

## О ЯДРАХ КИНЕТИЧЕСКОГО УРАВНЕНИЯ КОАЛЕСЦЕНЦИИ

Е. Я. ЛАПИГА, В. И. ЛОГИНОВ

(Москва)

Показаны свойства симметрии относительно размеров частиц ядра коалесценции, сечения захвата при конвективном сближении частиц и коэффициента взаимной турбулентной диффузии частиц. Определены ядра коалесценции при конвективном и турбулентном механизмах сближения частиц во внешнем электрическом поле. Получены аппроксимирующие выражения для ядер.

1. Кинетическое уравнение и общие свойства его ядер. Динамика поведения коалесцирующей дисперсной системы в пространственно-однородном случае при учете только парного взаимодействия частиц описывается уравнением

$$(1.1) \quad \frac{\partial n(v, t)}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^v K(v-\omega, \omega) n(v-\omega, t) n(\omega, t) d\omega - \\ - \int_0^\infty K(v, \omega) n(v, t) n(\omega, t) d\omega$$

Здесь  $n(v, t) dv$  — концентрация частиц с объемами в интервале  $(v, v+dv)$  в момент времени  $t$ ,  $K(v, \omega)$  — двумерная функция, называемая ядром коалесценции и характеризующая частоту слияния частиц с объемами  $v$  и  $\omega$  при их единичной концентрации.

Поскольку задание ядра полностью определяет кинетику процесса коалесценции, то исследование его общих свойств и последующее определение является важной самостоятельной задачей, предшествующей решению уравнения (1.1) при изучении поведения коалесцирующих дисперсных систем.

Функция  $K(v, \omega)$  является моделью реального макроскопического процесса, полученной усреднением по множеству частиц с объемами  $v$  и  $\omega$ . Поэтому естественно считать ее непрерывно дифференцируемой по каждой из переменных на всей области определения. Из условия сохранения массы дисперсной среды следует свойство симметрии ядер. Действительно, умножая правую и левую части (1.1) на  $v$  и интегрируя по всей области изменения этой переменной, получим

$$(1.2) \quad \frac{dW}{dt} = \frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty (\omega-v) K(v, \omega) n(v, t) n(\omega, t) d\omega dv$$

где  $W$  — суммарный объем дисперсной фазы.

В силу закона сохранения дисперсной фазы левая часть этого равенства равна нулю, а равенство слагаемых в правой части для произвольного момента времени реализуется только для симметричных функций  $K(v, \omega)$ . Нарушение условия симметрии ядра при решении кинетического

уравнения фактически эквивалентно введению в систему источников или стоков частиц, интенсивность которых зависит от степени и вида несимметрии.

Наглядное представление о виде функции  $K(v, \omega)$  можно получить из рассмотрения поведения соответствующей ей поверхности над координатной плоскостью  $(v, \omega)$ . Плоскостью симметрии для  $K(v, \omega)$  будет плоскость, проходящая через ось  $K(v, \omega)$  и биссектрису угла, образованного осями  $v$  и  $\omega$ . В любом сечении, перпендикулярном плоскости симметрии и определяемом равенством  $v + \omega = z - \text{const}$ ,  $K(v, \omega)$  будет одномерной симметричной функцией  $K(v, z - v)$ . Если в таком сечении она не тождественная константа, то в точке  $\omega = v = 0.5z$ , находящейся на плоскости симметрии, она будет иметь экстремальную точку.

**2. Конвективный механизм сближения частиц.** При конвективном сближении частиц с объемами  $v$  и  $\omega$  интенсивность их встреч пропорциональна сечению захвата  $\Omega(v, \omega)$ , которое связано с ядром коалесценции в этих условиях равенством

$$(2.1) \quad K(v, \omega) = \Omega(v, \omega) |\dot{\phi}|$$

где  $\dot{\phi}$  — относительная скорость сближения частиц.

Для пространственно-однородного случая, когда  $|\dot{\phi}|$  — симметричная функция размеров частиц,  $\Omega(v, \omega)$  также должна быть симметричной функцией. Это свойство может быть использовано как при аналитическом определении сечения захвата, так и при аппроксимации его по данным численных расчетов.

