

Fluid-Shearing and Viscous Fractal Dimension of Flocs

Jun Xing, Shiqiang Ding, Zhengning Liu, Jirun Xu

College of Environmental and Chemical Engineering, Dalian University, Dalian Liaoning
Email: xujirun@126.com

Received: May 24th, 2016; accepted: Jul. 1st, 2016; published: Jul. 4th, 2016

Copyright © 2016 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

Abstract

On the basis of the model developed by authors to relate the apparent viscosity of flocculated suspensions with the viscous fractal dimensions of flocs being of various morphologies, the fractal dimensions, specific viscosities and compositions of the single particles, linear flocs, planar flocs and volumetric flocs are investigated experimentally at different fluid shearing conditions and stable flocculation progress. The results show that the viscous fractal dimensions of linear, planar and volumetric flocs increase rapidly at first and gradually then with the reinforcement of shearing rate, but the specific viscosities of all kind of flocs including single particles are independent of the shearing rate, and the specific viscosities of linear, planar and volumetric flocs differ from each other by a order of magnitude in turn. The viscous compositions of all flocs and single particles are the function of both shearing rate and solid concentration, and different composition behaviors are revealed. The main experimental results are analyzed and explained qualitatively by considering the double mechanism of floc formation and breakage resulted from the fluid shearing.

Keywords

Flocculation, Apparent Viscosity, Viscous Fractal Dimension, Specific Viscosity, Floc Composition, Fluid Shearing

流体剪切与絮团的粘性分维数

邢 军, 丁仕强, 刘正宁, 徐继润

大连大学, 环境与化学工程学院, 辽宁 大连
Email: xujirun@126.com

收稿日期：2016年5月24日；录用日期：2016年7月1日；发布日期：2016年7月4日

摘要

本文在已建立的絮凝体系表观粘度与不同形态絮团粘性分维数关系的理论模型基础上，实验考查了絮凝平衡状态下单体颗粒、线状絮团、面状絮团及体状絮团的粘性分维数、特征粘度、絮团的粘性组成等随流体剪切速率的变化情况。研究表明，流体剪切作用的强化增大了线状、面状及体状絮团的粘性分维数，但所有絮团的特征粘度与流体剪切速率无关，线状、面状及体状絮团的特征粘度彼此之间依次具有一个数量级的差异。所有絮团的粘性组成都与剪切速率有关，也与固相浓度有关，且不同絮团的组成具有不同的变化态势。文中对主要的实验结果从絮团形成与碎裂的双重机制给予了定性解释。

关键词

絮凝，表观粘度，粘性分维数，特征粘度，絮团组成，流体剪切

1. 引言

流体剪切的影响在絮凝研究的起始阶段就受到特别的关注[1]并一直持续至今[2] [3]，而絮团的分形特征自 1980 年代末[4]被人们意识到以来也一直是研究的热点问题之一。流体剪切对絮凝过程的影响有两个方面，一是为原始颗粒提供相互碰撞而形成絮团的机会，二是改变已形成絮团的空间结构(包括絮团尺寸与絮团的形态)。分维数是絮团在空间形态上自相似性的定量表征，其与絮团的密实程度密切相关。作为操作参数的流体剪切速率与絮团性质之间自然存在某种联系，如 Tambo and Hozumi [5]曾提出最大絮团粒度 d_{\max} 与剪切速率 G 之间的关系：

