

## Research progress on agglomeration mechanisms and fluidization behavior of cohesive particles

Hanlu QI, Jiajun WANG\*, Xueping GU, Lianfang FENG

State Key Lab of Chemical Engineering, Department of Chemical and Biological Engineering, Zhejiang University, Hangzhou, Zhejiang 310027, China

**Abstract:** Cohesive particles tend to bond together during fluidization due to the inter-particle force, which breaks down the normal fluidization and seriously affects factory production. In recent years, the research focus of cohesive granular flow has gradually transferred to the intrinsic agglomeration mechanisms and fluidization characteristics simulation study from the black-box-like experiments before. Taking studied scale as the cut-in point, the mechanical model, agglomeration criterion as well as fluidization experiment and simulation study of four kinds of cohesive forces (Van der Waals force, electrostatic force, solid bridge force and liquid bridge force) were reviewed on the particle scale and reactor scale. The functionary mechanisms of cohesive force and the fluidization behavior of cohesive particles were analyzed from the aspects of force, motion and kinetics. While the development of the four kinds of cohesive forces are in different stage according to the agglomeration mechanisms studies, the dynamic model as well as agglomeration process mechanisms will become the major tendency in this field. On the reactor scale, the discrete element method simulation coupled with cohesive force models will remain to play an important role in fluidization study. For the significant influence on simulation performance caused by the accuracy of the model like cohesive force model and drag model as well as the trends in three-dimensional simulation, the mechanical model and calculation ability will be two challenges in the future simulation research.

### Key learning points:

- (1) The fluidization characteristics multi-scale study coupled with agglomeration mechanisms will become the main trend in the development of cohesive granular flow research.
- (2) On the particle scale, since the agglomeration mechanisms study based on four kinds of cohesive forces remains basically in static model, introducing the time dimension and establishing the dynamic model will be a significant research direction in the next stage.
- (3) On the reactor scale, numerical description of particle properties, associating simulation parameters with experimental parameters, multi-scale simulation and calculation ability are the four major difficulties faced by discrete element method simulation.
- (4) While the development of the four kinds of cohesive forces are in quite different stage, agglomeration mechanisms and fluidization characteristics study under multiple cohesive forces need to be advanced.

**Key words:** granular flow; cohesive force; agglomeration mechanisms; fluidization; discrete element method

收稿: 2018-02-19, 修回: 2018-04-19, 网络发表: 2018-08-08, Received: 2018-02-19, Revised: 2018-04-19, Published online: 2018-08-08  
基金项目: 国家重点研发计划资助项目(编号: 2017YFB0307702); 国家自然科学基金资助项目(编号: 21276222); 中央高校基本科研业务费专项资金资助  
作者简介: 祁晗璐(1993-), 女, 湖北省武汉市人, 硕士研究生, 化工过程工程专业; 王嘉骏, 通讯联系人, E-mail: jiajunwang@zju.edu.cn.

**引用格式:** 祁晗璐, 王嘉骏, 顾雪萍, 等. 黏性颗粒团聚机理及流化特性研究进展. 过程工程学报, 2019, 19(1): 55-63.

Qi H L, Wang J J, Gu X P, et al. Research progress on agglomeration mechanisms and fluidization behavior of cohesive particles (in Chinese). Chin. J. Process Eng., 2019, 19(1): 55-63, DOI: 10.12034/j.issn.1009-606X.218139.

# 黏性颗粒团聚机理及流化特性研究进展

祁晗璐, 王嘉骏\*, 顾雪萍, 冯连芳

浙江大学化学工程与生物工程学系, 化学工程联合国家重点实验室, 浙江 杭州 310027

**摘要:**黏性力的存在导致黏性颗粒在流化过程中易发生团聚, 干扰正常的流态化。近年来, 黏性颗粒流的研究重心逐渐转移到本征的团聚机理和流化特性。本工作综述了4种主要黏性力的力学模型、团聚判据及流态化实验与模拟研究进展, 从力、运动及动力学的角度阐述了黏性力作用机制和黏性颗粒流化特性。分析表明, 在颗粒尺度上, 4种黏性力发展程度差异较大, 黏性力动力学模型和团聚过程机理将成为未来研究的主要方向。在反应器尺度上, 耦合黏性力模型的离散单元法模拟将继续作为重要的研究方法, 其中, 机理模型和计算能力是后续模拟中需要突破的重点。

**要点:**

- (1) 耦合团聚机理的流化特性多尺度研究, 将成为未来黏性颗粒流领域的主要趋势。
- (2) 在颗粒尺度, 基于四种黏性力的团聚机理研究基本停留在静力学层面, 引入时间维度、建立动力学模型是下一阶段的重要研究方向。
- (3) 在反应器尺度, 颗粒性质的数值描述、关联模拟参数与实验参数、多尺度模拟及计算能力是目前离散单元法模拟面临的四大难点。
- (4) 四种黏性力的研究进展差异较大, 多种黏性力作用下的团聚机理和流化特性研究均有待推进。

**关键词:** 颗粒流; 黏性力; 团聚机理; 流态化; 离散单元法

**中图分类号:** TQ02      **文献标识码:** A      **文章编号:** 1009-606X(2019)01-0055-09

## 1 前言

2005年, Science将颗粒流动与湍流并列列为下个世纪125个世界难题之一<sup>[1]</sup>。颗粒流动涉及固体力学、流体力学、统计物理学等多个学科, 是目前多学科交叉的前沿研究领域<sup>[2]</sup>。如何处理颗粒间存在黏性力、颗粒与流体间存在相互作用的黏性颗粒流, 是颗粒流研究领域面临的最大挑战之一<sup>[3]</sup>。在烯烃气相聚合、药物造粒、固体燃烧、水泥煅烧, 湿料干燥等众多工业过程中<sup>[4]</sup>, 由于局部温度过高、液体附着、静电作用和颗粒自身物性等原因, 流化颗粒常常表现出黏性。黏性颗粒在流化过程中容易相互黏结形成聚团, 偏离正常的流化状态。若不加以控制, 颗粒团聚将持续发生, 极易引发节涌、沟流等失流现象, 甚至导致流化床死床, 严重影响工厂生产和经济效益<sup>[5]</sup>。研究黏性颗粒的流化特性, 对于颗粒流的理论研究和实际应用有重要意义。