В работе [1] рассмотрена задача определения сечения захвата для нейтральных проводящих сферических частиц радиусов  $R_1$  и  $R_2$ , находящихся во внешнем электрическом поле напряженностью  $E > 0$ . В расчетах учитывалось гидродинамическое взаимодействие частиц при их сближении. Молекулярные силы не учитывались. Задача решалась численно. Отношение размеров частиц варьировалось в пределах  $R_1/R_2 \in [2-100]$ . На основе обработки результатов вычислений авторами предложено следующее аппроксимирующее выражение для определения сечения:

$$(2.2) \quad \Omega(v, \omega) = 0.095 \frac{\varepsilon R_1 R_2 E^2}{\mu |\dot{\phi}|} [1 - \exp(-5.75 R_2/R_1)], \quad R_1 > R_2$$

Здесь  $\varepsilon$  — диэлектрическая постоянная сплошной среды,  $\mu$  — ее динамическая вязкость. Эта функция не обладает свойством симметрии. В качестве симметричной аппроксимирующей функции для сечения захвата можно использовать следующую функцию:

$$(2.3) \quad \Omega(v, \omega) = 0.55 \frac{\varepsilon E^2 R_1^2 R_2^2}{\mu |\dot{\phi}| (R_1 + R_2)} \left[ 1 - 2.1 \frac{R_1 R_2}{(R_1 + R_2)^2} \right]$$

Численное сравнение (2.2) и (2.3) показывает их практически полное совпадение при  $R_1 > 2R_2$ . Подставляя (2.3) в (2.1) и переходя к объемам частиц, получим следующую аппроксимирующую зависимость для ядра коалесценции в этом случае

$$(2.4) \quad K(v, \omega) = \frac{0.427 \varepsilon E^2 (v\omega)^{3/4}}{\mu (v^{1/2} + \omega^{1/2})} \left[ 1 - \frac{2.1 (v\omega)^{1/4}}{(v^{1/2} + \omega^{1/2})^2} \right]$$

Это ядро является однородной функцией со степенью однородности  $\eta = 1$ .

**3. Диффузионный механизм сближения частиц.** По определению, в этом случае ядро коалесценции совпадает с диффузионным потоком частиц объема  $\omega$  при единичной их концентрации на частицу объема  $v$  и его

можно записать в виде

$$(3.1) \quad K(v, \omega) = \int_s j dS$$

Здесь интеграл берется по поверхности сферы радиуса  $R=R_1+R_2$ , плотность диффузионного потока  $j$  определяется из решения стационарного уравнения диффузии

$$(3.2) \quad \nabla \left( D \nabla n - \frac{F}{h} n \right) = 0$$

с граничными условиями:  $n=0$  на поверхности частицы большего размера,  $n=1$  вдали от поверхности;  $D$  — коэффициент взаимной диффузии частиц,  $F$  — сила взаимодействия частиц,  $h$  — коэффициент гидродинамического сопротивления при сближении частиц,  $n$  — концентрация частиц меньшего размера.

Если величины  $D$ ,  $F$  и  $h$  обладают свойством сферической симметрии относительно центра большей частицы, то решая уравнение (3.2) в сферической системе координат, получим

$$(3.3) \quad j = (R_1+R_2)^{-2} \varphi^{-1}, \quad \varphi = \int_{R_1+R_2}^{\infty} \frac{dr}{r^2 D(r)} \exp \left( \int_r^{\infty} \frac{F(x) dx}{D(x) h(x)} \right)$$

где  $R_1$  и  $R_2$  — радиусы частиц объемов  $v$  и  $\omega$  соответственно,  $r$  — расстояние от центра частицы радиуса  $R_1$ .

Из свойств симметрии ядра коалесценции и его связи с плотностью диффузионного потока (3.1) получаем, что уравнение (3.2) или, точнее, определяющие его функции  $D$ ,  $F$  и  $h$  должны обладать симметрией относительно размеров частиц.