$$d_{\max} = CG^{-x} \quad (1)$$

其中 C 、 x 为常数，而 Li and Logan [6]证明在湍流条件下絮团分维数 D 与碰撞频率 β 及流体剪切速率 G 之间存在下列关联：

$$\beta \sim G^{(1-D/3)} \quad (2)$$

近年来 Dongsheng Wang 等[7]关于絮团“形成~剪切~重组”的实验研究表明：在絮团的生长阶段，在一定的剪切速率下，用光散射法测量的絮团质量分维数随絮凝时间的延长而增大；接着以突然增加的高剪切率使絮团破碎，絮团分维数也随之突然增大；然后降低搅拌速度使碎裂的絮团重新生成新的絮团，新生成絮团的分维数较碎裂前有所提高。类似的结果在其之前的研究中也发现[8] [9]。然而，Zhongfan Zhu 等[10]用图像分析法测量的絮团边界分维数及面积分维数随剪切速率的变化情况，发现面积分维数随剪切速率的增大而增大，但边界分维数随剪切速率的增大而减小，他们将此解释为流体剪切作用使絮团边界趋于规则。由此可见，不同定义的絮团分维数与流体剪切速率之间可能具有不同的关系。

笔者在之前的研究中，对絮凝过程中形成的絮团按空间形态进行了分类，并提出了絮团粘性分维数的概念，建立了絮凝体系的表现粘度与不同类型絮团粘性分维数之间的数学模型[11] [12]，本文将报道在絮凝平衡状态下不同絮团的粘性分维数及相关性质随流体剪切条件变化的实验结果。

2. 理论模型与实验条件

絮凝过程中固体颗粒的存在状态可分为四种类型：即单体颗粒(指絮凝后仍单独存在的颗粒，包括从

未参与絮凝的原始颗粒以及从絮团中剥落下来的单个颗粒)、线状絮团(指由至少两个单体颗粒形成的直线型聚集体,其所有构成颗粒的中心在一条直线上)、面状絮团(系由至少 3 个单体颗粒形成的平面状聚集体,其所有构成颗粒的中心在一个平面上)及体状絮团(指至少由 4 个单体颗粒构成的三维聚集体,其构成颗粒的中心不在同一平面上),这四种类型囊括了絮凝处理后的固液体系中所有固体物料可能的存在方式。在此基础上,笔者从理论上导出絮凝处理后平衡状态下固液体系表观粘度与不同类型絮团粘性分维数的数学模型[11] [12]:

$$\eta = \eta_m + \eta^{(0)} X^{D_{f0}+1} + \eta^{(1)} X^{D_{f1}+1} + \eta^{(2)} X^{D_{f2}+1} + \eta^{(3)} X^{D_{f3}+1} \quad (3)$$

其中 η 为表观粘度, X 为固相的体积比浓度, η_m 为纯液相粘度, D_{f0} 、 D_{f1} 、 D_{f2} 、 D_{f3} 分别为单体颗粒、线状絮团、面状絮团及体状絮团的粘性分维数(由于该分维数是通过测量体系的粘度所得,故名之为粘性分维数,以区别于已有的其它分维数),模型中右侧各项分别代表纯液相、单体颗粒、线状絮团、面状絮团及体状絮团对体系表观粘度的贡献, $\eta^{(i)}$ ($i=0,1,2,3$) 为相应的比例系数或称特征粘度(因其具有粘度的量纲)。据此定义 i ($i=0,1,2,3$) 类絮团的粘性组成为:

$$\gamma(i) = \frac{\eta^{(i)} X^{D_{fi}+1}}{\sum_{i=0}^3 \eta^{(i)} X^{D_{fi}+1}} \times 100\% \quad (4)$$

模型(3)首次将絮团按空间形态分为单体颗粒、线状絮团、面状絮团及体状絮团等四种类型,在一个数学模型里同时包括了各类絮团的分维数并可定量测量之。该模型测得的絮团分维数直接反映了所有絮团的影响,不需像测量其它分维数(如质量分维数、边界及面积分维数等)那样对大量絮团个体进行统计处理。此外,该模型提供了一种从模型中各类絮团对体系粘度的相对贡献评估其组成的方法。

