

聲波引致懸浮微粒聚結的理論研究及數值計算(1/2)

Theoretical and numerical study of acoustic coagulation of suspended particles

計畫編號：NSC 90-2212-E-002-199

執行期限：90 年 8 月 1 日至 91 年 7 月 31 日

主持人：李雨 研究生：黃國榮 執行機構及單位：國立臺灣大學應用力學研究所

一、中文摘要

本計劃以數值計算方法研究二相懸浮流中的微粒聚結問題，本文完成之工作有三：(1) 以正動力作用(orthokinetic interaction)模式進行聲波聚結的數值模擬，並與多項前人實驗作詳細的比較驗證，結果顯示我們需要採用甚低的碰撞效率係數(約 0.2 – 0.4, 視不同條件參數而定)方可使數值計算與實驗結果相吻合。(2) 就次微米微粒，我們比較了布朗聚結與聲波聚結的效率，前者隨著粒徑之下降而上升，後者則反之，就一般條件下的數值模擬結果而言，50 奈米以上的微粒也可採用聲波效應加速聚結。(3) 就正動力作用模式、流力作用(hydrodynamic interaction)模式，及綜合二者的聲波尾跡(acoustic wake)模式，本文均進行了聲波聚結的數值模擬，結果顯示隨正動力作用模式外，其餘模式均不能維持質量守恆。上述(1)及(3)兩項顯示目前的碰撞頻率函數理論模式並不完善，且數值方法亦有進一步研究的必要，而是下年度主要的研究工作。

關鍵詞：微粒聚結，次微米微粒，聲波，布朗擴散，質量守恆

Abstract

This project studies numerically the coagulation of small particles in a two-phase suspension flow. Three topics have been completed in the present project. (1) We have validated our calculations by comparing with different previous experiments using the orthokinetic interaction model for the collision frequency function. It is found that a relative low value of collision efficiency factor (about 0.2 – 0.4,

depending on different parameters) is required for a correct numerical prediction. (2) For the coagulation of sub-micron particles, we have studied in details the relative importance of the Brownian coagulation and the acoustic coagulation. The effect of the Brownian coagulation increases as the size of the particle increases, but is opposite for the acoustic coagulation. For general cases, it is found that the acoustic effect can aid the coagulation when the diameter of the particle exceeds 50 nm. (3) We have carried out simulation of acoustic coagulation using the orthokinetic interaction model, the hydrodynamic interaction model, and the acoustic wake model (a combination of orthokinetic and hydrodynamic model). It is found that only the simulation with orthokinetic interaction model can preserve the mass of particles during the calculation. The items (1) and (3) stated above indicate that both the theory of the collision frequency function and the numerical method require further investigation, and will be studied in the second year.

Keywords : coagulation of small particles, sub-micron particles, sound wave, Brownian diffusion, mass conservation

二、緣由與目的

在環境保護及工業應用上，常需在流體中移除微米及次微米微粒。但此等微粒因體積細小，慣性效應不彰；而其中 0.1-1 μm 範圍的較大微粒，擴散機制也相對薄弱，因此要在流體中移除微米及次微米微粒實有先天上的困難。在眾多前人所提出的方法中，有一項有趣而有效的方法，乃是利用聲波在二相懸浮流中傳播，引致微

粒聚結成較大顆微粒，再用傳統方法將聚結後的大顆微粒移除。早期相關回顧性文獻可參考 Mednikov (1965)；近日者則可參考 Hoffmann (1993)及黃家增(2000)。

要使微粒聚結，首要使微粒發生碰撞，音波即為提供兩微粒間碰撞所需的相對速度，其他機制如布朗擴散也可提供兩微粒間的相對速度。至於兩類不同大小的微粒間的碰撞機率則與碰撞頻率函數有關，一般而言，碰撞頻率函數與微粒間的相對速度成正比，其表示式須由微粒週遭局部的詳細流體力學來決定。如單一微粒在音波中的速度可用來估算懸浮流中微粒的速度，則所獲者稱為正動力作用(orthokinetic interaction)下的碰撞頻率函數；如相鄰微粒對待求微粒的週遭音波流場造成干擾，則所獲微粒速度將與單一微粒在音波中的速度不同，而因此所算出者稱為流力作用(hydrodynamic interaction)下的碰撞頻率函數；近日 Hoffmann(1997)採用微粒再填充觀念，綜合上述兩機制，提出一項稱為音波尾跡模式(acoustic wake model)的碰撞頻率函數表示式。稍早 Temkin (1994)在只考慮正動力作用下對微粒聚結現象作了詳細的數值模擬；黃家增(2000)沿用 Temkin 的方法，作了包含流力作用及不同始起條件的多項數值模擬(見 Lei and Huang (2000))。另 Ezekoye and Wibowo (1999)採用了 Song et al. (1994)的模式(正動力作用與流力作用的線性組合)，進行了數值模擬，並與多項前人實驗結果相互比對，二者間有不少的誤差。本研究延續 Lei and Huang (2000)的工作，對聲波聚結數值模擬及聲波聚結與布朗聚結的相對效應作較深入的研究。

