hamaker constants ( $\alpha=0.1\mu\text{m}$ ): (a) particle concentration at different Hamaker constants; (b) fitting curves obtained from (a)

表 2 不同 Hamaker 常数下壁面效应区高度  $z^*$

Table 2 Height of the wall effect layer  $z^*$  at different Hamaker constants

$A_{ps}/\text{J}$	$z^*/\mu\text{m}$
$0.5 \times 10^{-21}$	$4.50 \times 10^{-6}$
$1.217 \times 10^{-21}$	$5.40 \times 10^{-6}$
$2 \times 10^{-21}$	$6.00 \times 10^{-6}$

平板距离很近的粒子在  $F_{ps}$  的作用下迅速向平板聚集,造成近壁面处粒子浓度下降,整个模拟区出现瞬时浓度梯度,指向  $z$  轴正向.浓度差立即引起扩散,使得更大范围内粒子向平板富集.

实际上可以想象的是,壁面影响区和表面性质、气溶胶体系、介质种类等很多因素相关,不同条件下壁面影响区的厚度也各不相同.

### 3.2 不同表面特性下的壁面影响区

图 4(a)显示了不同特性壁面上(Hamaker 常数  $A_{ps}$ 不同),  $\alpha=0.1\mu\text{m}$  的粒子运动 1ms 后的浓度分布.可见,壁面和粒子间相互作用的 Hamaker 常数越大,壁面引起的粒子富集越显著.对图 4(a)的曲线拟合后结果如图 4(b)所示,其中从下到上三条水平线分别标出了  $A_{ps}$  为  $0.5 \times 10^{-21}\text{J}$ ,  $1.217 \times 10^{-21}\text{J}$  和  $2 \times 10^{-21}\text{J}$  时的壁面影响区的高度.可见 Hamaker 常数越大,壁面影响区越大(如表 2).

### 3.3 不同半径气溶胶粒子的壁面影响区

图 5(a)表示不同半径粒子在相同壁面上 ( $A_{ps}=1.217 \times 10^{-21}\text{J}$ ) 运动 1ms 后沿高度方向浓度分布的结果.由图可见,小粒子在近壁面处浓度较大粒子为大.对图 5(a)的曲线进行拟合后得到

图 5(b), 其中从下到上三条水平线分别表示粒子半径为 0.2, 0.1 和 0.05  $\mu\text{m}$  时的壁面影响区. 可见粒

径越小, 壁面影响区越大(如表 3).

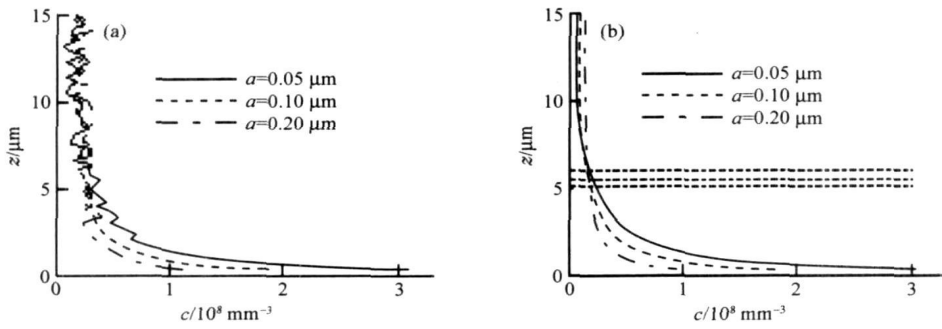


图 5 不同半径粒子的壁面影响区( $A_{ps}=1.217 \times 10^{-21}$  J): (a) 不同粒子半径的粒子浓度曲线; (b) 由(a)得到的拟合浓度曲线

Fig. 5 Wall effect layer at different particle radii ( $A_{ps}=1.217 \times 10^{-21}$  J): (a) particle concentration at different particle radii; (b) fitting curves obtained from (a)

表 3 不同半径粒子气溶胶体系的壁面影响区高度  $z^*$

Table 3 Height of the wall effect layer  $z^*$  at different particle radii

$a/\mu\text{m}$	$z^*/\mu\text{m}$
0.05	6.00
0.1	5.40
0.2	5.10

## 4 结论

(1) 在本文模拟参数下, 壁面对气溶胶运动的影响范围约 50 个粒子半径, 远大于壁面对粒子作用力的范围(约 1 个粒子半径). 在众多微米、亚微米尺度场合中, 壁面对气溶胶粒子运动影响不可忽略.

