

平面射流场中纳米颗粒的成核与凝并*

刘演华^{1)†} 千富军¹⁾ 张 凯²⁾

1)(浙江大学力学系,杭州 310027)

2)(澳大利亚皇家墨尔本理工大学航空学院,墨尔本 3083)

(2009 年 7 月 28 日收到;2009 年 11 月 6 日收到修改稿)

采用大涡模拟和直接积分矩方法,数值模拟了在 Reynolds 数为 8300 的平面射流中,水蒸气(相对湿度 $\varphi = 70\%$)和硫酸蒸气(质量分数为 5×10^{-6})二元体系中纳米颗粒的成核与凝并,详细分析了颗粒数密度、体积密度和平均粒径的分布.计算结果表明,射流场混合动量厚度的增长和实验结果一致;射流场的拟序结构导致了涡核中心处硫酸蒸气浓度的明显减小,而纳米颗粒数密度则明显增加;拟序结构的出现导致颗粒碰撞概率增大,提高了颗粒凝并效率;在颗粒数密度较大的涡核中心,颗粒成核作用增强,从而加速了颗粒的凝并.

关键词: 纳米颗粒,成核,凝并,平面射流

PACC: 4755K, 9260M, 9265V

1. 引 言

人类的生活环境中充斥着成千上万种纳米颗粒,这些颗粒不仅影响大气的可视度、天气和气候等,而且还危害人类健康,引起各种呼吸系统疾病.研究指出,颗粒对人类呼吸道危害作用更多取决于颗粒的数密度而不是质量密度^[1].实际情形中纳米颗粒会经历各种物理化学变化,如成核、凝并、表面增长以及湍流引起的稀释等^[2-4].本文研究的平面射流场中纳米颗粒的成核与凝并,在废气排放和纳米颗粒制备中经常出现.随着计算流体动力学和颗粒动力学的发展,已经能够用数值计算的方法来模拟纳米颗粒在流动中的生成、碰撞和增长等现象^[5].Wang 等^[6]结合矩方法和计算流体动力学方法,模拟了层流和湍流条件下 Taylor-Couette 流中颗粒的凝并和破碎.Liu 和 Lin^[7]运用矩方法,研究了 Poiseuille 流中不同 Reynolds 数 Re 和 Damkohler 数 Da 对颗粒凝并的影响.Lemmetty 等^[8]研究了柴油发动机尾气中硫的作用,并将一些模型的模拟结果与实验数据进行了对比.Miller 和 Garrick^[9]研究了平面射流中纳米颗粒的凝并,发现颗粒的几何标准方差在距喷嘴一个特征尺度的下游达到自保持值,并在距喷嘴 7.5 个特征尺度的流场范围内保持不

变.Lin 等^[10]用离散涡方法模拟了圆管射流中颗粒凝并和扩散,说明随着 Schmidt 数 Sc 的增加,颗粒混合区逐渐变窄,颗粒的多分散性变得不明显.Yu 等^[11]模拟了平面射流中纳米颗粒的凝并,说明当颗粒的粒径小于 1 nm 时, Sc 的变化才会引起颗粒数密度的变化.Yu 等^[12]应用大涡模拟(LES)方法研究了平面射流场颗粒的凝并和增长,发现随着流动的发展,颗粒数密度在射流中心区减小,而在射流外围增大.Yin 等^[13]采用 LES 方法研究了双排气管汽车尾气中硫酸液滴的形成,表明风速和尾气速度的比值对颗粒的浓度和尺寸分布有很大影响.Yu 等^[14]结合 LES 和积分矩方法,研究了约束边界射流场中纳米颗粒的演变,发现颗粒分布与 Re 以及喷嘴到壁面的距离有很大关系.Yu 等^[15]探究了扩散火焰反应器中 TiO_2 颗粒的合成,表明颗粒数密度的最大值出现在高温区域的前部,并随着颗粒的凝并而逐渐减小.Yin 等^[16]模拟了双射流场中硫酸蒸气的扩散,发现在硫酸-水蒸气体系中成核作用导致大量纳米颗粒的生成,颗粒数密度较大值主要出现在双射流场的中间和周边区域.Yu 等^[17]研究了扩散火焰反应器中 TiO_2 颗粒形成的机理,表明增大反应器载荷将积聚生成更大的颗粒团,颗粒尺寸分布范围也更大.Feng 和 Lin^[18]在考虑 van der Waals 力和颗粒碰撞弹性力的情况下,研究了纳米颗粒的布朗凝

* 国家自然科学基金重点项目(批准号:10802083)资助的课题.

† E-mail: liuyanhua@zju.edu.cn

并,给出了相应的凝并效率.

以上的研究涉及到的基本是层流场,即便湍流场也是采用时间平均的 Reynolds 平均运动方程进行求解.然而,射流场中存在典型的大尺度拟序结构,这些结构在时间平均中已经被抹平,而实际上它们对流场的动量和能量输运起着重要的作用^[19],对纳米颗粒的形成、演变、输运也应该有很大的影响.但是,迄今为止作者尚未见这方面的研究报道.因此,本文采用 LES 和直接积分矩方法,数值模拟平面射流中水蒸气和硫酸蒸气二元体系中纳米颗粒的成核与凝并,探讨拟序结构对颗粒数密度、体积密度和平均粒径分布的影响.

2. 基本方程和求解方法

2.1. 流场控制方程

LES 是数值模拟湍流场的常用方法,在综合计算精度和计算效率方面具有一定的优势. LES 的主要思想是把物理量(如速度、压力、体积力等)分解成两部分,一部分体现大尺度结构的作用,另一部分则体现小尺度结构的作用^[20],LES 直接求解大尺度结构,小尺度结构则采用相应的湍流模型.