В работе [2] на основе усреднения уравнения Ланжевена было показано, что с учетом гидродинамического взаимодействия частиц при их сближении коэффициент их взаимной диффузии можно представить в виде

$$(3.4) \quad D(r) = D_0(r) [h_0/h(r)]^2, \quad h_0 = h(\infty)$$

где  $D_0(r)$  — коэффициент взаимной диффузии частиц без учета их взаимодействия,  $h(r)$  — коэффициент гидродинамического сопротивления при сближении частиц.

При большом расстоянии между частицами, когда их движения можно рассматривать как взаимно независимые, величину  $h(r)$  можно определить следующим образом. Пусть  $F$  — сила взаимодействия между частицами, под действием которой они движутся вдоль линии, соединяющей их центры, со скоростями  $v_1$  и  $v_2$ . Тогда будет справедлива следующая цепочка равенств:

$$(3.5) \quad h_0 = \frac{F}{v_1+v_2} = \frac{F}{F/h_1+F/h_2} = \frac{h_1 h_2}{h_1+h_2}$$

где  $h_i$  — коэффициент сопротивления свободному движению  $i$ -й частицы. При стоксовом законе обтекания частиц

$$(3.6) \quad h_0 = 6\pi\eta\nu R_1 R_2 / (R_1 + R_2)$$

где  $\nu$  и  $\rho$  — кинематическая вязкость и плотность сплошной фазы.

При малых расстояниях между частицами выражение для  $h(r)$  можно записать в виде [2]

$$(3.7) \quad h(r) = 6\pi\nu\rho \frac{R_1^2 R_2^2}{(R_1 + R_2)^2} \frac{1}{\delta}, \quad \delta = r - R_1 - R_2, \quad R_1, R_2 \gg \delta$$

Объединяя дальнюю (3.6) и ближнюю (3.7) асимптотики для  $h(r)$ , путем сложения получим следующее аппроксимирующее выражение

$$(3.8) \quad h(r) = 6\pi\nu\rho \frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2} \left( 1 + \frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2} \frac{1}{\delta} \right),$$

За основу определения коэффициента взаимной диффузии частиц без учета сил гидродинамического взаимодействия между ними возьмем соотношение [3]

$$(3.9) \quad D_0(r) = \beta\nu(\lambda/\lambda_0)^2, \quad \lambda < \lambda_0$$

где  $\beta$  — безразмерный коэффициент пропорциональности;  $\lambda$  — характерный масштаб пульсаций, вносящих наибольший вклад во взаимное сближение частиц, находящихся на расстоянии  $r$  друг от друга;  $\lambda_0$  — внутренний масштаб турбулентности.

Характерный масштаб пульсаций  $\lambda$ , зависящий от расстояния между частицами и их размеров, должен быть симметричной функцией относительно размеров частиц и удовлетворять следующим асимптотическим условиям: для одинаковых частиц  $\lambda \simeq r$ , если же  $R_1 \gg R_2$ , то  $\lambda \simeq r - R_1$ .

Этим условиям удовлетворяет функция

$$(3.10) \quad \lambda = (R_1 + R_2)(u + \gamma), \quad u = \frac{\delta}{R_1 + R_2}, \quad \gamma = \frac{R_1 R_2}{R_1^2 + R_2^2 - R_1 R_2}$$

Из (3.4), (3.8)–(3.10) получаем, что коэффициент взаимной турбулентной диффузии сферических частиц при стоксовом законе обтекания с учетом гидродинамического взаимодействия между ними можно записать в виде

$$(3.11) \quad D(r) = \beta \left( \frac{R_1 + R_2}{\lambda_0} \right)^2 \frac{(u + \gamma)^2 u^2}{(u + \kappa)^2} \nu, \quad \kappa = \frac{R_1 R_2}{(R_1 + R_2)^2}$$

Ранее коэффициент турбулентной диффузии частиц определялся в работах [2, 4]. Однако полученные в них формулы не удовлетворяют условию симметрии.

**4. Ядро коалесценции при турбулентном перемешивании и молекулярном взаимодействии частиц.** Силу молекулярного взаимодействия частиц при малых расстояниях между ними ( $u \ll 1$ ) и без учета эффекта запаздывания определим равенством [5]

$$(4.1) \quad F_1(r) = \frac{A}{6} \frac{R_1 R_2}{(R_1 + R_2)^3} \frac{1}{u^2}$$

где  $A$  — постоянная Гамакера.

