

中国工程热物理学会

Chinese Society of Engineering Thermophysics

2023 年度传热传质学术年会 论文集

辐射换热分册

中国工程热物理学会

2023·北京

氧化铝陶瓷泡沫孔隙尺度半透明多肋筋结构内的辐射传递模拟研究

钱伟强, 陈红伟, 李洋*, 杨金容
(辽宁石油化工大学石油天然气工程学院, 抚顺 113001)
(Tel: 024-56861820, Email: liyang@lnpu.edu.cn)

摘要: 在太阳能吸热器等高温应用中, 氧化铝陶瓷泡沫会直接暴露在高密度辐射能流下, 因此对高辐射热流下氧化铝陶瓷泡沫肋筋内的辐射传递过程进行研究是具有重大意义的。本文对真实氧化铝陶瓷的多肋筋结构 CT 扫描重建为三维数字化模型, 采用离散坐标法对两种不同聚集辐射能流辐照下多肋筋结构内部孔隙尺度的辐射传递过程进行模拟研究, 可视化地呈现了肋筋内部的散射辐射强度和容积吸收能量分布, 分析了不同波长下肋筋内部的辐射强度分布差异, 得到了多个波长下容积吸收能量的变化关系。

关键词: 多孔泡沫; 辐射传递; 孔隙尺度; 离散坐标法; 高密度辐射能流;

0 前言

氧化铝陶瓷泡沫凭借重量轻、比表面积大、耐高温、抗氧化性好等优点^[1], 广泛应用于太阳能集热器、换热器、化学反应器等传热传质系统^[2]。在许多工程应用中, 泡沫材料会处于高温环境或直接暴露在强辐射下, 所以研究高密度辐射能流照射下泡沫内的辐射传递过程对促进泡沫辐射传输理论的进步和工程应用的发展具有重要意义。

现有研究主要从连续尺度和离散尺度两种层面对多孔介质中的传热传质问题进行求解。连续尺度是将不同相的多种介质视为一种单一的连续介质, 同时, 依靠准确的流动参数和热性参数对质量、动量和能量方程进行求解, 可以模拟宏观层面上材料整体的始末状态^[3,4]。但是连续尺度有很大的局限性, 它不能直接求解在材料局部位置的细节问题, 例如本研究的骨架内部辐射传递问题。而离散尺度将不同相的不同介质进行差异化处理, 可以从孔隙层面直接计算材料局部位置的细节问题^[5,6]。所以近年来越来越多的研究用离散尺度方法来对各类问题进行细节求解。

本文首先采用计算机断层扫描氧化铝泡沫陶瓷获得多肋筋结构的三维数字化模型, 然后采用离散坐标法 (DOM) 计算不同辐照情况下的肋筋内部辐射传递过程, 最后分析了辐射能量的散射强度分布和容积吸收规律。

1 模型介绍

1.1 物理模型和材料性质

如图 1 结构示意图所示, 本研究所用的多肋筋结构是由四根不同方向的肋筋和一个结点组成 (Struts and Node, 以下简称 S&N-结构), 将氧化铝泡沫陶瓷经过断层扫描技术即 μ -CT 扫描法和建模软件 SolidWorks 的重建修补后, 得到了三维数字化模型, 结构几何尺寸如表 1 所示。

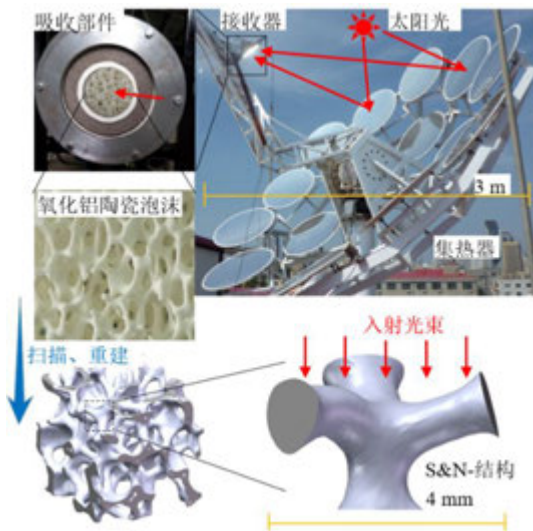


图 1 S&N-结构示意图

Fig. 1. The diagram of the S&N-structure

表 1 S&N-结构几何参数

Table1. The geometrical parameters of S&N-structure

长度 L_x	长度 L_y	长度 L_z	肋筋直径 D	体积 V	表面积 S
4.258 mm	5.176 mm	1.875mm	~0.504 mm	0.67 mm ³	6.401 mm ²

氧化铝陶瓷的辐射特性在不同的波长下差异性较大, 根据 Yang^[7]测量的吸收系数和散射系数, Cheng^[8]测量的光谱反照率, Prah^[9]测量的透射率以及 Palik^[10]的光学物性手册, 将 0.4 到 7 μm 波段的氧化铝辐射特性参数和折射率随波长变化关系整理于图 2。氧化铝陶瓷的容积辐射特性可以分成三部分, 第一部分为散射行为占主导地位的 0.4 到 5 μm 波段, 第二部分为散射行为和吸收行为共同作用的 5 到 6 μm 波段, 第三部分是吸收行为占主导地位的 6 到 7 μm 波段。在散射行为为主的波段, 散射现象在辐射传递中比吸收现象更加明显, 这一特征随着波长的增加慢慢减弱直至波长到达 5 μm , 而当波长超过 6 μm 后, 在辐射传递中, 吸收现象显著强于散射现象。本研究选择波长 0.5 μm 、2 μm 、5 μm 、7 μm 下不同辐射特性的氧化铝陶瓷作为研究对象, 确保三种情况都包括于研究中。

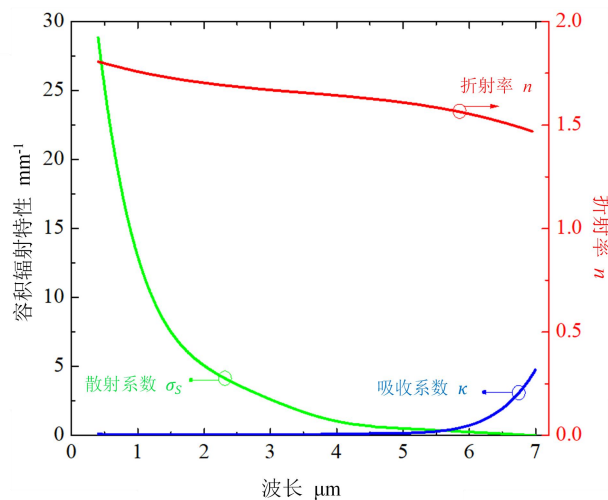


图 2 氧化铝陶瓷辐射特性参数图

Fig. 2. The diagram of alumina ceramics radiation properties

1.2 数学模型和光学参数

本文所选用的离散坐标模型 (DOM), DOM 在计算辐射传递方程 (RTE) 时, 会将整个球形的辐射计算转换为计算 1/8 球形区域内的 RTE 求解问题。将辐射传递方程将会视为给定方向的场方程, 同时, 在 4π 角空间中, 基于角度离散化的微分 RTE(1) 可以转化为半离散方程(2)^[11]:

$$\vec{s} \cdot \nabla I_\lambda(\vec{r}, \vec{s}) + \beta_\lambda I_\lambda(\vec{r}, \vec{s}) = \kappa_\lambda I_{b\lambda}(T) + \frac{\sigma_{s\lambda}}{4\pi} \int_0^{4\pi} I_\lambda(\vec{r}, \vec{s}') \Phi(\vec{r}, \vec{s}', \vec{s}) d\Omega' \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \vec{s}_1 \cdot \nabla I_1(\vec{r}, \vec{s}_1) + \beta I_1(\vec{r}, \vec{s}_1) &= \kappa I_b + \sigma_s \sum_{j=1}^N \omega_j I_j(\vec{r}, \vec{s}_j') \Phi_{1,j}(\vec{r}, \vec{s}_j', \vec{s}_1) \\ &\vdots \\ \vec{s}_i \cdot \nabla I_i(\vec{r}, \vec{s}_i) + \beta I_i(\vec{r}, \vec{s}_i) &= \kappa I_b + \sigma_s \sum_{j=1}^N \omega_j I_j(\vec{r}, \vec{s}_j') \Phi_{i,j}(\vec{r}, \vec{s}_j', \vec{s}_i) \\ &\vdots \\ \vec{s}_N \cdot \nabla I_N(\vec{r}, \vec{s}_N) + \beta I_N(\vec{r}, \vec{s}_N) &= \kappa I_b + \sigma_s \sum_{j=1}^N \omega_j I_j(\vec{r}, \vec{s}_j') \Phi_{N,j}(\vec{r}, \vec{s}_j', \vec{s}_N) \end{aligned} \quad (2)$$

式中, \vec{r} 是位置矢量, \vec{s} 是传播方向矢量, \vec{s}' 是入射方向矢量, \vec{s}_i 是数 N 的微元, $I_i(\vec{r})$ 是辐射强度, Φ 是散射相位函数, Ω' 是立体角, I_λ 是光谱辐射强度, $I_{b\lambda}$ 是普朗克函数给出的黑体强度, κ_λ , $\sigma_{s\lambda}$ 和 β_λ 分别是光谱吸收, 反射和衰减系数, 三者关系可由方程(3)确定:

$$\beta_\lambda = \kappa_\lambda + \sigma_{s\lambda} \quad (3)$$

离散坐标模型的原理如图 3 所示, 每个控制角 Ω_i 的加权因子 ω_i 都由 4π 角空间内给定的天顶角 $\Delta\theta_i$ 和方位角 $\Delta\varphi_i$ 确定, 所以控制角离散的问题可以转变为非结构化网格是否适当地塑造了模型的问题, 在本研究中, 为了平衡计算成本与计算精度, 天顶角个数与方位角个数均取 6, 即 $2 \times 6 \times 6 = 72$ 个离散角。同时, 因为 DOM 和此种变化都是基于全局坐标系的, 所以对于图中的单元体积 C_1 和 C_2 , 控制角横跨单元体积接口 $F_{1,2}$, 将辐射传入量和辐射传出量视为连续量进行计算^[11]。

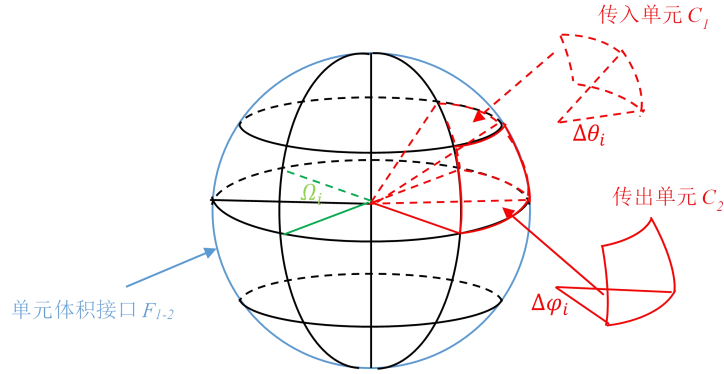


图 3 离散坐标模型原理图

Fig. 3. The schematic diagram of Discrete Ordinate Method

研究使用的氧化铝陶瓷是由 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 晶粒制成, 高密度聚集的氧化铝晶粒几乎是随机排列的, 可以作为高度的多重散射中心。结合以往研究^[12,13]可以将散射方式设定为各向同性散射, 即散射相函数 $\Phi=1$ 。而镜面的反射透射比, 由镜面反射参数 f_s 决定^[14], $f_s=1$ 时, 辐射能量接触肋筋表面时, 表现为完全镜面反射; $f_s=0$ 时, 能量反射现象表现为在半球方向上的完全漫反射。

对于 $f_s = 1$ 完全镜面反射的理想表面, 在入射光束接触到半透明表面时只有镜面现象发

生，这一过程由下述方程实现：

$$\vec{s}_r = \vec{s} - 2(\vec{s} \cdot \vec{n}_{out})\vec{n}_{out} \quad (4)$$

式中， \vec{s}_r 是反射方向， \vec{s} 是局部入射方向， \vec{n}_{out} 是外向方向。

$$\rho_s = \frac{1}{2} \left[\frac{\tan^2(\gamma_{in} - \gamma_t)}{\tan^2(\gamma_{in} + \gamma_t)} + \frac{\sin^2(\gamma_{in} - \gamma_t)}{\sin^2(\gamma_{in} + \gamma_t)} \right] \quad (5)$$

$$\sin \gamma_t = \frac{1}{n} \sin \gamma_{in} \quad (6)$$

式中， ρ_s 是镜面折射率， γ_{in} 是入射角， γ_t 是折射角， n 是固相折射率。

对于 $f_s = 0$ 完全漫反射的理想表面，在入射光束接触到半透明表面时会沿半球方向漫反射，这一过程由下述方程实现：

$$\rho_d^{out} = \frac{1}{2} + \frac{(3n+1)(n-1)}{6(n+1)^2} + \frac{n^2(n^2-1)^2}{(n^2+1)^3} \ln \left(\frac{n-1}{n+1} \right) - \frac{2n^3(n^2+2n-1)}{(n^2+1)(n^4-1)} + \frac{8n^4(n^4+1)}{(n^2+1)(n^4-1)^2} \ln(n) \quad (7)$$

$$\rho_d^{in} = 1 - \frac{(1-\rho_d^{out})}{n^2} \quad (8)$$

式中， ρ_d^{out} 是外部迎面辐射， ρ_d^{in} 是内部迎面辐射， ρ_d 是由菲涅尔方程得出的漫反射率。

氧化铝陶瓷的镜面反射参数 f_s 目前并无直接文献报道，且无法通过相关测量直接得到准确的值。考虑到氧化铝陶瓷表面的半透明性，结合有关研究，取 $f_s=0.5$ 的表面镜漫反射平衡状态^[15]。

2 网格与边界条件

2.1 网格无关性验证

如图 4 所示，将 1.1 节中得到的三维数字化模型在容积内使用四面体网格，表面及截面使用三角形网格进行网格划分，所用网格数量为：32462 个三角形面网格、227446 个四面体网格。

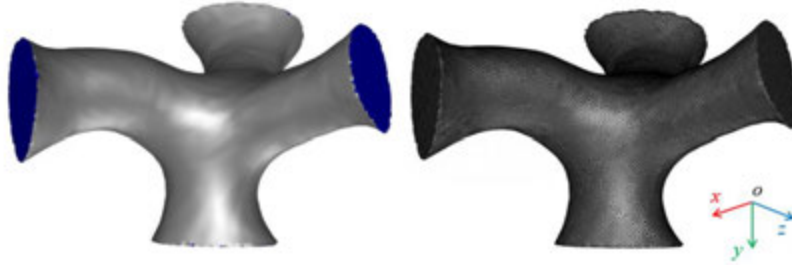


图 4 三维 S&N-结构示意图(左)和网格划分图(右)

Fig. 4. The appearance (left) and mesh (right) of the 3D digitalized model

多数量的网格意味着高精度的结果，同时也意味着更大的计算成本，所以需要进行网格无关性验证。图 5 展示了在不同网格数量下，选定的测量点 A 处的辐射强度。结果表明在网格数达到 259908 时，可以得到稳定可靠的计算结果。

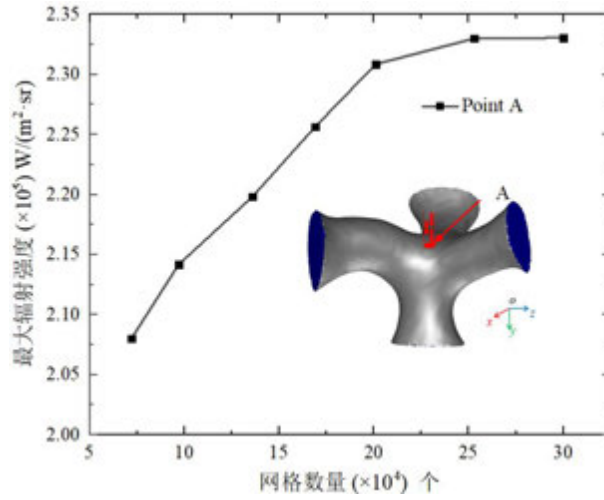


图 5 选定点 A 辐射强度随网格数量关系图

Fig.5 The radiative intensity of selected point A with increasing grid number

2.2 边界条件

材料物性及计算模型都已设定完毕，本节设定边界条件。图 6 展示了本次研究的两种光照方式：局部点入射和覆盖面入射，点入射照射方式为直径为 0.15mm 的辐射能流准直光束 $q_{in}=600kW/m^2$ 直接加载在 S&N-结构的结点处。面入射照射方式为覆盖的辐射能流 $q_{in}=600kW/m^2$ 在整个 S&N-结构上方均匀照射。图中，灰色部分为氧化铝陶瓷表面，设定为辐射半透明边界；蓝色部分为肋筋交界面，设定为对称边界。在此项中，对称边界等同于镜面，所以两侧的辐射视为连续且相等，即 $I(\vec{s}) = I(\vec{s}_r)$ 。

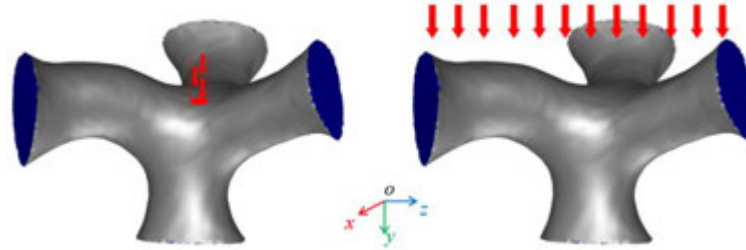


图 6 局部点入射辐射照射图(左)和覆盖面入射辐射照射图(右)

Fig. 6. The local point-incident condition (left) and covered face-incident condition (right) of the irradiation conditions

3 结果分析

3.1 局部点入射结果分析

图 7 依次展示了在局部点入射下四种波长的平均辐射强度的分布情况。可视化辐射强度的等值面由下述方程(9)建立。

$$\bar{I}(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \int_{\Omega=4\pi} I(\vec{r}, \vec{s}) d\Omega \quad (9)$$

图 7 中，从外向内的五个等值面依次代表着 5000、10000、20000、40000、80000 $W/(m^2 \cdot sr)$ 的辐射强度在 S&N-结构中的分布。从俯视图中可以看出，在 0.5 μm 波长时，辐射强度从入射点位置呈中心对称的半球形分布，随着入射波长的增加，辐射强度沿入射方向的轴向距离开始增加，周向距离开始缩短，这种趋势在波长 $\lambda=2\mu m$ 的子图中有所展现。直到波长 5 μm

时，周向距离明显减少，波长增加到 $7\mu\text{m}$ 时，周向距离缩短到几乎等同于入射光束直径。从波长 $\lambda=0.5\mu\text{m}$ ， $\lambda=2\mu\text{m}$ ， $\lambda=5\mu\text{m}$ 的前视图来看，辐射强度的变化直观地体现在轴向距离的增加，在波长 $\lambda=5\mu\text{m}$ 的子图中， $\bar{I}=5000\text{ W}/(\text{m}^2\cdot\text{sr})$ 的等值面在轴向上直接贯穿了整根肋骨，但在波长 $\lambda=7\mu\text{m}$ 时，轴向距离又突然变短。

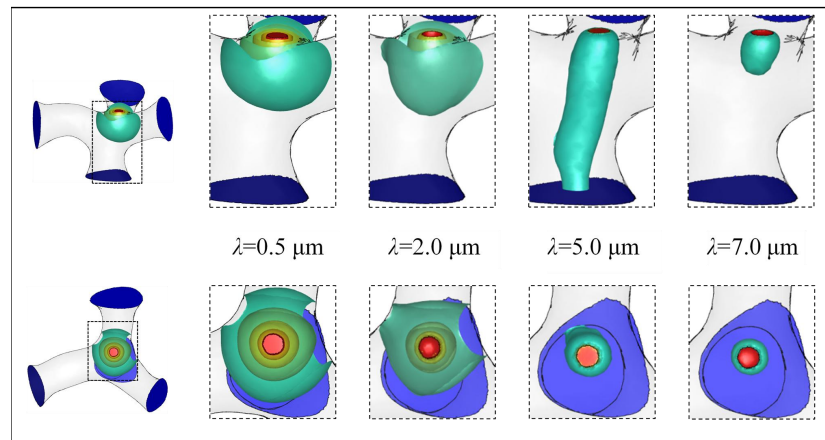


图 7 局部点入射下辐射强度示意图

Fig. 7. The distribution of radiation intensity under the local point-incident condition

这种轴向与周向上的距离变化最主要的原因是氧化铝陶瓷有着随着波长增加而变化的衰减系数和不断减小的散射率。回顾图 2 的辐射特性曲线，氧化铝陶瓷从 0.5 到 $6\mu\text{m}$ 的波段中，散射系数大幅下降，使得从入射点处散射行为开始变弱，辐射强度分布周向距离开始变小，而吸收系数缓慢上升导致整体的衰减系数下降。衰减系数代表着阻止辐射沿入射方向传播的能力，这就导致了在 S&N-结构中辐射强度分布的等值面图像从半球状向类圆柱状变化。在波长增加到 $7\mu\text{m}$ 时，在轴向上的距离突变也来源于氧化铝陶瓷在 $7\mu\text{m}$ 时的吸收系数快速增长。轴向上的衰减距离与波长的关系如图 8 所示，虚线部分代表了通过模型拼接得到的超出实际肋骨长度的辐射强度衰减距离。值得注意的是，即使氧化铝陶瓷在 $2\mu\text{m}$ 波长下的衰减系数 ($\beta_{\lambda=2\mu\text{m}}=5.15\text{ mm}^{-1}$) 和其在 $7\mu\text{m}$ 波长下的衰减系数 ($\beta_{\lambda=7\mu\text{m}}=4.79\text{ mm}^{-1}$) 差异很小，但是两者的辐射强度的等值面图像差异显著。导致这种显著差异的原因在于在 $2\mu\text{m}$ 波长下，氧化铝陶瓷的辐射特性是散射行为占主导地位，而在 $7\mu\text{m}$ 波长下则是吸收行为占主导地位。

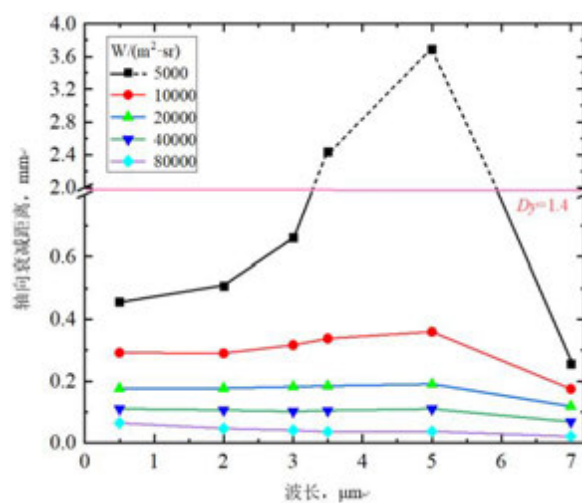


图 8 各辐射强度衰减距离与波长变化关系图(D_y :轴向上肋骨实际长度)

Fig. 8. The attenuation distance of radiation intensity with increasing wavelengths (D_y : the physical length of strut in incident direction)

散射系数的改变直观地体现在辐射强度的分布情况上,而吸收系数的改变则直接体现在容积对于辐射能量的吸收上,具体可见图9容积吸收能量随波长变化的截面图。在0.5到6 μm 波段,吸收系数上升速率极其缓慢, S&N-结构整体吸收辐射能量的能力提升也十分有限,具体表现在图中0.5 μm 、2 μm 、5 μm 三种波长下氧化铝陶瓷对应的子图的能量吸收主要发生在入射点周围,且能量较低。而7 μm 时,氧化铝陶瓷的吸收系数有了较大的提升,这也使得在7 μm 时的最大容积吸收能量明显大于前三个波长,分别是0.5 μm 下最大容积吸收能量的41.88倍、2 μm 下最大容积吸收能量的28.30倍、5 μm 下最大容积吸收能量的26.18倍。

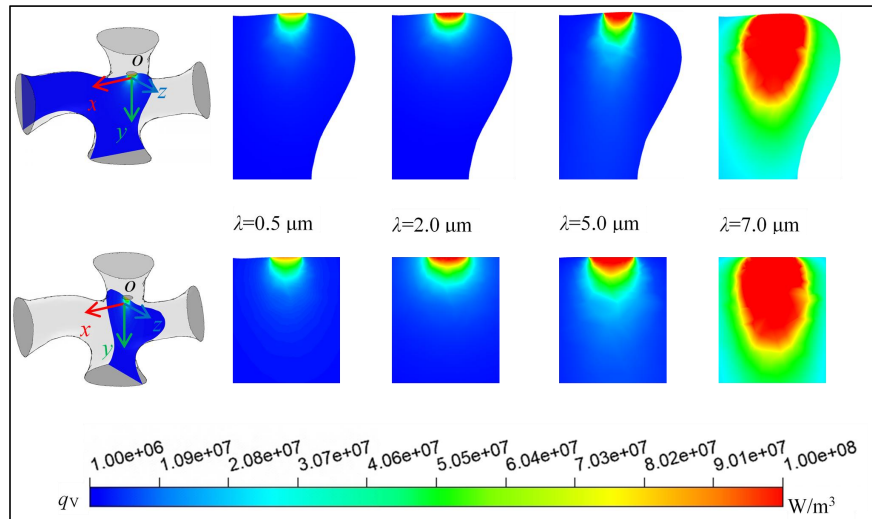


图9 S&N-结构在局部点入射下容积吸收能量随波长变化图

Fig. 9 Cross-sectional diagrams of S&N-structure volumetric absorbed energy with increasing wavelength under local point-incident condition

3.2 覆盖面入射结果分析

覆盖面入射的照射方式使得整个 S&N-结构对辐射热流的反应更加明显。图10展示了在覆盖面入射的辐照方式下,辐射能流在 S&N-结构表面的分布情况。

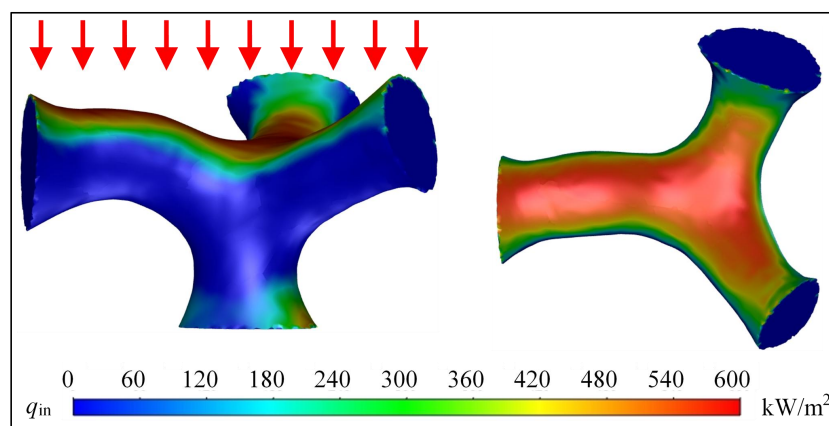


图10 覆盖面入射下辐射能流在 S&N-结构表面分布情况

Fig. 10. The S&N-structure surface under the covered face-incident condition

面入射下 S&N-结构内部辐射强度分布如图11所示,全覆盖的辐照方式带来了更高强度的辐射强度,按强度大小自上而下排列于 S&N-结构中。在波长0.5 μm 下氧化铝陶瓷的高

散射率带来了十分明显的辐射强度等值面分层现象,各强度等值面平行于结构受照表面且间隔明显。在波长增加到 $2\mu\text{m}$ 时,等值面开始沿着 S&N 结构肋筋形状分布,具体表现在 $2\mu\text{m}$ 子图中的亮绿色部分,在波长增加到 $5\mu\text{m}$ 时,这种情况更为明显,辐射强度开始更多地沿肋筋后缘表面分布,最后当波长增加到 $7\mu\text{m}$ 时,辐射强度的分布又与 $2\mu\text{m}$ 时相似。导致此种变化的原因依旧是随波长变化的氧化铝陶瓷自身辐射特性。在 $0.5\mu\text{m}$ 波长下,高散射系数与极低的吸收系数让辐射能流穿过 S&N-结构的同时,辐射能流均匀扩散且几乎不发生吸收现象。在 0.5 到 $6\mu\text{m}$ 波段,随着波长增加,吸收系数缓慢上升,散射系数快速下降,辐射能量散射行为减弱从而等值面分层现象开始褪去,同时,在辐射能流接触到后缘表面时发生的反射现象,使得一部分辐射能量经反射后与来流辐射能量融合,使 S&N-结构肋筋表面周围辐射能量发生“堆积”,直观表现为辐射强度更高。比较 $2\mu\text{m}$ 子图和 $5\mu\text{m}$ 子图时,可以发现 $2\mu\text{m}$ 子图中辐射强度沿肋筋后缘表面上半部分分布, $5\mu\text{m}$ 子图中辐射强度则是更容易沿肋筋后缘表面下半部分分布。这种差别的原因在于 $5\mu\text{m}$ 下的氧化铝陶瓷相较于 $2\mu\text{m}$ 有更低的散射系数和几乎不变的吸收系数,更低的散射系数使得辐射能量扩散效应更微弱且几乎不被吸收,使得反射辐射与来流辐射的融合结果看起来更加明显。此外, $5\mu\text{m}$ 子图中选择显示的辐射强度恰好表现出辐射能流的全反射效果,全反射效应在下文的容积吸收的分析中也有体现。以上两点原因结合,充分说明了在 $5\mu\text{m}$ 的氧化铝陶瓷中辐射强度沿下半部分的后缘表面分布。

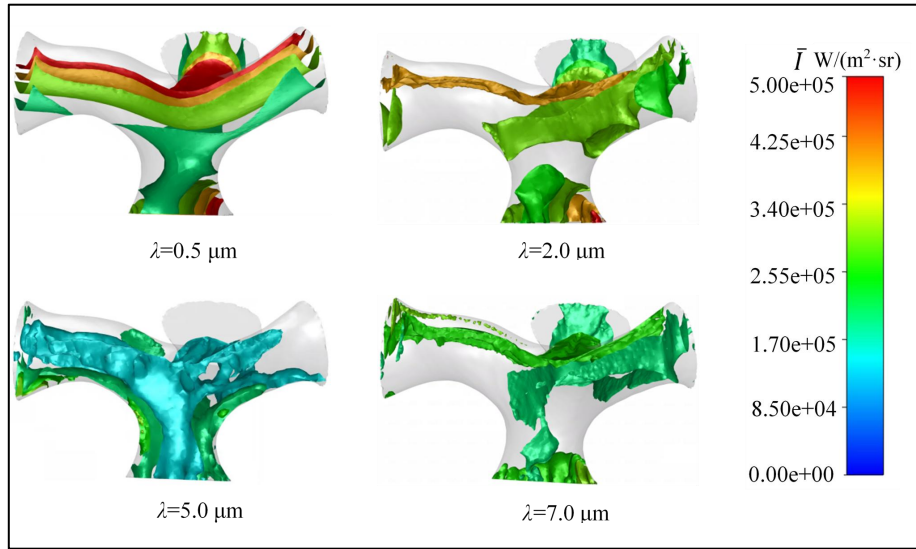


图 11 覆盖面入射下辐射强度在 S&N-结构中的分布情况

Fig. 11. The fields of radiation intensity in S&N-structure under covered face-incident condition

吸收系数的增长也直接体现在容积吸收能量上。容积吸收能量如图 12 所示,覆盖面入射下辐射热流均匀照射整个 S&N-结构,使得容积吸收的能量比起局部点入射有很大的提升,但是辐射特性所决定的吸收表现与点入射基本一致。缓慢上升的吸收系数使得截面图中容积吸收能量也缓慢增加。虽然 $5\mu\text{m}$ 下氧化铝陶瓷的吸收系数相较于 $2\mu\text{m}$ 几乎没有提升,但是其较低的衰减系数使得辐射能量在 S&N-结构内部传播得更远,同时后缘表面对辐射能流的反射效应使得在 $5\mu\text{m}$ 波长下后缘表面附近的吸收能量更高。当波长增加到 $7\mu\text{m}$ 时,对应的氧化铝陶瓷辐射特性表现为高吸收率,其最低的吸收能量也超出了初始标尺的上限,为了更好地展示内部吸收情况,在放大十倍的标尺下发现吸收能量从入射面向结构中心递减, $7\mu\text{m}$ 下整体 S&N-结构得最大吸收能量是 $0.5\mu\text{m}$ 容积最大吸收能量的 7.53 倍、 $2\mu\text{m}$ 容积最大吸收能量的 5.48 倍、 $5\mu\text{m}$ 容积最大吸收能量的 3.49 倍。

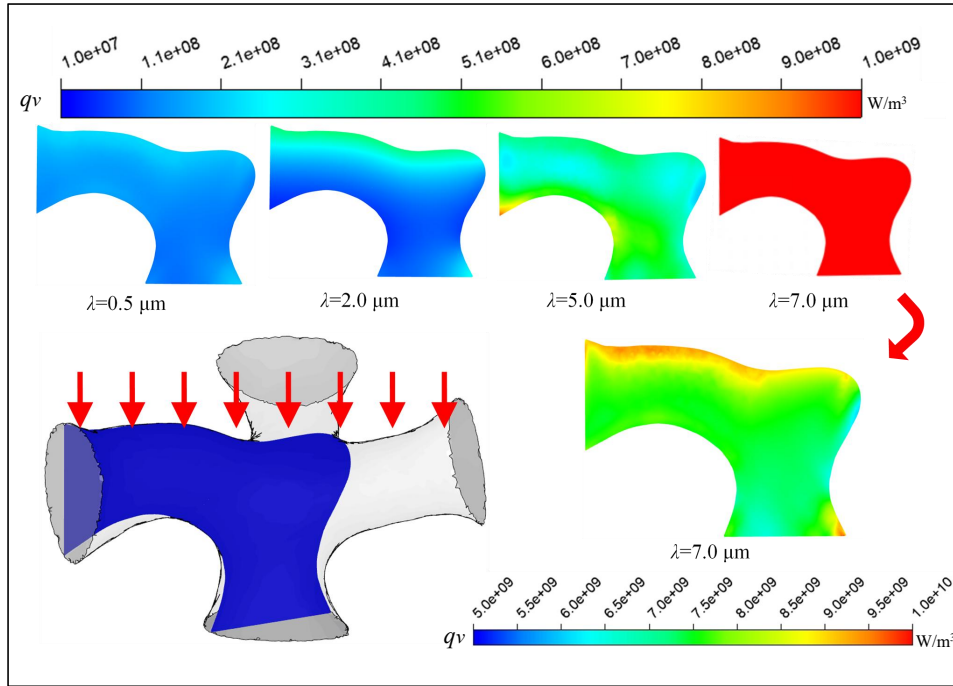


图 12 S&N-结构在覆盖面入射下容积吸收能量随波长变化图

Fig. 12 Cross-sectional diagrams of S&N-structure volumetric absorbed energy with increasing wavelength under covered face-incident condition

4 结论

本文利用了离散坐标法对不同辐照方式下, 0.5 到 7 μm 波段内氧化铝陶瓷中一种由四根肋筋与一个节点组成的多肋筋结构即 S&N-结构内辐射传递过程进行了模拟研究。给出了局部点入射和覆盖面入射两种辐照方式下 S&N-结构内部辐射强度的分布图像和容积吸收能量图像, 分析了不同波长下辐射强度分布差异的原因和容积吸收能量的变化关系。得出了以下结论:

(1)氧化铝陶瓷自身辐射特性对结构内辐射传递起决定性作用, 具体表现为非线性变化的散射系数直接决定结构内部辐射强度的分布, 加速上升的吸收系数决定不同波长下的氧化铝陶瓷容积吸收能量的上限。

(2)在局部点入射下, S&N-结构在入射点处的辐射强度分布随着波长增大, 轴向距离变长, 周向距离缩短, 辐射强度分布由类半圆球状分布逐渐转变为类圆柱状分布再转变为入射点周围分布; 容积吸收能量逐渐增大, 并在 7 μm 波长达到吸收峰值。

(3)在覆盖面入射下, S&N-结构内辐射强度分布随着波长增大, 辐射强度等值面排列的规律性逐渐不明显, 肋筋后边缘的内部反射使后表面处的辐射强度高于肋筋中心位置; 受照面积的增大使得整个结构吸收更多的辐射能量, 并同样在 7 μm 波长时达到吸收峰值。

参考文献

- [1] Wu J, Chen H, Luo X, et al. Design, fabrication, microstructure, and properties of highly porous alumina whisker foam ceramic[J]. Ceramics International, 2022, 48(2): 2776-2781.
- [2] Guene Lougou B, Shuai Y, Pan R M, et al. Radiative heat transfer and thermal characteristics of Fe-based oxides coated SiC and Alumina RPC structures as integrated solar thermochemical reactor[J]. Science China Technological Sciences, 2018, 61: 1788-1801.
- [3] Arıcı M, Tütüncü E, Yıldız Ç, Li D. Enhancement of PCM melting rate via internal fin and nanoparticles[J].

International Journal of Heat and Mass Transfer, 2020, 156: 119845.

- [4] Shi X, Wang F, Lougou B G, et al. Experimental and numerical study regarding the biomimetic bone porous structure to match energy and mass flow in a solar thermochemical reactor[J]. Journal of Energy Storage, 2022, 55: 105645.
- [5] Du S, Li M J, Ren Q, et al. Pore-scale numerical simulation of fully coupled heat transfer process in porous volumetric solar receiver[J]. Energy, 2017, 140: 1267-1275.
- [6] Li Y, Xia X L, Sun C, et al. Tomography-based analysis of apparent directional spectral emissivity of high-porosity nickel foams[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2018, 118: 402-415.
- [7] Yang P, Cheng Q, Zhang Z. Radiative properties of ceramic Al₂O₃, AlN and Si₃N₄—II: Modeling[J]. International Journal of Thermophysics, 2017, 38(8): 124.
- [8] Cheng Q, Yang P, Zhang Z. Radiative properties of ceramic Al₂O₃, AlN and Si₃N₄—I: Experiments[J]. International Journal of Thermophysics, 2016, 37(6): 62.
- [9] Prahl S A, van Gemert M J C, Welch A J. Determining the optical properties of turbid media by using the adding-doubling method[J]. Applied optics, 1993, 32(4): 559-568.
- [10] Palik E D. Handbook of optical constants of solids[M], vol. 2, Academic Press, 1998: 761-775.
- [11] Li Y, Xia X L, Ai Q, et al. Pore-level determination of spectral reflection behaviors of high-porosity metal foam sheets[J]. Infrared Physics & Technology, 2018, 89: 77-87.
- [12] Liu B, Chen X, Xia X L, et al. Analysis on influences of micro-scale ligament morphology and pore-level structure parameter on spectral properties of alumina foam[J]. Infrared Physics & Technology, 2022, 127: 104444
- [13] Avila-Marin A L, Fernandez-Reche J, Gianella S, et al. Experimental study of innovative periodic cellular structures as air volumetric absorbers[J]. Renewable Energy, 2022, 184: 391-404.
- [14] Howel J R, Siegel R, Mengüç M P. Thermal radiation heat transfer, 5th edition[M], CRC Press, 2011.
- [15] Chen Hong-Wei, Li Yang, Wang Fu-Qiang, Lin, Chang-Hua, Xia, Xin-Lin, Tan He-Ping. 3D visualized characterization of radiation energy transport in a real semitransparent foam strut under high irradiation beam[J]. International Journal of Thermal Sciences, 2021, 167(1).

移动各向异性表面间近场辐射换热

王一旭, 张勇^{*}

(哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150001)

(Tel: 0451-86412674, Email: yong_zhang@hit.edu.cn)

摘要: 二维各向异性材料辐射传热在纳米器件中有广阔的应用前景, 而移动表面由于其支持双曲传播、非互易性等特殊性能, 有望为近场热辐射的调控提供更多的可能性。本研究结合电磁场理论和洛伦兹变换获得了移动各向异性表面的等效电导率张量, 研究了移动各向异性表面间近场辐射换热问题, 发现表面的移动和旋转会导致能量传递在波矢空间的不对称, 从而对辐射热流以及能量传输系数造成影响。本研究为近场辐射换热的主动调控提供了新思路。

关键词: 近场辐射换热, 二维材料, 平面内各向异性, 移动表面

0 前言

热辐射在红外成像、能量转换、隔热和热特征控制等多种应用中发挥着重要作用[1]。当温度高于绝对零度时便会产生热辐射, 因此热辐射普遍存在于自然界中。根据物体之间的间距辐射传热可分为两种状态。在远场区域, 物体之间的间隙尺寸远大于 Wien 位移定律预测的热波长 λ_{th} , 这种情况下辐射传热的极限是黑体辐射, 由总热通量的 Stefan-Boltzmann 定律和光谱通量的普朗克定律描述。近场热辐射是指涉及热辐射传递过程的物体间距接近或小于热辐射特征波长的辐射过程, 其热流密度大于 Stefan-Boltzmann 定律给出的值。传统远场热辐射技术受制于黑体辐射极限, 而近场热辐射的显著增强在信息处理[2]和热光伏[3, 4]等诸多应用中起着至关重要的作用, 相关学术研究是当前热辐射基础理论研究前沿。认识、了解、利用和控制近场辐射传热具有重要意义。随着运动介质的电动力学的不断发展[5, 6], 近年来, 快速运动系统被提出和研究, 如快速旋转粒子和光机械系统, 它们具有极其卓越的增强或抑制近场辐射换热的潜力, 为实现不寻常的功能提供了平台。Zhong Lin Wang[7]针对移动介质和时间依赖性配置的情况, 对麦克斯韦方程进行扩展。Mauro Antezza[8]考虑了以相对平行速度运动的两个平行石墨烯片的系统, 并利用散射方法计算了卡西米尔能量。移动表面具有可以诱导量子摩擦和波的不稳定性等优异特性。尤其是支持非互易双曲波的传播, 产生 TM 和 TE 表面模的干扰, 使局部电和磁发射器可以在具有强局域增强光物质相互作用的表面上定向发射。Yarden Mazar[9]等研究了在移动的超表面上的非互易双曲传播, 并发现运动的均匀超表面支持单向双曲传播, 非互易性增强, 并且不受由表面离散化或有限粒度引起的非局部效应的影响。

本文开展移动各向异性表面间近场辐射换热研究, 结合电磁场理论, 推导各向异性的等效电导率张量, 探究运动表面的非互易性和各向异性对近场辐射换热的作用机制, 获得移动速度和旋转角对能量传输系数和辐射热流的影响规律。

1 数学物理模型

本文所研究的系统为两片在真空中平行的各向异性二维材料表面, 见图 1。表面间距为 d , 下表面和上表面的温度分别为 T_1 和 T_2 。其中上表面静止不动, 并可沿顺时针旋

^{*}资助项目: 国家自然科学基金 (No. 52076056)

转，其旋转角的角度 ϕ 如图所示。下表面可以沿 x 方向运动，速度为 v ，如图所示。

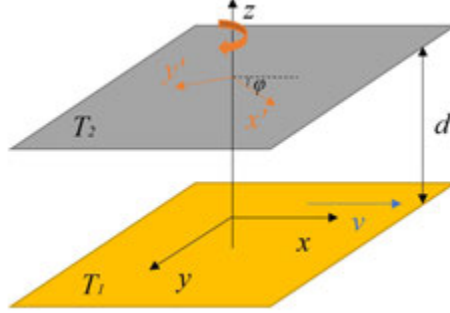


图 1 真空中两片各向异性二维材料表面间近场辐射换热示意图

Figure 1. Schematic diagram of near-field radiative heat transfer between two anisotropic two-dimensional material suspended sheets in vacuum

基于波动耗散理论，两片各向异性二维材料表面之间的近场辐射换热热量由下式计算[10]：

$$\langle S \rangle = \frac{1}{(2\pi)^3} \int_0^\infty \left[\int_{-\infty}^\infty \int_{-\infty}^\infty \xi(\omega, k_x, k_y) dk_x dk_y \right] [\Theta(\omega, T_1) - \Theta(\omega, T_2)] d\omega \quad (1)$$

其中 $\Theta(\omega, T) = \hbar\omega / (\exp(\hbar\omega / k_B T) - 1)$ 表示在温度 T 下角频率 ω 的普朗克振荡器的平均能量， $\xi(\omega, k_x, k_y)$ 为能量传递系数，表示光子隧穿的概率[10]：

$$\xi(\omega, k_x, k_y) = \begin{cases} \text{Tr} \left[(I - R_2' R_2) D^{12} (I - R_1' R_1) D^{12'} \right], & k_{||} < \omega/c \\ \text{Tr} \left[(R_2' - R_2) D^{12} (R_1' - R_1) D^{12'} \right] e^{-2|\gamma|d}, & k_{||} > \omega/c \end{cases} \quad (2)$$

其中 $k_{||} = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$ 和 $\gamma = \sqrt{k_0^2 - k_{||}^2}$ 分别为平面波矢和垂直波矢， $k_0 = \omega/c$ 为真空波矢。

$D^{12} = (I - R_1 R_2 e^{2i\gamma d})^{-1}$ 和 $R_j = \begin{pmatrix} r_j^{s,s} & r_j^{s,p} \\ r_j^{p,s} & r_j^{p,p} \end{pmatrix}$ ($j = 1, 2$) 为 2×2 反射矩阵。

各向异性二维材料反射系数由如下公式给出[11]：

$$r^{s,s} = - \frac{2k_0^2 \bar{\sigma}'_{yy} + k_0 \gamma (\bar{\sigma}'_{xx} \bar{\sigma}'_{yy} - \bar{\sigma}'_{xy} \bar{\sigma}'_{yx})}{4k_0 \gamma + 2\gamma^2 \bar{\sigma}'_{xx} + 2k_0^2 \bar{\sigma}'_{yy} + k_0 \gamma (\bar{\sigma}'_{xx} \bar{\sigma}'_{yy} - \bar{\sigma}'_{xy} \bar{\sigma}'_{yx})} \quad (3a)$$

$$r^{p,p} = - \frac{2\gamma^2 \bar{\sigma}'_{xx} + k_0 \gamma (\bar{\sigma}'_{xx} \bar{\sigma}'_{yy} - \bar{\sigma}'_{xy} \bar{\sigma}'_{yx})}{4k_0 \gamma + 2\gamma^2 \bar{\sigma}'_{xx} + 2k_0^2 \bar{\sigma}'_{yy} + k_0 \gamma (\bar{\sigma}'_{xx} \bar{\sigma}'_{yy} - \bar{\sigma}'_{xy} \bar{\sigma}'_{yx})} \quad (3b)$$

$$r^{s,p} = - \frac{2k_0 \gamma \bar{\sigma}'_{yx}}{4k_0 \gamma + 2\gamma^2 \bar{\sigma}'_{xx} + 2k_0^2 \bar{\sigma}'_{yy} + k_0 \gamma (\bar{\sigma}'_{xx} \bar{\sigma}'_{yy} - \bar{\sigma}'_{xy} \bar{\sigma}'_{yx})} \quad (3c)$$

其中，上标 s 和 p 分别表示横电波（TE）和横磁波（TM）的极化， $\bar{\sigma}'$ 为波矢空间各向异性光导率张量。

波矢空间各向异性光导率张量 $\bar{\sigma}'$ 为[12]：

$$\begin{aligned} \bar{\sigma}' &= \begin{pmatrix} \bar{\sigma}'_{xx} & \bar{\sigma}'_{xy} \\ \bar{\sigma}'_{yx} & \bar{\sigma}'_{yy} \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{k_{||}^2} \begin{pmatrix} k_x^2 \bar{\sigma}_{xx} + k_y^2 \bar{\sigma}_{yy} + k_x k_y (\bar{\sigma}_{yx} + \bar{\sigma}_{xy}) & k_y^2 \bar{\sigma}_{yx} - k_x^2 \bar{\sigma}_{xy} + k_x k_y (\bar{\sigma}_{xx} - \bar{\sigma}_{yy}) \\ k_y^2 \bar{\sigma}_{xy} - k_x^2 \bar{\sigma}_{yx} + k_x k_y (\bar{\sigma}_{xx} - \bar{\sigma}_{yy}) & k_x^2 \bar{\sigma}_{yy} + k_y^2 \bar{\sigma}_{xx} - k_x k_y (\bar{\sigma}_{yx} + \bar{\sigma}_{xy}) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4)$$

其中 $\bar{\sigma}$ 是由于旋转角而引起的表面电导率张量[13]:

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 \\ 0 & \sigma_{yy} \end{pmatrix} \quad (5a)$$

$$\sigma_{vv} = \frac{ie^2}{\omega + i\eta} \frac{n}{m_v} + s_v \left[\Theta(\omega - \omega_v) + \frac{i}{\pi} \ln \left| \frac{\omega - \omega_v}{\omega + \omega_v} \right| \right] \quad (5b)$$

其中 $v = x$ 或 y , e 是一个电子所带的电荷量, n 是电子的浓度, m_v 是电子沿 v 方向的有效质量, η 表示弛豫时间, $\Theta(\omega - \omega_v)$ 是一个阶梯函数, 定义了由于带间转变而产生的吸收, s_v 表示带间转换的强度, ω_v 是 v 分量的带间跃迁开始的频率[12]。

在表面静止状态下, 利用电磁场的洛伦兹变换, 常规的阻抗边界条件由如下公式给出[14]:

$$\hat{n} \times (H'_1 - H'_2) = \underline{\underline{\sigma}} E'_{\tan} \quad (6a)$$

$$E' = \gamma (\underline{\underline{\alpha}}^{-1} E + c \mu_0 \beta H) \quad (6b)$$

$$H' = \gamma (\underline{\underline{\alpha}}^{-1} H - c \varepsilon_0 \beta E) \quad (6c)$$

其中, 下标 1 和 2 分别为表面上方和表面下方, σ 为电导率张量, $\beta = v/c$ 为相对速度, $\gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2}$, 矩阵 α 和 β 为[14]:

$$\underline{\underline{\alpha}} = \underline{\underline{I}} + (\gamma - 1) \frac{\underline{\underline{\beta}} \underline{\underline{\beta}}}{\beta^2} = \begin{pmatrix} \gamma & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (7a)$$

$$\underline{\underline{\beta}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\beta \\ 0 & \beta & 0 \end{pmatrix} \quad (7b)$$

利用以上公式, 计算得到移动表面的等效边界条件:

$$\begin{pmatrix} E'_x \\ E'_y \\ E'_z \end{pmatrix} = \gamma \left\{ \begin{pmatrix} \frac{1}{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} + c \mu_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\beta \\ 0 & \beta & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \\ H_z \end{pmatrix} \right\}, \quad (8a)$$

$$\begin{pmatrix} H'_x \\ H'_y \\ H'_z \end{pmatrix} = \gamma \left\{ -c \xi_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\beta \\ 0 & \beta & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{1}{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \\ H_z \end{pmatrix} \right\}. \quad (8b)$$

将上述公式代入公式 6, 并基于电磁场理论和洛伦兹变换, 可推导出移动表面的各向异性等效电导率张量:

$$\bar{\sigma} = \begin{pmatrix} \bar{\sigma}_{xx} & \bar{\sigma}_{xy} \\ \bar{\sigma}_{yx} & \bar{\sigma}_{yy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{-2v\xi_0 k_x}{k_z} + \frac{\sigma_{xx}}{\gamma} & \frac{-2v\xi_0 k_y}{k_z} \\ \frac{\sigma_{yy} \gamma v k_y}{\omega} & \gamma \sigma_{yy} - \frac{\sigma_{yy} \gamma v k_x}{\omega} \end{pmatrix} \quad (9)$$

图 2 展示了相对速度 β 从 0 到 0.5 的色散图, 色散曲线由如下公式计算得到[15, 16]:

$$2k_0^2\eta_0(\sigma'_{xx} + \sigma'_{yy}) + k_0k_z(4 + \eta_0^2(\sigma'_{xx}\sigma'_{yy} - \sigma'_{xy}\sigma'_{yx})) = 2\eta_0(k_x^2 + k_y^2)\sigma'_{xx} \quad (10)$$

可以观察到，由于材料支持表面各向异性等离子激元（Surface Plasmons Polariton, SPPs），当 $\beta = 0$ 时，色散曲线为沿 k_x 与 k_y 方向对称的不规则的椭圆形。随着 β 的增大，由于速度导致 SPPs 的不对称性，使沿 k_x 方向的色散曲线发生偏移，而沿 k_y 方向的色散曲线始终对称。随着 β 的进一步增大，由于表面移动速度过大导致 SPPs 的不对称性加剧，沿 k_x 方向的色散曲线数值趋于 0。

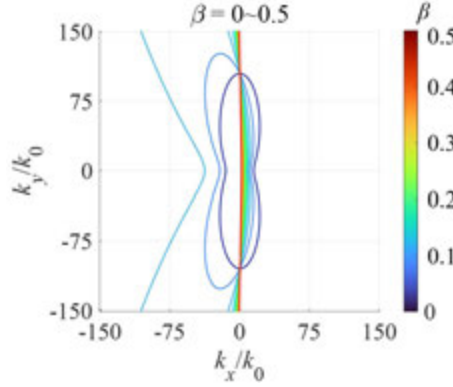


图 2 随相对速度连续变化色散图

Figure 2. Continuous dispersion diagram in the wave-vector space with different relative velocity β

2 结果分析

2.1 速度对热流的影响

为了探究热流变化与速度之间的关系，图 3 给出了热流随相对速度变化的结果，其中间距 $d = 50 \text{ nm}$ ，旋转角 $\theta = 0$ ，电子密度 $n = 2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 。为方便分析，本文默认将温度设定为 $T_1 = 310 \text{ K}$ ， $T_2 = 300 \text{ K}$ 。

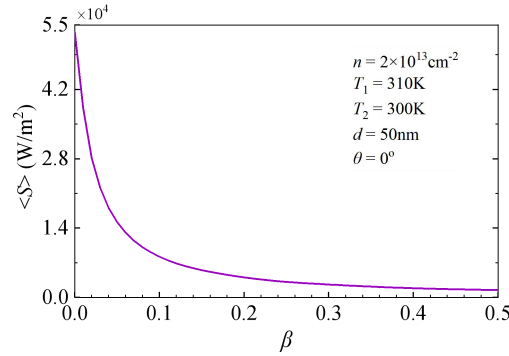


图 3 热流随相对速度变化曲线

Figure 3. Heat flux between a stationary surface and a moving surface with respect to the relative velocity

从图中可以观察到，热流随着相对速度的增大而减小。当相对速度 $\beta = 0 \sim 0.1$ 时，热流变化显著，减小速度较快，对速度的变化较敏感。而后随着速度的进一步升高，热流缓慢减小。

为了对该趋势进行解释，图 4 给出了 0.05 eV 光子能量下 β 为 0、0.05 和 0.5 的能量传输系数分布图，绿色虚线对应移动表面的色散关系，蓝色虚线为静止表面色散关系。色散曲线与传输系数云图的亮带吻合，说明 SPPs 的激发。从图可见，随着速度的增大，沿 k_x 方向的能量传输系数不对称较为明显，沿 k_y 方向的能量传输系数基本保持对称。且

沿 k_x 方向的能量传输系数减小，这一变化在速度由 0 增大到 0.1 时较为明显；当速度增大到 0.1 时，此时的能量传输系数已经较小，速度继续增大，可以观察到能量传输系数持续减小， k_x 方向的能量传输系数趋于 0，明亮范围减小。这意味着在速度趋近于光速时，沿 k_y 方向的能量传递主导了近场热辐射传热；随着速度增大，上下表面耦合不对称性增大，导致热流减小，当 $\beta = 0.5$ 时，上下表面的色散耦合最弱。这一趋势与图 3 一致。

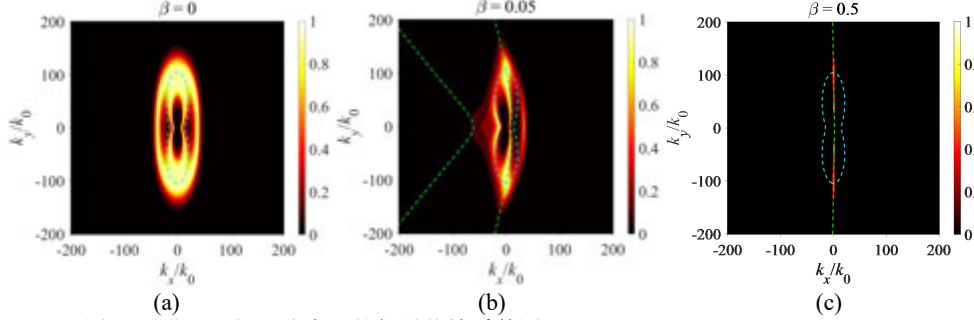


图 4 三种不同相对速度下的能量传输系数图 (a) $\beta = 0$, (b) $\beta = 0.05$ 和 (c) $\beta = 0.5$

Figure 4. Contour plots of the energy transfer coefficients for three different relative speeds (a) $\beta = 0$, (b) $\beta = 0.05$ and (c) $\beta = 0.5$

2.2 旋转角对热流的影响

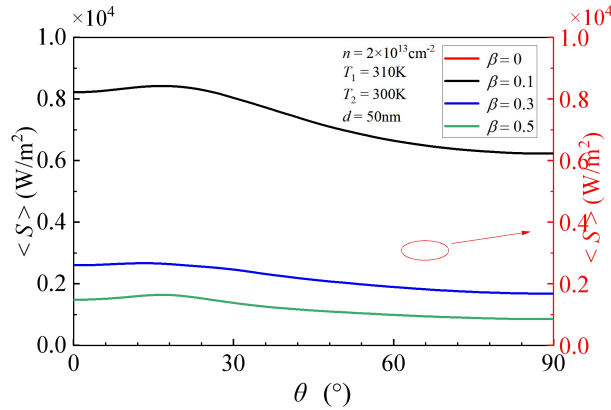


图 5 四种不同相对速度下热流随旋转角变化曲线

Figure 5. Heat flux with respect to the rotation angle at four different relative speeds

图 5 为不同相对速度下热流随旋转角变化曲线，其中间距 $d = 50\text{nm}$ ，电子密度 $n = 2 \times 10^{13}\text{cm}^{-2}$ 。从图中可以观察到，当无速度时，热流较大，随着旋转角度的增大，热流减小。尤其是旋转角为 0 时，无速度时的热流远远高于其他情况，这是因为 SPPs 对称，耦合效应最强。有速度情形，呈现小角度范围内微小增大随后逐渐减小的趋势，但相对无速度情形，整体随角度变化幅度较小。角度为 0 的时候，SPPs 就是不对称的，耦合强度远远低于无速度情况。旋转角度的变化会使 SPPs 不对称，但是由于速度导致 SPPs 已经不对称，因此旋转角度的变化在有速度的情况下对 SPPs 的不对称影响并不明显。

图 6 展示了当 $\beta = 0.3$ 时，三种不同旋转角度下光谱辐射热流随频率变化的曲线。从图中可以观察到，光谱辐射热流与频率的关系非单调，当位于较低频率时，光谱辐射热流有一个较小的峰值，随着频率进一步增大，光谱辐射热流出现较大的峰值。随着旋转角度的增大，光谱辐射热流的最大值先增大再减小，这也导致了如图 5 所示的热流与旋转角的非单调的关系，使热流随旋转角的增大先增大后减小。

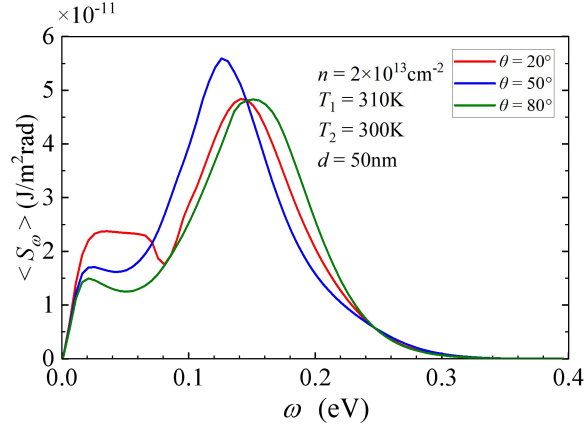


图 6 三种不同角度下的光谱辐射热流曲线

Figure 6. Spectral radiative heat flux at three different rotation angles with a relative velocity of $\beta = 0.3$

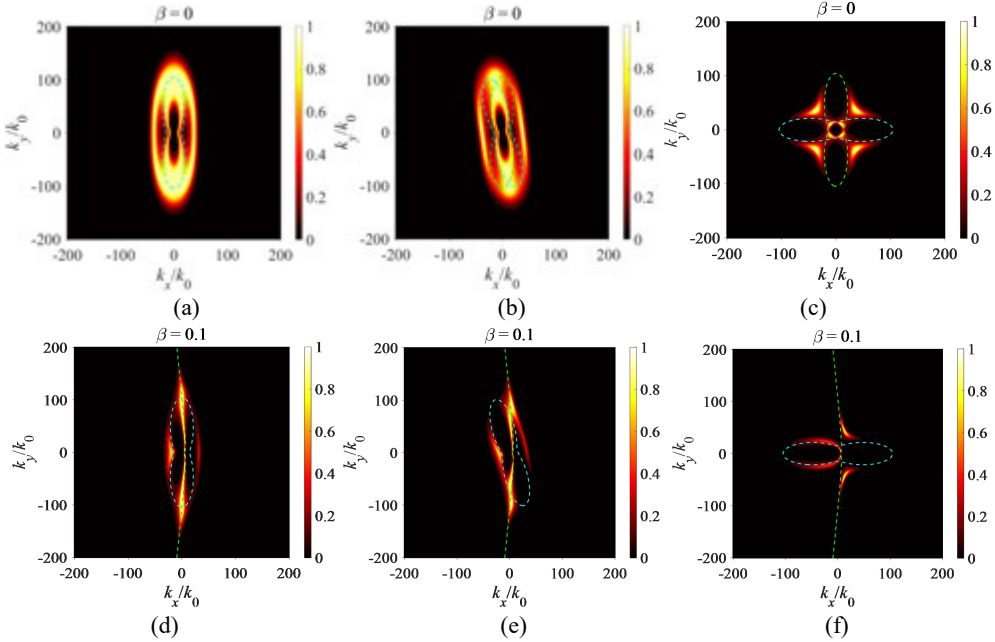


图 7 无速度和 $\beta = 0.1$ 时三种不同角度下能量传输系数图 (a) $\beta = 0$, $\theta = 0^\circ$, (b) $\beta = 0$, $\theta = 15^\circ$, (c) $\beta = 0$, $\theta = 90^\circ$, (d) $\beta = 0.1$, $\theta = 0^\circ$, (e) $\beta = 0.1$, $\theta = 15^\circ$ 和 (f) $\beta = 0.1$, $\theta = 90^\circ$

Figure 7. Contour plots of the energy transfer coefficients at three different angles of $\theta = 0^\circ$, 15° and 90° for (a)~(c) $\beta = 0$ and (d)~(f) $\beta = 0.1$

图 7 为能量传输系数结果，对比了当无速度与 $\beta = 0.1$ 时，三种不同旋转角度下的图像。从图(a-c)中可以观察到，随着旋转角度的增大， k_x 和 k_y 方向的能量传输系数的不对称性增大，且能量传输系数的数值减小。明亮范围变小，但由于上下表面的 SPPs 耦合，中心出现亮的小光圈。当旋转角度为 90° 时，最大能量传输系数出现在 $k_x = k_y$ 区域；当旋转角度处于 0 到 15° 时，沿 k_y 方向的能量传输系数基本不变，沿 k_x 方向的能量传输系数不对称性增强，数值有微小增大。当旋转角继续增大， k_y 与 k_x 方向的能量传输系数不对称增大，沿 k_y 方向的能量传输系数数值减小，沿 k_x 方向的能量传输系数数值增大。

从图(d-f)中可以观察到，当旋转角度为 90° 时，此时沿 k_y 方向的能量传输系数对称，沿 k_x 方向的能量传输系数不对称。对比旋转角度为 0 的情况，此时沿 k_y 方向的能量传输

系数的数值明显减小, 沿 k_x 方向的能量传输系数数值增大。这一规律与曲线描述一致。对比图(a-c), 可以观察到, 由于速度导致上下表面的 SPPs 不对称, 上表面的色散曲线的变化影响了能量传输系数的分布, 进而影响了近场辐射换热。

3 结 论

表面的移动和旋转角会导致能量传递在波矢空间的不对称性, 从而对辐射热流以及能量传输系数造成显著影响。本文通过分析不同变量与热流以及光谱辐射热流的变化关系, 发现随着速度的增大, 热流减小。通过对旋转角度与热流变化的分析, 以及旋转角与频率的耦合分析, 发现热流随旋转角度和频率的变化呈现非单调变化的趋势, 在旋转角度为 30° 且光子频率为 0.2eV 左右时, 光谱辐射热流最大。本文通过耦合各向异性表面速度、旋转角、光子频率实现了近场辐射换热的调控, 为近场热辐射的相关应用提供了新思路。

参考文献

- [1] B. Liu, J. Shi, K. Liew, S. Shen, Near-field Radiative Heat Transfer for Si Based Metamaterials, *Optics Communications*. 314 (2014) 57–65.
- [2] B. Zhao, S. Assaworrorarit, P. Santhanam, M. Orenstein, S. Fan, High-performance Photonic Transformers for DC Voltage Conversion, *Nature Communications*. 12 (2021).
- [3] J. Song, M.W. Choi, M. Lim, J. Lee, B.E. Lee, Comprehensive Analysis of an Optimized near-field Tandem Thermophotovoltaic Converter, *Solar Energy Materials and Solar Cells*. 236 (2022) 111522–111522.
- [4] B. Zhao, P. Santhanam, K.F. Chen, S. Buddhiraju, S. Fan, Near-Field Thermophotonic Systems for Low-Grade Waste-Heat Recovery, *Nano Letters*. 18 (2018) 5224–5230.
- [5] H. Minkowski, Die Grundgleichungen Fur Die Elektromagnetischen Vorgange in Bewegten Korpern, *Mathematische Annalen*. 68 (1910) 472–525.
- [6] C. Yeh, K.F. Casey, Reflection and Transmission of Electromagnetic Waves by a Moving Dielectric Slab, *Physical Review*. 144 (1966) 665–669.
- [7] Z.L. Wang, On the Expanded Maxwell's Equations for Moving Charged Media System – General theory, *Mathematical Solutions and Applications in TENG, Materials Today*. 52 (2022) 348–363.
- [8] M. Antezza, N. Emelianova, N. Khusnutdinov, Casimir-Lifshitz Force for Moving Graphene, *NASA ADS*. (2023).
- [9] Y. Mazor, A. Alù, Nonreciprocal Hyperbolic Propagation over Moving Metasurfaces, *Physical Review B*. 99 (2019).
- [10] S.A. Biehs, P. Ben-Abdallah, F.S.S. Rosa, K. Joulain, J.J. Greffet, Nanoscale Heat Flux between Nanoporous Materials, *Optics Express*. 19 (2011) A1088.
- [11] O.V. Kotov, Y.E. Lozovik, Enhanced Optical Activity in Hyperbolic Metasurfaces, *Physical Review B*. 96 (2017).
- [12] L. Ge, Y. Cang, K. Gong, L. Zhou, D. Yu, Y. Luo, Control of near-field Radiative Heat Transfer Based on Anisotropic 2D Materials, *AIP Advances*. 8 (2018) 085321.
- [13] A. Nemilentsau, T. Low, G. Hanson, Anisotropic 2D Materials for Tunable Hyperbolic Plasmonics, *Physical Review Letters*. 116 (2016).
- [14] J.A. Kong, *Electromagnetic Wave Theory*, Wiley-Interscience. (1990).
- [15] Y. Zhang, M. Antezza, H.L. Yi, H.P. Tan, Metasurface-mediated Anisotropic Radiative Heat Transfer between Nanoparticles, *Physical Review B*. 100 (2019).
- [16] J.S. Gomez-Diaz, A. Alù, Flatland Optics with Hyperbolic Metasurfaces, *ACS Photonics*. 3 (2016) 2211–2224.