LES 中的控制方程是通过 Navier-Stokes (N-S) 方程进行过滤得到,过滤后的变量(用上划线表示)定义为

$$\bar{\varphi}(x, y, t) = \frac{1}{A} \int_A \varphi(x', y', t) dx' dy', \quad (1)$$

式中 φ 是任意变量(如熵、质量分数或者颗粒浓度等), A 是计算单元的面积, x 和 y 是坐标变量. 将方程(1)应用于 N-S 方程和对流扩散方程,可以得到如下过滤后的方程:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho \bar{u}_j)}{\partial x_j} = 0, \quad (2)$$

$$\frac{\partial(\rho \bar{u}_i)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho \bar{u}_i \bar{u}_j)}{\partial x_j} = -\frac{\partial \bar{p}}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\mu \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} - \tau_{ij} \right), \quad (3)$$

$$\frac{\partial(\rho \bar{\varphi})}{\partial t} + \frac{\partial(\rho \bar{u}_j \bar{\varphi})}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(D_s \frac{\partial \bar{\varphi}}{\partial x_j} \right) + S_\varphi, \quad (4)$$

式中 ρ 是流体密度, \bar{p} 和 \bar{u}_i 分别是流体的压力和速度, μ 是流体黏度, σ_{ij} 和 τ_{ij} 分别是流体的剪切应力张量和亚格子应力张量, D_s 是有效扩散系数, S_φ 表示变量 $\bar{\varphi}$ 的源项. 亚格子应力 τ_{ij} 采用如下模型:

$$\tau_{ij} - \frac{1}{3} \tau_{kk} \delta_{ij} = -2\mu_t \bar{S}_{ij}, \quad (5)$$

式中 δ_{ij} 是 Kronecker 算符, \bar{S}_{ij} 表示应变率张量,

$$\bar{S}_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{u}_j}{\partial x_i} \right). \quad (6)$$

在方程(5)中, μ_t 是亚格子涡黏系数,常采用著名的 Smagorinsky-Lilly 模型

$$\mu_t = \rho L_s^2 |S|, \quad (7)$$

式中 L_s 是亚格子混合长度, $|S| = \sqrt{2\bar{S}_{ij}\bar{S}_{ij}}$ 表示应变率张量的模.

2.2. 颗粒控制方程

研究纳米颗粒演变过程的方法包括直接模拟法、分区法、矩方法等,其中应用较为广泛的是矩方法. 作为矩方法的一种,直接积分矩方法(DQMOM)采用高斯积分,并构造积分权系数和积分点的方程,以达到封闭矩方程的目的^[21]. 在单变量的情况下, Marchisio 和 Fox^[22] 证明 DQMOM 和矩方法完全等价. 本文采用 DQMOM 方法,因为该方法计算精度高、过程稳定.

定义颗粒尺寸分布函数为 $f(\mathbf{x}, v, t)$, 它表示 t 时刻 \mathbf{x} 处体积为 v 的颗粒的数密度. $f(\mathbf{x}, v, t)$ 的控制方程是一般动力学方程^[4],

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\mathbf{v}} f) = \nabla \cdot (D_s \nabla f) + S_p, \quad (8)$$

式中 S_p 表示由成核、凝并、破碎等作用引起的颗粒变化率, $\bar{\mathbf{v}}$ 表示携带颗粒的流体运动速度. Vanni^[23] 模拟分子聚并成颗粒的演变过程时,发现颗粒粒径每增大 10 倍,计算量则增加 1000 倍. 在实际应用中,使用更多的是颗粒的数密度、体积(质量)密度、多分散性、平均粒径等颗粒统计特征量,而非颗粒尺寸分布. 因此,颗粒尺寸分布的 k 阶矩定义如下^[24]:

$$m_k = \int_0^\infty f(\mathbf{x}, v, t) v^k dv, \quad (9)$$

式中 k 是矩的阶数,零阶矩表示总的颗粒数密度,一阶矩表示颗粒体积密度(与质量密度相关),二阶矩表示颗粒的多分散性. 将方程(9)代入方程(8)可得

$$\frac{\partial m_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\mathbf{v}} m_k) = \nabla \cdot (D_s \nabla m_k) + S_k. \quad (10)$$

这里 $S_k = \int S_k v^k dv = S_k^n + S_k^c + S_k^s$ 表示各阶矩的源项,其中 S_k^n, S_k^c, S_k^s 分别表示成核、凝并和表面增长对颗粒矩产生的影响,通常 S_k 包含分数阶矩或者更高阶

矩,这就涉及矩方程的封闭问题.很多学者提出各种方法来封闭矩方程,这些方法中最受关注的是对数-正态(log-normal)方法^[25,26]、积分矩方法(QMOM)^[27]和DQMOM^[21].对数-正态律分布假设颗粒尺寸分布满足对数-正态分布,则高阶矩可以由 m_0, m_1, m_2 显式表示.QMOM方法利用高斯积分的优点近似表示各阶矩,即 $m_k \approx \sum w_i v_i^k$,如果已知 $2n$ 个矩值,那么权函数 w_i 和高斯积分点 $v_i (i = 1, 2, \dots, n)$ 可以通过颗粒动力学算法求得.由此,分数阶矩和更高阶矩也能用 w_i 和 v_i 表示.DQMOM方法在数学上被证明和QMOM方法等价.但是,DQMOM方法无需求特征值和特征向量,关于 w_i 和 $\zeta_i = w_i v_i (i = 1, 2, \dots, n)$ 的方程可以直接求解^[20],

$$\frac{\partial w_i}{\partial t} + \nabla(\bar{v} \cdot w_i) = \nabla \cdot (D_s \nabla w_i) + a_i, \quad (11)$$

$$\frac{\partial \zeta_i}{\partial t} + \nabla(\bar{v} \cdot \zeta_i) = \nabla \cdot (D_s \nabla \zeta_i) + b_i. \quad (12)$$