三、物理模式與數值計算

本研究的相關理論推導及數值計算方法的詳細情形可參考黃國榮(2002)。其中理論部份可分兩部份來說明，一為描述空間中微粒顆數濃度隨時間演變的聚結方程式，另一則為碰撞頻率函數。令 n_v 為體積為 v 的微粒數目濃度，聚結方程式為(見 Friedlander, 1977)

$$\frac{dn_v}{dt} = \frac{1}{2} \int_0^v K(v-w, w) n_{v-w} n_w dw - n_v \int_0^\infty K(v, w) n_w dw \quad (1)$$

其中 t 為時間， $K(u, w)$ 代表體積為 v 的微粒和體積為 w 的微粒的碰撞頻率函數， $K(v-w, w)$ 代表體積為 v 以外的懸浮微粒和其他“適當”體積的微粒碰撞、而產生體積為 v 的懸浮微粒的碰撞頻率函數。碰撞頻率函數方面，視不同機制有不同的表示式。就布朗擴散效應所引致的聚結問題，

$$K(v, w) \equiv K_{BR} = \frac{2kT}{3\mu} (v^{1/3} + w^{1/3}) \left(\frac{1}{v^{1/3}} + \frac{1}{w^{1/3}} \right) C_m \quad (2)$$

其中

$$C_m = \frac{1 + 2A_1 C \left(\frac{1}{v^{2/3}} + \frac{1}{w^{2/3}} \right) + C \frac{2A_2}{v^{2/3}} \exp\left(\frac{-A_3 v^{1/3}}{Cl}\right) + C \frac{2A_2}{w^{2/3}} \exp\left(\frac{-A_3 w^{1/3}}{Cl}\right)}{\left(\frac{1}{v^{1/3}} + \frac{1}{w^{1/3}} \right)}$$

為考慮氣體稀薄效應的因子， $C = (\pi/6)^{1/3}$ ， l 為氣體的分子自由徑， $A_1 = 1.257$ ， $A_2 = 0.4$ 及 $A_3 = 0.55$ 為經驗常數(見 Friedlander, 1977)， T 為絕對溫度， $k = 1.381 \times 10^{-20} \text{ kg} \cdot \text{m}^2 / (\text{s}^2 \cdot \text{K})$ 為波士曼常數， μ 為氣體黏滯係數。在聲波聚結方面本文考慮三種模式，正動力作用模式、流力作用模式及聲波尾跡模式，茲分述如下。(1) 正動力作用模式：Temkin (1994) 作了週詳的回顧，並建議採用

$$K(v, w) \equiv K_{OK}(v, w) = E_{ok} \pi (r_v + r_w)^2 u_{vw} = 2(r_v + r_w)^2 E_{ok} \frac{U_0 \omega |\tau_v - \tau_w|}{\sqrt{1 + (\omega \tau_v)^2} \sqrt{1 + (\omega \tau_w)^2}} \quad (3)$$

其中 r_v 及 r_w 分別為體積為 v 及 w 微粒的半徑， τ_v 及 τ_w 分別為體積為 v 及 w 微粒的鬆馳時間(relaxation time)， U_0 及 ω 分別為聲波的速度振幅和角頻率， E_{ok} 為碰撞效率係數，在史篤氏阻力的條件下，鬆馳時間 $\tau_p = 2\rho_p r_p^2 / (9\rho_g \eta)$ ，下標 p 可代表(3)式中的 v 或 w ， η 為載運流體的運動黏滯係數， ρ_p 及 ρ_g 分別為微粒及流體的密度。(2) 流力作用模式：目前文獻大都採用 Dianov et al. (1968)的分析，可表示為