实验装置已在文献[13]中给出。实验物料为氧化铁粉末,平均粒度 $4.2 \mu\text{m}$; 固液体系的 $\text{pH} = 6.9$, 温度为 20°C ; 絮凝剂为分子量 700 万的阴离子型聚丙烯酰胺,用量恒定为 400 g/t 固体; 絮凝平衡(絮凝时间为 1000 秒)后使用 DV-III + 型同轴圆筒式流变仪测定固液体系的表观粘度,同时用 BT9300 型激光粒度仪测定絮团的平均粒度; 在实验中,保持絮凝器内的剪切速率与流变仪的剪切速率一致; 使用蠕动泵向流变仪及粒度仪输送絮凝样品,以尽可能减少输送过程中絮团粒度的变化。

3. 结果与讨论

3.1. 粘性分维数与剪切速率

不同流体剪切速率下,固液体系表观粘度随固相浓度变化的测定结果如图 1 所示,该图表明所测定的絮凝体系从流变学角度说属于剪切稀化型,在固相浓度增大时尤其明显。按模型(3),得到不同剪切速率下各类絮团的粘性分维数并列于表 1。其中,单体颗粒作为质点,其粘性分维数 $D_{f0} = 0$ 。其它各类絮团的粘性分维数均随剪切速率的增大而增大,但在低剪切时增加较快,而后则逐渐增大,这与近来其他学者关于质量分维数及面积分维数的研究结果[7]-[10]是类似的。

通常认为,流体剪切对絮凝过程有两重作用:一方面,流体剪切提高了原始颗粒及絮团之间的碰撞几率,因而有助于絮团的形成;另一方面,剪切作用造成絮团破碎,使絮团尺寸减小,但由于单体颗粒及小絮团得以进入大絮团的内部,而使絮团密度增加,于是絮团的质量分维数或面积分维数增大。不过严格说来,分维数之所以成为研究絮团空间形态的有力工具,是基于絮团结构具有自相似性的假设,而按照自相似性原理,碎裂后的小絮团与碎裂前的大絮团应该具有相同的分维数 [8][14] [15],也就是说自相似性原理不能解释絮团分维数在碎裂前后的变化。或许絮团可能具有多重分维数[9] [16] (即不同的观测尺度下絮团可能具有不同的分维数)这样的观点可为解释絮团碎裂前后分维数的变化提供一种途径,而絮团的自相似性本身并不具有数学上的严格定义(即絮团只具备统计意义上的自相似性)这一事实也应是导致絮