(2) 壁面与粒子间相互作用越大, 即 Hamaker 常数越大, 壁面影响区也越大.

(3) 气溶胶粒子粒径越小, 其受壁面影响越显著, 壁面影响区范围亦越大.

## 参 考 文 献

[1] Kim M M, Zydney A L. Effect of electrostatic, hydrodynamic and Brownian forces on particle trajectories and sieving in normal flow filtration. *J Colloid Interface Sci*, 2004, 269(2): 425

[2] Kim M M, Zydney A L. Particle-particle interactions during normal flow filtration; model simulations. *Chem Eng Sci*, 2005, 60(15): 4073

[3] Ahmadi G, Li A. Computer simulation of particle transport and deposition near a small isolated building. *J Wind Eng Ind Aerodyn*, 2000, 84(1): 23

[4] Fitch R M, Clarke J. Brownian deposition kinetics of latex particles onto glass and polystyrene. *Colloids Surf A*, 1999, 153(1-3): 525

[5] Tierney M J, Quarini G L. Mass transfer by simultaneous dropwise condensation and particle deposition. *Int J Heat Mass Transfer*, 1997, 40(3): 727

[6] Chen J C, Kim A S. Brownian dynamics, molecular dynamics and Monte Carlo modeling of colloidal systems. *Adv Colloid Interface Sci*, 2004, 112(1-3): 159

[7] Maniero R, Canu P. A model of fine particles deposition on smooth surfaces; I. Theoretical basis and model development. *Chem Eng Sci*, 2006, 61(23): 7626

[8] Miyahara M, Watanabe S, Higashitani K. Modeling adsorption and order formation by colloidal particles on a solid surface: a Brownian dynamics study. *Chem Eng Sci*, 2006, 61(7): 2142

[9] Lantermann U, Hänel D. Particle Monte Carlo and lattice-Boltzmann methods for simulations of gas-particle flows. *Comput Fluids*, 2007, 36(2): 407

[10] Magan R V, Sureshkumar R. Multiscale-linking simulation of irreversible colloidal deposition in the presence of DLVO interactions. *J Colloid Interface Sci*, 2006, 297(2): 389

[11] Park H, Kim S, Chang H. Brownian dynamic simulation for the aggregation of charged particles. *Aerosol Sci*, 2001, 32: 1369

[12] Hiemenz P C. *Principles of Colloid and Surface Chemistry*. Translated by Zhou Z K, Ma J M. Beijing: Peking University Press, 1986

(Hiemenz P C. 胶体与表面化学原理. 周祖康, 马季明, 译. 北京: 北京大学出版社, 1986)

[13] Moskal A, Payatakes A C. Estimation of the diffusion coefficient of aerosol particle aggregates using Brownian simulation in the continuum regime. *J Aerosol Sci*, 2006, 37(9): 1081

[14] Gupta D, Peters M H. A Brownian dynamics simulation of aerosol deposition onto spherical collectors. *J Colloid Interface Sci*, 1985, 104(2): 375

[15] Dennis R. *Handbook on Aerosols*. Translated by Liang H F, Lu Z Y. Beijing: Atomic Energy Press, 1988

(理查特·丹尼斯. 气溶胶手册. 梁鸿富, 卢正永, 译. 北京: 原子能出版社, 1988)

[16] Chein R Y, Liao W Y. Analysis of particle-wall interactions during particle free fall. *J Colloid Interface Sci*, 2005, 288: 104

[17] Israelachvili J. *Intermolecular and Surface Forces*. London: Academic Press, 1992