这里

$$m_0 = \sum w_i,$$

$$m_1 = \sum \zeta_i,$$

$$D_s = \Gamma(1 + \mu_i/\mu_1).$$

其中 Γ 为布朗扩散系数,

$$\Gamma = k_B T C_c / (3\pi\mu_1 d_p).$$

定义 $\alpha = [a_1, \dots, a_n, b_1, \dots, b_n]T$, 则

$$\alpha = A^{-1}(A_3 C + S), \quad (13)$$

$$A_{(6 \times 6)} = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 \\ -v_1^2 & -v_2^2 & -v_3^2 & 2v_1 & 2v_2 & 2v_3 \\ -2v_1^3 & -2v_2^3 & -2v_3^3 & 3v_1^2 & 3v_2^2 & 3v_3^2 \\ -3v_1^4 & -3v_2^4 & -3v_3^4 & 4v_1^3 & 4v_2^3 & 4v_3^3 \\ -4v_1^5 & -4v_2^5 & -4v_3^5 & 5v_1^4 & 5v_2^4 & 5v_3^4 \end{bmatrix}, \quad (14)$$

$$A_{3(6 \times 3)} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 2 & 2 & 2 \\ 6v_1 & 6v_2 & 6v_3 \\ 12v_1^2 & 12v_2^2 & 12v_3^2 \\ 20v_1^3 & 20v_2^3 & 20v_3^3 \end{bmatrix}, \quad (15)$$

$$C = D_s [w_1 (\nabla v_1)^2, \dots, w_n (\nabla v_n)^2]^T, \quad (16)$$

$$S = [S_0, S_1, \dots, S_{2n-1}]^T, \quad (17)$$

下面给出源项 $S_k (k = 0, 1, 2, \dots, n-1)$ 的表达式.

如上所述, S_k 包含了成核、凝并和表面增长效应的影响.一般情况下,颗粒表面增长率为每小时1—20 nm^[28],即颗粒增长的特征时间远大于本文研究的流场的特征时间.因此,本文仅考虑颗粒的成核和凝并,其表达式为

$$S_k^n = J_n v_c^k, \quad (18)$$

$$S_k^c = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n [(v_i^3 + v_j^3)^{k/3} - v_i^k - v_j^k] \beta(v_i, v_j) w_i w_j. \quad (19)$$

这里 J_n 是成核率, $v_c = 4\pi r_c^3/3$ 是成核颗粒的临界体积,其中 r_c 是临界半径.本文中涉及水蒸气-硫酸蒸气二元体系,所以采用Vehkamaki等^[29]的参数化方程计算 J_n 和 r_c

$$J_n = \exp[a + b \ln(\varphi) + c \ln^2(\varphi) + d \ln^3(\varphi) + e \ln(N_a) + f \ln(\varphi) \ln(N_a) + g \ln^2(\varphi) \ln(N_a) + h \ln^2(N_a) + i \ln(\varphi) \ln^2(N_a) + j \ln^3(N_a)], \quad (20)$$

$$r_c = \exp[-1.6525507 + 0.45852848x^* + 0.33483673 \ln(N_{\text{tot}}^*)]. \quad (21)$$

方程(20)和(21)中 $a, b, c, d, e, f, g, h, i$ 和 j 是温度 T 和硫酸摩尔质量 x^* 的函数, φ 是相对湿度, N_a 是硫酸蒸气的总浓度, N_{tot}^* 是临界簇的总分子数,可以用多项式表示. J_n 的单位为 cm^{-3} , r_c 的单位为nm.

在方程(19)中, β_{ij} 表示碰撞函数,根据Knudsen数 Kn 不同, β_{ij} 分为以下三个区域:自由分子区($Kn \gg 1$)、连续介质区($Kn \ll 1$)和过渡区($Kn \approx 1$).Knudsen数 Kn 定义为 $Kn = 2\lambda/d$,其中 λ 是气体分子自由程, d 是颗粒直径.自由分子区和连续介质区的碰撞函数分别为

$$\beta_{\text{fm}} = \left(\frac{3}{4\pi}\right)^{1/6} \left(\frac{6k_B T}{\rho_p}\right)^{1/2} (v_i^{1/3} + v_j^{1/3})^2 \left(\frac{1}{v_i} + \frac{1}{v_j}\right)^{1/2}, \quad (22)$$

$$\beta_c = \frac{2k_B T}{3\mu} (v_i^{1/3} + v_j^{1/3}) \left(\frac{C(v_i)}{v_i^{1/3}} + \frac{C(v_j)}{v_j^{1/3}}\right). \quad (23)$$

这里 k_B 是Boltzmann常数, T 是温度, ρ_p 是颗粒密度, v_i 表示体积积分点, $C(v) = 1 + Kn \{A_1 + A_2 \exp(-A_3/Kn)\}$ 表示滑移修正系数($A_1 = 1.142$, $A_2 = 0.558$, $A_3 = 0.999$).对于过渡区,Upadhyay和Ezekoye^[30]提出用 β_{fm} 和 β_c 插值的方法得到该区的碰撞函数,即 $\beta = \beta_{\text{fm}} \beta_c / (\beta_{\text{fm}} + \beta_c)$.Otto等^[31]则在此基础上提出了更接近实验结果的修正表达式 $\beta = \beta_c F(Kn_D)$,此处 $F(Kn_D) = (1 + Kn_D)/(1 + 2Kn_D +$

$2Kn_0^2$), 根据文献[32], 有 $Kn_0 = \beta_{co}/(2\beta_{im})$.