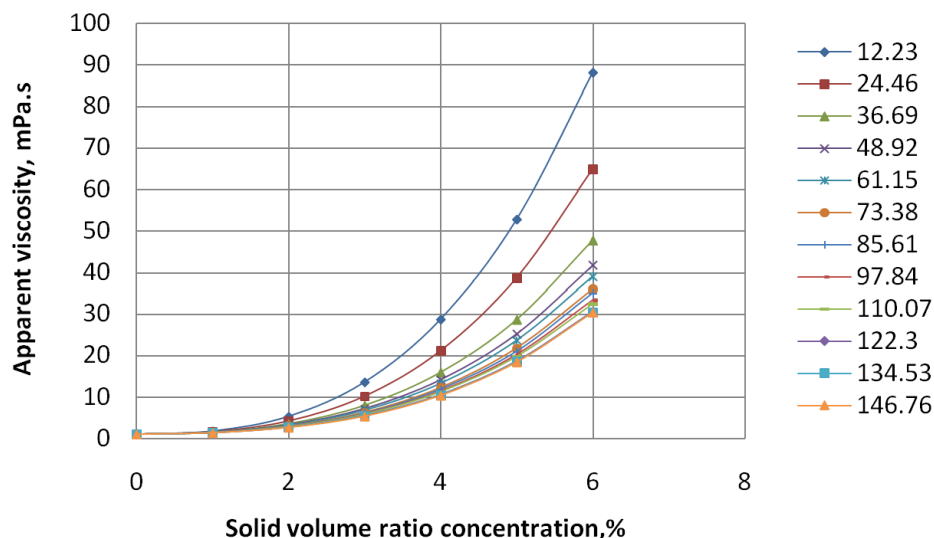


Figure 1. Measured viscosity vs. solid concentration at different shearing rates

图 1. 不同剪切速率下固液体系粘度与浓度的关系

Table 1. Viscous fractal dimensions vs. shearing rate

表 1. 粘性分维数与剪切速率

剪切速率, s^{-1}	D_{f0}	D_{f1}	D_{f2}	D_{f3}
12.23		0.86	1.67	2.08
24.46		0.87	1.71	2.23
36.69		0.87	1.74	2.41
48.92		0.88	1.75	2.50
61.15		0.89	1.76	2.54
73.38		0.91	1.78	2.58
85.61	0	0.92	1.79	2.60
97.84		0.92	1.80	2.63
110.07		0.92	1.80	2.65
122.3		0.93	1.82	2.66
134.53		0.93	1.83	2.68
146.76		0.94	1.84	2.70

团分维数变化的原因。除此以外,笔者认为,絮团在流体剪切作用下分维数的改变与絮团结构的自相似性(或确切地称为统计自相似性)并无本质上的矛盾。因为絮团碎裂是在外力(流体剪切)作用下发生的,这种作用至少要改变碎裂处原絮团的空间结构(事实上碎裂往往发生在原絮团粒间作用力薄弱从而也是空隙率较大的部位),于是碎裂后的絮团便具有了不同的分维数。设想如果可以使原絮团在无任何外力作用下分成若干小絮团(当然这是不可能的),则絮团的分维数就可能保持不变了。所以,流体剪切下絮团分维数的改变并不说明絮团不具备自相似性(或统计自相似性),而是表征这种自相似性的参数在数值上被外来因素改变了,或者说絮团原本的某种自相似性变成了另一种自相似性。

3.2. 特征粘度与剪切速率

依据模型(3),从图 1 的实验结果得到的各类絮团在不同剪切速率下的特征粘度列于表 2。对单体颗

粒,其特征粘度数值为常数,在数值上与小 Einstein [17]的低浓度粘度模型一致。线状、面状及体状絮团的特征粘度在絮凝过程中也各自基本保持不变,但在大小上依次有一个数量级的差别。笔者已在关于分维数动态演变的研究中[13],对特征浓度与絮凝时间无关的现象给予了解释,并从絮团碎裂的难易程度对线状、面状及体状絮团特征粘度的数量级差异进行了分析,这里不再赘述。鉴于各类絮团特征粘度的本质属性(从定义看,特征粘度是在 $X \rightarrow 1$ 的极端情况下絮团发生单位变形所需的外加剪切力),流体剪切作用对特征粘度的影响也是有理由忽略不计的。

3.3. 絮团粘性组成与剪切速率

絮凝平衡时,各类絮团的粘性组成除与流体剪切有关外,还与体系的固相浓度有关。图 2 及图 3 分

Table 2. Specific viscosity vs. shearing rate
表 2. 特征粘度与剪切速率

剪切速率, s^{-1}	$\eta^{(0)}$, mPa·s	$\eta^{(1)}$, 10^3 mPa·s	$\eta^{(2)}$, 10^4 mPa·s	$\eta^{(3)}$, 10^5 mPa·s
12.23	2.501	1.999	2.599	3.599
24.46	2.500	2.000	2.598	3.599
36.69	2.500	1.999	2.600	3.598
48.92	2.501	1.998	2.599	3.600
61.15	2.500	2.001	2.598	3.601
73.38	2.500	1.999	2.601	3.599
85.61	2.501	1.999	2.601	3.598
97.84	2.500	2.000	2.599	3.599
110.07	2.500	2.000	2.600	3.600
122.3	2.500	2.001	2.600	3.601
134.53	2.501	2.000	2.601	3.601
146.76	2.500	2.001	2.601	3.601