Подставляя (4.1), (3.11) и (3.8) в (3.3) запишем определяющий для плотности потока множитель в виде

$$(4.2) \quad \varphi = \frac{\lambda_0^2}{\beta\nu(R_1 + R_2)^3} \int_0^\infty \frac{(x + \kappa)^2 dx}{x^2(1+x)^2(x + \gamma)^2} \exp\left(-S_1 \int_x^\infty \frac{(u + \kappa) du}{u^3(u + \gamma)^2}\right)$$

$$S_1 = A\lambda_0^2 \nu^{-2} \rho^{-1} (R_1 + R_2)^{-3} \beta^{-1} / (36\pi)$$

Здесь  $S_1$  — безразмерный параметр, характеризующий молекулярное взаимодействие частиц.

Так как молекулярное взаимодействие проявляется лишь на малых расстояниях, то основной вклад в интеграл в показателе экспоненты вносят малые значения  $u$  ( $u \ll 1$ ). При  $S_1 \ll 1$ , полагая  $\kappa$ ,  $\gamma \sim 1$ , преобразуем (4.2) к виду

$$(4.3) \quad \begin{aligned} \varphi &= \frac{\lambda_0^2 \beta^{-1}}{\nu(R_1 + R_2)^3} \int_0^\infty \frac{\kappa^2}{\gamma^2 x^2} \exp\left(-\frac{S_1 \kappa}{2\gamma^2 x^2}\right) dx = \\ &= \frac{\lambda_0^2 \beta^{-1} \kappa^{3/2} \pi^{1/2}}{\sqrt{2} \gamma (R_1 + R_2)^3 \nu} S_1^{-1/2}, \quad R_1 \sim R_2 \end{aligned}$$

Подставляя (4.3) в (3.3) и в (3.4) и переходя к объемам частиц, получаем, что для близких по размерам частиц ядро коалесценции можно записать в виде

$$(4.4) \quad K_{11}(v, \omega) = \left(\frac{2\beta A}{3\rho\lambda_0^2}\right)^{1/2} \frac{(v^{1/2} + \omega^{1/2})^{3/2}}{(v\omega)^{1/6} (v^{1/2} + \omega^{1/2} - (v\omega)^{1/6})}$$

Полученное в работе [6] выражение для определения ядра коалесценции в аналогичных условиях не обладает свойством симметрии.

Для случая сильно различающихся по размерам частиц ( $\kappa$ ,  $\gamma \ll 1$ ) в (4.2) можно пренебречь величинами  $\kappa$  и  $\gamma$  по сравнению с  $x$  и  $u$ . Дальнейшие вычисления, так же как и при получении (4.3) и (4.4), позволяют преобразовать (4.2) к виду

$$(4.5) \quad \varphi = \frac{\lambda_0^2 \beta^{-1}}{\nu(R_1 + R_2)^3} \int_0^\infty \frac{1}{x^2} \exp\left(-\frac{S_1}{3x^3}\right) dx = \frac{\lambda_0^2 \beta^{-1} 3^{1/3} \Gamma(4/3)}{\nu(R_1 + R_2)^3} S_1^{-1/3}$$

и для ядра коалесценции получить

$$(4.6) \quad K_{12}(v, \omega) = \frac{1}{\Gamma(4/3)} \left(\frac{\beta^2 \nu A}{3\rho\lambda_0^4}\right)^{1/3} (v^{1/3} + \omega^{1/3})^2, \quad v\omega \ll v^2 + \omega^2$$

Производя спивку полученных асимптотических значений (4.4) и (4.6) при помощи весовой функции  $\alpha = 4\omega v / (v + \omega)^2$ , найдем следующее выражение для аппроксимации ядра коалесценции при турбулентном перемешивании с учетом гидродинамического и молекулярного взаимодействия частиц

$$(4.7) \quad K_1(v, \omega) = \alpha K_{11}(v, \omega) + (1 - \alpha) K_{12}(v, \omega)$$