$$K(v, w) \equiv K_{HI}(v, w) = E_{hi} \pi (r_v + r_w)^2 Q \quad (4)$$

其中 E_{hi} 為流力作用下的碰撞效率參數，

$$Q = \frac{3U_0}{2\pi d} \left[r_v l_v + r_w l_w + \frac{U_0}{\pi\eta} (r_v^2 l_v^2 + r_w^2 l_w^2) \right] - \frac{6\nu}{\pi^2 d^2} (r_v + r_w) - \frac{9U_0}{16\pi d^2} (r_v^2 l_v + r_w^2 l_w) + \frac{3U_0^2}{8d^2 \omega} l_v l_w (l_v q_w - l_w q_v) (r_v - r_w) \quad (4a)$$

$$l_p = \frac{\mu_g}{1 + h_p \mu_g^2}, \quad q_p = \frac{\mu_p + h_p \mu_g^2}{1 + h_p \mu_g^2},$$

$$h_p = \frac{9\rho_g U_0}{2\pi\rho_p \omega r_p} = \frac{R_p}{\pi\omega\tau_p}, \quad R_p = \frac{U_0 r_p}{\eta}$$

$$\mu_p = \frac{1}{\sqrt{1 + \omega^2 \tau_p^2}}, \quad \mu_g = \frac{\omega\tau_p}{\sqrt{1 + \omega^2 \tau_p^2}}$$

及 d 為兩微粒間的距離，在本文中取 $d = N^{-1/3}$ ，其中 N 為微粒的瞬時總顆數濃度。上述各式中下標 p 可代表(4)及(4a)式中的下標 v 或 w 。(3)聲波尾跡模式：Hoffmann(1997)綜合正動力作用及流力作用機制，提出

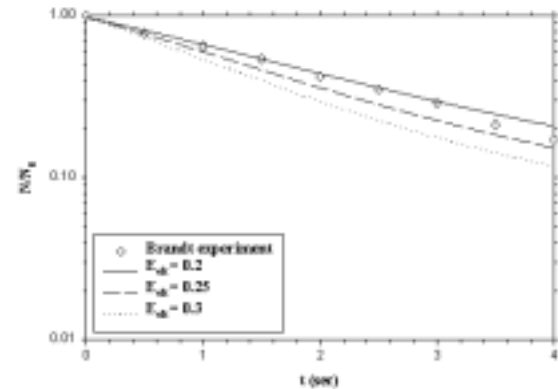
$$K(v, w) \equiv K_{HO} = K_{ok} E_{ho} \left(\sqrt{1 + \frac{12U_0(r_v l_v + r_w l_w) T_c}{\pi L^2}} - 1 \right) \quad (5)$$

其中 E_{ho} 為本模式的碰撞效率係數， T_c 為聲波週期， L 為聚結體積的長度，定義為兩倍微粒 v 和微粒 w 間相對速率(按正動力作用)和 T_c 的乘積。

本研究在考慮不同的聚結機制時，將用不同的表示式((2)、(3)、(4)或(5)式)代入(1)式進行數值求解；另如同時考慮兩種機制，以正動力作用及流力作用為例，我們可設(1)式中的 $K = K_{OK} + K_{HI}$ 。(1)式所示的微-積分方程式並無分析解，本研究中我們基本上採 Temkin(1994)的方法進行計算，但在計算過程中加入了適當的判斷條件，並不對尚未聚結出的微粒種類進行計算，因而大幅節省了計算時間。在分析過程中，首先我們將(1)式無因次化，再將無因次方程式的積分項離散化，也就是將(1)式所示的連續微粒顆數濃度分佈改採離散形式分佈，最後可得一組非線性常微分聯立方程式組，在給定始起狀態的微粒濃度分佈下，我們採用四階朗次-庫他(Runge-Kutta)算則進行求解。