颗粒团聚是影响黏性颗粒流态化的主要原因, 黏性力是颗粒团聚的起因, 碰撞是颗粒团聚的前提。黏性力主要包括范德华力、静电力、固体桥力、液体桥力等。碰撞过程中, 除黏性力外, 颗粒还会受到重力、曳力等流体力和相互碰撞力等, 均会影响团聚结果<sup>[6]</sup>。基于黏性力对碰撞过程进行受力分析和能量分析, 是研究颗粒团聚机理的有效方法。在此基础上, 通过实验和模拟手段, 即可研究反应器尺度下黏性颗粒的流化特性。

在黏性颗粒流领域, 李娜等<sup>[7]</sup>主要综述了液体桥力

和固体桥力作用下的实验研究, 张永俊等<sup>[8]</sup>对耦合范德华力和液体桥力的气固流动模拟研究进行了综述。本工作除综述这3种黏性力最新的研究进展外, 还着重综述了近年来迅猛发展的另外一种黏性力—静电力。围绕4种黏性力, 以尺度作为切入点, 对颗粒尺度的黏性力和团聚机理研究、反应器尺度的实验研究和模拟研究进行综述。除此之外, 由于发现团聚机理对黏性颗粒流化特性研究的重要性逐步提升, 相较于已有综述普遍以介绍黏性力为引、以综述流化特性研究为主的架构, 本工作更侧重对颗粒尺度黏性力和团聚机理进行研究进行综述。

## 2 黏性颗粒团聚机理

### 2.1 黏性力模型

不同的流态化过程黏性力来源不同。根据 Geldart<sup>[8]</sup>提出的颗粒分类法, 粒径极小(通常小于20 μm)的C类颗粒其黏性力主要来自范德华力。随颗粒粒径不断增大, 范德华力的影响急剧减弱, A类、B类和D类颗粒的黏性力主要来自固体桥力、静电力和液体桥力。范德华力和静电力在碰撞发生前存在, 常被定义为非接触式黏性力; 固体桥力和液体桥力一般在接触时才会产生, 为接触式黏性力<sup>[9]</sup>。

#### 2.1.1 非接触式黏性力

目前, 两种非接触式黏性力—范德华力和静电力的力学模型均较成熟。针对复杂的实际情况进一步细化模

型(如范德华力分颗粒尺度和聚团尺度)、耦合模型(静电作用分库仑力、镜像力等多种作用形式),从动力学角度研究黏性力对颗粒运动和颗粒团聚的影响,将会成为未来 10 年非接触式黏性力的主要发展方向。

### (1) 范德华力

近年来,由于纳米材料的迅速发展,细颗粒流态化再次引发关注<sup>[10]</sup>。范德华力是该过程中的主要黏性力,其力学模型由 van der Waals 在 1873 年首次提出。在此基础上,Hamaker 和 Lifshitz 分别提出了 Hamaker 理论和 Lifshitz-van der Waals 理论,应用较多的是 Hamaker 理论<sup>[11]</sup>。

由于范德华力具有近程性,其受颗粒接触面性质影响较大。为了能更准确地描述实际过程中受到的范德华力,近年来的研究工作在 Hamaker 理论等经典模型的基础上,逐渐引入表面粗糙度<sup>[12-14]</sup>、接触形变<sup>[15]</sup>等因素,完善了范德华力模型。Lu 等<sup>[14]</sup>通过锥形漏斗重力卸料实验,发现颗粒表面粗糙度对范德华力和颗粒流动性有非单调的影响。Lamarche 等<sup>[12,13]</sup>建立了一种量化颗粒表面粗糙度的方法,并基于此提出了新的范德华力模型,实验验证表明新模型提高了范德华力的预测精确度。Liu 等<sup>[15]</sup>基于 JKR(Johnson-Kendall-Roberts)模型推导了受力情况与接触状态的关系,提出了细颗粒黏附碰撞动力学模型,提供了材料黏弹性引起的阻尼能耗计算方法,进一步完善了以范德华力为主要黏性力的颗粒团聚机理。

细颗粒在范德华力的作用下形成聚团,由于聚团和细颗粒尺度差异较大,聚团间作用力的计算方法与细颗粒有所不同,但目前还未有统一的结论。Chaouki 等<sup>[16]</sup>假设两个聚团为理想球形,将两个聚团间的相互作用力等同于两个初始颗粒单点接触时的范德华力,低估了聚团间的相互作用力。在近期的工作中,Tamadondar 等<sup>[17]</sup>采用类似方法计算聚团间的作用力,发现预测的聚团大小与实验数据的平均误差在 20%以内。Iwadate 等<sup>[18]</sup>直接将颗粒尺度上的范德华力计算模型不加改变地应用至聚团尺度上,虽然较为牵强,但在预测鼓泡流化床中的聚团直径时效果较好。周勇等<sup>[19]</sup>直接运用颗粒尺度的范德华力模型计算不同大小的聚团间的作用力。Lauga 等<sup>[20]</sup>认为,范德华力的有效作用范围在 0.4~50 nm,对聚团间作用力起主要作用的是聚团表层的颗粒,大部分处于聚团内部的颗粒作用几乎可以忽略。Valverde 等<sup>[21]</sup>认为,除改性强疏水的超细颗粒外,在计算聚团间作用时需同时考虑范德华力和毛细管力。

### (2) 静电力

静电作用是除流体力(曳力、浮力、转动阻力等)外

最广泛存在的颗粒间(颗粒-壁面间)作用力。在实际工业过程中,普遍认为静电作用具有造成结块的潜在危害<sup>[22]</sup>。近年来,由于检测技术的发展和化害为利的思路转变,流化床中静电作用的研究推进明显<sup>[23]</sup>。常见的静电作用包括库仑力、镜像力及外电场下的极化力(取向力、梯度力和珠键力)等多种作用形式,具有远程性、多样性和强可控性 3 个重要特性<sup>[24]</sup>。

由于静电力的远程性,其对颗粒的作用与整个流化床中的静电分布密切相关。Wang 等<sup>[25]</sup>采用静电碰撞探针技术研究聚乙烯流化床内的静电分布,发现流化床中静电分布不均匀(图 1)。在轴向上,静电势呈 Z 型分布,颗粒密相和稀相交界面静电势极性反转;在径向上,静电势与径向距离正相关。静电势较高的区间与颗粒黏结区间对应。Song 等<sup>[26,27]</sup>开展了从常压到工业操作压力下的聚乙烯颗粒流态化实验研究,发现床层内的电荷主要来自颗粒与壁面的接触,壁面的净电荷为正,颗粒在壁面的镜像力作用下分层聚集,且聚集在壁面的颗粒将会带来新的镜像力。