考虑端面传热对高速角接触球轴承温度特性分析

张鑫¹, 林梦豪², 方兴^{*}

(衢州学院, 浙江省衢州市 32400)

(Tel:15657051987, Email:36092@qzc.edu.cn)

摘要: 以 7009C 角接触球轴承为研究对象, 考虑滚珠自旋的影响, 根据 Palmgren 摩擦力矩经验公式建立生热模型, 基于热网络法, 考虑轴承端面热阻及端面辐射的影响, 改进轴承热网络节点对高速角接触球轴承进行温度计算分析。另外, 基于 ANSYS 有限元分析平台对轴承进行温度场仿真分析。最后比较两种方法的结果, 分析表明, 轴承端面传热对轴承整体温度场有较大影响, 轴承温度场分析应当考虑轴承端面传热的影响, 轴承端面辐射在低温下对轴承温度场影响有限, 理论计算与有限元分析结果接近, 验证了所改进的热网络法对轴承温度场分析方法具有较高的可靠性。

关键词: 高速角接触球轴承; 有限元; 热网络; 辐射换热

0 前言

角接触球轴承是旋转机械中的关键支撑部件, 广泛应用于交通运输、机床、工业生产、航天及精密仪器等领域。当前主轴轴承的 $d_m \cdot n$ 值已经达到 $2 \times 10^6 \text{ mm} \cdot \text{r/min}$, 在高速工况下, 轴承内各零部件及润滑剂之间的摩擦生热加剧, 导致温度上升, 直接影响轴承与主轴单元的工作性能。因此研究高速角接触球轴承的温度特性具有重要意义。

王廷忠^[1]考虑轴承内圈偏移对其受力平衡影响, 对角接触球轴承拟静力学模型提出了一种牛顿-拉弗森迭代法的改进算法, 求解速度快, 易收敛。张义民^[2]建立轴承瞬态有限元热分析模型, 对轴承动态接触特性及热变形进行仿真分析。王兰文^[3]通过有限元法分析轴承在高速下温度特性和机械特性。陈玉莲等^[4]通过热网络理论分析与有限元法对轴承温度场进行分析对比。程庆元等^[5]建立了基于热网络法和有限元法的轴承温度场计算模型, 得到了在中低速条件下角接触球轴承温度场。丁洪福等^[6]考虑轴承内各部件及润滑油随温度的时变特性, 基于热网络法建立瞬态热计算模型。王亚珍等^[7]用热网络法和有限元法分析了柔性轴承的温度场分布, 分析了各零件热量和热传递关系。刘俊峰等^[8]基于 Palmgren 摩擦力矩经验公式和传热学理论建立了热网络模型, 测量了不同工况条件下的外圈温度, 试验结果表明该理论模型能较为准确地预测轴承的温升情况。Niel^[9]等将 Harris 生热模型与 SKF 生热模型相结合, 简化了轴承生热模型, 并实验验证可以通过更少的数据估算全局功率损失。Zheng^[10]等考虑润滑剂、结构及装配条件, 建立高速主轴前轴承及其周围环境的综合热网格模型, 对轴承温升进行实验测试。Ma^[11]等基于局部生热模型建立了脂润滑滚子轴承瞬态热模型, 结果表明, 轴承转速、径向载荷和润滑脂填充率越大, 轴承温升越高。Zhang^[12]等根据局部法建立考虑热膨胀影响的轴承热特性分析模型, 通过热网格方程分析高速轴承温度。Xu^[13]等建立了考虑热-流-固耦合效应的轴承瞬态温度热网络模型, 结果表明, 新模型具有更好的精度, 并讨论了转速、负荷、油温、油流量对轴承温升的影响。

综上, 现研究阶段多是以热传导和对流换热两种为主要传热方式对轴承温度场进行分析, 很少考虑轴承端面热阻的影响, 现有文献没有关于辐射换热的考虑。本文以高速角接触球轴承为研究对象, 分析轴向载荷条件下滚珠的受力和运动, 建立含滚珠自旋摩擦的生热模型, 考虑轴承端面的热阻及辐射的影响, 通过改进热网络法及有限元法对轴承温度场进行分析,

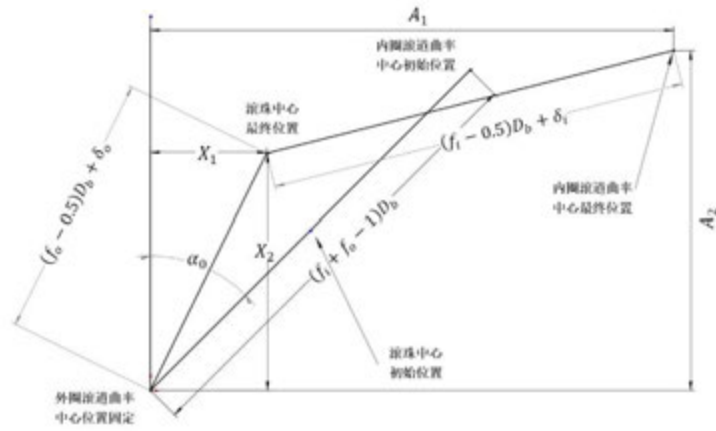
通过结果比对,验证此生热和传热模型预测轴承温升的准确性,为高速角接触球轴承的热特性分析及优化设计提供参考。

1 轴承生热模型

1.1 轴承几何分析和受力分析

本文研究高速电主轴角接触球轴承,由于轴承运动状态复杂,为简化计算,建立拟静力学分析模型时通常做以下假设:1)球轴承符合刚性套圈假设;2)可以采用沟道控制理论建立球与内、外圈之间的运动关系;3)忽略滚珠沿运动方向的作用力以及内圈、滚珠与保持架之间的相互作用;4)不考虑滚珠与内、外圈之间的润滑。

角接触球轴承在高速运转过程中,滚珠与内外滚道之间会产生陀螺力矩和离心力。假设外圈固定,内圈旋转。在惯性载荷作用下,滚珠和内滚道曲率中心将发生改变,外滚道曲率中心保持不变。角接触球轴承高速运转时,滚珠与内外滚道曲率中心的几何关系,如图1所示。



f_i 、 f_o 分别为内滚道和外滚道的沟曲率系数; δ_i 、 δ_o 分别为内圈和外圈的法向接触变形; u_a 为轴向位移; X_1 、 X_2 为引入的新变量; A_1 、 A_2 分别为内外滚道曲率中心的相对轴向位移和径向位移; D_b 为滚珠直径; α_o 为滚珠初始接触角; α_i 、 α_o 分别为内接触角和外接触角

图1 滚珠中心与滚道曲率中心几何关系图

为简化计算,引入变量 X_1 、 X_2 ,分别表示受载后球中心到外沟曲率中心之间的轴向和径向距离。根据勾股定理可得

$$(A_1 - X_1)^2 + (A_2 - X_2)^2 = [(f_i - 0.5)D_b + \delta_i]^2 \quad (1)$$

$$X_1^2 + X_2^2 - [(f_o - 0.5)D_b + \delta_o]^2 = 0 \quad (2)$$

高速角接触球轴承受轴向载荷作用下滚珠的受力情况如图2所示。轴承由于高速旋转会产生较大的离心力,陀螺力矩全部作用于外滚道,轴承高速运转时一般为外滚道控制,取控制系数 $\lambda_i = 0$, $\lambda_o = 2$ 。

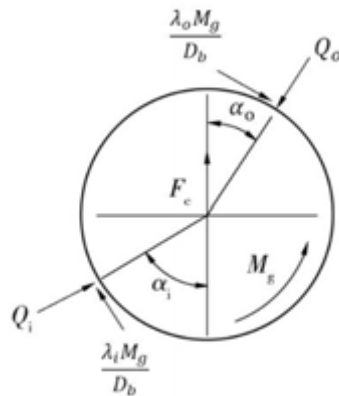


图2 球受力示意图

由图2 球受载情况可知球在竖直方向和水平方向的受力平衡，力平衡方程为

$$Q_i \sin \alpha_i - Q_o \sin \alpha_o + 2 \cos \alpha_o \frac{M_g}{D_b} = 0 \quad (3)$$

$$Q_i \cos \alpha_i - Q_o \cos \alpha_o - 2 \sin \alpha_o \frac{M_g}{D_b} + F_c = 0 \quad (4)$$

由赫兹接触理论可知球与滚道的法向接触载荷与法向接触变形的关系为

$$\begin{cases} Q_i = K_i \delta_i^{1.5} \\ Q_o = K_o \delta_o^{1.5} \end{cases} \quad (5)$$

球所受离心力 F_c 为

$$F_c = \frac{1}{2} m D_m \omega_m^2 \quad (6)$$

m 为单个球质量； ω_m 为球公转角速度

陀螺力矩 M_g 可表示为

$$M_g = J \omega_m \omega_R \sin \beta \quad (7)$$

$$J = \frac{1}{60} \rho \pi D_b^5 \quad (8)$$

J 为球转动惯量； ω_R 为球自转角速度； β 为球姿态角。

轴承在受轴向力的情况下，每个滚珠受力相同，建立整个轴承的平衡方程为

$$F_a - Z Q_i \sin \alpha_i = 0 \quad (9)$$

F_a 为轴向载荷； Z 为滚珠个数。

对式(1)~式(4)、式(9)采用牛顿拉夫森迭代法求解，求解流程如图3所示，7009C 轴承结构参数如表1所示。

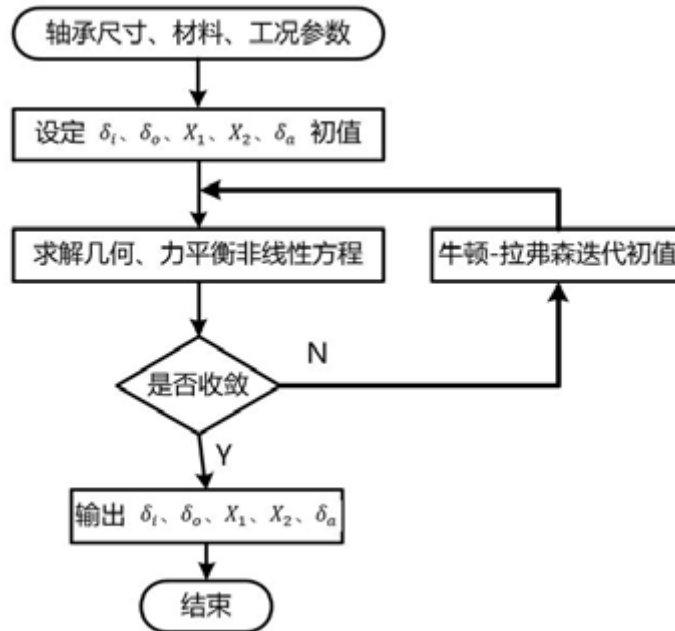


图3 轴承平衡方程求解流程图

表1 7009C 轴承结构参数

参数名称	数值
------	----

轴承内径 d/mm	45
轴承外径 D/mm	75
节圆直径 D_m/mm	60
轴承宽度 B/mm	16
滚珠直径 D_b/mm	7.938
内滚道曲率系数 f_i/mm	0.545
外滚道曲率系数 f_o/mm	0.545
初始接触角 $\alpha_0/(^\circ)$	15
滚珠个数 Z	18

1.2 轴承运动分析

对高速角接触球轴承其外圈固定，内圈旋转，滚珠的公转角速度 ω_m 为

$$\omega_m = \frac{1 - \gamma' \cos \alpha_i}{1 + \cos (\alpha_i - \alpha_o)} \omega \quad \#(10)$$

自转角速度 ω_R 为

$$\omega_R = \frac{-\omega}{\left(\frac{\cos \alpha_o + \tan \beta \sin \alpha_o}{1 + \gamma' \cos \alpha_o} + \frac{\cos \alpha_i + \tan \beta \sin \alpha_i}{1 - \gamma' \cos \alpha_i} \right) \gamma' \cos \beta} \quad \#(11)$$

根据外沟道控制理论，滚珠在外圈做纯滚动，内圈则发生自旋。滚珠的自旋角速度 ω_{si} 的计算式为

$$\omega_{si} = \frac{[\gamma' \sin \beta + \sin (\alpha_i - \beta)] \omega_R}{1 - \gamma' \cos \alpha_i} \quad \#(12)$$

其中， $\gamma' = \frac{D_b}{d_m}$ ； β —滚珠的姿态角， $\tan \beta = \frac{\sin \alpha_o}{\cos \alpha_o + \gamma'}$ ； ω —内圈角速度。

对轴承进行受力分析及运动分析，得到轴承内部各元件的接触载荷、接触角等力学参数和滚珠的公转、自转、自旋等运动学参数，可为轴承内部的摩擦生热分析提供基础。

1.3 生热模型的建立

轴承各部件升温的主要原因是滚珠与轴承内外圈滚道产生摩擦，本文根据 Palmgren 推导出的轴承摩擦力矩的经验公式^[4]建立轴承生热模型。

由润滑引起的摩擦力矩 M_v 的计算公式如下：

$$\begin{cases} M_v = 10^{-7} f_0 (vn)^{\frac{2}{3}} D_m^3, & vn \geq 2000 \\ M_v = 160 \times 10^{-7} f_0 D_m^3, & vn < 2000 \end{cases} \quad \#(13)$$

式中： M_v —摩擦力矩，与载荷大小无关， $N \cdot mm$ ；

D_m —轴承的平均直径， mm ；

n —轴承转速， r/min ；

v —润滑剂的运动粘度， mm^2/s ；

f_0 —润滑相关系数。

由轴承载荷引起的摩擦力矩 M_l 计算公式如下：

$$M_l = f_1 P_1 D_m \quad \#(14)$$

式中： f_1 —与轴承载荷相关系数；

P_1 —轴承当量动载荷。

f_1 、 P_1 可以通过计算获得

$$\begin{cases} f_1 = 0.0013 \times \left(\frac{P_0}{C_0}\right)^{0.33} \\ P_1 = F_a - 0.1F_r \end{cases} \quad \#(15)$$

当量静载荷 P_0 和基本额定静载荷 C_0 :

$$\begin{cases} P_0 = 0.5F_r + 0.47F_a \\ C_0 = \varphi_s Z D_b^2 \cos \alpha_0 \end{cases} \quad \#(16)$$

其中, φ_s 可由查表得 $\varphi_s = 15.67$;

单个滚珠的内圈自旋摩擦力矩 M_{si} 的计算公式为

$$M_{si} = \frac{3\mu Q_i a_i E_i}{8} \quad \#(17)$$

式中: M_{si} —自旋摩擦力矩; μ —滑动摩擦系数; Q_i —内接触载荷; a_i —滚珠与内圈接触椭圆长轴; E_i —第二类完全椭圆积分。

为了准确计算角接触球轴承的生热, 将整体的摩擦力矩变为单个滚珠在各自滚道接触区的摩擦力矩^[15]可表示为:

$$\begin{cases} M_i = \frac{D_b}{2ZD_o} (M_v + M_l) \\ M_o = \frac{D_b}{2Zd_i} (M_v + M_l) \end{cases} \quad \#(18)$$

D_o —轴承外圈滚道底直径; d_i —轴承内圈滚道底直径;

轴承单个滚珠与内、外滚道接触区域的摩擦生热量为:

$$\begin{cases} H_{ij} = w_{roll} \cdot M_i + \omega_{si} \cdot M_{si} \\ H_{oj} = w_{roll} \cdot M_o \end{cases} \quad \#(19)$$

w_{roll} —滚珠相对于外圈滚道的滚动角速度, rad/s , $w_{roll} = w_m \frac{D_m}{D_b}$ 。

2 轴承传热模型

一般轴承温度场分析主要是以热传导和热对流 2 种方式在零部件之间传递, 本文在分析了 7009C 轴承的原理基础上, 结合对轴承温度影响的转速和环境温度等因素, 同时考虑三种传热方式对轴承温度的影响, 构建了轴承热网络模型及有限元模型, 求解轴承的温度。

2.1 热网络法

热网络法分析轴承温度场是建立轴承各部件温度节点, 根据 Kirchhoff 能量平衡原理, 流入该节点的能量等于流出该节点的能量, 每个节点之间以热阻的形式关联形成热网络, 由此建立系统中各节点的热平衡方程组, 通过求解方程组得出轴承温度场分布, 而一般热网络法计算轴承温度场只靠温度的径向传递, 如图 4 (a) 所示, 忽略轴承端面对流对轴承温度场的影响。根据 7009C 角接触球轴承的基本结构, 建立了考虑轴承端面热阻的温度节点系统, 如图 4 (b) 所示。图 4 中各温度参数的含义如表 2 所示。

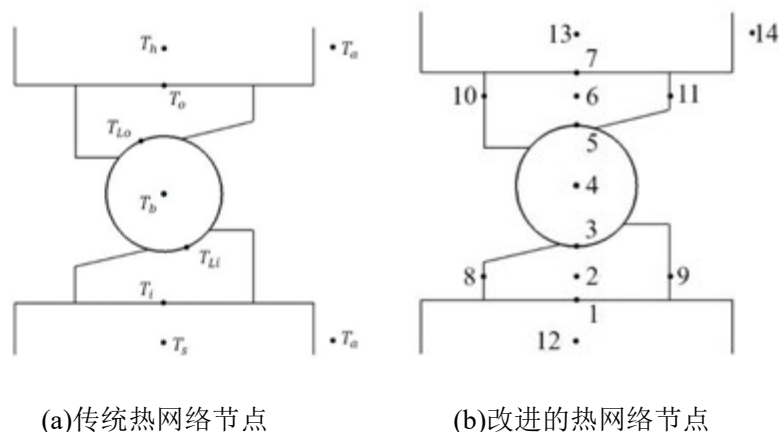


图4 轴承温度节点系统

表2 轴承温度节点

参数代号	参数名称
1	内圈内侧温度
2	内圈温度
3	内圈滚道温度
4	滚珠温度
5	外圈滚道温度
6	外圈温度
7	外圈外侧温度
8	端面温度
9	端面温度
10	端面温度
11	端面温度
12	轴温度
13	轴承座温度
14	油温度

2.1.1 热阻计算

热传导按照傅里叶定律计算，热导率由材料的属性直接获得，热传导热阻为：

$$R = \frac{L}{\lambda A} \#(20)$$

其中， Q —单位时间 内通过面积的热量称为热流量， W ； A —面积， m^2 ； T_m ， T_n —物体两端温度，热量传递方向和温度梯度方向相反， K ； λ —导热系数， $W/(m \cdot K)$ ； L —特征长度， m ；

热对流形式热阻计算公式为：

$$R = \frac{1}{hA}$$

Harris^[16]等给出的对流换热系数 h 的计算公式：

$$h = 0.332 \frac{K}{x} Pr^{\frac{1}{3}} Re^{\frac{1}{2}}, Re < 5 \times 10^5 \#(21)$$

式中： h 为对流换热系数； K 为流体导热系数； P_r 为普朗特数； R_e 为雷诺数， $R_e = \frac{u_s x}{\nu_0}$ ， u_s 是保持架表面速度， ν_0 流体运动粘度； x 为特征长度。

轴承座等零件的静止表面与空气的自然对流换热系数^[17]为

$$h_h = 9.7W/(m^2 \cdot K) \quad (22)$$

热辐射形式的热量大小计算公式为：

$$\Phi = A\varepsilon\sigma(T_p^4 - T_q^4) \quad (23)$$

其中 ε —黑体辐射常数， $5.67 \times 10^{-8}W/m^2 \cdot K^4$ ； σ —物体发射率，无量纲数； A —物体辐射表面积。

部分热阻抗值计算如表 3 所示。

表 3 热阻计算方法

描述	热阻计算公式
球传导热阻	$\frac{2}{\pi k D_b}$
圈环传导热阻	$\frac{\ln(D/d)}{2\pi k B}$
主轴热阻	$\frac{1}{\pi k_s B} + \frac{4L_s}{\pi k_s d^2} + \frac{4}{\pi h_s d^2}$
轴承座热阻	$\frac{R_{rad} \cdot R_{ax}}{R_{rad} + R_{ax}}$
	$R_{rad} = \frac{\ln(D_h/D)}{2\pi k_h C} + \frac{1}{\pi h_h D_h L_h}$
	$R_{ax} = \frac{4L_h}{\pi k_h (D_h^2 - D^2)} + \frac{4}{\pi h_h (D_h^2 - D^2)}$

2.1.2 热平衡方程

根据图 4 建立热网络图如图 5 所示，此热网络模型是包含内圈、内圈滚道、滚珠、外圈滚道、外圈及端面热阻等未知温度节点的传递系统。

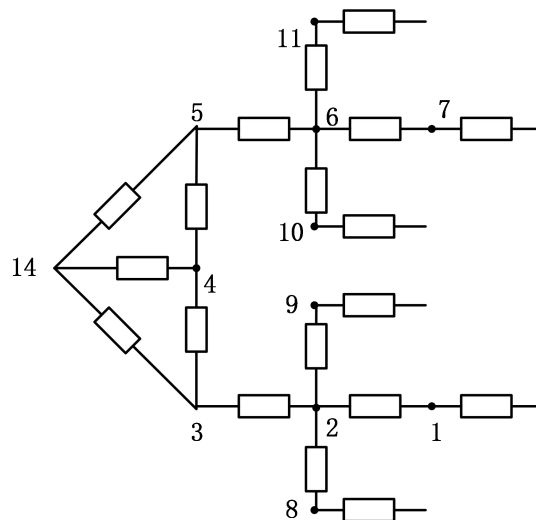


图 5 轴承热网络图

根据 Burton 等^[18]提出的观点，2 个接触元件如果物性相同或相近，可假设将接触区的

摩擦热等分给 2 个接触体，轴承生热量一半进入滚珠，一半传到内外圈上。根据热网络图及，分别建立轴承端面无辐射热平衡方程及端面面辐射为 0.75 的热平衡方程。

$$\begin{aligned}
 & \frac{T_1 - T_a}{R_s} + \frac{T_1 - T_2}{R_{1c2}} = 0 \\
 & \frac{T_2 - T_1}{R_{1c2}} + \frac{T_2 - T_5}{R_{2c3}} + \frac{T_2 - T_8}{R_{2c8}} + \frac{T_2 - T_9}{R_{2c9}} = 0 \\
 & \frac{T_3 - T_2}{R_{2c3}} + \frac{T_3 - T_4}{R_{3c4}} + \frac{T_3 - T_{12}}{R_{3v12}} = H_i \\
 & \frac{T_4 - T_3}{R_{3c4}} + \frac{T_4 - T_5}{R_{4c5}} + \frac{T_4 - T_{12}}{R_{4v12}} = H_i + H_o \\
 & \frac{T_5 - T_4}{R_{4c5}} + \frac{T_5 - T_6}{R_{5c6}} + \frac{T_5 - T_{12}}{R_{5v12}} = H_o \\
 & \frac{T_6 - T_5}{R_{5c6}} + \frac{T_6 - T_7}{R_{6c7}} + \frac{T_6 - T_{10}}{R_{6c10}} + \frac{T_6 - T_{11}}{R_{6c11}} = 0 \\
 & \frac{T_7 - T_6}{R_{6c7}} + \frac{T_7 - T_a}{R_h} = 0 \\
 & \frac{T_8 - T_{12}}{R_{8v14}} + \frac{T_8 - T_2}{R_{2c8}} + \frac{T_8 - T_{12}}{R_{8r}} = 0 \\
 & \frac{T_9 - T_{12}}{R_{9v14}} + \frac{T_9 - T_2}{R_{2c9}} + \frac{T_9 - T_{12}}{R_{9r}} = 0 \\
 & \frac{T_{10} - T_{12}}{R_{10v14}} + \frac{T_{10} - T_6}{R_{6c10}} + \frac{T_{10} - T_{12}}{R_{10r}} = 0 \\
 & \frac{T_{11} - T_{12}}{R_{11v14}} + \frac{T_{11} - T_6}{R_{6c11}} + \frac{T_{11} - T_{12}}{R_{11r}} = 0
 \end{aligned} \quad \#(24)$$

在 Matlab Simulink 中搭载热网络模型进行求解得到各热节点的温度。

2.2 有限元法

7009C 角接触球轴承的结构参数如表 1 所示。在建立有限元模型时，忽略倒角、圆角和其他对分析影响很小的微小几何体，其模型如图 6 所示。

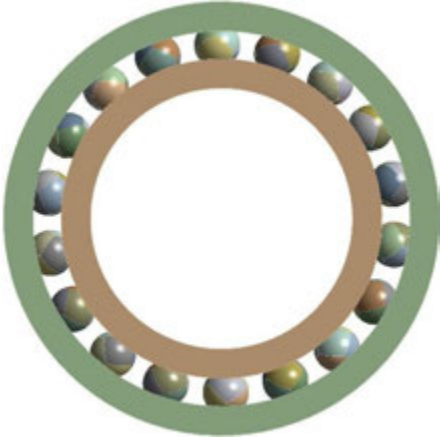


图 6 7009C 有限元模型

该轴承的内圈、外圈、滚珠材料为 GCr15，在常温下的力学和热力学性能参数如表 4 所示。

表 4 材料参数

材料	密度/ (kg/m^3)	弹性模量/ GPa	泊松比	热导率/ ($W/(m \cdot K)$)	比热/ ($J/(kg \cdot K)$)	热膨胀系数 ($^{\circ}C^{-1}$)
----	---------------------	----------------	-----	-----------------------------	-----------------------------	-------------------------------

GCr15	7800	213	0.3	35.62	477.63	1.023×10^{-5}
-------	------	-----	-----	-------	--------	------------------------

由于滚珠与套圈滚道表面接触为主要热源，因此将发热量以热流量的形式施加在内外圈沟道以及滚珠表面上。在内外圈以及滚动体的外表面加载对流换热。。

通过 ANSYS Workbench 进行稳态热分析，施加相关热边界条件并进行计算，设置环境温度为 20℃，得到角接触球轴承的温度场分布云图，如图 7 所示。

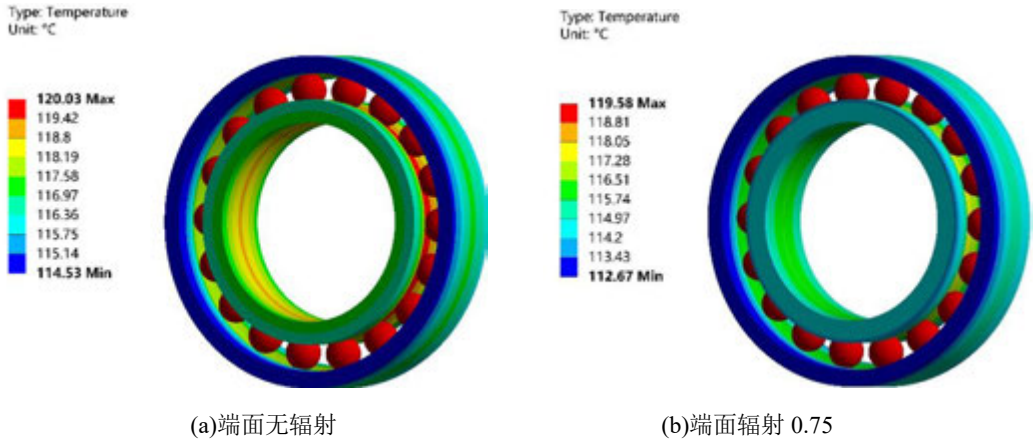


图 8 轴承温度场

3 结果对比分析

将有限元计算结果与改进的热网络计算结果进行对比，结果较为吻合，如表 5 所示，表 5 为 15000rpm 下轴承温度对比，证明了文中有限元及热网络模型的有效性。

表 5 计算结果对比

位置	计算温度 $T/^\circ\text{C}$			
	常规热网络法	改进热网络法 (无辐射)	改进热网络法 (端面辐射 0.75)	有限元法 (端面 辐射 0.75)
外圈	132.6361	117.1093	115.7338	115.29
外圈滚道	132.6876	117.7839	116.4704	116.24
滚珠	133.5172	118.739	117.4552	119.44
内圈滚道	133.0095	117.8312	116.5314	117.35
内圈	132.9500	116.8928	115.5196	116.51

从表 5 可以看出改进的热网络法温度总体比常规热网络法计算的温度要低，最大差距有 16℃，这是因为改进的热网络法中考虑了轴承端面的热阻对轴承整体温度场的影响。在改进的热网络法中，本文考虑到轴承端面的热辐射换热对整个轴承温度场的影响，可以看到，端面施加 0.75 的辐射后，整体轴承的温度下降，但是下降幅度并不大。轴承在低温运行时，轴承的热辐射换热对轴承温度场的影响很小。

有限元法和热网络法计算的结果存在误差，主要原因为有限元法分析中，为了方便建模和计算收敛，仅单独考虑了轴承，并没有将轴承座与转轴考虑进去，在热分析中忽略了这两部分的热传导作用；而热网络法为二维分析方法，将整个传动系统作为研究对象，分析更全面，但是在一定程度上也进行了简化，准确性有一定的影响。

4 结 论

建立高速角接触球轴承的生热传热模型，考虑轴承端面传热改进轴承热网络节点，计算得到轴承的理论温度并与有限元结果进行对比，得到以下结论：

(1) 改进的热网络法较之常规的热网络法更能够准确的体现轴承温度场的变化,对轴承的温度场进行分析需考虑轴承端面传热的影响。

(2) 轴承在低温运行时,轴承端面辐射换热对轴承温度场影响较小。

(3) 采用热网络法和有限元法进行轴承温度理论分析对比,二者结果相近,为同类轴承热分析提供了参考。轴承的整体温度分布具有一定规律,其中最高温度点出现在滚珠与内圈滚道的接触处,而次高温在内圈滚道表面上,最后温度沿滚珠表面、外圈滚道及外圈表面依次降低。

参考文献

- [1] 王延忠,鄂世元,贾彦蓉,马新忠,谢斌. 联合载荷下改进的角接触球轴承拟静力学分析模型[J]. 轴承, 2022(11): 13-17.
- [2] 张义民, 安佳琦, 李铁军, 商强. 角接触球轴承热结构仿真分析[J]. 机械设计与制造, 2021(5): 96-98+102.
- [3] 王兰文, 盛选禹, 雒建斌. 高速角接触球轴承热特性和机械特性研究[J]. 机械设计, 2021, 38(1): 1-7.
- [4] 陈玉莲, 李俊文. 航天器高速角接触球轴承生热及温度场仿真分析[J]. 机床与液压, 2020, 48(14): 167-170+133.
- [5] 程庆元, 陆凤霞, 鲍和云. 基于热网络法与有限元法的球轴承稳态热分析[J]. 机械制造与自动化, 2013, 42(6): 97-100.
- [6] 丁洪福, 王风涛, 景敏卿, 李友胜, 王永. 高速球轴承热稳定性研究[J]. 振动与冲击, 2017, 36(14): 168-173.
- [7] 王亚珍, 黄彬, 赵坤, 宋丽. 基于热网络法和有限元法的柔性轴承热分析[J]. 润滑与密封, 2019, 44(1): 42-46+51.
- [8] 刘俊峰, 陈小安, 康辉民, 张朋, 合烨. 脂润滑球轴承热态性能分析[J]. 机械科学与技术, 2014, 33(6): 845-848.
- [9] D Niel, C Changenet, F Ville, M Oetue. Thermomechanical study of high speed rolling element bearing: A simplified approach[J]. Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part J: Journal of Engineering Tribology, 2019, 233(4): 541-552.
- [10] Dexing Zheng, Weifang Chen. Thermal performances on angular contact ball bearing of high-speed spindle considering structural constraints under oil-air lubrication[J]. Tribology International, 2017, 109: 593-601.
- [11] Fangbo Ma, Zhengmei Li, Shengchang Qiu, Baojie Wu, Qi An. Transient thermal analysis of grease-lubricated spherical roller bearings[J]. Tribology International, 2016, 93: 115-123.
- [12] Zhang C, Guo D, Tian J, Niu Q. Research on the influencing factors of thermal characteristics of high-speed grease lubricated angular contact ball bearing[J]. Advances in Mechanical Engineering, 2021, 13(6): 168781402110273.
- [13] Hao X, Yun X, Han Q. Thermal-Fluid-Solid Coupling in Thermal Characteristics Analysis of Rolling Bearing System Under Oil Lubrication[J]. Journal of Tribology, 2020, 142(3): 031201.
- [14] Palmgren A. Ball and roller bearing engineering[M]. [2023-02-12].
- [15] 康辉民, 陈小安, 陈文曲, 周明红, 邢利娜. 高速电主轴轴承热分析与实验研究[J]. 机械强度, 2011, 33(6): 797-802.
- [16] Harria T A, Kotzalas M N. 滚动轴承分析:轴承技术的高等概念[M]. 机械工业出版社,2010.
- [17] 梁群. 角接触球轴承的热特性分析[D]. 青岛理工大学,2015.
- [18] Burton R A, Staph H E. Thermally Activated Seizure of Angular Contact Bearings[J]. A S L E Transactions, 1967, 10(4): 408-417.

光伏组件辐射制冷涂层的仿生减反射结构应用研究

徐熠* 吕继组 刘宏升
(大连理工大学 能源与动力学院, 辽宁 大连 116024)
(Tel: 18627818359, Email: yi.xu@mail.dlut.edu.cn)

摘要: 光伏与辐射制冷的跨学科技术耦合, 为光伏电池夜间闲置问题提供了可行解决方案, 但常用辐射制冷材料在太阳光谱波段均具有高反射率, 与光伏组件的日光辐射吸收需求相冲突。本文以聚二甲基硅氧烷 PDMS 和 SiO₂ 双层涂层为研究对象, 通过添加优化后的仿生减反射结构, 在涂层保留 30 W m⁻² 辐射制冷能力基础上, 使涂层在日光辐射能量集中波段具有 0.971 平均透射率, 较无仿生减反射结构涂层提升 2.86%。

关键词: 仿生减反射结构; 辐射制冷; 光伏; 时域有限差分法; 有效介质理论

0 前言

光伏 (PV) 发电作为利用太阳能最有效的方式之一, 在可再生能源和清洁能源中占有越来越重要的地位。然而, 由于对太阳辐射资源的依赖, 太阳能电池板等光伏组件一般占用巨大的土地面积, 且只能在白天的特定时段高效工作。因此, 通过跨学科技术弥补现有光伏组件夜间闲置的缺陷, 以实现光伏组件全天候应用, 将带来巨大的经济效益。辐射制冷 (RC) 技术是一种被动冷却技术, 可以在不消耗额外能量的情况下提供冷量资源。得益于外太空的低温环境和大气层的热辐射透明通道, 特别是 8~13 μm 波段的大气透明窗口 (ATW), 辐射制冷可以通过合适材料制成的辐射体^[1]进行被动散热。辐射制冷由于体系简单, 可以通过添加功能性材料涂层的方式直接应用^[2], 也可以通过引入其他热系统的方式间接应用^[3,4,5], 如目前辐射制冷与光伏技术耦合的研究热点——热光伏 (PVT) 系统^[5]。将太阳能电池板与辐射制冷涂层相结合, 可为光伏组件开发多种的夜间扩展应用, 如基于太阳能电池板的大气集水 (AWH)^[4,6,7]和热电 (TE) 等^[4,8]。

基于光伏组件对太阳辐射的收集需求, 设计应用于光伏组件的辐射制冷涂层, 必须优先考虑其日光辐射透明度。然而, 目前的商用辐射制冷材料 (RCMs), 为了获得更高的制冷功率, 都采用了在可见光和近红外 (VIS-NIR) 波段具有高反射率, 在中红外 (MIR) 波段具有高发射率^[1,9]的光管理策略, 以降低材料对太阳辐射和大气辐射的吸收, 这与光伏的工作条件相冲突。因此, 本研究舍弃了常用辐射制冷材料的日光反射与不透明设计, 采用了双层透明材料, 并应用减反射结构进一步强化涂层的透明度。依据 Lu 等人^[10]的研究, 日间辐射制冷带来的冷却效果, 并没有显著提升太阳电池工作效率, 我们关注于光伏组件与夜间辐射制冷技术的结合, 并通过涂层在 NIR 波段的光学特性研究减反射结构对辐射制冷性能的影响。

本文基于透射率要求和发射率光谱特性, 通过时域有限差分 (Finite-difference Time-domain, FDTD) 法, 在辐射制冷涂层上添加仿生减反射 (AR) 结构^[12,13], 在保留辐射制冷能力的同时优化涂层的日光辐射透明度, 以解决辐射制冷技术在光伏组件应用上的日光透射需求冲突问题。通过队减反射结构的优化与辐射制冷性能的验证, 本文采用聚二甲基硅氧烷 (PDMS) 制备的底衬层和 SiO₂ 制备的封装层构成双层辐射制冷涂层, 涂层表面添加紧

密六边形分布的锥形减反射结构，光伏组件获得 30 W m^{-2} 的理论辐射冷却功率的同时，在 VIS-NIR 区域的平均透过率提高了 2.86%，达到 97.1%。

1 方法

1.1 研究方法路线

在光伏组件上应用辐射制冷技术，不应影响光伏电池的工作效率，因此需遵循合适的光管理策略：在日光辐射能量集中波段保持高透射率；在大气透明窗口波段具有高发射率，如图 1 所示。

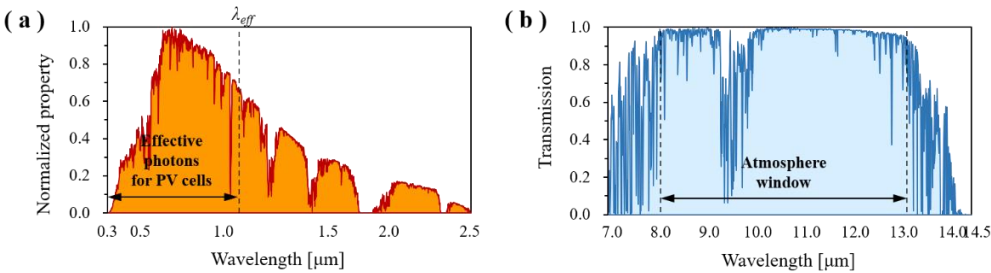


图 1 (a) 用标准化 AM 1.5 太阳光谱进行光伏转换的有效波长示意图。数据来自参考^[14]；(b) 大气 ATW 波长范围的红外透射谱图。数据来自参考^[15]

Fig.1 (a) Schematic of effective wavelength for PV conversion with normalized AM 1.5 solar spectrum. The data is taken from Ref^[14]. (b) Schematic of IR transmission spectra in ATW wavelength range for atmospheric. The data is taken from Ref^[15].

本研究以 FDTD 数值仿真与有效折射率计算方法，通过分析无反射底衬的辐射制冷涂层添加仿生减反射结构前后的光学特性变化，验证改进结构对涂层在光伏电池有效光子吸收波段透射率的改善作用，并分析其对涂层在大气透明窗口波段发射率的影响。同时，本研究采用如图 2 所示的研究路线，依次对减反射结构的形状、分布和添加位置进行优化，以实现最佳的增透性能。

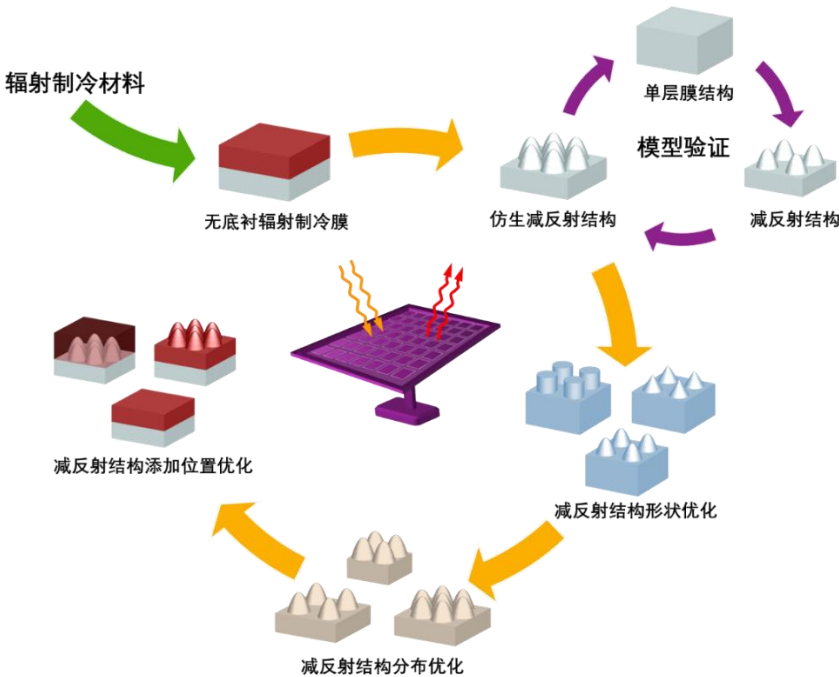


图 2 仿生减反射结构应用研究路线

Fig.2 Research routine of bionic Anti-Reflection structure

1.2 数值与仿真分析模型

由于本研究中减反射微结构的尺寸尺度接近可见光波长,射线光学近似无法解释该亚波长尺度下的衍射和干涉现象。我们决定采用基于基本电磁理论的模拟方法,通过电磁波方程求解材料对入射光的响应,从而得到材料的光学性质。电磁场的能量通量密度采用坡印廷矢量 \mathbf{S} ^[16]表示, 可以表示为:

$$\mathbf{S} = \mathbf{E} \times \mathbf{H} \quad (1)$$

式中, \mathbf{E} 为电场强度矢量, \mathbf{H} 为磁通量密度矢量。

通过表面的时间平均功率通量 p , a 是垂直于入射光方向平面的表面积。

$$p = \int_a \mathbf{S} \cdot d\mathbf{a} \quad (2)$$

反射率 ρ 和透射率 τ :

$$\rho = \frac{P_r}{P_0} = \frac{\int_{a_r} \mathbf{S}_r \cdot d\mathbf{a}}{\int_{a_0} \mathbf{S}_0 \cdot d\mathbf{a}} \quad (3)$$

$$\tau = \frac{P_t}{P_0} = \frac{\int_{a_t} \mathbf{S}_t \cdot d\mathbf{a}}{\int_{a_0} \mathbf{S}_0 \cdot d\mathbf{a}} \quad (4)$$

式中 \mathbf{S}_0 为入射坡印廷矢量, \mathbf{S}_r 为反射坡印廷矢量, \mathbf{S}_t 为透射坡印廷矢量, P_0 为入射功率, P_r 为反射功率, P_t 为透射功率。

在仿真中, 通过设置功率监测器记录 P_r 和 P_t , 在设置光源时初始化 P_0 , 得到发射率 ε :

$$\varepsilon = 1 - \rho - \tau \quad (5)$$

为了直观地评价不同涂层设计下的辐射冷却增强性能, 我们将辐射制冷涂层的辐射功率密度 P_{rad} 应用到计算模型中, 其表示为^[11,17]:

$$P_{rad} = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} I_{\lambda,b} \varepsilon(\lambda, \theta, \varphi) \cos \theta \sin \theta d\theta d\varphi d\lambda \quad (6)$$

$$I_{\lambda,b} = \frac{2hc_0^2 \lambda^{-5}}{\exp[hc_0/(\lambda kT)] - 1} \quad (7)$$

式中 $\varepsilon(\lambda, \theta, \varphi)$ 是结构的方向光谱发射率, 在本研究中其值近似等于法向发射率 ε , $I_{\lambda,b}$ 是黑体在温度 T 下的光谱辐射率, $h = 6.626 \times 10^{-34}$ J s 是普朗克常数, $k = 1.381 \times 10^{-23}$ J K⁻¹ 是玻尔兹曼常数, $c_0 = 2.998 \times 10^8$ m s⁻¹ 是光速。

FDTD 方法能够精确分析各种光学特征, 可有效地模拟光与各种材料和光学器件间的相互作用, 因此被广泛应用于微纳米光学研究。本文在研究过程中, 通过 FDTD 光学模拟求解涂层模型的麦克斯韦微分方程组, 解析模型各空间位置上随时间变化的电场和磁场, 为了测试材料与优化 AR 结构, 建立了以下五种仿真模型:

- (1) 单层涂层仿真模型为优化 AR 形状与分布提供参考, 如图 3 (a) 所示。
- (2) AR 结构单层涂层仿真模型研究 AR 结构的光谱特征响应, 如图 3 (b) 所示。
- (3) 双层涂层仿真模型为优化 AR 添加位置提供参照, 如图 3 (c) 所示。
- (4) 嵌入 AR 结构的双层涂层仿真模型用于研究不同 AR 结构添加位置的光谱特性响应, 如图 3 (d) 所示。
- (5) 具有表面 AR 结构的双层涂层仿真模型用于研究不同 AR 结构添加位置的光谱特性响应, 如图 3 (e) 所示。

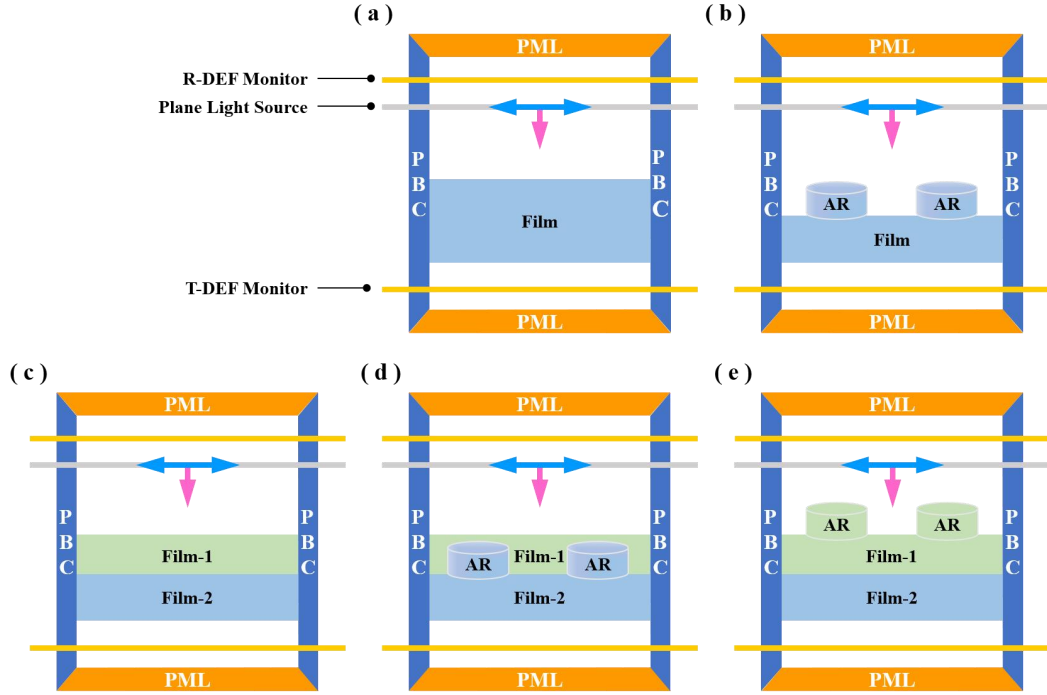


图3 仿真模型示意图 (a) 单层涂层; (b) 添加 AR 结构的单层涂层; (c) 双层涂层; (d) 嵌入 AR 结构双层涂层; (e) 添加表面 AR 结构双层涂层

Fig.3 Schematic of simulation model. (a) Single-layer coating. (b) Single-layer coating with AR structure. (c) Double-layer coating. (d) Double-layer coating with embedded AR structure. (e) Double-layer coating with surface AR structure

应用 FDTD 方法计算模拟模型的透射率和发射率, 在三维模拟区域的顶部和底部 (z 方向) 设置完美匹配层 (PML) 边界条件。采用平面光源入射条件, 在三维区域四周设置周期边界条件 (PBC)。在仿真模型的结构中心设置时间监测仪, 以跟踪仿真域内电磁场能量的时间变化。并在模型的上、下方分别放置两个频域和功率监视器 (DEF), 以得到反射率和透射率模拟结果。两种仿真模型的边界、光源和监视器设置如图 3 所示。

1.3 仿生减反射结构模型

飞蛾复眼表面具有周期性的锥形突起阵列具有优异的减反射效果^[13]。通过微凸结构阵列可以获得连续有效折射率 n_{eff} ^[18]:

$$n_{eff} = \sqrt{f \cdot n_s^2 + (1 - f) \cdot n_i^2} \quad (8)$$

式中 n_s 和 n_i 分别为减反射结构和环境材料 (真空 $n_i = 1$) 的折射率, f 为减反射结构关于高度的填充系数函数。

本研究分别采用四边形分布的 4 减反射结构与六边形分布的 7 减反射结构, 将减反射有序结构简化为周期性计算模型, 计算模型几何参数如图 3 所示: 相邻周期单元间距 Dis 、周期单元高度 H_{AR} 、周期单元底面直径 D 、周期单元旋转曲线方程 Equ 和涂层厚度 H_{Film} 。

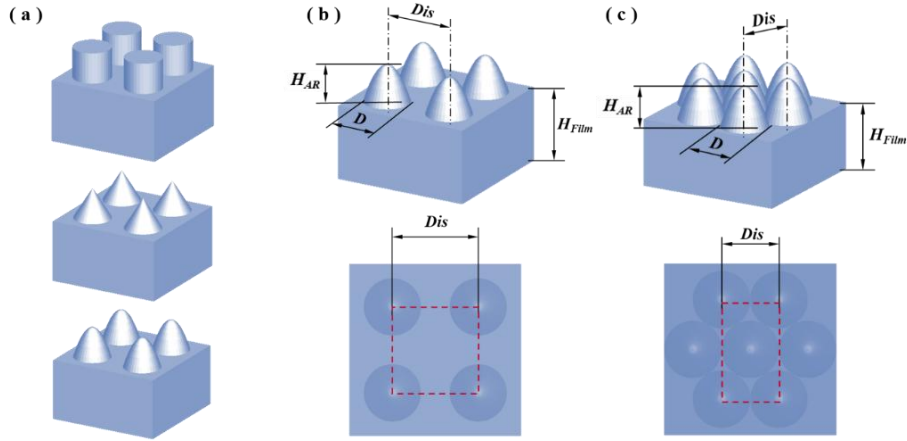


图 4 (a) 周期性减反射结构单元；(b) 四边形分布参数；(c) 六边形分布参数

Fig.4 (a) Periodic AR structure. (b) Square array. (c) Hexagonal array

本研究提出了三种典型的减反射结构形状：圆柱形^[19](Cyl)、圆锥形^[20](Con)和旋转抛物面型^[21](Para)，以相同尺寸参数（ D 、 Dis 和 H_{AR} ）周期单元的单层涂层构建仿真模型，如图 4（a）所示，三种简化周期性减反射结构单元的旋转体轮廓曲线 Equ 的数学描述：

$$\sqrt{x^2 + y^2} = \frac{D}{2} \quad (0 \leq z \leq H_{AR}) \quad (9)$$

$$\sqrt{x^2 + y^2} = \frac{D}{2} \cdot \left(1 - \frac{z}{H_{AR}}\right) \quad (0 \leq z \leq H_{AR}) \quad (10)$$

$$\sqrt{x^2 + y^2} = \frac{D}{2} \cdot \sqrt{1 - \frac{z}{H_{AR}}} \quad (0 \leq z \leq H_{AR}) \quad (11)$$

为比较减反射结构分布密度的光谱特征响应，进一步优化增透效果，本研究通过控制周期单元的间距和排列形式，设计了稀疏四边形（Spare）、紧密四边形（Rect）和紧密六边形（Hex）三种分布类型。分布对比仿真模型和 FDTD 仿真区域如图 5 所示。

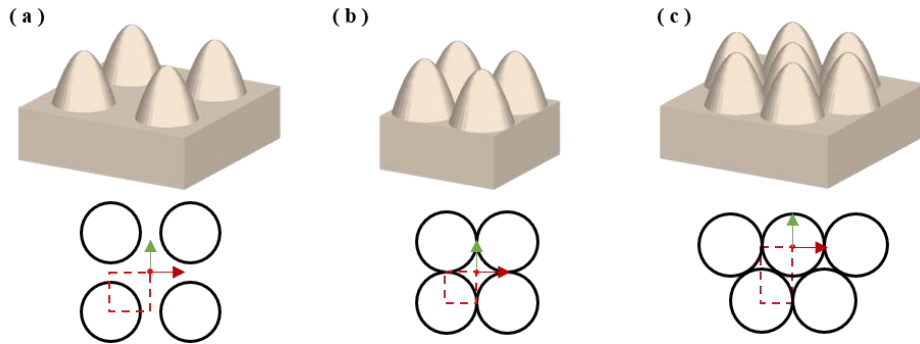


图 5 (a) 稀疏四变形分布；(b) 紧密四边形分布；(c) 紧密六边形分布

Fig 5. (a) Sparse square array. (b) Compact square array. (c) Close-packed hexagonal array

为了明确减反射结构在涂层添加位置对日光辐射增透效果与辐射制冷性能的影响，我们分别建立了光表面、嵌入和表面三种减反射结构添加位置的辐射制冷涂层对比模型，新添加的模型结构参数包含各层涂层的厚度尺寸，如图 6 所示。

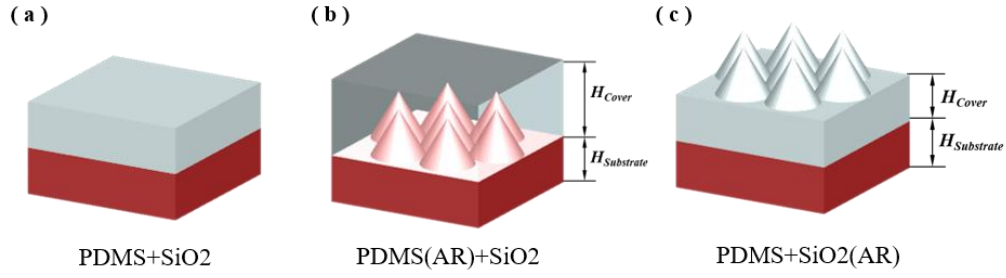


图6 (a) 光表面结构; (b) 嵌入式结构; (c) 表面式结构

Fig.6 (a) Without AR structure. (b) With embedded AR structure. (c) With surface AR structure

2 结果与讨论

2.1 模型验证

本文采用 Min^[22]等人报道的 GaSb 涂层和具有仿生减反射结构的 GaSb 涂层的反射率实验数据, 对 FDTD 数值计算模型进行了验证。使用与参考文献相同的材料, 分别构建了无减反射结构 (图 3 (a)) 和有减反射结构 (图 3 (b)) 的涂层作为验证模型。GaSb 材料折射率数据取自 Aspnes^[23]的研究。通过将模拟结果与 Min^[22]等人的实验数据进行了比较, 如图 7 所示, 计算结果与发表的实验结果良好吻合。通过 FDTD 方法计算得到的模型, 可以反映出添加减反射结构前后涂层的光谱特征变化。其中无减反射结构 GaSb 光表面涂层的轻微偏差, 是由于实验样品表面粗糙度造成的散射, 而带有减反射结构 GaSb 涂层的反射率峰值偏差, 是实际蚀刻过程中微观结构尺寸的不均匀分布所致。综合上述模型验证结果, FDTD 方法计算的仿真结果是可靠的^[12,24]。

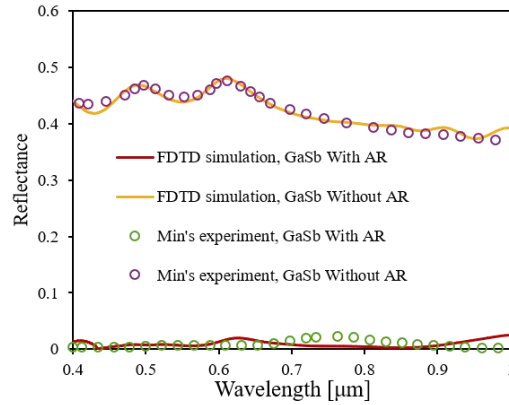


图7 时域有限差分仿真结果与实验数据^[22]的比较。

Fig.7 Comparison of the FDTD simulation results with experimental data ^[22]

2.2 减反射结构形状与分布优化结果

根据有效介质理论(EMT)^[25], 暴露在空气中的 SiO₂ 仿生减反射结构可视为具有梯度有效折射率 n_{eff} 的均匀介质, 是减少菲涅耳反射的主要机制^[26]。由于较高的有效折射率梯度可以获得较好的减反增透效果, 我们求解并比较了不同减反射结构形状和分布类型涂层的有效折射率, 明确了减反射结构填充系数函数和材料折射率与有效折射率的相关性, 如图 8 所示。

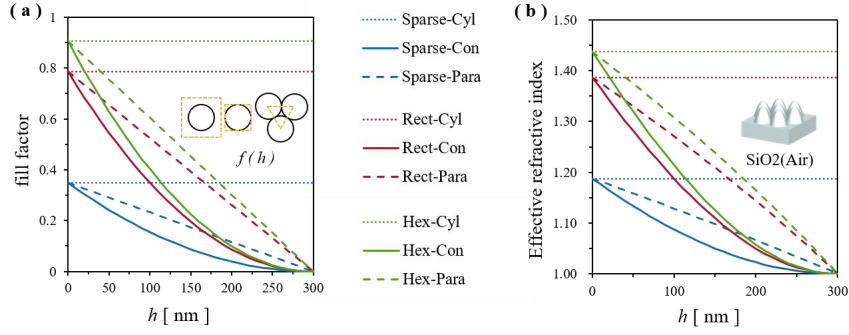


图 8 (a) 不同减反射结构分布类型的填充系数函数; (b) 入射光从空气射入高度为 300 nm 的减反射结构 SiO₂ 涂层的有效折射率

Fig.8 (a) Fill factor function of different AR structure distribution types. (b) The change in effective refractive index of AR structure SiO₂ coating with a height of 300 nm, as the incident light travels from air

通过图 8 (a) 可以观察到, 当减反射结构形状确定时, 其填充系数函数受分布类型影响, 且周期性单元分布越密集, 获得的有效折射率梯度越高。得益于更高的有效折射率梯度, 六边形 Hex 分布具有更好的减反增透性能, 且添加减反射结构的最佳位置是折射率相差最大的两种材料的交界面。

通过对比图 8 (a) 和图 8 (b) 中相同分布类型结构的填充系数曲线和有效折射率曲线, Cyl 与 Para 形状因具有相同的底面面积和顶点高度, 两者的有效折射率具有相同的上下限。由于填充系数一定, Cyl 形状减反射结构的 $n_{\text{eff-Cyl}}$ 保持不变, 意味其有效折射率梯度等于零。Para 形状减反射结构的填充系数随高度线性变化, 可以得到近线性的 $n_{\text{eff-Para}}$ 。Con 形状减反射结构的填充系数函数与高度平方相关, 其 $n_{\text{eff-Con}}$ 曲线为凸函数, 即 $n_{\text{eff-Con}}$ 梯度自底向上先增大后减小。

图 9 展示了添加在 SiO₂ 涂层上不同形状和分布的减反射结构, 在 VIS-NIR 波长范围内以 FDTD 仿真分析的透射率。

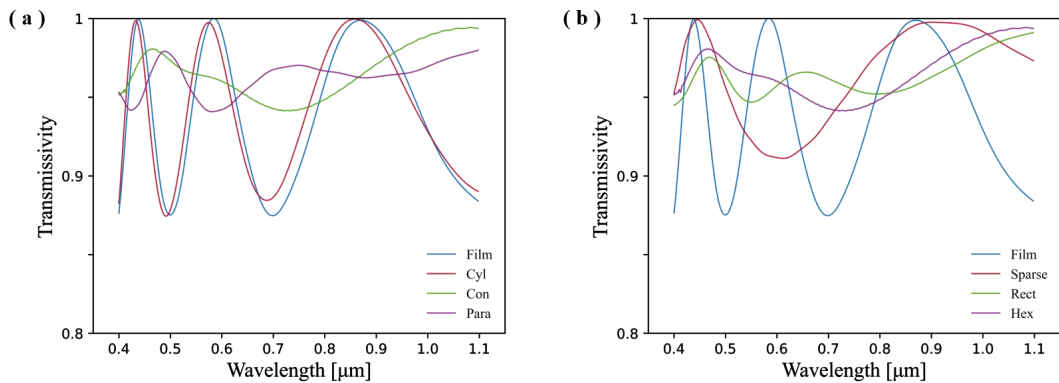


图 9 减反射结构涂层光谱特性; (a) 形状对比; (b) 分布对比

Fig.9 Spectral characteristics of coating with AR structure. (a) Contrast of shape types. (b) Contrast of distribution types

从图 9 (a) 中可以看出, 添加 Cyl 形状减反射结构涂层的透射率曲线与光表面涂层相近, 在 0.87~1 之间波动, 平均透射率分别为 0.941 和 0.938, 均低于 0.95。Con 和 Para 形状减反射结构在 VIS-NIR 波长范围内均保持了 0.94 以上的高透射性能, 且随着入射光波长的持续增加, Con 形状的透射率迅速增加, 而 Para 的透射率波动范围较小, 这与前文利用有效介质理论分析的结果一致。在太阳辐射能更集中的 VIS 波长范围内, Con 具有更明显的

减反射效果。根据计算结果，我们选择 Con 形状的减反射结构。

从图 9（b）可以看出，与光表面涂层和 Sparse 分布减反射结构涂层相比，Hex 和 Rect 分布类型的增透效果更明显，这也与前文利用有效介质理论分析的结果一致。由于 Hex 分布在 VIS 波段比 Rect 具有更为优异的透射强化效果，我们选择 Hex 分布的仿生减反射结构。

2.3 减反射结构添加位置优化结果

我们求解并比较了不同添加位置的 Hex-Con 型减反射结构涂层在 VIS-NIR 波段的透射率，以及在 ATW 波段的发射率，如图 10 所示。

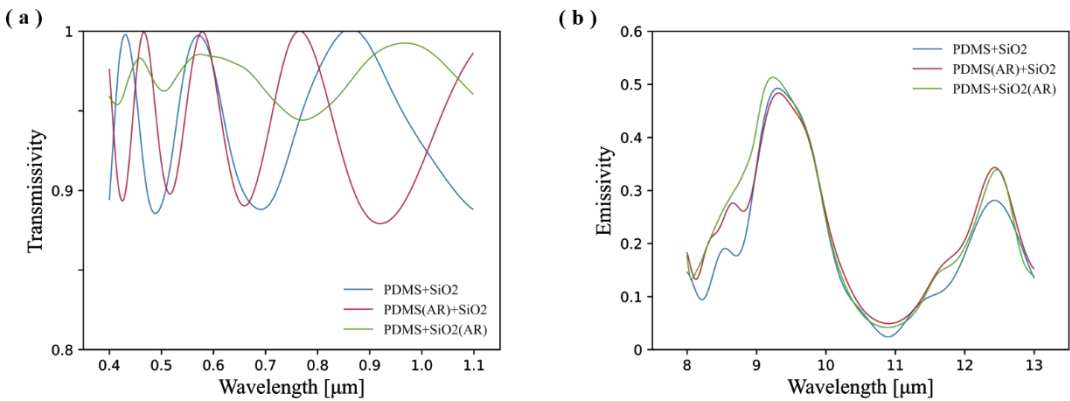


图 10 减反射结构添加位置对涂层光谱特性的影响；(a) VIS-NIR 透射率；(b) ATW 发射率

Fig.10 Spectral characteristics of coating with different AR structure locations. (a) Transmissivity in VIS-NIR range. (b) Emissivity in ATW range

从图 10（a）可以看出，相较于光表面涂层，当减反射结构内嵌在涂层上下两层之间（PDMS（AR）+SiO₂）时，其透射增强效果不明显，减反射结构添加在双层涂层表面（PDMS+SiO₂（AR））时，涂层在 VIS-NIR 波段的透射率有了明显提升。这与前文依据有效介质理论推断得出将减反射结构设置在折射率相差最大的两种材料交界面的分析结果一致。

从图 10（b）可以看出，添加减反射结构的涂层在 8.0~9.5 μm 和 11.5~13 μm 波段具有更为优异的发射率性能与更高的发射率峰值，在增强涂层日光透射性能的同时，并未对辐射制冷涂层的制冷性能产生不利影响。

表 1 所列不同添加位置的平均透射率 τ_{avg} 和辐射功率密度 P_{rad} 计算结果表明，在辐射制冷涂层表面添加减反射结构（PDMS+SiO₂（AR））可获得高达 0.971 的日光辐射透射能力，比光表面的双层辐射制冷涂层高出 2.86%，且能同时获得 30.4 W m⁻² 的被动冷却能力。

表 1 涂层性能

Table.1 Coating properties

涂层类型	τ_{avg} (0.4-1.1 μm)	P_{rad} (W m ⁻²)
PDMS+SiO ₂	0.944	26.7
PDMS(AR)+SiO ₂	0.940	29.9
PDMS+SiO ₂ (AR)	0.971	30.4

3 结论

本文以 PDMS 和 SiO₂ 双层透明辐射制冷涂层为研究对象，通过有效介质理论方法分析与优化了仿生减反射结构的形状、分布和添加位置，并采用 FDTD 仿真方法对添加减反射

结构涂层在可见光-近红外波段和“大气窗口”波段的光学性能进行比较与验证。计算结果表明,通过在双层辐射制冷涂层表面添加优化后的仿生减反射结构,可使涂层在保留有 30 W m^{-2} 辐射制冷能力基础上,于日光辐射能量集中波段实现 0.971 的高透射率,较无改进设计涂层提升 2.86%。本文研究有助于解决光伏组件应用辐射制冷涂层时的日光辐射需求冲突问题,具有实际意义与参考价值。

参考文献

- [1] D. L. Zhao, A. Aili, Y. Zhai, S. Y. Xu, G. Tan, X. B. Yin, R. G. Yang, *Appl. Phys. Rev.* 2019, 6, 21306.
- [2] X. Y. Li, J. Peoples, P. Y. Yao, X. L. Ruan, *Acs Appl. Mater. Interfaces* 2021, 13, 21733.
- [3] X. Y. Liu, D. Beysens, T. Bourouina, *Acs Mater. Lett.* 2022, 4, 1003.
- [4] J. W. Liu, J. Zhang, H. J. Tang, Z. H. Zhou, D. B. Zhang, L. Ye, D. L. Zhao, *Nano Energy* 2021, 81, 105611.
- [5] S. Kumar, R. Thakur, A. Singhy, R. K. Tripathi, M. Sethi, *MATERIALS TODAY-PROCEEDINGS* 2022, 50, 952.
- [6] G. Ulpiani, G. Ranzi, J. Feng, M. Santamouris, *Energy Build.* 2021, 243, 110990.
- [7] I. Haechler, H. Park, G. Schnoering, T. Gulich, M. Rohner, A. Tripathy, A. Milionis, T. M. Schutzius, D. Poulikakos, *Sci. Adv.* 2021, 7, eabf3978.
- [8] D. Astrain, J. J. Fernandez, M. Araiz, A. Franccone, L. Catalán, A. J. Martín, P. Alegría, C. M. S. Torres, *Appl. Therm. Eng.* 2023, 225, 120162.
- [9] J. Y. Sun, J. Wang, T. T. Guo, H. Bao, S. X. Bai, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* 2022, 236, 111492.
- [10] Y. H. Lu, Z. C. Chen, L. Ai, X. P. Zhang, J. Zhang, J. Li, W. Y. Wang, R. Q. Tan, N. Dai, W. J. Song, *Sol. RRL* 2017, 1, 1700084.
- [11] B. Zhao, M. K. Hu, X. Z. Ao, G. Pei, *Sol. Energy* 2018, 176, 248.
- [12] F. Q. Wang, X. P. Zhang, H. R. Wang, Y. Li, Y. Dong, B. Lin, H. X. Liang, Z. M. Cheng, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 2022, 286, 1108180.
- [13] C. G. Bernhard, W. H. Miller, *Acta Physiologica Scandinavica* 1962, 56, 385.
- [14] Reference Solar Spectral Irradiance: AM1.5, <https://www.nrel.gov/grid/solar-resou> 辐射制冷 e/spectra-am1.5.html, accessed: Ma 辐射制冷 h, 2023.
- [15] Gemini Observatory, IR Transmission Spectra, <https://www.gemini.edu/observing/telescopes-and-sites/sites#Transmission>, accessed: Ma 辐射制冷 h, 2023.
- [16] X. P. Zhang, X. H. Shi, Y. Li, F. Q. Wang, B. Lin, *Opt. Express* 2021, 29, 26669.
- [17] F. P. Incropera, D. P. Dewitt, *Fundamentals of heat and mass transfer*, Wiley, Hoboken, NJ, USA 2006.
- [18] H. Lin, M. Z. Ouyang, B. X. Chen, Q. F. Zhu, J. S. Wu, N. Lou, L. T. Dong, Z. B. Wang, Y. G. Fu, *Coatings* 2018, 8, 360.
- [19] Y. Z. Yin, Y. Y. Bu, X. F. Wang, *Physica B: Condensed Matter* 2020, 580, 411943.
- [20] S. H. Lim, N. H. Ly, J. A. Lee, J. E. Kim, S. W. La, V. T. Huong, T. G. Tran, N. T. Ho, S. M. Noh, S. J. Son, S. W. Joo, *Polymers* 2021, 13, 3333.
- [21] J. S. Choi, J. H. An, J. K. Lee, S. J. Ku, S. M. Kang, *J. Mech. Sci. Technol.* 2021, 35, 3559.
- [22] W. L. Min, A. P. Betancourt, P. Jiang, B. Jiang, *Appl. Phys. Lett.* 2008, 92, 141109.
- [23] D. E. Aspnes, A. A. Studna, *Phys. Rev. B* 1983, 27, 985.
- [24] Y. T. Zhang, Y. M. Xuan, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* 2016, 144, 68.
- [25] D. A. G. Bruggeman, *Ann. Phys.-Berlin* 1935, 416, 665.
- [26] X. L. Luo, L. F. Lu, M. Yin, X. H. Fang, X. Y. Chen, D. D. Li, L. Y. Yang, G. F. Li, J. Ma, *Mater. Res. Bull.* 2019, 109, 183.

多点式 CuO/TiN 复合纳米流体 光谱吸收性能研究

何国杜¹, 周传辉¹, 王玺朝¹, 吴子华^{1,2}, 谢华清^{1,2}, 王元元^{1,2}, 董岚^{1,2},
俞晓晓^{1,2,*}

(1. 上海第二工业大学能源与材料学院; 2. 上海市先进热功能材料工程研究中心, 上海 201209)

(*Tel: 13851541120, Email: yuxx@sspu.edu.cn)

摘要：核壳结构纳米流体是调控纳米流体光谱捕获吸收的一种有效方法，但其制备工艺繁杂限制了其在光热利用及催化等领域的应用。本文将非贵金属 TiN 纳米颗粒分散于 CuO 纳米颗粒内部，形成了 CuO/TiN 复合纳米颗粒多点式结构。TiN 具有等离激元共振效应，TiN 以多点式分散于 CuO 内部形成的多点共振源使得多点式 CuO/TiN 复合纳米颗粒具有宽光谱强吸收性能，相比于 CuO/TiN 球壳结构吸收性能有一定的提升。进一步，从颗粒尺寸和 CuO:TiN 体积比出发，探究发现当 CuO 半径为 150nm，CuO:TiN 体积比为 8:1，CuO/TiN 复合纳米颗粒光谱捕获性能最佳。随着体积浓度和光学厚度增大，CuO/TiN 复合纳米流体吸收性能随之增大，体积浓度为 0.005% 时，太阳能平均吸收率可达 97.8%。纳米颗粒多点式复合结构不仅可以简化复合颗粒制备过程，而且非贵金属等离激元多点式共振强化方法可以提高太阳能全光谱利用，也对促进载流子迁移以及光热转换性能均可以起到关键作用。

关键词：多点式结构；CuO/TiN；复合纳米颗粒；等离激元效应；光吸收

基金项目：上海市启明星培育(扬帆专项)23YF1413500，国家自然科学基金(NO.52306259)，上海第二工业大学(NO.EGD23DS10)，国家自然科学基金 12004242 & 52176081，上海市青年科技启明星计划 21QA1403300，上海市自然科学基金 21ZR1424500，上海市教委曙光计划 22SG56

0 引言

随着化石燃料储量的减少和能源需求的增加, 太阳能作为一种储量丰富、绿色可再生的能源, 具有取代传统能源的巨大潜力, 其中光热转换是太阳能最简单的一种利用方式。近些年来, 纳米流体吸收式太阳能集热方式得到研究学者的关注。纳米流体由纳米颗粒与基液组成, 当纳米流体受到光的照射时, 纳米粒子的电子会吸收光子能量, 从基态跃迁到高能态, 从而产生光吸收现象。可见, 提高并改善纳米颗粒光谱捕获能力是强化纳米流体吸收集热的关键要素。

颗粒材料、尺寸和结构是改善并提高纳米颗粒光学性能的三个方面。在诸多的材料中, 具备等离激元效应的材料尤为特别, 可以将电磁场的能量有效地转换为表面自由电子振动能, 实现局部电磁场能量增强^[1], 从而提高材料太阳能光谱捕获能力^[2]。贵金属如 Au、Ag 等是典型的等离激元效应材料。Aizpurua 等人^[3]制备了 Au 纳米颗粒, 并分析了其周围电场强度变化, 由于等离激元效应的激发, 金属内部的磁场场强显著增强, 因此光吸收性能得到了提高。但贵金属材料成本高, 储存量少, 不能广泛普及应用。非贵金属等离激元效应材料逐渐受到研究学者的关注, 如 Cu、TiN、Ni 等^[4-5], 其中, TiN 由于具有耐高温、耐磨以及成本低等优点, 在众多非金属材料中脱颖而出。Zhou 等人^[6]研究并证明了氮化钛也具有同贵金属一样的等离激元效应。Cortie 等人^[7]研究了由氮化钛组成的纳米结构的光学性质, 结果发现在等离激元效应引起的可见光范围内, 氮化钛的吸收很高。然而, 单一氮化钛材料难以实现太阳能全光谱捕获吸收。多种不同吸收波段材料复合利用是实现太阳能全光谱捕获吸收的有效方法。E.B.Clatworthy 等人^[8]制备了一种 TiO₂/TiN 复合纳米颗粒, 使得吸收紫外光的 TiO₂ 和吸收可见光及近红外区域的 TiN 可以发挥各自的吸收优势, 增强了复合纳米颗粒在太阳能宽波段的光吸收活性。Zeng 等人^[9]设计并合成了 Fe₃O₄/TiN 复合纳米流体, TiN 纳米颗粒的吸收在可见波长上有一个峰值, Fe₃O₄ 纳米颗粒在可见波长上的吸收较弱, 而在近红外区域的吸收较强。结合两种材料的优点, 复合粒子在可见光和近红外范围内都能达到较高的吸收率, 理论和实验结果表明, Fe₃O₄ 和 TiN 的结合可以达到全光谱吸收。CuO 作为半导体材料, 在可见光区域具有较好的吸收性能。Sundaram 等人^[9]制备了不同粒径大小的 CuO 球体和立方体, 模拟探究发现, CuO 纳米颗粒在可见光区域内具有良好的吸收性能, 并随着粒子尺寸的增加, 不论是球体还是立方体, 消光截面都随之增加, 共振峰逐渐红移。

复合结构形式是调控纳米颗粒光谱捕获波段和强化吸收能力的另一个有效方法。其中, 核壳结构是复合结构中一种典型方式。Duan 等人^[11]对 TiO₂/Ag 复合核壳纳米颗粒光谱吸收性能进行了研究, 发现通过对复合材料体积比的调控, 可以对光谱吸收共振峰位置进行有效调控。Xu 等人^[12]合成了 TiN@TiO₂核壳结构纳米颗粒, 实验结果表明, TiN@TiO₂核壳结构纳米颗粒在红色到近红外的波长范围内展现出宽等离子体共振。近年来, 两面式结构作为一种特殊的复合纳米结构, 由于可以描述一个颗粒展现至少两种化学特性, 被研究人员密切关注。Wang 等人^[13]对 Au 纳米颗粒和 Au-Fe₃O₄两面

式结构的光谱吸收特性进行了比较，结果显示 Au-Fe₃O₄两面式结构的吸收峰较比与 Au 纳米颗粒有明显的红移，且在长波段的吸收更好。Liu 等人^[14]创新性的提出了“光子纳米流体”的概念，即将不同吸收性质的材料整合到同一个颗粒上，以达到全光谱吸收的目的。由此可见，核壳结构和两面式结构等结构调控耦合等离子体效应可以实现太阳能全光谱捕获吸收，然而其工艺制备存在很大的挑战性。面对核壳结构制备工艺的挑战，将核壳结构改变成等离子体分散分布形成，利用多点式等离子体共同强化耦合多种材料共振互补，也是实现太阳能全光谱强捕获的一种有效方式。

本工作提出了 CuO/TiN 复合纳米颗粒的“多点式”结构，将单个等离子体共振点分散成多点共振，从而达到强化太阳能光谱捕获吸收的目的。研究中，比较了核壳结构和多点式结构纳米颗粒的光学性能，进一步探究了 CuO: TiN 体积比、CuO 纳米颗粒尺寸、体积浓度以及光学厚度对多点式 CuO/TiN 复合纳米颗粒光谱吸收性能的变化规律。

1 模型与方法

与球壳结构相比，多点式结构可以将单个的等离子体点分散成多个共振点，将传统单一共振源的光谱吸收分散成多个共振源，达到增强纳米颗粒光谱吸收的目的。图1给出了球壳结构和多点式结构的等离子体共振点的示意图。展示了太阳能被复合纳米颗粒吸收并响应的过程，在多点式结构的多点共振强化下，提高对太阳能的吸收性能。



图1 球壳结构和多点式结构的等离子体共振点示意图

Fig. 1 Schematic diagrams of the resonance points of equipartitioned excitations for spherical-shell and multipoint structures

图 2 为球壳结构和多点式结构的截面模型图，球壳结构的外壳为 CuO，内核为 TiN，如图 2(a)所示。多点式结构外壳球体为 CuO，CuO 球体里面随机分散有 TiN 颗粒，如图 2(b)所示。

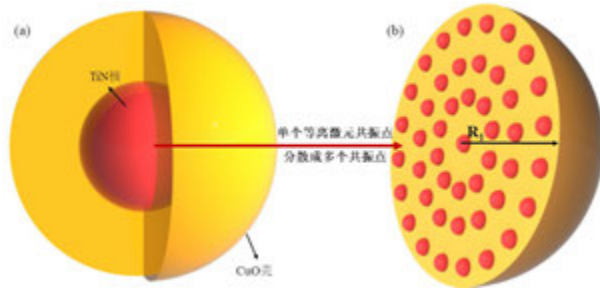


图 2 截面模型图：(a)球壳结构；(b)多点式结构

Fig. 2 Cross-sectional model drawings: (a) spherical shell structure; (b) multi-point structure

时域有限差分(FDTD)方法，可以用来模拟电磁波在结构中运动的规律和过程，是基于麦克斯韦方程的一种数值算法。由于其适用于解决各种复杂结构的吸收的散射问题而得到了广泛的应用。利用 FDTD 计算 CuO 纳米球、CuO/TiN 球壳结构和 CuO/TiN 多点式结构的光学吸收性能。本次模拟采用一种典型的模拟结构，如图 3 所示。考虑到计算内存的限制，使用 FDTD 在有限空间内对纳米颗粒进行光学计算，在计算空间的 x、y、z 方向都使用完全匹配层 (PML, Perfectly Matched Layer) 作为吸收边界，入射波可以无反射的穿过分界面进入 PML 层，达到很好的吸收效果。选择平面波(TFSF, Total-field Scattered Field)作为光源，研究了波长范围为 300nm~2000nm 内纳米颗粒的吸收和散射特性。在模拟空间内设置吸收和散射监视器，以获得吸收和散射光谱。设置网格(mesh)大小为 0.75nm。取纳米颗粒周围环境的折射率为 1.33，这与水等常见的工作流体相接近。本次模拟研究的纳米材料的光学常数来自于文献^[14-15]。粒子的消光系数是消光截面与粒子体积之比，消光截面为吸收截面和散射截面之和，可以定义为^[17]：

$$\sigma_{ext} = \frac{C_{ext}}{V} = \frac{C_{abs} + C_{scat}}{V} \quad (1)$$

式中， C_{ext} 为消光截面， C_{abs} 和 C_{scat} 分别为吸收截面和散射截面， V 为纳米颗粒体积。在一定体积浓度和光照深度下，根据Beer定律^[18]，纳米流体的吸收率 $A_{NF}(\lambda)$ 可以表示为：

$$A_{NF}(\lambda) = 1 - \exp\left(-\left(f_v \sigma_{ext} + \frac{4\pi k}{\lambda}\right)H\right) \quad (2)$$

式中， f_v 为体积浓度， σ_{ext} 为消光系数， k 为基液折射率， λ 为入射波长， H 为纳米流体光照厚度。计算过程中，由于基液折射率远小于入射波长， $4\pi k / \lambda$ 趋于 0，因此在计算过程中忽略。

纳米流体的平均吸收率 A_{NF} 可以表示为^[19]：

$$A_{NF} = \frac{\int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} I_{in}(\lambda) A_{NF}(\lambda) d\lambda}{\int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} I_{in}(\lambda) d\lambda} \quad (3)$$

式中， I_{in} 为 AM1.5 入射太阳光谱。

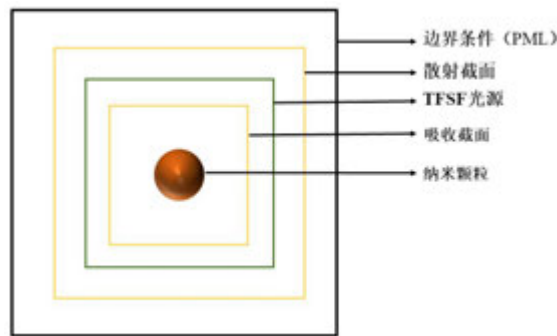


图 3 FDTD 原理图

Fig. 3 FDTD schematic

2 结果与分析

2.1 CuO/TiN 纳米颗粒多点式复合结构对光谱捕获性能的影响规律

非贵金属 TiN 具有等离激元效应，将 TiN 均匀分散在 CuO 内部，产生的多个共振源有利于强化光谱捕获以及拓宽光谱吸收范围。图 4 为多点式结构和球壳结构的 CuO/TiN 纳米颗粒的光吸收图。从图 4(a)可以看到，多点式结构 CuO/TiN 纳米颗粒的吸收性能随着波长的增长先增加后下降，与球壳结构相比较，其在可见光区域吸收范围宽，且吸收性能高。根据公式(3)对复合纳米颗粒的太阳光谱平均吸收率进行计算，在体积浓度为 0.01%，光学厚度为 1mm 时，CuO/TiN 多点式复合纳米流体平均吸收率可达 68.95%，如图 4(b)，与球壳结构相比，有 0.31% 的提升。这说明了多点式复合结构不仅可以降低制备工艺难度，并且在光谱捕获方面也有一定的潜力。

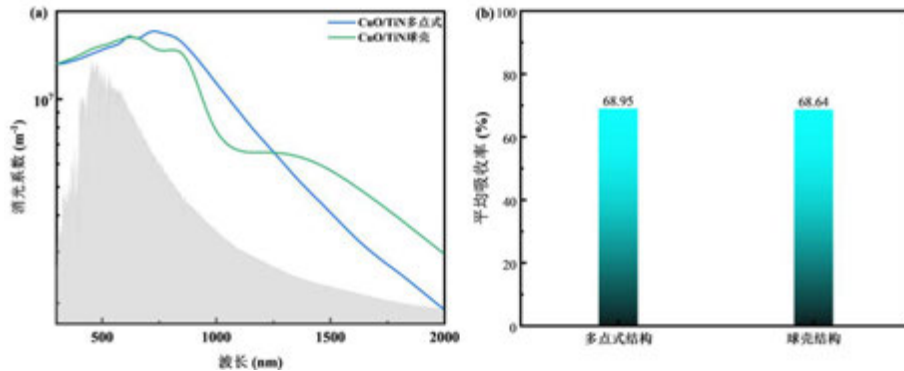


图 4 多点式结构和球壳结构的(a)消光系数; (b)平均吸收率

Fig. 4 (a) extinction coefficient; (b) average absorptivity for multi-point and spherical shell structures

TiN 以多点的分布方式在 CuO 内部形成多个共振源，可以达到强化光吸收的目的。图 5 为不同结构的电场强度图，可以看出 TiN 等离激元效应在 CuO 内部产生明显电场增强效果，特别是 TiN 均匀分散在 CuO 内部形成的多个等离激元共振源，使得局域电场能量明显增强，这也印证了多点式 CuO/TiN 复合纳米颗粒强光吸收性能。图 5(d) 为两个 CuO/TiN 复合纳米颗粒的电场强度图，复合纳米颗粒之间出现了更强的共振吸收效应，颗粒间共振增强进一步提升光谱吸收性能。

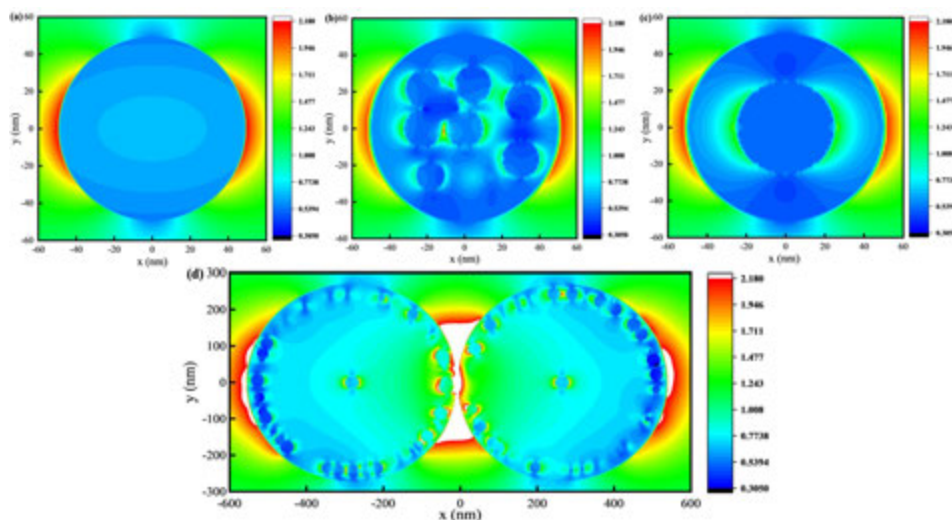


图 5 (a)CuO 电场; (b)多点式结构电场; (c)球壳电场; (d)多个 CuO/TiN 复合纳米颗粒电场

Fig. 5 (a) CuO electric field; (b) multi-point structured electric field; (c) spherical shell electric field; (d) multiple CuO/TiN composite nanoparticles electric field

2.2 CuO: TiN 体积比对多点式 CuO/TiN 复合纳米颗粒光吸收的影响规律

改变复合颗粒各组分比例，可以有效地调节光谱吸收强度与共振峰位置。在 $R_1=150\text{nm}$ 条件下，探究 CuO:TiN 体积比对多点式结构 CuO/TiN 复合纳米颗粒光吸收变化规律。图 6(a)为 CuO/TiN 复合纳米颗粒随体积比变化的消光系数图，可以看出随着体积比减小，TiN 比例随之增多，长波吸收明显增强，而可见光区域吸收有所降低。根据公式(3)，直观比较不同体积比下 CuO/TiN 复合纳米流体的吸收性能，如图 6(c)所示。可以看出，在体积浓度为 0.01%，光学厚度为 1mm，CuO/TiN 体积比为 8:1 时，点式结构 CuO/TiN 复合纳米颗粒的平均太阳光谱吸收为最佳，平均吸收率为 68.95%。

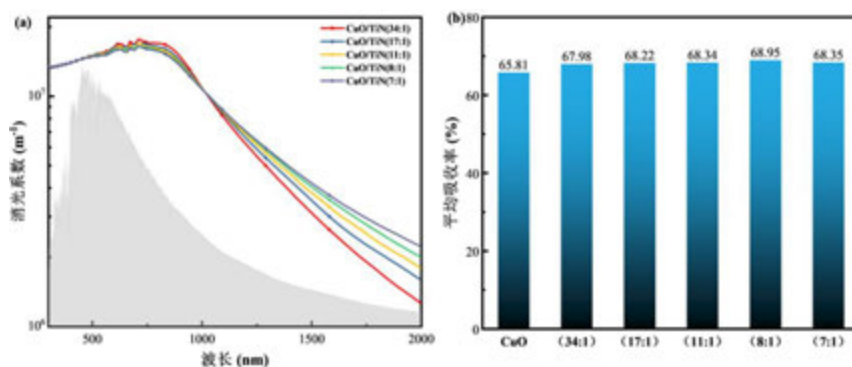


图 6 不同体积比下 CuO/TiN 复合纳米颗粒的(a)消光系数; (b)平均吸收率

Fig. 6 (a) extinction coefficient; (b) average absorption of CuO/TiN composite nanoparticles at different volume ratios

2.3 CuO 粒径大小对多点式 CuO/TiN 复合纳米颗粒光吸收的影响规律

纳米流体的吸收性能与分散于基液中纳米颗粒有关，其颗粒形状、尺寸、浓度等因素均会影响吸收性能^[20-21]。首先探究外壳 CuO 半径(R_1)变化对 CuO 纳米颗粒光吸收

的影响，如图 7(a)所示。可以看出 $R_1=50\text{nm}$ 时，在紫外区域表现出较强的吸收能力，在近红外区域吸收较差，随着粒径的增大，CuO 在紫外和可见光区域的吸收随之减小，在近红外区域则得到了明显的增强。图 7(b)展示了 CuO 纳米流体的平均吸收率随 R_1 的变化图， $R_1=50\text{nm}$ 时，CuO 纳米流体的平均吸收率仅有 47.7%，随着 R_1 增大，其平均吸收率先增长后下降，其中 $R_1=150\text{nm}$ 时，CuO 纳米流体平均吸收率最佳，可达 65.8%。由此可见，粒径的大小对纳米颗粒的光吸收有一定影响，并且会存在一个最佳吸收的粒径大小。