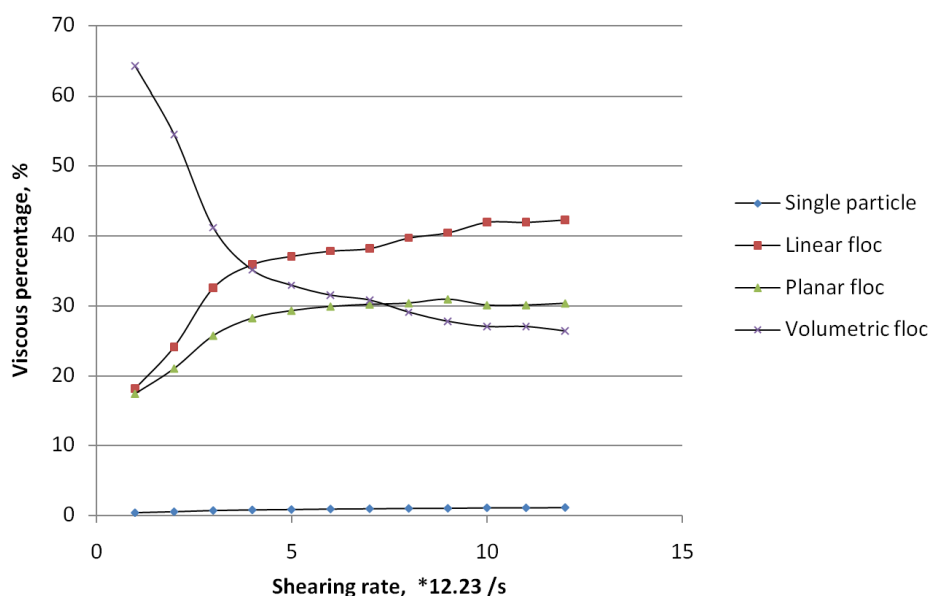


Figure 2. Viscous percentage of different flocs vs. shearing rate (X = 0.04)

图 2. 不同絮团的粘性组成与剪切速率(X = 0.04)

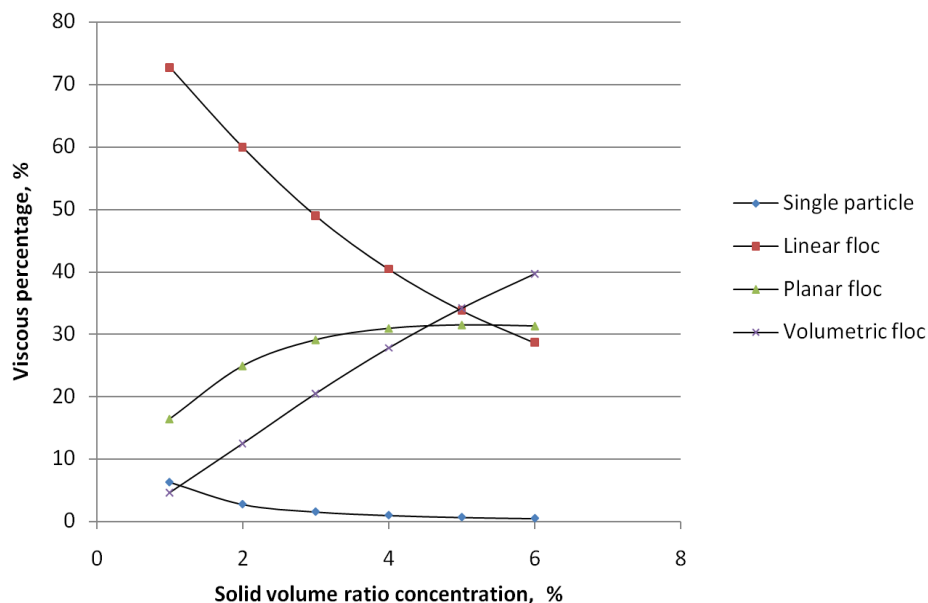


Figure 3. Viscous percentage of different flocs vs. solid concentration (shearing rate 100.07/s)
图 3. 不同絮团的粘性组成与固相浓度(剪切速率 100.07/s)