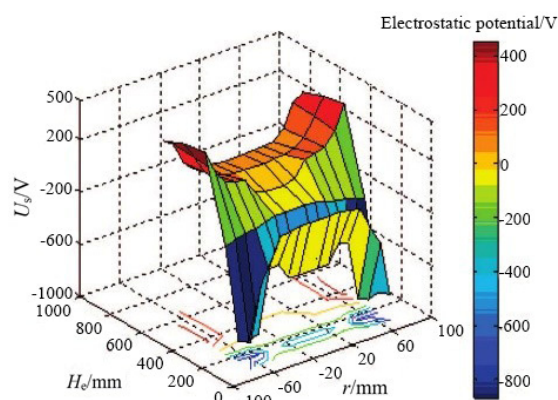


图 1 流化床中静电势分布<sup>[25]</sup>

Fig.1 Distribution of electrostatic potential in fluidized bed<sup>[25]</sup>

面对静电作用的多样性,Liu 等<sup>[28]</sup>通过多极展开方法,同时计算了库仑力和极化力两种形式的静电作用对颗粒运动和颗粒团聚的影响,并耦合镜像理论改良的边界元方法,为静电作用下颗粒所受的离散单元法模拟提供了基础。杨遥<sup>[22]</sup>通过平均循环时间、V 统计分析和小波分析考察外加直流电和交流电下的极化力和颗粒接触荷电产生的库仑力对颗粒团聚的作用,发现库仑力和极化力对颗粒团聚的作用存在竞争关系,且直流电是调控电场的首选方式,但竞争关系的临界条件、竞争相图还需进一步研究。Dong 等<sup>[29,30]</sup>通过在鼓泡床中加入微量抗静电剂,实现了对流化床中静电水平的定量调控,通过考察静电对流化床内气泡尺寸和颗粒运动的影响,发现颗粒荷电会使气泡尺寸减少,流化床波动减弱;静电力主要影响颗粒的径向运动及颗粒与壁面的撞击角,

而增大气速将有助于抑制这种影响。

### 2.1.2 接触式黏性力

相较于非接触式黏性力,两种接触式黏性力的研究目前大多停留在黏性力的力学模型上。固体桥抗拉强度和动态液体桥力均需大量后续研究。

#### (1) 固体桥力

高温流化床粉体工业,如水泥煅烧、生物质燃烧等过程中,颗粒易烧结形成固体桥,产生固体桥力,导致颗粒黏结。固体桥力  $F$  根据烧结理论由下式表示:

$$F = \pi x^2 \sigma_{\text{neck}} \quad (1)$$

其中,  $x$  为固体桥半径,  $\sigma_{\text{neck}}$  为固体桥抗拉强度。

目前,固体桥半径的变化规律已有较详细的研究,但对固体桥抗拉强度了解则相对有限。Mikami 等<sup>[31]</sup>在研究高温流化床时发现,固体桥力引起的固体桥抗拉强度仅为相同温度下同种材料的 5%。郭庆杰等<sup>[32]</sup>发现,固体桥中存在较多晶格缺陷,因此固体桥抗拉强度远小于散堆颗粒。王希<sup>[11]</sup>研究了石蜡颗粒在不同黏结工况下的固体桥抗拉强度变化规律,引入衡量高粘度材料流变性的针入度参数,建立了新的固体桥抗拉强度计算公式,但较少拓展到其它材料颗粒。赵硕等<sup>[33]</sup>通过研究高温下灰的固体桥力发展规律,发现灰的固体桥强度与温度呈双峰分布关系,为燃煤飞灰固体桥力的进一步研究提供了丰富的实验数据,但仍未给出完整的固体桥力模型。

#### (2) 液体桥力

工业流化床中,液体加入、湿空气冷却等原因产生的液体桥力是流化床中湿颗粒黏结的主要原因。液体桥力由静态液体桥力和动态液体桥力两部分构成。静态液体桥力取决于液体表面张力和液桥形状,而动态液体桥力则与液体黏度和颗粒相对运动密切相关。Ennis 等<sup>[34]</sup>认为动态液体桥力和静态液体桥力的相对大小可由无量纲毛细管数  $Ca = \mu U / \gamma$  判定(式中,  $\mu$  为液相粘度,  $U$  是颗粒速度,  $\gamma$  是液相表面张力)。若  $Ca > 1$ , 则动态液桥力即液体的粘滞效应主导液体桥力,若  $Ca \leq 0.001$ , 则静态液桥力即表面张力效应主导液体桥力。

目前对静态液桥力的研究已较成熟。Mikami 等<sup>[35]</sup>将静态液体桥力视为无量纲液桥体积和颗粒距离的函数,Shi 等<sup>[36]</sup>进一步假设液桥断裂前体积不变,Girardi 等<sup>[37]</sup>基于 Shi 等<sup>[36]</sup>提出的静态液体桥力模型开展了计算流体力学-离散单元法(Computational Fluid Dynamics-Discrete Element Method, CFD-DEM)模拟。文献<sup>[4,38]</sup>结合实验条件将 Yakov 等<sup>[39]</sup>提出的静态液桥力  $F_s$  计算公式进一步简化为下式:

$$F_s(\varphi) = 2\pi d_p \gamma \left( 1 + \frac{4.125}{\pi} \sqrt{\varphi \varepsilon} \right) \quad (2)$$

其中,  $\gamma$  为液体表面张力,  $\varphi$  为液体桥体积分率,即液体桥体积和颗粒体积的比值,  $\varepsilon$  为床层空隙率。

近年来,对动态液体桥力的研究有所突破,但依旧有限。Boyce 等<sup>[40]</sup>突破 Wang 等<sup>[41]</sup>模型中对液桥瞬时形成的假设,考虑了液体传递和液桥成型所用的时间。Wu 等<sup>[42]</sup>通过湿颗粒间液桥填充过程的 VoF (Volume of Fluid) 模拟提取湿颗粒的表面位置,利用直接数值模拟(Direct Numerical Simulation, DNS),得到了预测动态液体桥形成的模型,并提出液桥的形成过程可分为两个阶段,初始的快速填充阶段由毛细管力主导,后续较慢的黏性填充阶段由黏性效应主导。目前大部分液体桥力研究较少考虑动态液体桥力,Askarishahi 等<sup>[43]</sup>近期的工作缺乏详细的液桥转移和动态液体桥力模型。