单一 CuO 纳米颗粒在 $R_1=150\text{nm}$ 时，吸收性能最佳。进一步，探究在相同 CuO:TiN 体积比(8:1)下，CuO 尺寸对 CuO/TiN 纳米颗粒光吸收性能的影响规律，如图 7(c)所示。当 $R_1=50\text{nm}$ 时，CuO/TiN 纳米流体平均吸收率为 56.64%，较纯 CuO 提高了 8.88%。随着 R_1 增大，CuO/TiN 纳米流体光吸收性能先增长后降低，同样在 $R_1=150\text{nm}$ 时达到最佳值 68.95%。图 7(e)、(f)则是保证了 TiN 的体积相同，探究 CuO 颗粒粒径大小的变化对 CuO/TiN 复合纳米颗粒光吸收的影响，可以看到 TiN 的加入对于 CuO 颗粒的光吸收有增益效果，也是在 $R_1=150\text{nm}$ 时到达最佳值 67.52%。随着 CuO 尺寸增大，CuO/TiN 纳米流体与纯 CuO 纳米流体光学性能差异逐渐弱化，这主要是因为 CuO 吸收峰随着尺寸增大而逐渐红移，CuO 与 TiN 吸收峰互补性减弱。

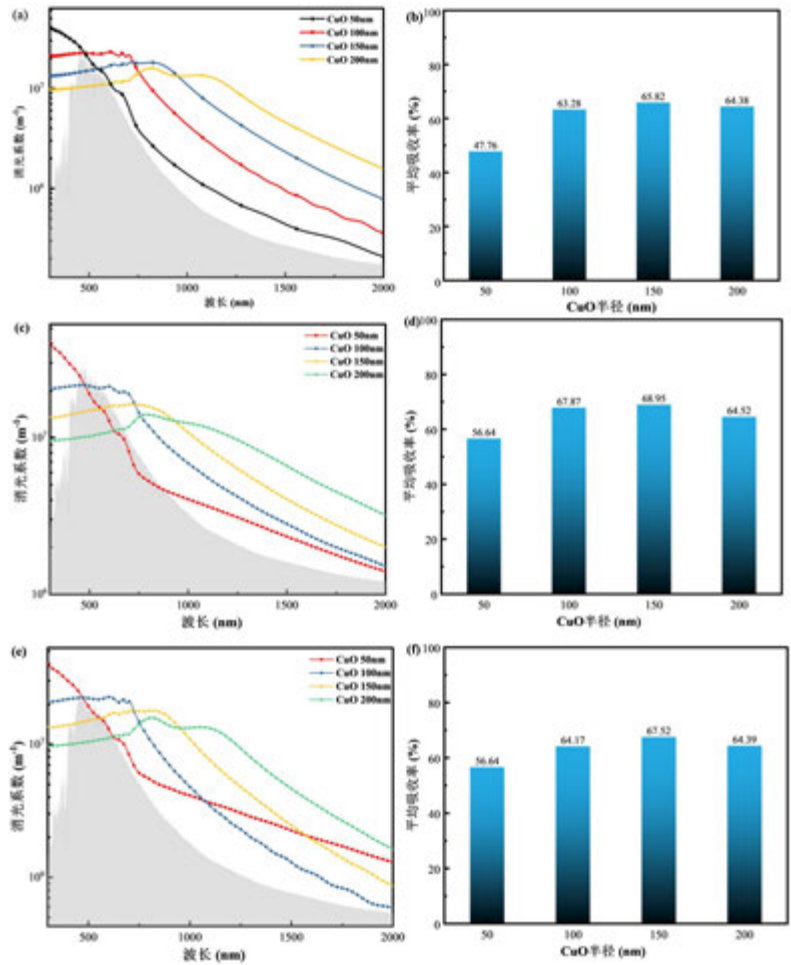


图 7 不同 CuO 半径的(a)消光系数; (b)平均吸收率, 相同体积比(8:1)下不同 CuO 粒径大小的(c)消光系数; (d)平均吸收率, 相同 TiN 体积不同 CuO 粒径大小的(e) 消光系数; (f)平均吸收率

Fig. 7 different CuO radius :(a) extinction coefficients; (b) average absorption, different CuO particle size sizes at the same volume ratio (8:1) :(c) extinction coefficients; (d) average absorption, same TiN volume different CuO particle size size: (e) extinction coefficients; (f) average absorption

2. 4 体积浓度和光学厚度对多点式 CuO/TiN 复合纳米流体光吸收的影响规律

在多点式 CuO/TiN 复合纳米颗粒优化基础上, 进一步探究体积浓度和光学厚度对该纳米流体光学性能的影响规律, 如图 8 所示。在体积浓度为 0.005%不变时, 纳米流体的光吸收随着光学厚度的增大而显著增加, 光学厚度从 1mm 增加到 10mm, 对太阳光吸收的平均吸收率从 45.7%增加到 97.8%。图 8(c)、(d)为光学厚度为 10mm 不变, 这也是在实际测试中的光学厚度, 不同体积浓度的吸收率和平均吸收率图。可以看到, 该纳米流体体积浓度为 0.005%时对太阳光吸收的平均吸收率高达 97.8%, 意味着绝大多数的太阳辐照能量被捕获, 在这个光学厚度下, 只需要很低的体积浓度就可以达到太阳能得全光谱吸收。这是由于 CuO/TiN 复合纳米颗粒的吸收波段集中于可见光区域内, 因此体积浓度和光学厚度的增加对纳米流体吸收太阳光有明显提升。

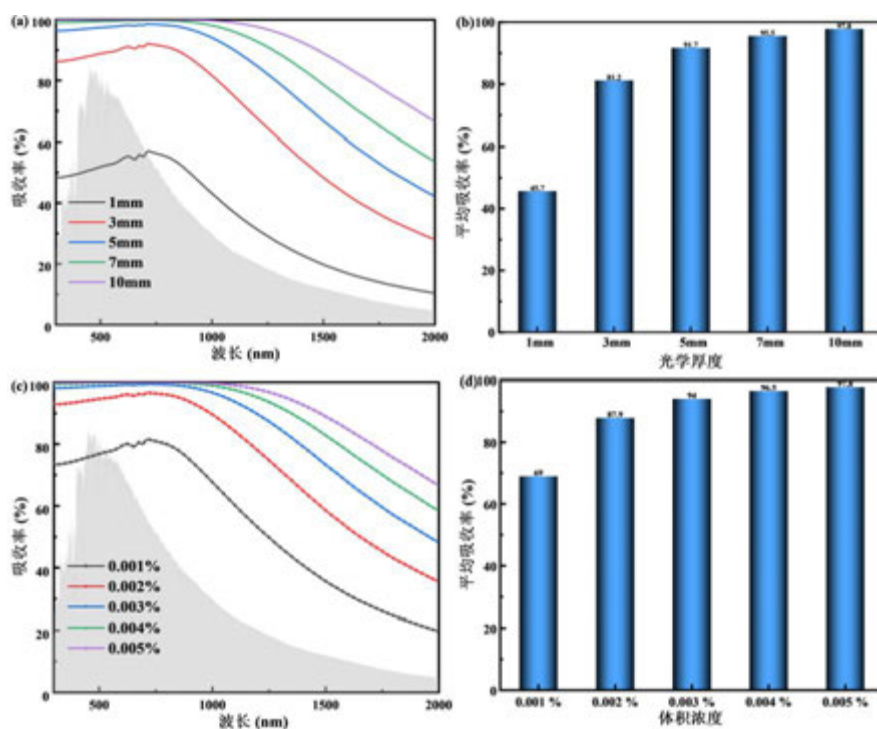


图 8 体积浓度为 0.005%时不同光学厚度的(a)吸收率; (b)平均吸收率, 光学厚度为 10mm 时不同体积浓度的(c)吸收率; (d)平均吸收率

Fig. 8 different optical thicknesses at a volume concentration of 0.005%: (a) absorption rate; (b) average absorption rate, different volume concentrations at an optical thickness of 10 mm: (c) absorption rate; (d) average absorption rate

3 结论

本文将非贵金属 TiN 在 CuO 内部均匀分散, 形成一种 CuO/TiN 复合纳米颗粒多点式结构。利用 TiN 等离子激元效应, 将单一的等离子激元共振源变成多个共振源, 达到强化太阳能光谱吸收的目的。相较于球壳结构复合纳米颗粒, 多点式结构 CuO/TiN 复合纳米颗粒吸收性能有一定提升的同时, 可以简化复合颗粒制备工艺。另外, 探究了 CuO 尺寸以及 CuO:TiN 体积比下对多点式复合纳米颗粒太阳能光谱吸收性能的影响规律。结果显示, 当 CuO 半径为 150nm, CuO:TiN 体积比为 8:1, 体积浓度为 0.005% 时的 CuO/TiN 复合纳米颗粒光谱捕获性能最佳, 平均吸收率为 97.8%。复合纳米颗粒多点式等离子激元共振方式可以强化太阳能光谱捕获吸收, 这对提高太阳能转换利用有一定帮助。

参考文献

- [1] Awazu K, Fujimaki M, Rockstuhl C, et al. A plasmonic photocatalyst consisting of silver nanoparticles embedded in titanium dioxide [J]. *Journal of The American Chemical Society*, 2008, 130 (5): 1676-1680
- [2] Noguez C. Surface Plasmons on Metal Nanoparticles: The Influence of Shape and Physical Environment [J]. *Journal of Physical Chemistry C*, 2007, 111(10): 3806-3819
- [3] Aizpurua J, Hanarp P, Sutherland D, et al. Optical properties of gold nanorings[J]. *Physical Review Letters*, 2003, 90(5): 057401
- [4] Hessel, C.M.P., Pattani, V., Rasch, M., Panthani, M.G., Koo, B., Tunnell, J.W., Korgel, B.A. Copper selenide nanocrystals for photothermal therapy. *Nano Letters*, 2011, 11(6): 2560-2566.
- [5] U. Guler, V.M. Shalaev, A. Boltasseva, Nanoparticle plasmonics: going practical with transition metal nitrides, *Materials Today*, 18 (2015) 227-237,
- [6] Y. Zhou, A. Huang, H. Luo, P. Jin, Localized surface plasmon resonance induced excellent solar-shielding ability for TiN nanoparticles-based hybrid polymer optical foils with high transparency, *Journal of Alloys and Compounds*, 782 (2019) 1087-1093
- [7] M.B. Cortie, J. Giddings, A. Dowd, Optical properties and plasmon resonances of titanium nitride nanostructures, *Nanotechnology*, 21, 2010, 115201
- [8] Edwin B. Clatworthy, Samuel Yick, et al. Enhanced Photocatalytic Hydrogen Evolution with TiO₂-TiN Nanoparticle Composites. *Journal of Physical Chemistry C*, 2019, 123, 3740-3749
- [9] Jia Zeng, Yimin Xuan. Tunable full-spectrum photo-thermal conversion features of magnetic plasmonic Fe₃O₄/TiN nanofluid. *Nano Energy*, 51, 2018, 754-763
- [10] Sundaram Bhardwaj Ramakrishnan, Nishan Khatri, Ravi Teja, Addanki Tirumala, et al. Cupric Oxide Mie Resonators[J]. *Journal of Physical Chemistry C*, 2022, 126, 16272-16279
- [11] Xuan Y, Duan H, Li Q. Enhancement of solar energy absorption using a plasmonic nanofluid based on TiO₂/Ag composite nanoparticles[J]. *Rsc Advances*, 2014, 4(31): 16206-16213

- [12] Xiaohui Xu, Aveek Dutta, Jacob Khurgin, et al. TiN@TiO₂ Core–Shell Nanoparticles as Plasmon-Enhanced Photosensitizers: The Role of Hot Electron Injection. *Laser & Photonics Reviews*, 2020, 1900376
- [13] Wang C, Yin H, Dai S, et al. A general approach to noble metal– metal oxide dumbbell nanoparticles and their catalytic application for CO oxidation[J]. *Chemistry of Materials*, 2010, 22(10): 3277-3282
- [14] X. Liu, Y. Xuan, Full-spectrum volumetric solar thermal conversion via photonic nanofluids, *Nanoscale*, 2017, 9(39): 14854-14860
- [15] Palik, E. D. *Handbook of Optical Constants of Solids*; Academic Press, 1998
- [16] J. Pflüger, J. Fink, W. Weber, and K.P. Bohnenn, *Physical Review B*, 30, 1155 (1984)
- [17] M.F. Modest, *Radiative Heat Transfer*, Academic Press, 2003
- [18] Taylor R A, Phelan P E, Otanicar T P, et al. Nanofluid optical property characterization: towards efficient direct absorption solar collectors[J]. *Nanoscale Research Letters*, 2011, 6(1): 1-11
- [19] Drotning W D. Optical properties of solar-absorbing oxide particles suspended in a molten salt heat transfer fluid[J]. *Solar Energy*, 1978, 20(4): 313-319
- [20] Otanicar T P, Phelan P E, Prasher R S, et al. Nanofluid-based direct absorption solar collector [J]. *J Renewable Sustainable Energy*, 2010, 2: 033102
- [21] Cobley C M, Skrabalak S E, Campbell D J, et al. Shape-Controlled Synthesis of Silver Nanoparticles for Plasmonic and Sensing Applications [J]. *Plasmonics*, 2009, 4: 171-179

涡杆管式光生物反应器的优化仿真探究

李思鼎¹, 文华¹, 马春阳^{1,2}

(1. 南昌大学先进制造学院, 南昌, 330031)

(2. NUS Environmental Research Institute, National University of Singapore, Singapore
138602, Singapore)

(Tel: 15045652767, Email: cyma@ncu.edu.cn)

摘要: 引入涡杆作为光生物反应器新式静态混合器选择, 本文以涡杆管式反应器为对象, 在入射光照强度 ($I_0=375\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 和 $800\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 双面光照下, 模拟了涡杆布置方式(60° , 90° 和 120°)和倾斜角度 ($\alpha=27^\circ$, 36° , 45° , 54° 和 63°)对反应器效能的影响。倾角 α 增大能够强化涡流场, 减小流动“死区”, 但过大的倾角会破坏流场。低光照时 120° 分布、倾角 $\alpha=45^\circ$ 的涡杆管式光生物反应器效果最好, 循环频率提升 118.290%, 强化效率达 36.621%; 高光照时 60° 分布下、倾角 $\alpha=63^\circ$ 时的涡杆管式光生物反应器效果最好, 循环频率提升了 87.473%, 强化效率达 19.506%。

关键词: 微藻 光生物反应器 CFD 仿真

0 前言

藻类是地球生态循环中不可或缺的重要成分, 为地球总氧气产量的 50%~87%做出贡献^[1]。自上世纪以来, 人们认识到藻类是应对全球气候变化和人口增长所引起的食物和蛋白质匮乏等问题最具潜力的解决方案^[2]。微藻中的碳元素含量接近 50%, 主要来源于固定的 CO_2 , 每生产 1 公斤微藻生物质 (干重) 可以固定约 1.8 公斤 CO_2 ^[3]。更为重要的是, 所产生的微藻生物质被视为生物能源和生物化工产品的可持续来源。通过生物精炼的概念, 逐渐在全球范围内成为研究的热点, 以最大化微藻生物质资源的价值^[4]。微藻生物质含有多种具有药用和营养价值的生物活性物质, 如多不饱和脂肪酸、类胡萝卜素和维生素等。此外, 微藻生物质还可以作为生物能源的替代品, 用于生产生物氢气、生物乙醇和生物柴油等多种可替代化石能源的生物燃料^[5, 6]。

微藻培养系统的设计目标是在较低成本下实现最佳的质量传递、光能传递和热量传递^[7]。微藻培养系统主要分为开放式跑道池 (OPS) 和封闭式光生物反应器 (PBR)^[8]。封闭式系统在高 CO_2 生物固定率、高生物量产率、高光合效率和过程控制方面具有优势^[9]。管式光生物反应器能够增加气相和液相之间的接触时间, 进而提高 CO_2 的传递^[10]。此外, 光生物反应器的其他参数, 如搅拌速度、扩散器类型、表面活性剂和温度等, 也会影响微藻的碳固定效率^[11]。

光照对微藻生长有着重要的影响。在不同光照条件下, 藻细胞的生长速率表现出差异。当光照强度低于光饱和点时, 微藻的光合作用速率随光照强度增加而增强^[12]。然而, 一旦光照强度超过光饱和点, 增加光照强度并不能有效改变光合作用速率, 直到光照强度达到光抑制点。超过光抑制点后, 光照强度会破坏与光合作用相关的酶^[13], 从而抑制光合作用的进行。根据光照散射模型, 光强度在反应器内以指数方式衰减。如果将管道分为光区和暗区, 藻细胞长时间停留在一侧区域中, 对藻细胞的生长不利。研究表明, 在超过 1 Hz 的光/暗频率下, 光合效率可以提高^[14]。因此, 有效的混合不仅可以促进藻液的质量传递, 避免产生“流动死区”, 还有助于藻细胞进行光暗循环, 提高藻细胞对光能的利用率和光合效率。

基金项目: 江西省自然科学基金项目 (No. 20212BAB214060), 国家留学基金管理委员会 (202006825052)

作者简介: 李思鼎 (1998—), 男, 硕士研究生。通讯作者: 马春阳, 助理教授, Email: cyma@ncu.edu.cn

为了提高反应器内流体混合性能，目前根据装置特性可分为两种：动态混合和静态混合。其中静态混合依靠流体经过设置在管路中的静置插件使流体混合，无需机械混合便可实现，具有结构简单，维护成本低的优点。已有研究探索在光生物反应器中加入静态混合器对管内藻细胞传质和光暗循环的改善效果。Ugwu^[15, 16]究了四种不同静态混合器置于管式光生物反应器中对传质性能的影响，发现混合器促进了藻细胞在光区与暗区之间的移动，添加静态混合器后传质效果均好于光管。Cheng^[17]引入一种新型交叉半月多孔静态混合器，较光管反应器，沿光方向的平均速度幅度提高了近 1000 倍，湍流动能提高了 1.3 倍，在入口速度为 0.3 m/s 和 0.4 m/s 时，光/暗循环频率分别提高了 85.21%和 95.77%。Qin^[18]探究了静态 Kenics 混合器在管式光生物反应器内布置方式，发现静态混合器单元的连续排列并没有带来显著改善，L/D 循环频率提高较小而压降大大增加，间隔排列更加有效。Qin 等^[19]将离散斜向肋引入管式光生物反应器，CFD 模拟结果显示，管内横截面形成了多纵向涡，促进藻细胞在光梯度方向上的流动，从而提高光暗循环频率。Zhang 等^[20]采用 CFD 的方法研究了内置螺旋型混合器的管道式光生物反应器内的流场特性，得到螺旋型混合器的最佳尺寸。随后通过实验证明螺旋型混合器的引进使得藻细胞生物产量提高了 37.26%。

在流体强化传热过程中，为了在保持固定压降的同时获得更好的换热性能，学者们基于场协同的思想提出了采用涡杆设计的强化换热器，以实现理论最优速度场^[21]。针对现有管式光生物反应器设计的不足，提出了一种新型微藻管式光生物反应器，该反应器内部产生纵向涡流场，并通过安装易拆装的涡杆静态混合器来增强藻液混合。相较传统管式反应器，这种流动结构不仅更有效地增强了壁面附近和核心区域之间的对流，同时还能提高 L/D 循环效果。依据场协同理论，该设计强化了藻液的光能利用效率，优化了微藻在壁面上的生长情况。此外，易拆装的设计降低了运营中的清洗成本。

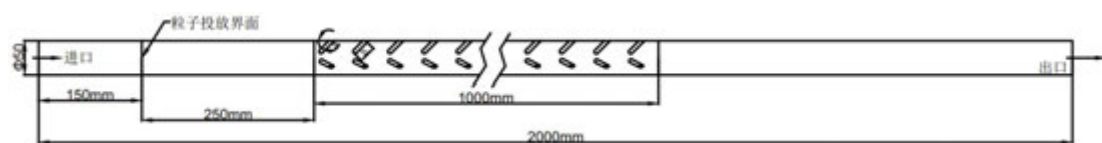
1 模型

1.1 几何模型

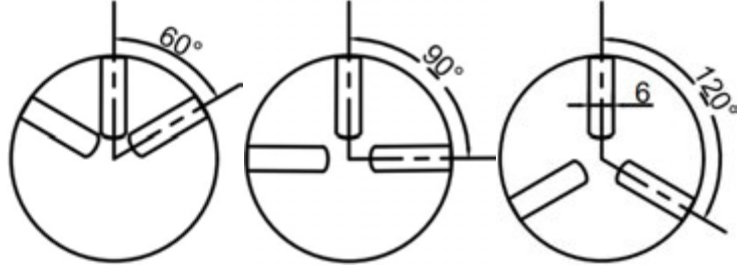
为保证计算的稳定性，保证出口边界为局部单向化条件，减少流体入口处的效应，使湍流充分发展，设置进口为充分发展流动，进口速度为 0.5m/s，并在进口处延长 150mm 作为光管区，以保证出口边界不发生回流，提高模拟的精度。为保证粒子释放处流体充分发展，在粒子投放处界面增加 250mm 延长段。在混合器出口延长 600mm，以保证出口边界不发生回流。出口条件为压力出口条件。

粒子边界条件的选取上，初始位置依赖于湍流模块里的流场速度，这样设置的目的是释放出数密度与流体速度大小成正比的颗粒，能够使得在粒子投放截面处的粒子更趋近于一个混合均匀的悬浮的微藻的状态，这与大多数文献中设置颗粒在固定点投放并不相同。设置包含包含虚拟质量力和压力梯度力，在粒子与壁面的碰撞处理上，采用满散射条件来处理微藻在壁面的离散型随机运动，这些设置保证了粒子在反应器内的运动最大程度的模拟了微藻的运动过程。

本文采用的模型计算域及尺寸如图 1（a）所示。管内径为 50mm，静态混合器区域长 1000mm，涡杆单元布置间距为 50mm。涡杆尺寸如图中所示，杆长全长 25mm，杆半径 3mm。其中 α 为涡杆倾斜角度，是本文优化参数之一，将 $\alpha=0^\circ$ （光管）、 $\alpha=27^\circ$ 、 $\alpha=36^\circ$ 、 $\alpha=45^\circ$ 、 $\alpha=54^\circ$ 、 $\alpha=63^\circ$ 分别进行研究。如图 1（b）所示的是沿流动方向管内涡杆布置所夹角度，该参数为本文优化参数之一，研究选取角度为 60° 、 90° 、 120° 。



（a）反应器尺寸图



(b) 角度布置图

图 1 反应器结构模型图

1.2 湍流模型

管式光生物反应器中的藻液流体流动通常被视为湍流流动^[22]。小球藻藻类呈圆球形，密度接近水密度，胞体直径约 $5\mu\text{m}$ ，远小于 Kolmogorov 尺度 ($\eta \sim \text{LRe}^{-0.75}=50\mu\text{m}$)^[23]，故本文假设藻液流动性质与水接近，忽略藻细胞对流动场的影响。

假定目前考虑的问题是三维的、湍流的、稳定的。对控制方程的推导作了以下假设：(1) 涡轮是刚性的，因此忽略了振动和变形，(2) 流体是连续的和不可压缩的，(3) 不考虑重力和粘性加热的影响。本文采用双方程模型，Rans SST 模型，当残差值小于 10^{-6} 时，认为计算收敛。其控制方程如式 (1)、式 (2)。

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \quad (1)$$

$$\rho \frac{\partial u_i u_j}{\partial x_i} = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \rho \overline{u'_i u'_j} \right) \right] \quad (2)$$

湍动能方程 (3)：

$$\rho \frac{dk}{dt} + \rho u \cdot \nabla k = \nabla \cdot [(\mu + \sigma_k \mu_T) \nabla k] + P - \beta_0^* \rho \omega k \quad (3)$$

湍动能比耗散率方程 (4)：

$$\rho \frac{d\omega}{dt} + \rho u \cdot \nabla \omega = \nabla \cdot [(\mu + \sigma_\omega \mu_T) \nabla \omega] + \frac{\gamma}{\mu_T} \rho P - \rho \beta \omega^2 + 2(1 - f_{v1}) \frac{\sigma_{\omega 2} \rho}{\omega} \nabla k \cdot \nabla \omega \quad (4)$$

1.3 光照模型

由于光生物反应器内微藻细胞均采用高密度培养方式，已有研究表明高浓度微藻细胞培养过程中的光衰减现象^[24]，Cornet 模型比 Lamber-Beer 模型更合适，因此本文在计算反应器内的光照强度时采用 Cornet 模型。Cornet 模型的表达式为

$$I = \frac{4\alpha_1 I_0}{(1 + \alpha_1)^2 \cdot e^{\alpha_2} - (1 - \alpha_1)^2 \cdot e^{-\alpha_2}} \quad (5)$$

$$L = \sqrt{r^2 - x^2} - y \quad (6)$$

$$\alpha_1 = \sqrt{\frac{E_a}{E_a + E_s}} \quad (7)$$

$$\alpha_2 = (E_a + E_s) \cdot \alpha_1 \cdot C_x \cdot L \quad (8)$$

选取 $I_0=375\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ 和 $800\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ 双面光照，根据文献^[25]研究，选取光吸收系数 $E_a=0.0014\text{m}^2/\text{g}$ ，光散射系数 $E_s=0.9022\text{m}^2/\text{g}$ 。

1.4 粒子追踪

采用粒子追踪模块 (FPT) 模拟粒子轨迹，粒子遵循牛顿第二运动定律：

$$\frac{d}{dt} \left(m_p \frac{dq}{dt} \right) = F_t \quad \#(9)$$

其中， m_p 是粒子的质量， q 是粒子的位置矢量， F_t 是作用在粒子上的净力或总力。对于一个在流体中下沉的粒子，总力是重力 F_g 和曳力 F_D 的总和。

$$F_g = \frac{\rho_p - \rho}{\rho_p} m_p g \quad \#(10)$$

$$F_D = \frac{1}{\tau_p} m_p (u' - v) \quad \#(11)$$

$$u' = u + \Delta u \quad \#(12)$$

颗粒速度响应时间：

$$\tau_p = \frac{4\rho_p d_p^2}{3\mu C_D Re_r} \quad \#(13)$$

其中， ρ_p 是粒子的密度， ρ 是周围流体的密度， g 是重力引起的加速度， μ 是周围流体的动力黏度， d_p 是粒径， u 是周围流体的速度， v 为粒子的速度。

2 性能指标

2.1 平均光暗循环频率

藻细胞的平均光暗循环频率是十分重要的评价指标，表征了光生物反应器对微藻培养的强化程度。将光照强度依赖临界光照强度 $I_c=96.84\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 进行二分，高于临界光照强度的区域称为光区，另一半部分则称为暗区，因此能通过粒子在光区暗区之内停留的时间信息得到粒子的光暗循环周期，从而得到循环频率。粒子光暗循环周期定义为：

$$t_c = t_l + t_d \quad \#(14)$$

其中 t_l 为粒子在一个循环周期内在光区停留的时间， t_d 则是在暗区的停留的时间，若存在粒子在统计的时间范围内未完成完整的时间循环，为了计算粒子的平均值，将这次过程视作一次完整的时间循环，此时假设该粒子的 $t_c=t_l$ 或 t_d 。则对单个粒子来说，其平均光暗循环周期定义为：

$$t_{c,av}^i = \frac{\sum_{l=1}^n t_c}{n} \quad \#(15)$$

其中 i 为粒子编号， n 为粒子循环周期数，为了消除粒子轨迹的随机性，选取 3000 个粒子进行投放，因此可以计算得到粒子总数的平均光暗循环周期：

$$t_{c,av} = \frac{\sum_{l=1}^N t_{c,av}^i}{N} \quad \#(16)$$

其中 N 为投放粒子总数，最终得到粒子平均光暗循环频率：

$$f_{av} = \frac{1}{t_{c,av}} \quad \#(17)$$

2.2 光暗循环强化效率

尽管提高平均光暗循环频率对光生物反应器的优化有不可或缺的效用，但是根据普遍研究可知，提高平均光暗循环频率往往不可避免地带来管内流体压降的提升，需要更多泵功，因此导致维持反应器运行成本的提高。已有研究对此问题提出光暗循环强化效率指标，来表征反应器经济性的优劣^[26]。光暗循环强化效率定义为：

$$\mu = \frac{\Delta f_{av} / f_{av,0}}{\Delta E / E_0} \quad \#(18)$$

其中 $f_{av, 0}$ 、 E_0 是未加入涡杆时光管内藻细胞的平均光暗循环频率和单位时间功耗， Δf_{av} 、 ΔE 是加入涡杆后管内藻细胞平均光暗循环频率和单位时间功耗相较于光管中的增量。本研究中由于光管与带涡杆反应器横截面积和进口流速都相同，便可认为单位时间功耗无量纲增量是仅关于压降的表达式：

$$\Delta E/E_0 = \frac{(\Delta P - \Delta P_0)}{\Delta P_0} \quad \#(19)$$

3 结果与分析

3.1 模型验证

考虑到涡杆结构的复杂性，采用非结构性网格进行划分。本文采用 Rans SST 模型，对边界层网格要求较高，需要对边界层和斜向肋进行加密，如图 2 所示。为保证模拟结果的准确性，划分多种网格讨论，以最细网格作为标准，比较不同网格数目进出口压差的误差，具体见表 1。

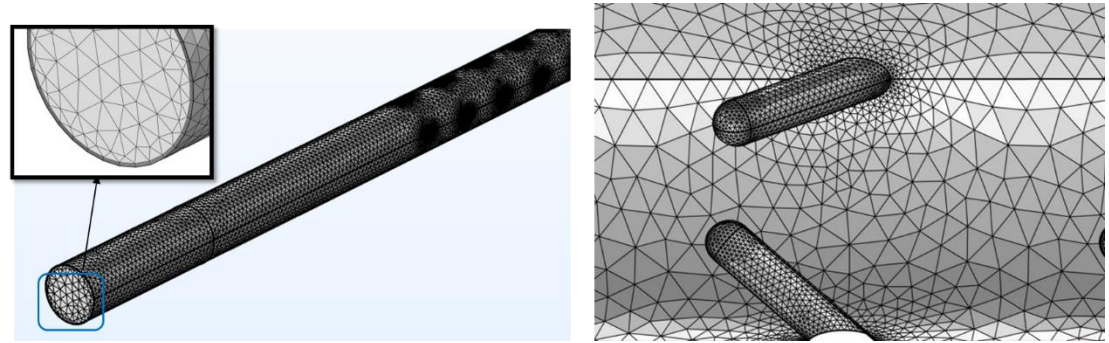


图 2 网格示意图

由表 1 知，网格数为 395251 时误差仅为 0.17%，为节省计算时间，本文采用此等级质量网格进行计算。

表 1 不同网格数进出口压力差的计算误差

网格数	进出口压降	误差分数
1453	332.35	240.24%
5783	113.83	16.53%
44177	78.62	19.51
349957	101.82	4.24%
395251	97.85	0.17%
602045	97.68	-

为了验证光照模型的可行性，本文采用 Cornet 散射模型模拟了文献^[27]中柱式光生物反应器结构内的光场强度分布。将计算结果与文献实验所测得结果进行比较，如图 3 所示，可以得到模拟结果符合实验结果趋势，数值吻合良好，表明本文流体模型的数值方法是可靠的。

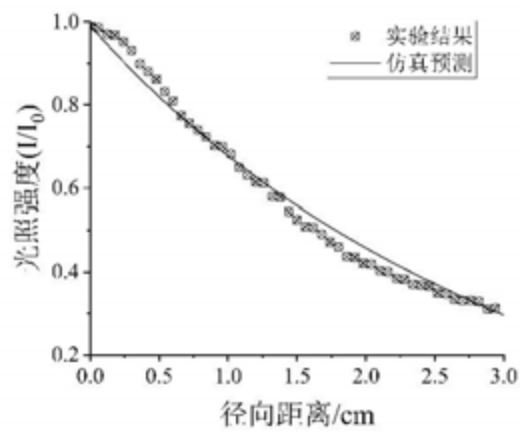


图3 实验结果对比数值仿真验证

3.2 涡杆反应器流场及光场分布

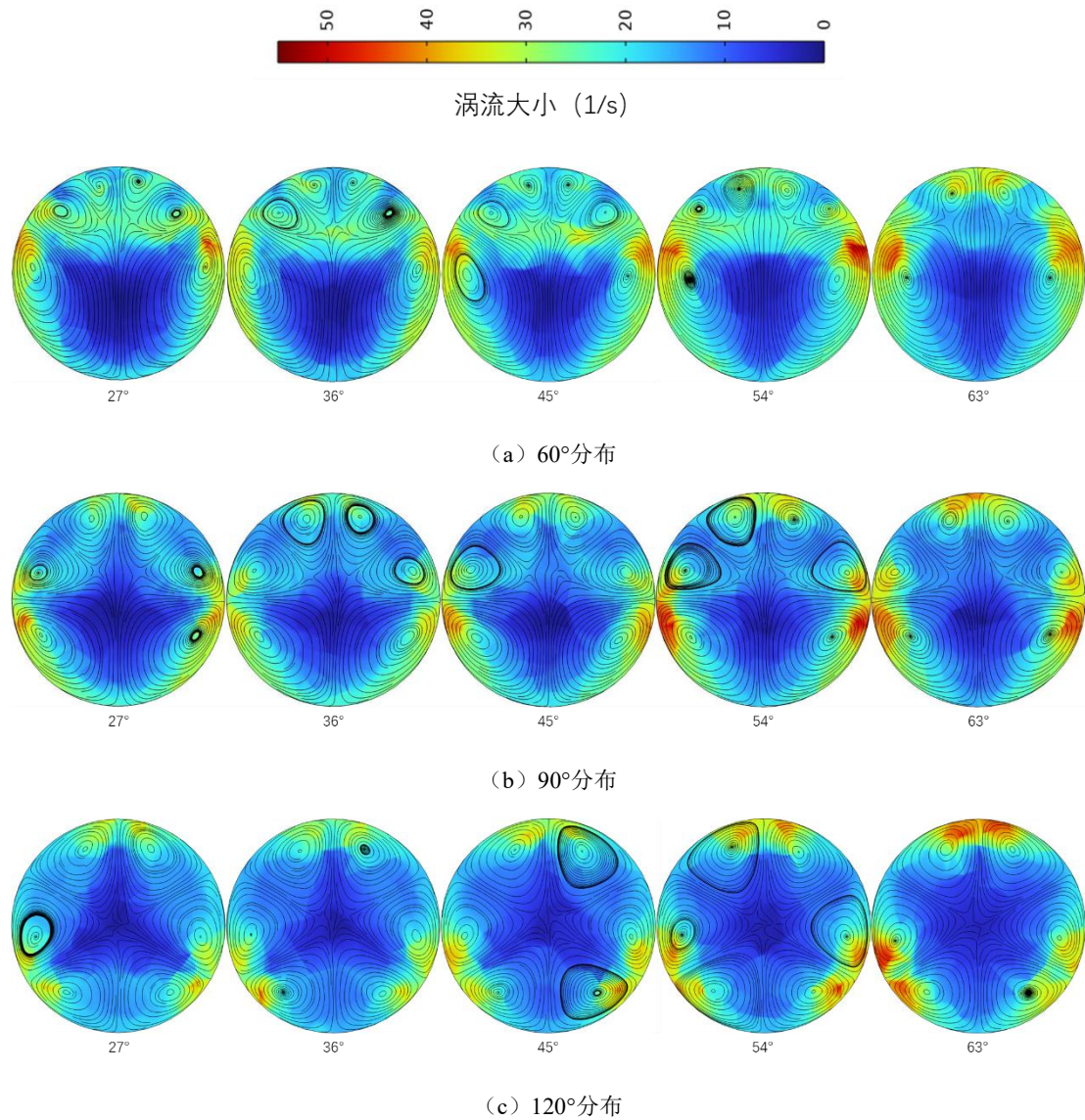


图4 管内流场分布及涡流大小

通过 CFD 软件模拟可以得到反应器内截面微藻流场分布图如图 4 所示。可以发现，管

内流动在涡杆作用下均产生了对称涡流，涡流沿涡杆为中心近似对称分布，涡流颜色在涡杆附近颜色更深，代表涡杆附近涡流更强。随着涡杆倾斜角度 α 的增大，涡流强度增强，涡流变大更激烈，说明涡杆倾斜角度决定了涡流大小，增大倾斜角度可以强化反应器内涡场。值得注意的是图 4（a）表明，在 60° 分布下，随着涡杆倾斜角度的逐渐增大，两边涡杆上方的涡逐渐减小，甚至最后消失，表明了涡杆倾斜角度过度增大对管内涡的强化最终会破坏涡的结构，因此考虑到协同纵向涡理论的要求，在涡杆倾斜角度设计优化时需要选取合适的角度。

因为光对微藻生长起到重要作用，涡杆采用透明材料制成，不同分布与倾角的涡杆管式光生物反应器中，在涡杆段的截面上透明的径向距离会有差别，但是同时在轴向上的透明距离会相反变化，在空间尺度上微藻经历的光照区域去掉涡杆体积后差异较小。而作为表征微藻涡杆管式光生物反应器好坏的指标均体现为微藻整体运动区域中的统计平均，涡杆段相较于管式反应器整体来说较小，因此本研究忽略其对光强分布的影响，采用充满藻液的截面作为光照的研究对象。

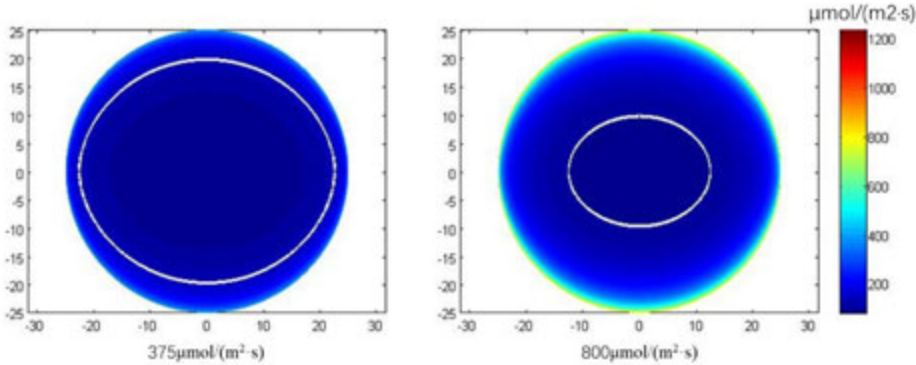


图 5 不同入射光强下的光照场（白线：光/暗分界线，即 $I_c=96.84 \mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 的位置）

根据公式（5）得到光生物反应器截面所受光照场强度分布图如图 5 所示，随着入射光场的增强，管内光暗区分界线逐渐内迁，光区占比增大，暗区减小，增大入射光强可以调整光暗区分布比例，改善管内光照场分布。值得注意的是高入射光场强度下光区内光照强度对于微藻生长而言有较大区域过于强烈，可能会引起微藻生长抑制，同时过高的入射光场可能会带来更大的运营成本，增强入射光强需要考虑多种因素影响。

3.3 角度变化对光暗循环的影响

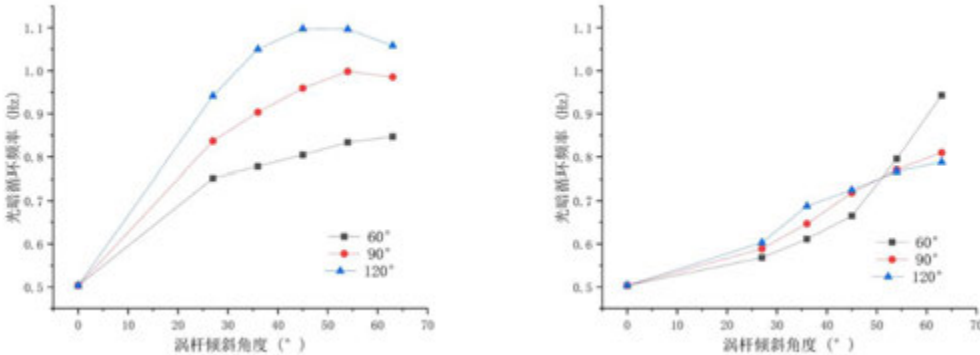


图 6 不同光照条件下反应器平均光暗循环频率/Hz（左： $375 \mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ ；右： $800 \mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ ）

图 6 描述了在不同光照条件下，根据公式（17）得到涡杆光生物反应器内平均光暗循环频率的变化状况。可以发现反应器在低光照情况下的平均光暗循环频率表现更好，随着

涡杆倾斜角度的增加，平均光暗循环频率呈现出先增大后减小的趋势，随着布置角度的增大，涡杆最佳倾斜角度逐渐减小，其中 120° 分布涡杆的反应器内总体效果最好，在倾斜角度 $\alpha=45^\circ$ 时取得最大 $f_{av}=1.098$ 。根据前文中流场涡流分布以及光照场分布，可以认为在双面光照场中，当涡杆分布角更大时，涡流的均匀分布可以使得微藻更平均的在光区和暗区来回交替，在更小的分布角度下，由于涡的大小不均，过小的涡流场和过大的涡流场中的微藻粒子并不能很好的在光区和暗区间循环。

而在高光照下不同布置反应器内的平均光暗循环频率均随着涡杆倾斜角度的增加而加大，此时在 60° 分布涡杆的反应器内增长最快，最佳倾角 $\alpha=63^\circ$ 时， $f_{av}=0.943$ 。相比较于低光照场中的反应器平均光暗循环频率表现，高光照下循环频率总体更低，对比光照场分布可以看出，由于高光照下反应器内部临界分界线更靠近中心区域，涡流流场较少穿过分界线，微藻粒子更少的在光暗区进行循环，因此平均光暗循环频率更低，而低光照时，流场涡流更广泛的穿过分界线，微藻更高频率的参与循环，故表现更好。

同时需要指出的是，当涡流场越均匀的分布在分界线两侧时，微藻能得到更大的平均光暗循环频率，从流场图分布中可以看出，涡杆倾斜角的增大会使得涡流区域更大，因此在低光照下，随着涡杆倾斜角度的增加，平均光暗循环频率先增大后减小。而高光照下，涡杆倾斜角的增大可以使更多的涡流区域穿过分界线，所以平均光暗循环频率均随着涡杆倾斜角度的增加而加大。

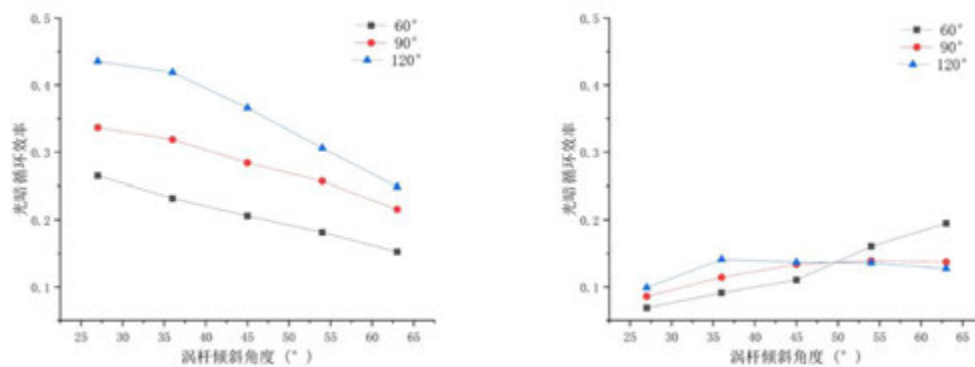


图7 不同光照条件下反应器平均光暗循环效率（左： $375\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ ；右： $800\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ ）

图7表示不同光照条件下，根据公式（18）得到各反应器内平均光暗循环效率的变化过程。综合考虑泵功因素带来的成本效益，随着涡杆倾斜角度的增大，涡流的增强导致进出口压降增大。在低光照下，反应器平均光暗循环效率呈下降趋势，但总体要高于高光照下的反应器平均光暗循环效率。 120° 布置的反应器在低光照时表现最好，在设计涡杆管式光生物反应器时应尽量选择低倾角。而在高光照下，低倾角涡杆在 120° 布置时表现更好，在高倾角时则应采取 60° 布置。

4 结论

本文以引入涡杆静态混合器的光生物反应器为研究对象，探讨了光管及三种涡杆布置角度： 60° 、 90° 或 120° 下，在涡杆倾角为 $\alpha=27^\circ$ 、 36° 、 45° 、 54° 和 63° 时反应器对藻液的生长促进效能。在综合考量到光照场与速度场分布、平均光暗循环频率和光暗循环强化效率，通过CFD软件模拟仿真发现，两种入射光场 $I_0=375\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 以及 $800\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 的光照条件下，倾角 α 增大能够强化涡流场，减小流动“死区”，但过大的倾角会导致涡变形，甚至消失。低光照下反应器内平均光暗循环频率随着倾角增大基本呈现为先增大后减小，而光暗循环强化效率则因为压降增大表现出逐渐减小的趋势， 120° 分布下倾角 $\alpha=45^\circ$ 时的涡杆管式光生物反应器效果最好，平均光暗循环频率 f_{av} 提升了 118.290%，强化效率

达 36.621%；高光照时反应器内平均光暗循环频率随着倾角增大而增大，光暗循环强化效率也呈现增大趋势，60°分布下倾角 $\alpha=63^\circ$ 时的涡杆管式光生物反应器效果最好，平均光暗循环频率 f_{av} 提升了 87.473%，强化效率达 19.506%。总体来看，低光照下的涡杆管式光生物反应器性能更优良，节约光照成本。

参考文献

- [1] ENZING C, PLOEG M, BARBOSA M, et al. Microalgae-based products for the food and feed sector: an outlook for Europe. Scientific and Policy Reports. Spain: Joint Research Centre, 2014.
- [2] ULLMANN J, GRIMM D. Algae and their potential for a future bioeconomy, landless food production, and the socio-economic impact of an algae industry. *Organic Agriculture*, 2021, 11 (2): 261-267.
- [3] CHISTI Y. Biodiesel from microalgae. *Biotechnology Advances*, 2007, 25(3): 294-306.
- [4] CHEW K W, YAP J Y, SHOW P L, et al. Microalgae biorefinery: high value products perspectives. *Bioresource Technology*, 2017, 229: 53-62.
- [5] LEVASSEUR W, PERRÉ P, POZZOBON V. A review of high value-added molecules production by microalgae in light of the classification. *Biotechnology Advances*, 2020, 41: 107545.
- [6] MILANO J, ONG H C, MASJUKI H H, et al. Microalgae bio-fuels as an alternative to fossil fuel for power generation. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2016, 58: 180-197.
- [7] ZHU J Y, RONG J F, ZONG B N. Factors in mass cultivation of microalgae for biodiesel. *Chinese Journal of Catalysis*, 2013, 34(1): 80-100.
- [8] BAHADAR A, BILAL KHAN M. Progress in energy from microalgae: A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2013, 27: 128-148.
- [9] SKJÅNES K, LINDBLAD P, MULLER J. BioCO₂ — A multidisciplinary, biological approach using solar energy to capture CO₂ while producing H₂ and high value products. *Biomolecular Engineering*, 2007, 24(4): 405-413.
- [10] STEWART C, HESSAMI M A. A study of methods of carbon dioxide capture and sequestration-the sustainability of a photosynthetic bioreactor approach. *Energy Conversion and Management*, 2005, 46(3): 403-420.
- [11] UGWU C U, AOYAGI H, UCHIYAMA H. Photobioreactors for mass cultivation of algae. *Bioresource Technology*, 2008, 99(10): 4021-4028.
- [12] Acién Fernández F G, Fernández Sevilla J M, Molina Grima E. Photobioreactors for the production of microalgae. *Reviews in Environmental Science and Biotechnology*, 2013, 12(2): 131-151.
- [13] Wu X, Merchuk J C. A model integrating fluid dynamics in photosynthesis and photoinhibition processes. *Chemical Engineering Science*, 2001, 56(11): 3527-3538.
- [14] Terry, K.L., 1986. Photosynthesis in modulated light: quantitative dependence of photosynthetic enhancement on flashing rate. *Biotechnol. Bioeng.* 28, 988-995.
- [15] Ugwu C.U, Ogbonna J.C, Tanaka H. Characterization of light utilization and biomass yields of *Chlorella sorokiniana* in inclined outdoor tubular photobioreactors equipped with static mixers. *Process Biochemistry*, 2005, 40(11): 3406-3411.
- [16] Ugwu C.U, Ogbonna J.C, Tanaka H. Improvement of mass transfer characteristics and productivities of inclined tubular photobioreactors by installation of internal static mixers. *Applied Microbiology & Biotechnology*, 2002, 58(5): 600-607.
- [17] Wenchao, Cheng, Jianke, et al. Computational fluid dynamics simulation of mixing characteristics and light regime in tubular photobioreactors with novel static mixers. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 2016.
- [18] Qin C, Wu J. Influence of successive and independent arrangement of Kenics mixer units on light/dark cycle and energy consumption in a tubular microalgae photobioreactor. *Algal Research*, 2018, 37: 17-29.
- [19] Qin C, Lei Y L, Wu J. Light/dark cycle enhancement and energy consumption of tubular microalgal photobioreactors with discrete double inclined ribs. *Bioresources and Bioprocessing*, 2018, 5: 28.
- [20] Zhang Q, Wu X, Xue S, et al. Study of hydrodynamic characteristics in tubular photobioreactors. *Bioprocess & Biosystems Engineering*, 2013, 36(2): 143-150.

- [21] Zheng N , Peng L , Feng S , et al. Numerical studies on thermo-hydraulic characteristics of laminar flow in a heat exchanger tube fitted with vortex rods. *International Journal of Thermal Sciences*, 2016, 100:448-456.
- [22]PERNER-NOCHTA I, POSTEN C. Simulations of light intensity variation in photobioreactors.. *Journal of Biotechnology*, 2007, 131 (3): 276-285.
- [23]秦超, 雷玉玲, 吴晶. 管式光生物反应器中螺旋混合器的径向高度对光暗循环频率和压降的影响. *生物产业技术*, 2018(2):7.
- [24]温少红. 螺旋藻培养液光衰减规律的研究. *海洋通报*, 2001, 20(4):93-97.
- [25]HUANG J, LI Y, WAN M, et al. Novel flat-plate photobioreactors for microalgae cultivation with special mixers to promote mixing along the light gradient. *Bioresource Technology*, 2014, 159 (2): 8-16.
- [26]秦超, 雷玉玲, 吴晶. 管式光生物反应器中螺旋混合器的径向高度对光暗循环频率和压降的影响. *生物产业技术*, 2018(2):7.
- [27] Kumar K , Sirasale A , Das D .Use of image analysis tool for the development of light distribution pattern inside the photobioreactor for the algal cultivation[J].*Bioresource Technology*, 2013, 143(Complete):88-95.

基于零碰撞蒙特卡洛法的轴对称喷管辐射换热研究

肖舰¹, 李嘉璐¹, 王希影², 高包海¹, 任亚涛¹, 齐宏¹

(1. 哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001

2. 中国航空发动机研究院, 北京 101304)

(Tel: 0451-86412638, Email: qihong@hit.edu.cn)

摘要: 精确模拟喷管内的辐射换热有助于延长喷管寿命以及优化热防护结构设计。本文建立了基于逐线算法 (LBL) 和 K 分布法的气体物性模型、基于 Mie 理论的颗粒物性模型以及基于零碰撞反向蒙特卡洛法 (NC-RMC) 和轴对称网格快速定位算法的辐射传输模型, 并对一典型圆柱喷管开展研究。在验证程序的基础上, 探究了颗粒散射对轴线热流密度分布的影响: 随着粒径增加, 颗粒散射将使得净热流密度不断减小; 颗粒直径小于 $1\text{ }\mu\text{m}$ 时, 颗粒的散射作用趋于稳定。

关键词: 辐射换热; 轴对称喷管; 零碰撞反向蒙特卡洛法; 轴对称网格定位

0 前言

当下, 航空发动机正朝着高增压比、高工作温度方向发展。发动机工作过程中产生的高温燃气和高温固体颗粒在流经喷管时, 将引起极高的热流密度, 继而对喷管热结构可靠性提出严峻挑战^[1]。考虑到喷管内燃气的温度高达上千摄氏度^[2], 燃气、颗粒与壁面之间的辐射换热在喷管热分析流程中不可被忽略。但辐射传输方程 (RTE) 求解的复杂性, 颗粒辐射的特殊性, 叠加上气体辐射强烈的光谱选择性和容积性^[3], 使得喷管内的精细辐射换热计算成为了航空发动机喷管热分析中的一个难题。精确计算喷管内的辐射换热对于提高喷管寿命和优化热防护结构设计具有重要意义。

就喷管辐射换热计算而言, 国内外学者开展了大量研究。Liu^[4]等采用蒙特卡洛法对可压缩流动膨胀喷管内的辐射传热进行了模拟, 深入分析了等效比、壁面温度和进口流动温度对壁面辐射热流密度的影响。Jung^[5]等使用商业软件结合离散坐标法求解了固体火箭喷管的对流与辐射耦合换热问题, 计算过程忽略了气相辐射。Cross^[6]等采用离散坐标法计算了喷管壁面的辐射热流并分析了复杂折射率、粒度分布、出口辐射边界条件等对计算结果的影响。Cai^[7]等建立了含非均匀介质的封闭壁面辐射热流方程, 并采用区域法计算了喷管内部的辐射换热。张小英等^[8]利用有限体积法、谱带气体物性模型和 Mie 理论建立了喷管的封闭腔辐射换热计算模型, 结合对流模型求解了喷管内壁辐射热流与对流热流的比值。唐树威等^[9]通过对喷管进行三维建模和网格划分, 计算了网格单元对尾喷管整体辐射的贡献。

总结国内外研究现状: 在辐射换热数值计算方法方面, 主要有区域法、离散坐标法、有限体积法以及蒙特卡洛法, 其中蒙特卡洛法是相对较优的算法, 既不存在假散射又不存在射线效应^[3], 主要缺点是需要通过大量抽样来保证计算精度, 计算效率一般。考虑

到工程应用中，喷管内辐射往往与导热、对流进行耦合迭代求解，若辐射模块计算效率低下，将制约整体求解速度，因此发展一种高效的辐射换热求解算法具有重要实际意义。

本文采用零碰撞反向蒙特卡洛法进行辐射换热求解，该方法继承了蒙特卡洛法的所有优点，同时通过引入零碰撞算法^[10]提高了蒙特卡洛法在不均匀介质辐射传输求解中的计算效率^[11-14]。气体物性采用 LBL 和 K 分布法计算；颗粒物性采用 Mie 理论进行计算，几何模型则采用轴对称截面进行简化。本文首先介绍了相关理论，其次通过若干算例验证了程序的正确性，最后对一典型圆柱喷管的辐射换热情况进行了模拟，并着重探究了颗粒散射对净热流密度分布的影响。

1 计算方法

正向蒙特卡洛法（FMC）与反向蒙特卡洛法（RMC）均可用于求解辐射热流。其中，FMC 常通过引入辐射分配因子（RDF）来计算辐射热流，更确切的说，是 RDF 矩阵。对于一个具有 N_v 个体单元和 N_s 个壁面单元的网格来说，RDF 矩阵的维度为 $(N_v+N_s) \times (N_v+N_s)$ 。在工程应用中，出于高精度的需要，网格通常非常细密，这将导致 RDF 矩阵的内存开销十分庞大。但 RDF 矩阵本身的作用仅仅是记录单元与单元之间的辐射关系，如此巨大的内存开销是否划算值得进一步考虑。反观 RMC，则不需要借助 RDF 来进行求解，因此本文选用 RMC 进行计算。

1.1 NC-RMC 求解辐射热流原理

位置 \mathbf{r} 处的净热流密度计算式为^[3]

$$\nabla \cdot \mathbf{q} = k_a(\mathbf{r}) \left[4\pi I_b(\mathbf{r}) - G(\mathbf{r}) \right] \quad (1)$$

式中， $k_a(\mathbf{r})$ 为吸收系数， $I_b(\mathbf{r})$ 为黑体辐射强度， $G(\mathbf{r})$ 为投射辐射，计算式为

$$G(\mathbf{r}) = \int_{4\pi} I(\mathbf{r}, \mathbf{s}) d\Omega \quad (2)$$

式中， \mathbf{s} 为光束追踪方向， Ω 为立体角。

当 \mathbf{r} 位于壁面且仅考虑介质侧的投射辐射时，式的积分范围缩减为 2π 。因此，对于给定位置 \mathbf{r} ，若能计算得到 $I(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ ，便可通过式和式求解出净热流密度。 $I(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ 通过求解 RTE 得到，将零碰撞算法引入 RTE 可得

$$\begin{aligned} s \nabla I(\mathbf{r}, \mathbf{s}) &= k_a I_b(\mathbf{r}, \mathbf{s}) - (k_a + k_s + k_n) I(\mathbf{r}, \mathbf{s}) + \\ &\frac{k_s}{4\pi} \int_{4\pi} I(\mathbf{r}, \mathbf{s}') \Phi(\mathbf{s}', \mathbf{s}) d\Omega' + \frac{k_n}{4\pi} \int_{4\pi} I(\mathbf{r}, \mathbf{s}') \delta(\mathbf{s}', \mathbf{s}) d\Omega' \end{aligned} \quad (3)$$

式中， k_s 、 k_n 分别为散射系数和零碰撞系数， Φ 为散射相函数， δ 为 Dirac 函数。

式相比传统的 RTE 新增了两项，即 $-k_n I(\mathbf{r}, \mathbf{s})$ 与 $k_n \int_{4\pi} I(\mathbf{r}, \mathbf{s}') \delta(\mathbf{s}', \mathbf{s}) d\Omega' / 4\pi$ ，前者表示由零碰撞引起的衰减项，后者表示由零碰撞引起的增强项，这两项在数学上可以相互抵消^[11]，因此引入零碰撞算法并不改变 RTE 的求解结果。对式积分，得到位置 \mathbf{r}_0^u 处的辐射强度 $I(\mathbf{r}_0^u, \mathbf{s})$ ，表达式见式，其物理含义如图 1(a)所示。由图可知， $I(\mathbf{r}_0^u, \mathbf{s})$ 与壁面沿方向 \mathbf{s} 到位置 \mathbf{r}_0^u 处的沿程各点辐射有关，此为介质辐射的容积性。

$$I(\vec{r}_0, \vec{s}) = I_w(\vec{r}_w, \vec{s}) \exp\left(-\int_0^{s_w} \hat{k} ds\right) + \int_0^{s_w} \left[k_a I_b(\vec{r}, \vec{s}) + \frac{k_s}{4\pi} \int_{4\pi} I(\vec{r}, \vec{s}') \Phi(\vec{s}', \vec{s}) d\Omega' + k_n I(\vec{r}, \vec{s}) \right] \exp\left(-\int_0^s \hat{k} ds'\right) ds \quad (4)$$

式中, $s_w = |\vec{r}_w - \vec{r}_0|$, $s = |\vec{r} - \vec{r}_0|$, 下标 w 表示壁面, $\hat{k} = k_a + k_b + k_n$ 为零碰撞衰减系数。

在整个计算域中, \hat{k} 为常数, 常取吸收系数和散射系数最大值之和, $\hat{k} = k_{a,\max} + k_{s,\max}$ 。由于零碰撞衰减系数 \hat{k} 在整个计算域中为常值, 因此在光束的每一次传播过程中均可以直接计算得到光束传播终点的坐标, 无需像传统 RMC 一样对传播方向上的网格进行逐个判定与计算, 从而大大提高了蒙特卡洛法在非均匀介质问题中的计算效率。

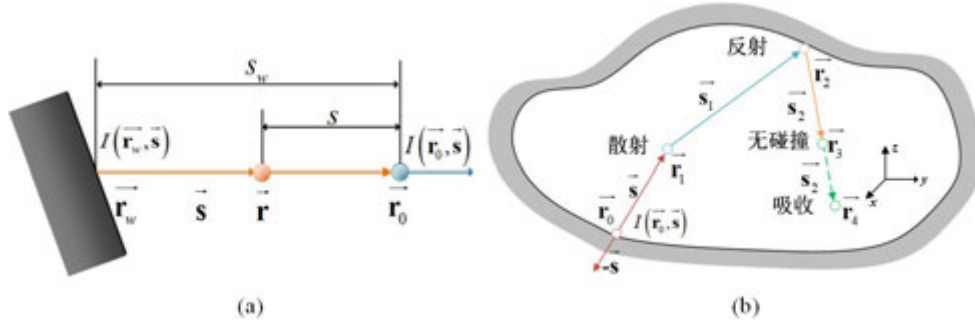


图 1 示意图: (a)辐射强度积分表达式物理含义; (b)NC-RMC 典型光束追踪过程

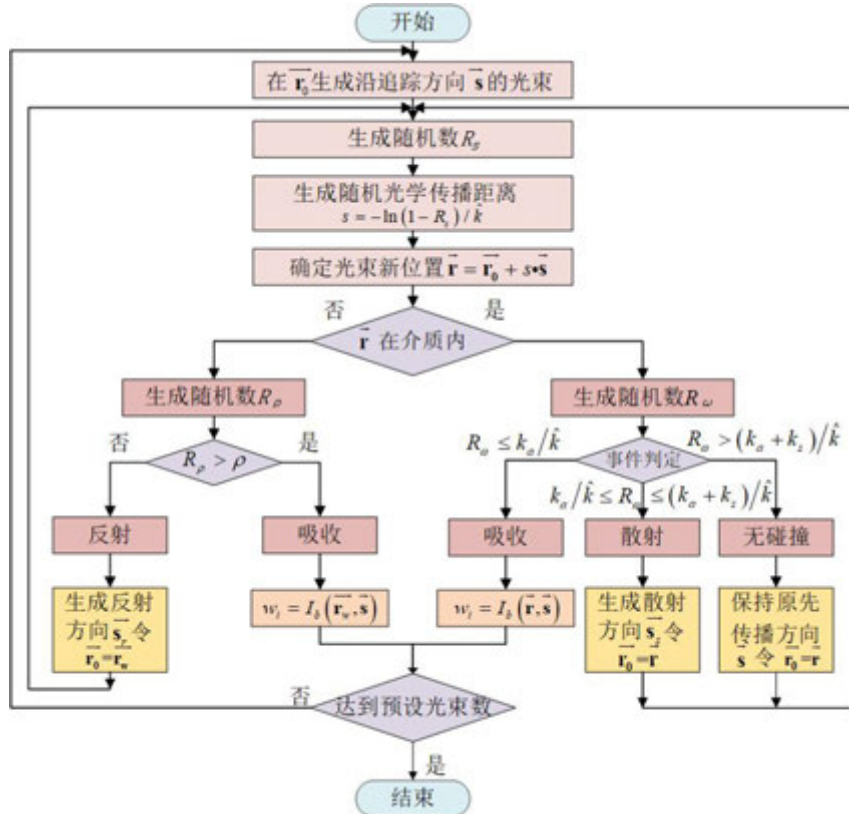


图 2 NC-RMC 计算辐射强度流程图

1.2 NC-RMC 计算流程

NC-RMC 的一个典型光束追踪过程如图 1(b)所示：光束在介质中行进时，除了可能被介质吸收或反射，还可能发生零碰撞事件。具体来说，当光束发生零碰撞事件时，光束将继续沿着原有传播方向前进，前进距离根据 Beer-Lambert 定律随机抽样确定。NC-RMC 计算辐射强度的流程图如图 2 所示，图中的所有随机数均介于 0 到 1 之间。对于每一束光束，每当其被吸收，就计算被吸收位置的黑体辐射强度，并将计算结果累加到零碰撞权重因子 w_i 中（下标 i 表示第 i 束光束）。当光束数达到预设值或满足设定的收敛要求^[11]时，停止追踪。在获得 N 条光束的追踪结果后，可通过式计算得到待求位置的辐射强度

$$I(\mathbf{r}, \mathbf{s}) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N w_i \quad (5)$$

1.3 轴对称、非结构网格快速定位算法

根据喷管的轴对称性将网格由 3 维简化为 2 维。虽然简化后的网格是 2 维的，但无论是 CFD 计算还是辐射传输模拟，本质上都还是在 3 维进行^[15]。在 CFD 计算中，处理轴对称网格的常用策略是拓扑至单位弧度大小的计算域进行计算。但在本文中，辐射传输模拟是在 2π 弧度的全计算域进行的。

这样处理的原因是：一方面，如果采用单位弧度大小的计算域，则需要额外引入两个周期性边界条件，对于蒙特卡洛法而言，当光束到达边界时，需进一步判定是否位于周期性边界上，如果光束位于周期性边界上并且未被吸收，则需对光束位置进行坐标变换并继续传播，从而大大增加了计算量；另一方面，NC-RMC 中光束的传播是直接的，并不需要逐个网格进行遍历，因此即便是在全计算域中，也能迅速确定光束终点位置并进行事件判定，并未额外增加计算量，同时也无需新增周期性边界条件。

能否准确追踪光束直接影响到蒙特卡洛法计算结果的准确性，因此需要在程序中嵌入网格快速定位模块。出于省略网格重建的考虑，本文直接使用流动计算的非结构网格进行辐射传输模拟。非结构网格定位的难点在于网格单元与坐标系没有严格的对应关系，倘若采用遍历所有单元的方式进行定位，计算效率将十分低下，因此本文采用一种快速定位算法进行网格定位，定位流程图如图 3(b)所示。

依据待定位点是否位于介质内，可分为介质内定位和边界定位两种情况。对于介质内定位，采用背景网格法（见图 3(a)），其基本思想是在原有非结构网格的基础上，再划分一套结构化网格（也称背景网格），并建立起结构网格与非结构网格之间的映射关系。在定位时，首先确定点在规则网格中的单元编号，然后再遍历该单元包含的非结构网格，从而快速确定待定位点在原非结构网格中的单元编号。在遍历时需要判定点是否落在给定非结构单元内，本文采用叉乘法进行判定，以三角形单元为例简述其基本原理：假定三角形 ABC 的顶点 A、B、C 按顺（逆）时针依次排列，则对于给定点 P，若 $(\overrightarrow{PA} \times \overrightarrow{PB})$ 、 $(\overrightarrow{PB} \times \overrightarrow{PC})$ 、 $(\overrightarrow{PC} \times \overrightarrow{PA})$ 三者同号，可判定点 P 落在三角形内。

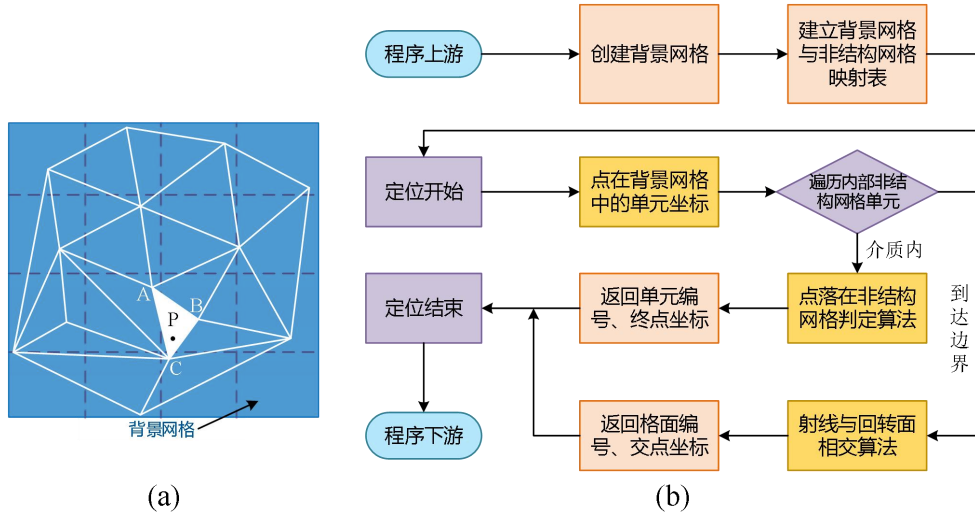


图3 非结构网格定位: (a)背景网格法; (b)流程图

对于边界定位,可采用类似的思想以缩短定位时间。边界定位需要解决的另一个问题是求解光束与全计算域边界的交点坐标,数学上描述为求解射线与旋转曲面的交点坐标。如图4所示,同时建立柱坐标系和笛卡尔坐标系,假定轴对称截面位于 x - y 平面内,射线起点坐标为 (x_0, y_0, z_0) , 射线方向的单位向量为 (a, b, c) , 则射线上任意一点的笛卡尔坐标和柱坐标可用式的参数方程进行描述。

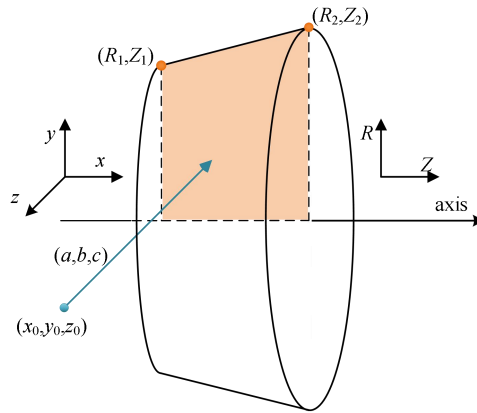


图4 计算光束与全计算域边界交点

$$\begin{cases} x = x_0 + at \\ y = y_0 + bt \\ z = z_0 + ct \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} R = \sqrt{(y_0 + bt)^2 + (z_0 + ct)^2} \\ Z = a_0 + at \\ \Phi = \arctan \frac{z_0 + ct}{y_0 + bt} \end{cases} \quad (6)$$

回转面由格点 (R_1, Z_1) 和 (R_2, Z_2) 构成的线段旋转一周得到, 其参数方程为

$$\begin{cases} R = R_1 + (R_2 - R_1)s \\ Z = Z_1 + (Z_2 - Z_1)s \\ \Phi \in [0, 2\pi] \end{cases} \quad s \in [0, 1] \quad (7)$$

联立式(5)和式(6)可得

$$t_{1,2} = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - AC}}{A} \quad s_{1,2} = \frac{x_0 - x_1 + at_{1,2}}{x_2 - x_1} \quad (8)$$

式中, d_1 、 d_2 、 A 、 B 、 C 的表达式见式

$$\begin{cases} d_1 = (y_2 - y_1)/(x_2 - x_1) \\ d_2 = x_0 - x_1 \\ A = b^2 + c^2 - d_1^2 a^2 \\ B = by_0 + cz_0 - y_1 d_1 a - d_1^2 d_2 a \\ C = y_0^2 + z_0^2 - y_1^2 - 2y_1 d_1 d_2 - d_1^2 d_2^2 \end{cases} \quad (9)$$

在计算时, 有两种特殊情况需要注意:

$$\begin{cases} A=0 \text{ 时} \Rightarrow t = -C/(2B), s = (x_0 + at - x_1)/(x_2 - x_1) \\ x_2 - x_1 = 0 \text{ 时} \Rightarrow t = (x_1 - x_0)/a, s = \sqrt{(z_0 + ct)^2 + (y_0 + bt)^2 - y_1} / (y_2 - y_1) \end{cases} \quad (10)$$

1.4 气体与颗粒物性计算

考虑喷管内介质的非灰性, 需要分别对气体和固体颗粒的物性进行计算。气体物性采用 LBL 和 K 分布法进行求解, K 分布法的基本思想是将波段范围内重复出现的吸收系数按照其累积分布概率大小进行重排, 再利用高精度数值积分方法进行求解, 相较于 LBL 动辄上亿次求解 RTE 的计算量, K 分布法仅需要重复求解十几次 RTE 就可以获得媲美 LBL 法的计算精度^[16]。K 分布法在运用时依赖于事先建立的数据库, 因此, 本文利用 LBL 和 HITEMP2010 数据库^[17]提前建立了高温气体吸收系数数据库, 数据库的相关信息如表 1 所示。

颗粒物性采用 Mie 理论进行计算, Mie 理论计算结果是 Maxwell 方程的远场解, 适用于均质球形粒子。在本程序中, 借鉴 K 分布的思想将 Mie 理论计算得到的波段结果(吸收系数、散射系数)进行重排, 以便与气体物性进行耦合计算。

引入 K 分布法和 Mie 理论后, 净热流密度表达式变为

$$\nabla \cdot \mathbf{q} = \sum_{i=1}^{12} w_i k_{a,i}(\mathbf{r}) \left[4\pi I_b(\mathbf{r}) - G_i(\mathbf{r}) \right] \quad (11)$$

式中, w_i 为高斯积分点对应的权重。

表 1 气体吸收系数数据库信息

项目	说明
分子种类	H ₂ O、CO ₂ 、CO
温度范围	200-2500 K
压力范围	2×10 ³ -1.5×10 ⁶ Pa
浓度范围	0-1.0
光谱范围	150-9300 cm ⁻¹
数值积分方法	12 点 Gauss 积分

2 算例验证

2.1 气体物性模型

在 N_2 氛围下, 气体总压为 101325 Pa, CO_2 分压力为 0 Pa, 考虑波段范围为 2320-2330 cm^{-1} , 温度分别为 300 K 和 1000 K, 先利用 LBL 计算 CO_2 的光谱吸收系数分布, 再利用 K 分布对光谱吸收系数进行重排。本程序计算结果与参考文献[18]的对比如图 5 所示, 由图可知, 本程序计算结果与参考文献吻合良好, 验证了程序的正确性。

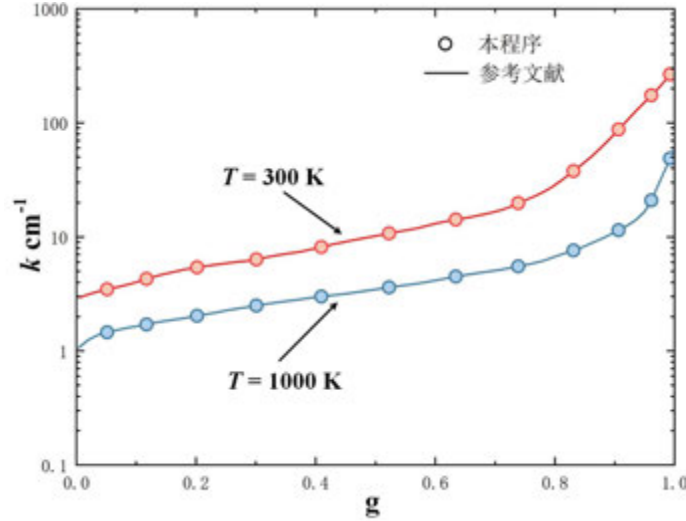


图 5 CO_2 在 2320-2330 cm^{-1} 波段经 K 分布处理后的光谱吸收系数分布

2.2 辐射传输模拟

考虑一个内含参与性介质的圆柱体腔体^[19], 圆柱长 6 m, 直径 2 m, 壁面为黑体, 温度 500 K, 介质内温度分布和网格划分如图 6 所示。首先考虑介质为纯吸收介质, 吸收系数分别为 $k_a=0.1$ 、1.0、10.0 m^{-1} 时, 圆柱壁面投射热流的轴向分布情况, 计算结果如图 7(a)所示。其次考虑介质的散射作用, 总的衰减系数为 1.0 m^{-1} , 散射反照率分别取 $\omega=0.0$ 、0.3、0.5、0.8, 计算得到圆柱壁面投射辐射的轴向分布, 结果如图 7(b)所示。计算时每个单元的追踪光束均取 10^5 。由图 7 可知, 本程序计算结果与参考文献[19,20]吻合良好, 当介质散射反照率较小 ($\omega=0.3$) 时, 仅最大投射辐射处有较明显偏差, 但此时相对误差仅为 3.48%, 验证了程序的正确性。当网格进一步加密时, 本程序计算结果与参考文献的偏差将有望进一步减小。

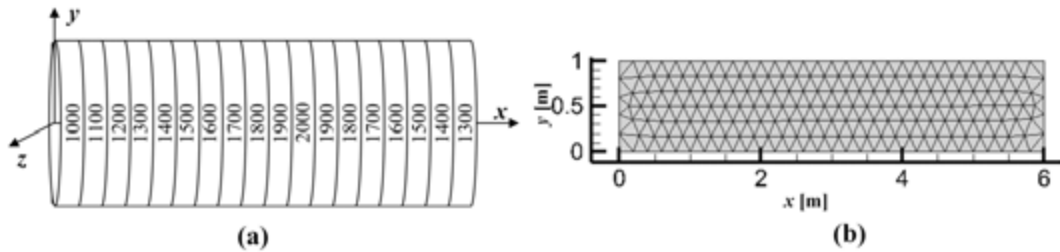


图 6 圆柱体算例: (a)介质温度分布; (b)网格划分 (最大单元尺寸 0.2 m)

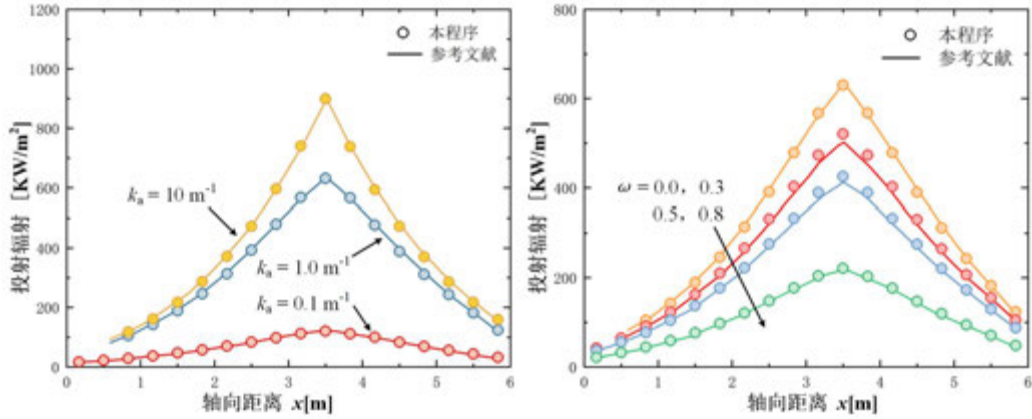


图7 圆柱壁面投射辐射轴向分布：(a)纯吸收介质 (b)吸收、散射介质

2.3 颗粒物性计算

与 Scott^[21]的计算结果进行对比，参数设置如下：粒径 $D=2.0(0.1) \mu\text{m}$ ，计算波长 $\lambda=0.6328(30) \mu\text{m}$ ，介质折射率 $\varepsilon=1.0$ ，复折射率 $m=1.5+0.8i(2.0+0.1i)$ ，粒子浓度 $n=0.1(10)$ 个/ μm^3 。计算结果如表 2 所示，由表 2 可知，本程序与参考文献吻合良好，验证了程序的正确性。