2.3. 计算方法和计算参数

计算区域如图 1 所示, 含硫酸蒸气和水蒸气的混合气体从宽度 $W = 10 \text{ mm}$ 的狭缝射入到两平板中具有速度为 U_2 、温度为 T_2 的区域. 整个计算区域用结构化交错网格进行离散, 采用通用的 SIMPLE 程序求解 N-S 方程和标量扩散方程(包括组分方程和矩方程). 上下壁面是无滑移无渗透的固壁边界条件, 即速度为零、温度恒定、硫酸蒸气浓度为零、颗粒的各阶矩为零; 右边界则是压力出口边界条件; 其他标量满足局部守恒条件. 为了得到不依赖网格尺度的结果, 在正式计算前进行了大量的适应性计算.

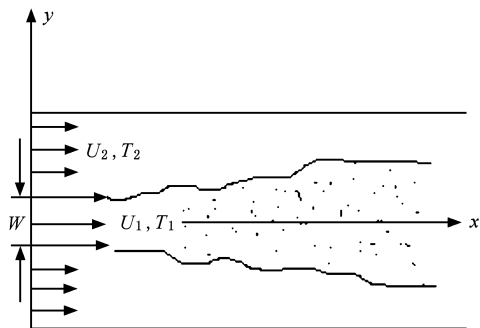


图 1 计算区域示意图

计算流场时, 射流出口基本流动和小扰动的速度表达式为

$$U = \begin{cases} \frac{U_1 + U_2}{2} - \frac{U_1 - U_2}{2} \tanh\left(\frac{y - 0.5W}{2\delta_m}\right) & (y > 0) \\ \frac{U_1 + U_2}{2} + \frac{U_1 - U_2}{2} \tanh\left(\frac{y + 0.5W}{2\delta_m}\right) & (y < 0) \end{cases} \quad (24)$$

$$u' = a_1 [u_{i1}(y) \exp(i\omega_1 t) + \text{c. c.}], \quad (25)$$

式中 y 表示出口截面上的纵坐标, δ_m 是射流边缘混合层动量厚度, a_1 和 ω_1 分别是小扰动的模和最不稳定扰动的频率, 文中 $a_1 = 0.3\%$ 和 $\omega_1 = 0.033$, $u_{i1}(y)$ 是 ω_1 对应的速度模态, c. c. 是 $u_{i1}(y)$ 的复共轭.

当计算进行到时间步 n 时, 上一个时间步 $n-1$ 的 w_i 和 v_i 为已知, 确定成核率 J_n 、临界体积 v_c 和碰撞函数 β 后, S_k^n 和 S_k^c 的值即可求得. 源项 α 即方程(11)和(12)中的 a_i 和 b_i , 可以通过方程(13)求得. 把上面这些量值代入方程(11)和(12)就可以得到

当前时间步 n 的 w_i 和 v_i 值, 以上步骤循环进行直到计算结束.

流动介质是相对湿度 $\varphi = 70\%$ 的湿空气, 其运动黏度 $\nu = 1.46 \times 10^{-5}$, 密度 $\rho = 1.225 \text{ kg/m}^3$. 含硫酸蒸气和水蒸气的湿空气 ($T_1 = 340 \text{ K}$, $U_1 = 10.56 \text{ m/s}$, 入口硫酸蒸气质量分数 $C_{a0} = 5 \times 10^{-6}$) 从宽度 $W = 10 \text{ mm}$ 的狭缝射出后, 通过成核作用生成纳米小颗粒或者小液滴. 狭缝上下分别有温度为 $T_2 = 300 \text{ K}$ 、速度为 $U_2 = 0.96 \text{ m/s}$ 的气体运动. 为了与实验数据^[33,34]进行对比, 本文算例中取 $Re = 8300$, 整个计算区域为 $100W \times 121W$.

3. 结果和讨论

3.1. 流场计算结果验证

为了验证流场模型和程序的正确性, 将计算得到的射流场混合层动量厚度与同样条件下的实验结果^[32]进行比较, 结果如图 2 所示, 其中射流场混合层动量厚度的定义为

$$\delta_m = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{(U_1 - u_x)(u_x - U_2)}{(U_1 - U_2)^2} dy. \quad (26)$$

图 2 中的 δ_m^* 和 x^* 是分别用初始动量厚度和初始射流宽度无量纲化后的动量厚度和射流宽度, 由图 2 可见数值计算结果和实验数据基本一致.

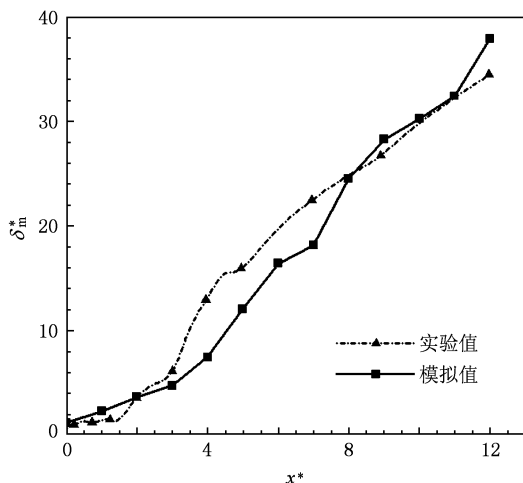


图 2 射流场混合层动量厚度的计算结果和实验结果对比

3.2. 组分浓度场的分布

颗粒成核依赖于流场的温度、硫酸蒸气的浓度

和环境的相对湿度^[35]. 本文计算中环境湿度保持不变, 因此成核作用只与前两个因素有关. 图 3 给出了无量纲时间 $t^* = 5500$ ($t^* = t\Delta U/W$) 时流场温度随空间变化的分布. 图 4 给出了同一时刻硫酸蒸气的相对质量分数 C_a^* (初始参考值为 1.0). 由图 3 和图 4 可见, 温度和硫酸蒸气浓度的分布十分相似, 与拟序结构的空分布也相符, 说明流场的拟序结构对流场温度和硫酸蒸气浓度的分布起了很大作用. 由温度和浓度的分布可知, 温度和组分浓度在射流中心处较高, 并向两侧逐渐扩散降低. 在射流出口处, 不管是温度还是硫酸蒸气浓度均为最高, 而后沿 x

方向逐渐降低. 在上游区域, 温度和硫酸蒸气浓度的分布关于中心线对称, 随后逐渐发展为不对称状态. 与温度分布相比, 沿 x 方向的硫酸蒸气浓度下降更快, 这是因为硫酸蒸气在随空气运动时, 会有一部分转化为纳米颗粒, 这在方程中实际是一个持续不断作用的负源项, 从而导致硫酸蒸气浓度下降得更快. 流场对硫酸蒸气浓度的变化有以下两方面: 一是流场输运本身, 它直接导致硫酸蒸气浓度分布的变化; 二是流场输运加速了温度的扩散, 扩大了低温区域, 导致成核作用的加强, 使硫酸蒸气浓度减小.