别给出了在固相浓度 $X = 0.04$ 下各类絮团的粘性组成随剪切速率的变化以及在剪切速率 110.07/s 时絮团组成随固相浓度的变化。在其它浓度或其它剪切速率的不同组合下，絮团的粘性组成有类似的演变趋势。

尽管不能简单地将不同絮团的粘性组成等同于其质量组成或数量组成，但它们之间应该存在某种关联。定性地看，某种絮团粘性组成的增加也应意味着该絮团质量组成或数量组成的增加。但这样说并不意味着某种絮团粘性组成高于其它絮团就一定说明其质量组成或数量组成也高于其它絮团。粘性组成与其它组成之间的关系是一个有趣的研究课题，笔者将在深入探讨后另文报道。

在一定的固相浓度下，流体剪切作用的强化，一方面使空间形态复杂的絮团碎裂为相对简单的絮团，另一方面使形态简单的絮团通过碰撞几率的增加而形成形态复杂的絮团，两者的彼此消长决定了各类絮团的粘性组成。对形态最为复杂的体状絮团，实验表明，随流体剪切作用的加强，碎裂的影响占据主导地位，其粘性组成随剪切强化而较快地降低(见图 2)；对其它形态的絮团，流体剪切形成该类絮团的影响要大于碎裂的影响，表现为它们的粘性组成都随剪切强化而增加，但增加的程度又彼此不同。线状絮团可碎裂为单体颗粒，但其形成机制除单体颗粒的碰撞外，还可藉面状及体状絮团的碎裂而来，所以其粘性组成增加较快；面状絮团可碎裂为单体颗粒及现状絮团，其形成机制除了低级絮团的碰撞外，只有体状絮团的碎裂这一途径，因此面状絮团的粘性组成随剪切速率的增加不及线状絮团那么迅速；单体颗粒(可视为一种特殊的絮团)的存在除了未参与絮凝的少量原始颗粒外，还有剪切作用从其它絮团“剥落”下来的颗粒，其粘性组成随剪切强化而缓慢增加，但总体数量不会很多。综合而言，流体剪切速率的增加，对絮团碎裂机制的强化要大于形成机制，后文对絮团平均粒度的测定结果也将证明这一点。

在一定的流体剪切条件下，各类絮团的粘性组成与固相浓度的变化(如图 3)是易于理解的。浓度越大，单体颗粒的存在空间越小，故其粘性组成下降；浓度越大，越易形成空间形态复杂的絮团，于是体状絮团的粘性组成随浓度的增大迅速增加；面状絮团不及体状絮团那么复杂，所以其组成随浓度的增加较慢；线状絮团是除单体颗粒外空间构型最简单的絮团，浓度越大，其越易与其它絮团发生碰撞，故其粘性组成随浓度的增大迅速下降。