表 2 颗粒物性计算结果对比

参数	单位	测试 1		测试 2	
		Scott	本程序	Scott	本程序
尺寸参数	μm	9.9292	9.9292	0.01047	0.01047
散射截面	μm^2	4.0222	4.0222	6.36×10^{-11}	6.36×10^{-11}
衰减截面	μm^2	7.5053	7.5053	1.10×10^{-5}	1.10×10^{-5}
散射系数	mm^{-1}	402.22	402.22	6.36×10^{-7}	6.36×10^{-7}
衰减系数	mm^{-1}	750.54	750.54	0.11955	0.11955

3 圆柱喷管辐射传输模拟

3.1 不考虑颗粒散射作用

从工程应用的角度出发，本节选取了一个典型的圆柱喷管^[22]进行研究，首先利用 K 分布法与窄谱带法同时计算了喷管中心线上的净热流密度分布，通过二者对比验证了程序的正确性，其次探究了颗粒散射作用对净热流密度分布的影响。

算例参数如下：圆柱喷管半径 $R=0.3 \text{ m}$ ，长 $L=1.2 \text{ m}$ ，除右壁面 ($x=1.2 \text{ m}$) 温度为 300 K 外，其余壁面温度均为 800 K ，壁面发射率为 1.0 ，考虑 CO_2 和 H_2O 两种介质，总压力为 1 atm ，波段范围为 $150\text{-}9300 \text{ cm}^{-1}$ ，介质的温度分布与浓度分布根据式-确定。图 8 分别绘制了介质的温度分布云图以及 H_2O 和 CO_2 的组分浓度云图。

$$T = 800 + 1200 \left(1 - \frac{r}{R} \right) \frac{x}{L} \quad (12)$$

$$\varphi_{\text{CO}_2}(x, r) = 0.04 \left[1 - 3 \left(\frac{x}{L} - 0.5 \right)^2 \right] \left(2.5 - \frac{r}{R} \right) \quad (13)$$

$$\varphi_{\text{H}_2\text{O}}(x, r) = 0.05 \left[1 - 2 \left(\frac{x}{L} - 0.5 \right)^2 \right] \left(2 - \frac{r}{R} \right) \quad (14)$$

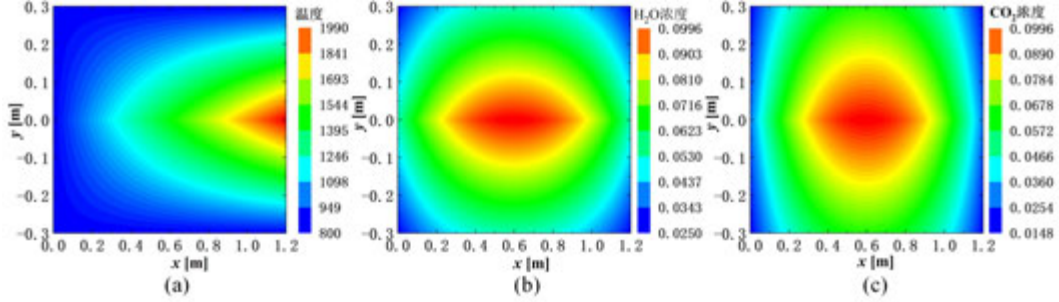


图8 喷管参数分布云图: (a)温度; (b)H₂O 浓度; (c)CO₂ 浓度

分别采用窄谱带法和 K 分布法计算圆柱轴线上的净热流密度分布, 其中, 窄谱带的相关参数设置同文献[22]。由于本算例的温度、压力和总分浓度分布是已知的, 因此原则上不需要进行网格离散。但为了尽可能与文献[22]保持一致, 窄谱带法在计算时仍然划分了网格, 网格划分参数为 $N_r \times N_\phi \times N_z = 15 \times 60 \times 50$, K 分布法不进行网格划分, 追踪光束数取 10^5 , 计算结果如图 9 所示。由图可知, 两种方法计算结果吻合良好, 仅在靠近喷管出口处有较明显偏差。这一方面是因为网格划分引入了离散误差, 另一方面是因为越靠近出口, 温度梯度越大, 微小的位置变化会引起温度的明显改变, 但划分网格时并没有对出口附近区域进行加密, 因此靠近出口的单元的本身辐射和投射辐射计算准确性受到影响, 进而导致净热流密度的计算结果出现偏差。综合来看, 所编译的辐射模块程序准确性与可信度均较高。

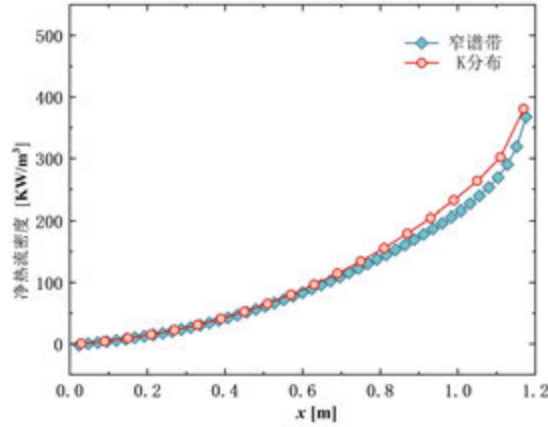


图9 窄谱带法与 K 分布法计算结果对比

3.2 考虑颗粒散射作用

考虑 Al₂O₃ 颗粒, 参数数值参考文献[23], 颗粒直径 $d=10 \mu\text{m}$, 颗粒浓度取 10^{-8} 个/ μm^3 , 复折射率取 $n + ik = 2.5 + 0.015i$ 。需要指出的是, 复折射率是随着波长变化的, 例如, 文献[24]指出, Al₂O₃ 颗粒在 $181\text{-}9300 \text{ cm}^{-1}$ 波段范围内, 折射指数 n 的取值范围为 $1.75\text{-}3.33$, 吸收指数 k 的取值范围为 $0.01\text{-}0.02$ 。为方便起见, 本节将复折射率简化为常值, 计算得到颗粒物性分布如图 10(a)所示, 由图可知, 颗粒的散射作用明显强于吸收作用。采

用上述模型计算轴线上的净热流密度分布,将计算结果与不考虑散射时的进行对比,结果如图 10(b)所示。由图可知,考虑散射时,轴线上的净热流密度减小,这是因为粒子的散射作用导致光束被介质吸收的份额增加,进而使得投射辐射增加,净热流密度减小。绘制出有无散射时投射辐射的分布曲线如图 11(a)所示,验证了上述分析。

最后,讨论了颗粒粒径大小对轴线上净热流密度分布的影响。分别考虑了 0.1、1.0、5.0、10、50 μm 五种粒径,计算结果如图 11(b)所示。由图可知,随着颗粒粒径不断增加,轴线上的净热流密度呈现递减的趋势,这说明粒径越大,颗粒的散射作用越强,介质中各点的投射辐射增加,净热流密度减小。当颗粒直径取 50 μm 时,轴线上各点的热流密度分布趋于均匀且向 0 靠近。此外,注意到颗粒直径小于 1.0 μm 时,计算结果趋于稳定,这是因为此时颗粒的散射作用很小,近乎可以看作纯吸收介质。

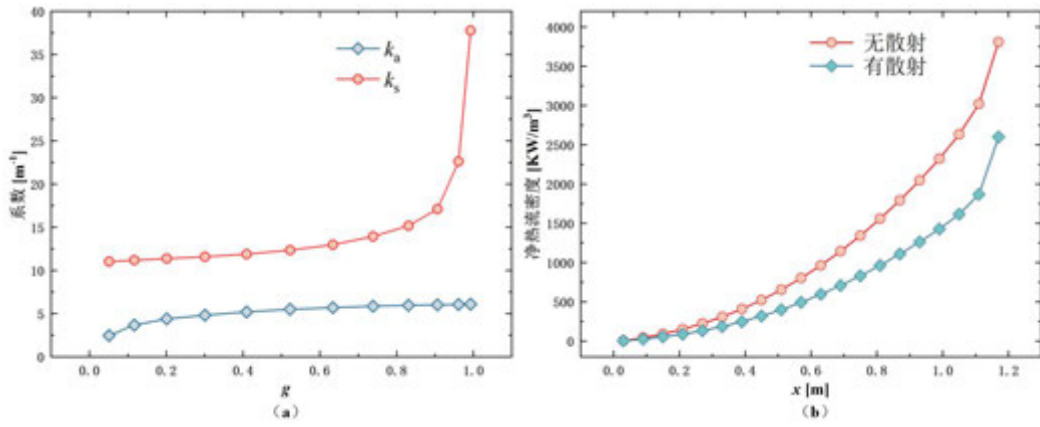


图 10 轴线上参数分布: (a)颗粒物性; (b)有、无散射时的净热流密度

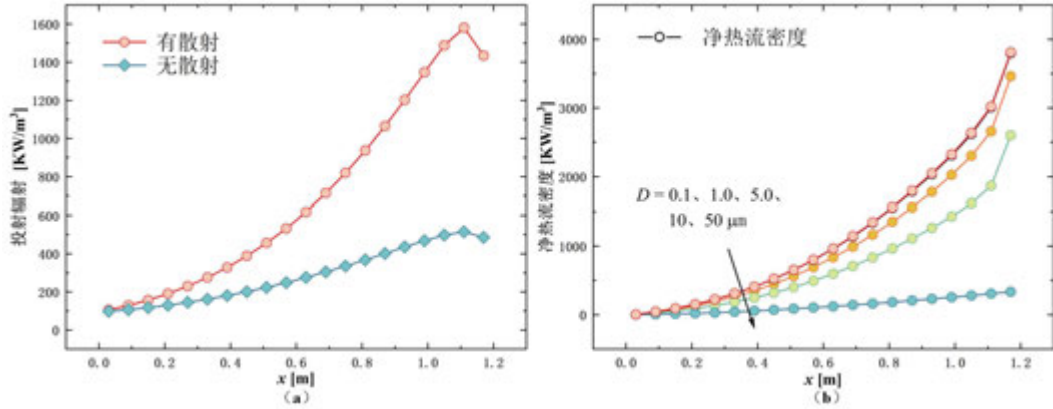


图 11 轴线上参数分布: (a)有、无散射时的投射辐射; (b)不同粒径下的净热流密度

4 结 论

本文基于 LBL 法和 K 分布法气体物性模型、Mie 理论颗粒物性模型以及 NC-RMC 辐射传输模型对一典型圆柱喷管的辐射特性开展了研究,考虑波段为 150-9300 cm^{-1} ,主要结论如下:

(1) 采用 NC-RMC 法,配合轴对称网格快速定位算法,对一典型圆柱喷管进行了辐射传输模拟,验证了程序的正确性;

(2) 相较于不考虑喷管中颗粒散射作用时的计算结果, 考虑颗粒散射作用, 将导致投射辐射增加, 净热流密度减小;

(3) 随着颗粒直径不断增加, 颗粒的散射作用不断增强, 引起喷管轴线上的净热流密度不断减小。当颗粒直径小于 $1\text{ }\mu\text{m}$ 时, 颗粒的散射作用趋于稳定。当颗粒直径为 $50\text{ }\mu\text{m}$ 时, 轴线上各点的热流密度分布趋于均匀且向 0 靠近。

参考文献

- [1] 张海亚. 固体火箭发动机的喷管烧蚀过程数值模拟[D]. 哈尔滨工程大学, 2018.
Zhang Hai-Ya. Numerical Simulation of Nozzle Erosion Process in Solid Rocket Engine[D]. Harbin Engineering University, 2018.
- [2] 赵业辉, 包铁颖, 赵瑜, 等. 固体火箭发动机羽流温度和热流密度测量[J]. 固体火箭技术, 2018,41(03): 289-294.
Zhao Ye-Hui, Bao Yi-Ying, Zhao Yu, et al. Solid rocket motor plume temperature and heat flux Measurements[J]. Journal of Solid Rocket Technology, 2018, 41(03): 289-294.
- [3] 阮立明, 谈和平, 夏新林, 刘林华. 红外辐射特性与传输的数值计算: 计算热辐射学[M]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学出版社, 2006. 269-294
Ruan Li-Ming, Tan He-Ping, Xia Xin-Lin, Liu Lin-Hua. Numerical Calculation of Infrared Radiation Characteristics and Transmission: Computational Radiative Heat Transfer [M]. Harbin: Harbin Institute of Technology Press, 2006: 269-294.
- [4] J., LIU, S., et al. Radiative heat transfer effects in chemically reacting nozzle flows[J]. Journal of Thermophysics & Heat Transfer, 1996.
- [5] JY-YUN, JUNG, M., et al. Radiative Heat Transfer Analysis with Molten Al_2O_3 Dispersion in Solid Rocket Motors[J]. Journal of Spacecraft & Rockets, 2008.
- [6] CROSS P G. Radiative Heat Transfer in Solid Rocket Nozzles[J]. Journal of Spacecraft and Rockets, 2019,57(2): 1-14.
- [7] CAI G, ZHU D, ZHANG X. Coupling Simulation of Heat Transfer and Temperature of the Composite Walled Nozzle of Rocket: IEEE Aerospace Conference[C], 2007.
- [8] 张小英, 向红军. 固体火箭发动机喷管传热与壁面烧蚀的耦合计算分析[J]. 固体火箭技术, 2018,41(04): 414-423.
Zhang Xiao-Ying, Xiang Hong-Jun. Coupled Calculation and Analysis of Heat Transfer and Wall Erosion in Solid Rocket Engine Nozzles[J]. Journal of Solid Rocket Technology, 2018, 41(04): 414-423.
- [9] 唐树威, 刘彤宇. 基于网格的尾喷管辐射计算[J]. 光电技术应用, 2020,35(03): 35-38.
Tang Shu-Wei, Liu Tong-Yu. Grid-based Calculation of Radiation for the Afterbody Nozzle[J]. Optoelectronic Technology Application, 2020, 35(03): 35-38.
- [10] GALTIER M, BLANCO S, CALIOT C, et al. Integral formulation of null-collision Monte Carlo algorithms[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2013,125(1): 57-68.
- [11] CHENG Y, LI H, ZHANG J, et al. Solution of radiative intensity with high directional resolution in heterogeneous participating media and irregular geometries by the null-collision reverse Monte Carlo method[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2020,152: 119475.
- [12] TREGAN J S D J. Convergence issues in derivatives of Monte Carlo null-collision integral formulations: A solution[J]. Journal of Computational Physics, 2020,413(1).
- [13] EYMET V, POITOU D, GALTIER M, et al. Null collision meshless Monte Carlo –Application to the validation of fast radiative transfer solvers embedded in combustion simulators[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2013,127: 57-68.
- [14] ZHU Z, QI H, NIU Z, et al. Accurate estimation of the optical properties of nanofluids for solar energy harvesting using the null-collision forward Monte Carlo method[J]. Renewable Energy, 2023,211: 140-154.
- [15] FELDICK A, GIEGEL J, MODEST M F. A SPECTRALLY ACCURATE 2-D AXISYMMETRIC PHOTON MONTE-CARLO RTE SOLVER FOR HYPERSONIC ENTRY FLOWS: ASME summer heat transfer conference; HT2009[C], 2009.
- [16] 尹雪梅, 刘林华, 李炳熙. 二氧化碳气体辐射特性宽带k分布模型[J]. 热能动力工程, 2008(04): 413-416.
Yin Xue-Mei, Liu Lin-Hua, Li Bing-Xi. Broadband k-distribution Model for Carbon Dioxide Gas Radiative Characteristics. Journal of Thermal Power Engineering, 2008(04): 413-416.

- [17] ROTHMAN L S, GORDON I E, BARBER R J, et al. HITEMP, the high-temperature molecular spectroscopic database[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, 2010,111(15): 2139-2150.
- [18] MODEST M F. Radiative Heat Transfer[J]. international journal of heat & mass transfer, 2013.
- [19] MISHRA S C, HARI KRISHNA C. Analysis of radiative transport in a cylindrical enclosure—An application of the modified discrete ordinate method[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2011,112(6): 1065-1081.
- [20] 张险. 三维圆柱坐标系下DRESOR法的求解[D]. 华中科技大学, 2012.
Zhang Xian. Solving DRESOR Method in Three-dimensional Cylindrical Coordinates[D]. Huazhong University of Science and Technology, 2012.
- [21] Prahl, Scott. Mie scattering calculator[EB/OL]. (2018-9-1) [2023-6-15].
https://omlc.org/calc/mie_calc.html.
- [22] POITOU D, ANDRE F. Comparison of databases for radiative heat transfer calculations in combustion applications with the NBKMcK model[J]. International Journal of Thermal Sciences, 2013,64(Complete): 11-21.
- [23] 穆磊, 贺志宏, 吕哲, 等. 颗粒吸收散射特性的全谱K分布模型, 2012.
Mu Lei, He Zhi-Hong, Lü Zhe, et al. Full-spectrum K-distribution Model for Particle Absorption and Scattering Characteristics, 2012.
- [24] QUERRY M R. Optical Constants[J]. Contractor Report, Sep. 1982 - May 1984 Missouri Univ., Kansas City., 1985.

高温气固两相流传热传质模拟

王博¹, 李丽凤¹, 帅永¹, Apurv Kumar², Wojciech Lipinski³

¹ 哈尔滨工业大学, 能源科学与工程学院, 哈尔滨, 150001

² School of Science, Engineering and Information Technology, Federation University, VIC 3350, Australia

³ Polna 1a, 05-600 Grójec, Poland

(Tel:18745065042, Email:bo.wang@hit.edu.cn)

摘要: 气固两相流反应器由于其均匀的温度分布、高传热传质速率、高化学反应速率被广泛应用于包括太阳能热化学在内的多种场景。其中, 高温太阳能热化学颗粒反应器的流态尤为复杂, 常常包括从堆积床到鼓泡床到高速流化床多种流态, 使研究反应器中流动、传热传质、辐射和化学反应及其困难。本研究建立了一个适用于多种流态的流体力学数值模型, 通过耦合传热传质、辐射和化学反应能够系统地描述太阳能热化学反应器的多种工作状态。该模型得到了实验数据的初步验证。

关键词: 辐射; 流化床; 传热传质; 数值模拟; 太阳能热化学

0 前言

太阳能热化学技术利用高温聚光太阳能驱动重整[1]、裂解[2]、气化[3]、热化学循环[4]等多种化工过程以生产零碳燃料, 提升化石能源及生物质品质, 实现碳捕集和储存太阳能。太阳能热化学反应器的一种典型设计是依靠流态化的反应物颗粒提高传热传质和化学反应速率。Wang et al. 设计了一个新型太阳能热化学反应器依靠聚光太阳能实现铁锰复合氧化物颗粒的热还原[5]。该反应器采用了复合抛物面聚光器(CPC)以集中入射辐射, 减少泄漏损失, 并增加辐射通量分布的均匀性[6]。Wang et al. 采用 Kunii-Levenspiel 模型[5, 7]对在流化床模式下运行的反应器的热性能进行了数值评估。尽管该模型能够简要预测反应器性能, 但其基于经验公式的内在特性使其难以从本质上描述高温气固两相反应流体。另外, 出于对传热传质和化学反应的灵活控制的需求, 该反应器流化状态会在从堆积床到高速流化床的广阔区间内变化。传统的模型难以模拟若干种流动特性迥然不同的流态, 遑论其变化过程中复杂的非典型中间流态。与复杂流动相伴的是更为复杂的传热传质、辐射和化学反应。

本研究建立了一个瞬态三维流体力学数值模型以准确描述高温太阳能热化学反应器中铁锰复合氧化物颗粒的还原反应。该模型基于 Euler-Euler 方法耦合求解了气固两相流中的流动、传热传质、辐射以及化学反应。对于不同流态的数值模拟结果得到了实验的部分验证。

1 实验装置

实验装置如图 1 所示。太阳能模拟器被用于加热太阳能热化学反应器。太阳能模拟器能够在焦平面直径 60 mm 的圆形范围内提供 10.6 kW 辐射能, 辐照密度峰值为 9.5 MW/m²。太阳能模拟器共有 18 个辐射模块, 在本实验中用到其中 4 个辐射模块。实验中, 每隔 15 分钟开启一个辐射模块以防止太阳能反应器升温过快导致应力过大而损坏。实验采用氩气作为载气, 其流速由高精度气体流量计控制, 气固反应中产生的氧气由气相质谱仪进行检测。太阳能反应器前辐射版和复合式抛物面聚光镜受冷却

水持续冷却。太阳能反应器由 K 型和 B 型热电偶测量，测量点位如图 2 所示。

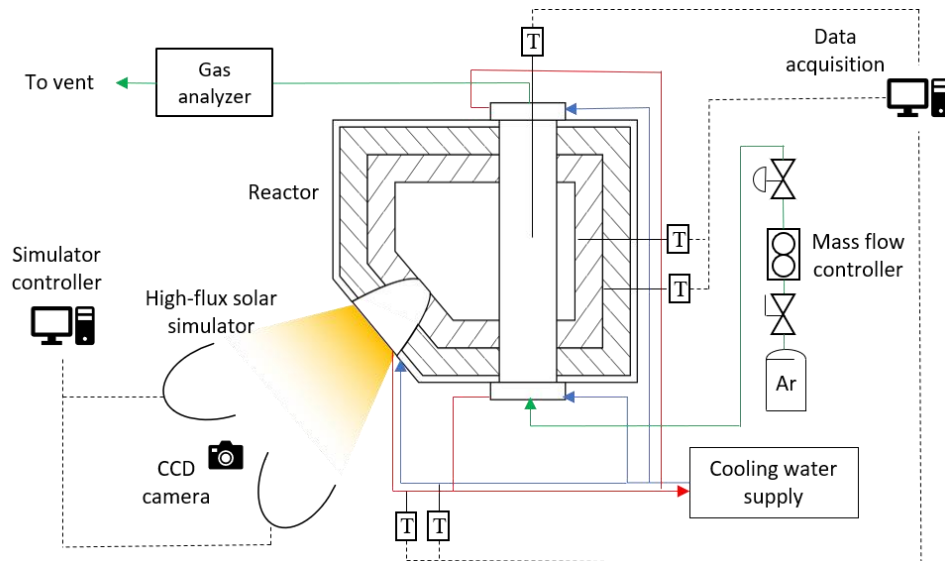


图 1 Experimental setup consisting of the reactor, the high-flux solar simulator (HFSS), the gas supply and analysis system, the water-cooling system, and the data acquisition system.

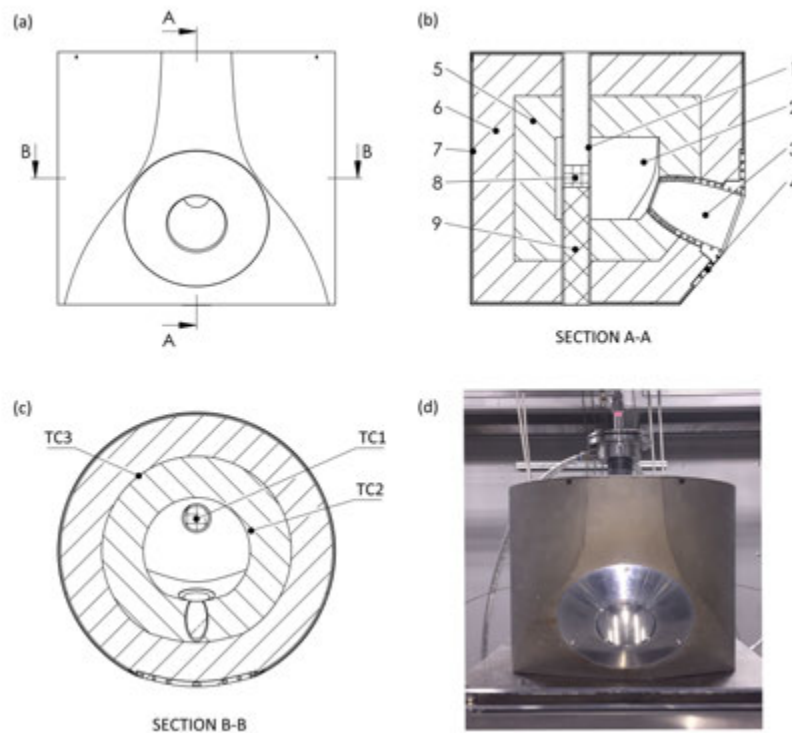


图 2 Schematic of the solar thermochemical reactor: (a) main front view, (b) left section view, (c) top section view, and (d) a photograph of the manufactured reactor. The main components of the reactor are annotated in (b): #1 reaction tube, #2 cavity, #3 CPC, #4 front plate, #5

ZAL-15 insulation, #6 MICROSIL insulation, #7 mantle, #8 packed Fe67 particles, #9 packed Al2O3 particles. The locations of thermocouples are shown in (c).

2 数值模型

由于问题的复杂性，该数值模型被分为三个子模型。在本文中，我们将首先介绍传导、对流子模型。该子模型基于局部非平衡状态假设，气态、固态两个相都由其各自的能量和动量守恒方程描述。通过界面能量和动量传递的闭合方程将这些方程耦合在一起。其次，我们建立了一个反应动力学模型用于模拟铁锰复合氧化物热还原异相反应。从模型计算得出的反应速率决定了界面质量传输速率。第三，我们构建了一个辐射模型，用于计算控制固相能量守恒方程中的辐射通量项。同时还介绍了初始和边界条件以及解决方法。

在该数值模型中，铁锰复合氧化物颗粒被假设为单分散圆形颗粒，气体近似为透明理想气体。反应器腔体近似为灰体漫反射表面。计算中忽略腔体内部的对流换热[7]。

控制方程如表 1 所示。气相和固相内部的闭合方程如表 2 所示。气固两相间的闭合方程如表 3 所示。反应动力学模型如表 4 所示。辐射模型和初始和边界条件在本文中省略。

表 1 控制方程

质量守恒对相 q ($q = g, s$)

$$\frac{\partial(\varepsilon_q \rho_q)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_q \rho_q \vec{u}_q) = \Gamma_q$$

组分守恒对相 q ($q = g, s$)

$$\frac{\partial(\varepsilon_q \rho_q \omega_{q,c})}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_q \rho_q \vec{u}_q \omega_{q,c}) = -\nabla \cdot \vec{j}_{q,c} + \Gamma_{q,c}$$

动量守恒对相 g

$$\frac{\partial(\varepsilon_g \rho_g \vec{u}_g)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_g \rho_g \vec{u}_g \vec{u}_g) = -\varepsilon_g \nabla p - \varepsilon_g \nabla \cdot \vec{\tau}_g + \varepsilon_g \rho_g \vec{g} + \vec{M}_g^T + \vec{M}_g^\Gamma$$

能量守恒对气相 g

$$\frac{\partial(\varepsilon_g \rho_g h_g)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_g \rho_g \vec{u}_g h_g) = -\nabla \cdot \vec{q}_{g,cond} + \varepsilon_g \frac{Dp}{Dt} - \varepsilon_g \vec{\tau}_g : \nabla \vec{u}_g + E_g^T + E_g^\Gamma$$

能量守恒对固相 s

$$\frac{\partial(\varepsilon_s \rho_s h_s)}{\partial t} = -\nabla \cdot \vec{q}_{s,cond} - \nabla \cdot \vec{q}_{s,rad} + E_s^T + E_s^\Gamma$$

能量守恒对于不参加反应的固相组分

$$\frac{\partial(\varepsilon \rho h)}{\partial t} = -\nabla \cdot \vec{q}_{cond}$$

表 2 气相和固相内部的闭合方程

组分扩散

$$\vec{\mathbf{j}}_{q,c} = -\rho_{q,c} D \nabla \omega_{q,c}$$

气相应力

$$\bar{\bar{\boldsymbol{\tau}}}_{\text{g}} = -\mu_{\text{g}} \left(\nabla \bar{\mathbf{u}}_{\text{g}} + \left(\nabla \bar{\mathbf{u}}_{\text{g}} \right)^{\text{T}} \right) - \left(\lambda_{\text{g}} - \frac{2}{3} \mu_{\text{g}} \right) \left(\nabla \cdot \bar{\mathbf{u}}_{\text{g}} \right) \bar{\bar{\mathbf{I}}}$$

热传导

$$\vec{\mathbf{q}}_{q,\text{cond}} = -k_{q,\text{cond}}^{\text{eff}} \nabla T_q$$

气固两相流中的等效热导率

$$k_{\text{g}}^{\text{eff}} = \left(1 - \sqrt{1 - \varepsilon_{\text{g}}} \right) k_{\text{g}}$$

$$k_{\text{s}}^{\text{eff}} = k_{\text{g}} \sqrt{\varepsilon_{\text{s}}} \left[\phi A + (1 - \phi) \Lambda \right]$$

$$\Lambda = \frac{2}{1 - B / A} \left[\frac{A - 1}{(1 - B / A)^2} \frac{B}{A} \ln \left(\frac{A}{B} \right) - \frac{B - 1}{1 - B / A} - \frac{B + 1}{2} \right]$$

where $A = k_{\text{s}} / k_{\text{g}}$, $B = 1.25 \left(\varepsilon_{\text{s}} / \varepsilon_{\text{g}} \right)^{10/9}$, and $\phi = 7.26 \times 10^{-3}$.

表 3 气固两相之间的闭合方程

气固两相间的质量和组分输运

$$\Gamma_q = R \sum_{c=1}^{N_q} \nu_c M_c$$

$$\Gamma_{q,c} = R \nu_c M_c$$

气固两相间相互作用力

$$\vec{\mathbf{M}}_g^T = \beta (\vec{\mathbf{u}}_s - \vec{\mathbf{u}}_g)$$

$$\beta = \begin{cases} 150 \frac{(1 - \varepsilon_g)^2}{\varepsilon_g} \frac{\mu_g}{d_p^2} + 1.75 (1 - \varepsilon_g) \frac{\rho_g}{d_p} |\vec{\mathbf{u}}_g - \vec{\mathbf{u}}_s| & (\varepsilon_g \leq 0.80) \\ \frac{3}{4} C_d \frac{\rho_g (1 - \varepsilon_g) \varepsilon_g^{-1.65}}{d_p} |\vec{\mathbf{u}}_g - \vec{\mathbf{u}}_s| & (\varepsilon_g > 0.80) \end{cases}$$

$$C_d = \frac{24}{\varepsilon_g \text{Re}_p} \left[1 + \left(\varepsilon_g \text{Re}_p \right)^{0.687} \right]$$

气固两相间由于化学反应造成的动量输运

$$\vec{\mathbf{M}}_g^\Gamma = \Gamma_g \vec{\mathbf{u}}_s$$

气固两相间传热

$$E_g^T = -E_s^T = h_{sg} A_l (T_s - T_g)$$

$$h_{sg} = \frac{k_g \text{Nu}}{d_p}$$

气固两相间由于化学反应造成的能量输运

$$E_q^\Gamma = \sum_{c=1}^{N_{q,\text{prod}}} R \nu_c M_c (h_{\text{avg}} + h_c^f) + \sum_{c=1}^{N_{q,\text{reac}}} R \nu_c M_c (h_c + h_c^f)$$

$$h_{\text{avg}} = \frac{\sum_{c=1}^{N_{\text{reac}}} \nu_c M_c (h_c + h_c^f) + \sum_{c=1}^{N_{\text{prod}}} \nu_c M_c h_c^f}{\sum_{c=1}^{N_{\text{reac}}} \nu_c M_c}$$

无量纲数

$$\text{Re}_p = \frac{\varepsilon_g \rho_g d_p |\vec{u}_g - \vec{u}_s|}{\mu_g}$$

$$\text{Nu} = (7 - 10\varepsilon_g + 5\varepsilon_g^2) \left(1 + 0.7 \text{Re}_s^{0.2} \text{Pr}^{1/3}\right) + (1.33 - 2.4\varepsilon_g + 1.2\varepsilon_g^2) \text{Re}_s^{0.7} \text{Pr}^{1/3}$$

$$\text{Pr} = \frac{c_{p,g} \mu_g}{k_g}$$

表 4 反应动力学模型

反应程度

$$\xi = 1 - \frac{n_{\text{ref}}}{n_{\text{ref}}^0}$$

反应速率

$$\frac{d\xi}{dt} = k(T) f(\xi) h(p)$$

$$R = \frac{\rho_{\text{ref}}}{M_{\text{ref}}} \frac{d\xi}{dt}$$

反应动力学常数

$$k(T) = A_k \exp\left(-\frac{E}{RT}\right)$$

$$\text{where } A_k = \frac{8.85 \times 10^{15} \text{ K s}^{-1}}{\beta} \text{ and } E = 426.13 \text{ kJ mol}^{-1}$$

反应动力学模型

$$f(\xi) = \begin{cases} 85.26 & (0 \leq \xi < 0.05) \\ \frac{3(1-\xi)^{2/3}}{2[1-(1-\xi)^{1/3}]} & (0.05 \leq \xi \leq 1) \end{cases}$$

分压项

$$h(p) = \left(1 - \frac{p_{\text{O}_2}}{p_{\text{O}_2, \text{eq}}}\right)^{25.01}$$

3 模型验证

为了准确稳定地模拟该多物理过程，我们在参与反应的铁锰复合金属氧化物颗粒以及反应管的计算域中构建了结构化六面体网格。其余的计算域，如腔体和绝热层则采用非结构化四面体网格。经过网格敏感度分析，在颗粒-管界面的第一层网格上选择了最小厚度为 0.21 毫米。最大纵横比限制为 1.2。在初始加热阶段时间步长设为 0.1 秒，在化学反应开始发生后时间步长设置为 0.001 秒。在 Monte Carlo

ray-tracing 模型中使用了总共 186 万条光线，以获取腔体表面的通量分布。

反应动力学模型验证时通过比较模型预测值与热重分析实验结果。在惰性气氛下，在热重分析中以不同的升温速率测得的 Fe67 颗粒还原的实验结果[8]与模型预测值如图 1。在不同的升温速率下，模型预测的反应程度在广泛的温度范围内与实验数据取得较高的一致性。

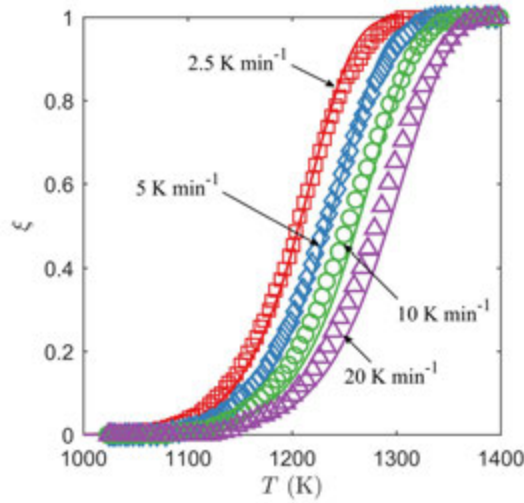


图 3 Reaction extent as a function of temperature with different heating rates. Markers: experimental data; curves: numerical predictions.

气固两相流流体动力学模型的难点是准确模拟颗粒之间的动量传递。本研究采用 frictional kinetic theory of granular flow (KTGF) 模型描述了固相动量传递，通过将预测的起始泡泡的大小和形状与先前文献中的实验观察和数值预测进行比较来进行验证(如图 2)。

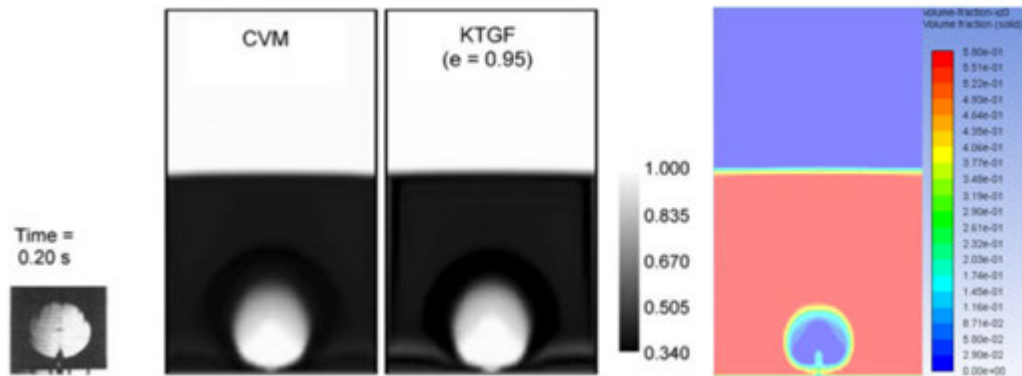


图 4 Single start-up bubble generation by injecting gas into packed particles for 0.2 s. Presented from left to right are a photograph taken in experiment [9], numerical predictions by constant viscosity model (CVM) [10], classical KTGF model [10] and frictional KTGF model (this study).

太阳能模拟器的四个辐射模块被表征并用于加热反应器，详细的操作步骤请[11]。在太阳能模拟器的焦平面上，辐射通量和功率的径向分布如图 3 所示。蒙特卡洛模型的数值预测与实验数据具有良

好的一致性。

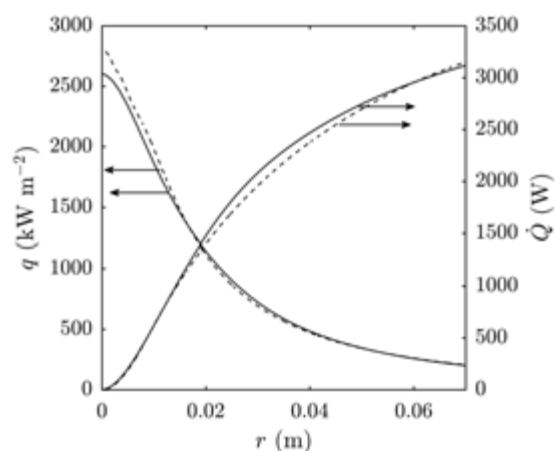


图 5 Mean radiative flux and radiative power as a function of the radial coordinate from the center of the focal plane. Solid curves: experimental data; dashed curves: numerical predictions.

在以上子模型的基础上，我们对流体与传热传质、辐射、化学反应耦合的整体模型进行了验证。首先，实验测得的惰性 Al_2O_3 颗粒填充的反应器不同位置的温升曲线与模拟结果一致性良好，如图 4（a）所示。在反应器的中心发现最大温度差为 79.3 K。具有反应活性的铁锰复合金属氧化物实验和模拟数据如图 4（b）所示。反应器不同位置的温升曲线吻合良好，模型预测的氧气产生峰值有所提前，可能是高估了反应器温度所致。实验中反应器后气路较长导致的气体混合效应也可能导致氧气峰变得低矮并滞后。

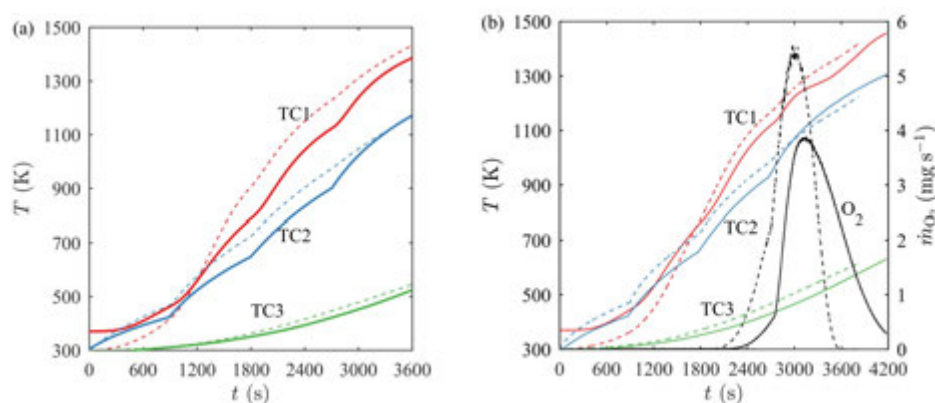


图 6 Temperature evolution in the center of the gas-solid flow (TC1), on the cavity surface (TC2), and between the insulation layers (TC3) for reaction bed with (a) non-reactive Al_2O_3 particles and (b) reactive Fe67 particles on top of Al_2O_3 particles. The mass flow rate of oxygen generated in the reduction reaction is also shown in (b). Solid curves: experimental data; dashed curves: numerical predictions.

4 结论

综上所述，本研究构建了一个瞬态三维流体力学数值模型以探究铁锰复合金属氧化物颗粒在高温

太阳能热化学反应器中的热还原反应。该数值模型通过将基于欧拉法和 kinetic theory of granular flow 的流体力学模型与传热传质、辐射和化学反应动力学模型耦合，系统描述了多种流态下金属氧化物颗粒高温热还原的多物理过程。数值模型的保真度通过详尽的子模型和整体模型实验数据对比得到了部分验证。该数值模型对反应过程设计和太阳能反应器进一步优化具有重要意义。

参考文献

- [1] J.K. Dahl, A.W. Weimer, A. Lewandowski, C. Bingham, F. Bruetsch, A. Steinfeld, Dry reforming of methane using a solar-thermal aerosol flow reactor, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 43(18), 2004, 55489-55495.
- [2] G. Maag, G. Zanganeh, A. Steinfeld, Solar thermal cracking of methane in a particle-flow reactor for the co-production of hydrogen and carbon, *International Journal of Hydrogen Energy*, 34, 2009, 7676-7685.
- [3] J. Martinek, C. Bingham, A.W. Weimer, Computational modeling and on-sun model validation for a multiple tube solar reactor with specularly reflective cavity wall. Part I: Heat transfer model, *Chemical Engineering Science*, 22, 2012, 298-310.
- [4] W. Lipinski, D. Thommen, A. Steinfeld, Unsteady radiative heat transfer within a suspension of ZnO particles undergoing thermal dissociation, *Chemical Engineering Science*, 61, 2019, 63-77.
- [5] B. Wang, L. Li, J.J. Pottas, R. Bader, P.B. Kreider, V.M. Wheeler, W. Lipiński, Thermal model of a solar thermochemical reactor for metal oxide reduction, *Journal of Solar Energy Engineering*, 142, 2020.
- [6] L. Li, B. Wang, J. Pottas, W. Lipiński, Design of a compound parabolic concentrator for a multi-source high-flux solar simulator, *Solar Energy*, 183, 2019, 805-811.
- [7] C.K. Ho, B.D. Iverson, Review of high-temperature central receiver designs for concentrating solar power, *Renewable Sustainable Energy Review*, 29, 2014, 835-846.
- [8] M. Hamidi, A. Bayon, V.M. Wheeler, P. Kreider, M.A. Wallace, T. Tsuzuki, K. Catchpole, A.W. Weimer, Reduction kinetics for large spherical 2:1 iron-manganese oxide redox materials for thermochemical energy storage, *Chemical Engineering Science*, 201, 2019, 74-81.
- [9] J.A.M. Kuipers, A two-fluid microbalance model of fluidized beds, 1990.
- [10] D.J. Patil, M. van Sint Annaland, J.A.M. Kuipers, Critical comparison of hydrodynamic models for gas-solid fluidized beds — Part I: bubbling gas-solid fluidized beds operated with a jet, *Chemical Engineering Science*, 60, 2005, 57-72.
- [11] G. Leveque, R. Bader, W. Lipinski, S. Haussener, Experimental and numerical characterization of a new 45 kWel multisource high-flux solar simulator, *Optics Express*, 24, 2016, A1360-A1373.

考虑多组分复杂结构莱茵衣藻辐射特性的研究

李兴灿¹, 江淼¹, 林丽², 吕成浩¹, 谢博伟²

(1. 东北电力大学能源与动力工程学院, 吉林 吉林 132012)

2. 山东大学能源与动力工程学院, 山东 济南 250061)

(Tel.: 0432-64806281, Email: xingcanli@neepu.edu.cn)

摘要: 本文提出了一种考虑微藻细胞器以及外形的多组分复杂结构细胞模型, 采用 DDA 方法进行理论计算并与实验数据对比验证, 同时与多种简化模型进行了横向比较分析。结果显示多组分复杂结构细胞模型计算精度较高, 其吸收截面和散射截面误差相对于均质球模型和核壳球模型减小了 18% 以上, 散射相函数与实验结果吻合较好。此外, 考虑了连续波长下生长基液的影响时, 亦能降低理论计算误差。

关键词: 辐射特性; 莱茵衣藻; 微结构; 离散偶极子近似法

中图分类号: TK124

文献标识码: A

0 前言

微藻是一种具有广阔前景的生物质能源原材料, 其广泛应用在生物固碳和生物柴油等领域^[1,2]。莱茵衣藻是一种用途广泛且具有典型结构的微藻, 常用于生物固碳和营养副产物的加工生产, 同样也是生物制氢和生物柴油的原料之一^[3,4]。微藻的规模化培养需要光生物反应器, 它是微藻工业化生产的重要设备。微藻的辐射特性主要包括吸收截面、散射截面以及散射相函数。研究微藻细胞的辐射特性将为光生物反应器内输运过程的定量分析和优化提供辐射特性基础数据和理论支持, 同时有助于提高卫星遥感实时监测海洋表层环境的信号识别精度, 降低海洋微生物的信号干扰。

通常, 在理论计算微藻或海洋单细胞生物的辐射特性时会将其简化为单一球形或核壳球, 而未考虑细胞微结构对整体辐射特性的影响, 其造成的误差是不可忽略的。Zhai^[5]等研究了赫氏圆石藻(*Emiliania huxleyi*)的辐射特性, 从微藻细胞的对称和非对称两种形态建立了模型, 基于 DDA 方法计算其辐射特性并进行了对比分析, 结果表明合理的模型构建方式会减小其计算误差。Dong 等^[6]研究了棘刺球形藻的外部棘刺密度以及长度的影响, 横向对比了棘刺模型、均值模型和壳球模型, 结果表明外部结构对辐射特性影响显著。Heng 等^[7]将环形分布的项圈藻属微藻通过投影简化为等效包覆壳球, 微藻的内部模型构建时通常假设细胞结构为固定光学常数, 并根据等效介质理论计算其辐射特性。研究发现该近似方法会随着单体数量和尺寸参数的增加而导致计算结果偏差变大。Hoeniges 等^[8]将团藻建立为大球包裹小球的多球模型, 并将微藻细胞的光学常数设置为 $1.355+0.004i$, 利用叠加 T 矩阵法和蒙特卡洛光线追迹(MCRT)法对模型进行了预测。结果表明, 微藻团聚的数量和体积分数都会影响整体的辐射特性。Bhowmik 等^[9]研究了球形微藻细胞理论计算时的模型优化, 通过等效获得微藻细胞内部组成(例如: 细胞质、叶绿体、细胞核、线粒体和代谢物等)的光学常数。由于单一细胞内部组织的提取极其复杂, 且光学常数难以准确获得, 所以采用该方法构建微藻细胞时与实验值仍会存在一定的偏差。鉴于内部成分光学常数获取比较困难, 现有细胞模型物性输入参数一般都按照经验值设置, 而且大多数微藻模型都简化为球形进行计算, 忽略内部和外部结构的影响, 进而导致辐射特性的理论计算结果与真实值仍存在显著的偏差。因此精确构建考量藻细胞内、外部微结构模型对于提高其辐射特性理论计算精度是至关重要的。

本文主要从莱茵衣藻细胞的内部和外部两个方面分析细胞微结构对其辐射特性的影响。基于微藻微结构提出一种考虑微藻内部细胞器以及外部形态的多组分复杂结构细胞模型。采

用 DDA（离散偶极子近似）方法理论计算求解出该细胞模型的吸收截面、散射截面和散射相函数等辐射特性参数。将理论计算结果与实验数据进行了对比验证，同时与多种简化模型展开了横向比较分析，并考虑了生长基液对所提出模型理论计算结果的影响。

1 结构形态分析与建模

1.1 细胞器以及细胞组分建模

莱茵衣藻结构复杂，外部有鞭毛等结构，内部有叶绿体、细胞核、线粒体、脂质团聚和液泡等组分^[10]。自然培养下的莱茵衣藻常常是蛋形或者椭球形，由于细胞壁的支撑而形状固定从而便于游动(如图 1 (a)-(g))。在本次建模过程中为了接近实际微藻外部形态形状，将莱茵衣藻外形建立为蛋形。在内部结构中，叶绿体为杯状，大致位置与莱茵衣藻细胞下半部分同心(如图 1 (b))。线粒体呈离散状分布，不同线粒体之间会发生粘连情况(如图 1 (c))。莱茵衣藻的鞭毛主要是用于细胞运动。往往形态多变，鞭毛拨水产生推力，从而带动细胞运动。通过对鞭毛的运动分析发现，平均来看鞭毛的运动状态多数处于两侧平直状态(如图 1 (h))。细胞核为较大的团聚状，位于细胞顶部一侧(如图 1 (e))。液泡为多个团聚粘连分布，和细胞核类似，也位于细胞顶部一侧(如图 1 (f))。莱茵衣藻细胞内油脂则呈离散状分布，与细胞壁呈间隔平行分布状态(如图 1 (g))。

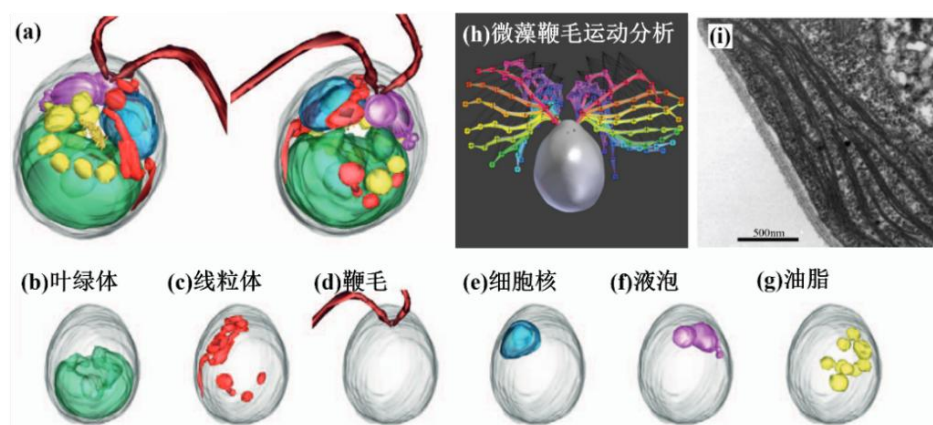


图 1 野生型莱茵衣藻细胞断层图的分割模型以及莱茵衣藻运动分析图解^[10,11]

如上所述，自然状态下的莱茵衣藻叶绿体表面形态凹凸不平，为了表现出叶绿体的形态，需要更加复杂的模型描述其形状。所以本文采用标准差为 0.05 高斯随机球方法对其整体形态进行建模（高斯随机球（Gaussian stochastic sphere）是一种随机统计模型，常常应用在不规则粒子形状建模^[12,13]）。细胞核则采用标准差为 0.1 的高斯随机球。液泡较为离散，适合采用多个高斯组合完成。油脂和线粒体分布离散，可利用随机分布的团聚近似模仿其分布状态，建模过程中会出现团聚粘连情况，但是这也与事实上的分布较为符合。最终模型形态如图 2 所示，其中图 2 (a)和(b)为方便展示内部细胞器，将细胞壁和细胞质省略。整体形态特征如图 2 (c)展示。图 2(d)和(e)分别为均质球模型和核壳球模型。

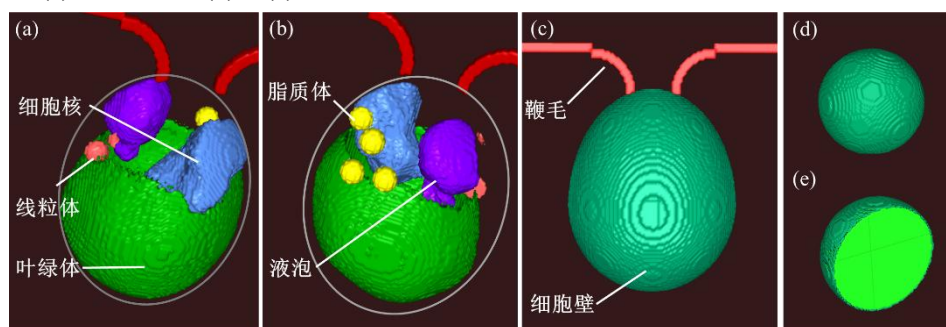


图 2 莱茵衣藻理论计算模型示意图

2 莱茵衣藻细胞模型参数与理论计算方法

2.1 细胞器以及细胞组分建模

表 1 是关于莱茵衣藻的细胞组分的体积比和光学参数统计。表 1 中并没有提供细胞壁的相关参数，这主要是由于透射显微技术的局限性，细胞壁无法被表现出来，但是可以通过测量电镜切片获得其厚度^[14]。如图 1 (i) 所示的莱茵衣藻的电镜图片和比例尺，通过多次测量取平均值得到了细胞壁的平均厚度 $0.115 \mu\text{m}$ ^[11]。微藻的辐射特性和微藻的粒径联系紧密，实验中测得莱茵衣藻在氮自由期的平均粒径为 $4.046 \mu\text{m}$ （如图 4 所示），体积为 $34.68 \mu\text{m}^3$ ，利用各成分体积比例关系进而计算出其绝对值大小。

表 1 莱茵衣藻各组分参数与体积比

组分	多组分复杂结构模型	细胞壁	细胞质	鞭毛	叶绿体	细胞核	液泡
折射指数		图 3（a）	图 3（a）	图 3（a）	图 3（a）	图 3（a）	图 3（a）
吸收指数		0	图 3（b）	0	图 3（b）	0	0
相对体积		19% ^a	39% ^a	无	31.2% ^a	7.88% ^a	2.5% ^a
绝对体积		6.59μm ³	13.53μm ³	无	11.13μm ³	2.73μm ³	0.87μm ³
组分	脂质体	线粒体	均质球模型	均质球	核壳球模型	外壳	内核
折射指数	图 3（a）	图 3（a）		1.40 ^b		1.44 ^b	1.392 ^b
吸收指数	0	0		图 3（b）		0	图 3（b）
相对体积	4.04% ^a	0.344% ^a		100%		16.09%	83.91%
绝对体积	1.40μm ³	0.12μm ³		36.68μm ³		5.58μm ³	29.10μm ³

^a[9], ^b根据 Maxwell-Garnett 混合理论计算

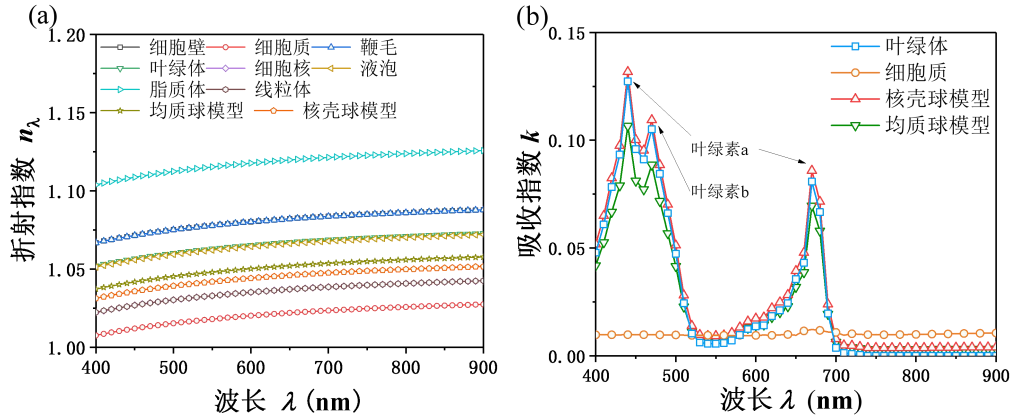


图 3 微藻模型的折射指数和吸收指数

图 3 为微藻模型理论计算的折射指数和吸收指数。折射指数和吸收指数是研究辐射特性的一项重要基础参数。计算莱茵衣藻的辐射特性时，需要同时考虑环境因素和微藻本身的因素。微藻生活在水中，通常认为水的折射率为常数，但是在实际情况下水的折射率是会随着波长的改变而变化的^[15,16]，所以采用了连续波长下水的折射率进行计算。折射指数主要和各细胞器组分有关，虽然通过实验提取并测量连续波长下单个细胞器的折射指数十分困难，但是的仍可以采用随波长变化的相对值进行计算^[17]，以此来获得更加接近真实情况。微藻的吸收主要是由色素主导，确定了色素种类、色素质量分数和水体积分数，可以通过干燥微藻中的色素含量计算得出吸收率。叶绿体的绝对吸收系数 k 则是可以通过式(1)^[9]计算得出的：

$$k_{\lambda} = \frac{\lambda}{4\pi} \rho_{dm} \left(\frac{1-x_o}{x_o} \right) \sum_{i=1}^M E a_{i,\lambda} (\lambda) w_i / w_t \quad (1)$$

上式中 ρ_{dm} 为叶绿体中所含主要色素的密度干物质密度取 1200 kg/m^3 ^[18]，叶绿素 a、叶

绿素 b 和胡萝卜素的干质量分数分别是 55.8 g/kg、27.9 g/kg 和 17.9 g/kg^[9]。x 为在正常状态下水在微藻中占有的体积分数，通常取 0.78，E 则是各个色素的比光谱吸收系数，本次所采用的数据来自^[19]， w_i 为各种色素在微藻细胞中的干重比。 w_l 则是包含色素的叶绿素在微藻细胞中的体积比。

微藻中的蛋白质、油脂和碳水化合物同样对光具有吸收作用。虽然各种细胞器的物质含量比例难以获得，但可以通过微藻整体的有机物含量，利用 Maxwell-Garnett 混合理论计算得出。其中使用的蛋白质、油脂和碳水化合物的吸收指数参数来自于改进透射法的测量结果^[16]。该方法还可用于均质球、核壳球的等效折射指数以及吸收指数的分析计算。Maxwell-Garnett 混合理论计算公式^[20]如下：

$$\frac{\varepsilon - \varepsilon_b}{\varepsilon + 2\varepsilon_b} = \sum_i f_i \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_b}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_b} \quad (2)$$

上式中， $\varepsilon = m_i^2$ 表示模型各混合组分中体积比最高的成分所对应的介电常数； f_i 表示模型各部分结构中微藻的成分所占的体积分数。

2.2 理论计算方法理论

DDA 是一种典型的离散化辐射特性理论计算方法，它可以灵活地处理任意几何形状和组成的散射粒子。DDA 的基本原理是借助大量微小偶极子堆叠表现出所计算粒子结构和形态，利用偶极子相互作用近似的极化作用，通过求解线性方程组得到立方晶格的偶极矩，从而计算出电磁波的散射和吸收的数值方法。本次使用的是由 Maxim A. Yurkin 和 Alfons G. Hoekstra^[21]开发的 ADDA v.1.5.0。

在 DDA 计算中，要求每波长的偶极子数量要大于 10 个，本次理论计算所使用模型参数中偶极子最小为 25 nm。其中 $|m|kd$ 是计算过程中的一个重要参数，ADDA 要求参数 $|m|kd$ 应小于 0.5^[6]， m 为粒子的光学常数， $k = 2\pi/\lambda$ ， d 为立方晶格的大小。本次理论计算中 $|m|kd$ 最大为 0.459。由于散射体并不是对称结构，经过多次验证采用了 $16 \times 8 \times 16$ 的精确度计算了平均取向的结果进行收敛。

其中吸收截面为： C_{abs} 、衰减截面为： C_{ext} 、散射截面为： C_{sca} ，公式如下^[21]：

$$C_{abs} = 4\pi k \sum_i \int_{V_i} d^3 r' \text{Im}(\chi(r')) |E(r')| \quad (3)$$

$$C_{ext} = 4\pi k \sum_i \int_{V_i} d^3 r' \text{Im} \left(\chi(r') E(r') \cdot [E^{inc}(r')]^* \right) \quad (4)$$

$$C_{sca} = C_{ext} - C_{abs} \quad (5)$$

上式中 $E_{inc}(r)$ 为入射电场， $E(r)$ 为总电场， $\chi(r)$ 则为 r 处介质磁化率。通常 ADDA 所计算出的结果是未归一化的需要将相函数归一化以满足下式：

$$\frac{1}{4\pi} \int_0^\pi S_{11}(\theta) \sin \theta d\theta = 1 \quad (6)$$

3 莱茵衣藻辐射特性的实验测量

图 4 为莱茵衣藻的显微照片和细胞粒径分布，由此得到的平均直径为 4.046 μm 。微藻粒径分布是实验理论计算结果进行对比验证的极其重要的一个参数。在本次针对莱茵衣藻的实验中，使用的是 CCD 相机的光学生物显微镜（型号 UB203i）利用计数框计数得到莱茵衣藻的数密度（计数框大小为 $20 \times 20 \text{ mm}$ ，样本体积 100 μl ）。其中莱茵衣藻的大小通过圆形拟合直径或椭圆拟合长短轴分布使用 Image View 软件分析得到的。

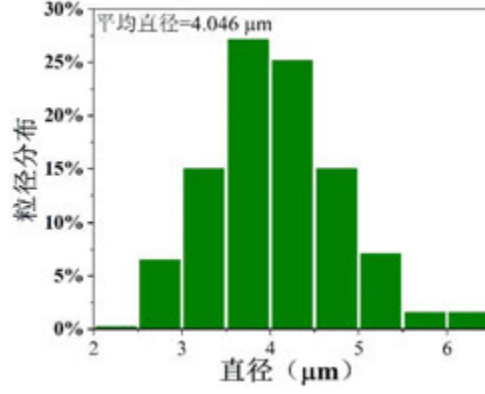


图 4 微藻粒径分布示意图

关于微藻辐射特性的测量方法有多种,为了充分消除介质间的反射误差作用,得到更加精确的结果,本文采用改进的透射法测量微藻悬浮液的衰减截面和吸收截面以及散射相函数^[22]。图 5 为微藻混悬液辐射传输示意图,其中样本为莱茵衣藻的悬浮液,取样到容器中进行测量, β 代表衰减系数,而 α 代表吸收系数,其传输方程如下:

$$\beta = -\frac{1}{L_2} \ln \left(\frac{-T_1 T_3 + \sqrt{T_1^2 T_3^2 + 4 T_{\text{EXP}}^2 R_3 R_1'}}{2 T_{\text{EXP}} R_3 R_1'} \right) \quad (7)$$

$$\alpha = -\frac{1}{L_2} \ln \left(\frac{-T_1 T_3 + \sqrt{T_1^2 T_3^2 + 4 T_{\text{h,EXP}}^2 R_3 R_1'}}{2 T_{\text{h,EXP}} R_3 R_1'} \right) \quad (8)$$

吸收截面根据式 (9) 得到的,其中参数 N 是微藻数量密度,吸收截面 C_{abs} 和散射截面 C_{sca} 计算如下式:

$$C_{\text{abs,Exp}} = \frac{\alpha}{N}, \quad C_{\text{sca,Exp}} = \frac{\beta - \alpha}{N} \quad (9)$$

$$T_1 = \frac{\tau_{01} \tau_{12} e^{-\alpha_1 L_1}}{1 - \rho_{10} \rho_{12} e^{-2\alpha_1 L_1}}, \quad T_3 = \frac{\tau_{23} \tau_{30} e^{-\alpha_3 L_3}}{1 - \rho_{32} \rho_{30} e^{-2\alpha_3 L_3}} \quad (10)$$

$$R_1' = \rho_{21} + \frac{\tau_{21} \tau_{12} \rho_{10} e^{-2\alpha_1 L_1}}{1 - \rho_{12} \rho_{10} e^{-2\alpha_1 L_1}}, \quad R_3 = \rho_{23} + \frac{\tau_{23} \tau_{32} \rho_{30} e^{-2\alpha_3 L_3}}{1 - \rho_{32} \rho_{30} e^{-2\alpha_3 L_3}} \quad (11)$$

上式中, ρ_{ij} 和 τ_{ij} 表示两个相邻介质 i 和 j 之间界面的反射率和透射率。 L_1 和 L_3 分别是入射玻璃 (图 5 中第 1 层) 和出射玻璃 (图 5 中第 3 层) 介质的厚度, α_1 和 α_3 是相应的吸收系数。 τ_{ij} 和 ρ_{ij} 分别为相邻介质 i 和 j 界面处的透射率和反射率。

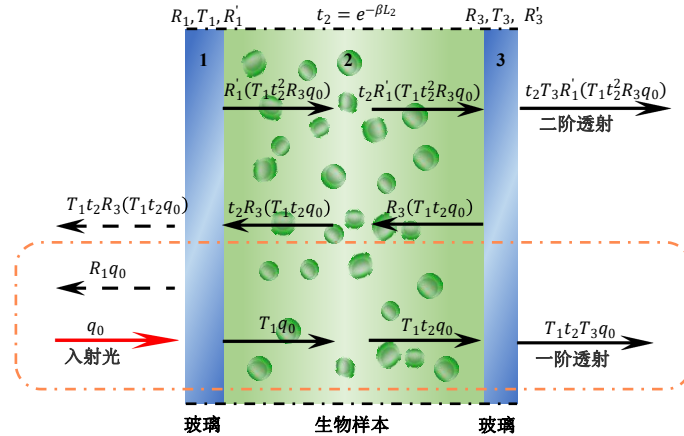


图 5 微藻混悬液辐射传输示意图

其中法向-半球透射率实验测量，利用积分球（RTC-060-IG, Labsphere, USA）和基于锁相放大器和单色仪的测量系统（Omni-DR830-SDU，北京卓立汉光仪器有限公司）测定的。法向-法向透射率是通过光谱椭偏仪（RC2-DI, J. A. Woollam, USA）所测试得出。微藻稀释液容器玻璃的厚度为 1630 μm ，光程为 9800 μm 。散射相函数取波长在 515 nm 处，角度范围为 0.1-150°，是由多角度偏振光散射仪（LISST-VSF, Sequoia Scientific, USA）测量。

4 结果和分析

图 6 为在 400-900 nm 波长下莱茵衣藻多组分复杂结构模型、核壳球模型和均质球模型的辐射特性理论计算结果，并与实验数据进行了对比验证。图 6 (a) 为多种莱茵衣藻模型吸收截面随波长的变化，结果显示多组分复杂结构模型与实验结果吻合良好，曲线峰值和谷值基本一致。如图所示，多组分复杂结构模型、核壳球模型和均质球模型计算结果的吸收峰都集中在 450 nm 和 670 nm 附近，第一个吸收峰较宽，主要由叶绿素 a、叶绿素 b 和胡萝卜素共同作用，第二个吸收峰主要是由叶绿素 a 决定^[19,23]。在 700 nm 后色素影响基本消失，取而代之的是脂质、蛋白质和碳水化合物的吸收。经统计多组分复杂结构模型的吸收截面与实验平均相对误差为 6.49%，核壳球误差为 24.76%，而均质球误差最大为 38.22%。均质球第一个吸收峰和波谷差别较大，而核壳球在波峰位置差别明显，多组分复杂模型则偏差较小。这主要是由于多组分复杂模型考虑了叶绿体的具体位置和形态，将主要的叶绿素集中在模型中的叶绿体中，其结构更加接近于细胞结构实际分布。

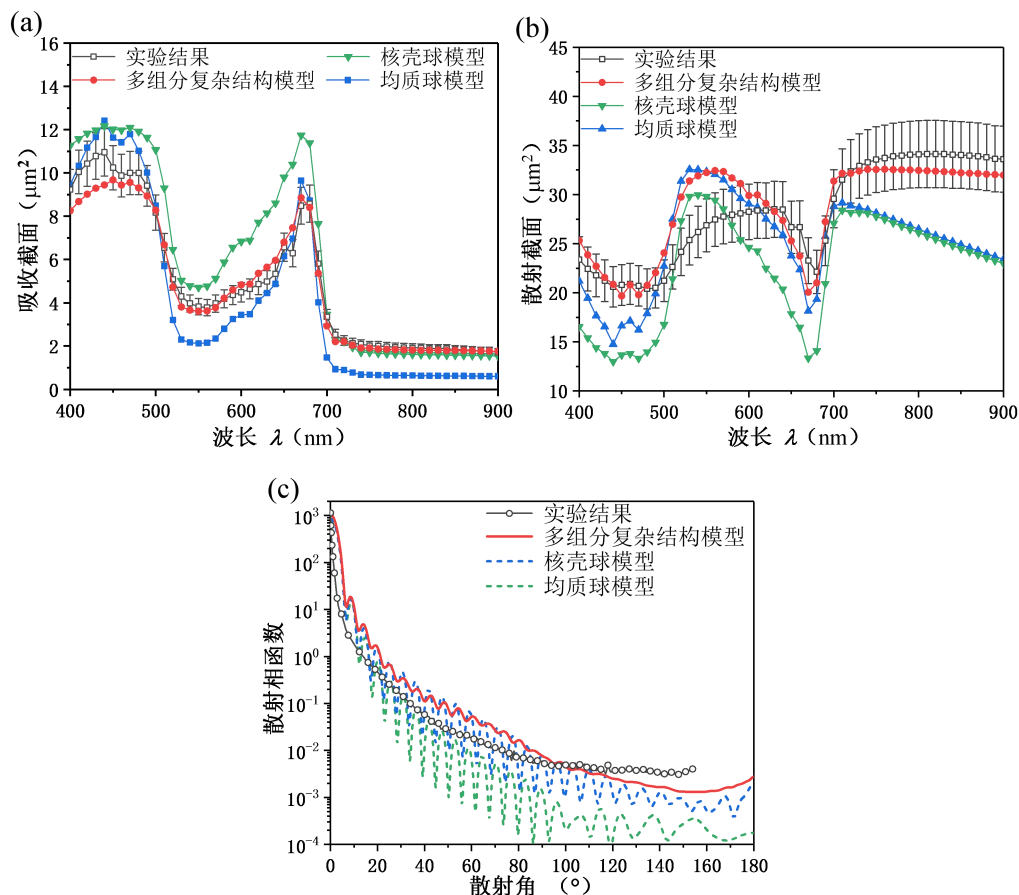


图 6 多种莱茵衣藻模型辐射特性的理论计算结果与实验结果

图 6 (b) 所示为多种莱茵衣藻模型散射截面随波长的变化，波谷值集中在 450 nm 和 680 nm 左右。结果显示，多组分复杂结构模型在 400-500 nm 波段和 570-750 nm 波段与实验误

差保持在 10%以内, 总体平均相对误差为 7.26%。核壳球模型平均相对误差为 22.95%, 而均质球模型则为 16.94%。在 500-600 nm 波段多组分复杂结构模型与实验结果出现偏差, 主要因为微藻模型相对于实际微藻的整体分布趋向于模块化, 从而导致组分间折射指数差异过大, 组分间发生电磁散射干涉, 进而部分波段散射较高。多组分复杂结构模型因为全面考虑组分的影响, 降低了大体积参数组分的干涉导致的偏差。在 700-900 nm 波长范围内, 水相对于微藻培养基的折射指数变化较大, 从而引起相对折射指数下降加快, 最终导致 700 nm 后理论计算数值急速下降。

图 6 (c) 为多种莱茵衣藻模型散射相函数随散射角度增加的变化。从图中可看出, 由于微粒干涉作用导致均质球振荡最大, 其次是核壳球模型, 多组分复杂结构模型随着散射角的增加逐渐趋于平缓。由于微藻粒径远大于波长, 散射相函数具有较强的前向散射。综合对比三种模型来看, 在 0-10° 之间由于三种模型采用同样的基础参数而几近重合, 但都发生了理论计算中小粒径普遍出现的振荡现象。随着散射角的增加多组分复杂结构模型在 60° 以后共振逐渐消失, 相对于均值模型和核壳球模型来说, 考虑到实际形状的多组分复杂结构模型更加接近实验的散射相函数分布, 在 45° 以后几乎摆脱了共振的影响曲线更加平滑, 与实验结果吻合较好。在 70° 以后, 多组分复杂结构模型逐渐逼近实验结果曲线, 在 135° 以后, 开始变为水平然后逐渐开始上翘, 到 180° 时达到极值。实验结果在 150° 以后实验的值消失, 这是由于测量仪器限制所导致的, 不能完全测得全部角度的相函数数值。

4 结 论

本文以莱茵衣藻为例, 提出了一种考虑微藻细胞器以及外形的多组分复杂结构细胞模型, 采用 DDA 方法进行理论计算与实验结果对比验证, 并同时与多种简化模型展开了横向比较分析。本文计算过程中充分考虑了微藻生长环境对模型理论计算的影响。所使用的输入参数为连续波长下的折射指数和吸收指数, 其辐射特性计算结果精度远高于选用固定值作为光学常数的微藻模型。结果显示相对于均质球模型和核壳球模型, 多组分复杂微结构模型充分考虑到了实际微藻的组分微结构分布, 消除了模型中的大散射体所造成强散射误差, 使模型更加均衡。多组分复杂结构细胞模型散射截面相比于均质球模型和核壳球模型, 精确度分别提高了 9.68%和 15.69%。此外, 基础参数输入一致的前提下, 多组分微结构模型比均质球模型和核壳球模型的吸收截面精确度提高了 31.73%和 18.27%。精确的建模使多组分复杂结构细胞模型散射相函数与实验结果更加吻合。本文为细胞等典型颗粒的建模提供了一种新的建模思路, 为其高精度理论计算提供了数据和理论参考。

参考文献

- [1] Field C B, Behrenfeld M J, Randerson J T, et al. Primary production of the biosphere: integrating terrestrial and oceanic components[J]. Science (New York, N.Y.), 1998, 281(5374): 237–240.
- [2] Al-Qasbi M, Raut N, Talebi S, et al. A review of effect of light on microalgae growth[C]//Proceedings of the world congress on engineering. 2012, 1(2): 1–7.
- [3] Cakmak T, Angun P, Demiray Y E, et al. Differential effects of nitrogen and sulfur deprivation on growth and biodiesel feedstock production of *Chlamydomonas reinhardtii*[J]. Biotechnology and Bioengineering, 2012, 109(8): 1947–1957.
- [4] Huang L, Yu L, Li Z, et al. Microalgal plastidial lysophosphatidic acid acyltransferase interacts with upstream glycerol-3-phosphate acyltransferase and defines its substrate selectivity via the two transmembrane domains[J]. Algal Research, 2020, 45: 101758.
- [5] Zhai P-W, Hu Y, Trepte C R, et al. Inherent optical properties of the coccolithophore: *Emiliana huxleyi*[J]. Optics express, Optica Publishing Group, 2013, 21(15): 17625–17638.
- [6] Dong J, Zhao J M, Liu L H. Effect of spine-like surface structures on the radiative properties of microorganism[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2016, 173: 49–64.
- [7] Heng R-L, Sy K C, Pilon L. Absorption and scattering by bispheres, quadspheres, and circular rings of spheres and their equivalent coated spheres[J]. JOSA A, Optica Publishing Group, 2015, 32(1): 46–60.
- [8] Hoeniges J, Bhowmik A, Yalçın R A, et al. Light absorption by Volvocaceae colonies consisting of equidistant optically soft photosynthetic cells in a transparent spherical extracellular matrix[J]. Algal Research, 2023, 72: 103082.
- [9] Bhowmik A, Pilon L. Can spherical eukaryotic microalgae cells be treated as optically homogeneous?[J]. JOSA A, Optica Publishing Group, 2016, 33(8): 1495–1503.
- [10] Hummel E, Guttman P, Werner S, et al. 3D Ultrastructural Organization of Whole *Chlamydomonas reinhardtii* Cells Studied by Nanoscale Soft X-Ray Tomography[J]. Subramanyam R. PLoS ONE, 2012, 7(12): e53293.
- [11] Biere N, Ghaffar M, Doebbe A, et al. Heuristic modeling and 3D stereoscopic visualization of a *Chlamydomonas reinhardtii* cell[J]. Journal of integrative bioinformatics, De Gruyter, 2018, 15(2): 20180003.
- [12] 马春阳, 赵军明, 刘林华, et al. 考虑细胞形态的小球藻光散射特性模拟[J]. 工程热物理学报, 2015, 36(11): 2437–2440.
- [13] Muinonen K, Zubko E, Tyynelä J, et al. Light scattering by Gaussian random particles with discrete-dipole approximation[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2007, 106(1–3): 360–377.
- [14] Ota S, Oshima K, Yamazaki T, et al. Highly efficient lipid production in the green alga *Parachlorella kessleri*: draft genome and transcriptome endorsed by whole-cell 3D ultrastructure[J]. Biotechnology for Biofuels, 2016, 9(1): 13.
- [15] Segelstein D J. The complex refractive index of water[D]. University of Missouri--Kansas City, 1981.
- [16] Li X, Xie B, Wu M, et al. Visible-to-near-infrared optical properties of protein, lipid and carbohydrate in both solid and solution state at room temperature[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2021, 259: 107410.

- [17] Li X, Lv J, Lin L, et al. Prediction of radiative properties of spherical microalgae considering internal heterogeneity and optical constants of various components[J]. Optics Express, Optica Publishing Group, 2023, 31(11): 18026–18038.
- [18] Aas E. Refractive index of phytoplankton derived from its metabolite composition[J]. Journal of Plankton Research, 1996, 18(12): 2223–2249.
- [19] Bidigare R R, Ondrusek M E, Morrow J H, et al. In-vivo absorption properties of algal pigments[C]//SPIE. 1990: 290–302.
- [20] Markel V A. Introduction to the Maxwell Garnett approximation: tutorial[J]. Journal of the Optical Society of America A, 2016, 33(7): 1244.
- [21] Yurkin M A, Hoekstra A G. The discrete dipole approximation: An overview and recent developments[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2007, 106(1–3): 558–589.
- [22] Li X C, Zhao J M, Wang C C, et al. Improved transmission method for measuring the optical extinction coefficient of micro/nano particle suspensions[J]. Applied optics, Optica Publishing Group, 2016, 55(29): 8171–8179.
- [23] Lee E, Heng R-L, Pilon L. Spectral optical properties of selected photosynthetic microalgae producing biofuels[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2013, 114: 122–135.