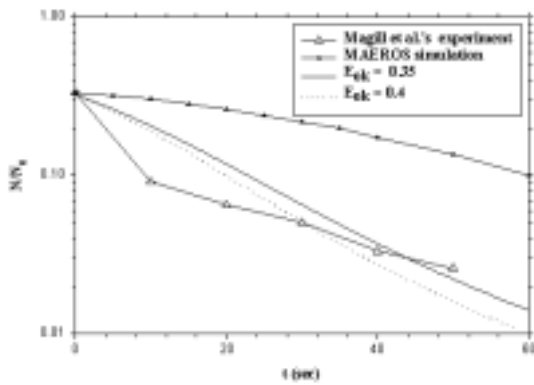
四、結果與討論

在本文的計算中，初始懸浮微粒均採對數常態分佈，其總顆數濃度 N_0 ，幾何算術平均體積 V_g ，標準差 σ 。首先我們在只考慮正動力作用的情況下，就聲波聚結問題，與三項前人實驗結果進行相互驗證。我們對不同最小粒徑 d_1 ，不同誤差參數，不同聲波強度 I ，不同聲波頻率 f ，不同碰撞效率係數 E_{ok} 及不同初始參數 N_0 、 V_g 和 σ 進行多項計算，其中部份結果以無因次總顆數濃度 N/N_0 隨時間的演變表示於圖一至三中。圖一中我們將計算結果與 Brandt et al. (1936)的實驗作比較，結果顯示我們要選甚低的碰撞效率係數方可使計算與實驗結果相吻合，在此 $I = 138dB$ 的例子中， $E_{ok} = 0.2$ ；如我們將 I 值增加(見黃國榮，2002)， E_{ok} 值須略予降低，方可使模擬初期獲致更吻合的結果。事實上，我們如改變其他參數，要使計算與實驗結果相吻合，須調整不同的 E_{ok} 值。如圖二中，我們將計算所得與 Magill et al. (1991)的實驗作比較，結果顯示我們需要選 $E_{ok} = 0.4$ 方可使計算與實大致相符；此項結果雖屬差強人意，但還是優於 Ezekoye & Wibowo (1999) 的計算(見圖二中的 MAEROS simulation)。在圖三中，我們與 Caperan et al. (1993)的實驗作比較，該實驗的微粒遠

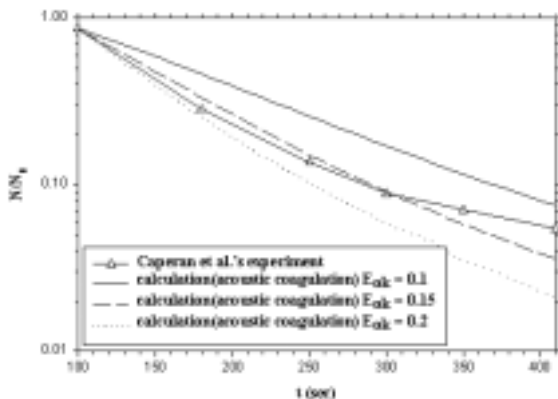


圖一： $N_0 = 4.64 \times 10^{12}$ 顆/ m^3 ， $d_1 = 0.766 \mu m$ ， $V_g = 3.59 \times 10^{-18} m^3$ ， $\sigma = 1.2$ ， $I = 138dB$ ， $f = 10KHz$ ， $\varepsilon = 10^{-4}$ 及不同 E_{ok} 下， N/N_0 隨時間的演變。

小於圖一及二者，圖三顯示 $E_{ok} = 0.15$ 的計算結果較與實驗相符。雖然我們進行了更多的模擬，但因參數眾多，我們並不能歸納出 E_{ok} 隨各參數變化的關係；事實上因為碰撞頻率函數的物理模式並不完善，正動力作用模式有其先天性的缺失，就是相同大小的微粒並不會聚結(此點與實驗並不相符，見 Hoffmann, 1993；因而有必要一併考慮流力作用來進行計算，見 Lei & Huang, 2000)，因此在純正動力作用下找尋 E_{ok} 隨各參數變化的關係並無太大意義。圖一至三的主要目的在於確定我們可透過對聚合方程式(1)進行數值模擬來了解微粒聚結並驗證電腦程式；而更合理且週延