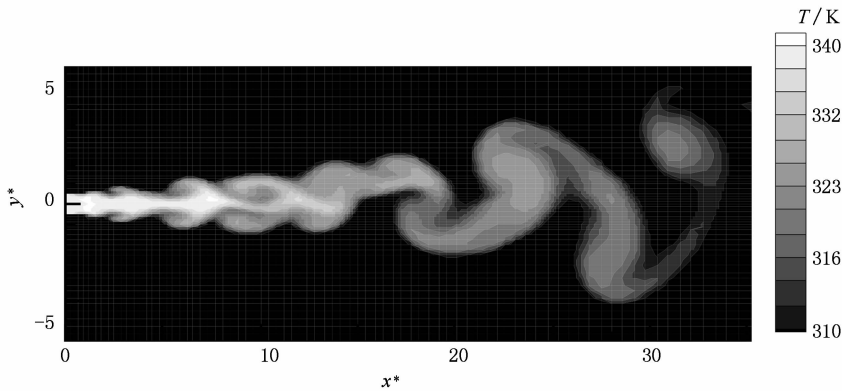


图 3 温度场瞬时分布 ($t^* = 5500$)

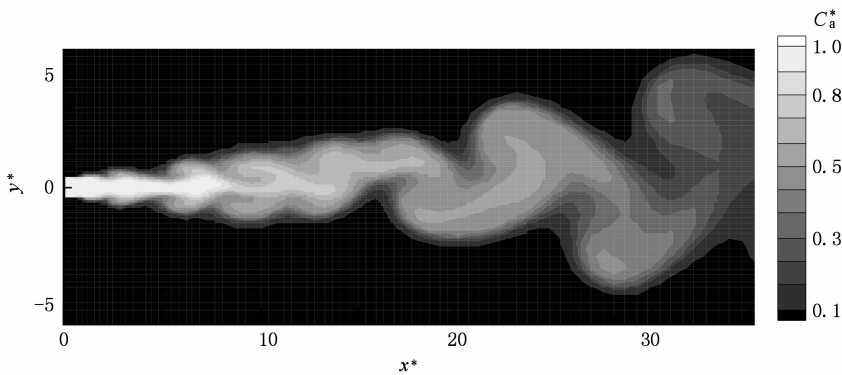
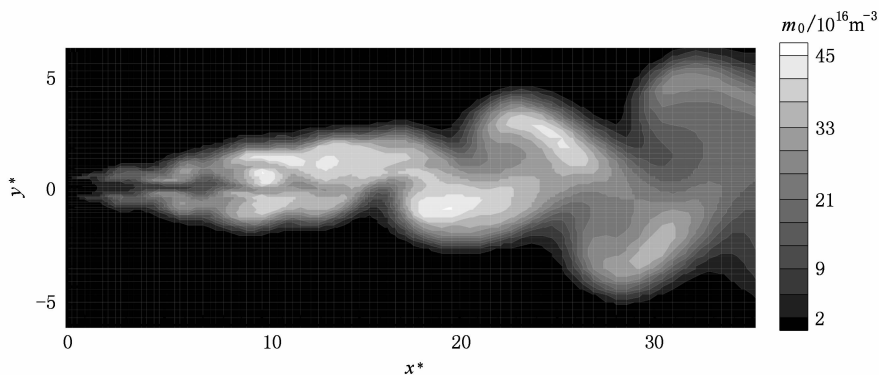
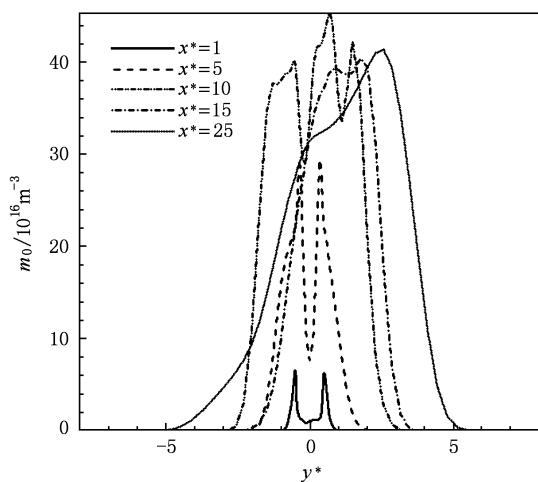


图 4 硫酸蒸气瞬时浓度分布 ($t^* = 5500$)

3.3. 颗粒数密度的分布

图 5 给出了颗粒数密度 m_0 的分布情况, 图 6 则是沿 x 方向不同截面处颗粒数密度 m_0 沿 y 方向的分布曲线, $y^* = y/W$ 表示纵坐标的无量纲形式. 由此可见, m_0 在射流出口处为零而在区域出口处却较大, m_0 的分布和温度以及组分浓度的分布相似. 在

y 方向上, m_0 在射流中心处较小, 而在射流两侧较大. 随着流动失稳, 拟序结构开始失去对称性并卷起, 在此过程中拟序结构的中心是颗粒数密度较高的地方, 这也与前面硫酸浓度的分布结果一致. 在涡核中心, 更多的硫酸蒸气通过成核作用生成纳米颗粒, 这一现象可以从图 6 更明显地观察到. 在截面 $x^* = 1$ 处, 温度在中心处较高而在射流两侧较低, 整