果蔬物料变化对微波加热温度特性的影响

张乐道^{1*}, 虞启辉², 丁小航² (*代表通讯作者)

(1. 内蒙古科技大学 生命科学与技术学院, 内蒙古包头 014000; 2. 内蒙古科技大学 机械工程学院,
内蒙古包头 014000)

(Tel:15090162365, Email:ldzhang@imust.edu.cn)

摘要: 采用微波加热果蔬物料时会出现因局部温度过高而引起的焦化现象。为解决这一现象, 本文建立介电特性随温度变化的电磁-热传导耦合模型, 通过实验验证了模型的正确性, 研究了果蔬介电特性和尺寸改变对物料内温度分布和温度均匀性的影响。结果表明, 当形状为正方体、球体时, 介电特性值较大的物料更容易在偏离物料中心处、中心处形成高温聚集区; 若尺寸相同, 则介电特性越小的物料温度均匀性越高; 为解决局部温度过高的问题提供依据。

关键词: 介电特性; 物料尺寸; 温度分布; 温度均匀性; 微波

0 前言

果蔬是我国种植业中仅次于粮食的第二大农作物。果蔬产品含水量高, 不宜存储, 我国的果蔬采后损失高达 25~30%, 而发达地区的产后损失仅为 1.7%~5%, 还有很大的提升空间。干燥是果蔬行业减损的首选方式。

微波干燥具有加热效率高、干燥时间短等优点, 已有应用于果蔬采后处理中的研究。冀德富^[1]等人采用阴干法、晒干法、50 °C烘箱干燥法和微波干燥法这四种方法干燥玉米须, 发现微波干燥时间最短且黄酮提取率最高。沈伟^[2]等人探究了热风干燥、远红外干燥和微波干燥这三种方式对芒果果皮理化特性的影响, 对比研究了干燥速率和果皮营养物质含量, 发现, 这三种干燥方式中, 微波干燥效率最高且总多酚含量较多。

然而在微波干燥过程中, 普遍存在局部温度过高、导致物料焦化的现象, 因焦化现象至今未被有效的解决^[3], 极大地限制了微波技术在果蔬干燥行业的应用。针对这一现象的研究, 目前主要以实验居多, 在实验的基础上, 进行综合分析得出最优操作条件, 但并未找到微波加热不均匀问题的本质、不能从根本上解决微波加热不均匀的问题。沈素晴^[4]等人采用微波干燥青香蕉, 研究了加载不同强度微波和不同间歇比微波时青香蕉的加热特性, 发现, 调节微波功率和微波的间歇比可避免青香蕉的焦糊现象。Wang^[5]等以胡萝卜为原料, 研究了微波干燥过程中的温度均匀性。在他们的研究中, 采用红外测温方式测量物料温度, 研究了微波干燥过程中胡萝卜的温度分布。罗归一^[6]团队采用微波干燥土豆片, 通过控制微波加载功率的方式, 控制干燥曲线, 发现可变功率的控温方式更节能且温度均匀性更好。

为了能从理论上认识并且控制微波加热过程, 越来越多的学者依据微波加热时的物

¹ 基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金项目 (52006109)

理过程,采用多物理场耦合的方式对微波加热过程进行研^[7,8]。张柯^[9]等人利用 COMSOL 软件建立了电磁-热传导耦合模型,模拟微波加热马铃薯的过程,通过监测特征点的温度变化,与实验温度值做对照,发现了能提高实验效率的仿真模型。Zhang 和 Datta^[10,11]建立非线性的电磁-热传导耦合模型模拟微波加热物料的过程,发现物料吸收的微波能会随着体积的增大而增加,但是当物料的体积过于小时,这种趋势会发生局部中断现象。KNOERZER 等人^[12]在研究微波干燥过程中建立了不考虑水分损失的传热方程,由该方程可知,介电特性、热性质(热导率和比热容)、谐振腔的参数(腔体大小和微波功率等)和物料的物理特性(形状、大小、密度和位置等)均能影响微波干燥的均匀性。

本文建立介电特性随温度变化的电磁-热传导耦合模型模拟微波加热果蔬的过程,考虑采用微波加热果蔬时,果蔬物料种类会随着季节变化,果蔬大小会随着生产需求变化,研究了果蔬介电特性改变和尺寸改变对物料内温度分布和温度均匀性的影响。以期为解决微波加热果蔬的温度不均匀问题提供新思路。

1 物理模型

微波炉是一个金属箱,通过在 TE10 模式下工作的矩形端口连接到 2.45 GHz 的微波源。微波炉底部有一个圆柱形玻璃板,玻璃板中心上面放着一个球形果蔬物料。本文用 COMSOL 软件对微波炉、波导、果蔬物料和玻璃板进行建模,其模型如图 1 所示,外框即为微波炉壁。

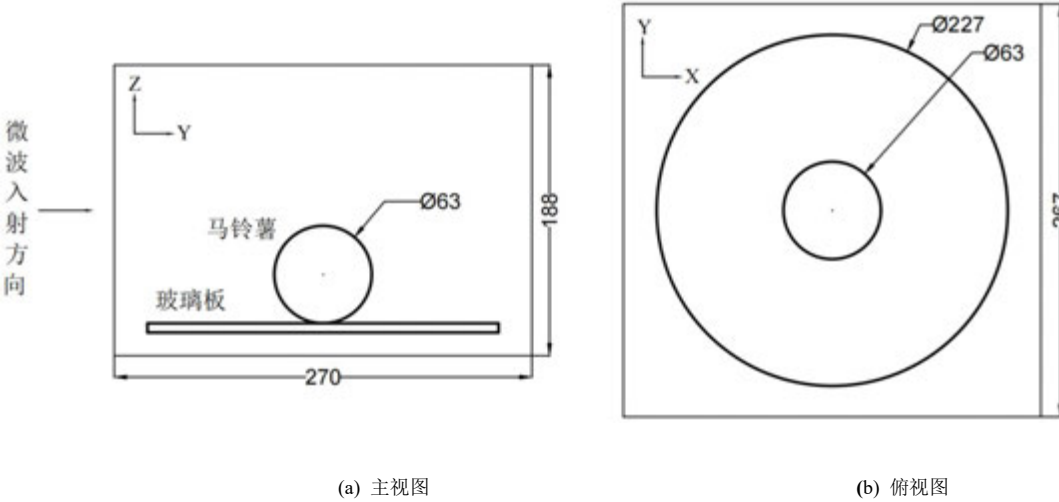


图 1 微波加热果蔬物料模型

Fig.1 Model of fruit and vegetable materials heated by microwave

样品的初始温度和环境温度为 25 °C,加热时间为 5 s,微波功率为 1 kW,波端口微波频率为 2 450 MHz,端口使用 TE10 模,微波炉壁的材料选用铜,铜和空气的参数直接从 COMSOL 材料库中导出,果蔬物料表面热对流为 2 W/(m²k)。果蔬物料以马铃薯为例,参数如表 1 所示,表中的 T 表示样品温度。

表1 物料参数对照表

参数	果蔬物料	单位
导热系数	0.55	W/(m·K)
密度	1 050	kg/m ³
热容	3.64×10 ³	J/(kg·K)
相对介电常数	$-6.4 \times 10^{-4} T^2 - 0.05 T + 56.8$	—
相对介电损耗	$-1.0 \times 10^{-4} T^2 - 0.108 T + 16.1$	—

为进一步探究微波入射时物料温度的均匀性，在物料中选取七个特征点，计算时获得这七个特征点的温度值，七个特征点的位置如图 2 所示。

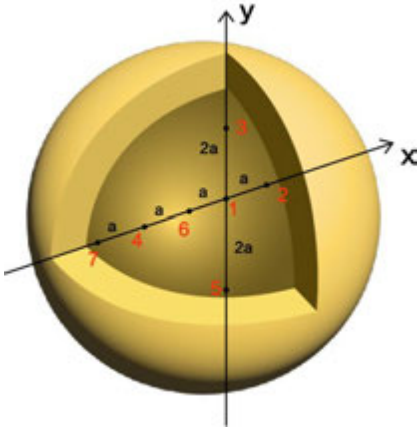


图2 特征点位置

Fig.2 Location of feature points

本文采用温度变异系数 COV (Coefficient of Variation) 来表征微波加热的均匀性^[13]，计算公式如式 1 所示，COV 是温度标准差与平均温度升高值的比值，能够排除可能由于整体温升不明显而造成的均匀性高的假象，更客观的表现出数据的离散程度^[14]。COV 值越小，表示其温度均匀性越高。

$$COV = \frac{\sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (T_i - \Delta T)^2}}{\Delta T - T_0} \tag{式 1}$$

式中， T_i 为加热结束后任一点的温度，℃； ΔT 为加热结束后的平均温度，℃； T_0 为初始温度，℃。

2 模型验证

为了验证以上模型的正确性，依据文献^[9]中的实验条件：微波炉大小为 350 mm ×

235 mm×338 mm，马铃薯中心坐标为（0 mm，0 mm，24 mm），马铃薯尺寸为 100 mm×42 mm×50 mm，使用厚度为 3 mm 的 PP 塑料装马铃薯，马铃薯的初始温度和环境温度均为 24 °C，加热时间为 30 s，微波炉功率为 780 W。依据上述条件设置所建模型中的参数，进行计算，将计算所得 7 个特征点的温度与实验结果进行对比，结果如图 3 所示。从图中可以看出，模型计算所得温度与实验温度基本吻合，说明本论文所建模型能够较准确表述微波加热果蔬的过程。

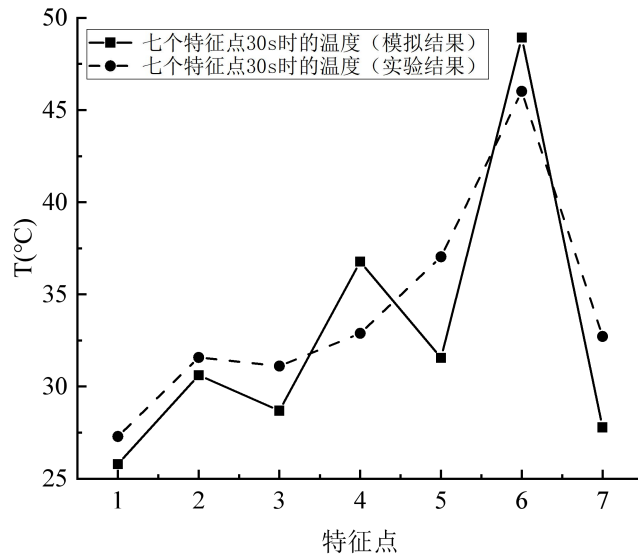


图 3 实验结果与仿真结果的比较

Fig.3 Comparison between experimental results and simulation results

除了采用图 3 判断模型计算值与实验值的接近程度，继续使用式 2 计算均方根误差 S，计算得到均方根误差为 1.72 °C（<1.75 °C），在可接受范围内^[15]，所以该模型可用来分析微波加热果蔬物料的过程。

$$s = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (\theta_s - \theta_E)^2} \quad (\text{式 2})$$

式中： θ_s 为模拟温度，°C； θ_E 为实验温度，°C。

3 仿真分析

3.1 介电特性对物料温度特性的影响

3.1.1 果蔬物料的介电特性

介电特性是分子中束缚电荷对外加电场的响应特性，对于微波加热影响十分关键^[16]，果蔬物料介电特性的表达式如式 3 所示^[17]：

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad (\text{式 3})$$

式中： $j = \sqrt{-1}$ 。 $\varepsilon', \varepsilon''$ ——介电常数和介电损耗因子。

由式 3 可知，介电特性可由介电常数 ϵ' 和介电损耗因子 ϵ'' 两部分表示。介电特性影响着物料的微波吸收能力以及加热效率。微波的频率、温度、水分含量以及无机盐离子等因素均会影响果蔬物料的介电特性^[18]，进而影响微波加热的效率与均匀性^[19]。

本论文微波使用的频率为 2 450 MHz，依据文献^[20-24]中的数据，列举了十二种果蔬物料在 2 450 MHz 频率下的介电常数和介电损耗，归纳结果如表 2 所示。

表 2 2 450 MHz 频率下一些果蔬的介电特性

Tab.2 Dielectric properties of some fruits and vegetables under the frequency of 2 450 MHz

物料	温度/℃	介电常数	介电损耗	数据来源	
				作者	参考文献
马铃薯	25	55.54	15.62	Nelson	[76]
胡萝卜	25	73.8	20.07	秦文	[75]
苹果	25	57	12	Guo	[73]
玉米	25	57.9	15.91	徐保江	[74]
萝卜	25	72.98	17.32	Sipahioglu	[77]
香菜	25	63.87	14.65	Sipahioglu	[77]
竹笋	25	71	16	Sipahioglu	[77]
西兰花	25	71.56	20.88	Sipahioglu	[77]
大蒜	25	46.5	18.2	Sipahioglu	[77]
香蕉	25	66.86	18.79	Sipahioglu	[77]
黄瓜	25	73.55	14.16	Sipahioglu	[77]
梨	25	70.68	16.53	Sipahioglu	[77]

介电特性改变，对应着物料的改变。本文选取介电常数和介电损耗因子差距较大的胡萝卜和马铃薯作为代表性果蔬进行研究，其物料介电常数和介电损耗因子随温度的变化规律如表 3 所示。

表 3 胡萝卜和马铃薯的介电特性

Tab.3 Dielectric properties of carrots and potatoes

参数	胡萝卜	马铃薯
相对介电常数	$-6.4 \times 10^{-4} T^2 - 0.05 T + 73.8$	$-6.4 \times 10^{-4} T^2 - 0.05 T + 55.54$
相对介电损耗	$-6.4 \times 10^{-4} T^2 - 0.108 T + 20.07$	$-6.4 \times 10^{-4} T^2 - 0.108 T + 15.62$

3. 1. 2 介电特性对物料温度分布的影响

为研究介电特性对尺寸不同的物料温度分布的影响，使用从 X 轴入射 1 kW 微波的模型，模拟计算中所采用参数（密度、导热系数等）见表 1，分别对半径不同的球形物料（胡萝卜和马铃薯）进行模拟分析。不同半径的球形胡萝卜和马铃薯加热 5 秒后的温度分布云图，如图 4 所示。

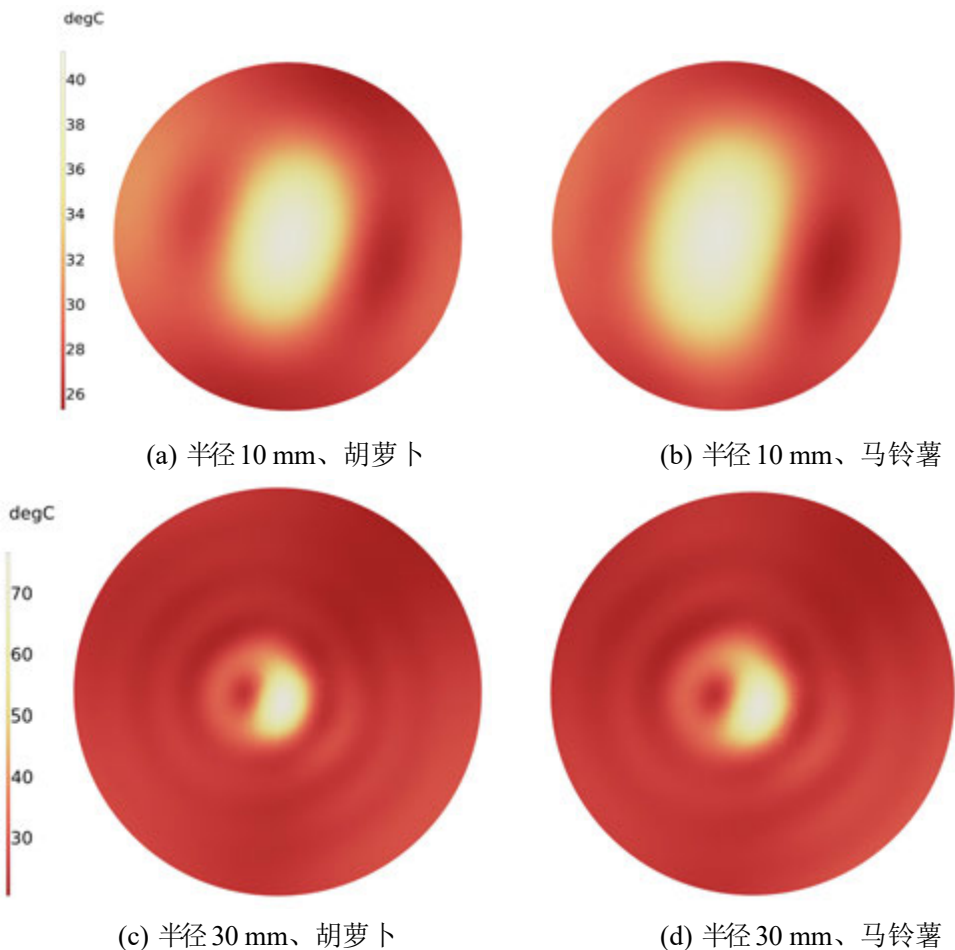


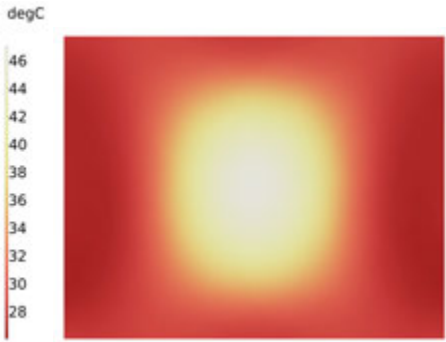
图 4 介电特性改变时不同尺寸下的温度分布云图

Fig.4 The effect of dielectric properties on temperature distribution under different material size

果蔬物料水分含量大，长时间微波加热，必然在物料内形成水分和热量的传递。而在微波加热的 5 s 内，物料内部水分来不及扩散，物料外部的温升不足以形成大量的水分蒸发，此时，可忽略其内部的水分传递，主要考察因物料介电特性和形状不同而引起的温度分布的变化。由图 4 可以看出，介电常数和介电损耗因子均不同的胡萝卜（ ϵ_1 ）和马铃薯（ ϵ_2 ），尺寸相同时温度分布总体上很接近；介电常数和介电损耗因子相同，尺寸不同时，温度分布有明显差别。由此可知，当微波加热时间较短，如 5 s，则介电常数的改变对球形物料的温度分布基本无影响。

为进一步研究介电特性对物料温度分布的影响，依据工业生产实际，设置不同形状，使用从 X 轴入射 1 kW 微波的模型，模拟计算中所采用参数（密度、导热系数等）见表

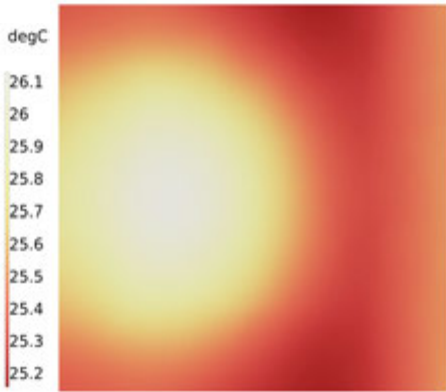
1, 物料介电特性参数如表 3 所示。分别对圆柱形、正方体形、球形物料进行模拟分析, 得到不同形状的胡萝卜和马铃薯加热 5 秒后的中心截面温度分布云图, 如图 5 所示。由图 5 可以看出, 当形状为圆柱时, 介电常数和介电损耗因子均较大的胡萝卜与介电常数和介电损耗因子均较小的马铃薯温度分布较接近; 当形状为正方体时, 介电常数和介电损耗因子均较大的胡萝卜高温区面积更小、更偏向物料周边, 也就是更容易在偏离物料中心处形成高温聚集区; 当形状为球形时, 介电常数和介电损耗因子均较大的胡萝卜高温区面积更小, 更容易形成高温聚集区。



(a) 圆柱形、胡萝卜



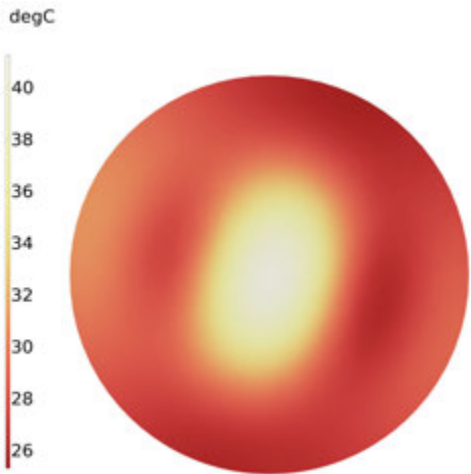
(b) 圆柱形、马铃薯



(c) 正方体形、胡萝卜



(d) 正方体形、马铃薯



(f) 球形、马铃薯

(e) 球形、胡萝卜

图 5 介电特性不同时不同形状下的温度分布云图

Fig.5 The effect of dielectric properties on temperature distribution under different material shape

3. 1. 3 介电特性对物料温度均匀性的影响

为探究物料介电特性对温度分布均匀性的影响，本文以介电常数和介电损耗因子相差较大的胡萝卜和马铃薯为例，模拟计算中所采用参数（密度、导热系数等）见表 1，物料介电特性参数如表 3 所示。在球型物料中选取七个特征点，七个特征点的位置如图 2 所示，结果如图 6 所示。由图 6 可得，特征点 1 温度明显偏高，特征点 1 代表了物料的中心点，反映出了微波加热易使物料中心焦化的问题。图中显示了加热 5 秒后，7 个特征点的温度值。由这 7 个特征点的温度值计算得到平均值，发现，半径为 30 mm 的胡萝卜、半径为 30 mm 的马铃薯、半径为 10 mm 的胡萝卜、半径为 10 mm 的马铃薯的平均温度值分别为：36.69 °C、35.68 °C、32.01 °C、29.64 °C。可以看出，在物料尺寸相同时，介电常数和介电损耗因子较大的物料，平均温度更高。

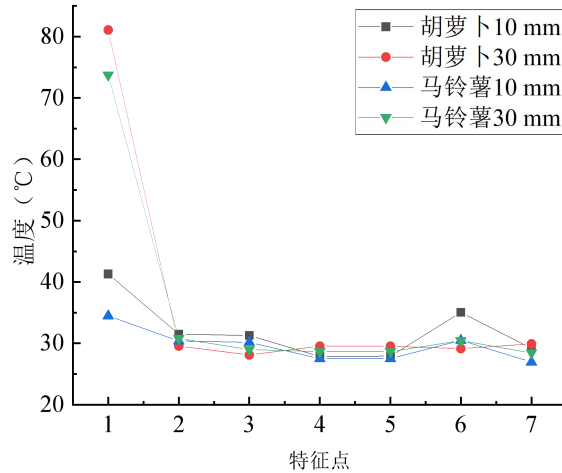


图 6 七个特征点温度

Fig.6 The temperature of seven feature points

进一步，将这七个特征点温度代入式 1，计算得到表征温度均匀性的温度变异系数 COV，绘制 COV 随介电特性的变化图，如图 7 所示。从图中可以看出，不管介电特性是大还是小，直径较小的物料，COV 值越小，温度均匀性越高。若尺寸相同，则介电特性越小的物料，COV 值越小，温度均匀性越高。对于小尺寸的物料，如 10 mm，介电常数从 73.80 降低至 55.54 时，温度均匀性 COV 由 0.16 降低至 0.09，温度均匀性升高了 43.8%；对于大尺寸的物料，如 30 mm，介电常数从 73.80 降低至 55.54 时，温度均匀性 COV 由 0.54 降低至 0.45，温度均匀性升高了 16.7%。

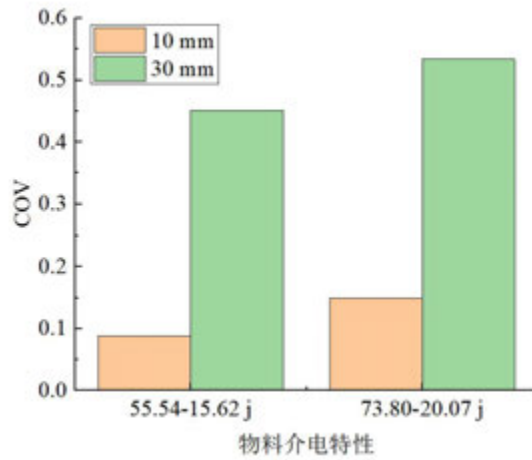


图 7 COV 随介电特性的变化

Fig.7 The varies of COV with the changes of dielectric properties

3.2 尺寸对物料温度特性的影响

3.2.1 尺寸对物料温度分布的影响

以球形马铃薯为例，在其他条件均相同时，仅改变物料尺寸，将不同尺寸的物料放入六个微波入射方向的模型中，模拟参数（密度、导热系数等）见表 1，考虑实际工业化生产的需求，选取半径在 10 mm~60 mm 的球形物料进行模拟分析，不同半径的球形物料加热 5 秒后的温度分布云图，如图 8 所示。

由图 8 可以看出，温度最高值不一定在中心点，物料半径为 10 mm 时，温度最高值以点状分布，未偏离中心点；物料半径为 20 mm 时，温度最高值以点状分布，部分偏离中心点，偏中心点右方一些；物料半径为 30 mm 时，温度最高值以点状分布，偏中心点右下方一些；物料半径为 40 mm 时，温度最高值完全偏离中心点，且温度最高值出现在物料外表面；物料半径为 50 mm 和 60 mm 时，物料内部温度无明显变化。这些结果表明物料尺寸对物料温度分布的影响显著。

将物料温度分布图中的温度最大值进行排序，则，由大到小的排列顺序为：20 mm > 30 mm > 10 mm > 40 mm > 50 mm > 60 mm，这与物料中心点温度大小排序一致。马铃薯半径在 10 mm 和 20 mm 时，马铃薯出现明显的中心焦化现象；随着马铃薯半径的不断增大，当马铃薯半径 ≥ 40 mm 时，马铃薯的温度分布表现出四周温度较高的态势。王中明^[25]通过实验发现了被干燥物料的形状是影响微波加热的一个重要因素，证明了球形物料是最有利于微波聚焦的形状。但球形物料的直径过大易使微波很难穿透物料。柱状物料的半径较小时，物料的外表面和内部均会受热升温；而半径大于 40 mm 时，只有外表面受热。参照该理论，本论文物料的形状和大小的参数设置均合理，且仿真结果是可靠的。

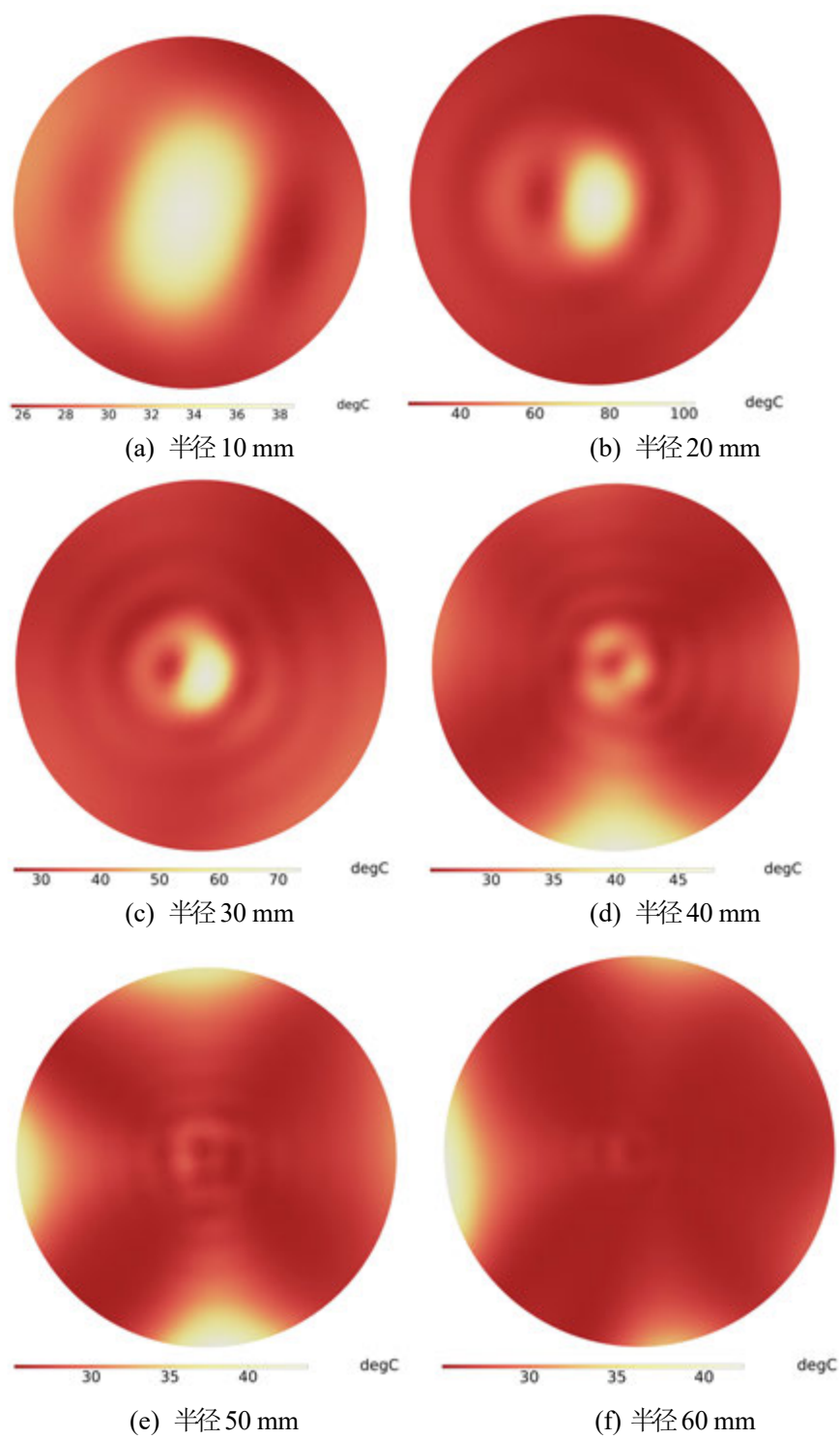


图 8 球形半径对温度分布云图的影响

Fig.8 The effect of spherical radius on temperature distribution

3.2.2 尺寸对物料温度均匀性的影响

为探究物料尺寸对温度分布均匀性的影响，以球形马铃薯为例，使用从 X 轴入射 1 kW 微波的模型，模拟计算所需参数（密度、导热系数等）见表 1，在球型马铃薯物料中选取七个特征点，七个特征点的位置如图 2 所示。加热 5 秒后，得到六个尺寸物料的 7 个特征点的温度，如图 9 所示。

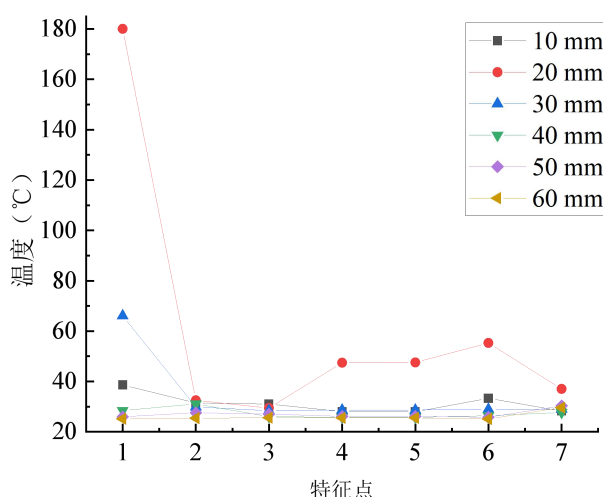


图 9 七个特征点的温度

Fig.9 The temperature of seven feature points

由图 9 可得，物料尺寸为 20 mm 时，物料各位置温度均偏高；特征点 1 温度均明显偏高，验证了微波加热易使物料中心焦化的现象。图中显示了不同尺寸物料的 7 个特征点温度，经计算得到不同尺寸的物料平均温度大小，对平均温度进行排序，则。从大到小的排序为：20 mm > 30 mm > 10 mm > 40 mm > 50 mm > 60 mm。将特征点温度通过式 2.16 计算，得到温度变异系数 COV 随物料尺寸的变化，如图 10 所示。

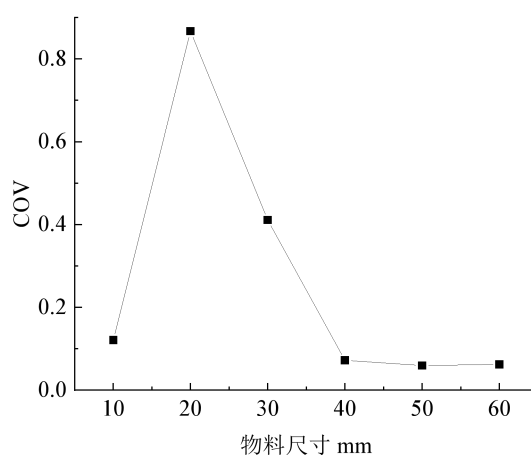


图 10 COV 随物料尺寸的变化

Fig.10 The varies of COV with the changes of material size

由图 10 可得到各尺寸物料的温度变异系数 COV 的值，将不同尺寸的 COV 进行排

序, 则, 由大到小的顺序为 $20\text{ mm} > 30\text{ mm} > 10\text{ mm} > 40\text{ mm} > 60\text{ mm} > 50\text{ mm}$, 温度变异系数 COV 值越低, 温度均匀性越高, 所以得到均匀性大小的排序, 由大到小的顺序为 $50\text{ mm} > 60\text{ mm} > 40\text{ mm} > 10\text{ mm} > 30\text{ mm} > 20\text{ mm}$ 。考虑到物料的温升速率及电磁场的分布, 结果表明当物料半径为 20 mm 时, 物料温度分布最不均匀, 中心点焦化最严重; 当物料半径 $\geq 40\text{ mm}$ 之后, 会导致微波无法穿透物料; 物料半径为 10 mm 和 30 mm 时, 加热效果最好, 温度均匀性比半径为 20 mm 的球形物料提高了 52.63% 以上; 在微波可以穿透物料时, 物料中心点温度大小排序、物料温度的最高值大小排序、电场最大值大小排序和磁场最大值大小排序一致, 为 $20\text{ mm} > 30\text{ mm} > 10\text{ mm} > 40\text{ mm}$, 且与均匀性由大到小排列顺序相反。这可能与微波穿过物料后, 在物料内的衰减有关。

4 结 论

本论文建立微波和传热的耦合模型, 描述微波加热果蔬物料的过程。利用微波加热马铃薯的测温实验验证了模型的正确性。依据微波加热果蔬时经常改变物料的场景, 本文研究了物料介电特性改变和物料尺寸改变时, 物料的温度特性变化规律。结果表明, 当形状为正方体时, 介电常数和介电损耗因子均较大的胡萝卜高温区面积更小、更偏向物料周边, 也就是更容易在偏离物料中心处形成高温聚集区; 当形状为球形时, 介电常数和介电损耗因子均较大的胡萝卜高温区面积更小, 更容易在中心处形成高温聚集区; 在物料尺寸相同时, 介电常数和介电损耗因子较大的物料, 平均温度更高; 不管介电特性是大还是小, 直径较小的物料, COV 值越小, 温度均匀性越高; 若尺寸相同, 则介电特性越小的物料, COV 值越小, 温度均匀性越高; 当物料半径小于 40 mm 时, 物料半径越大, 温度最高值越偏离中心点; 当物料半径大于 40 mm 时, 物料内部温度无明显变化, 温度最高值点靠近物料外表面; 对于球形马铃薯来说, 半径为 20 mm 时, 温度均匀性最差。这些结论将为解决微波加热农产品时局部温度过高的问题提供理论依据。

参考文献

- [1] 冀德富, 李欢欢, 刘建国. 玉米须的干燥方法及提取方法研究. 中国中医药现代远程教育, 2022, 20(19): 163-166.
Ji Defu, Li Huanhuan, Liu Jianguo. Study on Drying and Extraction Methods of Corn Stigma. Chinese Medicine Modern Distance Education of China, 2022, 20(19): 163-166.
- [2] 沈伟, 张培兰, 牛俊乐, 等. 不同干燥方式对芒果果皮理化特性的影响. 保鲜与加工, 2021, 21(09): 87-92.
Shen Wei, Zhang Peilan, Niu Junle, et al. Effects of Different Drying Methods on Physicochemical Properties of Mango Pericarp. Storage and Process, 2021, 21(09): 87-92.
- [3] Aral S, Beşe A V. Convective drying of hawthorn fruit (*Crataegus* spp.): Effect of experimental parameters on drying kinetics, color, shrinkage, and rehydration capacity. Food chemistry, 2016, 210: 577-584.
- [4] 沈素晴, 徐亚元, 李大婧, 等. 青香蕉微波干燥特性及动力学模型研究. 食品工业科技, 2022, 43(14): 110-117.
Shen Suqing, Xu Yayuan, Li Dajing, et al. Research on Microwave Drying Characteristics and Kinetic

Model of Green Bananas. Science and Technology of Food Industry, 2022, 43(14): 110-117.

- [5] Wang S, Yang R, Han Y, et al. Effects of magnetron arrangement and power combination on temperature field uniformity of microwave drying of carrot. Drying Technology, 2016, 34(8): 912-922.
- [6] 罗归一, 宋春芳, 李臻峰, 等. 基于温度和功率控制的微波干燥研究. 食品与机械, 2018, 34(6): 58-63.
- Luo Guiyi, Song Chunfang, Li Zhenfeng, et al. Study on microwave drying based on temperature and power control. Food & Machinery, 2018, 34(6): 58-63.
- [7] Chandrasekaran S, Ramanathan S, Basak T. Microwave material processing-a view. American Institute of Chemical Engineers Journal, 2011, 58(2): 330-363.
- [8] Pitchai K, Birla S L, Subbiah J, et al. Coupled electromagnetic and heat transfer model for microwave heating in domestic ovens. Journal of Food Engineering, 2012, 112(1-2):100-111.
- [9] 张柯, 卢立新, 王军. 基于 COMSOL 的包装食品微波炉加热模拟. 包装工程, 2014, 35(05): 1-4+12.
- Zhang Ke, Lu Lixin, Wang Jun. Simulation of Microwave heating of packaged food by software COMSOL. Packaging Engineering, 2014, 35(05): 1-4+12.
- [10] Zhang H, Datta A K. Coupled electromagnetic and thermal modeling of microwave oven heating of foods. Journal of Microwave Power and Electromagnetic Energy, 2000, 35(2): 71-85.
- [11] Zhang H, Datta A K. Microwave power absorption in single-and multiple-item foods. Institution of Chemical Engineers, 2003, 81(3): 257-265.
- [12] 姜正, 刘清, 徐恒, 等. 金银花热风干燥品质变化及工艺优化. 山西农业大学学报, 2018, 38(01): 61-68.
- Lou Zheng, Liu Qing, Xu Heng, et al. Quality variation and process optimization of hot air drying of Honeysuckle. Journal of Shanxi Agricultural University(Natural Science Edition), 2018, 38(01): 61-68.
- [13] Geedipalli S S R, Rakesh V, Datta A K. Modeling the heating uniformity contributed by a rotating turntable in microwave ovens. Journal of Food Engineering, 2007, 82(3): 359-368.
- [14] 刘心爽. 腔体式微波降膜蒸发器的结构设计及优化:[博士论文]. 天津: 天津大学, 2019.
- Liu Xinshuang. The design and optimization of falling film evaporator inside microwave cavity: [Ph.D. Thesis]. Tianjin: Tianjin University, 2019.
- [15] 张柯. 金属化包装改善食品微波加热效果的研究:[硕士论文]. 无锡: 江南大学, 2014.
- Zhang Ke. Metallized microwave package research to improve the effect of microwave heating of food: [Master Thesis]. Wuxi: Jiangnan University, 2014.
- [16] 罗归一. 基于介电特性检测的微波干燥控制与品质研究:[硕士论文]. 无锡: 江南大学, 2018.
- Luo Guiyi. Study on microwave drying control and quality based on dielectric property detection:[Master Thesis]. Wuxi: Jiangnan University, 2018.
- [17] Zhu X, Guo W, Wu X. Frequency-and temperature-dependent dielectric properties of fruit juices associated with pasteurization by dielectric heating. Journal of Food Engineering, 2012, 109(2): 258-266.
- [18] Ling B, Guo W C, Hou L X, et al. Dielectric properties of pistachio kernels as influenced by frequency, temperature, moisture and salt content. Food and Bioprocess Technology, 2015, 8(2):420-430.
- [19] 吴斯侃, 宋永一, 王鑫, 等. 物质介电特性对微波加热影响研究进展. 当代化工, 2020, 49(9):

1987-1991.

Wu Sikan, Song Yongyi, Wang Xin, et al. Research Progress in Influence of Dielectric Properties of Materials on Microwave Heating. Contemporary Chemical Industry, 2020, 49(9): 1987-1991.

[20] Guo W, Nelson S O, Trabelsi S, et al. 10–1800-MHz dielectric properties of fresh apples during storage. Journal of Food engineering, 2007, 83(4): 562-569.

[21] 徐保江, 李宝林. 根据物料的介电特性快速测定含水率的试验研究. 沈阳农业大学学报, 1998, 29(1): 65-68.

Xu Baojiang, Li Baolin. Quick determination on water content of agricultural products based on dielectric properties of materials. Journal of Shenyang Agricultural University, 1998, 29(1): 65-68.

[22] 秦文, 羽仓义雄, 铃木宽一, 等. 胡萝卜贮藏过程中电容与新鲜度的关系研究. 农业工程学报, 2005, 21(9): 160-162.

Qin Wen, Yu Cangyixiong, Ling Mukuanyi, et al. Evalutaion of the relationship between capacitance and freshness of carrot during storage. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering, 2005, 21(9): 160-162.

[23] Nelson S O. Dielectric properties of some fresh fruits and vegetables at frequencies of 2.45 to 22 GHz. Transactions of the ASAE, 1983, 26(2): 613-0616.

[24] Sipahioglu O, Barringer S A. Dielectric properties of vegetables and fruits as a function of temperature, ash, and moisture content. Journal of Food Science, 2003, 68(1): 234-239.

[25] 王中明. 基于微波干燥生物材料的传热传质机理研究:[硕士论文]. 昆明: 昆明理工大学, 2011.

Wang Zhongming. Study of heat and mass transfer mechanism based on microwave drying biological materials:[Master Thesis]. Kunming: Kunming University of Science and Technology, 2011.

基于 CAMS 数据集的典型地区气溶胶辐射强迫

余潇潇, 李军章, 袁远, 陈奇祥
(哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨, 150001)
(Tel: 0451-86403794, Email: yuanyuan83@hit.edu.cn)

摘要: 气溶胶再分析数据集作为新兴的多源融合数据集, 具有在时间和空间上连续而完整的优点。本文基于 CAMS 数据集计算了北京地区以及汤加火山喷发期间的辐射强迫, 其时空分布显示: 火山喷发产生的火山灰(粉尘)和硫酸盐等能够大幅增加气溶胶光学厚度, 更多地散射和吸收太阳辐射, 增强对地球表面和地球-大气系统的冷却效应, 减少大气气溶胶向外释放的辐射能。

关键词: 辐射强迫, SBDART, 气溶胶, 再分析数据集

0 引言

近一个世纪, 随着我国工业化的兴起, 人们通过燃煤发电、工业生产和机动车尾气排放等途径向大气中排放了大量的固体颗粒和气体, 在某一时期, 严重的空气污染成为了比较突出的环境问题。其中大气气溶胶作为空气污染中重要的影响因素引起了学者的广泛关注。众所周知, 气溶胶组分等物质导致的空气污染对人类的身体健康有很大的危害, 主要包括以下几个方面: 使人类肺功能受到损害^[1,2]、降低认知功能、增加患痴呆症风险、增加患精神障碍风险、增加孕妇流产风险及新生儿自闭症风险、对婴儿大脑发育产生危害、增加基因变异风险和影响骨骼健康等^[3]。因此气溶胶研究对空气污染的监测、治理和人体健康保护来说尤为重要。除了环境和人类健康以外, 气溶胶对于光学遥感也有不可忽视的影响, 由于气溶胶中包含大量不同组分的微观粒子, 这些粒子能够对电磁波等信号的传播产生较大的影响, 比如吸收、散射等作用, 使信号受到一定程度的干扰、发生衰减, 这会对广泛应用于生活的信号传输和航天、气象的光学探测等活动产生较大的影响, 所以气溶胶辐射特性的研究也是很重要的。火山的气候影响是一个传统问题, 但其受关注程度远不如温室气体等人为外强迫因子。火山喷发主要通过改变大气成分进而影响气候, 火山喷发后在平流层形成的硫酸盐气溶胶是影响气候变化的重要自然外强

迫因子，其对包括季风在内的全球气候具有重要影响。

气溶胶光学参数时空分布特征研究中，大多将气溶胶光学厚度作为研究重点。气溶胶光学厚度 (Aerosol Optical Depth, AOD)，即气溶胶的消光系数沿着辐射传输的方向在其垂直路径上的积分，可用于描述的是气溶胶对光的衰减作用。所采用的数据集主要有 MERRA-2 数据集与 CAMS 数据集等。MERRA-2 是一套长时间序列的再分析数据集，其中包括各种气象变量，如净辐射、温度、相对湿度、风速、湍流蒸散等。同时，MERRA-2 数据覆盖全球，空间分辨率为 $0.5^{\circ} \times 0.625^{\circ}$ ，时间分辨率为 1 小时。CAMS 再分析数据集是由哥白尼大气监测服务 (Copernicus atmospheric Monitoring Service) 通过单独的 CAMS 全球温室气体再分析 (EGG4) 获得的最新的全球大气成分再分析数据集，包括气溶胶、化学物质和温室气体的三维时间一致 AC 场，其空间分辨率为 80 公里，时间分辨率为 3 小时。2021 年，Kuttippurath 等^[4]利用 MERRA-2 数据集对印度和北印度洋地区过去 20 年的气溶胶特征变化进行了分析，结论是 AOD 在恒河平原地区最大，在北印度洋和喜马拉雅地区最小，AOD 负荷峰值发生于 6-8 月。Liu 等^[5]对 MODIS、CAMS 和 MERRA-2 中我国四川的气溶胶数据进行比较分析，发现 MERRA-2 相对于 MODIS，在 2003-2006 年呈负偏差，2007 以后呈正偏差。Xing 等^[6]将 CALIPSO 和 MERRA-2 相结合，表征了 2011-2017 年间埃德蒙顿-卡尔加里走廊的水平气溶胶交叉边界传输，结论表明该地区在秋季有最显著的气溶胶输入效应，西部边界和北部边界是气溶胶传输的进口。2022 年，Mascout 等^[7]基于 AERONET、CAMS 和机载设备观测数据分析了留尼汪岛附近的气溶胶光学参数分布特征，发现再分析数据集 CAMS 高估了 AOD 值。

气溶胶组分时空分布特征研究中多将 $PM_{2.5}$ 、黑炭、沙尘、有机碳和硫酸盐作为重点，2019 年，Hung 等^[8]基于 MERRA-2 和 $PM_{2.5}$ 实地观测数据分析台湾北部在冬季的可吸入颗粒物浓度水平及空间分布，发现 MERRA-2 能够较好地分辨气溶胶中各组分的贡献。2020 年，Sitnov 等^[9]使用 MERRA-2 的黑炭数据分析了欧亚大陆北部大气中黑炭的时空分布，发现西伯利亚生物质燃烧与黑炭存在高度相关性。Xu 等^[10]研究了 MERRA-2 黑炭浓度在中国东部地区的时空分布，进行了基于沿海站点的验证。Shi 等^[11]基于 MERRA-2 和 CPC 的再分析数据分析了中亚地区气溶胶沙尘的空间分布，发现由于春季早期的冷大气运动，不同地域来源的沙尘浓度差异显著。Shikwambana 等^[12]使用 Sentinel-5P 观测数据和 MERRA-2 数据分析了南非地区气溶胶污染物的空间分布，发现冬季 SO_2 和 NO_2 扩散较多，夏季则较少。2021 年，Spandana 等^[13]基于 2015-2019 年 MERRA-2 和地面实测数据分析了印度地区 $PM_{2.5}$ 与 PM_{10} 比值的空间分布，发现在冬季和季风时期后期有最高值。Becker 等^[14]利用 MERRA-2、CAMS 和 MODIS 的气溶胶光学厚度和地表实时的 $PM_{2.5}$ 观测数据，分析了加德满都地区的气溶胶时空分布并评估了空气污染状况。Cao 等^[15]使用 1980-2019 年的 MERRA-2 数据分析了中国大气中黑炭浓度的空间分布，验证了与国内站点实测数据的相关性。Yao 等^[16]研究了 MERRA-2 沙尘浓度在东亚地区 2000-2019 年的时空分布和准确性，结果表明：MERRA-2 数据与地面观测数据相关性较高，相关系数高于 0.8，东亚地区沙尘浓度在 2000 年后大幅降低。

本文基于再分析数据集 CAMS 的气溶胶光学参数对典型地区北京以及汤加地区的辐射强迫水平进行估算，并分析其影响因素。

1 研究模型

美国加州大学圣巴巴拉分校学者开发了基于离散坐标法的圣巴巴拉大气辐射传输计算模型（Santa Barbara DISORT Atmospheric Radiative Transfer, SBDART），该方法基于云模型（Cloud Model）、气体吸收模型（Gas Absorption Model）、地外辐射源光谱模型（Extraterrestrial Source Spectra）、标准大气模型（Standard Atmospheric Models）、标准气溶胶模型（Standard Aerosol Models）和地表反射模型（Surface Models）等多个成熟的物理模型，使用离散坐标法（DIScrete Ordinate Radiative Transfer, DISORT）计算晴空或有云条件下的平面平行大气辐射传输。由于其能够计算得到精度较高的稳定数值解，被广泛应用于气溶胶辐射强迫和遥感等工程问题^[17-19]。下面将就 SBDART 的物理模型和重要参数进行简要介绍。

（1）云模型

云模型包含由 Mie 散射理论计算得到的球形水云和冰云数据库，通过输入云层高度、云滴粒子有效半径和云光学厚度等参数，模拟云在地表大气辐射传输中对太阳辐射及地表辐射的反射、吸收、透射等作用。

（2）气体吸收模型

气体吸收模型使用 LOWTRAN 7 的低分辨率气体吸收谱线结合 k 分布方法计算气体分子的辐射吸收，能够用于计算波数范围从 0 到 50000cm⁻¹ 的晴空大气传输，波数分辨率能够达到 20cm⁻¹，在可见光和红外波段的波长分辨率则分别达到了 0.005μm 和 0.2μm。

（3）地外辐射源光谱模型

地外辐射源光谱模型中的地外辐射源一般指太阳辐射，模型内置了三种太阳光谱模型：5s 太阳光谱模型、LOWTRAN 7 太阳光谱模型和 MODTRAN-3 太阳光谱模型。在计算太阳辐射角时，使用球形模型修正，较好地估计了结果。

（4）标准大气模型

标准大气模型内置了被广泛应用的 5s 大气辐射模型，包括热带、中纬度夏季、中纬度冬季、亚北极夏季、亚北极冬季和 US62 等 6 种模拟气候的标准大气廓线，能够提供标准垂直剖面的压强、温度、水蒸气和臭氧浓度。也可指定外部输入的大气廓线或大气成分浓度数据。

（5）标准气溶胶模型

标准气溶胶模型包括边界层大气和平流层大气两个部分，边界层大气模型内置农村、城市和海洋 3 个类型气溶胶数据，平流层大气模型可以指定 5 个气溶胶层，用于模拟无平流层气溶胶、背景平流层、老火山喷发、新火山喷发等情况。对于指定外部气溶胶数据的情况，该模型需要输入散射效率、多波段气溶胶光学厚度（AOD）、单次散射反照

率 (SSA) 和不对称因子 (ASY) 等参数。

(6) 地表反射模型

该模型内置了海洋、湖泊、植被、雪地、沙漠等多种地表类型, 通过基本地表类型的组合, 近似计算地表的光谱反射率。也可指定外部输入的地表反射率数据。

(7) 离散坐标法

由于大气层厚度远远小于地球半径, 可以认为大气层的辐射强迫计算对象是平面平行大气。该方法能够求解垂直非均匀大气平面的辐射传输方程, 并获得稳定的数值解, DISORT 可以得到不同方向和大气高度的散射情况及辐射强度。最多可以指定 50 个大气层和 40 个天顶角或方位角。

本文 SBDART 模型的计算基本流程如下所示:

首先输入数据。云模型中, 对于白天晴空的情况, 不输入云参数 (默认为 0), 对于白天有云的情况, 使用东亚大陆地区的云参数^[20-22] (云层高度、云滴粒子有效半径和云光学厚度)。地外辐射光源模型中, 输入地理经纬度坐标点和日期中的月日信息, 北京站点经纬度来自 AERONET 地基数据, 汤加地区划定精度 $0.4^\circ \times 0.4^\circ$ 的 15°S - 30°S 、 180° - 165°W 区域作为对象。标准大气模型中使用 SBDART 自带的标准大气廓线, 同时添加来自 CAMS 数据集的臭氧浓度和水蒸气浓度数据, 北京站点海拔数据来自 AERONET 地基数据, 本文将汤加群岛地区海拔视为 0 (海平面)。标准气溶胶模型中, 仅使用对流层模型, 使用的气溶胶光学参数数据包括: CAMS 数据集中 19 个波段的气溶胶光学厚度 AOD (340 nm, 355 nm, 380 nm, 400 nm, 440 nm, 469 nm, 500 nm, 532 nm, 550 nm, 645 nm, 670 nm, 800 nm, 858 nm, 865 nm, 1020 nm, 1064 nm, 1240 nm, 1640 nm, 2130 nm)、19 个波段的散射不对称因子 ASY (具体波段同上)、19 个波段的单次散射反照率 SSA (具体波段同上) 和能见度数据, 不同类型气溶胶粒子群的消光系数由 Mie 散射理论计算得到。地表反射模型使用 CAMS 数据集的地表反射率。对于来自 AERONET 离散站点 (北京) 的 CAMS 气溶胶相关数据, 均采用反距离加权方法计算得到。

在计算过程中, 采用标准大气模型生成大气廓线数据, 并与输入的臭氧和水蒸气数据叠加修正, 由输入的 AOD、SSA、ASY 等气溶胶光学参数和气溶胶散射理论 (Mie 散射和 Rayleigh 散射)、云模型理论等, 处理得到未直接提供的参数数据, 基于 Henyey-Greenstein 方法和不对称因子 ASY 近似计算相函数。由于 LOWTRAN 的 k 分布中权重因子与大气高度相关, 且其组分种类和分布影响每个大气层的大气辐射加热速率, 故不使用常数因子, 而是计算每个大气层不透明度加权的垂直方向平均因子。由于特定波长下 k 分布的气体辐射传输被分解为三个指数项之和, 所以, 基于太阳光谱辐射、相函数、AOD 和 SSA, 分成三次分别调用离散坐标法 (DISORT) 来计算 LOWTRAN 和 k 分布分量的大气辐射加热速率, 再叠加得到最后的计算结果。

输出参数包括不同大气层的高度及对应的压强、对应的向下辐射通量 F_λ^{down} (直射加散射) $[W \cdot m^{-2}]$ 、对应的向上辐射通量 F_λ^{up} $[W \cdot m^{-2}]$ 、对应的向下辐射通量 (仅直射)、

对应的辐射通量散度和对应的大气加热率。然后基于以下理论计算气溶胶直接辐射强迫：

在平行大气平面上，净辐射通量 ΔF_λ [$W \cdot m^{-2}$]由式（1-1）给出：

$$\Delta F_\lambda = F_\lambda^{down} - F_\lambda^{up} \quad (1-1)$$

气溶胶直接辐射强迫定义为大气中有气溶胶作用时和无气溶胶作用时处于大气层特定位置的净辐射通量差异，地球表面气溶胶辐射强迫（SURFace, SUR） [$W \cdot m^{-2}$]和大气层顶部气溶胶辐射强迫（Top Of Atmosphere, TOA） [$W \cdot m^{-2}$]分别如式（1-2）和（1-3）所示：

$$\Delta F_{SUR} = (F_{SUR,1}^{down} - F_{SUR,1}^{up}) - (F_{SUR,0}^{down} - F_{SUR,0}^{up}) \quad (1-2)$$

$$\Delta F_{TOA} = (F_{TOA,1}^{down} - F_{TOA,1}^{up}) - (F_{TOA,0}^{down} - F_{TOA,0}^{up}) \quad (1-3)$$

式中 $F_{TOA,0}^{down}$ ——大气层顶部无气溶胶作用时的向下辐射通量， [$W \cdot m^{-2}$];

$F_{TOA,0}^{up}$ ——大气层顶部无气溶胶作用时的向上辐射通量， [$W \cdot m^{-2}$];

$F_{TOA,1}^{down}$ ——大气层顶部有气溶胶作用时的向下辐射通量， [$W \cdot m^{-2}$];

$F_{TOA,1}^{up}$ ——大气层顶部有气溶胶作用时的向上辐射通量， [$W \cdot m^{-2}$];

$F_{SUR,0}^{down}$ ——地表大气无气溶胶作用时的向下辐射通量， [$W \cdot m^{-2}$];

$F_{SUR,0}^{up}$ ——地表大气无气溶胶作用时的向上辐射通量， [$W \cdot m^{-2}$];

$F_{SUR,1}^{down}$ ——地表大气有气溶胶作用时的向下辐射通量， [$W \cdot m^{-2}$];

$F_{SUR,1}^{up}$ ——地表大气有气溶胶作用时的向上辐射通量， [$W \cdot m^{-2}$];

大气中气溶胶辐射强迫（within the ATMosphere, ATM） [$W \cdot m^{-2}$]由式（1-4）给出：

$$\Delta F_{ATM} = \Delta F_{TOA} - \Delta F_{SUR} \quad (1-4)$$

表征大气中气溶胶吸收辐射能量并将其转化为热能的多少可以使用 ΔF_{ATM} 来度量，符号的正负分别表示气溶胶将对大气造成加热效应和冷却效应。

根据流体静平衡和热力学第一定律，能够得到大气中气溶胶吸收辐射能而引起的大气加热率^[23]，即式（1-5）：

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{g \Delta F_{ATM}}{C_p \Delta p} \times 24(h/\text{天}) \times 3600(s/h) \quad (1-5)$$

式中 $\frac{\partial T}{\partial t}$ ——大气加热率， [K/天];

C_p ——大气定压比热容， [J/K·kg]

g ——重力加速度， $g = 9.8m \cdot s^{-2}$;

Δp ——大气层顶和大气层底（地表大气）间的压强差，常取 300hPa^[24]

2 计算结果

2.1 北京地区气溶胶辐射强迫的月变化

本文使用反距离加权方法获得北京 AERONET 站点位置的 CAMS 气溶胶数据，计算了月均 AOD 值，作为辐射强迫分析的参考，如图 2-1。基于 SBDART 大气辐射传输模型，本文计算得到了 2020 年北京地区的大气直接辐射强迫水平，包括大气层顶部、地表大气和大气中气溶胶辐射强迫以及大气加热率（Heat Rate）等参数。这一部分采用白昼晴朗（无云）条件下获得的结果作为分析对象。

北京地区的月均辐射强迫变化如图 2-2 所示，TOA 辐射强迫的月均值从最小 $-12.38 \pm 10.55 \text{ W/m}^2$ （12 月）变化到最大 $-40.29 \pm 36.19 \text{ W/m}^2$ （2 月），全年所有月份的 TOA 辐射强迫均为负值，这与一部分研究的结果类似^[25-26]，这表明在晴空条件下，大气气溶胶在大气层顶的综合辐射效应是将入射到大气层的太阳辐射反射到地外空间，减少了进入大气层的太阳辐射热流，从而使整个地球-大气系统形成了冷却效应。

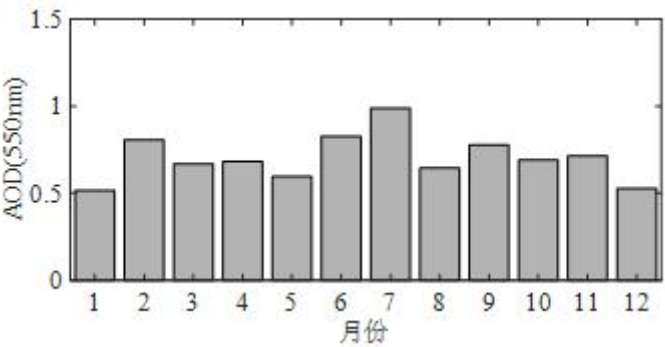
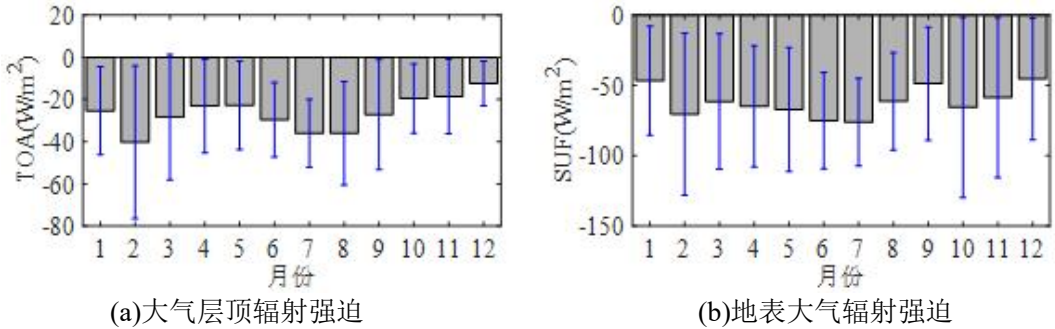


图 2-1 2020 年北京气溶胶光学厚度（AOD）月变化趋势



(a)大气层顶辐射强迫

(b)地表大气辐射强迫

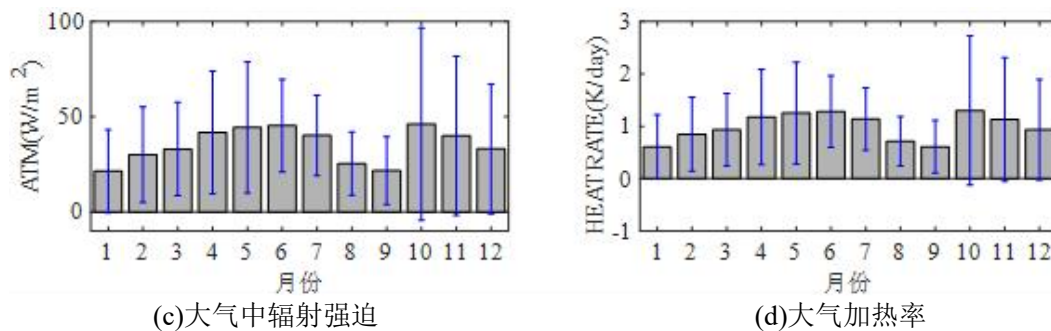


图 2-2 2020 年北京地区辐射强迫（白昼晴空）及大气加热率月变化趋势

如图 2-2（b）所示，SUF 辐射强迫的月均值从最小 $-45.49 \pm 43.18 \text{ W/m}^2$ （12 月）变化到最大 $-76.25 \pm 31.11 \text{ W/m}^2$ （7 月），全年所有月份的 SUF 辐射强迫均为负值，且绝对值超过了 TOA 辐射强迫。这表明地球表面大气的气溶胶减少了地表对辐射能量的吸收，综合辐射效应是使地球表面温度降低，由图 2-1 的 AOD 月变化趋势，可以发现 SUF 辐射强迫的变化趋势与 AOD 变化趋势一致，这表明地表附近的辐射强迫与气溶胶负荷可能有较强的正相关关系。而且在燃煤较多的冬季期间相比于全年其他时期，北京地区的 SUF 辐射强迫月变化幅度很小，表明北京地区空气污染治理取得了较好的成效。

ATM 辐射强迫的月均值从最小 $21.38 \pm 21.75 \text{ W/m}^2$ （1 月）变化到最大 $46.14 \pm 50.58 \text{ W/m}^2$ （10 月），如图 2-2（c）所示，ATM 辐射强迫在全年所有月份均为正值，表明大气气溶胶在吸收辐射能量。在 1 月 ATM 辐射强迫出现谷值，同时 AOD 也维持低值，这表明气溶胶负荷高低直接影响着 ATM 辐射强迫的高或低。图 2-2（d）直观地展示了大气加热率的月均值从最小 $0.60 \pm 0.61 \text{ K/天}$ （1 月）变化到最大 $1.30 \pm 1.43 \text{ K/天}$ （10 月），表明气溶胶能够使大气升温，在地球-大气系统中，气溶胶影响了包括太阳、大气、地表等多对象的辐射传输过程，在减小地表昼夜温差、维持温度平衡中起到了重要的作用。

2.2 云对气溶胶辐射强迫的影响研究

有云情况下北京地区的月均辐射强迫变化如图 2-3 所示，TOA 辐射强迫的月均值从最小 $0.10 \pm 3.66 \text{ W/m}^2$ （8 月）变化到最大 $7.61 \pm 8.97 \text{ W/m}^2$ （10 月），有云（水云和冰云混合）条件下，TOA 辐射强迫在全年的所有月份均为正值，且绝对值较小，对比图 2-2（a）晴空条件下负值的 TOA 辐射强迫，在该结果中，可以发现云（水云和冰云混合）对气溶胶的辐射强迫的影响是使大气层顶部辐射强迫的正值增加，这与一部分文献的研究结果一致^[27-28]。

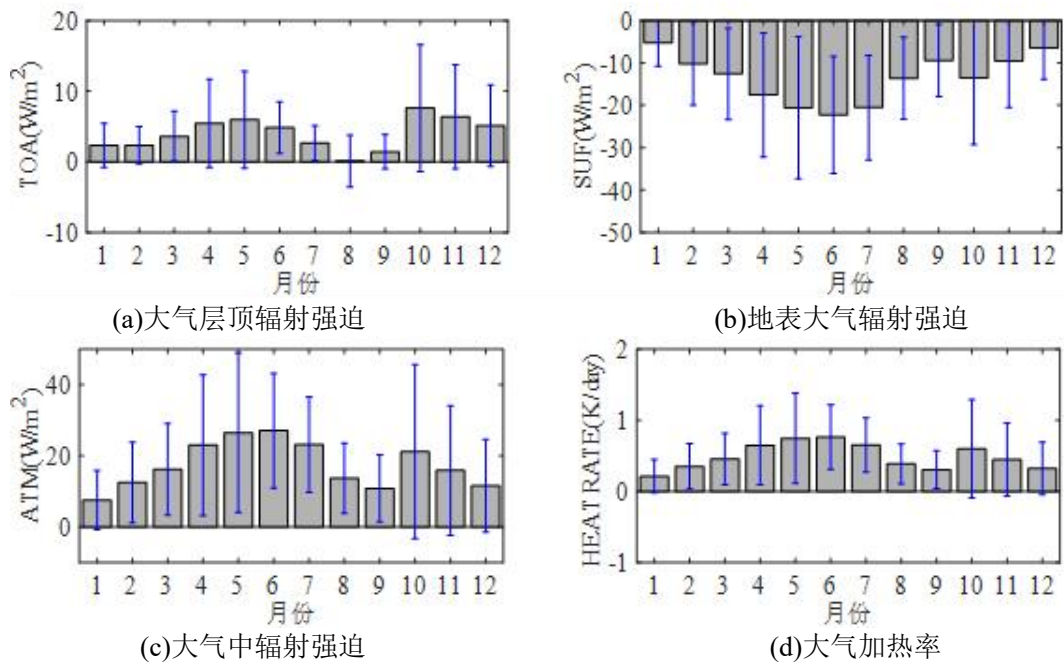


图 2-3 2020 年北京地区辐射强迫（白昼有云）及大气加热率月变化趋势

如图 2-3 (b) 所示, SURF 辐射强迫的月均值从最小 $-5.25 \pm 5.57 \text{ W/m}^2$ (1 月) 变化到最大 $-22.26 \pm 13.83 \text{ W/m}^2$ (6 月), 有云条件下, SURF 辐射强迫在全年的所有月份均为负值, 对比图 2-2 (b) 晴空条件下的 SURF 辐射强迫变化, 在该结果中, 可以发现云对气溶胶辐射强迫的影响是使地表大气的辐射强迫的正值增加, 综合来说, 冰核化间接效应和热力学效应是 TOA 和 SURF 辐射强迫正值增加的主要原因。

如图 2-3 (c) 所示, ATM 辐射强迫的月均值从最小 $7.57 \pm 8.30 \text{ W/m}^2$ (1 月) 变化到最大 $27.11 \pm 16.12 \text{ W/m}^2$ (6 月), ATM 辐射强迫在全年的所有月份均为正值, 且绝对值较小, 对比图 2-2 (c) 晴空条件下的 ATM 辐射强迫, 有云条件下的 ATM 辐射强迫更小, 这表明虽然大气层顶吸收了更多太阳辐射, 但是地表大气中的云也使气溶胶对地球表面的冷却效应减少了, 综合来说, 云对辐射强迫的效应导致大气层吸收的辐射能量减少了。大气加热率的月均值从最小 $0.21 \pm 0.23 \text{ K/天}$ (1 月) 变化到最大 $0.77 \pm 0.46 \text{ K/天}$ (6 月), 其晴空和有云的对比结果与 ATM 辐射强迫类似。

2.3 汤加火山喷发期间的辐射强迫

汤加当地时间 2022 年 1 月 15 日 17 时 27 分, 汤加附近发生火山喷发, 火山喷发会向大气中排放大量的火山灰, 使得该地区气溶胶成分及相关的气溶胶光学参数急剧变化, 并使大气气溶胶的辐射强迫作用显著变化。这一部分将估算汤加群岛地区的辐射强迫水平, 并进行相关分析, 图 2-4 所示是汤加附近地区的地理位置信息。

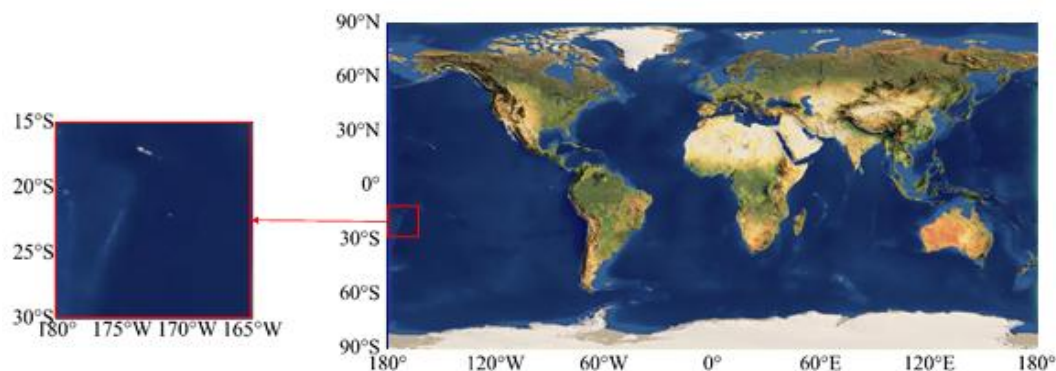


图 2-4 汤加地区地理位置示意图

如图 2-5 所示是 2021 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区 AOD (550nm) 的空间分布情况, 在这一时间段内, 汤加附近地区 AOD 值大部分低于 0.3, 仅有 180°、27°S 和 165°W、27°S 附近地区 AOD 值超过 0.4, 最大值为 0.5193, 如图 2-5 (a) 至 (e) 所示, 在 13 时至 17 时气溶胶光学厚度较高。图 2-6 是 2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区 AOD (550nm) 的空间分布, 可以发现, 在这一时间段内汤加附近地区 AOD 值均维持在较高水平, 其中 175°W、18°S 和 167°W、30°S 附近地区较为显著, AOD 最高可达 0.9308, 与图 2-5 对比可知 AOD 极大值增加了接近 1 倍, 这说明火山喷发产生的火山灰(粉尘)和硫酸盐等成分能够使附近的空气质量迅速恶化, 大幅增加气溶胶光学厚度。

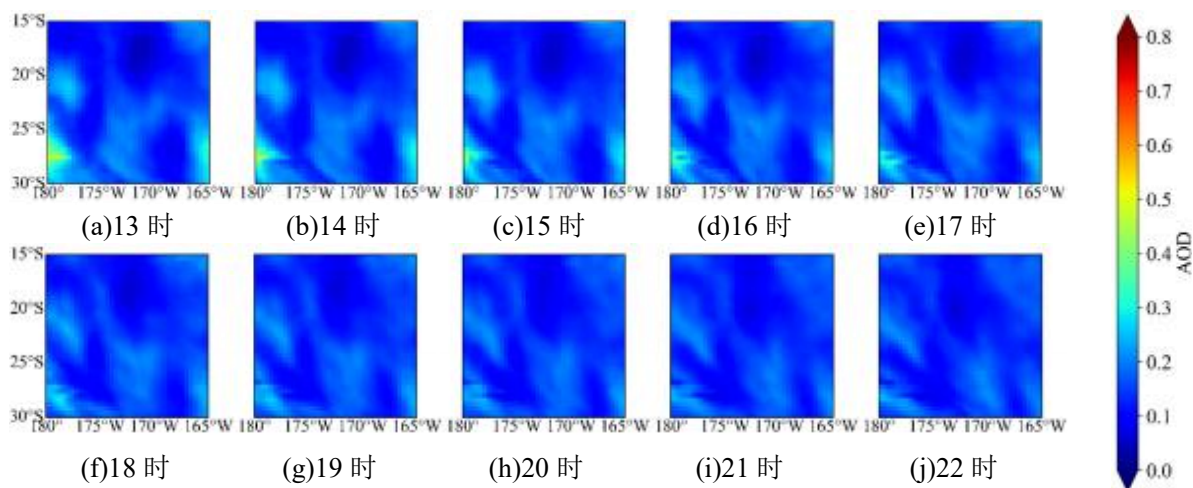
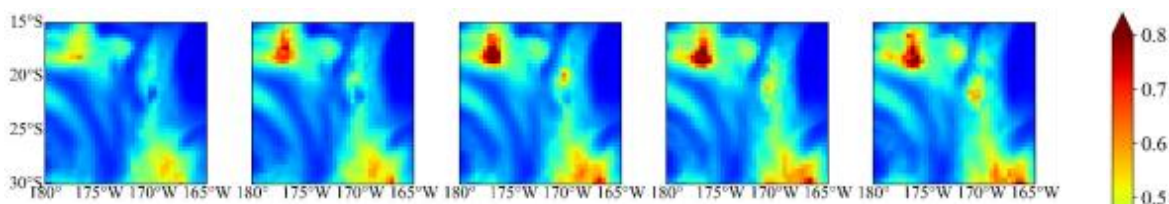


图 2-5 2021 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区 AOD (550nm) 空间分布



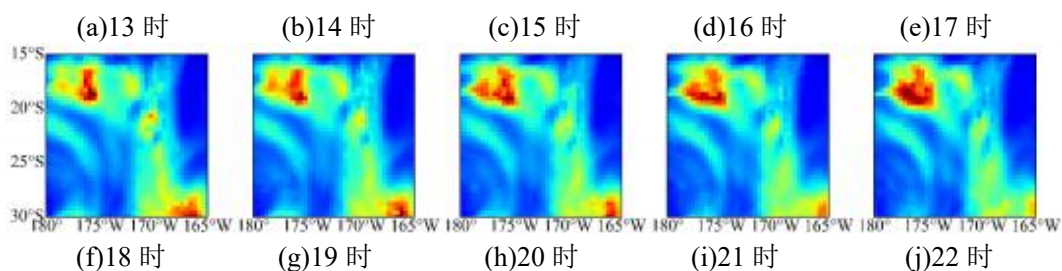


图 2-6 2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区 AOD (550nm) 空间分布

图 2-7 是 2021 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区地表大气辐射强迫 (SUF) 的空间分布, 如图 2-7 (a) 至 (g) 所示, 在 13 时至 19 时这一时间段内, 汤加大部分地区的地表大气辐射强迫 (SUF) 均为负值, 在 180° 、 27°S 地区有最低值 $-36.6720 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 这表明大气气溶胶对地球表面产生冷却效应, 而在 20 时至 22 时, 如图 2-7 (h) 至 (j), SUF 逐渐增加到 0 左右, 最高值为 $0.0034 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 此时由于夜晚地表温度降低, 大气气溶胶对地表的热效应逐渐转变为微弱的加热效应。

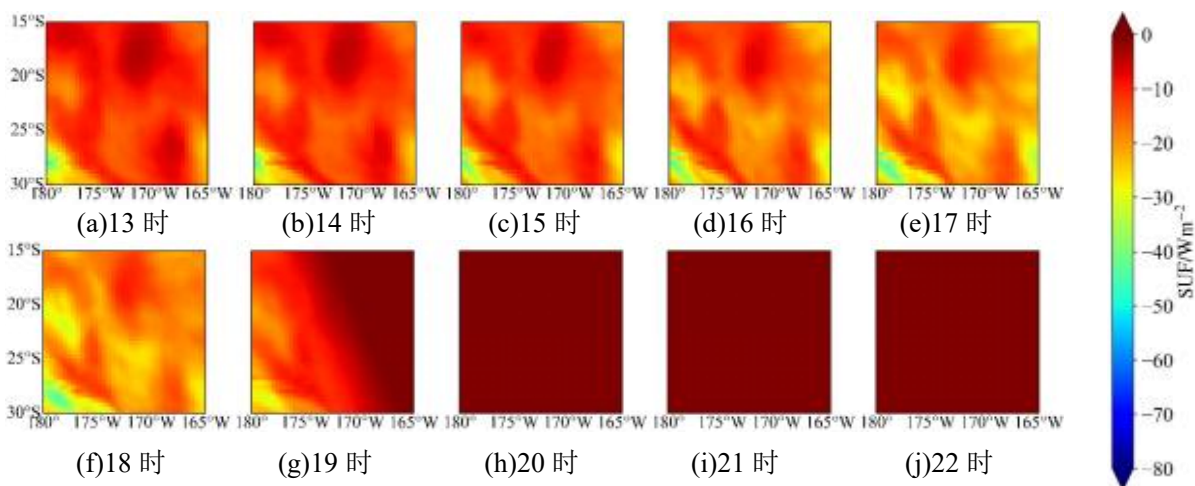


图 2-7 2021 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区地表大气辐射强迫空间分布

图 2-8 是 2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区地表大气辐射强迫 (SUF) 的空间分布, 如图 2-8 (a) 至 (g) 所示, 在 13 时至 19 时这一时间段内, 汤加大部分地区的地表大气辐射强迫 (SUF) 均为负值, 最低值为 $-94.5640 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 且在 175°W 、 18°S 和 167°W 、 30°S 附近地区的绝对值远高于图 2-7 同一时段的 SUF, 这表明火山喷发的火山灰能够更多地散射和吸收太阳辐射, 增强对地球表面的冷却效应, 使汤加附近地区温度降低。而在 20 时至 22 时, 如图 2-8 (h) 至 (j), SUF 逐渐增加到 0 左右, 最高值为 $0.0117 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 大气气溶胶对地表微弱的加热效应也稍有增强。

图 2-9 是 2021 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区大气层顶辐射强迫 (TOA) 的空

间分布，如图 2-9（a）至（e）所示，在 13 时至 17 时这一时间段内，汤加大部分地区的大气层顶辐射强迫（TOA）均为负值，在 180°、27°S 地区有最低值-50.009 W·m⁻²，这表明大气气溶胶大量反射太阳辐射，对地球-大气系统产生的综合效应是冷却效应，而在 18 时至 19 时，如图 2-9（f）至（g），TOA 逐渐增加到正值，最高值为 0.3072 W·m⁻²，此时大气气溶胶对地球-大气系统的热效应转变为加热效应，而在 20 时至 22 时，如图 2-9（h）至（j），TOA 维持在 0 附近，最高值为 0.1203 W·m⁻²，对地球-大气系统逐渐转变为微弱的加热效应。