**5. Ядро коалесценции при турбулентном перемешивании во внешнем электрическом поле.** Предположим, что диспергированный материал является проводником, а дисперсная среда — изолятором с диэлектрической постоянной  $\epsilon$ . При наложении внешнего электрического поля частицы поляризуются и начинают взаимодействовать друг с другом. Если линия, соединяющая центры частиц, образует угол  $\theta$  с направлением вектора напряженности электрического поля  $E$ , то сила притяжения двух сферических частиц будет равна [2]

$$(5.1) \quad F_2 = -\epsilon E^2 R_1 R_2 (A_1 \cos^2 \theta - A_2 \sin^2 \theta)$$

Здесь  $A_1$  и  $A_2$  — безразмерные функции, зависящие от отношения радиусов частиц и расстояния между ними.

С учетом молекулярных сил суммарное силовое взаимодействие между частицами будет равно

$$(5.2) \quad F = F_1 + F_2$$

В отличие от  $F_1$  сила  $F_2$  обладает не центральной, а только осевой симметрией. Поэтому с учетом этой силы уравнение диффузии становится двумерным и его аналитическое решение становится с математическими трудностями. В работе [2] предложены следующие методы построения осевых диффузионного потока для этого случая. Пренебрегая угловой составляющей диффузионного потока в сферической системе координат, определяют плотность потока в виде (3.3) как функцию  $\theta$ . Подставив (3.3)

$r$	$S_2$	$S_1=10^{-3}$	$10^{-4}$	$10^{-5}$	$10^{-6}$	$10^{-7}$	$10^{-8}$	$10^{-9}$
0	182	182	61.3	20.0	6.43	2.05	0.643	0.205
0.1	186	186	65.5	23.9	9.55	6.43	4.24	4.17
0.2	149	149	51.8	19.4	8.41	4.88	3.95	3.85
0.5	101	101	33.9	11.3	3.66	1.17	0.366	0.118
1.0	204	204	131	239	110	238	110	238
1.0	223	223	108	143	140	238	140	238
1.0	202	202	83.4	28.2	14.2	10.1	9.29	9.27
0.5	190	190	69.8	28.2	14.2	10.1	9.29	9.27
0.2	149	149	51.8	23.9	12.5	9.41	8.83	8.79
0.1	146	146	48.2	15.8	5.10	4.63	5.10	4.63
0	143	143	48.2	15.8	5.10	4.63	5.10	4.63
0.1	146	146	48.2	15.8	5.10	4.63	5.10	4.63
0.2	104	104	38.1	15.9	8.58	6.49	6.09	6.04
0.5	109	109	44.7	23.9	18.0	16.9	16.8	16.8
1.0	118	118	56.2	38.4	34.6	34.1	34.1	34.1
2.0	135	135	79.7	67.0	65.2	65.0	65.0	65.0
5.0	186	186	146	140	140	140	140	140
0	96.8	96.8	32.8	11.1	3.63	1.17	0.373	0.122
0.1	97.5	97.5	33.8	12.2	4.90	2.48	1.77	1.62
0.2	98.2	98.2	34.8	13.4	6.30	4.11	3.61	3.54
0.5	100	100	37.7	17.2	11.0	9.55	9.34	9.32
1.0	104	104	42.7	23.8	19.1	18.3	18.2	18.2
2.0	111	111	52.9	37.2	34.3	33.9	33.9	33.9
5.0	133	133	83.3	73.7	72.4	72.3	72.3	72.3
0	102	102	35.4	12.3	4.16	1.36	0.437	0.149
0.1	102	102	35.7	12.8	4.74	2.04	1.43	1.301
0.2	102	102	36.1	13.3	5.34	2.73	1.99	1.85
0.5	103	103	38.9	17.1	10.4	8.95	8.75	8.72
1.0	107	107	42.4	21.9	16.7	15.8	15.7	15.7
2.0	114	114	53.0	36.3	30.3	29.9	29.9	29.9
5.0	142	142	83.4	73.7	72.4	72.3	72.3	72.3
0	143	143	42.6	16.6	6.37	2.32	0.795	0.261
0.1	143	143	42.6	16.6	6.39	2.38	0.893	0.482
0.2	143	143	42.6	16.6	6.42	2.43	0.991	0.523
0.5	143	143	42.6	16.7	6.53	2.62	1.29	0.942
1.0	144	144	42.9	17.0	7.06	3.49	1.76	1.46
2.0	144	144	42.9	17.0	7.06	3.49	1.76	1.46
5.0	142	142	83.4	73.7	72.4	72.3	72.3	72.3