图5 颗粒数密度分布($t^* = 5500$)图6 颗粒数密度沿 y 方向的分布($t^* = 5500$)

个分布呈现两端各有一峰值而中心保持一明显谷底的特征,这是由于两侧的低温促进成核作用生成更多的颗粒,导致 m_0 迅速增加,而中间高温区则只生成了较少的颗粒,于是 m_0 保持在较低的水平. 在截面 $x^* = 5$ 处, m_0 依然保持与截面 $x^* = 1$ 类似的分布,区别在于截面 $x^* = 5$ 处 m_0 的值迅速增大. 在截面 $x^* = 10$ 处, m_0 的分布除了两侧的波峰之外,在中心处出现了第三个波峰,这是由于流动失稳使得流场不再对称,当中心的硫酸蒸气接触低温气体后,迅速转化为颗粒,从而增加了 m_0 的局部浓度. 在截面 $x^* = 15$ 和 $x^* = 25$ 处,涡配对开始出现,这使得 m_0 的分布不对称于中线. 此外,该处 m_0 的峰值没有增加,说明流动已达到稳定状态,不同尺寸颗粒间的凝并不再发生. 然而,需要指出的是,凝并作用贯穿流动的始终,但是仅从颗粒数密度 m_0 的分布并不能准确分析其作用过程,因此需要研究其他变量的分布情况.

3.4. 颗粒体积密度的分布

方程(10)的源项 S_k 由互相独立的两部分组成,即 $S_k = S_k^c + S_k^n$. 单独研究方程(19)中的凝并源项 S_k^c ,可以得到 $S_0^c < 0, S_1^c = 0$ 或 $S_2^c > 0$,其物理意义如下:纳米颗粒的凝并使颗粒数密度 m_0 减小,多分散性变量 m_2 增加. 由于凝并作用对颗粒的体积密度没有任何影响,因此除了输运作用之外,纳米颗粒的体积密度 m_1 仅仅受颗粒成核作用的影响.

图7给出了颗粒体积密度 m_1 的分布. 由图7可见, m_1 的分布基本上与拟序结构的轮廓一致,这说明 m_1 受到流场拟序结构的强烈影响. 沿 x 方向 m_1 呈现不断增大的趋势,其最小值出现在射流的出口,最大值出现在截面 $x^* = 30$ 附近. 沿 y 方向 m_1 在射流中心处较小,在射流两侧较大. 这说明成核作用贯穿整个流动过程,且受到温度的强烈影响. 在射流两侧,高温和低温流体相互接触和作用,导致成核作用非常强烈,生成了更多的纳米颗粒,即 m_1 较大,而在射流中心处温度较高,成核作用较弱, m_1 则相对较低. 当射流产生明显的拟序结构时,颗粒的体积密度分布明显受到拟序结构的影响,呈现出在拟序结构中心处高、边缘处低的特性,这一方面是由于在拟序结构发生处温度较低(见图2),成核作用更容易发生,另一方面是拟序结构会将周围的硫酸蒸气卷吸到结构中心,从而生成更多的纳米颗粒.

图8给出了沿 x 方向的不同截面上 m_1 沿 y 方向的分布曲线. 在截面 $x^* = 1, 5, 10, 15, 25$ 处,各条曲线的峰值分别为 3.1, 16.7, 45, 64, 89,显然 m_1 的峰值沿 x 方向不断增大. 在截面 $x^* = 1, 5$ 处,峰值沿中心线基本呈对称分布,这是由于这两处的布朗扩

散和湍流扩散较弱, m_1 主要由成核作用的积累而引起. 在截面 $x^* = 10$ 处, 峰值已经呈现明显不对称,

在截面 $x^* = 15, 25$ 处都只有一个峰值, 这是由拟序结构的演化所致.

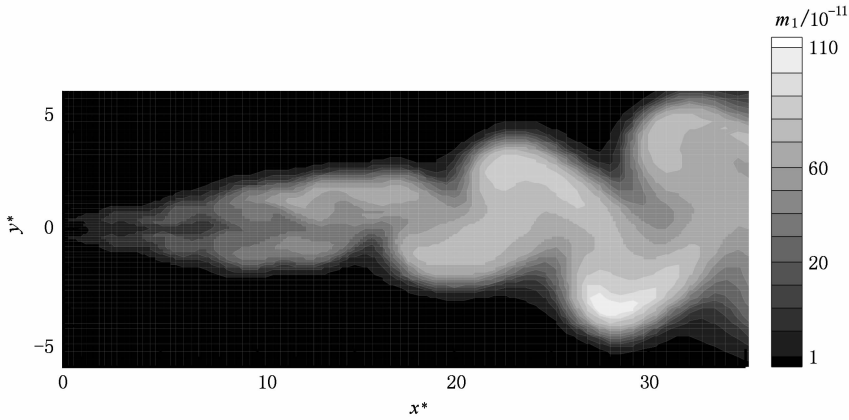


图7 颗粒体积密度分布 ($t^* = 5500$)

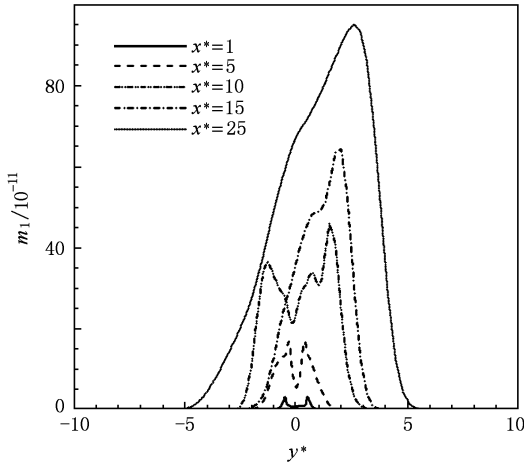


图8 颗粒体积密度沿 y 方向的分布 ($t^* = 5500$)

3.5. 颗粒平均粒径的分布

颗粒的平均粒径定义为 $d_{\text{ave}} = (6m_1/(\pi m_0))^{1/3}$.