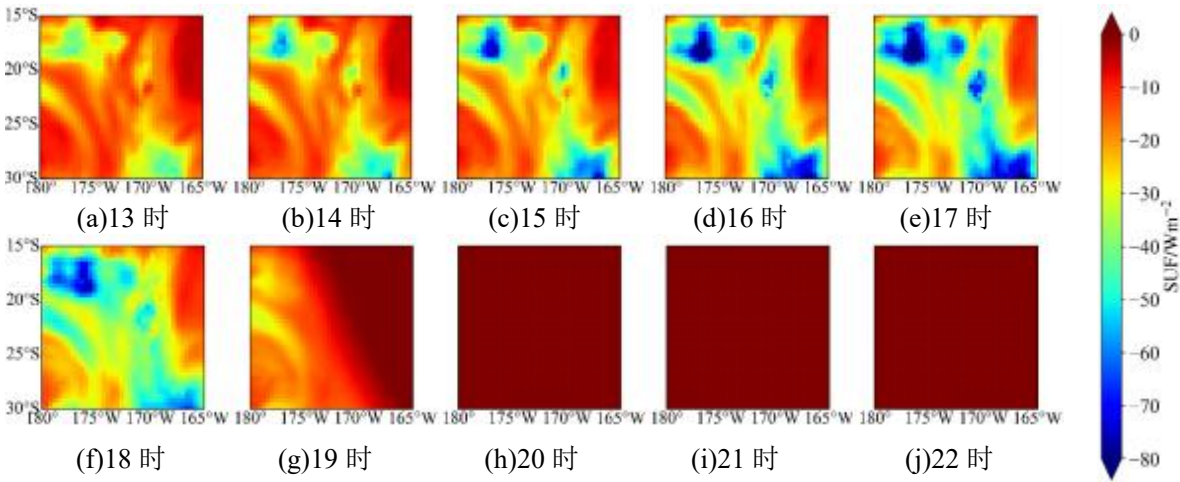


图 2-8 2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区地表大气辐射强迫空间分布

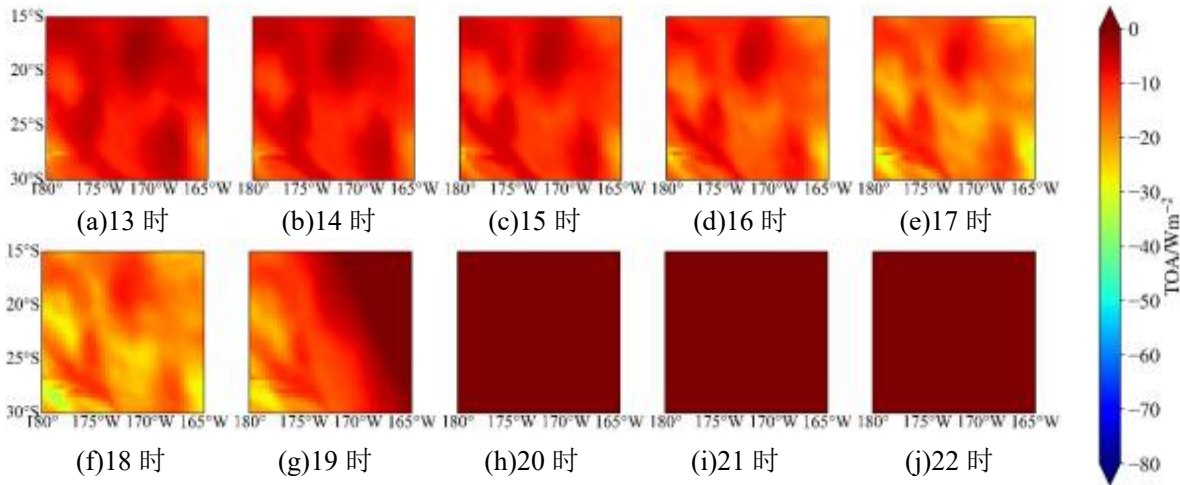


图 2-9 2021 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区大气层顶辐射强迫空间分布

图 2-10 是 2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区大气层顶辐射强迫（TOA）的空间分布，如图 2-10（a）至（g）所示，在 13 时至 19 时这一时间段内，汤加大部分地

区的大气层顶辐射强迫（TOA）均为负值，最低值为 $-98.5030 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ，且在 175°W 、 18°S 和 167°W 、 30°S 附近地区的绝对值远高于图 2-9 同一时段的 TOA，这表明火山喷发的火山灰能够更多地散射和吸收太阳辐射，进一步增强对地球-大气系统的冷却效应。而在 20 时至 22 时，如图 2-10（h）至（j），TOA 逐渐增加到 0 左右，最高值为 $0.3348 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ，大气气溶胶对地球-大气系统微弱的加热效应也稍有增强。

图 2-11 是 2021 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区大气中辐射强迫（ATM）的空间分布，如图 2-11（a）至（e）所示，在 13 时至 17 时这一时间段内，汤加大部分地区的大气中辐射强迫（ATM）均为负值，在 180° 、 27°S 地区有最低值 $-26.2790 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ，这表明大气中的气溶胶热效应是向外释放辐射能。而在 18 时至 19 时，如图 2-11（f）至（g），ATM 逐渐增加到正值，最高值为 $5.1941 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ，此时大气中的气溶胶热效应是吸收辐射能，而在 20 时至 22 时，如图 2-11（h）至（j），ATM 维持在 0 附近，最高值为 $0.6395 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ，气溶胶热效应是以低热流密度吸收辐射能。

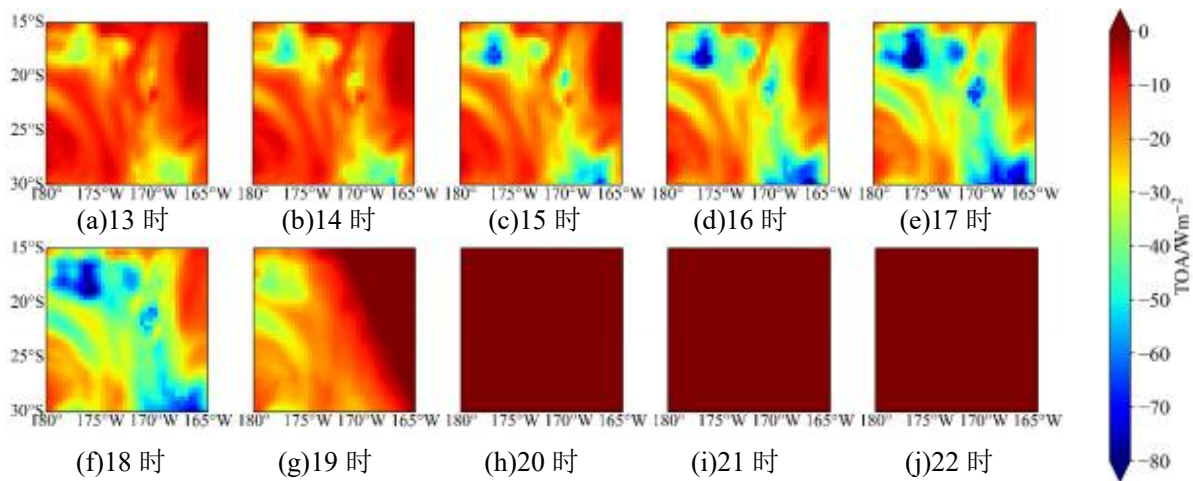


图 2-10 2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区大气层顶辐射强迫空间分布。

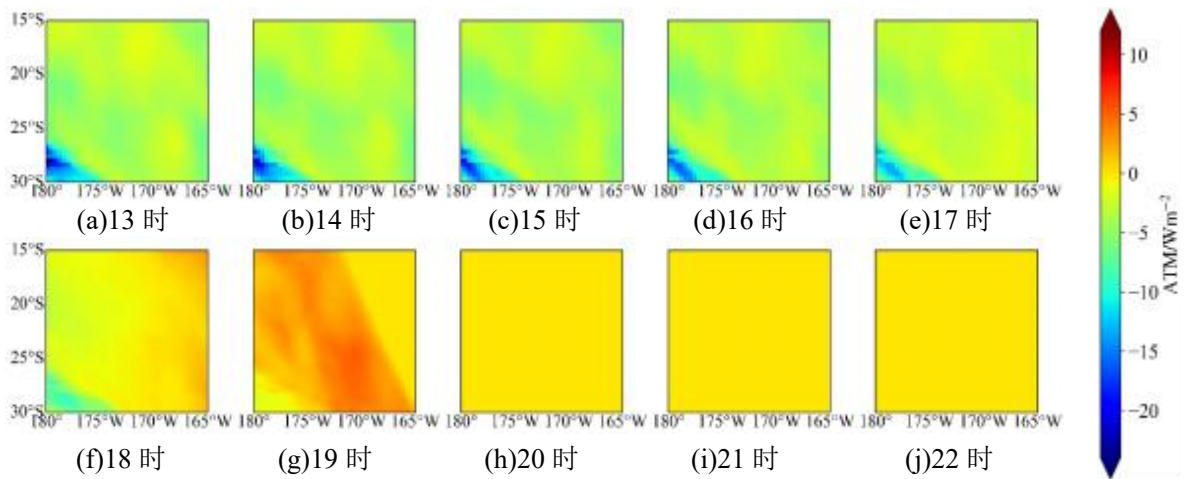


图 2-11 2021 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区大气中辐射强迫空间分布

图 2-12 是 2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区大气中辐射强迫 (ATM) 的空间分布, 如图 2-12 (a) 至 (e) 所示, 在 13 时至 17 时这一时间段内, 汤加大部分地区的大气中辐射强迫 (ATM) 均为负值, 最低值为 $-10.5280 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 且在 175°W 、 18°S 附近地区的 ATM 相对于图 3-21 同一时段有所增加, 这表明火山喷发的火山灰能够更多地吸收太阳辐射, 减少大气气溶胶向外释放的辐射能。而在 18 时至 19 时, 如图 2-12 (f) 至 (g), ATM 逐渐增加到正值, 最高值为 $14.7096 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 此时大气中的气溶胶热效应是大量吸收辐射能, 且在 175°W 、 18°S 和 167°W 、 30°S 附近地区 ATM 相对于图 2-11 同一时段大幅增加, 而在 20 时至 22 时, 如图 2-12 (h) 至 (j), ATM 逐渐降低并稳定到 0 左右, 最高值为 $0.6690 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 大气气溶胶热效应是以低热流密度吸收辐射能。

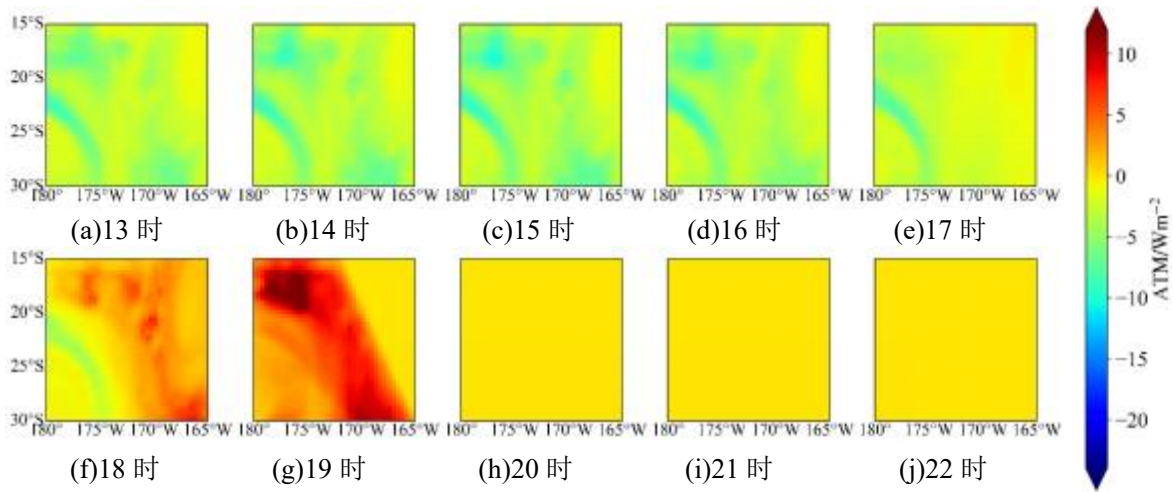


图 2-12 2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时汤加地区大气中辐射强迫空间分布

3 结 论

云 (水云和冰云混合) 对气溶胶辐射强迫的影响是使 TOA 和 SUF 正值增加, 冰核化间接效应和热力学效应是主要原因, 同时云对辐射强迫的效应会导致大气层吸收的辐射能量减少。2022 年 1 月 15 日 13 时至 22 时, 汤加附近地区的 AOD (550nm) 均维持在较高水平, 相对 2021 年同一时期 AOD 极大值增加了接近 1 倍。13 时至 19 时, 汤加大部分地区 SUF、TOA 和 ATM 均为负值, 相对 2021 年同一时期, SUF 和 TOA 的绝对值增加, 部分地区的 ATM 增加, 这表明火山喷发的火山灰能够更多地散射和吸收太阳辐射, 增强对地球表面和地球-大气系统的冷却效应, 减少大气气溶胶向外释放的辐射能。18 时至 19 时, ATM 逐渐增加到正值, 此时大气中的气溶胶热效应是大量吸收辐射能, 且在部分地区 ATM 相对于 2021 年同一时期大幅增加。20 时至 22 时, TOA 和 SUF 逐渐增加到 0 左右, 大气气溶胶对地表和地球-大气系统微弱的加热效应也稍有增强, ATM 逐渐降低并稳定到 0 左右, 此时大气气溶胶热效应是以低热流密度吸收辐射能。总

体来说汤加火山喷发产生的火山灰（粉尘）和硫酸盐等成分能够使附近的空气质量迅速恶化，大幅增加气溶胶光学厚度，能够更多地散射和吸收太阳辐射，增强对地球表面和地球-大气系统的冷却效应，减少大气气溶胶向外释放的辐射能。

参考文献

- [1] Dominski F H, Lorenzetti Branco J H, Buonanno G, et al. Effects of air pollution on health: A mapping review of systematic reviews and meta-analyses [J]. *Environmental Research*, 2021, 201 : 111487.
- [2] Zhao Q, Kress S, Markevych I, et al. Long-term Air Pollution Exposure Under European Union Limits and Adolescents' Lung Function: Modifying Effect of Abnormal Weight in the GINIplus and LISA Birth Cohorts [J]. *Chest*, 2021, 160 (1) : 249-258.
- [3] 王志成. 空气污染危害健康的八种特殊方式 [J]. *百科知识*, 2020, (35) : 34-36.
- [4] Thermophysics on Engine Aero-thermal Dynamics. Shaoxing, 2007. 724--735
- [5] White B R, Mounla H. Two-phase Measurements of Saltating Turbulent Boundary Layer Flow. *Int. J. Multiphase Flow*, 1982, 8:459-472
- [6] Kuttippurath J, Raj S. Two decades of aerosol observations by AATSR, MISR, MODIS and MERRA-2 over India and Indian Ocean [J]. *Remote Sensing of Environment*, 2021, 257 : 112363.
- [7] Liu H, Yan R, Yang J. Credibility and statistical characteristics of CAMSRA and MERRA-2 AOD reanalysis products over the Sichuan Basin during 2003–2018 [J]. *Atmospheric Environment*, 2021, 244 : 117980.
- [8] Xing Z, Li S, Xiong Y, et al. Estimation of cross-boundary aerosol flux over the Edmonton-Calgary Corridor in Canada based on CALIPSO and MERRA-2 data during 2011–2017 [J]. *Atmospheric Environment*, 2021, 246 : 118084.
- [9] Mascout F, Pujol O, Verreyken B, et al. Aerosol characterization in an oceanic context around Reunion Island (AEROMARINE field campaign) [J]. *Atmospheric Environment*, 2022, 268 : 118770.
- [10] Hung W-T, Lu C-H, Wang S-H, et al. Investigation of long-range transported PM_{2.5} events over Northern Taiwan during 2005–2015 winter seasons [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, 217 : 116920.
- [11] Sitnov S A, Mokhov I I, Likhoshesterova A A. Exploring large-scale black-carbon air pollution over Northern Eurasia in summer 2016 using MERRA-2 reanalysis data [J]. *Atmospheric Research*, 2020, 235 : 104763.
- [12] Xu X, Yang X, Zhu B, et al. Characteristics of MERRA-2 black carbon variation in east China during 2000–2016 [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, 222 : 117140.
- [13] Shi L, Zhang J, Yao F, et al. Temporal variation of dust emissions in dust sources over Central Asia in recent decades and the climate linkages [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, 222 : 117176.
- [14] Shikwambana L, Mhangara P, Mbatha N. Trend analysis and first time observations of sulphur dioxide and nitrogen dioxide in South Africa using TROPOMI/Sentinel-5 P data [J]. *International Journal of*

-
- Applied Earth Observation and Geoinformation, 2020, 91 : 102130.
- [13] Spandana B, Srinivasa Rao S, Upadhy A R, et al. PM_{2.5}/PM₁₀ ratio characteristics over urban sites of India [J]. Advances in Space Research, 2021, 67 (10) : 3134-3146.
- [14] Becker S, Sapkota R P, Pokharel B, et al. Particulate matter variability in Kathmandu based on in-situ measurements, remote sensing, and reanalysis data [J]. Atmospheric Research, 2021, 258 : 105623.
- [15] Cao S, Zhang S, Gao C, et al. A long-term analysis of atmospheric black carbon MERRA-2 concentration over China during 1980–2019 [J]. Atmospheric Environment, 2021, 264 : 118662.
- [16] Yao W, Gui K, Wang Y, et al. Identifying the dominant local factors of 2000–2019 changes in dust loading over East Asia [J]. Science of The Total Environment, 2021, 777 : 146064.
- [17] Yufeng W, Xingxing L, Yiding Q, et al. Investigation and analysis of actual atmospheric scattered radiance and slant visibility by two-wavelength Raman-Mie lidar [J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2022, 288 : 108250.
- [18] 温阿敏, 张彦丽, 郑江华. 面向 TM 影像大气校正的 SBDART 与 6S 模型比较研究 [J]. 西北师范大学学报(自然科学版), 2015, 51 (05) : 99-106.
- [19] 邓军, 白洁, 刘健文, et al. 基于 MODIS 多通道资料的白天雾监测 [J]. 气象科技, 2006, (02) : 188-193.
- [20] Brandau C L, Russchenberg H W J, Knap W H. Evaluation of ground-based remotely sensed liquid water cloud properties using shortwave radiation measurements [J]. Atmospheric Research, 2010, 96 (2) : 366-377.
- [21] Li X, Che H, Wang H, et al. Spatial and temporal distribution of the cloud optical depth over China based on MODIS satellite data during 2003–2016 [J]. Journal of Environmental Sciences, 2019, 80 : 66-81.
- [22] Miao H, Wang X, Liu Y, et al. Characterization of cloud microphysical properties in different cloud types over East Asia based on CloudSat/CALIPSO satellite products [J]. Atmospheric and Oceanic Science Letters, 2021, 14 (5) : 100050.
- [23] Shaik D S, Kant Y, Mitra D, et al. Assessment of Aerosol Characteristics and Radiative Forcing Over Northwest Himalayan Region [J]. IEEE Journal of Selected Topics in Applied Earth Observations Remote Sensing, 2017, 10 : 5314-5321.
- [24] Viswanatha Vachaspati C, Reshma Begam G, Nazeer Ahammed Y, et al. Characterization of aerosol optical properties and model computed radiative forcing over a semi-arid region, Kadapa in India [J]. Atmospheric Research, 2018, 209 : 36-49.
- [25] Chen A, Zhao C, Fan T. Spatio-temporal distribution of aerosol direct radiative forcing over mid-latitude regions in north hemisphere estimated from satellite observations [J]. Atmospheric Research, 2022, 266 : 105938.
- [26] Kim D, Ramanathan V. Solar radiation budget and radiative forcing due to aerosols and clouds [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2008, 113 (D02) :

-
- [27] Cattani E, Costa M J, Torricella F, et al. Influence of aerosol particles from biomass burning on cloud microphysical properties and radiative forcing [J]. Atmospheric Research, 2006, 82 (1) : 310-327.
- [28] Markowicz K M, Lisok J, Xian P. Simulation of long-term direct aerosol radiative forcing over the arctic within the framework of the iAREA project [J]. Atmospheric Environment, 2021, 244 : 117882.

基于无迹卡尔曼滤波的半透明固体壁面热辐射多宗量重构

赵颖¹, 杨力¹, 史景文², 高包海¹, 齐宏^{1*}

(1.哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001;

2. 北京航天自动控制研究所, 北京 100854)

(Tel: 0451-86412638, Email: qihong@hit.edu.cn)

摘要: 在航空航天技术和目标红外探测等尖端科技领域, 亟需通过间接测量手段对极端换热环境下半透明固体壁面的热辐射特征参数进行近实时甚至实时监测。本研究基于辐射导热耦合传热机理, 利用无迹卡尔曼滤波技术, 发展出高效准确的半透明固体壁面热辐射特征多参数的近实时重构模型。结果表明: 所建立的重构模型能够高效解决非线性辐射导热耦合反问题, 该模型近实时重构出的发射率、内热源及温度分布具备较高的可信度, 在添加测量噪声后, 所建模型保持了较好的鲁棒性和稳定性。

关键词: 无迹卡尔曼滤波; 辐射导热耦合; 热辐射多宗量重构

0 前言

半透明介质广泛应用于能源动力、电子工业和国防军工等领域, 如航天飞机的光学窗口^[1]、再入飞行器的防隔热材料^[2]、各类发动机的高温陶瓷部件^[3]、太阳能集热器^[4]和涡轮发动机的隔热防护层^[5]等。随着航空航天技术和目标红外探测(光学窗口、隔热材料等均为参与性介质)等尖端科技的飞速发展, 相关设备的换热环境与运动状态愈发恶劣, 为保证其安全高效运转需对其表面发射率及温度、内热源分布等特征进行近实时甚至实时监测, 但极端的换热环境和运动状态使得直接测量产生不可接受的误差, 因此, 亟需基于间接测量手段对上述物理量进行近实时甚至是实时监测。

目前, 对于半透明固体壁面辐射导热耦合换热反问题的研究主要集中利用梯度算法和随机智能搜索算法等间接测量手段以离线的方式获取介质的光热物性参数、边界时变热流和内部温度场, 而基于间接的测量手段以在线的方式获取介质热辐射特性主要集中在纯导热领域。Lou 等^[7]对一维发射、吸收、各向同性散射参与性介质内的耦合换热反问题进行了研究, 利用解耦重建算法反演了介质的散射系数和吸收系数, 采用 Tikhonov 正则化方法重建了介质内部的温度场。Cui 等^[8]利用区域法耦合有限差分法求解辐射导热耦合换热正问题, 利用最小二乘法和复变微分法对非灰、吸收、发射性介质内的辐射导热耦合反问题进行了研究, 基于介质的温度信号, 重建了介质的等效灰体发

射率。Khayyam 等^[9]采用有限体积法耦合离散坐标法模拟了一维吸收、发射、散射性介质中的辐射传输过程，基于介质边界的辐射强度信号，利用共轭梯度法对参与性介质的辐射导热耦合换热系数、散射相函数，边界发射率等参数进行了重建研究。通过间接测量手段以在线的方式近实时甚至实时获取各向异性参与性介质表面发射率、内部热源、温度场以及其它时变参量的研究还非常鲜有。

本文通过研究半透明介质辐射导热耦合换热及辐射特征参数重建理论，基于无迹卡尔曼滤波技术，开展半透明固体壁面热辐射特征的近实时重建研究，构建半透明介质中多物理量快速同时重构模型。

1 固体壁面热辐射特征重建原理

1.1 固体壁面辐射导热耦合模型

在发动机燃烧室，航空航天等高温环境中，辐射传热对热量传输总和的贡献甚至超过导热，此时对半透明介质进行传热分析时，需要同时考虑导热和辐射两种传热方式，若只考虑导热或者辐射对换热过程的影响，分析结果会产生很大偏差。

一般情况下认为介质内部温度的响应速度远远小于光子在介质中的传播速度，因此在辐射导热耦合换热过程中，辐射传输方程中的瞬态项可以忽略从而转化为半透明介质中的稳态辐射传输。假设半透明固体表面及内部的辐射-导热耦合换热过程如图 1 所示，包含固体壁面与外界环境存在的辐射换热和自然对流换热，以及参与性介质内部的导热作用。

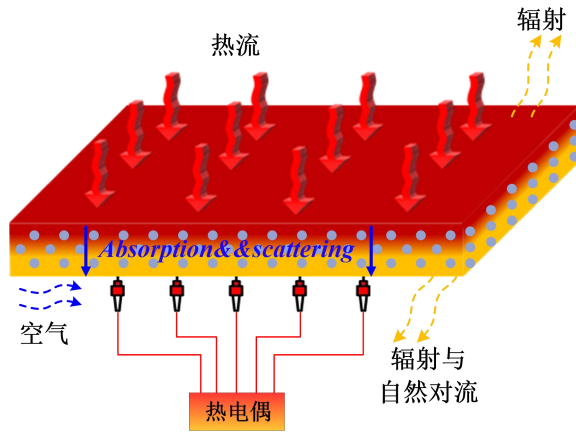


图 1 半透明固体壁面辐射导热耦合换热过程示意图

由分析可知，温度在 x 方向的梯度远远大于其它两个方向，因此上述模型可以简化为如图 2 所示的辐射导热耦合换热问题。高热流密度作用于介质的左边界，介质右边界与换热系数恒定的空气进行自然对流换热；此外，为便于数学处理作如下假设^[2]：(1) 介质的物性参数为固定值，即其大小不随温度改变；(2) 在整个传热过程中，介质内无相变发生；(3) 介质的边界为不透明灰体边界。在辐射导热耦合换热正演计算过程中，分别利用离散坐标法和有限体积法计算辐射传输方程和能量方程，以获得介质的温度场。

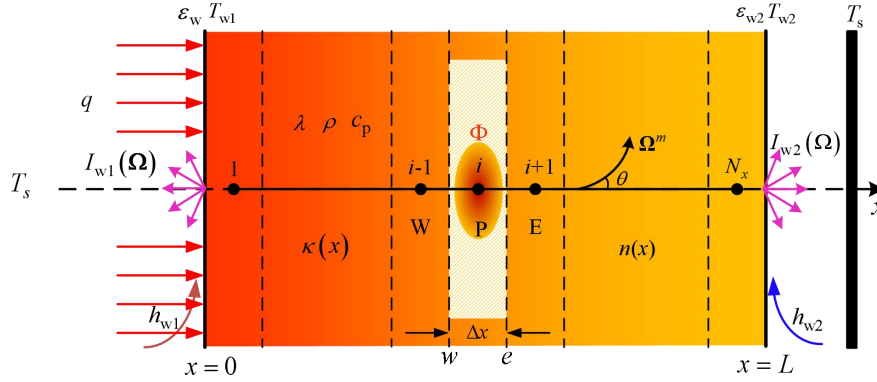


图2 半透明固体壁面辐射导热耦合换热物理模型

辐射导热耦合换热物理模型如图2所示，该模型中的能量方程可以表示为

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} - \frac{\partial q^r}{\partial x} + \Phi \quad (1)$$

式中， T 和 t 分别代表温度和时间； ρ 和 c_p 分别表示密度和比热； λ 和 q^r 分别是热导率和辐射热流， Φ 是内热源。

对于不透明漫射边界，能量方程的边界条件一般可表示为

$$q_{in} + \varepsilon_w \sigma (T_e^4 - T_w^4) + \varepsilon_w (q_w^r - \sigma T_w^4) + q_w^{cv} + q_w^{cd} = 0 \quad (2)$$

式中， q_{in} 表示作用于参与性介质表面的热流大小（例如太阳辐射热流）， ε_w 表示壁面发射率； T_w 和 T_e 分别指介质边界温度和环境温度， q_w^r 、 q_w^{cv} 和 q_w^{cd} 分别指介质表面的辐射换热热流、对流换热热流和导热热流。

初始条件为

$$T(x, 0) = T_s \quad (3)$$

1.2 无迹卡尔曼滤波模型

目前重建半透明介质热辐射特征参数的方法主要是梯度算法和随机智能优化算法，其计算过程中需要反复迭代辐射导热耦合换热正问题，由于耦合换热为强非线性耦合传热问题，特别是辐射传输问题涉及与温度、光谱和方向相关的辐射物性场和辐射强度场的耦合计算，导致传统反演算法在求解非稳态辐射导热耦合换热反问题时计算效率很低，很难实现在线同时重构。

无迹卡尔曼滤波是Julier等人^[10]提出的一种非线性滤波技术，它摒弃了对非线性系统中的非线性测量方程和状态方程直接进行线性化处理的传统做法，通过近似非线性系统中非线性函数的概率密度分布来达到线性化目的，其用一系列确定样本逼近非线性系统中状态向量的后验概率密度，而不是对非线性的状态方程和测量方程进行近似处理，其无需要计算Jacobian矩阵。无迹卡尔曼滤波算法并未忽略二阶及二阶以上的高阶项，因此能对非线性系统中的状态量进行精确计算，其有效地克服了扩展卡尔曼滤波技术精度低、稳定性差的缺点。本文选用无迹卡尔曼滤波技术同时重建固体壁面热辐射特征多宗量，利用辐射导热耦合换热模型计算得到的边界实时响应信号作为测量信息输入反问题中，同时重建半透明介质的热辐射特征多宗量（包含表面发射率、温度分布及内部热

源)。

无迹变换为无迹卡尔曼滤波算法的核心，无迹卡尔曼滤波首先选取一系列均值和协方差等于原状态分布的均值和协方差的点集，然后将所得到的点集带入非线性的状态方程和测量方程中以获取经过非线性处理后的点集，基于变换后的点集计算非线性系统中状态向量的均值和协方差。这样计算获得的非线性系统状态向量的均值和协方差最少具有 2 阶泰勒展开精度。对于高斯分布，可以达到 3 阶精度。在无迹卡尔曼滤波技术中，滤波增益矩阵主要与测量信息的协方差矩阵、测量信息和待估计量的协方差矩阵有关。

假设连续非线性系统中的状态方程可以表示为^[11,12]

$$\dot{\mathbf{X}}(t + \Delta t) = \mathbf{f}(\mathbf{X}(t), t) + \mathbf{W}(t) \quad (4)$$

相应的测量方程可以表示为

$$\mathbf{Z}(t + \Delta t) = \mathbf{h}(\mathbf{X}(t + \Delta t), t + \Delta t) + \mathbf{V}(t + \Delta t) \quad (5)$$

首先，选定滤波所需的初值^[10,13]

$$\hat{\mathbf{X}}(0) = \mathbf{E}(\mathbf{X}(0)) \quad (6)$$

$$\mathbf{P}(0) = \left[(\mathbf{X}(0) - \hat{\mathbf{X}}(0))(\mathbf{X}(0) - \hat{\mathbf{X}}(0))^T \right] \quad (7)$$

其次，计算 k 时刻的新样本点集^[10,13]

$$\begin{cases} \mathbf{x}_0(k) = \mathbf{X}(k/k) \\ \mathbf{x}_i(k) = \mathbf{X}(k/k) + \left[\sqrt{(n + \varpi) \mathbf{P}(k/k)} \right]_i & i = 1, 2, L, n \\ \mathbf{x}_i(k) = \mathbf{X}(k/k) - \left[\sqrt{(n + \varpi) \mathbf{P}(k/k)} \right]_{i-n} & i = n + 1, n + 2, L, 2n \end{cases} \quad (8)$$

接下来，计算 $k+1$ 时刻的一步预测值

$$\mathbf{x}_i^*(k + 1/k) = \Phi[\mathbf{x}_i(k)] \quad i = 0, 1, 2, L, 2n \quad (9)$$

$$\hat{\mathbf{X}}(k + 1/k) = \sum_{i=0}^{2n} W_i^m \mathbf{x}_i^*(k + 1/k) \quad (10)$$

$$\mathbf{P}(k + 1/k) =$$

$$\sum_{i=0}^{2n} \left\{ W_i^c \left[\mathbf{x}_i^*(k + 1/k) - \hat{\mathbf{X}}(k + 1/k) \right] \left[\mathbf{x}_i^*(k + 1/k) - \hat{\mathbf{X}}(k + 1/k) \right]^T \right\} + \mathbf{Q} \quad (11)$$

然后计算 $k+1$ 时刻的一步预测点集

$$\begin{cases} \mathbf{x}_0(k + 1/k) = \hat{\mathbf{X}}(k + 1/k) \\ \mathbf{x}_i(k + 1/k) = \hat{\mathbf{X}}(k + 1/k) + \left[\sqrt{(n + \varpi) \mathbf{P}(k + 1/k)} \right]_i & i = 1, 2, L, n \\ \mathbf{x}_i(k + 1/k) = \hat{\mathbf{X}}(k + 1/k) - \left[\sqrt{(n + \varpi) \mathbf{P}(k + 1/k)} \right]_{i-n} & i = n + 1, L, 2n \end{cases} \quad (12)$$

再然后求解计算滤波增益矩阵所需的两个协方差矩阵

$$\boldsymbol{\varphi}_i(k + 1/k) = \mathbf{H}[\mathbf{x}_i(k + 1/k)] \quad i = 0, 1, 2, L, 2n \quad (13)$$

$$\hat{\mathbf{Z}}(k + 1/k) = \sum_{i=0}^{2n} W_i^m \boldsymbol{\varphi}_i(k + 1/k) \quad (14)$$

$$\mathbf{P}_{\mathbf{xz}}(k+1/k) = \sum_{i=0}^{2n} \left\{ W_i^c \left[\mathbf{x}_i(k+1/k) - \hat{\mathbf{X}}(k+1/k) \right] \left[\boldsymbol{\varphi}_i(k+1/k) - \hat{\mathbf{Z}}(k+1/k) \right]^T \right\} \quad (15)$$

$$\mathbf{P}_{\mathbf{zz}}(k+1/k) = \sum_{i=0}^{2n} \left\{ W_i^c \left[\boldsymbol{\varphi}_i(k+1/k) - \hat{\mathbf{Z}}(k+1/k) \right] \left[\boldsymbol{\varphi}_i(k+1/k) - \hat{\mathbf{Z}}(k+1/k) \right]^T \right\} + \mathbf{R} \quad (16)$$

最后无迹卡尔曼滤波增益可以表示为

$$\mathbf{K}(k+1) = \mathbf{P}_{\mathbf{xz}}(k+1/k) \left[\mathbf{P}_{\mathbf{zz}}(k+1/k) \right]^{-1} \quad (17)$$

上述所有物理量求解之后，无迹卡尔曼滤波技术的最终结果表示为

$$\hat{\mathbf{X}}(k+1/k+1) = \hat{\mathbf{X}}(k+1/k) + \mathbf{K}(k+1) \left[\mathbf{Z}(k+1) - \hat{\mathbf{Z}}(k+1/k) \right] \quad (18)$$

$$\mathbf{P}(k+1/k+1) = \mathbf{P}(k+1/k) - \mathbf{K}(k+1) \mathbf{P}_{\mathbf{zz}}(k+1) \mathbf{K}(k+1)^T \quad (19)$$

无迹卡尔曼滤波技术的计算流程如图3所示，其计算流程主要分为以下几步：

(1) 给定反演过程中所需参数的初始值，包括初始状态分布、测量噪声协方差矩阵、过程噪声协方差矩阵、初始误差协方差矩阵等。

(2) 根据上一时刻最优估计结果和最优估计误差协方差矩阵，利用无迹变换技术获取含有 $2n+1$ 个元素的 sigma 点集，将计算得到的 $2n+1$ 个点带入非线性状态方程中以获得经过非线性变化后的点集，基于非线性变换后状态向量点集和相应的权值计算得到状态向量和误差协方差的一步预测值。

(3) 基于第二步中获取的状态向量和误差协方差的一步预测值，利用无迹变换技术获取含有 $2n+1$ 个元素的点集，将获取的 $2n+1$ 个点带入非线性测量方程中以获取相应的测量信息点集，基于得到的测量信息点集计算测量信息的一步预测值。

(4) 根据状态向量的一步预测值、相应点集和测量信息的一步预测值及相应点集计算滤波增益，再结合误差协方差矩阵的一步预测值和实际测量信息便可得到当前时刻的最优估计。

(5) 向前推进一个时刻，然后重复步骤(2)、(3)和步骤(4)直至最后时刻。

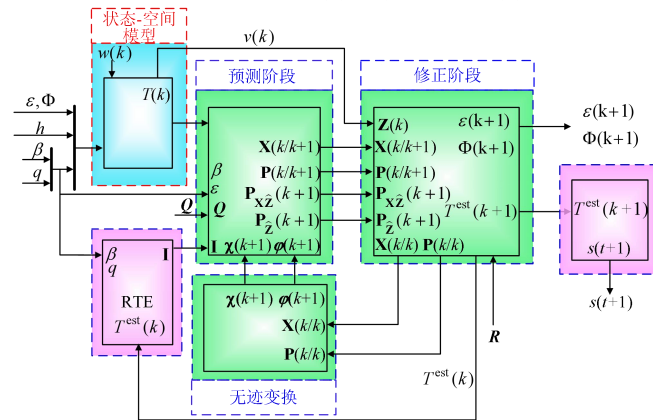


图3 无迹卡尔曼滤波技术计算流程图

2 辐射特征多宗量重建结果

2.1 一维重建

考虑厚度为 0.01m 的一维大平板介质，介质密度为 3980 kg/m^3 ，比热容为 $753 \text{ J/(kg}\cdot\text{K)}$ ，吸收系数和散射系数分别为 100 m^{-1} 和 100 m^{-1} ，导热系数为 $5 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ ；折射率为 1，壁面发射率为 0.9，内部热源大小为 $25 \times 10^6 \text{ W/m}^2$ 。

首先单独对半透明固体壁面发射率进行反演，其重建结果及误差图 4 所示，重建过程在 100 s 时开始迭代收敛到真值附近，由于计算过程添加了随机误差，重构结果存在振荡，并最终在真值附近波动，表明重建方法具有有效性。

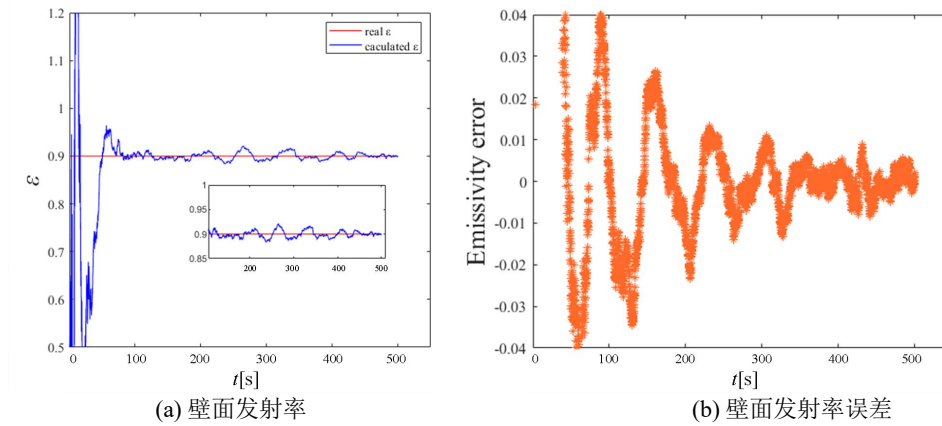


图 4 单独重建发射率结果

随后进行半透明固体壁面温度分布、发射率及内热源的同时反演，重建时间为 500s，最终得到的热辐射特征多宗量重建结果及误差如图 5 - 图 7 所示。在多宗量同时重建模型中，与温度和发射率相比，重建介质内热源时的收敛速度相对缓慢，但收敛过程更加平滑；计算达到收敛时，介质温度分布、壁面发射率和内热源的重建误差处于 10^{-3} 数量级，证明了所建立的热辐射特征多宗量模型具有准确性。

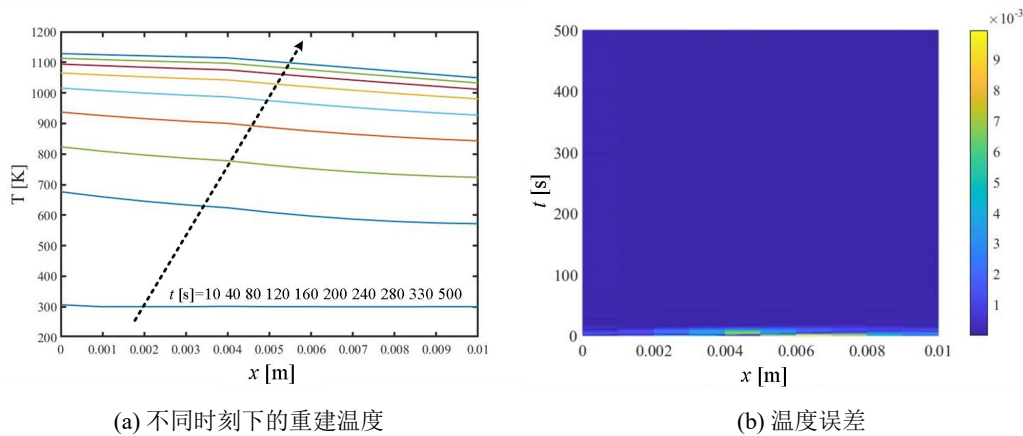


图 5 同时重建温度结果

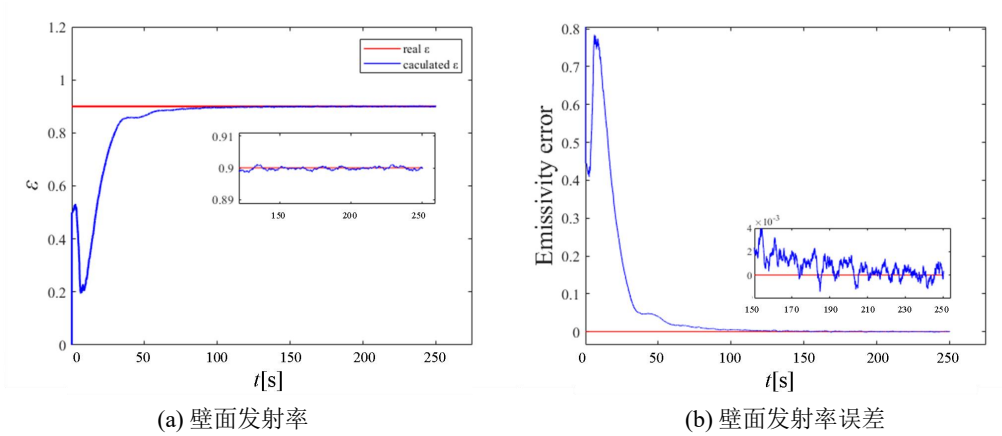


图6 同时重建发射率结果

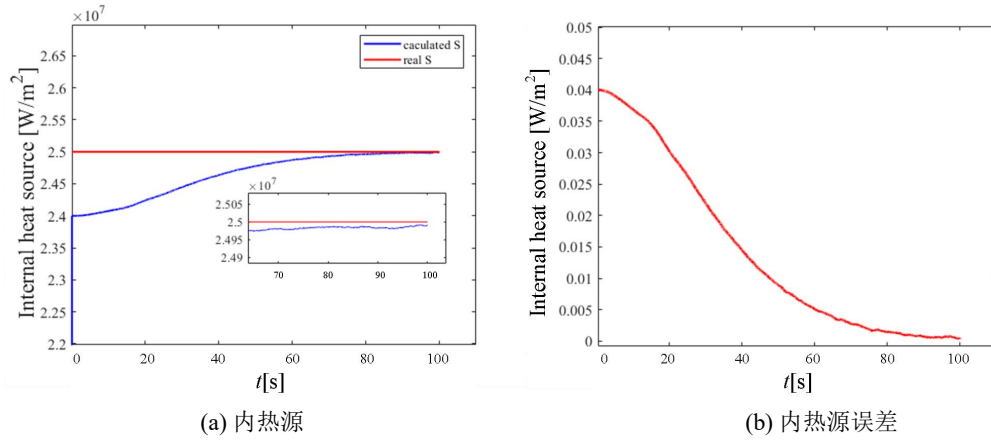


图7 同时重建内热源结果

2.2 二维重建

考虑大小为 $0.4 \times 0.4 \text{ m}^2$ 的二维矩形平板介质，介质光热物性参数设置与 2.1 小节相同，表面发射率和内部热源不均匀分布。首先单独对固体壁面发射率进行反演，固体表面分布着不同形状的发射率。重建结果及壁面发射率误差分别如图(a)和(b)所示。重建误差最大不超过 1.5%，重建结果和真实分布相近，能够反映出表面不同发射率的分布情况，表明重建模型可靠。

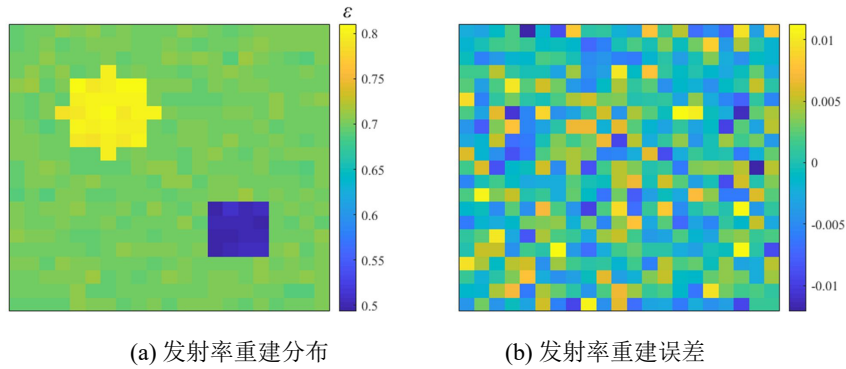


图8 单独重建发射率结果

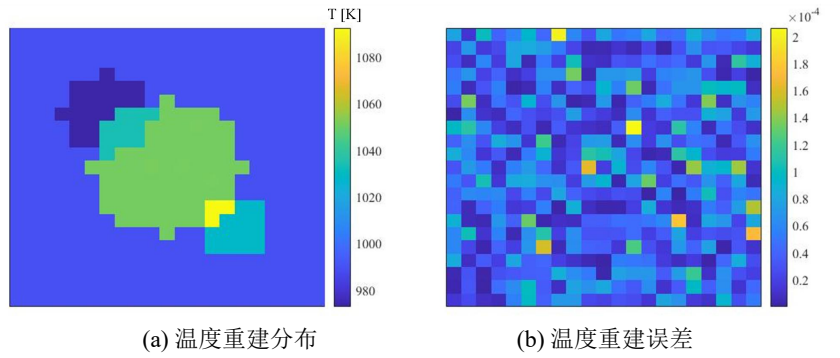


图 9 温度重建结果

随后同时对半透明固体壁面发射率、温度和内热源进行反演，重建出的温度分布及重建误差情况如图 9(a)和(b)所示，重建出的表面发射率分布及重建误差情况如图 10(a)和(b)所示；重建出的内热源分布及重建误差情况如图 11(a)和(b)所示。从图中可以看出，温度、发射率和内热源的重建误差最大都不超过 3%，说明重建结果准确性较高。在多宗量重建过程中，不同类别参数之间存在串扰，尤其是内热源分布对于发射率的重建过程产生的干扰作用更加明显，但此时发射率的最终重建误差仍然很低，串扰并未对发射率的重建结果可信度产生强烈影响。相比之下，发射率对内热源的干扰作用不太明显，考虑原因主要是内热源对温度变化反应更敏感，导致重建内热源的误差更大。

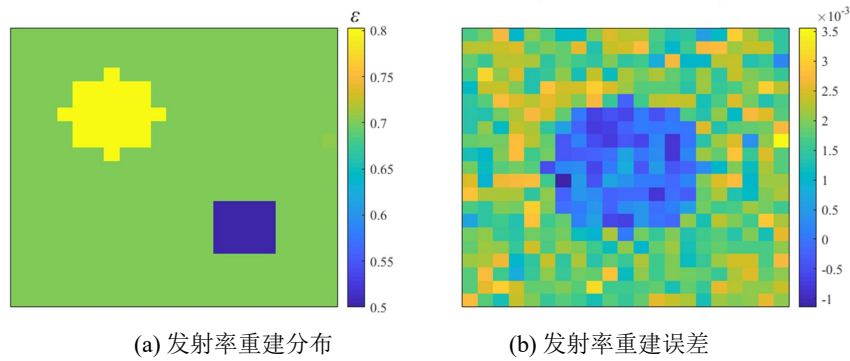


图 10 发射率重建结果

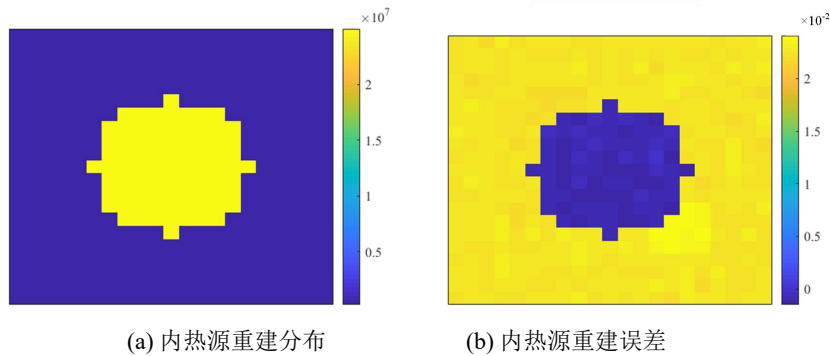


图 11 内热源重建结果

3 影响因素分析

3.1 敏感性分析

不同的天气、环境、日期时段等外界条件主要对太阳辐射热流 q_{in} 的大小产生影响，选择不同的边界流入辐射热流， $q_1=60000\text{W/m}^2$ 、 $q_2=80000\text{W/m}^2$ 、 $q_3=100000\text{W/m}^2$ 、 $q_4=120000\text{W/m}^2$ 、 $q_5=140000\text{W/m}^2$ ，分析已建立的半透明固体壁面热辐射多宗量重构模型对于 q_{in} 的敏感性。

选择反演过程中得到的壁面位置 $x=L$ 处的温度进行分析，不同太阳辐射热流分别对应着 T_1 、 T_2 、 T_3 、 T_4 、 T_5 ，具体的温度计算情况图 12 所示。重建的壁面发射率及内热源结果分别对应 ε_1 、 ε_2 、 ε_3 、 ε_4 、 ε_5 及 S_1 、 S_2 、 S_3 、 S_4 、 S_5 ，计算过程中的数值变化如图 13 所示， ε_0 和 S_0 分别是介质真实的发射率和内热源。

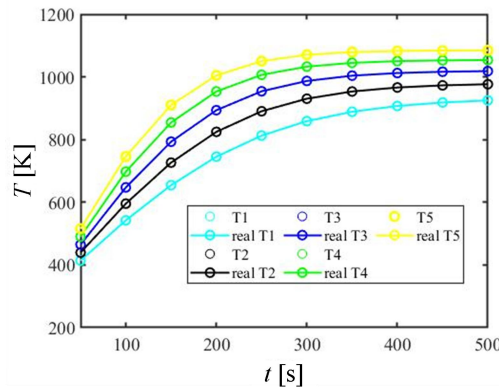


图 12 不同太阳辐射热流作用下 $x=L$ 处的温度反演计算结果

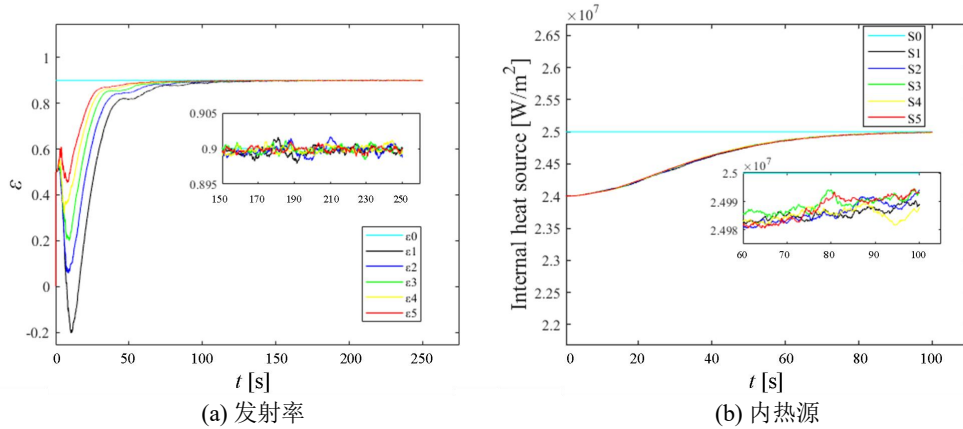


图 13 不同太阳辐射热流作用下的发射率及内热源反演计算结果

由重建结果可知，不同的太阳辐射热流基本不影响温度的重建效果，在整个计算过程中，重建温度始终贴近真实温度，温度对于太阳辐射热流的敏感性较低；不同的太阳辐射热流影响了发射率反演收敛到真值的速度快慢，太阳辐射热流值越高，收敛速度更快，但最终都在真值附近震荡，且幅度相近，这表明太阳辐射热流对于发射率的重建结果准确性影响不大；在不同的太阳辐射热流条件下，内热源反演收敛到真值的速度近似相等，并且最终的反演结果都非常接近真实内热源大小，这表明太阳辐射热流对于反演内热源的结果准确性及速度影响较弱。

3.2 测量噪声影响

在工程实际中，测量噪声往往是不可避免的，因此，为了验证当前算法的有效性，详细分析测量噪声对同时重建多个热辐射特征的影响是非常有必要的。考虑厚度为 0.01m 的一维大平板介质，介质密度为 3980kg/m^3 ，比热容为 $753\text{J/(kg}\cdot\text{K)}$ ，吸收系数和散射系数分别为 100m^{-1} 和 100m^{-1} ，导热系数为 $5\text{W/(m}\cdot\text{K)}$ ；折射率为 1，壁面发射率为 0.9，内部热源大小为 $25\times 10^6\text{ W/m}^2$ 。

图 14 - 图 16 分别展示了在添加 0.1K、0.2K、0.3K 的不同测量噪声下，基于无迹卡尔曼滤波技术重建得到的壁面位置 $x=L$ 处的温度重建误差、边界发射率及内热源分布和计算误差（由于在不同噪声下重建出的温度数据几乎完全重合，在此只展示温度的重建误差）。从图中可以发现，即使在添加了测量误差的情况下，在重建开始后的 150 s 内，重建出的内热源和发射率数值已经逐步收敛到真实值附近，重建出的温度在重建开始 250 s 之后也渐趋稳定，这证明了算法具备一定的近实时重建能力。

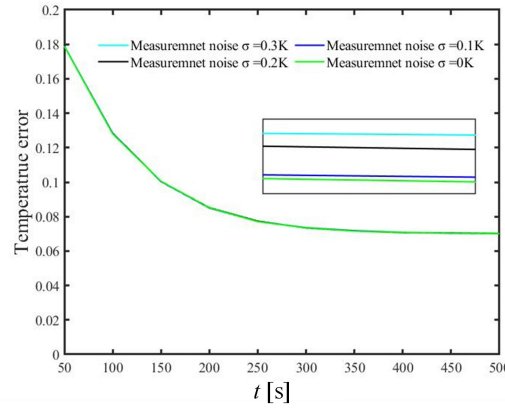


图 14 不同测量噪声下的温度重建误差

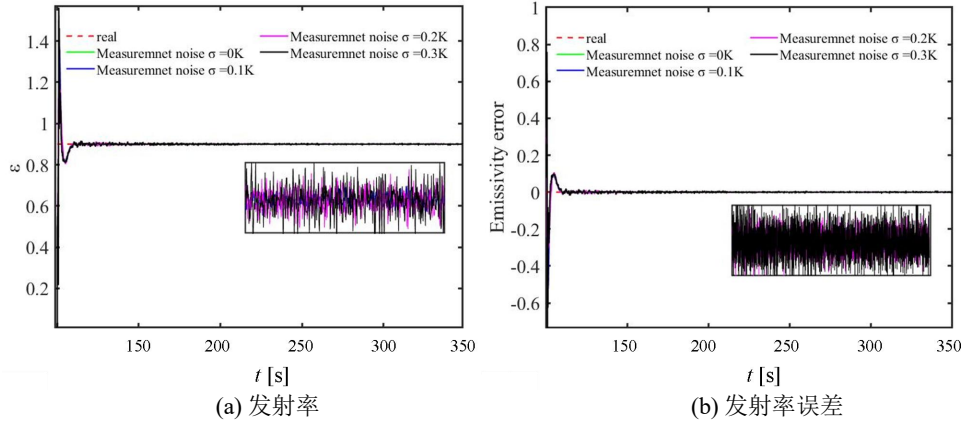


图 15 不同测量噪声下的发射率重建结果

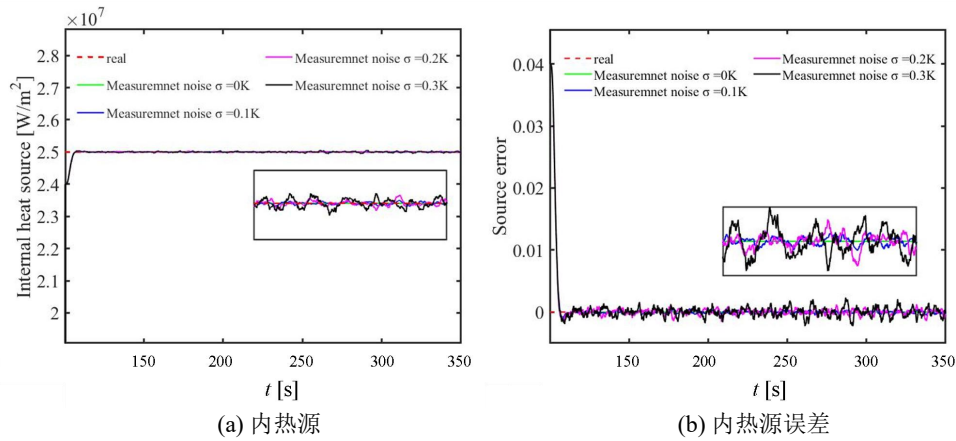


图 16 不同测量噪声下的内热源重建结果

随着测量噪声的增加，重建模型的稳定性受到影响，重建结果在真值附近产生小范围波动，本文所发展的重建热辐射特征多参量模型在 0.3 K 的测量噪声内的可信度较理想，证明了模型具有较好的鲁棒性。另一方面，重建参数的时滞几乎没有随着测量误差改变，这是由于在当前的研究中假设测量噪声与其协方差矩阵相互独立，滤波增益与测量噪声本身无关，所以测量噪声改变并不影响反演算法的追踪能力。

4 结 论

本文对高热流密度作用下半透明固体壁面热辐射多宗量的近实时重构进行了研究分析。首先对基于辐射源项解耦的辐射导热耦合换热正问题模型进行了介绍，分别利用离散坐标法和有限体积法求解辐射传输方程和能量方程，模拟了固壁物体中的辐射导热耦合换热过程。随后在一维和二维条件下，采用无迹卡尔曼滤波技术近实时地同时重建了半透明固体壁面温度分布、发射率和内热源。最后对重构模型的影响因素进行了分析。所得主要结论如下：

(1) 基于无迹卡尔曼滤波技术对固壁物体热辐射特征多总量进行同时重构的结果接近真实值，接近 0 的重建误差证明了所建模型具有较高的可信度。即便内热源对表面发射率的重建存在串扰作用，这并未明显影响内热源的重构准确性。

(2) 随着太阳辐射热流的增大，重建发射率的收敛速度更快，但最终都在真值附近震荡，且波动幅度相近，表明太阳辐射热流变化对于发射率的重构准确性影响微弱；反演温度和内热源时的收敛速度接近，且最终的反演结果都非常接近真实情况，这表明边界热流变化对于温度及内热源的反演准确性及速度影响都较小。

(3) 随着测量噪声的增大，重建过程仍具备较高的计算效率，这使得近实时重构成为可能。另外，测量噪声改变并不影响反演算法的追踪能力。重建收敛阶段仅随噪声增强产生越加明显的波动，但重构误差仍在理想范围内，重构结果具有可靠性，证明了所建模型的鲁棒性。

参考文献

- [1] Hitti G E, Nemer M, Khoury K E. Transient Radiation and Conduction Heat Transfer in Glass Sheets by the Thin Layer Approximation[J]. Journal of Heat Transfer ASME, 2010, 132(2).

- [2] 文爽. 基于卡尔曼滤波的参与性介质时变热流与温度场在线重构[D]. 哈尔滨工业大学, 2020. DOI:10.27061/d.cnki.ghgdu.2020.001784.
- [3] Myers D E, Martin C J, Blosser M L. Parametric Weight Comparison of Advanced Metallic, Ceramic Tile, and Ceramic Blanket Thermal Protection Systems[R]. NASA Langley Technial Report Server, 2000: 1-44.
- [4] Mandler W F, Yonushonis T M. Commercial Applications for Advanced Ceramics in Diesel Engines[J]. 2009, 22: 3-10.
- [5] Li D, Li Z, Zheng Y, Liu C, Lu L. Optical performance of single and double glazing units in the wavelength 337–900 nm[J]. Solor energy, 2015, 122: 1091-1099.
- [6] Johnson S M, Gasch M J, Leiser G D, Stewart D, Stackpool M, Thornton J, Espinoza C. Development of new TPS at NASA Ames research center[C]. 15th AIAA International Space Planes and Hypersonic Systems and Technologies Conference. Dayton: AIAA paper. 2008: 2560.
- [7] Lou C, Zhou HC. Decoupled Reconstruction Method for Simultaneous Estimation of Temperatures and Radiative Properties in a One-dimensional, Gray, Participating Medium[J]. Numerical Heat Transfer Part B, 2007, 51: 275-292.
- [8] Cui M, Gao X W, Chen H G. Inverse Radiation Analysis in an Absorbing, Emitting and Non-gray Participating Medium[J]. International Journal of Thermal Sciences, 2011, 50: 898-905.
- [9] Khayyam S, Sarvari S M H. Inverse estimation of thermal properties in a semitransparent graded index medium with radiation-conduction heat transfer[J]. ASME Journal of Heat Transfer, 2018, 140:092701.
- [10] Julier S J, Uhlmann J K, Durrant-Whyte H F. A new approach for filtering nonlinear systems[C]. American Control Conference, 2002, 3: 1628-1632.
- [11] Sunahara Y. An approximate method of state estimation for nonlinear dynamical systems[J]. International Journal of Control, 1970, 11(6): 957-972
- [12] 曹杨. 永磁同步电机参数辨识研究[D]. 济南 山东大学硕士研究论文, 2014.
- [13] 秦永元, 张洪钺, 汪淑华. 卡尔曼滤波与组合导航原理[M]. 西安: 西北工业大学出版社, 2015.

基于光热吸收-辐射制冷的立式全天无源 热发电装置研究

计云献, 谢银模, 蒋沛辉, 经纬, 孙克伟, 来庆志, 谭建宇

(哈尔滨工业大学(威海), 威海 264209)

(Tel: 0631-5687063, Email: xieyinmo@hit.edu.cn)

摘要： 环境能源的捕集与利用是实现新能源发电和双碳目标的关键。然而利用新能源以产生不间断的电力仍然具有挑战性。本文提出了一种同时利用天空冷源和太阳能的双侧反射结构的热电发电装置。设计并搭建了实验平台, 在没有任何能量输入的情况下, 实现了全天 24 小时发电。户外实验结果表明: 在日间热电发电功率为 139.64mW/m^2 。夜间发电功率为 0.944mW/m^2 。这个结果为偏远地区的离网小型设备提供了一种可以全天连续产生电力的新颖方法。

关键词： 辐射制冷; 新能源利用技术; 塞贝克效应; 热电发电

0 前言

全球能源的供应以石油和煤炭等传统化石燃料为主, 最近的一份报告显示^[1], 与能源有关的碳排放量已经达到历史最高水平, 极高的碳排放量在全球范围内造成了极为严重的环境问题^[2]。然而脱碳甚至零碳技术为由于经济和社会飞速发展而带来的全球气候变化提供了有效的策略^{[3][4]}, 能源转型和减少碳排放依然是全球所有国家需要思考的问题^[5]。其中, 利用可再生能源产生电力对实现碳达峰、碳中和目标具有重要的意义^[6]。但是新能源由于存在空间上分布不均匀、时间上不稳定、储存难度大、很难规模化利用等问题, 如何在不受时间和空间的限制下捕获绿色能量以实现不间断供电对我们来说是一大挑战^[7-9]。尤其是在离网地区^[10], 亟待需要一种结构简单紧凑的、可以规模化利用的全天发电装置。

而 TEG (Thermoelectric Generator) 可以在没有时间和地理位置限制的情况下利用温差将巨大的热能转化电能^[11-13]。它是一种基于塞贝克效应的热机, 被认为是未来最有发展前景和绿色环保的功率器件之一^[14-16]。如今, 热电技术不仅可以利用工业中的余热废热、人体皮肤表面、自然热源和放射性同位素等收集热源^[17-20], 还可以用于开发自供电的温度和光学传感器等^{[21][22]}。尽管这些应用已经成功地利用了热源, 但对于整个热电系统而言, 如果在原有基础上不仅可以收集热源, 同时还能够降低冷端温度从而增加温差, 就可以更有效地提高热电系统的效率。

值得注意的是, 温度为 3K 的宇宙空间要比环境温度低得多, 作为热沉是一种很好的降温手段。辐射制冷这一原理正好可以在不消耗能量的情况下实现降温: 通过大气窗

口波段（8-13 μm ）热量以热辐射的方式传递至低温外太空（3K）^[23-25]。随着日间辐射制冷技术的出现，太阳能电池冷却、冷却纺织品、建筑冷却等均是通过对辐射热流即通过大气窗口波段将热量从热物体中带走^[26-28]。特别地，从热力学角度，任何具有不同温度之间的热通量都可以用于产生有用功，而太阳能和外太空就是巨大的热源和冷源。因此可以在辐射制冷和太阳能之间选择架构一种热机——连接 TEG 从而实现温差发电。基于这种天然的热交换介质，让天空辐射制冷成为一种环保的无源的热电冷却技术。现如今，国内外杰出的学者已经逐步开展了同时利用太阳能加热和天空辐射制冷同时作用于 TEG 的研究。然而这个领域正处于探索时期，目前对于此主题下 TEG 的研究还不够充分，而且倾向于只关注热端^[29]或冷端^[30]，尤其对于实现全天发电仍缺乏广泛的研究。另外之前的研究都专注于冷端平行地面安装制冷发射器，TEG 进而直接面向深冷太空，向深冷太空发射热量，目前的学者们也通过在 TEG 下方安装金属翅片、利用温室效应、在 TEG 下方放置太阳光反射镜等手段提高热端温度^[30-32]。但是想要更高效地利用自然热源，需要从两方面进行改进：（1）TEG 冷热两端都应具有直接面向太空的表面，即提高太阳光的接受能力；（2）结构必须要可以扩展性利用，即具有更小的占地面积。

基于上述问题，本文提出了一种可同时利用天空冷源和太阳热能的基于双侧反射结构、简单紧凑的热电发电装置。该装置上的 TEG 将太阳光吸收涂层（SAC: solar absorptive coating）和被动辐射制冷涂层（PRCC: passive radiative cooling coating）耦合在一起，分别作用于太阳光高反射板和红外高发射板，以连续产生 24 小时电力。随着 SAC 通过太阳光高反射板吸收太阳能和 PRCC 借助红外高发射板透过大气窗口发射红外辐射波段能量。这种结构的提出使得 TEG 高效地利用了热源和冷源产生电力，同时可以缓解因碳排放带来的环境问题以及提高能源利用效率。我们设计了一个理论模型来讨论装置的全天性能。实验结果表明该装置全天的功率最高可达 $139.64\text{mW}\cdot\text{m}^{-2}$ 。本装置的特点在于高效地捕集并利用了存在于自然界的深空冷源和太阳能实现了零碳发电；同时这种结构不受环境影响，即使在没有阳光的情况下也能实现连续发电，实现了 24 小时全天候发电。这样一种零碳绿色的新能源发电技术，具有广阔的应用前景，如自供电的传感器和离网地区的电力供应。

1 双侧反射结构装置实现原理

相比于单一的基于光热吸收或辐射制冷的热电发电装置，在这里，本文展示了一种基于 V 型双侧反射结构的可同时利用天空冷源和太阳热能的立式发电装置。与之前研究不同的是 TEG 垂直于地面放置，两反射板成一定角度地分别位于 TEG 两侧（如图 1 所示）。太阳光选择吸收层和辐射制冷涂层分别覆盖于 TEG 两侧，其中太阳光选择吸收层（0.3-2.5 μm ）面对太阳光高反射板，该太阳光高反射板由具有 Ag 涂层的玻璃板组成，其中 Ag 对 0.3-2.5 μm 和 8-13 μm 高反射，玻璃对 0.3-2.5 μm 高透射、8-13 μm 红外高发射，实现 TEG 热端日间吸收太阳能升温；辐射制冷涂层面对红外高反射板，红外高反射板由抛光铝板组成。抛光铝板 0.3-2.5 μm 和 8-13 μm 高反射，实现 TEG 冷端全天候辐射制冷。

当在日间有太阳时，热电发电装置的升温侧，太阳光通过“V”型反射系统的太阳光

高反射板反射至热端的太阳光选择吸收层上,对 TEG 进行升温。热电发电装置的降温侧,通过“V”型反射系统的红外高反射板将热电装置冷端辐射制冷涂层发射出的 8-13 μm 红外辐射反射至深冷太空,进行辐射制冷,对 TEG 冷端进行降温。综上,热端提高了温度,冷端降低了温度,从而增大了温差,进而利用塞贝克效应实现发电。

重要的是,当在夜间或无太阳时,对于 TEG 的升温侧,太阳光选择吸收层面对的是反射系统里的太阳光高反射板介质层(即 8-13 μm 红外高发射)不直接面对深冷太空,从而阻断了 TEG 与天空之间通过 8-13 μm 波段大气窗口的辐射换热,解决了由于没有太阳时热端过度降温的问题。与此同时,冷端无论什么时候都保持与天空进行辐射制冷。这样冷端与热端 24 小时持续产生温差,装置实现全天连续发电。

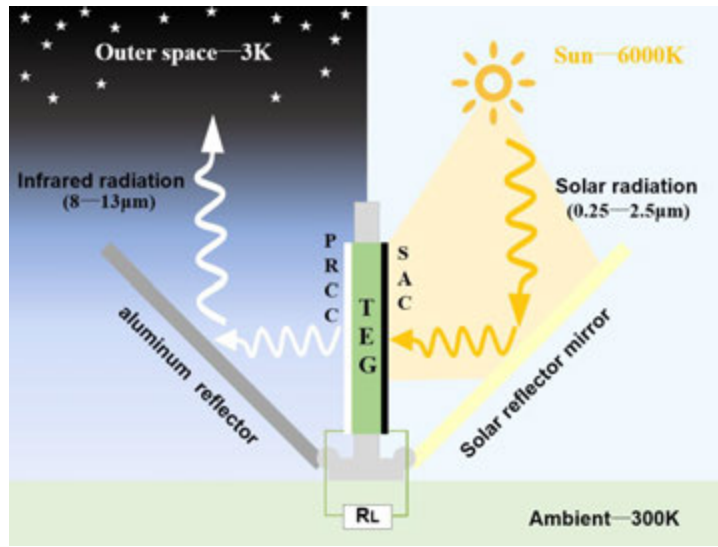


图 1 全天候发电装置原理示意图

2 双侧反射结构装置理论设计

本文建立一个理论模型来进一步了解冷源、热源与 TEG 输出功率之间的关系,描述设备的实验性能。如图 2 所示,冷热两端分别覆盖太阳能吸收涂层和辐射制冷涂层, R_L 作为输出功率的负载。图 3 是太阳能吸收涂层和辐射制冷涂层的光谱图。根据塞贝克效应,温差的存在是 TEG 产生电压的原因,为更好理解 TEG 的热力学过程,我们建立 TEG 两端的能量平衡方程:

对于热端,有:

$$P_{net}(T_{hot}) = P_{sun, hot} + P_{atm}(T_{amb}) - P_{rad}(T_{hot}) - P_{conv, hot} \quad (1)$$

在这里, $P_{net}(T_{hot})$ 表示 TEG 热端表面净加热功率, $P_{sun, hot}$ 表示太阳辐照功率即热端因吸收太阳波段能量导致热端温度升高的热功率, $P_{atm}(T_{amb})$ 表示环境温度为 T_{amb} 时热端涂层接收周围环境大气辐射能量功率, $P_{rad}(T_{hot})$ 表示涂层本身在温度 T_{hot} 下向外界发出的热辐射功率, $P_{conv, hot}$ 表示除去辐射项与环境间的对流换热功率。

相似地,对于冷端,有:

$$P_{net}(T_{prc}) = P_{rad}(T_{prc}) - P_{sun, prc} - P_{atm}(T_{amb}) - P_{conv, prc} \quad (2)$$

在这里, $P_{net}(T_{prc})$ 表示 TEG 冷端表面净被动制冷功率, $P_{rad}(T_{prc})$ 表示在冷端表面温度 T_{prc} 下辐射制冷涂层表面发射中远红外大气窗口射线的溢出功率, $P_{sun, prc}$ 表示冷端表面接收的太阳辐照功率, $P_{conv, prc}$ 表示为冷端表面除去辐射项与环境间的对流换热功率。

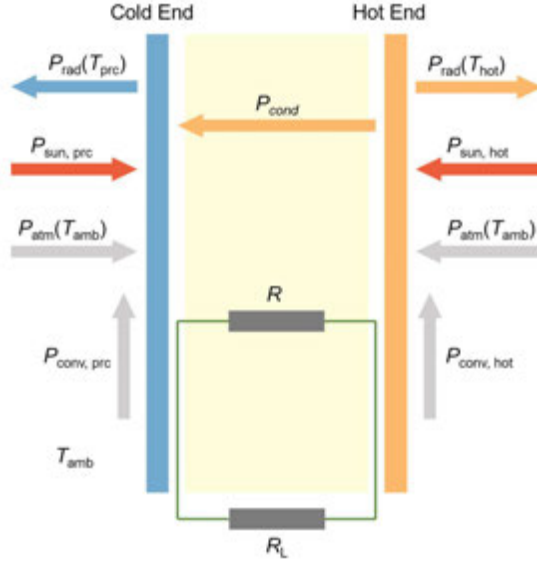


图2 冷源、热源与 TEG 输出功率之间的关系

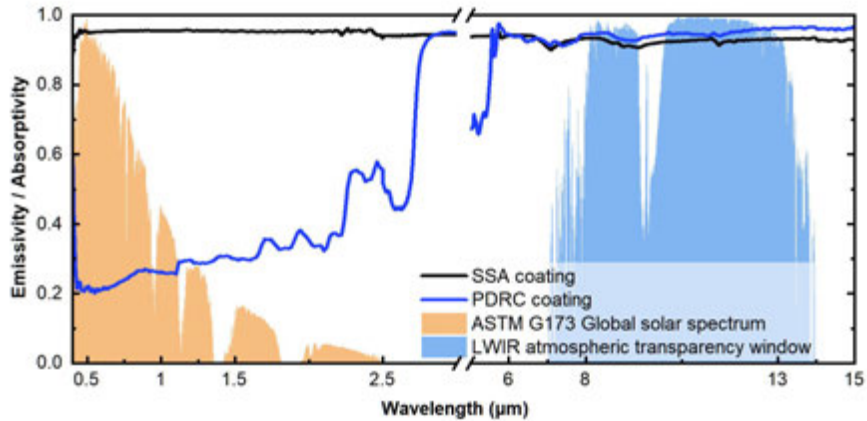


图3 涂层发射率(吸收率)的光谱示意图

上述是 TEG 冷热两端的热力学过程, 其中根据热力学第二定律, 热量总是自发地从高温物体传递到低温物体, 对于 TEG 冷热两端, 热端的热量通过热电模块传输至冷端, 即对于 TEG 内部存在热电臂的导热过程, 即

$$P_{cond} = A \cdot (T_{prc} - T_{hot}) / R_{TE} \quad (3)$$

其中 T_{hot} , T_{prc} 分别表示冷热两端温度, R_{TE} 表示热电内部的热阻。

对于整个 TEG 功率关系进行分析, 有

$$P_{rad}(T_{prc}) - P_{sun, prc} - P_{atm}(T_{amb}) - P_{conv, prc} - P_{cond} = 0 \quad (4)$$

$$P_{sun, hot} + P_{atm}(T_{amb}) - P_{rad}(T_{hot}) - P_{conv, hot} - P_{cond} = 0 \quad (5)$$

为确定两个温度，根据上述两个能量平衡方程，采用数值迭代方法求解。在使用热传导模型时，我们忽略了 TEG 内部的焦耳热。对于 TEG 温差是决定它产生电压的直接因素。根据 Seebeck 效应，有 $U=S(T_{hot}-T_{prc})$ ， S 是塞贝克系数。在理论模型中，负载电阻 R_L 连接到 TEG 两端作为输出端，TEG 单位面积下的输出功率可以计算为：

$$P_{out} = \left(\frac{U}{R + R_L} \right)^2 R_L / A_c = \left(\frac{S\Delta T}{R + R_L} \right)^2 R_L / A_c \quad (6)$$

其中 A_c 表示 TEG 的表面积， R 为 TEG 内部的电阻。最后可以得出最大输出功率随温差的关系，有：

$$P_{max, out} = \frac{(S\Delta T)^2}{4R} \quad (7)$$

3 户外实验

3.1 基于双侧反射结构的立式热电发电装置的户外实验性能

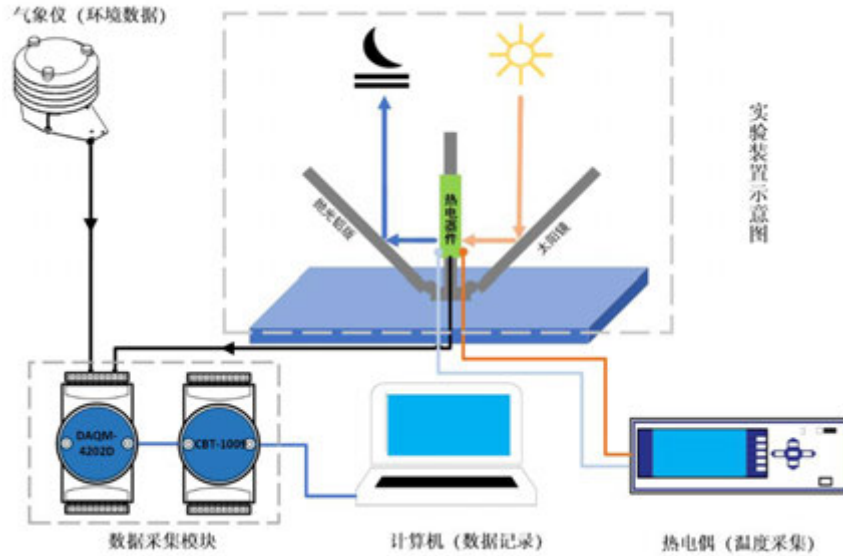


图 4 立式热电发电实验装置示意图

为了验证该立式热电发电装置的发电性能，本文搭建了户外实验测试平台。其中平台由三个功能区组成，如图 4 所示，每个部分都发挥着各自的作用：第一个部分是发电装置，包含两个成一定角度的金属板和中间的主体结构，两个金属板通过阻尼转轴与主体连接，可以任意调整角度以便更好地接收和发射能量。其中对于加热侧，金属板上使用玻璃镜，实现吸收涂层的太阳能加热并升高温度。对于降温侧，使用抛光铝板作为反射器，最大限度减少太阳能加热的同时进行与深冷太空的辐射制冷，降低冷端涂层温度。