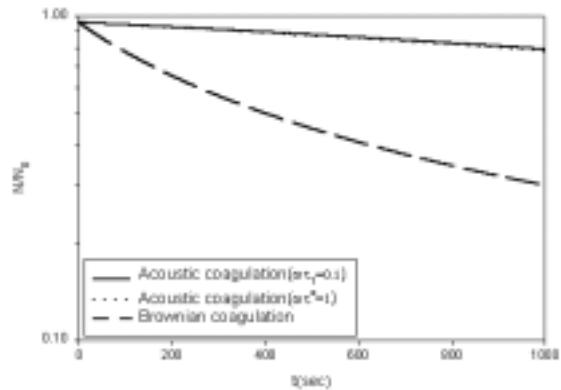
圖二： $N_0 = 3.3 \times 10^{11} \text{顆}/\text{m}^3$ ， $d_1 = 0.323 \mu\text{m}$ ， $V_g = 2.68 \times 10^{-19} \text{m}^3$ ， $\sigma = 1.35$ ， $I = 155 \text{dB}$ ， $f = 9.4 \text{KHz}$ ， $\epsilon = 10^{-4}$ 及不同 E_{ok} 下， N/N_0 隨時間的演變。



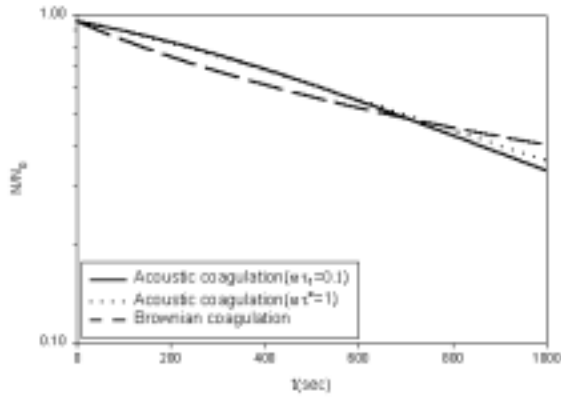
圖三： $N_0 = 8 \times 10^{12} \text{顆}/\text{m}^3$ ， $d_1 = 0.0242 \mu\text{m}$ ， $V_g = 1.13 \times 10^{-22} \text{m}^3$ ， $\sigma = 1.35$ ， $I = 145 \text{dB}$ ， $f = 21 \text{KHz}$ ， $\epsilon = 10^{-4}$ 及不同 E_{ok} 下， N/N_0 隨時間的演變。

的碰撞頻率函數物理模式尚有待研究，待日後開發出新的物理模式，即可代入我們的電腦程式進行數值模擬。

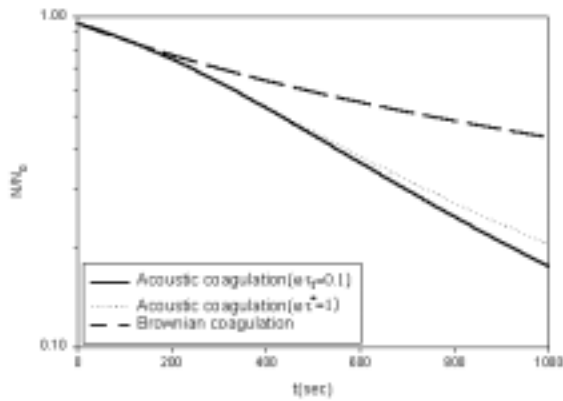
在微粒聚結的問題上，我們知道在適當的頻率及足夠的強度下，聲波對微米等級微粒聚結有很好的效果，而布朗擴散所引致的聚結效應可予忽略。但隨著粒徑的下降，布朗擴散效應漸增，因此我們希望了解聲波效應對次微米乃至奈米等級微粒是否也有加速聚結的效果；或當粒徑降至何值時，布朗擴散效應與聲波效應相當。以下圖四至七的數值模擬中，我們選取 $N_0 = 10^{12} \text{顆}/\text{m}^3$ ， $\epsilon = 10^{-4}$ ， $\sigma = 1.1$ ， $E_{ok} = 0.15$ ， $I = 150 \text{dB}$ 及不同粒徑(在初始懸浮微粒為對數常態分佈的問題中，我們以不同的 d_1 及 V_g 表示)和“最佳”聚結頻率來進行數值模擬。按照 Temkin(1994)，“最佳”聚結頻率約發生在 $\omega \tau^* = 1$ 的狀況，其中 $\omega = 2\pi f$ 為角頻率， τ^* 為按 V_g 值算出之 τ ；而按 Lei & Huang (2000)，此狀況約與 $\omega \tau_1 = 0.1$ 相當，其中 τ_1 為以 d_1 值算出之 τ 。在圖四至七中我們將採用此兩種狀況之頻率進行計算；結果顯示由二者所算出的數值相差不大。比較圖四至七，我們發現在本例中，約在 $d_1 = 0.02 \mu\text{m} = 20 \text{nm}$ (見圖五)，即相當於 $V_g = 6.39 \times 10^{-23} \text{m}^3$ ，或 $d_g = (6V_g / \pi)^{1/3} = 0.05 \mu\text{m} = 50 \text{nm}$ 時，布朗擴散與聲波效應所引致的聚結效果相當；對於較大的微粒，我們可採用聲波來大幅加速聚結效果。