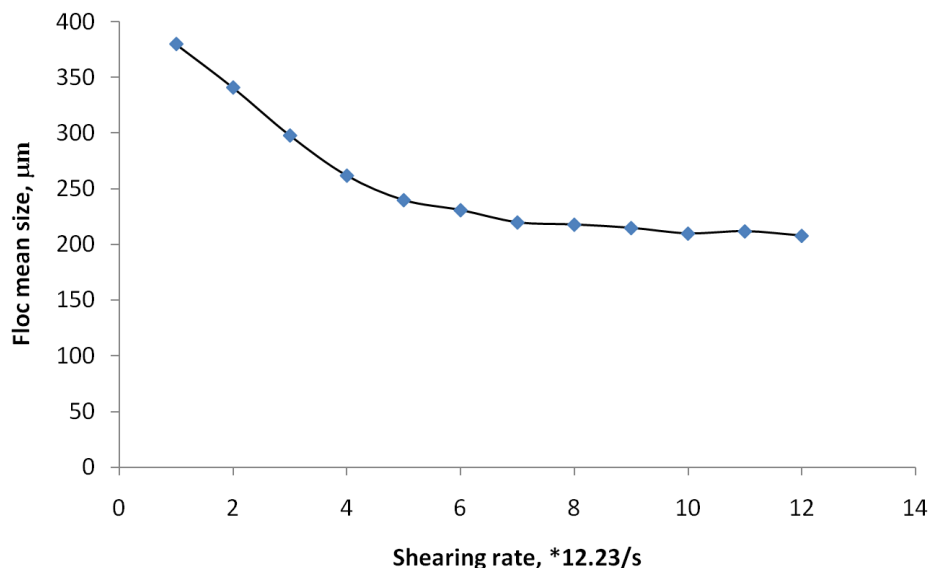


Figure 4. Floc mean size vs. shearing rate ($X = 0.04$)

图 4. 絮团平均粒度与剪切速率($X = 0.04$)

3.4. 絮团尺寸与剪切速率

在絮凝平衡状态下测得的絮团平均尺寸随剪切速率的变化如图 4 所示。不出意外，在实验范围内，絮团的平均粒度随剪切速率的增加而逐渐减小，这说明流体剪切速率的增加对絮团碎裂机制较之于对絮团形成机制有更大的强化作用。

4. 结语

本文在已建立的絮凝体系表观粘度与不同形态絮团粘性分维数关系的理论模型基础上，实验考查了包括单体颗粒、线状絮团、面状絮团及体状絮团的粘性分维数、特征粘度、絮团的粘性组成等在絮凝平衡状态下随流体剪切速率的变化情况，得出了若干有意义的结果。

研究表明，增大流体的剪切速率，线状、面状及体状絮团的粘性分维数均随之增大，且粘性分维数增加的幅度与剪切速率的增大幅度同步。流体剪切对絮团的碎裂作用可以解释絮团粘性分维数的变化，对絮团平均粒度的测定结果也佐证了这样的解释。

所有絮团(包括单体颗粒)的特征粘度与流体剪切速率无关，其中单体颗粒的特征粘度与小 Einstein 的低浓度粘度模型一致，而线状、面状及体状絮团的特征粘度彼此之间依次具有一个数量级的差异。

在所考查的剪切速率范围内，单体颗粒对体系粘度的影响很小，其粘性组成随剪切速率的增大而略有增加。随剪切作用的强化，线状絮团对粘度的影响较快增大，面状絮团的影响也随之增大，但增大的幅度不及线状絮团明显，体状絮团的粘性组成则快速降低。流体剪切对絮团形成与碎裂的双重机制可以定性说明这些实验结果。

各类絮团的粘性组成与原始颗粒浓度关系密切，但变化态势各有不同。随固相浓度的增加，线状絮团的粘性组成下降较快，单体颗粒的组成也随之减少，但幅度较低；面状及体状絮团的组成则随固相浓度的增加而增加，且体状絮团的变化更为显著。

基金项目

中国国家自然科学基金 NSFC(21276032)资助课题。

参考文献 (References)