对于易挥发液体润湿的湿颗粒体系,其黏结机理更为复杂。液相存在既会产生液体桥力引发黏结,又会发生液体蒸发阻止黏结。液体蒸发后颗粒间会形成固体桥。Zhou 等<sup>[4]</sup>通过含水电磁感应石墨-石蜡颗粒流化床发现了液体桥力和液体蒸发在颗粒黏结中的竞争关系,通过引入相对固体桥力,解释了这种竞争关系下黏结程度随水加入量变化的 3 种变化趋势。

### 2.2 团聚判据

判断团聚结果可从受力平衡和能量平衡两个角度进行。非接触式黏性力的团聚判据多为定量,而接触式黏性力因力学模型还未成熟,团聚判据大多为定性。Zhou 等<sup>[6]</sup>从受力平衡的角度,视范德华力为主要黏性力,忽略静电力的作用,认为单个聚团受到的曳力、碰撞力、黏性力和表观重力的合力为零,得到了关于聚团直径的一元二次方程;当方程有实根时,聚团碰撞后会发生分离或破碎。Weber 等<sup>[44]</sup>从能量角度将黏性力作用过程视为颗粒动能和势能转化的过程,引入方阱深度(Square-well depth)描述黏附作用的强弱,提出方阱(Square-well)模型判断粗颗粒接触后的黏结和分离。

Ennis 等<sup>[45]</sup>基于实验提出了湿颗粒团聚的判据——临界 Stokes 常数  $St_v^*$ 。 $St_v$  为选定空间的平均 Stokes 常数,当  $St_v / St_v^* \rightarrow 0$  时,所有  $St_v$  均小于  $St_v^*$ ,碰撞颗粒均会发生团聚,且团聚速率与碰撞颗粒初始动能、液体粘度均无关,只受液体分布影响。当  $St_v \approx St_v^*$  时,团聚有可能发生,这取决于液体的粘度和碰撞颗粒的初始动能。当  $\overline{St_v} \approx St_v^*$ , 大部分颗粒不会发生团聚。

Boyce 等<sup>[40,46]</sup>基于 CFD-DEM 模拟,引入了邦德数  $Bo$  [Bond number,  $Bo = 6\sigma / (\rho_p g d_p^2)$ ], 式中  $\sigma$  为表面张力,



$\rho_p$ 为颗粒密度, $g$ 为重力加速度]及毛细管数 $Ca$ (Capillary number,  $Ca = \mu_l v_t / \sigma$ , 式中 $\mu_l$ 为液体黏度, $v_t$ 是颗粒的终端速度),通过考察不同 $Bo$ 和 $Ca$ 下干燥流化床中湿颗粒聚团生长和破碎情况,得到了基于 $Bo$ 和 $Ca$ 的聚团行为图(图2)。这与 Ennis 等<sup>[45]</sup>提出的 Stokes 理论略有不同,Ennis 等<sup>[45]</sup>认为 $Bo$ 对聚团行为的影响可忽略不计,而 $Ca$ 越大聚团生长越快。两种理论的差异主要源于考察重点不同,如将两者结合,将有可能得到多维的聚团行为图,进一步完善湿颗粒团聚判据。

综上所述,在颗粒尺度上,近年来不同黏性力的研究进展差异较大。对于两种非接触式黏性力,结合两种力已有的力学理论基础,根据实际黏性颗粒流进一步改进模型,是非接触式黏性力发展的主要思路。基于范德华力的近程性,细颗粒的黏性力研究在表面粗糙度等方向上而不断深入;由于检测技术的发展和化害为利的思路转变,对黏性颗粒流中静电作用的研究,在远程性、多样性和可控性三个方向上推进明显。从黏性颗粒流研究中衍生的两种接触式黏性力并不具备完备的理论基础,目前的研究主要集中于建立完整的黏性力模型。其中,对于液体桥力,静态液体桥力模型已较成熟,动态液体桥力的研究开始有所突破但仍需后续推进;而固体桥力模型进展相对缓慢,抗拉伸强度的模型化问题仍亟待解决。4种黏性力模型基本停留在静力学模型层面,如何引入时间维度,建立成熟的黏性力动力学模型、颗粒团聚过程模型,将成为下一阶段研究的主要方向。此外,实际过程中的黏性力通常不止一种,多种黏性力作用下的团聚机理和流化特性研究均有待推进。