颗粒凝并作用会导致当地的颗粒平均粒径增加. 图9和图10分别给出了颗粒平均粒径 d_{ave} 在流场的分布和不同 x 方向位置处颗粒平均粒径沿 y 方向的分布曲线. 由图9可见, d_{ave} 沿 x 方向呈不断增大的趋势, 且在流动上游基本呈对称状态. 在截面 $x^* = 15$ 之后, 由于受拟序结构的影响, 对称分布消失. 从图9还可以看出, 在拟序结构内部, d_{ave} 比同一截面上的其他位置大. 而从图10可以看出, 在截面 $x^* = 1$ 处, d_{ave} 和速度具有相似分布. 在截面 $x^* = 5$ 处, d_{ave} 在射流中心处较高, 而在射流两侧较低, 并保持对称分布, 但分布范围比截面 $x^* = 1$ 处更广. 在截面 $x^* = 10, 15, 25$ 处, 颗粒的粒径分布出现明显的波动, 其值呈现中间低、两侧高的分布特征.

颗粒平均粒径的分布特征说明颗粒凝并作用受流场拟序结构的强烈影响. 由于拟序结构的卷吸作用, 周围的颗粒将被卷吸到结构中心, 增加了颗粒的局部数密度, 从而增大了颗粒碰撞的概率, 使

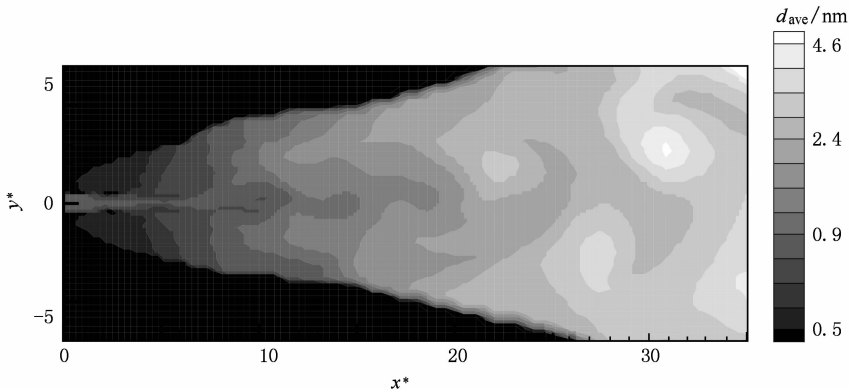


图9 颗粒平均粒径分布 ($t^* = 5500$)

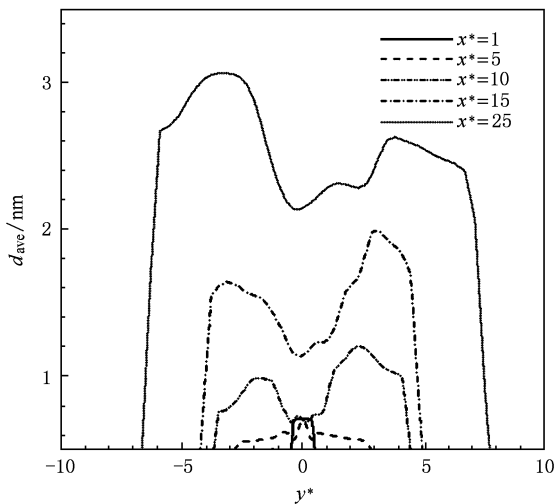


图 10 颗粒平均粒径沿 y 方向的分布 ($t^* = 5500$)

凝并作用更强烈,因此平均粒径要比同一截面其他位置大.随着流动发展,越来越多的颗粒会凝并成大颗粒,平均粒径也不断增大.

4. 结 论

本文利用 LES 和 DQMOM 方法,模拟了 $Re = 8300$ 的平面射流场拟序结构对纳米颗粒成核和凝并的影响.详细研究了水蒸气(相对湿度 $\varphi = 70\%$)

和硫酸蒸气(质量分数为 5×10^{-6})的二元体系中,硫酸蒸气浓度、颗粒数密度、颗粒体积密度以及颗粒平均粒径的演变.结果表明,纳米颗粒的数密度分布、体积密度分布和平均粒径分布与流场拟序结构密切相关.在射流中心线附近,温度和硫酸浓度较高,且沿 x 方向变化缓慢,但沿 y 方向变化剧烈.在拟序结构中心处,颗粒成核作用更容易发生,更多的硫酸蒸气成核生成纳米颗粒.颗粒的数密度沿 x 方向中心线呈不对称分布,沿 x 方向增加的同时,也会沿 y 方向扩散.拟序结构中心的颗粒数密度明显高于其他区域.成核作用持续生成新颗粒,同时降低硫酸蒸气浓度.颗粒体积密度在拟序结构中心较高,原因是拟序结构卷吸硫酸蒸气和低温空气,导致结构中心区域的成核作用更加强烈.颗粒平均粒径沿 x 方向逐渐增加,沿 y 方向分布则受拟序结构的强烈影响,其最大值出现在结构中心处,原因是结构中心处较高的颗粒数密度导致颗粒碰撞概率增加,最终使小颗粒通过凝并作用生成了较大颗粒,颗粒平均粒径也随之增加.本文的研究结果对于了解拟序结构对水蒸气和硫酸蒸气二元体系纳米颗粒成核和凝并的影响,从而掌握平面射流中纳米颗粒的数密度、体积密度和平均粒径的分布规律具有重要的意义.