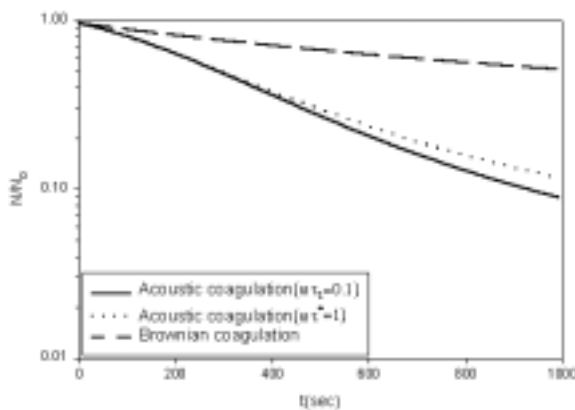
圖四： $d_1 = 0.01 \mu\text{m}$ ， $V_g = 7.99 \times 10^{-24} \text{m}^3$ 及 $f = 52.1 \text{Mhz}$ ($\omega \tau_1 = 0.1$)、 84.7Mhz ($\omega \tau^* = 1$) 下，布朗聚結與聲波聚結的比較。



圖五： $d_1=0.02 \mu m$, $V_g=6.39 \times 10^{-23} m^3$ 及 $f=13MHz(\omega\tau_1=0.1)$ 、 $21.2MHz(\omega\tau^*=1)$ 下，布朗聚結與聲波聚結的比較。

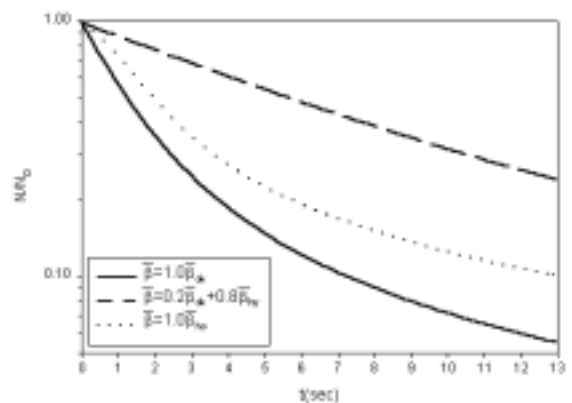


圖六： $d_1=0.025 \mu m$, $V_g=1.25 \times 10^{-22} m^3$ 及 $f=8.3MHz(\omega\tau_1=0.1)$ 、 $13.5MHz(\omega\tau^*=1)$ 下，布朗聚結與聲波聚結的比較。

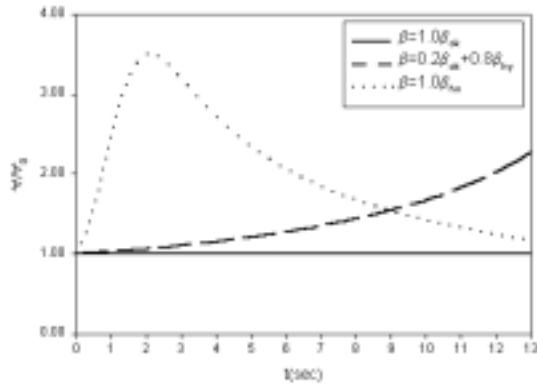


圖七： $d_1=0.05 \mu m$, $V_g=10^{-21} m^3$ 及 $f=2.1MHz(\omega\tau_1=0.1)$ 、 $3.4MHz(\omega\tau^*=1)$ 下，布朗聚結與聲波聚結的比較。