由于是户外实验，为了减少器件与空气间的对流换热，我们在装置附近缠绕了低密度聚乙烯薄膜。第二部分是气象监测系统，太阳辐照计和气象仪分别用来测试太阳辐照强度和环境温度，以便更好地捕获更多的户外信息。第三部分是采集系统，其中电极探头安装在热电片的正负两端，K 型热电偶分别安装在热电片的冷热两端，以测量热电片的电压和两端的温度。同时，对于 TEG 的热端，能够大量的接收太阳镜反射的太阳光是实现热端温度大幅度提高的关键。我们利用有限元法分析了反射板角度对热电片性能的影响以此来指导我们实验。结果如图 6 所示，当角度为 45° — 60° 左右时具有较佳的性能。通过模拟发现，当反射镜与 TEG 之间的夹角适中时，能够更好地反射光线，使更多的光汇聚到 TEG 上，使得升温效果更加明显。

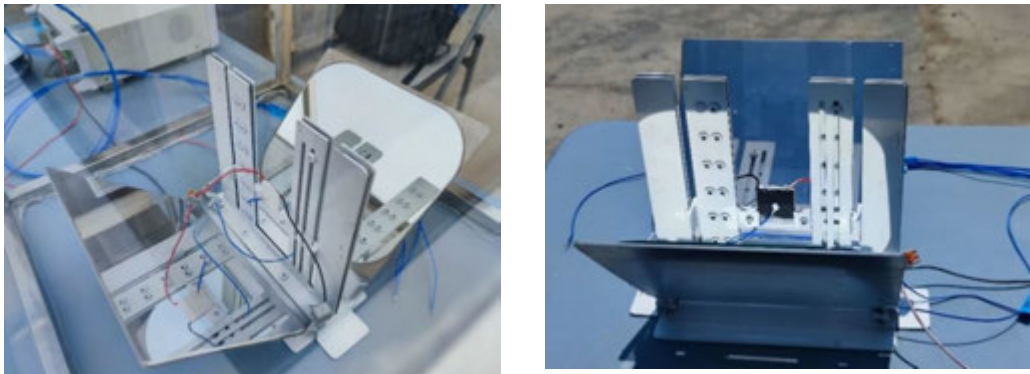


图 5 立式热电发电装置户外测试实物图

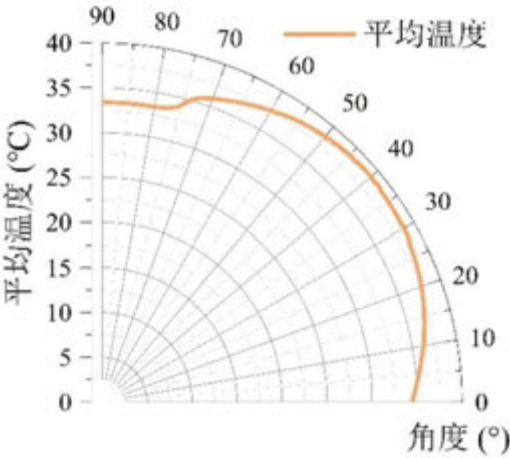


图 6 反射板与热电片不同夹角下的热端加热效果

本文的实验测试在山东省威海市（北纬 $37^{\circ}31'$ ，东经 $122^{\circ}4'$ ）开展，日间和夜间户外实验如图 7 所示。双侧反射板与 TEG 的夹角均为 45° 。本文展示的实验数据为在 2023 年 6 月 4 日 20:00 至 6 月 5 日 20:00 的实验测试结果，白天，热端被太阳辐射加热的时候，冷端同时进行辐射制冷。

导致 ΔT 最高上升至 3.0°C ，TEG 平均温度比环境温度高 2.3°C ，如图 8 所示。14:30 后，太阳辐照强度逐渐降低，冷热端温度曲线逐渐下降， ΔT 从 3.0°C 逐渐下降到 0.5°C ，其中与环境温度曲线相交在 16:30，如图 9 所示。同时，TEG 热源从太阳变成环境空气，同时热端由于面对介质层，加热方式变成与介质层之间的辐射换热。在夜间，平均 ΔT 为 0.3°C ，TEG 平均温度比环境温度低 0.6°C 。值得注意的是，日间热电发电功率高达

139.64mW·m⁻²，夜间发电功率为 0.944mW·m⁻²，如图 10 所示。该装置产生的电压是连续的，这就极大地解决了热电无法连续全天发电的问题；同时该结构也有较高的热电发电功率。



图 7 日间和夜间户外实验照片

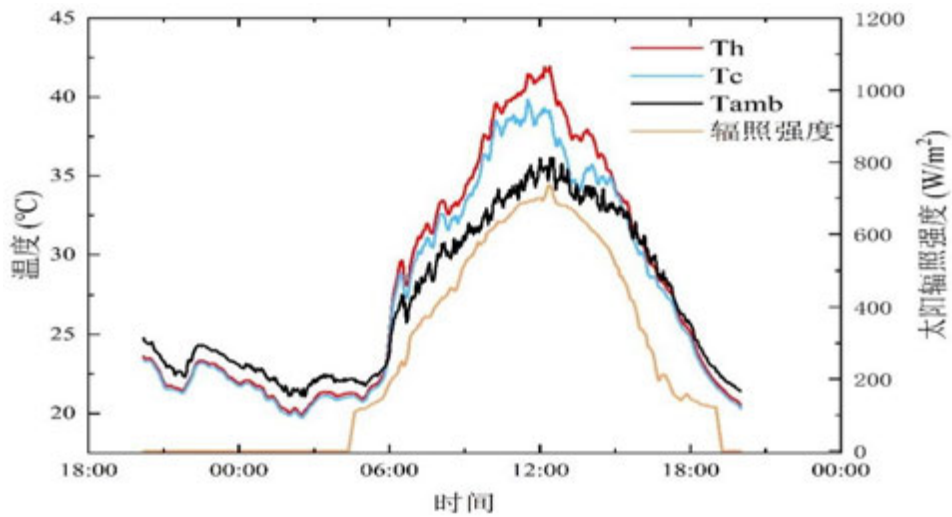


图 8 热端温度、冷端温度、环境温度和太阳辐照强度变化曲线

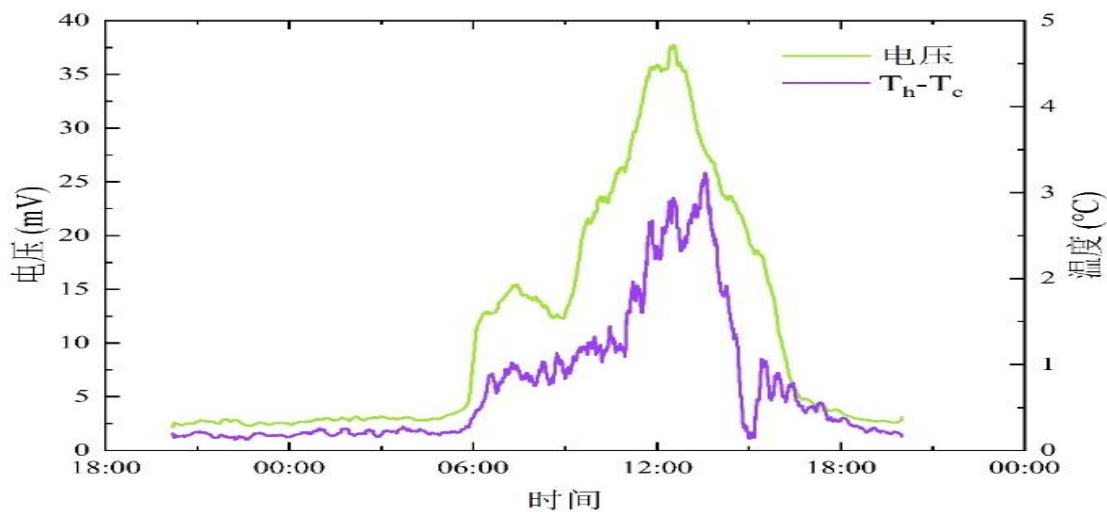


图 9 输出电压和冷热端温差变化曲线

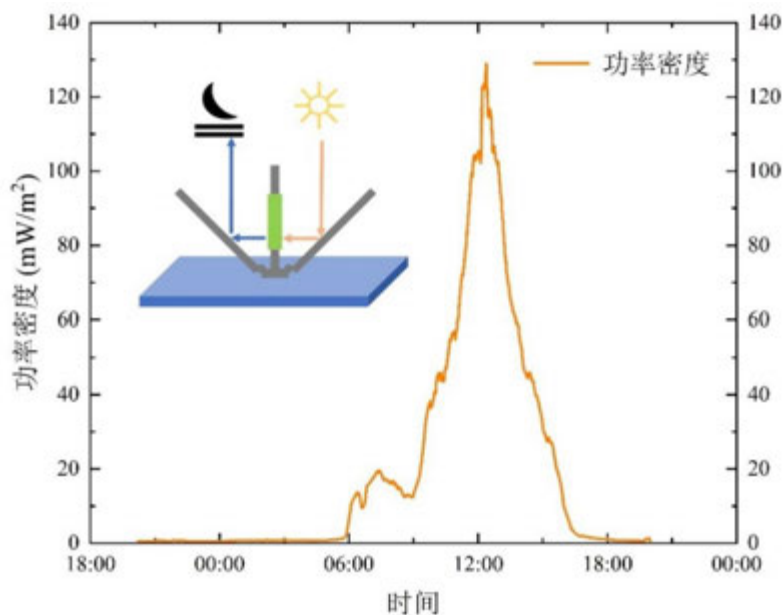


图 10 输出功率密度变化曲线

4 结论

本文设计并搭建了一种同时利用天空冷源和太阳热能的可实现全天连续发电的立式热电发电装置。本研究通过有限元仿真软件模拟了反射板不同角度对热电片温度的影响，并基于仿真结果进行立式结构的合理性以及高效性实验。本研究所得结论如下：

1) 基于有限元仿真发现，在相同条件下，改变太阳加热端的反射板和热电片之间夹角时，角度为 45° — 60° 时，太阳辐射对热电片的加热效果最好。

2) 基于仿真结果搭建提出了一种全新的立式结构。通过全天候实验测试，热电片冷热两端日间最大温差为 3.0°C ，夜间最大温差为 0.5°C 。全天候均有温差存在，实现 24

小时全天连续发电。

3) 本文所设计的装置实现日间热电发电功率高达 $139.64\text{mW}\cdot\text{m}^{-2}$, 夜间发电功率为 $0.944\text{mW}\cdot\text{m}^{-2}$ 的优异发电效果。

参考文献

- [1] G. Energy CO₂ status report IEA (International Energy Agency), Paris, France (2019)
- [2] B. Roy, A. Schaffartzik Talk renewables, walk coal: the paradox of India's energy transition *Ecol Econ*, 180(2021), p. 106871
- [3] Abbasi K R, Shahbaz M, Zhang J, et al. Analyze the environmental sustainability factors of China: The role of fossil fuel energy and renewable energy[J]. *Renewable Energy*, 2022, 187: 390-402.
- [4] Jenkins J D, Luke M, Thernstrom S. Getting to zero carbon emissions in the electric power sector[J]. *Joule*, 2018, 2(12): 2498-2510.
- [5] Dresselhaus M S, Thomas I L. Alternative energy technologies[J]. *Nature*, 2001, 414(6861): 332-337.
- [6] Zhao X, Ma X, Chen B, et al. Challenges toward carbon neutrality in China: Strategies and countermeasures[J]. *Resources, Conservation and Recycling*, 2022, 176: 105959.
- [7] Chu S, Majumdar A. Opportunities and challenges for a sustainable energy future[J]. *nature*, 2012, 488(7411): 294-303.
- [8] Halkos G E, Gkampoura E C. Reviewing usage, potentials, and limitations of renewable energy sources[J]. *Energies*, 2020, 13(11): 2906.
- [9] Sinsel S R, Riemke R L, Hoffmann V H. Challenges and solution technologies for the integration of variable renewable energy sources—a review[J]. *renewable energy*, 2020, 145: 2271-2285.
- [10] Peon R, Doluweera G, Platonova I, et al. Solid state lighting for the developing world: the only solution[C]//Fifth International Conference on Solid State Lighting. SPIE, 2005, 5941: 109-123.
- [11] Mao J, Chen G, Ren Z. Thermoelectric cooling materials[J]. *Nature Materials*, 2021, 20(4): 454-461.
- [12] Wu Z, Zhang S, Liu Z, et al. Thermoelectric converter: Strategies from materials to device application[J]. *Nano Energy*, 2022, 91: 106692.
- [13] Champier D. Thermoelectric generators: A review of applications[J]. *Energy Conversion and Management*, 2017, 140: 167-181.
- [14] Bell L E. Cooling, heating, generating power, and recovering waste heat with thermoelectric systems[J]. *Science*, 2008, 321(5895): 1457-1461.
- [15] Poudel B, Hao Q, Ma Y, et al. High-thermoelectric performance of nanostructured bismuth antimony telluride bulk alloys[J]. *Science*, 2008, 320(5876): 634-638.
- [16] Tohidi F, Holagh S G, Chitsaz A. Thermoelectric Generators: A comprehensive review of characteristics and applications[J]. *Applied Thermal Engineering*, 2022, 201: 117793.
- [17] Ge M, Li Z, Zhao Y, et al. Experimental study of thermoelectric generator with different numbers of modules for waste heat recovery[J]. *Applied Energy*, 2022, 322: 119523.
- [18] Khan S, Kim J, Roh K, et al. High power density of radiative-cooled compact thermoelectric generator

- based on body heat harvesting[J]. *Nano Energy*, 2021, 87: 106180.
- [19] Li T, Wu M, Xu J, et al. Simultaneous atmospheric water production and 24-hour power generation enabled by moisture-induced energy harvesting[J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 6771.
 - [20] Liu K, Tang X, Liu Y, et al. Experimental optimization of small-scale structure-adjustable radioisotope thermoelectric generators[J]. *Applied Energy*, 2020, 280: 115907.
 - [21] Pujadó M P, Gordillo J M S, Avireddy H, et al. Highly Sensitive Self-Powered H₂ Sensor Based on Nanostructured Thermoelectric Silicon Fabrics[J]. *Advanced Materials Technologies*, 2021, 6(1): 2000870.
 - [22] Li Y, Zhang Y, Li T, et al. A fast response, self-powered and room temperature near infrared-terahertz photodetector based on a MAPbI₃/PEDOT: PSS composite[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2020, 8(35): 12148-12154.
 - [23] Rephaeli E, Raman A, Fan S. Ultrabroadband photonic structures to achieve high-performance daytime radiative cooling[J]. *Nano letters*, 2013, 13(4): 1457-1461.
 - [24] Raman A P, Anoma M A, Zhu L, et al. Passive radiative cooling below ambient air temperature under direct sunlight[J]. *Nature*, 2014, 515(7528): 540-544.
 - [25] Zhai Y, Ma Y, David S N, et al. Scalable-manufactured randomized glass-polymer hybrid metamaterial for daytime radiative cooling[J]. *Science*, 2017, 355(6329): 1062-1066.
 - [26] Wang Z, Kortge D, Zhu J, et al. Lightweight, passive radiative cooling to enhance concentrating photovoltaics[J]. *Joule*, 2020, 4(12): 2702-2717.
 - [27] Hsu P C, Song A Y, Catrysse P B, et al. Radiative human body cooling by nanoporous polyethylene textile[J]. *Science*, 2016, 353(6303): 1019-1023.
 - [28] Wang T, Zhang Y, Chen M, et al. Scalable and waterborne titanium-dioxide-free thermochromic coatings for self-adaptive passive radiative cooling and heating[J]. *Cell Reports Physical Science*, 2022, 3(3): 100782.
 - [29] Kraemer D, Poudel B, Feng H P, et al. High-performance flat-panel solar thermoelectric generators with high thermal concentration[J]. *Nature materials*, 2011, 10(7): 532-538.
 - [30] Raman A P, Li W, Fan S. Generating light from darkness[J]. *Joule*, 2019, 3(11): 2679-2686.
 - [31] Wang C H, Chen H, Jiang Z Y, et al. Design and experimental validation of an all-day passive thermoelectric system via radiative cooling and greenhouse effects[J]. *Energy*, 2023, 263: 125735.
 - [32] Yu L, Xi Z, Li S, et al. All-day continuous electrical power generator by solar heating and radiative cooling from the sky[J]. *Applied Energy*, 2022, 322: 119403.
 - [33] Berdahl P, Martin M, Sakka F. Thermal performance of radiative cooling panels[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 1983, 26(6): 871-880.

基于手性等离激元效应的颗粒操控

李华欣, 王雨柔, 任亚涛*, 何明键, 齐宏

(哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001)

(Tel: 0451-86412638, Email: renyt@hit.edu.cn)

摘要: 手性是物体或分子的一种对称性质, 广泛存在于自然界中。互为手性异构体的两个物体对不同旋向圆偏振光的吸收存在显著差异。对于由手性异构体组成的微纳结构, 在特定频率的激光照射下会产生显著不同的等离激元效应, 并形成不同的电场分布。本文通过特定的手性纳米结构布置, 研究不同旋向圆偏振光下的等离激元效应, 使用麦克斯韦应力张量法计算了手性纳米结构发生等离激元共振效应时作用在周围颗粒上的光致力。通过改变圆偏振光的旋向, 实现了基于手性等离激元效应的颗粒操控。通过本文设计的手性纳米结构, 当入射圆偏振光的旋向发生变化时, 光力的方向发生了逆转, 实现了基于手性光学效应的颗粒操控。

关键词: 手性结构, 等离激元效应, 光镊

0 前言

当一个物体与自身镜像无法重叠, 则称该物体具有手性, 物体与镜像互为手性异构体^[1]。手性广泛存在于自然界中, 如人的手掌、DNA 双螺旋结构等, 同时在生物体中的蛋白质、DNA 等具有相同的手性趋向, 这可能与生命的共同起源有关^[2]。手性异构体的密度、熔点等物理性质相同, 但在其他某些性质上表现出不同的特性, 如手性异构体对圆偏振光存在差异性吸收。造成这一差异的主要原因是圆偏振光可以视为两个偏振方向垂直的线偏振光的叠加, 手性的存在使得手性异构体结构体分别对某一特定偏振方向的线偏振光吸收明显, 进而导致手性异构体对不同旋向的圆偏振光的差异化吸收, 这一差异化吸收可以用手性因子进行量化^[3]。而当一定波长的激光照射在金属或半导体时, 结构表面会产生明显的电场增强, 即表面等离激元效应^[4, 5]。该电场会对周围颗粒产生力的作用。对宏观尺度的物体, 该力可以忽略不计, 而对微纳尺度的颗粒, 这一作用力可以对颗粒运动产生显著作用, 如等离激元光镊就是依靠这一原理进行颗粒捕获^[6, 7]。当特定频率的圆偏振光照射与手性结构发生等离激元效应时, 不同旋向的圆偏振光会产生不同的电场分布, 进而对其中的颗粒产生不同的作用力, 因此可以利用手性结构与圆偏振光, 实现对微纳结构的操控等。

自光致力被发现以来, 微观尺度颗粒的操控已得到广泛研究, 基于等离激元共振效应的光致力更是打破了衍射极限的限制, 可以在亚波长尺度进行颗粒操控与分选。在之前的研究中, 我们设计了一种阵列式的颗粒分选装置, 实现了基于颗粒直径与折射率的颗粒分选^[8]。随着纳米技术的发展, 人工合成手性纳米结构的工艺越发成熟^[9-11], 手性等

离激元共振效应产生的光力作用也受到了广泛的关注。Wu 等人^[12]使用手性离激元纳米天线作为纳米马达，通过调整每个马达的光学功率（每个波长的每个圆偏振分量的功率）实现了类似宏观多旋翼无人机的三个独立自由度上的操纵。Hideki 等人^[13]使用三聚体纳米天线捕获的单个荧光纳米钻石在旋转线偏振光或圆偏振光的照射下实现了可控的轨道旋转。由于手性效应一定程度上依赖于圆偏振光的利用，同时手性结构的离激元效应存在一定的螺旋特征，因此手性光致力的研究大量集中于控制颗粒的旋转运动与角动量研究^[14-16]，本文计划通过在宏观上改变入射圆偏振光的旋向，改变的手性纳米结构的离激元共振效应，研究其周围的纳米颗粒受到的平移作用力，实现基于手性离激元效应的微粒操控。

为此，本文设计了一种简易的手性离激元纳米结构，用于研究基于手性离激元效应的颗粒操控研究。引入手性因子进行结构优化获得最佳的手性响应，使用时域有限差分法计算离激元效应的电场，并分析不同手性的颗粒在其中的受力。在本文所列条件中，在不同旋向的圆偏振光入射时，在手性离激元效应的作用下可以对手性场中的纳米颗粒产生不同的作用力，实现基于手性离激元效应的颗粒操控。

1 计算模型

1.1 手性纳米结构的离激元共振

手性结构最直观的特点是无法与自身的镜像重合，基于这一思路，本文设计了一种简易的手性纳米结构，其正视图与俯视图如图 1 所示。该手性结构的主体结构由两个不共面的金纳米棒嵌入四周的 SiO_2 组成。两个间距为 d 的平行金纳米棒通过将其中一根旋转一定的角度 θ ，就组成了本文采用的手性系统。本文使用的金纳米棒的尺寸为长 $l = 600 \text{ nm}$ ，宽 $w = 200 \text{ nm}$ ，高 $h = 50 \text{ nm}$ 。该结构是最简单的三维手性等离子体结构之一，已被广泛应用于手性响应的研究^[17-20]。这样设计的优势在于结构简单，便于研究不同因素对结构手性的影响。

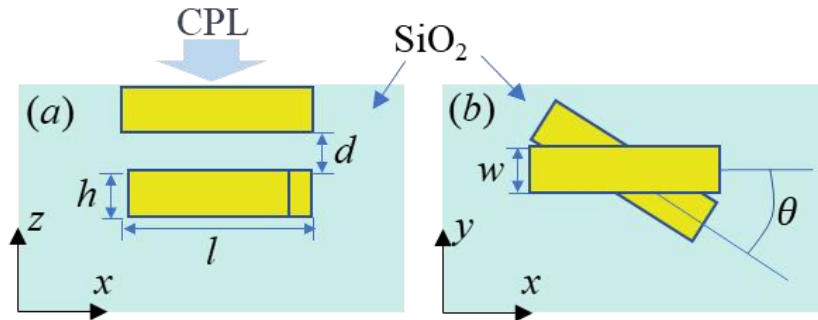


图 1 本文采用的手性纳米结构：(a)正视图，(b)俯视图

影响物体手性的因素有很多，如材料的性质、结构、形状等，为了得到最佳的手性响应，引入手性因子 g 对手性纳米结构的手性性质进行量化。手性因子越大意味着圆偏振光入射时产生的手性响应越强。在本文中，通过计算纳米结构在不同旋向的圆偏振光入射时的吸收截面确定，其值可以通过式 (1)来确定^[21]：

$$g_{abs} = \frac{2(A_{abs}^l - A_{abs}^r)}{A_{abs}^l + A_{abs}^r} \quad (1)$$

其中, A_{abs} 为纳米结构的吸收截面, 上标 l 代表左旋圆偏振光入射, 上标 r 代表右旋圆偏振光入射, 即该手性因子反应了手性结构对不同旋向的圆偏振光的差异化吸收。自然界中的绝大多数手性材料的手性由于尺寸, 复杂的相互作用等原因, 光学响应都非常弱, 通常小于 10^{-3} , 而对人工的纳米手性结构, 其值甚至会接近 1^[22-24]。更大的手性因子意味着在不改变其他因素时, 通过在宏观层面改变圆偏振光的旋向可以对微观层面的颗粒操纵产生更大的影响, 实现基于手性的光学调控。人工手性体的手性因子与其自身材质、结构紧密相关, 因此本文设计通过优化手性结构实现最佳的手性响应。

1.2 麦克斯韦张量法计算光致力

金属纳米结构在一定波长的激光照射下, 会发生局域表面等离子共振, 发生强烈的近场增强效应。通过时域有限差分法求解等离子共振时手性纳米结构周围的电磁场分布。有关局域表面等离子共振和时域有限差分法的介绍已在诸多文献中提及^[25-27], 本文不再赘述。在已知电磁场分布后, 本文通过麦克斯韦张量法求解光致力。

颗粒在电磁场中的受力可以分为两部分: 散射力和梯度力。散射力为光辐射压力, 沿着入射平面波的方向推动颗粒。而梯度力是由光场梯度产生的, 梯度力的方向指向焦点处^[28]。麦克斯韦应力张量法是一种常用的求解光力的方法, 通过定义电磁场中的麦克斯韦应力张量, 在受力物体表面积分即可以得到其受到的光力大小, 此方法的得到的光力为散射力和梯度力之和。电磁场应力张量表达式为^[29]:

$$\mathbf{T} = \left[\varepsilon_0 \mathbf{E} \mathbf{E} + \mu_0 \mathbf{H} \mathbf{H} - \frac{1}{2} (\varepsilon_0 E^2 + \mu_0 H^2) \mathbf{I} \right] \quad (2)$$

式中, \mathbf{E} 为电场强度, \mathbf{H} 为磁场强度, ε_0 是介质介电常数, μ_0 是介质磁导率, \mathbf{I} 为三阶单位张量。应力张量为对称张量, 包含 9 个分量, 可以表示为^[29]:

$$\mathbf{T} = \begin{bmatrix} \varepsilon_0 E_1^2 + \mu_0 H_1^2 - \frac{1}{2} (\varepsilon_0 E^2 + \mu_0 H^2) & \varepsilon_0 E_1 E_2 + \mu_0 H_1 H_2 & \varepsilon_0 E_1 E_3 + \mu_0 H_1 H_3 \\ \varepsilon_0 E_2 E_1 + \mu_0 H_2 H_1 & \varepsilon_0 E_2^2 + \mu_0 H_2^2 - \frac{1}{2} (\varepsilon_0 E^2 + \mu_0 H^2) & \varepsilon_0 E_2 E_3 + \mu_0 H_2 H_3 \\ \varepsilon_0 E_3 E_1 + \mu_0 H_3 H_1 & \varepsilon_0 E_3 E_2 + \mu_0 H_3 H_2 & \varepsilon_0 E_3^2 + \mu_0 H_3^2 - \frac{1}{2} (\varepsilon_0 E^2 + \mu_0 H^2) \end{bmatrix} \quad (3)$$

进一步可以求解颗粒电磁场中的受到的电磁力^[30]:

$$\mathbf{F} = \oint \langle \mathbf{T} \rangle \cdot \mathbf{n} \, dS \quad (4)$$

其中, $\langle \cdot \rangle$ 代表时均值, 由前面得的电磁场分布根据公式(3)就可以计算得到颗粒在电磁场中受到的光力。

2 计算结果及分析

本文首先通过改变手性纳米结构的扭转角 θ , 间距 d 进行目标函数 g 优化, 获得最佳的手性响应。通过改变入射圆偏振光的波长获得在该结构设置下的共振波长。在共振波长的圆偏振光入射时, 通过时域有限差分法求解等离子共振产生的电磁场。将要操

控的手性颗粒放置在手性等离子激元结构上方的不同位置，通过麦克斯韦应力张量法求解每个位置颗粒的受力情况，得到力的分布图。改变入射圆偏振光的旋转方向，重新计算颗粒受力，实现基于手性等离子激元效应的颗粒操纵。

2.1 手性结构优化分析

首先通过结构优化获得最佳的手性响应，设置默认入射光的波长为 1064 nm，采用完美匹配层边界条件，改变纳米结构的扭转角 θ 与间距 d ，通过计算不同结构设置下的吸收截面，进而通过式(1)计算手性因子，得到最佳的手性响应。在相同的入射光作用下，改变旋转角 θ 与金纳米棒间距 d ，计算两根金纳米棒的夹角从 0 变化到 90°，两纳米棒间的间隙从 20 nm 增大到 90 nm 时手性因子 g 的变化，从而进行手性金纳米结构的设计优化。计算结果如图 2 所示，当增大 θ 使两根金纳米棒从平行到垂直时，手性因子的总体变化趋势为先增大后减小，且显然当旋转角为 0 或 90° 时，结构变为完全对称结构，不再具有手性。在该计算域内， d 的变化对手性因子的影响相对较小，可见在本文的计算条件下，扭转金纳米棒手性结构的手性强弱主要与角度相关。通过计算，本文所设计金纳米棒手性结构的最大手性因子为 $g = 0.82$ ，此时所对应的参数为旋转角 $\theta = 33^\circ$ ，两根金纳米棒间的间隙 $d = 44$ nm。

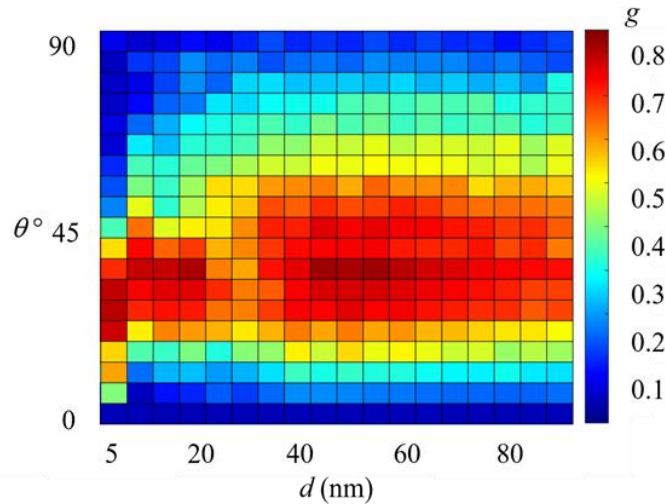


图 2 手性因子 g 随旋转角 θ 与金纳米棒间距 d 的变化

基于以上结果，本文选取金纳米棒间隙 $d = 44$ nm，旋转角 $\theta = 33^\circ$ 进行后续计算。在确定手性纳米结构尺寸后，通过计算不同波长下的吸收截面，通过吸收峰确定该结构发生等离子激元共振时的共振波长，为后续计算确定波长。按照上述尺寸，在波长 800 nm – 1600 nm 波段范围内进行计算，计算结果如图 3 所示，在该波长范围内，纳米结构存在两个吸收峰，造成该现象的原因是圆偏振光可以分解为两个垂直方向的线偏振光，该手性结构对不同方向的偏振光有不同的吸收峰造成的。在这里选取吸收峰较高的入射波长作为等离子激元共振波长进行后续计算，为了更加贴近实际，在本文中选取 850 nm 作为默认波长进行后续计算。

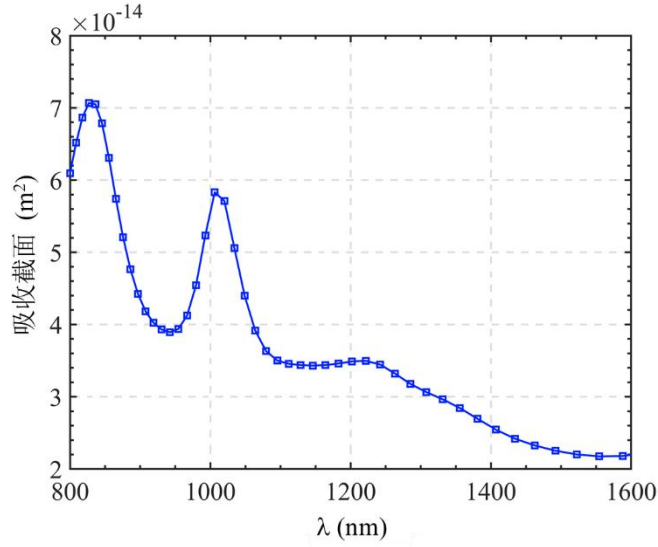


图3 手性等离子激元纳米结构吸收截面随入射波长的变化

在前面的工作中，我们确定了本文的计算参数。选取了适当的金纳米棒间隙和最佳的旋转角度，并确定了该设置下等离子激元共振波长。根据麦克斯韦应力张量法，进行光力计算需要得到计算空间内的电磁场分布。设置不同旋向的圆偏振光，使用时域有限差分法计算了在该参数下的电磁场分布。

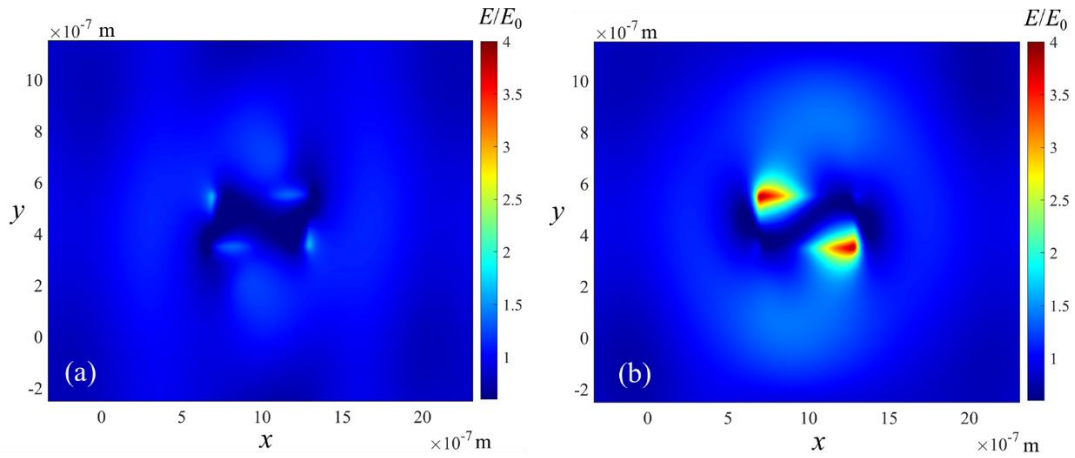


图4 不同旋向圆偏振光入射时手性等离子激元纳米结构周围的电场分布

(a) 右旋圆偏振光; (b) 左旋圆偏振光

图4展示的是在手性金属棒上方 20 nm 处 XOY 截面上的电场分布，通过等离子激元共振产生的电场强弱可以直观的观察手性结构的手性光学效应，由于手性结构对不同旋向的入射光存在差异化吸收，导致产生的等离子激元共振效果的强弱不同；同时由于圆偏振光旋向的改变，电场增强的区域也存在差异，更进一步，根据麦克斯韦应力张量法，改变外界入射圆偏振光的旋向引起电磁场分布的变化，在手性金纳米结构周围的颗粒受到的光力也会发生变化。

2.2 手性光致力分析

在前文中，通过模拟得到了手性纳米结构等离子元共振产生的电磁场，据此可以通过麦克斯韦应力张量法求解微纳颗粒在电磁场中受到的光力。本文计算被液体中的颗粒在发生等离子元共振的手性结构上方不同位置处受到的光学力。在本文中，激光功率密度 10^{10} W/m^2 ，波长为 850 nm 的圆偏振光入射，被捕获的颗粒为尺寸 100 nm 的手性聚苯乙烯微粒，其折射率为 $n = 1.56$ ，环境介质为水，通过不共面的棒状结构来模拟其手性，聚苯乙烯微粒的最低点距离金手性结构的距离为 20 nm 。

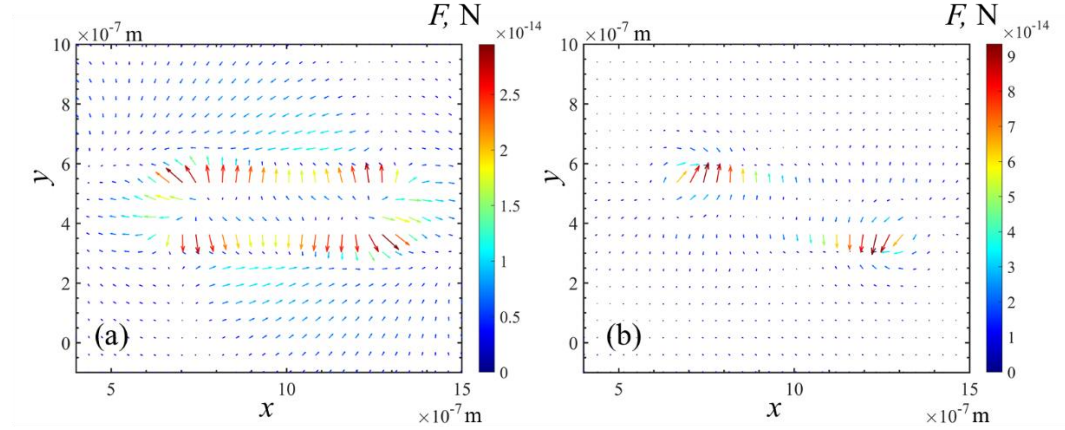


图 5 不同旋向圆偏振光入射时聚苯乙烯颗粒受到的光力

(a) 右旋圆偏振光; (b) 左旋圆偏振光

首先计算得到了手性颗粒在相同圆偏振光入射时受到的光致力。通过麦克斯韦应力张量法计算不同位置时聚苯乙烯颗粒受到的光力，之后改变入射圆偏振光的旋向，得到在不同旋向的圆偏振光入射时聚苯乙烯颗粒的受力情况，XOY 平面上的受力情况如图 5 所示。当圆偏振光入射时，聚苯乙烯颗粒在手性金纳米结构等离子元共振的影响下，产生了效果不同的作用力。在该种计算模型下，图 5(b)所示的左旋圆偏振光入射时的光力大小明显大于图 5(a)中左旋圆偏振光入射时对颗粒产生的光力，这也与图 4 中的电场分布与电场大小相吻合。证明了在使用手性结构配合圆偏振光进行微纳颗粒操控时，可以通过宏观上改变入射圆偏振光的旋向实现不同的颗粒操纵目的。

2.3 阵列式结构的光致力分析

在之前的研究中，我们证明了彼此接近的金属纳米结构会产生等离子元近场效应，对电场增强效果有增强效应^[8]。为了探究等离子元近场效应对手性等离激元效应的影响，进行了以下研究。复制原有结构，并沿 y 方向移动 450 nm ，得到新的几何模型，新模型的俯视图如图 6 所示。同样的，我们计算得到在 850 nm 圆偏振光入射时手性结构上方 20 nm 处 XOY 平面上的电场分布，如图 7 所示。在近场作用的影响下，电场并非简单的线性相加，而是在靠近的位置上发生了一定的杂化耦合，这一点在右旋光入射时的电场分布中尤为明显。为了研究近场效应对光力的影响，在得到电磁场分布后，按照 2.2 节的相同步骤进行光力的计算，计算得到的光力分布如图 8 所示。

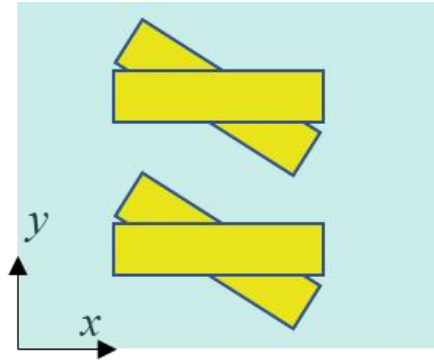


图 6 手性阵列结构计算模型俯视图

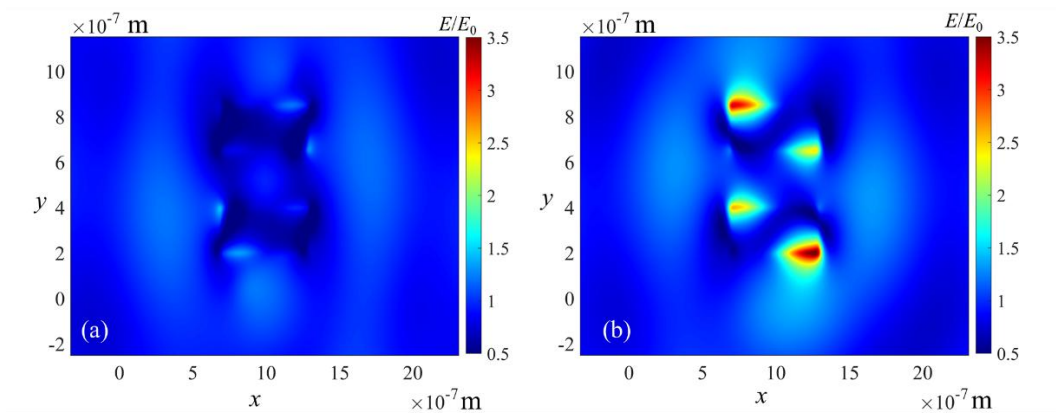


图 7 手性阵列结构在不同圆偏振光入射时的等离激元共振电场分布

(a) 右旋圆偏振光; (b) 左旋圆偏振光

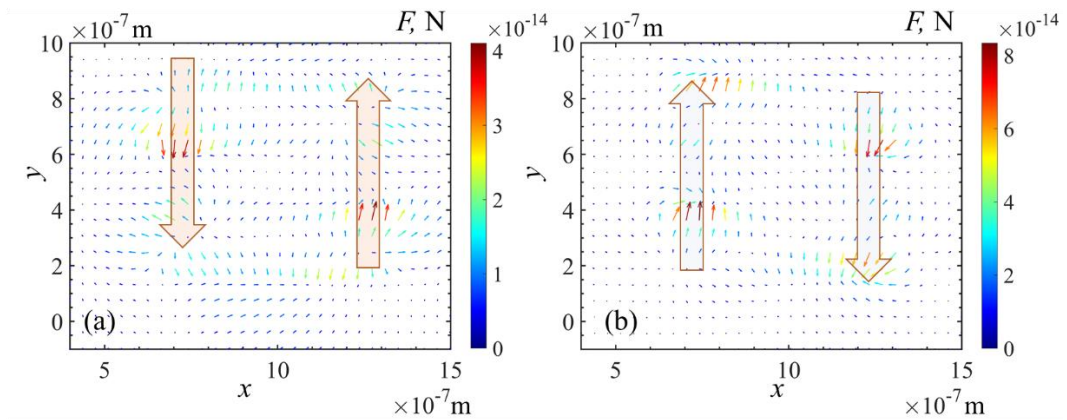


图 8 阵列手性结构在不同圆偏振光作用下作用在周围颗粒上的光力

(a) 右旋圆偏振光; (b) 左旋圆偏振光

图 8(a)为右旋圆偏振光作用下的阵列手性结构对周围聚苯乙烯颗粒的光力作用，与图 5(a)对比，显然在近场效应的影响下，光力并非线性叠加，而是存在一定的耦合关系。与图 8(b)所示的左旋圆偏振光作用下的光力分布对比，对不同旋向圆偏振光的差异化吸

收造成的光力大小差别依然明显；除此之外，在光力较为明显的几处，当入射圆偏振光的选项发生变化时，作用在该处颗粒的光力方向发生了近乎 180° 的变化，这一结论极具应用价值，即在不改变微观结构的基础上，仅通过改变外界宏观入射光的旋向，即可实现光力方向的反转，而在宏观上圆偏振光旋向的改变是较为容易的，只需要更换波片即可实现圆偏振光的方向，进而可以改变流场中颗粒的运动方向。因此根据这一结论，本文设计的结构可以直接应用于基于手性等离激元效应的颗粒操控。

3 结 论

本文设计了一种简易的手性等离激元纳米结构，引入手性因子这一依据针对结构的旋转角与间距进行优化，从而获得最佳的手性特性；并根据对不同波长光的吸收能力确定所得结构的共振波长。通过时域有限差分法计算在圆偏振光入射下结构发生等离激元共振时的电场分布，最后通过麦克斯韦应力张量法确定不同手性颗粒的受力情况。通过本文优化得到的结构在圆偏振光照射下，在不同旋向的圆偏振光入射下，单个手性金纳米结构发生等离激元共振效应时会对周围的微纳颗粒产生效果不同的作用力，同时因为手性结构对不同旋向的圆偏振光的差异化吸收，等离激元效应发生时的电场增强与光力的大小会有显著差异。在使用阵列结构的手性纳米结构时，由于存在近场增强效应，电磁场发生了杂化耦合，产生了并非单个结构手性叠加的作用力。在该结构下，当入射圆偏振光的旋向发生改变时，对周围颗粒产生的光力方向会发生逆转，实现了基于手性光学的微纳颗粒操控。在这一结论下，仅通过简单的宏观光学布置的改变即可实现颗粒微观操作，在颗粒分选，纳米医药等方面有巨大应用潜力。

参考文献

- [1] Wang S B, Chan C T. Lateral optical force on chiral particles near a surface [J]. *Nature Communications*, 2014, 5.
- [2] Okamoto H. Optical manipulation with nanoscale chiral fields and related photochemical phenomena [J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews*, 2022, 52(April): 100531-.
- [3] Wu A A, Tanaka Y Y, Shimura T. Giant chiroptical response of twisted metal nanorods due to strong plasmon coupling [J]. *APL Photonics*, 2021, 6(12).
- [4] Ren Y, Qi H, Chen Q, et al. Optofluidic control using light illuminated plasmonic nanostructure as microvalve [J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2019, 133: 1019-25.
- [5] Maier S A J s b. *Plasmonics : fundamentals and applications* [M]. 2007.
- [6] Ritchie D B, Woodside M T. Probing the structural dynamics of proteins and nucleic acids with optical tweezers [J]. *Current Opinion in Structural Biology*, 2015, 34: 43-51.
- [7] Juan M L, Righini M, Quidant R. Plasmon nano-optical tweezers [J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(6): 349-56.
- [8] Li H, Ren Y, Li Y, et al. Nanoparticles manipulation using plasmonic optical tweezers based

- on particle sizes and refractive indices [J]. *Opt Express*, 2022, 30(19): 34092-105.
- [9] Liu N, Liu H, Zhu S, et al. Stereometamaterials [J]. 2008, 3(3): 157-62.
- [10] Lee H E, Ahn H Y, Mun J, et al. Amino-acid- and peptide-directed synthesis of chiral plasmonic gold nanoparticles [J]. 2018, 556(7701): 360-5.
- [11] Esposito M, Tasco V, Todisco F, et al. Three Dimensional Chiral Metamaterial Nanospirals in the Visible Range by Vertically Compensated Focused Ion Beam Induced - Deposition [J]. 2014, 2(2): 154-61.
- [12] Wu X, Eehalt R, Razinskas G, et al. Light-driven microdrones [J]. *Nature Nanotechnology*, 2022, 17(5): 477-84.
- [13] Fujiwara H, Sudo K, Sunaba Y, et al. Spin–Orbit Angular-Momentum Transfer from a Nanogap Surface Plasmon to a Trapped Nanodiamond [J]. *Nano Letters*, 2021, 21(14): 6268-73.
- [14] Qin Y, Zhou L M, Huang L, et al. Nonlinearity-induced nanoparticle circumgyration at sub-diffraction scale [J]. 2021, 12(1).
- [15] Khalid B, Bai X, Wei H, et al. Direct Blow-Spinning of Nanofibers on a Window Screen for Highly Efficient PM2.5 Removal [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(2): 1140-8.
- [16] Wang K, Schonbrun E, Steinvurzel P, et al. Nanoparticle manipulation using a plasmonic nano-tweezer with an integrated heat sink; proceedings of the CLEO: 2011 - Laser Science to Photonic Applications, F 1-6 May 2011, 2011 [C].
- [17] Zhao Y, Belkin M A, Alù A J N C. Twisted optical metamaterials for planarized ultrathin broadband circular polarizers [J]. 2012, 3: 870.
- [18] Liu T, Besteiro L V, Liedl T, et al. Chiral Plasmonic Nanocrystals for Generation of Hot Electrons: Toward Polarization-Sensitive Photochemistry [J]. 2019, 19(2): 1395-407.
- [19] Lan X, Lu X, Shen C, et al. Au Nanorod Helical Superstructures with Designed Chirality [J]. 2014, 137(1).
- [20] Kuzyk A, Schreiber R, Zhang H, et al. Reconfigurable 3D plasmonic metamolecules [J]. 2014, 13(9): 862-6.
- [21] Reyes Gómez F, Oliveira O, Albella P, et al. Enhanced chiroptical activity with slotted high refractive index dielectric nanodisks [J]. *Phys Rev B Solid State*, 2020, 101: 155403.
- [22] Tang Y, Cohen, Adam E J S. Enhanced Enantioselectivity in Excitation of Chiral Molecules by Superchiral Light [J]. 2011.
- [23] Schäferling M. Chiral nanophotonics : chiral optical properties of plasmonic systems [J]. 2017.
- [24] Hentschel M, Schäferling M, Duan X, et al. Chiral plasmonics [J]. 2017, 3(5): e1602735.
- [25] Chen, Bhola, Huang, et al. Multi-level multi-thermal-electron FDTD simulation of plasmonic interaction with semiconducting gain media: applications to plasmonic amplifiers and nano-lasers [J]. 2010.
- [26] Liu Y, Sarris C D, Eleftheriades G V J J o L T. Triangular-Mesh-Based FDTD Analysis of

Two-Dimensional Plasmonic Structures Supporting Backward Waves at Optical Frequencies [J]. 2007, 25: 938-45.

- [27] Ahmed, Png C E, Li E, et al. Electromagnetic waveguiding in metallic plasmonic structures using FDTD; proceedings of the IEEE-NANO IEEE Conference on Nanotechnology, F, 2008 [C].
- [28] Quidant R, Petrov D, Badenes G. Radiation forces on a Rayleigh dielectric sphere in a patterned optical near field [J]. Optics Letters, 2005, 30(9): 1009-11.
- [29] 胡耿军. 基于 FDTD 的单光镊光阱力计算 [D]. 合肥; 中国科学技术大学精密仪器与机械学科硕士学位论文, 2010.
- [30] 袁泽嵘. 基于纳米天线阵列结构的光学捕获和输运技术研究 [D]. 南京; 东南大学光学工程学科硕士学位论文, 2016.

梯度同位素掺杂平板间近场辐射换热特性⁻

⁻ 基金项目：国家自然科学基金（No. U22A20210）

原伟哲¹, 崔贵成¹, 周承隆¹, 易红亮¹
(哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150001)
(Tel: 0451-86412674, Email: yihongliang@hit.edu.cn)

摘要: 本文率先研究了梯度同位素掺杂平板间近场辐射特性, 相较于同位素富集的均匀介质, 梯度同位素掺杂介质能够在小间距时增强近场辐射换热并出现内部吸收峰。此外, 本文发现了沿厚度方向质量递增的体系随渐变层厚度增加, 换热先增强后减弱, 而质量递减的体系出现先减弱后增强再减弱的趋势, 表现出不同的依赖关系; 揭示了同位素散射的增大能够在较大渐变层厚度时增强换热。本文对同位素工程在热管理中的应用具有一定的指导意义。

关键词: 近场辐射传热; 同位素工程; 梯度折射率; 内部激元

0 前言

当两个换热的物体间的距离变得与它们的特征波长相近或者小于热波长时, 热辐射 Planck 定律和 Stefan-Boltzmann 定律不再成立, 此时由于光子隧穿效应等近场效应, 辐射热流可以超过远场几个数量级^[1-2]。近场巨大的辐射热流在各种应用中具有巨大潜力, 如热管理^[3]、热光伏^[4]、热整流^[5]等。

为了改善这些应用的性能, 人们一直致力于通过探索新型材料来实现近场辐射换热最大化, 如支持表面声子激元(SPhP)的极性介质材料(SiC、SiO₂ 等)和支持表面等离子激元(SPP)的金属材料(Au、Ag 等)^[6]。以往多数研究假设材料是均一的, 然而实际上, 在很多情况下, 介电函数不是均匀分布的, 而是呈梯度分布的, 如图 1 所示, 由于不可避免的不均匀掺杂^[7]、异质结接触^[8]、粗糙度^[9]或外电场^[10]材料内部将出现的梯度折射率区域。梯度折射率介质内存在的一种新的极化激元机制: "内部激元"可使吸收峰值处于介质内部, 与表面等离激元 SPP 具有显著不同的性质^[11]。"内部激元"提供了更多的电磁状态, 特别是在低频区域, 引起近场热流谱的红移, 还可以改善介质内部的局部吸收。根据这一特性, 调控梯度介电函数分布的光子 P-N 结^[12]、金属-氧化物-半导体(MOS)结构^[13-14]被提出用于调谐近场辐射热流。许多元素有两种或两种以上的稳定同位素, 它们的原子质量不同, 不同同位素组成的材料往往表现出不同的物理性质, 特别是与晶体结构和晶格动力学密切相关的物理性质, 这是由于各种同位素质量效应所致^[15]。同位素质量效应引起的声子频移以及同位素质量无序引起的声子散射导致的展宽^[16], 将对材料的近场辐射特性产生影响^[17-18]。值得注意的是, 不同体系之间同一种元素不同同位素的相对丰度存在差异, 此即同位素分馏^[19]。同位素质量效应引起的质量相关分馏在浓度、温度、压力场中都可能发生^[20-21], 也成为了同位素分析测试的主要原理。根据这一效应或同位素掺杂^[22], 可以人工制备出同位素相对丰度梯度变化的材料。然而, 同位素相对丰度梯度变化的介质间的近场辐射换热特性及内部激元效应还有待探索。

为此, 本文结合涨落电动力学和传递矩阵法, 探究同位素相对丰度梯度变化的材料间近场辐射换热特性。首先简要介绍同位素质量及同位素散射对于材料光学性质的影响。然后以两稳定同位素梯度掺杂体系为对象, 分析渐变层厚度、同位素散射大小、真空间距对于辐射换热系数的影响。最后研究梯度介质近场辐射能流及吸收的空间分布特性, 分析其内部激元效应及对穿透深度的影响。

1 梯度同位素掺杂平板间近场辐射传热的理论模型

对于本文关注的具有梯度同位素相对丰度变化的介质, 其介电函数沿厚度方向按一定的规律变化, 可以用等效多层介质模型逼近梯度同位素相对丰度变化的介质^[11]。本文采用这一方法, 结合传输矩阵法对其近场辐射换热特性进行分析。如图 1, 考虑两半无限大梯度同位

素平板，温度分别为 T_1 和 T_2 ， $T_1 > T_2$ ，并且假定环境温度与 T_2 相同。温度较高的一端为发射段，温度较低的一端为接收端。两平板被真空间隙 d 隔开。梯度同位素平板由梯度渐变部分和基底部分构成。梯度渐变部分厚度为 d_g ，由 N 层等效介质近似逼近，基底部分介电函数 ε_m 均一，厚度为无穷大。

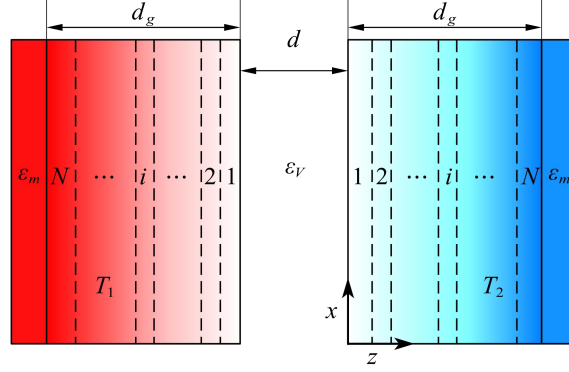


图 1 梯度同位素平板间近场辐射传热示意图

由于同位素效应的大小与不同稳定同位素原子相对质量变化有关，相对质量变化越大，材料的物理性质变化越明显^[17]。因此，为了突出梯度同位素的作用，本文选用稳定同位素原子相对质量变化较大的 LiX ($\text{X}=\text{H}, \text{D}, \text{T}$) 为研究对象^[23]，其介电常数由洛伦兹模型给出：

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_{\text{LO}}^2 - \omega_{\text{TO}}^2}{\omega^2 - \omega_{\text{TO}}^2 + i\Gamma\omega} \right) \quad (1)$$

其中， ε_∞ 是高频介电常数， ω_{TO} 和 ω_{LO} 是布里渊区中心横向和纵向光学声子频率， Γ 是阻尼因子与声子线宽有关。通常， ε_∞ 对同位素不敏感^[24]，可以认为是常数。而声子频率对同位素组成非常敏感，这可以由谐振子模型进行解释，其声子频率与约化质量 μ 的关系为： $\omega \propto \mu^{-1/2}$ ，与拉曼测试得到的规律一致^[25]。无杂质的完美丰度 LiX 的阻尼因子为 $\Gamma = 0.1\omega_{\text{TO}}$ ^[26]，同样受到同位素效应的影响。含有不同稳定同位素的介质的阻尼因子还受到声子同位素散射的影响^[27]，若二元介质含有多种不同的稳定同位素，其质量波动声子散射参数可表示为：

$$g = \sum_i c_i \left[\frac{m_i - \bar{m}}{\bar{m}} \right]^2 \quad (2)$$

$$\bar{m} = \sum_i c_i m_i \quad (3)$$

其中， m_i 为该元素第 i 种稳定同位素的质量， c_i 为其丰度， \bar{m} 为介质中该元素的平均原子质量。考虑同位素散射修正的阻尼因子可估计为^[28]：

$$\Gamma_{\text{iso}} = g \frac{\pi\omega^2}{12} N_d(\omega) \quad (4)$$

其中 $N_d(\omega)$ 为声子态密度，并且经过 $\int_0^\infty N_d(\omega) d\omega = 6$ 归一化。本文参考东京大学 phonondb 数据库中的声子谱及声子态密度^[29]，利用该方法估计得到的同位素散射与实验结果符合较好^[30]。无同位素散射的同位素富集的 LiX 的介电函数如图 2(a) 所示，实部 ε_1 和虚部 ε_2 分别用实线和虚线表示。由图中可以看出，Li 原子质量变动对介电函数的影响较小，而 H 原子的质量变化对介电函数的影响较大，产生了较大的频移，这是由于 H 原子不同稳定同位素质量相对变化较大导致的。为了凸出梯度变化对介质介电函数的影响，同时由于自然界中 LiH

锂原子质量为 6.941，接近于 7，本文后续仅考虑 ^7LiH 、 ^7LiD 、 ^7LiT ，即仅考虑氢的三种稳定同位素所构成的梯度介质。为了简化复杂度，本文仅考虑介质中存在两种质量相近的稳定同位素丰度沿厚度方向线性渐变。不同同位素混合会出现同位素质量无序效应，不同混合比的 $^7\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$ 、 $^7\text{LiD}_x\text{T}_{1-x}$ 的声子频率及质量波动声子散射参数如图 2(b)、(c) 所示，可以看到质量波动声子散射随混合比增大先增大后减小，存在一峰值，且在同位素完全富集时为 0。从图中同样可以看出相对原子质量变化越大，同位素效应越明显，具体体现为声子频率及质量波动声子散射参数变化越大。

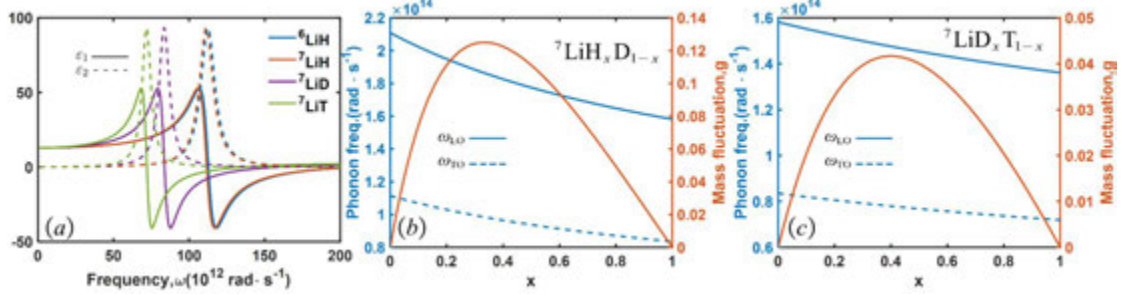


图 2 同位素对 LiX (X=H,D,T) 介电函数和声子性质的影响：(a) 无混合 LiX 的介电函数；(b) $^7\text{LiH}_x\text{D}_{1-x}$ 、 $^7\text{LiD}_x\text{T}_{1-x}$ 不同混合比对声子频率及质量波动声子散射参数的影响

在涨落电动力学框架下，两个平行各向同性平板之间的辐射换热系数的公式为^[2]：

$$h(T, d) = \int_0^\infty \frac{d\omega}{4\pi^2} \frac{\partial \Theta(\omega, T)}{\partial T} \int_0^\infty \beta d\beta \times [\tau_s(\omega, \beta) + \tau_p(\omega, \beta)] \quad (5)$$

其中， h_ω 为光谱辐射换热系数， d 为平板间距， T 为温度 $\Theta(\omega, T) = \hbar\omega / [\exp(\hbar\omega / k_B T) - 1]$ 为角频率 ω 处的普朗克谐振子能量， β 为平行波矢， τ_s 和 τ_p 分别为 s 和 p 极化模式的光子传递系数，通过下式进行求解^[2]：

$$\tau_{\alpha=s,p}^{12}(\omega, \beta) = \begin{cases} \frac{(1 - |r_\alpha^1|^2)(1 - |r_\alpha^2|^2)}{|1 - r_\alpha^1 r_\alpha^2 e^{2i\gamma_0 d}|^2}, & \beta \leq k_0 \\ \frac{4\text{Im}(r_\alpha^1)\text{Im}(r_\alpha^2)e^{-2\text{Im}(\gamma_0)d}}{|1 - r_\alpha^1 r_\alpha^2 e^{2i\gamma_0 d}|^2}, & \beta > k_0 \end{cases} \quad (6)$$

其中， $k_0 = \omega / c$ 是真空中波矢， $\gamma_0 = \sqrt{k_0^2 - \beta^2}$ 为垂直波矢， α 表示 s 或 p 极化， r_α^i 为界面的菲涅尔反射系数。多层等效平板的菲涅尔反射系数可由传输矩阵法进行求解^[2]。

2 计算结果及分析

2.1 梯度渐变部分厚度对近场辐射换热系数的影响

本文仅考虑发射端和吸收端材料组成相同的结构之间的近场辐射换热，研究介质中存在两种质量相近的稳定同位素相对丰度沿厚度方向线性渐变的情况，分为 ^7LiH 、 ^7LiD 和 ^7LiD 、 ^7LiT 渐变两种情况。在发射端和吸收端间距为 10 nm，温度为 300 K 时，梯度渐变层厚度对总辐射换热系数的影响如图 3 所示。由图 3 可以看出，存在一最佳渐变层厚度使得辐射换热系数最大，并且某些厚度情况下，同位素梯度渐变层的存在使得近场辐射热流优于同位素富集的均匀介质的近场辐射热流。图 3(a) 展现了梯度渐变层厚度对由 ^7LiH 、 ^7LiD 构成的渐变介质近场辐射的影响，并考虑了渐变方向对近场辐射的影响，图中 $^7\text{LiH} \rightarrow ^7\text{LiD}$ 表示，靠近

真空间隙处为纯 ^7LiH 材料，沿厚度方向渐变为 ^7LiD ，反之亦然。为了便于与均匀材料进行比较，图中还画出了半无限大同位素富集材料的近场辐射换热系数进行比较，由于同位素质量效应导致的声子频移，质量越大的材料声子频率越低，而普朗克谐振子能量随频率增高递减，因此半无限大 ^7LiD 平板的近场辐射热流高于 ^7LiH 。由图 3 可以看到当梯度渐变层厚度极小时，梯度渐变介质近场辐射换热系数接近于基底纯同位素半无限大平板的近场辐射换热系数，这是由于梯度渐变层厚度较小，远小于表面声子激元的穿透深度，介质的近场辐射特性主要由基底部分主导。而当梯度渐变层厚度较大时，梯度渐变介质近场辐射换热系数逐渐趋近于表层纯同位素半无限大平板的近场辐射换热系数，这是由于渐变层的厚度大于表面声子激元的穿透深度，介质的近场辐射特性主要由靠近表面的同位素富集的材料主导。为了进一步分析渐变层厚对近场辐射换热的影响，理清渐变层厚度与表面声子激元的穿透深度相近时的近场辐射特性，下文将对含两种稳定同位素的梯度渐变介质的光谱辐射换热系数(图 4)和光子传递系数(图 5、6)进行分析。对比图 3(a)和图 3(b)可以发现 ^7LiH 、 ^7LiD 和 ^7LiD 、 ^7LiT 渐变介质具有类似的变化规律，但由于 ^7LiD 、 ^7LiT 渐变介质相对原子质量变化较小，换热系数的相对变化较小。不失一般性，下文以 ^7LiH 、 ^7LiD 渐变介质为例对渐变层厚对近场辐射换热的影响进行更深一步分析。

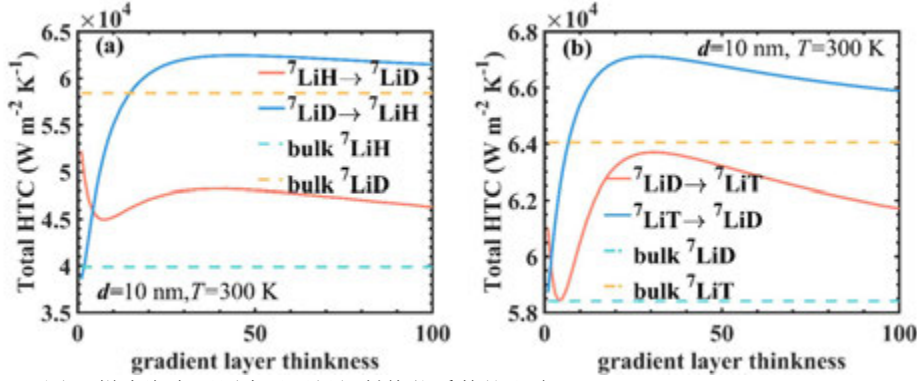


图 3 梯度渐变层厚度对近场辐射换热系数的影响：(a) ^7LiH 、 ^7LiD ；(b) ^7LiD 、 ^7LiT

图 4 分别给出了梯度渐变层厚度对 $^7\text{LiH} \rightarrow ^7\text{LiD}$ 和 $^7\text{LiD} \rightarrow ^7\text{LiH}$ 渐变介质光谱辐射换热系数的影响。对于由表层 ^7LiH 渐变至 ^7LiD 的介质，由图 4(a)，随着梯度渐变层厚度的增加，光谱换热系数的峰值先减小后增大并且蓝移，峰的展宽先增大后减小。这可以通过图 5 不同渐变层厚度情况下的光子传递系数解释。

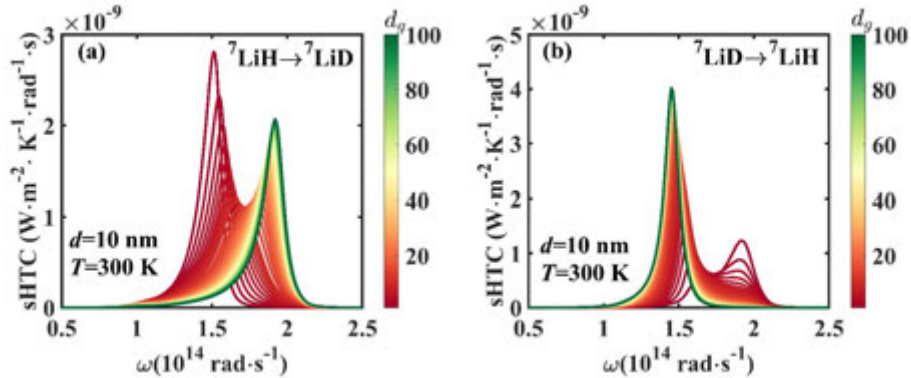


图 4 梯度渐变层厚度对光谱辐射换热系数的影响：(a) $^7\text{LiH} \rightarrow ^7\text{LiD}$ ；(b) $^7\text{LiD} \rightarrow ^7\text{LiH}$

由图 5(a)可以看出，当渐变层厚度极小时(1nm)，光子传递系数接近于纯 ^7LiD ，未出现内部耦合 SPhPs 模式^[11]。当渐变层厚度增大至 10nm 时，具有较高光子传递系数的区域大幅蓝移，

这将减弱近场辐射热流，此外出现了耦合 SPhPs 模式，高光子传递系数的区域略有拓宽，波矢减小，这解释了图 3(a)该渐变层厚度范围，随渐变层厚度增大，辐射换热系数减小的现象。当渐变层厚度增大至 30nm 时，具有较高光子传递系数的区域小幅蓝移，这可以通过图 4(a)中曲线的疏密程度看出，蓝移随着梯度渐变层厚度的增加的程度减小。同时可以看出，梯度同位素导致的内部 SPhPs 耦合增加，具有较高光子传递系数的区域面积增大，而波矢并未较 10nm 渐变层厚度时减小，因此导致近场辐射的增强。当渐变层厚度变得更大时，共振频率已和表层同位素富集材料一致，而耦合 SPhPs 模式减弱，具有较高光子传递系数的区域面积减小，波矢增加，近场辐射特性逐渐趋近于没有梯度存在的表层纯同位素富集材料。综上，对于由表层 ${}^7\text{LiH}$ 渐变至 ${}^7\text{LiD}$ 的介质，随渐变层厚度增加，出现了共振蓝移主导、内部激元耦合主导和内部激元退耦三个阶段。

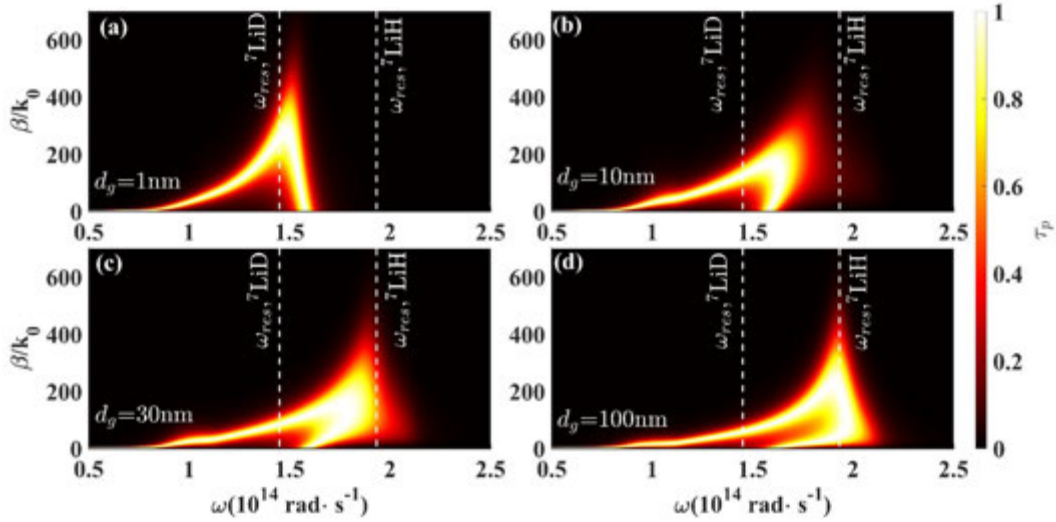


图 5 梯度渐变层厚度 ${}^7\text{LiH} \rightarrow {}^7\text{LiD}$ 渐变介质光子传递系数的影响：(a) $d_g=1\text{nm}$ ；(b) $d_g=10\text{nm}$ ；(c) $d_g=30\text{nm}$ ；(d) $d_g=100\text{nm}$

对于由表层 ${}^7\text{LiD}$ 渐变至 ${}^7\text{LiH}$ 的介质，由图 4(b)，随着梯度渐变层厚度的增加，光谱换热系数的峰值先减小后增大，峰的展宽先增大后减小。这可以通过图 6 不同渐变层厚度情况下的光子传递系数解释。由图 6(a)可以看出，当渐变层厚度极小时(1nm)，光子传递系数接近于纯 ${}^7\text{LiH}$ ，未出现内部耦合 SPhPs 模式。当渐变层厚度增大至 10nm 时，具有较高光子传递系数的区域大幅红移，这将增强近场辐射热流，此外出现了耦合 SPhPs 模式，高光子传递系数的区域拓宽，波矢增大，这解释了图 3(b)该渐变层厚度范围，随渐变层厚度增大，辐射换热系数增大的现象。当渐变层厚度增大至 30nm 时，具有较高光子传递系数的区域小幅红移至 ${}^7\text{LiD}$ 的共振频率处，达到红移上限。由图 4(b)中曲线的疏密程度同样可以看出随着梯度渐变层厚度的增加，红移的幅度减弱。从图 6(c)中还可以看出，高波矢处的耦合 SPhPs 模式增强，低波矢处的耦合 SPhPs 模式减弱，因此近场辐射热流进一步增加。当渐变层厚度变得更大时，共振频率已和表层同位素富集材料一致，而耦合 SPhPs 模式减弱，低波矢处具有较高光子传递系数的区域面积减小，近场辐射特性逐渐趋近于没有梯度存在的表层纯同位素富集材料。综上，对于由表层 ${}^7\text{LiD}$ 渐变至 ${}^7\text{LiH}$ 的介质，随渐变层厚度增加，出现了共振红移并且内部激元耦合和内部激元退耦两个阶段。

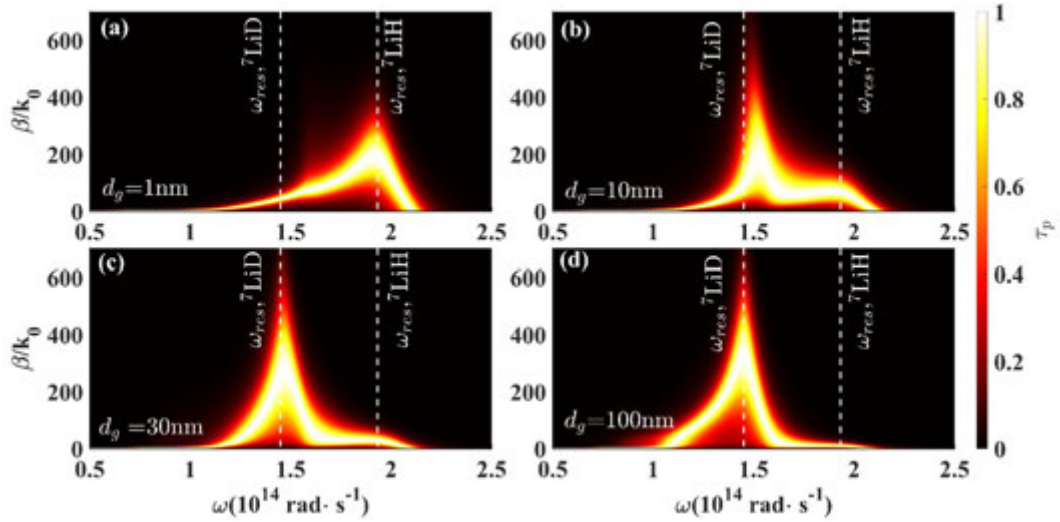


图 6 梯度渐变层厚度对 ${}^7\text{LiD} \rightarrow {}^7\text{LiH}$ 渐变介质光子传递系数的影响: (a) $d_g=1\text{nm}$; (b) $d_g=10\text{nm}$; (c) $d_g=30\text{nm}$; (d) $d_g=100\text{nm}$

2.2 同位素散射对于梯度渐变介质近场辐射换热的影响

本节以表层 ${}^7\text{LiD}$ 渐变至 ${}^7\text{LiH}$ 的介质为例研究同位素散射对于梯度渐变介质近场辐射换热的影响。此处为了理清同位素散射的作用机制，在式(4)估算的同位素散射修正的阻尼因子人为的乘以一个修正因子 f : $\Gamma'_{\text{iso}} = f\Gamma_{\text{iso}}$ ，来研究其对近场辐射的影响。

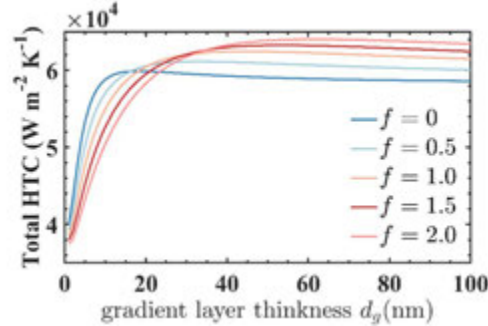


图 7 同位素散射大小对梯度渐变介质近场辐射换热系数的影响

图 7 给出了当同位素散射修正因子分别为 0、0.5、1.0、1.5、2.0 时，两平板间距为 10nm，温度为 300K 时的近场辐射总换热系数。由图 7 可以看出，当梯度渐变层厚度较小时，同位素散射不利于增强近场辐射热流，当梯度渐变层厚度较大时，同位素散射有利于增强近场热流。此外，随着同位素散射的增强，实现最佳换热的梯度渐变层厚度增加。为了分析这一机制，我们画出光子传递系数图进行分析。

图 8 给出了当同位素散射修正因子分别为 0、0.5、1.0、1.5、2.0 时，两平板间距为 10 nm，梯度渐变层厚度为 10 nm、50 nm 时的光子传递系数。当渐变层厚度为 10 nm 时，由图 8(a)~(d) 可以看出，随着同位素散射的增加，由于同位素无序导致声子极化激元显著的光学损耗^[31]，导致光子传递系数较大的区域最大波矢大幅减小。同时低波矢处的 SPhPs 耦合略微增加，由于高波矢处对热流的贡献大，因此导致在较小渐变层厚度时，同位素散射的增加导致热流减小。当渐变层厚度为 50 nm 时，由图 8(e)~(h) 可以看出，随着同位素散射的增加，光子传递系数较大的区域最大波矢减小幅度较图 8(a)~(d) 大幅减弱，可从图中绿色的虚线箭头印证。从图中可以看出，随着同位素散射的增加，亮带的宽度明显增加，即内部 SPhPs 耦合模式较

渐变层厚度为 10 nm 时大大增强。梯度渐变折射率介质，可以减小反射，增强透射，可能导致表面声子激元的穿透深度变大(见下文图 11(c)说明)，因此更大的渐变层深度(单位厚度梯度越小)，将导致光学损耗减小(由图 8(a)~(d)和图 8(e)~(f)的亮带最大波矢可以印证)，因此随着同位素散射的增强，实现最佳换热的梯度渐变层厚度增加。同时，更大的渐变层厚度导致了更强的内部激元耦合，增强了近场辐射换热。