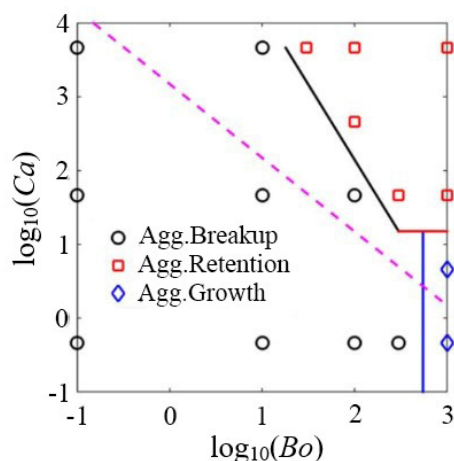


图2 基于 $Bo$ 和 $Ca$ 的聚团行为图<sup>[46]</sup>

Fig.2 Map of agglomerate behavior based on  $Bo$  and  $Ca$ <sup>[46]</sup>

### 3 黏性颗粒流化特性研究

#### 3.1 实验研究

黏性颗粒流化特性的实验研究主要可分为两类,一类是从自变量出发研究不同实验条件和体系下的黏性颗粒流,其中伴随反应的研究逐渐引起关注。随着反应的发生,颗粒性质和温度等操作条件均会改变,从而影响颗粒聚团结构和颗粒流化特性,聚团结构、化学反应、气固传质间的复杂耦合关系对黏性颗粒流态化研究非常重要<sup>[47,48]</sup>。在近期的研究工作中,Li 等<sup>[49]</sup>在 $Fe_2O_3$ 纳米颗粒还原流化床实验中,运用固体桥力与碰撞力的力平衡模型判断颗粒团聚,通过动力学研究发现铁纳米颗粒的生长遵循成核机制,首次提出了耦合反应动力学的力平衡团聚机理,并基于模型阐明了二级流化床法防止铁纳米颗粒烧结的原因,这对于指导克服高温流化床中的烧结现象有重要意义。另一类研究工作从因变量出发开发新的流化特性监测方法和分析方法。继压力信号监测<sup>[50]</sup>和声发射信号监测<sup>[51]</sup>之后,静电、核磁共振等新的监测方法也逐渐崭露头角。Yang 等<sup>[52]</sup>发现流化床中聚乙烯结块下降会影响流化床中颗粒的浓度分布和颗粒的表面电荷,引发的V形静电信号波动可为颗粒黏结检测提供依据。Zhang 等<sup>[53]</sup>建立了一种多级法拉第杯流化床,通过同时测量静电电流和压降,发现这两个信号在时域和频域上均有显著的相似性,提供了一种用静电信号描述气体固体流化床中气泡行为的方法。在近期的研究中,Yang 等<sup>[54]</sup>尝试用静电信号描述颗粒运动,实验结果验证了气固流化床中用感应静电传感器测量水平截面上颗粒平均速度的可靠性和重复性,但仍需进一步的研究阐明每个因素的影响,提供更多的局部结果。为解决在空间和时间上对床层内颗粒进行检测,Penn 等<sup>[55]</sup>基于核磁共振成像方法,提出了一种实时探测颗粒动力学的方法,检测速度较以前提高了4个数量级。

#### 3.2 模拟研究

随着计算机技术的迅猛发展和机理模型的不断完善,数值模拟已成为颗粒流态化研究的重要方法。常见的模拟方法主要有将气固两相均视为连续相的CFD方法,将颗粒视为离散相的DEM方法和将气相视为连续相、颗粒视为离散相的CFD-DEM方法。对于黏性颗粒的气固流态化模拟研究,耦合黏性力模型的CFD-DEM模拟已成为目前主要方向。近年来的模拟研究,模拟尺度逐渐从二维流化床过渡到三维流化床,受限于计算负荷,模拟的颗粒数基本在 $10^6$ 以下;黏性力模型、曳力模型等机理模型的准确度对模拟的影响逐渐得到重视。

Yang 等<sup>[56]</sup>耦合库仑力模型,运用CFD-DEM模型模拟了二维流化床中静电力对颗粒扬析的影响。Kolehmainen 等<sup>[57]</sup>将静电作用分为远程作用和近程作用,

提出了基于电场强度的三维流化床静电力混合计算方法,并通过实例验证了该方法优于单极和双极系统;模拟结果表明,当电荷单分散时,远程的静电作用起主导作用。Liu 等<sup>[58]</sup>提出了一种模拟分层分形结构的纳米颗粒聚团流态化的黏性 CFD-DEM 模型,考虑了聚团的破碎和流化,在常规 CFD-DEM 模型的基础上耦合了基于实验数据修改的黏性力模型和电力模型,通过 30000 个颗粒在正碰、聚团流态化等情况下的三维模拟研究,模型的适用性得到了验证。由于假设纳米颗粒聚团粒径均一、形状均为球形,该模型还有改进空间。Gan 等<sup>[59]</sup>运用 CFD-DEM 方法模拟了 18000 个椭球形颗粒在范德华力作用下的三维流态化,考察了颗粒粒径、颗粒形状和黏性力对细颗粒流态化的影响,发现颗粒粒径越大,球度越低,最小流化速度越大,床层压降越剧烈;随颗粒粒径减小,黏性力增加,颗粒将以链状形式团聚(图3)。形成团聚链的必要条件是具备足够大的范德华力、细长的颗粒形状、颗粒速度基本在相同方向及足够的空间。对于接触式黏性力作用下的颗粒流, Wu 等<sup>[60]</sup>将 3 种不同液体桥力模型与 CFD-DEM 方法耦合,进行三维流化床模拟,发现基于 Wu 等<sup>[42]</sup>提出的液体桥力动力学模型的模拟结果与其它两种模型差异较大,并基于  $Bo$  和  $Ca$  给出了 3 种液体桥力模型的适用区间。

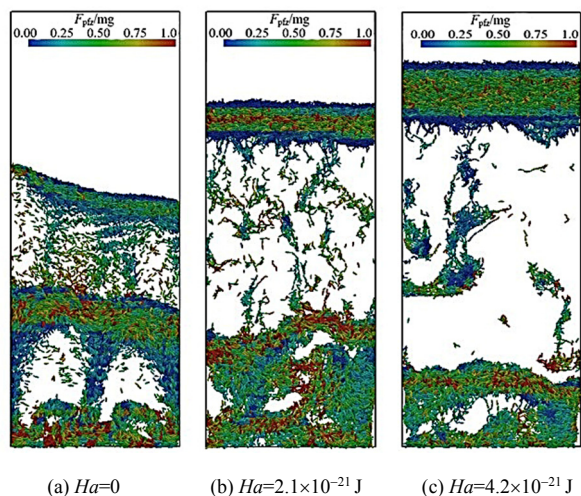


图3 不同 Hamaker 常数( $Ha$ )下宏观流态化模拟结果<sup>[59]</sup>  
Fig.3 Simulation results of macro-fluidization for prolate particles with different Hamaker constant ( $Ha$ )<sup>[59]</sup>

在反应器尺度上,黏性颗粒流态化研究有如下几个特点:(1)对于实验研究,在现有的冷模实验基础上,耦合反应的黏性颗粒流态化研究近期有所发展;(2)在外部监测方法上,继压力信号监测和声发射信号监测之后,静电信号、核磁共振成像等新的流态化监测方法逐渐崭露头角,将进一步推动实验研究的发展;(3)对于

黏性颗粒流的模拟研究,耦合黏性力模型的 DEM 模拟、CFD-DEM 模拟是主要的研究方法,模拟尺度逐渐完成从二维流化床到三维流化床转变,曳力模型、黏性力模型的准确性将成为后续研究的重要突破点;(4)随计算能力提升,模拟研究中流化床的空间结构复杂度、流化颗粒的数量和真实度均有望进一步提高。

## 4 结语与展望

从微观颗粒受力到宏观流化特性,对颗粒运动的多尺度描述是黏性颗粒流研究的重点。在反应器尺度上的流化床实验是黏性颗粒流研究中最早采用的方法;反应器尺度上的流化床模拟研究是对实验研究的重要补充和拓展;而在颗粒尺度上基于黏性力模型的颗粒团聚机理逐渐被视为黏性颗粒流研究中不可或缺的基础。黏性力、流化床实验和流化床数值模拟三者环环相扣,相辅相成。