以上的聲波聚結模擬中，我們在碰撞頻率函數中只採用了正動力作用模式，在以下的圖八及九中，我們除採用 100%的正動力作用模式(以 $\bar{\beta}=1.0\bar{\beta}_{ok}$ 表示)外，亦採用了 20%正動力作用加 80%流力作用的模式(以 $\bar{\beta}=0.2\bar{\beta}_{ok}+0.8\bar{\beta}_{hy}$ 表示)，及 100%的音波尾跡模式(以 $\bar{\beta}=1.0\bar{\beta}_{ho}$ 表示)來進行計算。在此 $\bar{\beta}$ 表示無因次的 K 。圖八顯示採用正動力作用模式者聚結最快，採用音波尾跡模式者次之，採用 20%正動力作用加 80%流力作用者最慢；我們就其他參數進行數值模擬亦獲致相類似的結果。這顯示使用流力模式及音波尾跡模式來進行模擬時，我們要用較正動力作用模式為高(即高於 0.2 至 0.4)的碰撞效率係數，方可與實驗相吻合。但值得注意的是在目前的計算中，採用流力模式及音波尾跡模式來進行聲波聚結模擬並不能保證在計算過程中微粒的總體積(即總質量)守恆。在圖九中，只有採用正動力作用模式者其微粒的瞬時總體積 V 與初始微粒總體積 V_0 相同，即體積守恆。造成這一不符物理現象的可能因素有二：一為現在文獻中所使用的流力模式及音波尾跡模式有物理上缺失，另一則為目前所使用的數值計算方式(即 Temkin 1994 的方法)有數值上缺失，我們在下年度的計劃中將針對上述兩點作深入研究，其中後者我們擬考慮使用 Gelbard et al. (1980)的方法作進一步探討。



圖八： $N_0=10^{12} \text{顆}/m^3$, $d_1=0.5 \mu m$, $\epsilon=10^{-6}$, $V_g=7.99 \times 10^{-21} m^3$, $\sigma=1.2$, $I=150dB$ 及 $f=60KHz$ 下，各種模式所獲的聚合結果。



圖九： $N_0=10^{12}$ 顆/ m^3 ， $d_1=0.5 \mu m$ ， $\varepsilon=10^{-6}$ ， $V_g=7.99 \times 10^{-21} m^3$ ， $\sigma=1.2$ ， $I = 150dB$ 及 $f = 60KHz$ 下，各種碰撞頻率函數模式所獲的微粒無因次總體積變化結果。

五、參考文獻

1. Caperan, Ph., J. Somers, K. Richter and S. Fourcaudot, *J. Aerosol Sci.*, V.24, Suppl.1, pp.S593-S594, (1993).
2. Dianov, D. B., A. A. Podol'skii and V. I. Turubarov, *Soviet Physics – Acoustics*, V.13, No.3, pp.314-319 (1968).
3. Ezekoye, O. A. and Y. W. Wibowo, *J. Aerosol Sci.*, V.30, No.6, 1117-1138, (1999).
4. Friedlander, S. K., "Smoke, dust and haze – Fundamentals of aerosol behavior," John Wiley & Sons (1977).
5. Gelbard, F., Y. Tambour and J. H. Seinfeld, *J. Colloid and Interface Science*, V.76, No.2, 541-556 (1980).
6. Hoffmann, T. L., "Visualization of particle interaction and agglomeration in an acoustic field," PhD dissertation, Pennsylvania State Univ.,(1993).
7. Hoffmann, T. L., *J. Aerosol Sci.*, V.28, No.6, 919-936 (1997).
8. Lei, U. and C. T. Huang, *Proceedings 2000 Symposium on Transport Phenomena and Applications*, pp.61-64, Dec.2, Taipei, Republic of China (2000).
9. Magill, J. S., Ph. Caperan, J. Somers, K. Richter, G. Rodriguze-Corral, E. Riera-Franco de Sarabia and J. A. Gallego-Juarez, *J. Aerosol Sci.*, V.22, Suppl.I, pp.S27-S30, (1991)
10. Mednikov, E. P., "Acoustic coagulation and precipitation of aerosols," Consultants Bureau, New York (1965).
11. Song, L., G. H. Koopmann and T. L. Hoffmann, *ASME J. Vib. Acous.*, V.116, 208-214 (1994).
12. Temkin, S., *Phys. Fluids*, V.6, pp.2294-2303 (1994).
13. 黃家增, "聲波引致氣體中懸浮微粒的聚集研究," 國立臺灣大學應用力學研究所碩士論文(2000).
14. 黃國榮, "聲波及布朗擴散對次微米微粒聚結效應的研究," 國立臺灣大學應用力學研究所碩士論文(2002).