в (3.1), получим следующее выражение для ядра коалесценции

$$K(v, \omega) = \frac{(R_1 + R_2)^3 \nu \beta}{\lambda_0^2} \int_0^{\pi/2} \sin \theta \varphi_2^{-1}(\theta) d\theta$$

$$(5.3) \quad \varphi_2 = \int_0^\infty \frac{(u+\kappa)^2 du}{u^2(1+u)^2(u+\gamma)^2} \exp \left\{ -S_1 \int_u^\infty \frac{(x+\kappa)}{(x+\gamma)^2 x^3} dx - \right. \\ \left. - S_2 \int_u^\infty \frac{(A_1 \cos^2 \theta - A_2 \sin^2 \theta)(x+\kappa)}{x(x+\gamma)^2} dx \right\}, \quad S_2 = \frac{\epsilon E^2 \lambda_0^2}{6\pi r \nu^2 \beta}$$

Другой метод оценки ядра коалесценции в рассматриваемом случае можно построить на основе предположения, что за время сближения ориентация частиц относительно поля многократно меняется. Это приведет к «размытию» концентрационного профиля и усреднению его по углу  $\theta$ .

Усреднение силы взаимодействия (5.2) по поверхности сферы дает

$$(5.4) \quad \langle F \rangle = \int_0^\pi F(\theta) \sin \theta d\theta = F_1 + \langle F_2 \rangle, \quad \langle F_2 \rangle = -\frac{1}{3} \epsilon E^2 R_1 R_2 (A_1 - 2A_2)$$

При записи (5.4) учтена формула (5.1).

Подстановка (5.4) в (3.3) позволяет записать следующее выражение для ядра коалесценции

$$K(v, \omega) = 4\pi \beta \nu \lambda_0^{-2} (R_1 + R_2)^3 \varphi_3^{-1}$$

$$(5.5) \quad \varphi_3 = \int_0^\infty \frac{(u+\kappa)^2 u^{-2} du}{(1+u)^2(u+\gamma)^2} \exp \left[ -S_1 \int_u^\infty \frac{(x+\kappa) dx}{(x+\gamma)^2 x^3} - \right. \\ \left. - S_2 \int_u^\infty \frac{(A_1 - 2A_2)(x+\kappa) dx}{3x(x+\gamma)^2} \right]$$

Интегрирование в (5.3) и (5.5) производилось численно. Сравнение полученных результатов для этих случаев показало, что максимальное отличие между ними не превышает 5%. В таблице приведены расчетные значения величины  $\varphi_3^{-1} \cdot 10^3$  при различных значениях  $S_1$ ,  $S_2$  и  $k=R_1/R_2$ .

Аппроксимация численных расчетов позволяет записать ядро коалесценции при  $S_2 \geq 0.5$  в виде

$$(5.6) \quad K(v, \omega) = 0.24 S_2^{0.8} \nu \beta \lambda_0^{-2} (v^{1/2} \omega^{2/3} + \omega^{1/2} v^{2/3})^3$$

Поступила 29 XII 1978

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Ентов В. М., Каминский В. А., Синайский Э. Г. О захвате мелких капель крупными в электрическом поле. Изв. АН СССР, МЖГ, 1973, № 5.
2. Ентов В. М., Каминский В. А., Лапига Е. Я. К расчету скорости коалесценции эмульсии в турбулентном потоке. Изв. АН СССР, МЖГ, 1976, № 3.
3. Левич В. Г. Физико-химическая гидродинамика. М., Изд-во АН СССР, 1959.
4. Каминский В. А. О кинетике турбулентной коагуляции. Коллоид. ж., 1976, т. 38, № 5.
5. Смирнов Л. П., Дерягин Б. В. О безынерционном осаждении на сфере частиц из потока жидкости под действием сил притяжения Ван-дер-Ваальса. В сб. Исследования в области поверхностных сил. М., «Наука», 1967.