流化床实验的研究进展,外部监测技术的研究焦点逐渐转移到静电信号和核磁共振成像等新监测方法上,研究思路正在从基于气相压降、声波的间接监测向对颗粒相本身的直接监测发展,但如何监测到更详细的颗粒相信息并以此建立效果更好的黏结过程监控技术,是目前外部监测研究领域的难点。发挥直接监测的优势,建立颗粒速度、颗粒密度分布等详细的颗粒相信息与直接监测信号的联系;在空间上提高监测技术的分辨率,完成监测信息从整场到细节的突破;在时间上类比基于吸引子比较法的压力监测<sup>[61]</sup>,开发基于颗粒相信息的黏结过程在线监控技术,是外部监测技术下一阶段主要的研究思路。在本征的流化特性实验研究方面,对表观气速、温度等操作条件,湿颗粒中液体含量、表面张力、黏度等液体性质及颗粒粒径、密度等常规颗粒性质的考察已较完备,但由于特定的实验设备和条件限制,现有实验结论的可用性、普适性往往有限,且不一致现象时有发生。加强无量纲分析是扩大现有结论应用范围的思路之一。

近年来,对于黏性颗粒流的模拟研究,耦合黏性力模型的 DEM 模拟、CFD-DEM 模拟已成为主要的方法,但依然存在 4 大难点需要突破:(1)颗粒模型人为简化是目前模拟与实验间偏差的重要来源之一,增强对流化颗粒的真实还原已成为必需。首先要引入对粒径分布、不规则形状等更多颗粒性质的数值描述,尝试用 3~12 种粒径的颗粒描述多分散颗粒<sup>[62]</sup>,用分形维数表征形状不规则度<sup>[63]</sup>等;(2)在黏性颗粒流态化过程中,由于团聚,颗粒相会形成介于初始颗粒尺度和反应器尺度的介尺度聚团单元,流化床将呈现非均匀的流动结构,需对

传统曳力模型进行修正。对于黏性颗粒多相系统,基于能量最小多尺度(Energy Minimization Multi-scale, EMMS)模型进行曳力作用模拟<sup>[64]</sup>是可行的思路之一;(3)已经报道的模拟工作中,一部分黏结机理模型,尤其是以能量平衡建立的模型,其描述黏性的模拟参数大部分未与实验操作条件或物性参数建立联系,对工业操作的指导有限。通过与团聚实验的全面对照,建立模拟参数与实验参数的定性甚至定量关系十分必要;(4)数值计算成本一直是限制模拟颗粒数量的主要原因。解决此问题有两种思路,一种是用并行计算或高性能计算的图形处理器(Graphic Processing Unit, GPU)提高计算能力<sup>[65]</sup>;第二种是优化模型和算法,如采用MP-PIC(Multiphase particle-in-cell)模型,用计算粒子表征具备相同动力学特征的颗粒群,降低模拟的计算量<sup>[66]</sup>。

随着模拟研究深入,越来越多的研究者意识到黏结机理模型是影响黏性颗粒流模拟结果的关键因素,一些实验现象也需要黏结机理进行支撑分析,因此对黏结机理的研究迫在眉睫。(1)对比4种黏性力的研究进度,固体桥力的模型研究在较长时间内受阻于抗拉伸强度,研究进展落后于其它3种黏性力,相关的流化床实验和模拟研究随之受限。现有研究主要探索了抗拉伸强度与温度、压力、黏结时间等操作条件的关系,而与物性的关系则不明朗。基于更多的实验数据,从固体表面能和材料流变性的角度进行深入研究,是研究无量纲定量抗拉伸强度模型的思路之一;(2)颗粒表面性质是影响近程力范德华力和固体桥力、液体桥力两种接触式黏性力的关键因素,耦合表面粗糙度、形状不规则度等性质提高模型的准确度,是黏性力模型研究中的又一难点。对此,选择或设计合适的表征方法是主要的解决思路;(3)黏结过程一直是黏结机理研究的难点,聚团结块过程中颗粒的取向机制、配位机制仍然未知,借助高速摄像、示踪技术的实验研究和基于热力学的理论分析,或将推动黏结过程机制的研究;(4)实际过程中的黏性力通常不止一种,多黏性力间的作用关系还需进行系统性研究。