- [1] Smoluchowski, M. (1917) Versuch einer Mathematischen Theorie der Koagulationskinetik Kolloider Lösungen. *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, **92**, 129-168.
- [2] Thomas, D.N., Judd, S.J. and Fawcett, N. (1999) Flocculation Modelling: A Review. *Water Research*, **33**, 1579-1592. [http://dx.doi.org/10.1016/S0043-1354\(98\)00392-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0043-1354(98)00392-3)
- [3] Yuan, Y. and Farnood, R.R. (2010) Strength and Breakage of Activated Sludge Flocs. *Powder Technology*, **199**, 111-119. <http://dx.doi.org/10.1016/j.powtec.2009.11.021>
- [4] Li, D.-H. and Ganczarczyk, J. (1989) Fractal Geometry of Particle Aggregates Generated in Water and Wastewater Treatment Processes. *Environmental Science & Technology*, **23**, 1385-1389. <http://dx.doi.org/10.1021/es00069a009>
- [5] Tambo, N. and Hozumi, H. (1979) Physical Characteristics of Flocs-II. Strength of Flocc. *Water Research*, **13**, 421. [http://dx.doi.org/10.1016/0043-1354\(79\)90034-4](http://dx.doi.org/10.1016/0043-1354(79)90034-4)
- [6] Li, X. and Logan, B.E. (1997) Collision Frequencies between Fractal Aggregates and Small Particles in a Turbulently Sheared Fluid. *Environmental Science & Technology*, **31**, 1237-1242. <http://dx.doi.org/10.1021/es960772o>
- [7] Wang, D.S., Wu, R.B., Jiang, Y.Z. and Chow, C.W.K. (2011) Characterization of Floc Structure and Strength: Role of Changing Shear Rates under Various Coagulation Mechanisms. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, **379**, 36-42. <http://dx.doi.org/10.1016/j.colsurfa.2010.11.048>
- [8] Spicer, P.T., Pratsinis, S.E., Raper, J., Amal, R., Bushell, G. and Meesters, G. (1998) Effect of Shear Schedule on Particle Size, Density and Structure during Flocculation in Stirred Tanks. *Powder Technology*, **97**, 26-34. [http://dx.doi.org/10.1016/S0032-5910\(97\)03389-5](http://dx.doi.org/10.1016/S0032-5910(97)03389-5)
- [9] Jarvis, P., Jefferson, B. and Parsons, S.A. (2005) Breakage, Regrowth, and Fractal Nature of Natural Organic Matter Flocs. *Environmental Science & Technology*, **39**, 2307-2314. <http://dx.doi.org/10.1021/es048854x>
- [10] Zhu, Z.F., Yu, J.S., Wang, H.R., Dou, J. and Wang, C. (2015) Fractal Dimension of Cohesive Sediment Flocs at Steady State under Seven Shear Flow Conditions. *Water*, **7**, 4385-4408. <http://dx.doi.org/10.3390/w7084385>
- [11] 邢军, 李庆娜, 丁仕强, 刘正宁, 徐继润. 絮团粘性分维数的概念及其分析模型[J]. 环境工程学报, 2014, 8(12): 5174-5178.
- [12] Xing, J., Ding, S.Q., Liu, Z.N. and Xu, J.R. (2015) A New Description of the Fractal Dimension of Particle Aggregates in Liquid Medium. *Particle and Aerosol Research*, **11**, 99-105.
- [13] 邢军, 丁仕强, 刘正宁, 徐继润. 絮团形态的动态演变[J]. 环境工程学报(待发表).
- [14] Meakin, P. (1988) Fractal Aggregates. *Advances in Colloid and Interface Science*, **28**, 249-331. [http://dx.doi.org/10.1016/0001-8686\(87\)80016-7](http://dx.doi.org/10.1016/0001-8686(87)80016-7)
- [15] Li, X.Y. and Ruby, P.C.L. (2005) Determination of the Fractal Dimension of Microbial Flocs from the Change in Their Size Distribution after Breakage. *Environmental Science & Technology*, **39**, 2731-2735. <http://dx.doi.org/10.1021/es049177+>
- [16] Wu, R.M., Lee, D.J., Waite, T.D. and Guan, J. (2002) Multilevel Structure of Sludge Flocs. *Journal of Colloid and Interface Science*, **252**, 383-392. <http://dx.doi.org/10.1006/jcis.2002.8494>
- [17] Einstein, A. (1956) Investigation on Theory of Brownian Movement. In: Furth Dover, R., Ed., New York.

再次投稿您将享受以下服务：

1. 投稿前咨询服务 (QQ、微信、邮箱皆可)
2. 为您匹配最合适的期刊
3. 24 小时以内解答您的所有疑问
4. 友好的在线投稿界面
5. 专业的同行评审
6. 知网检索
7. 全网络覆盖式推广您的研究

投稿请点击：<http://www.hanspub.org/Submission.aspx>