[1] Penttinen P, Timonen K L, Tiittanen P, Mirme A, Ruuskanen J, Pekkanen L 2001 *Environ. Health Perspect.* **109** 319

[2] Meng L J, Zhang K W, Zhong J X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1009 (in Chinese) [孟利军、张凯旺、钟建新 2007 物理学报 **56** 1009]

[3] Li J, Liu W L, Meng L J, Zhang K W, Zhong J X 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 382 (in Chinese) [李俊、刘文亮、孟利军、张凯旺、钟建新 2008 物理学报 **57** 382]

[4] Friedlander S K 2000 *Smoke, Dust, and Haze: Fundamentals of Aerosol Dynamics* (Oxford: Oxford University Press)

[5] Talukdar S S, Swihart M T 2004 *J. Aerosol Sci.* **35** 889

[6] Wang L, Marchisio D L, Vigil R D, Fox R O 2005 *J. Colloid Interf. Sci.* **282** 380

[7] Liu S, Lin J Z 2008 *J. Hydrodyn.* **20** 1

[8] Lemmetty M, Ronkko T, Virtanen A, Keskinen J, Pirjola L 2008 *Aerosol Sci. Technol.* **42** 916

[9] Miller S E, Garrick S C 2004 *Aerosol Sci. Technol.* **38** 79

[10] Lin J Z, Chan T L, Liu S, Zhou K, Zhou Y, Lee S C 2007 *Int. J. Nonlin. Sci. Num.* **81** 45

[11] Yu M Z, Lin J Z, Chen L H 2007 *J. Appl. Math. Mech.* **28** 1445

[12] Yu M Z, Lin J Z, Chen L H 2006 *Acta Mech. Sin.* **22** 29

[13] Yin Z Q, Lin J Z, Zhou K, Chan T L 2007 *Int. J. Nonlin. Sci. Num.* **81** 535

[14] Yu M Z, Lin J Z, Xiong H B 2007 *Chin. J. Chem. Eng.* **15** 828

[15] Yu M Z, Lin J Z, Chan T L 2008 *Powder Technol.* **181** 9

[16] Yin Z Q, Lin J Z, Zhou K 2008 *J. Appl. Math. Mech.* **29** 153

[17] Yu M Z, Lin J Z, Chan T L 2008 *Chem. Eng. Sci.* **63** 2317

[18] Feng Y, Lin J Z 2008 *Chin. Phys.* **17** 4547

[19] Lin J Z, Shi X, Yu Z S 2003 *Int. J. Multiphase Flow* **29** 1355

[20] Smagorinsky J 1963 *Month. Wea. Rev.* **91** 99

[21] Fox R O 2003 *Computational Models for Turbulent Reacting Flow* (Oxford: Oxford University Press)

[22] Marchisio D L, Fox R O 2005 *J. Aerosol Sci.* **36** 43

[23] Vanni M 2000 *J. Colloid Interf. Sci.* **221** 143

[24] Diemer R B, Olson J H 2002 *Chem. Eng. Sci.* **57** 2211

[25] Park S H, Lee K W, Otto E, Fissan H 1999 *J. Aerosol Sci.* **30**

- [26] Otto E, Fissan H 1999 *Adv. Powder Technol.* **10** 1
Sci. **30** 17
- [27] McGraw R, Nemesure S, Schwartz S E 1998 *J. Aerosol Sci.* **29** 761
 [32] Pratsinis S E, Kim K S 1989 *J. Aerosol Sci.* **20** 101
- [28] Holmes N S 2007 *Atmos. Environ.* **41** 2183
 [33] Le Ribault C, Sarkar S, Stanley S A 1999 *Phys. Fluids* **11** 3069
- [29] Vehkamäki H, Kulmala M, Lehtinen K E J, Noppel M 2003 *Environ. Sci. Technol.* **37** 3392
 [34] Thomas F O, Chu H C 1989 *Phys. Fluids* **1** 1566
- [30] Upadhyay R R, Ezekoye O A 2006 *J. Aerosol Sci.* **37** 799
 [35] Vehkamäki H, Kulmala M, Napari I, Lehtinen K E J, Timmreck C, Noppel M, Laaksonen A 2002 *J. Geophys. Res.* **107** 4622
- [31] Otto E, Fissan H, Park S H, Lee K W, Otto E 1999 *J. Aerosol*

Nucleation and coagulation of nanoparticles in a planar jet*

Liu Yan-Hua^{1)†} Gan Fu-Jun¹⁾ Zhang Kai²⁾

¹⁾ (Department of Mechanics, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China)

²⁾ (School of Aerospace, Royal Melbourne Institute of Technology, Melbourne 3083, Australia)

(Received 28 July 2009; revised manuscript received 6 November 2009)

Abstract

The nucleation and coagulation of nanoparticles in the binary system of water vapor (relative humidity 70%) and sulfuric acid vapor (5×10^{-6}) were detailedly studied by performing numerical simulation in a planar jet ($Re = 8300$). The large eddy simulation was utilized to calculate the flow field, and the particle field is obtained by using the direct quadrature method of moment to solve the particle general dynamic equation. The distributions of particle number concentration, volume concentration and average diameter were discussed. The result shows that the growth of the calculated momentum thickness is consistent with the previous experimental data. The interface of the jet will roll up and generate the coherent vortices which will lead to an obvious decrease of the specie concentration of sulfuric acid vapor and increase of number concentration of nanoparticles in the vortex core. The appearance of the coherent vortices increases the possibility of particle collision and enhances the particle coagulation. The nanoparticle nucleation is enhanced in the vortex core where high particle number concentration will accelerate the particle coagulation.

Keywords: nanoparticles, nucleation, coagulation, planar jet

PACC: 4755K, 9260M, 9265V

* Project supported by the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10802083).

† E-mail: liuyanhua@zju.edu.cn