#### 参考文献

- [1] Kennedy D, Norman C. What don't we know? [J]. Science, 2005, 309(5731): 75.
- [2] 孙其诚, 王光谦. 颗粒物质力学导论 [M]. 北京: 科学出版社, 2009: 前言 1.  
Sun Q C, Wang G Q. Introduction to the mechanics of particulate matter [M]. Beijing: Science Press, 2009: preface 1.
- [3] 陆夕云, 林建忠. 能否发展关于湍流动力学和颗粒材料运动学的综合理论? [J]. 科学通报, 2017, 62(11): 1115-1118.  
Lu X Y, Lin J Z. Can we develop a general theory of the dynamics of turbulent flows and motion of granular materials? [J]. Chinese Science Bulletin, 2017, 62(11): 1115-1118.
- [4] Zhou Y F, Shi Q, Huang Z L, et al. Particle agglomeration and control of gas-solid fluidized bed reactor with liquid bridge and solid bridge coupling actions [J]. Chemical Engineering Journal, 2017, 330: 840-851.
- [5] 张永俊, 王嘉骏, 顾雪萍, 等. 黏性颗粒流态化的气固流动模型研究进展 [J]. 过程工程学报, 2014, 14(3): 535-540.  
Zhang Y J, Wang J J, Gu X P, et al. Research progress in numerical models on gas-solid fluidization of cohesive particles [J]. The Chinese Journal of Process Engineering, 2014, 14(3): 535-540.
- [6] Zhou T, Li H Z. Force balance modelling for agglomerating fluidization of cohesive particles [J]. Powder Technology, 2000, 111(1): 60-65.
- [7] 李娜, 王嘉骏, 冯连芳, 等. 黏结性粗颗粒流动与流态化的研究进展 [J]. 化工进展, 2014, 33(2): 298-303.  
Li N, Wang J J, Feng L F, et al. Research progress of granular flow and fluidization behavior of coarse cohesive particles [J]. Chemical Industry & Engineering Progress, 2014, 33(2): 298-303.
- [8] Geldart D. Types of gas fluidization [J]. Powder Technology, 1973, 7(5): 285-292.
- [9] 马吉亮. 接触式粘性力对颗粒流态化的影响机理研究 [D]. 南京: 东南大学, 2016: 1-11.  
Ma J L. Investigation on fluidization dynamics of particles with contact cohesive force [D]. Nanjing: Southeast University, 2016: 1-11.
- [10] Liang X Z, Duan H, Zhou T, et al. Fluidization behavior of binary mixtures of nanoparticles in vibro-fluidized bed [J]. Advanced Powder Technology, 2014, 25(1): 236-243.
- [11] 王希. 粘性大颗粒流态化过程流化粘团结特性研究 [D]. 北京: 清华大学, 2011: 1-22.  
Wang X. Study on fluidization and bond characteristics of coarse cohesive particles in fluidized process [D]. Beijing: Tsinghua University, 2011: 1-22.
- [12] Lamarche C Q, Leadley S, Liu P, et al. Method of quantifying surface roughness for accurate adhesive force predictions [J]. Chemical Engineering Science, 2016, 158: 140-153.
- [13] Liu P Y, Lamarche C Q, Kellogg K M, et al. Cohesive grains: bridging microlevel measurements to macrolevel flow behavior via surface roughness [J]. AIChE Journal, 2016, 62(10): 3529-3537.
- [14] Lu H, Zhong J, Cao G P, et al. Gravitational discharge of fine dry powders with asperities from a conical hopper [J]. AIChE Journal, 2017, 64(2): 427-436.
- [15] Liu G Q, Li S Q, Yao Q. A JKR-based dynamic model for the impact of micro-particle with a flat surface [J]. Powder Technology, 2011, 207(1/3): 215-223.
- [16] Chaouki J, Chavarie C, Klvana D, et al. Effect of interparticle forces on the hydrodynamic behaviour of fluidized aerogels [J]. Powder Technology, 1985, 43(2): 117-125.
- [17] Tamadondar M R, Zarghami R, Boutou K, et al. Size of nanoparticle agglomerates in fluidization [J]. Canadian Journal of Chemical Engineering, 2016, 94(3): 476-484.
- [18] Iwadata Y, Horio M. Prediction of agglomerate sizes in bubbling fluidized beds of group C powders [J]. Powder Technology, 1998, 100(2): 223-236.
- [19] 周勇, 高凯歌, 李海念, 等. 超细颗粒流化聚团尺寸的预测模型 [J]. 中国粉体技术, 2017, (5): 7-12.  
Zhou Y, Gao K G, Li H N, et al. Models for estimating agglomerate size of ultrafine particles in fluidized beds [J]. China Powder Science

- and Technology, 2017, (5): 7–12.
- [20] Lauga C, Chaouki J, Klvana D, et al. Improvement of the fluidizability of Ni/SiO<sub>2</sub> aerogels by reducing interparticle forces [J]. Powder Technology, 1991, 65(S1/3): 461–468.
- [21] Valverde J M, Castellanos A. Fluidization of nanoparticles: a simple equation for estimating the size of agglomerates [J]. Chemical Engineering Journal, 2008, 140(1): 296–304.
- [22] 杨遥. 静电流化床中流体力学特性的调控机制研究 [D]. 杭州: 浙江大学, 2016: 1–38.
- Yang Y. Regulation of hydrodynamics in the fluidized bed with electrostatic [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2016: 1–38.
- [23] Fotovat F, Bi X T, Grace J R. Electrostatics in gas–solid fluidized beds: a review [J]. Chemical Engineering Science, 2017, 173: 303–334.
- [24] 柳冠青. 范德华力和静电力下的细颗粒离散动力学研究 [D]. 北京: 清华大学, 2011: 1–14.
- Liu G Q. Discrete element methods of fine particles dynamics in presence of Van der Waals and electrostatic forces [D]. Beijing: Tsinghua University, 2011: 1–14.
- [25] Wang F, Wang J D, Yang Y R. Distribution of electrostatic potential in a gas–solid fluidized bed and measurement of bed level [J]. Industrial and Engineering Chemistry Research, 2008, 47(23): 9517–9526.
- [26] Song D, Mehrani P. Mechanism of particle build-up on gas–solid fluidization column wall due to electrostatic charge generation [J]. Powder Technology, 2017, 316: 166–170.
- [27] Song D, Salama F, Matta J, et al. Implementation of faraday cup electrostatic charge measurement technique in high-pressure gas–solid fluidized beds at pilot-scale [J]. Powder Technology, 2016, 290: 21–26.
- [28] Liu G, Marshall J S, Li S Q, et al. Discrete-element method for particle capture by a body in an electrostatic field [J]. International Journal for Numerical Methods in Engineering, 2010, 84(13): 1589–1612.
- [29] Dong K Z, Zhang Q, Huang Z L, et al. Experimental investigation of electrostatic effect on bubble behaviors in gas–solid fluidized bed [J]. AIChE Journal, 2015, 61(4): 1160–1171.
- [30] Dong K Z, Zhang Q, Huang Z L, et al. Experimental investigation of electrostatic effect on particle motions in gas–solid fluidized beds [J]. AIChE Journal, 2015, 61(11): 3628–3638.
- [31] Mikami T, Kamiya H, Horio M. The mechanism of defluidization of iron particles in a fluidized bed [J]. Powder Technology, 1996, 89(3): 231–238.
- [32] 郭庆杰, 王昕, 岳光溪, 等. 高温流化床的流化特性及结焦非流化行为 [J]. 燃烧科学与技术, 2002, 8(2): 130–134.
- Guo Q J, Wang X, Yue G X, et al. Flow characteristics and defluidization behavior with agglomeration at high temperature fluidized bed [J]. Journal of Combustion Science and Technology, 2002, 8(2): 130–134.
- [33] 赵硕, 栾超, 由长福. 温度、接触压力与时间对燃煤飞灰固体桥力的影响规律 [J]. 化工学报, 2016, 67(6): 2542–2547.
- Zhao S, Luan C, You C F. Effect of temperature, contact pressure and duration on solid-bridge force of coal ash [J]. CIESC Journal, 2016, 67(6): 2542–2547.
- [34] Ennis B J, Li J, Tardos G I, et al. The influence of viscosity on the strength of an axially strained pendular liquid bridge [J]. Chemical Engineering Science, 1990, 45(10): 3071–3088.
- [35] Mikami T, Kamiya H, Horio M. Numerical simulation of cohesive powder behavior in a fluidized bed [J]. Chemical Engineering Science, 1998, 53(10): 1927–1940.
- [36] Shi D, McCarthy J J. Numerical simulation of liquid transfer between particles [J]. Powder Technology, 2008, 184(1): 64–75.
- [37] Girardi M, Radl S, Sundaresan S. Simulating wet gas–solid fluidized beds using coarse-grid CFD–DEM [J]. Chemical Engineering Science, 2016, 144: 224–238.
- [38] 韩笑. 气固流化床中持液颗粒的流化特性及反应器模型研究 [D]. 杭州: 浙江大学, 2013: 34–49.
- Han X. Research on fluidization characteristics of liquid-containing particles and reactor modeling in gas–solid fluidized bed [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2013: 34–49.
- [39] Yakov I, Rabinovich Madhavan S, Esayanur Brij M, et al. Capillary forces between two spheres with a fixed volume liquid bridge: theory and experiment [J]. Langmuir, 2005, 21(24): 10992–10997.
- [40] Boyce C M, Ozel A, Kolehmainen J, et al. Analysis of the effect of small amounts of liquid on gas–solid fluidization using CFD–DEM simulations [J]. AIChE Journal, 2017, 63(12): 5290–5302.
- [41] Wang T Y, He Y R, Tang T Q, et al. Experimental and numerical study on a bubbling fluidized bed with wet particles [J]. AIChE Journal, 2016, 62(6): 1970–1985.
- [42] Wu M, Radl S, Khinast J G. A model to predict liquid bridge formation between wet particles based on direct numerical simulations [J]. AIChE Journal, 2016, 62(6): 1877–1897.
- [43] Askarishahi M, Salehi M S, Radl S. Full physics simulations of spray–particle interaction in a bubbling fluidized bed [J]. AIChE Journal, 2017, 63(7): 2569–2587.
- [44] Weber M W, Hrenya C M. Square-well model for cohesion in fluidized beds [J]. Chemical Engineering Science, 2006, 61(14): 4511–4527.
- [45] Ennis B J, Tardos G, Pfeffer R. A microlevel-based characterization of granulation phenomena [J]. Powder Technology, 1991, 65(1/3): 257–272.
- [46] Boyce C M, Ozel A, Kolehmainen J, et al. Growth and breakup of a wet agglomerate in a dry gas–solid fluidized bed [J]. AIChE Journal, 2017, 63(7): 2520–2527.
- [47] Shao J H, Guo Z C, Tang H Q. Influence of temperature on sticking behavior of iron powder in fluidized bed [J]. ISIJ International, 2011, 51(8): 1290–1295.
- [48] Ge W, Wang W, Yang N, et al. Meso-scale oriented simulation towards virtual process engineering (VPE)—the EMMS paradigm [J]. Chemical Engineering Science, 2011, 66(19): 4426–4458.
- [49] Li J, Kong J, He S Y, et al. Self-agglomeration mechanism of iron nanoparticles in a fluidized bed [J]. Chemical Engineering Science, 2017, 177: 455–463.
- [50] Zi C, Lungu M, Huang Z L, et al. Investigation of unstable solids circulation behavior in a circulating fluidized bed with sweeping bend return using pressure frequency analysis [J]. Powder Technology, 2016, 294: 159–167.
- [51] Zhou Y F, Yang L, Lu Y J, et al. Flow regime identification in gas–solid two-phase fluidization via acoustic emission technique [J]. Chemical Engineering Journal, 2017, 334: 1484–1492.
- [52] Yang Y, Huang Z L, Zhang W B, et al. Effects of agglomerates on electrostatic behaviors in gas–solid fluidized beds [J]. Powder Technology, 2016, 287: 139–151.
- [53] Zhang Q, Dong K Z, Zhou Y F, et al. A comparative study of



- electrostatic current and pressure signals in a MSFC gas-solid fluidized bed [J]. *Powder Technology*, 2016, 287: 292–300.
- [54] Yang Y, Zhang Q, Zi C, et al. Monitoring of particle motions in gas-solid fluidized beds by electrostatic sensors [J]. *Powder Technology*, 2017, 308: 461–471.
- [55] Penn A, Tsuji T, Brunner D O, et al. Real-time probing of granular dynamics with magnetic resonance [J]. *Science Advances*, 2017, 3(9): e1701879.
- [56] Yang Y, Zi C, Huang Z L, et al. CFD-DEM investigation of particle elutriation with electrostatic effects in gas-solid fluidized beds [J]. *Powder Technology*, 2016, 308: 422–433.
- [57] Kolehmainen J, Ozel A, Boyce C M, et al. A hybrid approach to computing electrostatic forces in fluidized beds of charged particles [J]. *AIChE Journal*, 2016, 62(7): 2282–2295.
- [58] Liu D Y, Van Wachem B G M, Mudde R F, et al. An adhesive CFD-DEM model for simulating nanoparticle agglomerate fluidization [J]. *AIChE Journal*, 2016, 62(7): 2259–2270.
- [59] Gan J Q, Zhou Z Y, Yu A B. CFD-DEM modelling of gas fluidization of fine ellipsoidal particles [J]. *AIChE Journal*, 2016, 62(1): 62–77.
- [60] Wu M Q, Khinast J G, Radl S. The effect of liquid bridge model details on the dynamics of wet fluidized beds [J]. *AIChE Journal*, 2018, 64: 437–456.
- [61] 郑会晓. 粘性大颗粒流态化研究 [D]. 北京: 清华大学, 2008: 58–80.
- Zheng H X. The fluidization of coarse cohesive particles [D]. Beijing: Tsinghua University, 2008: 58–80.
- [62] Galvin J E, Benyahia S. The effect of cohesive forces on the fluidization of aeratable powders [J]. *AIChE Journal*, 2014, 60(2): 473–484.
- [63] Deng X L, Davé R N. Breakage of fractal agglomerates [J]. *Chemical Engineering Science*, 2017, 161: 117–126.
- [64] Wang W, Li J H. Simulation of gas-solid two-phase flow by a multi-scale CFD approach of the EMMS model to the sub-grid level [J]. *Chemical Engineering Science*, 2007, 62(1): 208–231.
- [65] 周池楼, 赵永志. 离散单元法及其在流态化领域的应用 [J]. *化工学报*, 2014, 65(7): 2520–2534.
- Zhou C L, Zhao Y Z. Discrete element method and its applications in fluidization [J]. *CIESC Journal*, 2014, 65(7): 2520–2534.
- [66] Feng M Y, Li F, Wang W, et al. Parametric study for MP-PIC simulation of bubbling fluidized beds with geldart a particles [J]. *Powder Technology*, 2018, 328: 215–226.