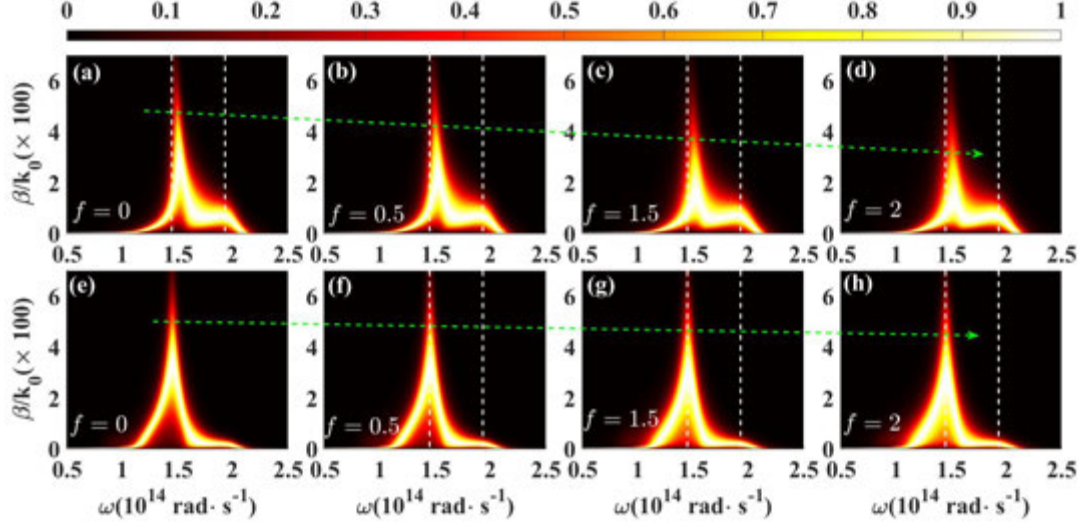


图 8 同位素散射大小对梯度渐变介质光子传递系数的影响：(a)-(d) $f=0,0.5,1.5,2$ 时，渐变层厚度为 10 nm；(e)-(h) $f=0,0.5,1.5,2$ 时，渐变层厚度为 50 nm

2.3 间距对梯度渐变介质间近场辐射的影响

本节以图 3 中两种较半无限大纯同位素材料近场辐射换热增强的体系为例($^7\text{LiD} \rightarrow ^7\text{LiH}$ 、 $^7\text{LiT} \rightarrow ^7\text{LiD}$ 介质渐变厚度均设为 30nm)，探究梯度同位素介质能否在大距离范围实现相较于半无限大纯同位素材料辐射换热的增强。

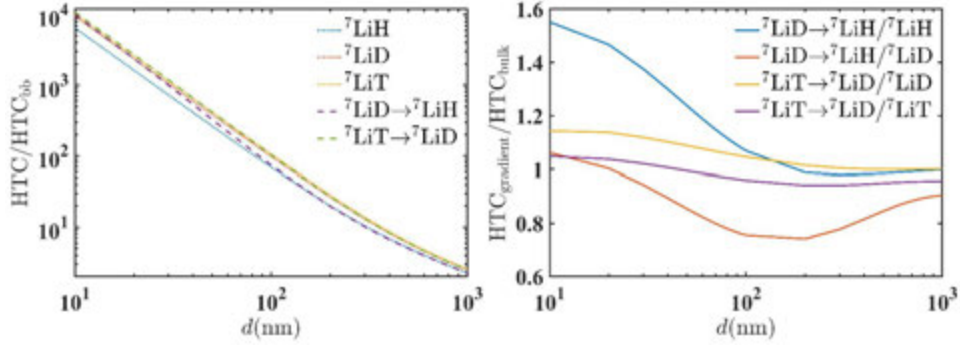


图 9 间距对梯度渐变介质间近场辐射的影响

图 9 给出了 $^7\text{LiD} \rightarrow ^7\text{LiH}$ 、 $^7\text{LiT} \rightarrow ^7\text{LiD}$ 梯度渐变介质及半无限大 ^7LiH 、 ^7LiD 、 ^7LiT 随真空间距变化的辐射换热系数(HTC_{bb} 为该温差下的黑体辐射极限)。从图中可以看出当间距较小时，梯度渐变介质的换热系数高于构成它们的两种纯同位素材料。而当间距进一步增大时，梯度渐变介质的换热系数衰减速率变大，变化幂次小于 -2，不满足众所周知的 d^{-2} 关系^[6]，此时换热系数低于表层的纯同位素材料，并逐渐趋近于基底处的纯同位素材料。由于表面波振幅按指数衰减，因而随着间距 d 的增大，能贡献光子隧穿的电磁波波矢 β 急剧减小。因此波矢越大，电磁波衰减越快。所以当真空间距增大时，只有较小波矢的电磁波才能隧穿真空间隙，而较小波矢的电磁波能够在介质中传播更长的距离，因此靠近基底的介质对辐射换热的

贡献更大^[11]。因而间距较大时，梯度同位素介质的辐射特性接近于基底材料。

2.4 梯度掺杂同位素介质间近场热流的吸收分布

梯度掺杂同位素介质中，由于其介电函数分布的不均匀性，其对电磁能的吸收特性将有别于均匀介质。在考虑折射率梯度分布的近场热光伏中，应分别关注每一层的能量吸收及转化^[4]，因此有必要研究梯度掺杂同位素介质内部对近场热流的吸收分布特性。

不同于均匀平板介质，梯度掺杂同位素内部支持不同频率的表面极化激元，故其可能显示出与均匀介质不同的近场热流的吸收分布特性^[11]。这里引入 $q_\omega(z)$ 对 z 的一阶导数的绝对值，即 $|dq_\omega/dz|$ ，其物理意义为在接收端传递的谱热流随位置坐标的变化率，也就是位置 z 处单位长度的介质所吸收的谱热量^[11]。通过散射矩阵法计算出各等层吸收的热流^[33]，图 10 给出了梯度渐变层厚度为 10 nm 时，均匀 ^7LiH 、 ^7LiD 介质和 $^7\text{LiD} \rightarrow ^7\text{LiH}$ 、 $^7\text{LiH} \rightarrow ^7\text{LiD}$ 梯度渐变介质的近场换热谱热流吸收分布云图。由云图可见，梯度介质吸收热流谱相较于均匀介质拓宽，并且共振频率随 z 增大出现变化。此外，从图中可以看到，电磁波携带的能量在距离表面 10nm 的范围内几乎完全吸收。

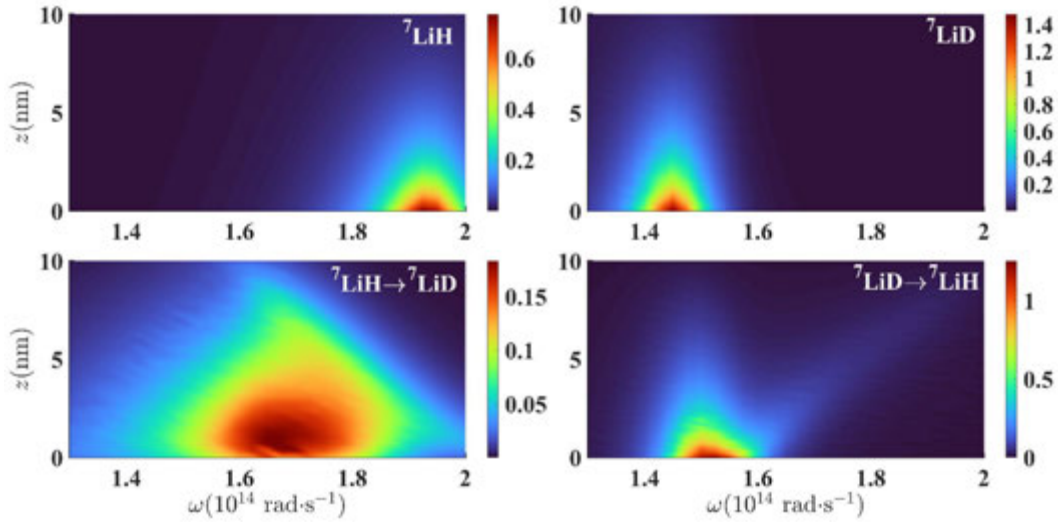


图 10 近场换热谱热流吸收分布 $|dq_\omega/dz|$

图 11 给出了不同类型的介质间近场换热的能流分布和吸收分布情况，图 11(a)给出了无量纲热流分布，其可以反映穿透深度的大小。由图可以看出，均匀介质的无量纲热流分布近似相同，而 $^7\text{LiD} \rightarrow ^7\text{LiH}$ 、 $^7\text{LiH} \rightarrow ^7\text{LiD}$ 梯度渐变介质展现了不同的分布特性。 $^7\text{LiH} \rightarrow ^7\text{LiD}$ 梯度渐变介质在 $z < 6$ nm 时，无量纲热流衰减较均匀介质小，而 $z > 6$ nm 时，无量纲热流衰减较均匀介质大。然而 $^7\text{LiD} \rightarrow ^7\text{LiH}$ 梯度渐变介质无量纲热流衰减始终比均匀介质大。此外，由图可以看出在渐变层末端，梯度介质的无量纲能流均小于均匀介质，表明其穿透深度小于均匀介质，这一结果可以为近场热光伏的设计提供指导。

从图 11(b)可以看到梯度介质中近场热流的反常吸收分布。对于均匀介质，对热流的吸收能力随着 z 方向的深入而逐渐变小，这是表面波法向指数衰减特性所造成的必然结果。而对于 $^7\text{LiH} \rightarrow ^7\text{LiD}$ 梯度渐变介质，吸收能力不再随 z 增大单调递减，而是在内部一位置出现了峰值，即出现了内部激元^[11]。而 $^7\text{LiD} \rightarrow ^7\text{LiH}$ 梯度渐变介质未出现明显的内部激元现象， $|dq(z)/dz|$ 仅出现了小的波动，可能是由于表层 ^7LiD 共振频率低于内部 ^7LiH 材料，表层均匀介质本征的吸收能力更强导致未出现内部的峰值。

图 11(c)给出了渐变层厚度为 10 nm 和 30 nm 时梯度渐变介质的近场换热能流分布，可

以看出渐变层厚度越大，单位厚度梯度越小，其穿透深度越大。

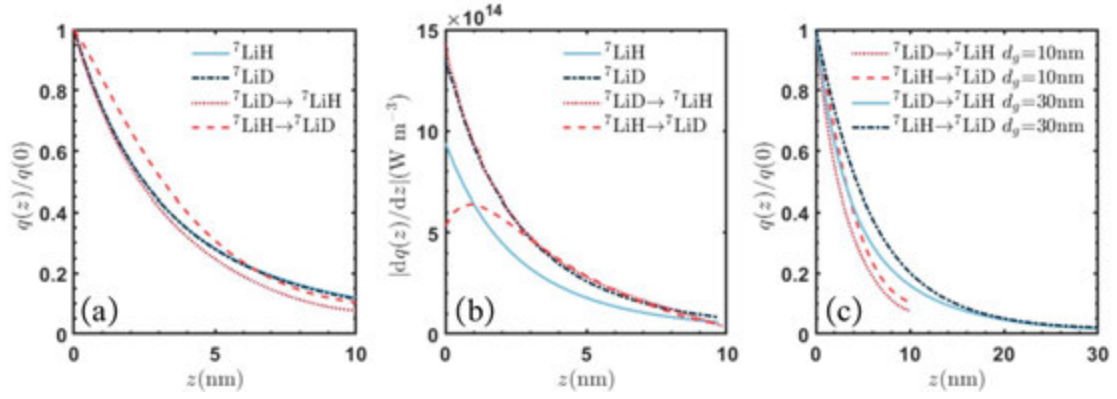


图 11 渐变介质对换热分布特性的影响：(a) 能流分布；(b) 吸收分布；(c) 渐变层厚度对能流分布影响

3 结论

本文采用多层有效介质平板近似研究了同位素相对丰度梯度变化介质的近场辐射换热特性，发现相较于纯同位素材料，梯度同位素掺杂体系能够增强近场辐射换热。

通过调整渐变方向，研究了蓝移型和红移型渐变介质随渐变层厚度变化的近场辐射特性。红移型渐变介质随梯度渐变层厚度的增加出现共振红移、内部激元耦合主导和内部激元退耦两个阶段，其换热系数先增大后减小。蓝移型渐变介质随梯度渐变层厚度的增加出现共振蓝移主导、内部激元耦合主导和内部激元退耦三个阶段，其换热系数先减小后增大再减小。

此外本文研究了同位素散射大小对于近场辐射的影响，当渐变层厚度较小时，同位素散射增大抑制了近场辐射，而渐变层厚度较大时，同位素散射增大增强了近场辐射。本文还研究了真空间距对梯度同位素渐变介质的近场辐射的影响，梯度同位素渐变仅能在小真空间距时实现热流的增强，当真空间距较大时，辐射特性趋近于基底纯同位素材料。

最后本文研究了梯度同位素渐变介质的近场辐射热流分布特性。梯度渐变体系相较于纯同位素介质穿透深度减小，其穿透深度随渐变层厚度的增加而增加。表层质量较小的梯度体系总热流吸收分布在介质内部出现峰值，表现出异于均匀介质的反常吸收分布。

本文的研究结果深入阐述了梯度同位素渐变介质的近场辐射换热性能，可望为应用同位素工程对近场热辐射进行调控提供重要理论指导。此外，本文的研究体系也可以扩展到极端近场（间距小于 10nm），这可能会激发人们进一步探索在极小间距下梯度同位素掺杂材料中的热输运机制以及热流调控方法。

4 参考文献

- [1] Polder D, Van Hove M. Theory of radiative heat transfer between closely spaced bodies[J]. Physical Review B, 1971, 4(10): 3303.
- [2] Zhang ZM. Nano/Microscale Heat Transfer (McGrawHill, New York), 2007.
- [3] Picardi M F, Nimje K N, Papadakis G T. Dynamic modulation of thermal emission—A tutorial[J]. Journal of Applied Physics, 2023, 133(11): 111101.
- [4] Mittapally R, Majumder A, Reddy P, et al. Near-Field Thermophotovoltaic Energy Conversion: Progress and Opportunities[J]. Physical Review Applied, 2023, 19(3): 037002.
- [5] Li Q, Chen Q, Song B. Fundamental limit to the rectification of near-field heat flow: The potential of intrinsic semiconductor films[J]. Physical Review B, 2022, 106(7): 075408.
- [6] Pascale M, Papadakis G T. Tight bounds and the role of optical loss in polariton-mediated near-field heat transfer[J]. Physical Review Applied, 2023, 19(3): 034013.
- [7] Sze S M, Lee M K. Semiconductor Devices: Physics and Technology: Physics and Technology[M]. Wiley Global Education, 2012.

- [8] Sze S M, Li Y, Ng K K. Physics of semiconductor devices[M]. John Wiley & sons, 2021.
- [9] Xu D Y, Bilal A, Zhao J M, et al. Near-field radiative heat transfer between rough surfaces modeled using effective media with gradient distribution of dielectric function[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2019, 142: 118432.
- [10] Vasudev A P, Kang J H, Park J, et al. Electro-optical modulation of a silicon waveguide with an “epsilon-near-zero” material[J]. Optics express, 2013, 21(22): 26387-26397.
- [11] Xu D, Zhao J, Liu L. Near-field thermal radiation of gradient refractive index slab: Internal polaritons[J]. Applied Physics Letters, 2021, 119(14): 141106.
- [12] Xu D, Zhao J, Liu L. Photonic pn junction: An ideal near-field heat flux modulator[J]. Physical Review B, 2022, 106(12): L121403.
- [13] Xu D, Zhao J, Liu L. Electrically tuning near-field heat flux using metal–oxide–semiconductor structure considering gradient dielectric function distribution[J]. Applied Physics Letters, 2022, 121(18): 181112.
- [14] Xu D, Zhao J, Liu L. Near-field radiation assisted smart skin for spacecraft thermal control[J]. International Journal of Thermal Sciences, 2021, 165: 106934.
- [15] Cardona M, Etchegoin P, Fuchs H D, et al. Effect of isotopic disorder and mass on the electronic and vibronic properties of three-, two-and one-dimensional solids[J]. Journal of Physics: Condensed Matter, 1993, 5(33A): A61.
- [16] Cardona M, Thewalt M L W. Isotope effects on the optical spectra of semiconductors[J]. Reviews of modern physics, 2005, 77(4): 1173.
- [17] Xie L, Song B. Isotope effect on radiative thermal transport[J]. Physical Review B, 2023, 107(13): 134308.
- [18] Xie L, Song B. Isotope Engineering of Near-Field Radiative Thermal Diodes[J]. Available at SSRN 4440817.
- [19] 李永辉. 第一性原理计算矿物间 K, Ca 以及 N 同位素平衡分馏[D]. 中国科学技术大学, 2020.
- [20] Richter F M, Watson E B, Mendybaev R A, et al. Magnesium isotope fractionation in silicate melts by chemical and thermal diffusion[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2008, 72(1): 206-220.
- [21] Leshner C E, Dannberg J, Barfod G H, et al. Iron isotope fractionation at the core–mantle boundary by thermomigration[J]. Nature Geoscience, 2020, 13(5): 382-386.
- [22] 韩丹, 丁文扬, 王鑫煜等. 利用同位素掺杂与分形结构调控石墨烯热导率[J]. 工程热物理论, 2021, 42(03): 680-685.
- [23] Brodsky M H, Burstein E. Infrared lattice vibrations of single crystal lithium hydride and some of its isotopic derivations[J]. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 1967, 28(9): 1655-1668.
- [24] Baroni S, De Gironcoli S, Dal Corso A, et al. Phonons and related crystal properties from density-functional perturbation theory[J]. Reviews of modern Physics, 2001, 73(2): 515.
- [25] Chen K, Song B, Ravichandran N K, et al. Ultrahigh thermal conductivity in isotope-enriched cubic boron nitride[J]. Science, 2020, 367(6477): 555-559.
- [26] Zhang H F, Yu Y, Zhao Y N, et al. Ab initio electronic, dynamic, and thermodynamic properties of isotopic lithium hydrides (6LiH, 6LiD, 6LiT, 7LiH, 7LiD, and 7LiT)[J]. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 2010, 71(7): 976-982.
- [27] Morelli D T, Heremans J P, Slack G A. Estimation of the isotope effect on the lattice thermal conductivity of group IV and group III-V semiconductors[J]. Physical Review B, 2002, 66(19): 195304.
- [28] Plekhanov V G. Isotope and disorder effects in the Raman spectra of LiHxD1– x crystals[J]. Journal of Raman Spectroscopy, 2001, 32(8): 631-642.
- [29] Jain A, Ong S P, Hautier G, et al. The materials project: A materials genome approach to accelerating materials innovation, APL Mater[J]. 2013.
- [30] Plekhanov V G. Experimental evidence of strong phonon scattering in isotopically disordered systems: The case of LiH x D 1– x[J]. Physical Review B, 1995, 51(14): 8874.
- [31] Zhao Y, Chen J, Xue M, et al. Ultralow-Loss Phonon Polaritons in the Isotope-Enriched α -MoO₃[J]. Nano Letters, 2022.
- [32] Yao Y, Yue S, Jia-Ming H, et al. Antireflection coatings based on subwavelength artificial engineering microstructures[J]. Acta Physica Sinica, 2019, 68(14).
- [33] Chen K, Zhao B, Fan S. MESH: A free electromagnetic solver for far-field and near-field radiative heat transfer for layered periodic structures[J]. Computer Physics Communications, 2018, 231: 163-172.

基于混合光栅结构双谱带气体探测发射器设计

周佳豪, 王博翔, 赵长颖*
(上海交通大学工程热物理研究所, 上海 200240)

(*Tel: 021-34204541, Email: changying.zhao@sjtu.edu.cn)

摘要: 受气体分子红外振动吸收波段的限制, 基于超表面设计窄谱热发射器已然成为替代传统量子级联激光器与宽谱热发射器的应用于红外气体探测的最优方案。本文提出了一种金属-介电混合材料光栅结构超表面发射器, 该结构利用金属光栅表面等离激元以及介电质层中法布里-珀罗共振模式, 实现双谱带高 Q 值窄带发射, 并通过理论分析设计结构尺寸调控共振峰值位置, 进而匹配于两种不同气体吸收特征波段。

关键词: 窄谱发射器, 气体探测, 超表面, 红外波段

0 前言

近年来非接触式中红外气体探测技术正备受研究人员的关注, 因其在工业过程检测^[1], 医疗诊断^[2]以及环境监测^[3]中有着广泛应用。红外气体探测的基本原理是通过探测红外光源经过一个目标探测气体的气室前后光强度的衰减程度, 进而对气室内气体的组分和浓度进行分析, 本质是对目标气体分子振动或者转动频率的探测。为实现选择性气体传感通常需要配备对应的滤光片, 以获得对应于目标气体分子吸收频率的窄谱辐射。这种基于气体吸收理论的光谱类气体检测方法被称为非分光红外气体传感技术^[4]。目前基于超表面设计窄谱热发射器因其灵活的光谱选择性发射, 能较好匹配气体的共振吸收峰, 在非分光红外气体传感技术中已然成为替代价格高昂的量子级联激光器 (Quantum Cascade Lasers, QCL)^[5]与能量利用率低的宽谱发射器^[6]的最优方案。

窄谱发射器性能通常使用半峰宽品质因子 Q 进行定量描述, Q 值越高, 谱线越窄。传统广泛应用于气体探测中的超表面热发射器往往基于金属-介电质-金属 (Metal-Insulator-Metal, MIM) 结构设计^[7], 但由于其两层金属材料之间的巨大的材料损耗, 往往结构窄谱的品质因子 Q 值被限制在 10-20 左右^[8], 仍存在较多未被利用的能量被发射, 这将降低系统整体利用效率, 导致所需探测信号湮没在巨大背景信号中难以甄别, 不利于痕量气体元素探测。为了进一步提高窄谱 Q 值, 基于极性材料, 如 SiC 和 hBN 等的设计^{[9][10]}被提出, 虽然可以这种结构可以将 Q 值提升一个数量级至 100 左右, 但受限于极化材料的固有晶格振动频率, 其能灵活调控的波段范围有限且异质衬底结构加工困难。并且在中红外气体探测的常见 3-6 微米波段内, 并没有常见相匹配的极性材料。

为解决上述问题, 本文提出了一种简单的由金光栅上覆盖一层硅介电质的超表面热发射器, 其通过激发 TM 模式下金属光栅表面等离激元 (Surface Plasmon Polaritons, SPPs) 以及 TE 模式下介电质层中法布里-珀罗 (Fabry - Pérot, FP) 共振模式, 实现双谱带高 Q 值窄带发射特性, 并可利用电磁波传播中波矢匹配原理与相位干涉理论分析设计结构尺寸调控共振峰值位置, 进而匹配两种不同气体的吸收谱线。进一步对所设计的窄谱结构与低 Q 值发射器和宽谱发射器经过目标气室前后的方向辐射光谱进行计算对比, 其方向辐射光谱强度改变量更大, 辐射衰减更为明显, 能更为高效地利用辐射能量, 提升传感器探测精度并利于痕量气体探测, 这对于中红外气体探测器件的研究开发和技术推广具有重要意义。

基金项目：国家自然科学基金重点国际合作项目(52120105009), 国家自然科学基金面上项目(52276078)。

1 研究方法

1.1 结构设计

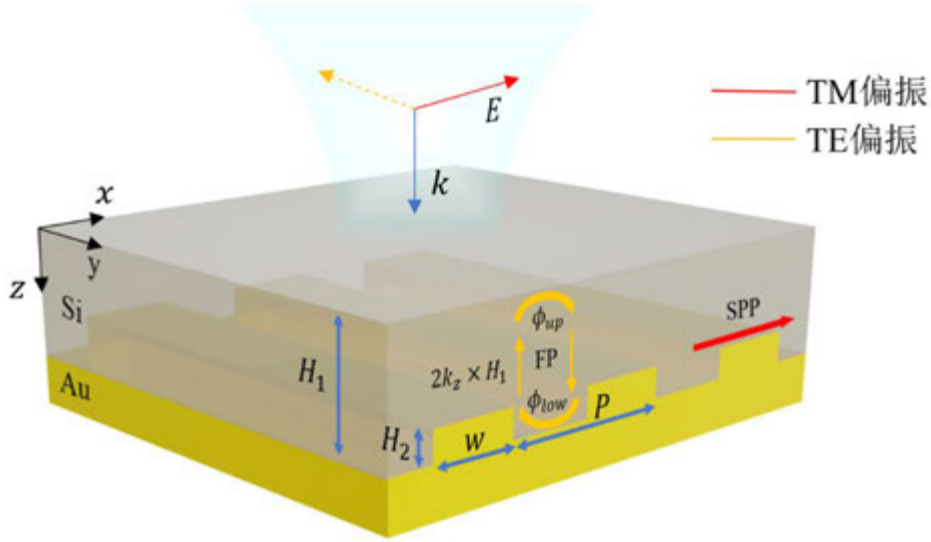


图1 一维混合光栅超表面发射器设计结构图

如图1所示, 本文设计的窄谱热发射器包含两部分, 分别是底层金一维光栅结构和以及上层的一定厚度的硅介质层。结构涉及的主要参数有一维光栅的周期 P , 深度 H_2 以及宽度 w 和硅介质层厚度 H_1 。其中金层的作用是提供一个损耗较小的反射层, 周期光栅在 TM 模式下提供激发金属 SPPs 的波矢相匹配的条件。而上层硅介质层的作用是在周期光栅提供 x 方向波矢的基础上, 在 TE 偏振下提供能激发 FP 共振谐振腔。对于本文设计的结构而言, 光谱设计有显著影响的参数仅有一维光栅周期 P 以及硅介质层厚度 H_1 , 而对其他参数而言光谱具有一定的鲁棒性。因此结构设计中所需要关注的参数并不多, 且使用常规材料和简单结构, 可实际设计加工性较强。

2. 理论模型

2.1 严格耦合波分析计算方法

本文所设计的结构为周期性光栅结构, 其在 3-6 微米波段内的反射谱可利用严格耦合波分析方法 (Rigorous Coupled-Wave Analysis, RCWA) 直接进行计算。其核心思想是对周期分布光栅层的介电常数进行傅里叶展开处理^[11]。为了不失一般性, 我们假设周期性结构的周期参数为 (a_1, a_2) , 光栅层的介电常数在傅里叶空间可以展开为:

$$\epsilon(\mathbf{r}) = \sum_{m_1 n_1} \epsilon_{m_1 n_1} e^{i \left(\frac{m_1 2\pi}{a_1} x + \frac{n_1 2\pi}{a_2} y \right)} \quad \#(1)$$

$$\epsilon_{m_1 n_1}^{-1} = \frac{(2\pi)^2}{a_1 a_2} \int_0^{a_1} \int_0^{a_2} \epsilon(\mathbf{r})^{-1} e^{-i \left(\frac{m_1 2\pi}{a_1} x + \frac{n_1 2\pi}{a_2} y \right)} dx dy \quad \#(2)$$

其中 m_1, n_1 为整数, 其取值受到傅里叶展开阶数 N_x, N_y 限制, $-N_x \leq m_1 \leq N_x, -N_y \leq n_1 \leq N_y$,

a_1, a_2 为结构的周期性参数。RCWA 反射谱的计算采用开源的代码^[12], 展开阶数取值为 100。材料金和硅的介电常数模型取自文献^[13], 其值见图 2(a)。由能量守恒与基尔霍夫定律可知,

由 RCWA 计算得到的反射谱可推至发射谱，超表面结构的发射率 ϵ =吸收率 α =1-反射率 R -透射率 T 。

2.2 表面等离子激元

金属表面等离子激元由外部电磁场与金属表面等离子体耦合共振所导致，在 TM 模式下，表面等离子激元波矢可以表示为^[14]：

$$|k_{sp}| = \frac{\omega}{c_0} \sqrt{\frac{\epsilon_s \epsilon_m}{\epsilon_s + \epsilon_m}} \quad \#(3)$$

其中 ω 为入射光频率， c_0 表示真空中的光速， ϵ_m 和 ϵ_s 分别表示金属和介质材料的介电常数。由周期性布洛赫波与波矢匹配原理可知，一维金属光栅表面等离子激元的色散关系式可以定量的描述为：

$$k_{sp} = k_x + \frac{2\pi m}{P} \quad \#(4)$$

其中 k_x 为入射波在 x 方向上的波矢， m 表示衍射阶数，0， ± 1 ， $\pm 2 \dots$ ， P 表示光栅结构的周期。

2.3 法布里-珀罗共振

同时在 TE 偏振下，法布里-珀罗 (FP) 共振在介质层中被激发，其原理与介质层中相位干涉相长有关^[15]：

$$2k_z H_1 + \phi_{up} + \phi_{low} = 2\pi n \quad \#(5)$$

其中 k_z 为入射波在 z 方向上的波矢， H_1 表示介质层厚度， ϕ_{up} 和 ϕ_{low} 分别表示介质层顶部和底部的反射系数相位变化，如图 1 中橙色 Si 介质顶部和底部橙色箭头所示意， n 为整数 (0, 1, 2, …)。

2.4 红外气体探测原理

超表面热辐射器在气体探测系统中用以替代传统 QCL 激光器和宽谱发射器作为光源，通常而言整个探测系统还包括气体腔室以及光电探测器。其中气体腔室用以存储多种待测气体，光电探测器用以捕获超表面热辐射器产生的光。超表面热发射器的沿着 θ 角下，方向光谱辐射强度可以表示为：

$$I_{\theta}^0(\lambda, T) = \frac{\epsilon_{\theta}(\lambda) E^{BB}(\lambda, T)}{\pi} \quad \#(6)$$

其中 $E^{BB}(\lambda, T)$ 为由普朗克定律计算得到 T 温度下的理论黑体光谱辐射力， $\epsilon_{\theta}(\lambda)$ 为超表面热发射器的光谱方向发射率。经由超表面发射的辐射在穿过气体腔室内气体时，其中一些波段的能量会被某些特定气体分子吸收，因此导致辐射信号衰减。这一过程可以由朗伯比尔吸收定律描述：

$$I_{\theta}(\lambda, T) = I_{\theta}^0(\lambda, T) e^{-\alpha(\lambda)r} \quad \#(7)$$

其中 $I_{\theta}(\lambda, T)$ 为辐射在吸收系数 $\alpha(\lambda)$ 的其气体内传播一段距离 r 后的衰减光谱强度，因此可以通过有无待测气体前后的光电探测器的信号变化来定量表征待测气体浓度，进一步可定义方向辐射强度改变率 η ：

$$\eta = \left(1 - \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} I_{\theta}(\lambda, T) d\lambda}{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} I_{\theta}^0(\lambda, T) d\lambda} \right) \times 100\% \quad \#(8)$$

因此， η 越大，表明辐射信号经由气室后衰减越明显，更有利于光电探测器信号提取以及高

精度与灵敏度探测。

3. 结果分析

3.1 超表面热发射器光谱发射率

根据上述 RCWA 的计算方法，我们主要通过调控结构周期 P 与硅介质层厚度 H_1 （其余参数保持不变，光栅宽度 $w = 0.9 \mu\text{m}$ ，光栅深度 $H_2 = 0.08 \mu\text{m}$ ），计算了三种在中红外波段 3-6 微米处超表面热发射器的光谱发射谱线，结果如图 2(b)、(c)和(d)所示。从图中可以看出，三个不同结构完美发射波长分别为 3.31 和 4.24 微米，4.24 微米和 5.34 微米以及 4.59 和 5.72 微米。计算结果表明，在两种不同偏振 TM 与 TE 下，设计的超表面热发射器可实现窄谱选择性完美发射，并且一个结构分别对应于两种不同的气体分子的吸收度谱线。涉及甲烷、二氧化碳、一氧化碳、一氧化氮与氨气等多种常见气体，图中的气体吸收度曲线计算数据集来源于 Hitran 数据库^[16]。在非气体吸收峰处，由于金材料的红外高反射的特性，结构具有较低的发射率，以保证辐射能量利用的高效性。

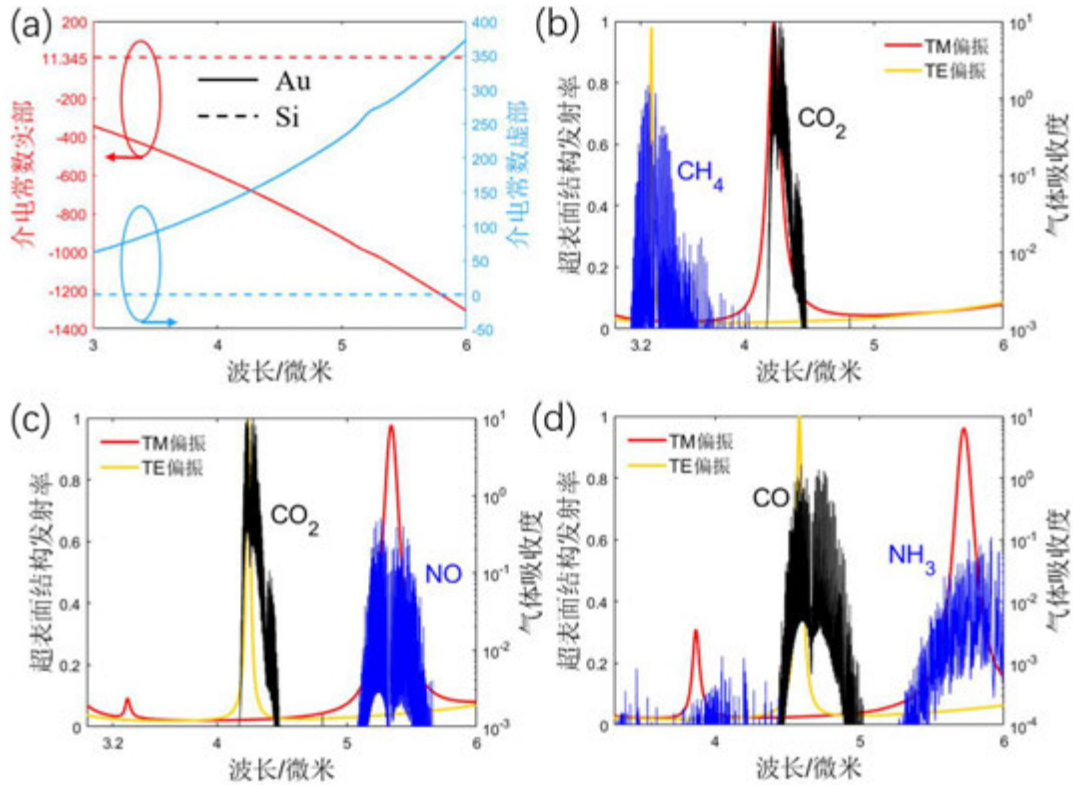


图 2 (a) 材料金和硅介电常数实部与虚部。三种 3-6 微米波段超表面热发射器光谱发射谱线以及对对应气体吸收度谱线，气体吸收度计算采用的气体参数：温度 300K，压力 1atm，气体体积浓度为 1%，吸收长度 3cm；(b) 结构一参数 $P = 1.28 \mu\text{m}$ $H_1 = 0.57 \mu\text{m}$ ，针对甲烷与二氧化碳气体；(c) 结构二参数 $P = 2 \mu\text{m}$ $H_1 = 0.57 \mu\text{m}$ ，针对二氧化碳与一氧化氮气体；(d) 结构三参数 $P = 2.35 \mu\text{m}$ $H_1 = 0.57 \mu\text{m}$ ，针对一氧化碳与氨气气体。

3.2 窄谱发射模式分析

以匹配二氧化碳与甲烷气体超表面热发射器的结构一为例，我们对 TM 与 TE 偏振下的窄谱完美发射处的模式进行分析以探究其机理。在 TM 偏振下对所设计结构几何参数：硅介质层厚度 H_1 ，光栅周期 P ，光栅深度 H_2 以及光栅宽度 w 分别在固定其他三个参数的情况下进行

扫描分析, 如图 4(a), (c), (e) 和 (g) 所示。可以发现其光谱发射峰的位置主要受 H_1 和 P 的影响, 在 H_1 增大的过程中谱线表现出一定的红移, 并且随着 H_1 增大, 峰值的红移逐渐减弱, 这是由于 H_1 在增大的过程中对式 (3) 中 ϵ_s 的调节逐渐减弱所致。并且随着 P 增大峰值呈现近似于线性相关的红移, 对 H_2 以及 w 表现出一定的不敏感性。对参数扫描的趋势与式 (3) 和式 (4) 的公示表述相一致。同时从图 3(a) 结构一中 TM 偏振正入射的电场图中可以看出, 电场能量高度局域在金属光栅的两侧, 并沿着光栅结构迅速衰减, 这也符合金属光栅中 SPPs 模式被激发的现象。

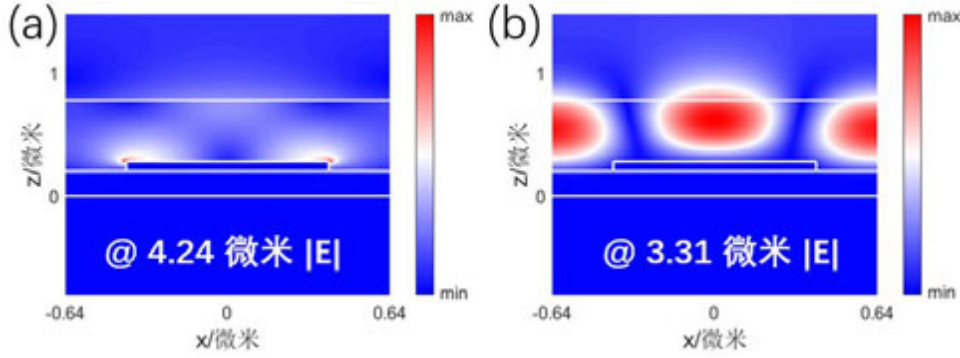


图 3 结构一超表面热发射器共振电场图。(a) TM 偏振下 4.24 微米共振处电场图; (b) TE 偏振下 3.31 微米共振处电场图。

而在 TE 偏振下, 我们对结构相同几何参数的扫描结果如图 4(b), (d), (f) 和 (h) 所示。同样, 其光谱发射峰的位置表现出对 H_1 和 P 参数敏感, 且对 H_2 以及 w 变化不敏感的现象, 这与 TM 偏振下的结果类似。且随着 H_1 和 P 增大, 发射峰值位置呈现出红移的趋势。结合图 3(b) 所展示的 TE 偏振下结构一的电场图, 不难发现大部分电场被局域在硅介质层内, 在硅介质层内形成若干个类似于波导模式周期性排布的谐振腔。这样谐振腔的形成是由于传播光波长在介质层中满足 FP 共振条件, 即式 (5) 下发生。更进一步, 我们可以结合式 (7) 分别对图 3(b) 仅改变 H_1 和 (d) 仅改变 P 中发射峰值的波长进行理论拟合预测, 见图中白色实线。其中 n_{Si} 为介质层硅的折射率, m 和 n 取值均为 1, 即为 1 阶 FP 共振。 ϕ_{low} 为从介质层硅入射至金层的反射系数的相位变化, 在中红外波段, 金层可以近似认为是一个完美反射层, 因此 ϕ_{low} 取值为 π 。 ϕ_{up} 为从介质层硅入射至空气的反射系数的相位变化, 通过对超表面 S 参数的计算得到。理论拟合曲线的结果反映出相近的趋势且能够较好的匹配实际 RCWA 仿真计算的结果。由此说明该结构在 TE 偏振下窄谱完美发射的模式为 1 阶 FP 共振。

结合上述对窄谱发射模式分析, 总结得出以下结论: 首先, 结构在 TM 偏振下和 TE 偏振下分别由金属表面 SPPs 和硅介质层中 FP 共振产生两个窄谱发射峰, 电场也对应在金属金表面和硅介质层中得到增强。其次混合光栅超表面结构的发射峰值波长主要受到硅介质层厚度 H_1 和光栅周期 P 的影响, 而对光栅深度 H_2 和光栅宽度 w 表现出一定的鲁棒性, 并且可以通过理论分析对发射峰值波长进行预测, 这些均有利于对该混合光栅结构匹配于多种不同气体吸收峰的设计和实际工艺加工。最后根据上述分析可知, 在与结构一相同硅介质层厚度的情况下, 当光栅结构消失时, SPPs 与 FP 在正入射时共振条件被破坏, 也因此没有窄谱发射的现象产生, 仅有由高反射金层导致的低发射, 如图 5(a) 所示。

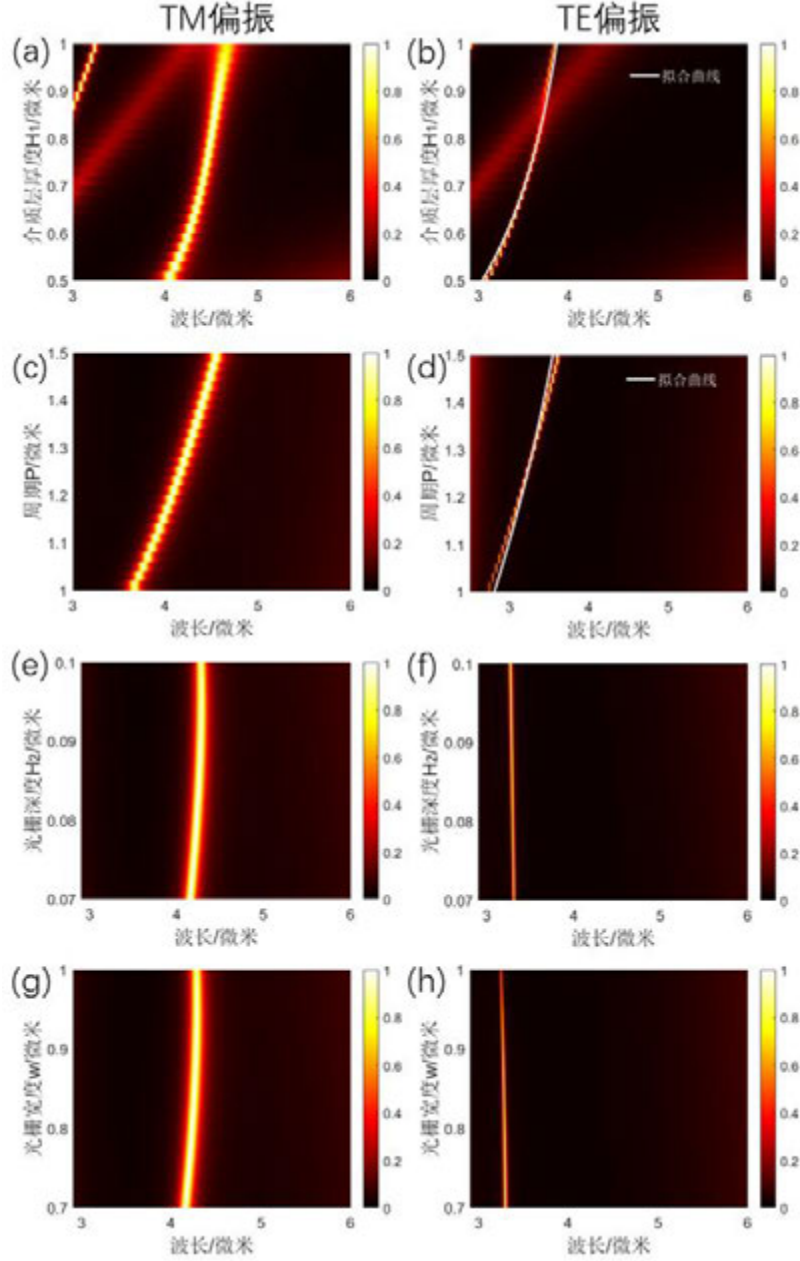


图 4 针对结构一甲烷与二氧化碳气体超表面热发射器发射率几何参数扫描结果 $P = 1.28 \mu\text{m}$ $H_1 = 0.57 \mu\text{m}$ $w = 0.9 \mu\text{m}$ $H_2 = 0.08 \mu\text{m}$, (a) (c) (e) (g) 为 TM 模式, (b) (d) (f) (h) 为 TE 模式。(a), (b) 在 P, w 和 H_2 不变的情况下, 峰值位置随 H_1 变化, $0.5 \mu\text{m} - 1 \mu\text{m}$; (c), (d) 在 H_1, w 和 H_2 不变的情况下, 峰值位置随 P 变化, $1 \mu\text{m} - 1.5 \mu\text{m}$; (e), (f) P, H_1 和 w 不变的情况下, 峰值位置随 H_2 变化, $0.07 \mu\text{m} - 0.1 \mu\text{m}$; (g), (h) P, H_1 和 H_2 不变的情况下, 峰值位置随 w 变化, $0.7 \mu\text{m} - 1 \mu\text{m}$; (b), (d) 中白色实线为理论计算得到的拟合曲线。

3.3 窄谱发射 Q 值分析

窄谱发射器的品质因子 (Q 值) 可由半峰宽公式进行计算, 以二氧化碳与甲烷气体的超表面热发射器为例, 我们可以计算 TM 与 TE 偏振下理论 Q 值分别为 163.1 与 36。从结构体系的能量损耗对 Q 值的分析可以表示为^[17]:

$$Q = \left(\frac{1}{Q_{\text{rad}}} + \frac{1}{Q_{\text{nonrad}}} \right)^{-1} \quad \#(9)$$

式中, Q_{rad} 表示辐射损耗对 Q 值的贡献, Q_{nonrad} 表示非辐射损耗对 Q 值的贡献。其中非辐射

损耗与材料性质密切相关，其值正比于材料介电常数的虚部，而金属在中红外波段往往材料的介电常数虚部值很大，因此在超表面设计中引入过多的金属，往往会导致整体谱线 Q 值的降低，这也是 MIM 结构 Q 值往往不高的直接原因。但同时由能量守恒可知，为了实现高发射，结构透射通道需要关闭，需要存在一层金属反射层。因此本文采用单层金属光栅，利用金在金属材料中损耗较小以及硅介质材料近乎无损的特性实现较高 Q 值发射。

同时，发射器的 Q 值也将影响红外气体探测器的精度与能量利用效率，仍旧以结构一为例，假设气室长度为 3cm，气室内的混合气体分别为 CH_4 、 CO_2 与 N_2 气体，体积浓度分比为 0.05%、0.05% 以及 99.9%，压强为 1 个标准大气压，其中 CH_4 和 CO_2 为超表面结构所对应的目标气体， N_2 则为保护气体，在 3–6 微米波段无显著吸收。且超表面热发射器以 700K 的温度向外辐射，并利用线偏振片过滤出 TM、TE 偏振光。结合理论模型中红外气体探测原理，我们对宽光谱发射器（假定发射率为 0.97）、Q 值较小的发射器（ $Q=20$ ，在 TE 偏振下共振中心波长为 3.31 微米，TM 偏振下共振中心波长为 4.24 微米）以及本文设计的结构正入射经过待测气体前后的辐射光谱强度的变化率进行研究，详细计算结果见表 1。

由结果可知，在相同温度、气体条件下，本文所设计的高 Q 值窄谱发射器的辐射光谱强度改变率可分别达 2.4366% 与 1.91459%。这个结果相较于宽光谱发射器、低 Q 值发射器而言变化更为明显。换言之，光电探测器能接收到更加明显的辐射能量变化，更多有效能量被用于红外气体探测中。因此该结构窄谱 Q 值的提高能有效提高热发射器的能量的利用效率与气体探测精度。

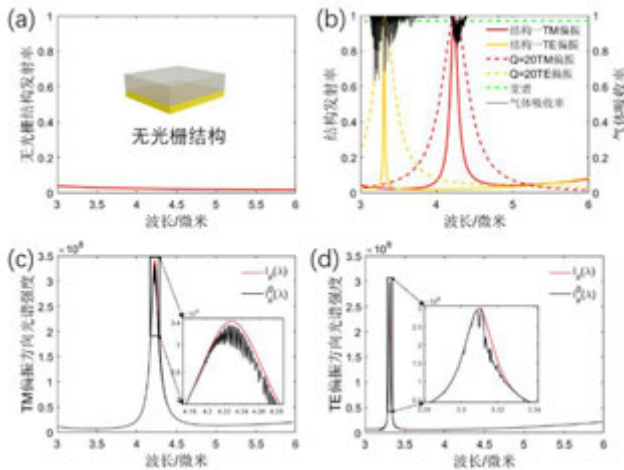


图 5 (a) 无光栅结构发射率谱图。(b) 结构一、Q=20 和宽光谱发射谱线示意图以及气室内气体的吸收谱线。(c), (d) TM 偏振和 TE 偏振正入射时 700K 下方向光谱辐射强度与经气体吸收后的衰减辐射强度。

表 1: 结构一方向光谱辐射强度改变率与 Q=20 结构与宽光谱之间的对比

方向光谱辐射 强度改变率	结构一 TM 偏振	结构一 TE 偏振	Q=20 TM 偏振	Q=20 TE 偏振	宽光谱
η	2.43660%	1.91459%	1.6632%	1.5245%	0.5620%

4. 结论

本文提出一种基于一维混合光栅超表面热发射器，该结构由金光栅层与硅介质层组成，其 TM 偏振与 TE 偏振下发射峰波长可由光栅周期和介质层厚度灵活控制且对光栅宽度和深度具有鲁棒性，以期适配于中红外波段（3–6 微米）所需探测的气体的吸收谱线，如甲烷、二氧化碳、一氧化碳、一氧化氮和氨气等。进一步通过对结构电磁场分析可知，在 TM 偏振下共振峰由金属表面等离激元激发，TE 偏振下共振峰由硅介电层中法布里-珀罗共振模式激发，并结合材料对辐射损耗的影响分析该结构产生高 Q 值窄谱的原因。

进而,本文以针对甲烷和二氧化碳气体探测的超表面热辐射器,根据朗伯比尔吸收定律对一定气氛下的气体吸收谱线与方向辐射强度改变率进行计算分析。理论计算结果表明在TM、TE偏振下方向光谱辐射强度改变率可分别达2.43660%和1.91459%,在相同条件下相较于低Q值窄谱发射器与宽谱发射器变化更加明显。因此本文所设计的窄谱热发射器能提高辐射能量的利用效率与气体探测精度。这符合双碳目标下的能源器件设计原则,也更有利于痕量气体元素的探测,对于中红外气体探测器件的研究开发具有重要意义。

参考文献

- [1] Benavides-Serrano A J, Mannan M S, Laird C D. A quantitative assessment on the placement practices of gas detectors in the process industries[J]. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 2015, 35: 339-351.
- [2] Metsälä M. Optical techniques for breath analysis: From single to multi-species detection[J]. *Journal of Breath Research*, 2018, 12(2): 027104.
- [3] Shen Y, Wang G, Zou Q, et al. Ultrasensitive Dual-Mode Humidity Detection Using a Plasmonic-Photonic Hybrid Waveguide[J]. *Advanced Optical Materials*, 2021, 9(16): 2100166.
- [4] Dinh T V, Choi I Y, Son Y S, et al. A review on non-dispersive infrared gas sensors: Improvement of sensor detection limit and interference correction[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2016, 231: 529-538.
- [5] Tan X, Zhang H, Li J, et al. Non-dispersive infrared multi-gas sensing via nanoantenna integrated narrowband detectors[J]. *Nature communications*, 2020, 11(1): 5245.
- [6] Hodgkinson J, Smith R, Ho W O, et al. Non-dispersive infra-red (NDIR) measurement of carbon dioxide at 4.2 μm in a compact and optically efficient sensor[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2013, 186: 580-588.
- [7] Lochbaum A, Fedoryshyn Y, Dorodnyy A, et al. On-chip narrowband thermal emitter for mid-IR optical gas sensing[J]. *ACS photonics*, 2017, 4(6): 1371-1380.
- [8] Chen Y K, Wang B X, Zhao C Y. Dual-band spatially-distinguishable metasurface thermal emitter for filterless mid-infrared gas sensing[J]. *International Journal of Thermal Sciences*, 2023, 185: 108069.
- [9] Ma B, Huang Y, Zha W, et al. Narrowband diffuse thermal emitter based on surface phonon polaritons[J]. *Nanophotonics*, 2022, 11(17): 4115-4122.
- [10] Hajian H, Ghobadi A, Butun B, et al. Nearly perfect resonant absorption and coherent thermal emission by hBN-based photonic crystals[J]. *Optics express*, 2017, 25(25): 31970-31987.
- [11] Moharam M G, Gaylord T K. Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction[J]. *JOSA*, 1981, 71(7): 811-818.
- [12] Hugonin J P, Lalanne P. Reticolo software for grating analysis[J]. arXiv preprint arXiv:2101.00901, 2021.
- [13] Handbook of optical constants of solids[M]. Academic press, 1998.
- [14] Maier S A. Plasmonics: fundamentals and applications[M]. New York: springer, 2007.
- [15] Saleh B E A, Teich M C. Fundamentals of photonics[M]. John Wiley & sons, 2019.
- [16] Rothman L S, Gordon I E, Barbe A, et al. The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2009, 110(9-10): 533-572.
- [17] Koshelev K, Lepeshov S, Liu M, et al. Asymmetric metasurfaces with high-Q resonances governed by bound states in the continuum[J]. *Physical review letters*, 2018, 121(19): 193903.

应用于太阳能热光伏系统的腔式选择性辐射器性能研究

曹邵文¹, 蔡琦琳^{1*}, 张莹石¹, 汪梓俊¹, 叶庆¹, 王健翔¹, 吴玺^{1*}

苏州大学能源学院, 苏州 215000

Tel: 15051595029 Email: qlcai@suda.edu.cn

Tel: 13701547984 Email: wuxi@suda.edu.cn

摘要: 本文提出了应用于太阳能热光伏系统的腔式辐射器, 建立了该系统的能量传输模型。太阳光通过小孔进入辐射器内腔中, 避免了吸收器反射及自发射的问题。内腔中独特的凹面结构有减少能量损失的同时增大温度分布均匀性的作用。结果表明, 聚光比为 1000 时, 平板型辐射器的温差达到了 762.9 K, 而腔式辐射器的温差约为 350 K, 此时 STPV 系统效率分别为 6.6%和 11.7%。当腔式辐射器应用结构型辐射器时, 系统效率可达 16.0%; 腔式辐射器表面温度和系统效率均随着内腔发射率的增大而增大。

关键词: 太阳能热光伏系统; 腔式辐射器; 温度均匀性; 辐射效率; 系统效率

0 前言

太阳能热光伏 (Solar Thermophotovoltaic, 简称 STPV) 系统通过辐射器部件吸收并发射太阳光, 将太阳光谱进行调控以匹配热光伏电池, 从而促进太阳能的高效利用^[1-3]。STPV 系统理论系统效率可超 50%, 然而目前 STPV 系统实验效率仅为 8.6%^[2]。其主要原因是 STPV 系统中辐射器部件出现的能量损失, 该部分损失可占总损失 50%以上^[4]: (1) 辐射器与 TPV 电池的光谱匹配不理想, 导致了光谱损失; (2) 平板辐射器在工作时侧面及上表面出现的辐射无效区能量损失; (3) 辐射器表面温度分布不均匀导致电池的转化性能降低。

为减少辐射器的光谱损失, 研究人员基于微纳尺度传热理论, 将陶瓷^[5]、光子晶体 (photonic crystal, PhC)^[6, 7]、超材料^[8]等应用于光谱选择性辐射器的设计中。早期, Yugami 等人提出一种 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 复合辐射器, 并在 550K 下测试了 GaSb STPV 的性能表现, 该陶瓷型辐射器的光谱效率仅有 34%。之后, 光子晶体选择性辐射器进入人们的视野, Chan 等人制备了 Si/SiO₂ 1D PhC 辐射器通过微型燃烧器加热并与 InGaAsSb TPV 电池结合, 工作温度为 1073K, 最大系统效率达到 2.5%^[9]。Suemitsu 等人报道了一种以 MgO 为基底的 Si 棒 2D PhC 辐射器, 该辐射器在 InGaAsSb TPV 系统中进行测试, 显示在 1338K 下系统效率为 11.2%^[10], 但该系统测试时没有考虑热源损失, 实际的系统效率应该低于 11.2%。近年来, 研究人员对超材料选择性辐射器进行了广泛的研究, 其中 W-HfO₂^[11]、W-Al₂O₃^[12]、W-Si₃N₄^[13] 1D 超材料辐射器匹配 GaSb 电池时光谱效率分别达到了 65%、62%和 74%。

通过上述研究发现, 辐射器的光谱效率可提高至 60~80%, 但 STPV 系统实验效率仍然与理论效率有较大差距。为提高 STPV 系统效率, 减小吸收器面积也是方法之一^[14]。该方法可以提高吸收/辐射器的光热效率, 使辐射器在较小的输入功率下也可提升温度, 并且在吸收器面积小于辐射器的情况下, 可以抑制吸收器表面的再发射和对入射能量的反射^[15]。Wang 等人的研究表明, STPV 系统中, 聚光比为 200, 辐射器和吸收器的面积比为 8 时, 吸收器效率为 85%, 而面积比为 1 时, 吸收器效率仅为 54%。然而, 在吸收器和辐射器的面积相差较大时, 吸收器周围区域的热辐射损失变得无法忽略^[16], 并带来辐射器中心温度远高于边界温度的问题^[17]。此时, 虽然吸收器效率提高, 但是带来了温度分布不均的问题, 而 Sreenivasa Reddy 等人^[18]的研究表明, 在接收平均热流密度为 $400\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ 的太阳辐射时, 受到不均匀辐射的影响, 光伏电池的输出功率密度从 $82.8\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ 降低到了 $78.3\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$, 在 STPV

系统中，辐射器的温度均一性也是重要评价指标之一。

基于上述研究现状，本工作提出了一种应用于 STPV 系统的小孔腔式选择性吸收/辐射器。太阳光通过小孔进入辐射器内腔中，腔结构有效地避免了辐射器对太阳光吸收的同时对其进行反射的问题。此外，本工作提出的腔式辐射器限制在由 TPV 电池组成的封闭空间中，电池表面将不可转化为电能的辐射能反射回辐射器，有助于辐射器温度的升高，减小能量损失。最后，腔式辐射器 5 个充当辐射面的表面会与 TPV 电池进行充分的能量交换，而上表面为能量输入面，为减小能量损失会使用绝热石棉和反射膜，以最大程度地减少对流和辐射损失。我们首先建立应用该腔式辐射器的 STPV 系统能量传输模型，探究不同内部腔形状对辐射器辐射效率及温度均一性性能的影响，基于该研究找到性能表现较好的腔式辐射器结构。其次，将该结构与平板型辐射器系统进行性能对比分析。最后，对该结构辐射器系统性能进行综合分析。

1 系统设计及能量传输模型建立

1.1 系统设计

所提出的应用腔式辐射器的 STPV 系统简图如图 1(a)所示，其中，系统热源为 AM_{1.5} 的太阳能，其数据取自文献^[3]。腔式选择性辐射器选取在非真空高温下具有稳定性陶瓷材料型辐射器，比如 MgO、NiO 或稀土氧化物^[19]。辐射器上表面为能量输入面，太阳光经过菲涅尔透镜聚光后经过小孔进入腔式辐射器的腔中，此外，上表面覆盖绝热石棉以减少腔式辐射器的对流换热损失，并在绝热石棉下表面贴上反射膜以减少辐射器的辐射损失。如图 1(b)所示，为一个平板型辐射器系统，同时为减少吸收器对太阳能的反射，会通过增加吸收器与辐射器的面积比来提高平板型辐射器的光热效率^[20]。

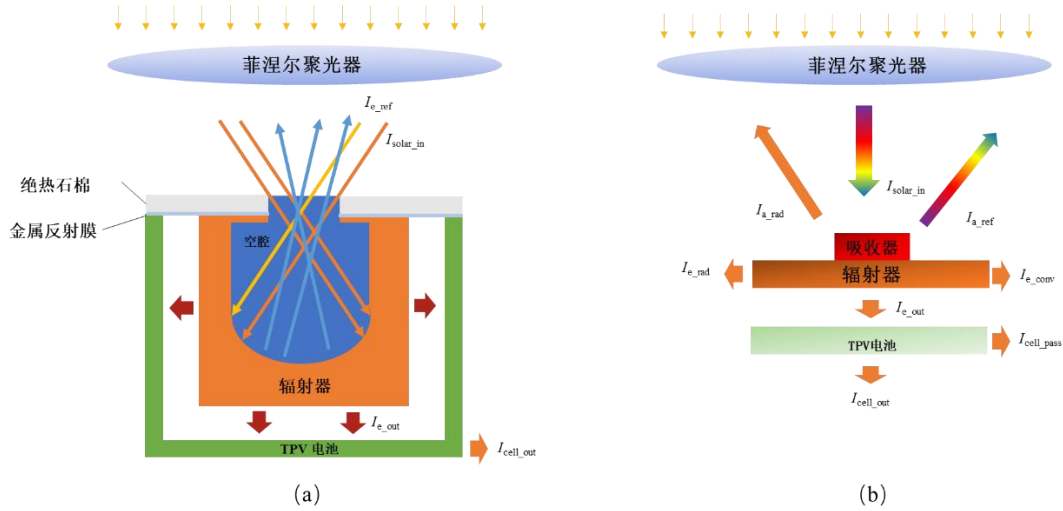


图 1 STPV 系统结构简图 (a)腔式辐射器; (b)平板型辐射器

1.2 能量传输模型

1.2.1 聚光器部件

聚光器最重要的一个性能参数为聚光比 CR ，它的含义是聚光器采光面积与聚焦后的光斑面积的比值

$$CR = \frac{S}{S'} \quad (1)$$

其中，假设聚光的过程中没有能量损耗，太阳辐射功率密度提高了 CR 倍。

1.2.2 辐射器部件

辐射器部件接收太阳能，并对其光谱进行重塑，调控后的辐射能供给 TPV 电池。对于

腔式辐射器其能量平衡方程为

$$I_{\text{solar_in}} - I_{\text{e_loss}} - I_{\text{e_conv}} = I_{\text{e_out}} \quad (2)$$

式中, $I_{\text{solar_in}}$ 为太阳能输入系统的功率密度, $I_{\text{e_loss}}$ 为由腔式辐射器小孔造成的辐射能量损失, 其计算方法参考文献^[21], $I_{\text{e_conv}}$ 为辐射器与环境发生的对流换热量, $I_{\text{e_out}}$ 为辐射器输出的能量。进入系统的太阳能表示为

$$I_{\text{solar_in}} = CR \times \int_{0.3\mu\text{m}}^{4\mu\text{m}} G_{\text{AM1.5}}(\lambda) d\lambda \quad (3)$$

$G_{\text{AM1.5}}(\lambda)$ 是大气质量 1.5 (简称 AM1.5) 时的太阳光谱辐射热流密度, 同时考虑到在 0.3 ~ 4 μm 波段的能量占比高达 96%, 所以选择该波段进行太阳光谱辐射热流密度的积分。

辐射器会与环境发生对流换热表示为 $I_{\text{e_conv}}$, 这部分能量表示为

$$I_{\text{e_conv}} = h_e \times (T_e - T_0) \quad (4)$$

式中, h_e 为选择性辐射器与环境之间的对流换热系数, 空气自然对流的对流换热系统一般在 5~25 W/(m²·K)^[2], 本文取 20 W/(m²·K)。 T_e 为辐射器温度, T_0 为环境温度, 本文取 293 K。

辐射器输出的能量可表示为

$$I_{\text{e_out}} = \int_{0.3\mu\text{m}}^{10\mu\text{m}} \frac{E_b(\lambda, T_e) - E_b(\lambda, T_{PV})}{\frac{1}{\varepsilon_e(\lambda)} + \frac{1}{\varepsilon_{PV}(\lambda)} - 1} d\lambda \quad (5)$$

式中, $E_{bb}(\lambda, T_e)$ 为温度 T_e 的黑体光谱辐射力, T_{PV} 为电池温度, $\varepsilon_e(\lambda)$ 和 $\varepsilon_{PV}(\lambda)$ 分别为辐射器和电池的光谱发射率, 由于 GaSb 电池是目前应用最为广泛的热光伏电池, 且已实现量产, 因此本工作选用该电池作为电池部件, 由文献^[22], 该电池的 $\varepsilon_{PV}(\lambda)=1$ 。

对于平板型辐射器其能量平衡方程为

$$I_{\text{solar_in}} - I_{\text{a_ref}} - I_{\text{a_emit}} - I_{\text{e_side}} - I_{\text{e_conv}} = I_{\text{e_out}} \quad (6)$$

其中, $I_{\text{a_ref}}$ 是吸收器反射的太阳能, $I_{\text{a_emit}}$ 为吸收器上表面对环境发出的热辐射, $I_{\text{e_side}}$ 为辐射器侧壁和上表面发出的热辐射。

在吸收器上表面, 部分入射太阳辐射未被吸收, 会被表面反射, 其表达式如下

$$I_{\text{a_ref}} = \int_{0.3\mu\text{m}}^{4\mu\text{m}} [1 - \varepsilon_a(\lambda)] G_{\text{AM1.5}}(\lambda) d\lambda \quad (7)$$

$\varepsilon_a(\lambda)$ 为吸收器上表面的光谱发射率。此外, 吸收器也会对环境发出热辐射 $I_{\text{a_emit}}$

$$I_{\text{a_emit}} = \int_{0.3\mu\text{m}}^{10\mu\text{m}} \varepsilon_a(\lambda) [E_b(\lambda, T_a) - E_b(\lambda, T_0)] d\lambda \quad (8)$$

1.2.3 TPV 电池部件

高温辐射器向 TPV 电池发射热辐射, 该部件能量平衡方程为

$$I_{\text{cell_in}} - I_{\text{cell_out}} - I_{\text{cell_envi}} = I_{\text{pass}} \quad (9)$$

其中, $I_{\text{cell_in}}$ 为辐射器部件的输出能量, $I_{\text{cell_envi}}$ 为电池与环境的辐射对流换热, 根据文献^[1], 其值较小, 可忽略不计, I_{pass} 为电池保持工作温度 300K, 所需的散热功率密度, 其计算方法参考文献^[23]。

电池将其转化为电能 $I_{\text{cell_out}}$ 根据文献^[2, 24], 其输出功率密度表示为

$$I_{\text{cell_out}} = \int_{0.3\mu\text{m}}^{10\mu\text{m}} V_{OC} \times FF \times \frac{q_0\lambda}{hc} EQE(\lambda) q_{\text{rad}}(\lambda) d\lambda \quad (10)$$

式中, V_{oc} 和 FF 分别为电池的开路电压和填充因子; J_{sc} 为电池表面各处的短路电流, 且 V_{oc} 和 FF 均与 I_{sc} 相关^[25], 其计算方法可参考文献^[20]; $EQE(\lambda)$ 为 GaSb 电池的外量子效率, 其值可在文献^[26]中找到; $q_c(\lambda)$ 为到达电池表面的光谱功率密度。

1.2.4 系统性能分析

根据上述各部件能量平衡公式, 利用数值模拟可以求得辐射器的温度分布结果, 进而求得电池的输出功率, 并根据系统输入能量求得 STPV 系统效率, 其表达式如下所示

$$\eta_{\text{sys}} = \eta_{\text{solar-emitter}} \times \eta_{\text{emitter-cell}} = \frac{I_{\text{emitter_out}}}{I_{\text{solar_in}}} \times \frac{I_{\text{cell_out}}}{I_{\text{emitter_out}}} = \frac{I_{\text{cell_out}}}{I_{\text{solar_in}}} \quad (11)$$

其中, $\eta_{\text{solar_emitter}}$ 被定义为辐射效率, 是辐射器发射的能量与系统输入的太阳能之比; $\eta_{\text{emitter_cell}}$ 被定义为 TPV 效率, 是辐射器发射的辐射能与电池输出功率密度之比。

2 结果与讨论

2.1 腔内部结构对辐射器性能的影响

评价辐射器性能的重要指标包括温度的大小及其均匀性以及辐射器辐射效率^[27]。辐射器温度越高, 则电池输出功率越大, 系统效率也会随之增大; 而温度分布的均匀性决定了电池表面接收辐射光子的均匀性, 以减小电池表面温度分布不均导致的性能衰退。

辐射器的结构对其温度分布及系统性能有着很大的影响, 目前, 对于腔式辐射器的结构研究已较为普遍, 其形状也较多, 包括屋顶形、圆柱形、球形、长方体形等^[28]。为探究不同结构腔式辐射器对 STPV 系统性能的影响, 如图 2 所示, 为采用屋顶形、圆柱形、球形、长方体形及内部无形状辐射器时 STPV 系统热电转化装置示意图。其中腔体外部为立方体, 边长为 50 mm, 内腔高度均为 40 mm, 屋顶形、圆柱形及长方体形的内径当量直径为 33 mm。辐射器选用高温稳定性较好的掺杂百分比为 MgO: NiO: Er₂O₃=70:7:23 陶瓷材料选择性辐射器, 并且该材料在非真空环境下也较稳定^[29], 该陶瓷材料选择性辐射器的光谱发射率随波长变化如图 3 所示。

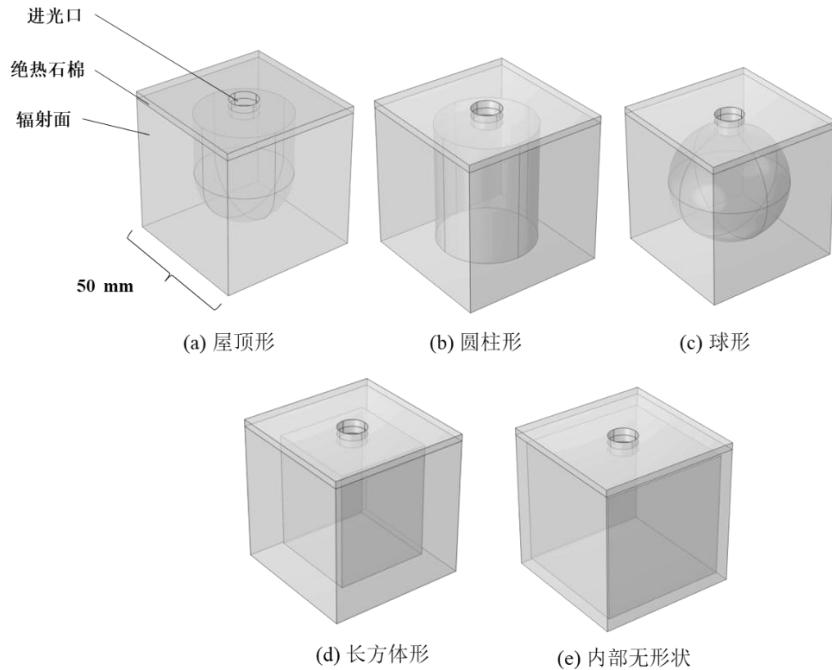


图 2 不同腔式结构辐射器示意图

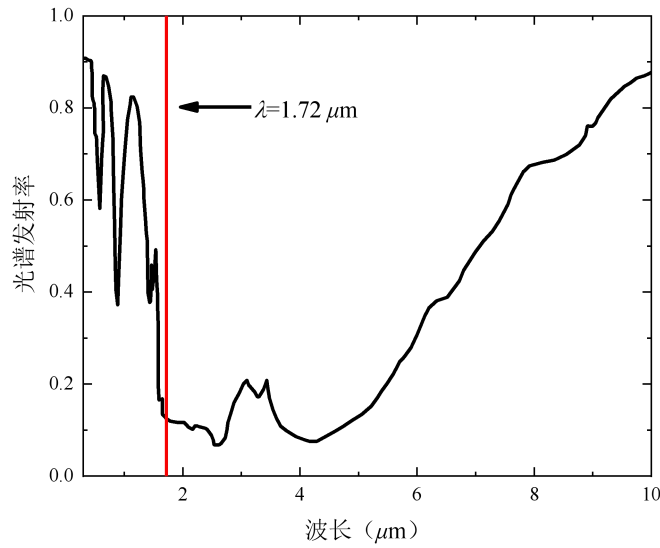


图 3 MgO: NiO: Er₂O₃=70:7:23 陶瓷材料选择性辐射器光谱发射率

图 4 示出不同内腔结构辐射器在 $CR=1000$ 时, 外表面温度分布示意图, 同时为更直观地看出辐射器性能表现, 如表 1 所示, 为不同结构辐射器侧表面及下表面温度及辐射效率表现。由图表可见, 内部球形辐射器的表面温度最高, 屋顶形次之, 内部无形状的腔式辐射器表面温度最低。如图 2(a)~(d)所示, 在等高底的情况下, 球形辐射器的表面积是最大的, 屋顶形次之。因此在吸收相同辐射密度能量时, 这两种结构吸收的太阳能量是略多的, 并且该两种结构都具有独特的凹面结构, 可增加辐射束在空腔中的反射次数, 从而减少由小孔中反射出的辐射能量, 使得进入腔式辐射器的太阳能量得到更好的利用。球形辐射器的面积最大, 因此其表面温度最高, 侧表面和下表面平均温度分别达到 1757.6 K 和 1862.5 K, 而屋顶形辐射器次之。

对辐射器性能评价的另一个指标是其表面温度均匀性。结合图 4 及表 1 可见, 侧表面温差最大的是球形辐射器, 最高温达到了 2029.1 K, 温差为 495.5 K。其原因是主要是球形辐射器接受的太阳能量较多从而导致温差变大。下表面温差最大的为内部无形状的辐射器, 温差达到了 1060.4 K, 入射太阳能量集中照射在辐射器底部, 且底部为平面, 无法像球形及屋顶形辐射器一样通过凹面结构增加辐射束在空腔中的反射次数, 从而减少能量集中, 降低表面温差。因此, 底面为平面的长方体形、圆柱形及内部无形状的辐射器下表面温差较高。侧表面温差较小的是屋顶形及圆柱形辐射器, 温差分别为 323.6 K 和 305.0 K。屋顶形和圆柱形侧边均是圆弧状, 可对辐射光束进行多次反射, 从而提升结构的温度均匀性。此外, 我们也对各内部结构辐射器的辐射效率进行计算, 如表 1 所示。可以看到, 球形辐射器的辐射效率最高达到了 80%, 其主要原因是该辐射器吸收了最多的太阳能量, 导致辐射器温度最高, 进而提高了辐射效率。而较为常见的圆柱形辐射器辐射效率是最低的仅有 64%, 其原因是相比于凹面结构底面, 圆柱形辐射器的平底面会反射更多的太阳能量, 这些能量通过小孔逸出。由此可见, 结合温度大小、均匀性及辐射器的辐射效率三个指标, 在相同工况下, 屋顶形辐射器性能表现最好, 后续的研究中以该辐射作为主要研究对象。

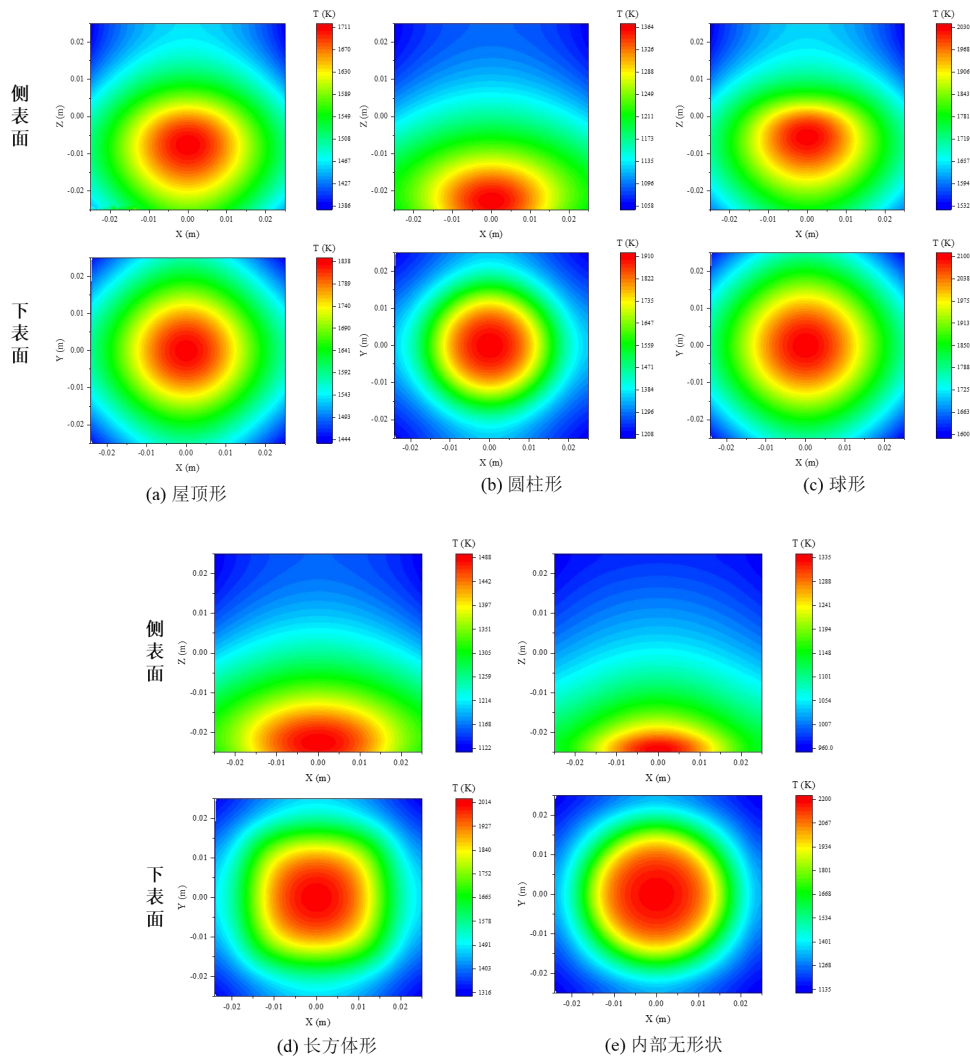


图 4 辐射器表面温度分布示意图

表 1 腔式辐射器性能随内部腔结构的影响

	屋顶形	圆柱形	球形	长方体形	内部无形状
侧表面平均温度 (K)	1653.9	1172.9	1757.6	1260.6	1068.5
侧表面最高温度 (K)	1812.4	1363.8	2029.1	1487.4	1335.1
侧表面最低温度 (K)	1506.7	1058.8	1533.6	1122.3	961.0
侧表面温差 (K)	305.7	305.0	495.5	365.1	374.1
下表面平均温度 (K)	1743.0	1486.8	1862.5	1630.8	1388.1
下表面最高温度 (K)	1930.0	1910.2	2100.0	2012.8	1730.9
下表面最低温度 (K)	1553.4	1210.0	1601.1	1317.6	1135.4
下表面温差 (K)	376.6	700.2	498.9	695.2	1060.4
辐射效率 (%)	74	64	80	69	66

2.2 腔式辐射器与平板型辐射器性能对比分析

为探究腔式辐射器与平板型辐射器性能区别，我们选取文献^[20]中系统性能表现较好的 W/SiO₂ 超材料吸收/辐射器作为对比对象。吸收器及辐射器的光谱吸收率及发射率如图 5(a) 所示。此外，根据文献^[20]中探究的辐射器与吸收器最佳面积比为 5 时辐射/吸收器的系统效率最高，我们同样选取该几何参数研究。如图 5(b) 所示为 $CR=1000$ 时，平板型辐射器下表面温度分布图。此时表面最高温度为 1116.4 K，温差为 56.5 K，与表 1 中腔式辐射器对比，可以看到温差是低于腔式辐射器，但是其辐射效率仅有 46.2%，远低于腔式辐射器。其主要原因是吸收器会本身会对太阳辐射进行反射，同时会有自发射。辐射器上表面的辐射无效区也会自发射和对太阳能的进行反射造成能量损失，从而导致平板型辐射器的温度大小和辐射效率低于腔式辐射器。

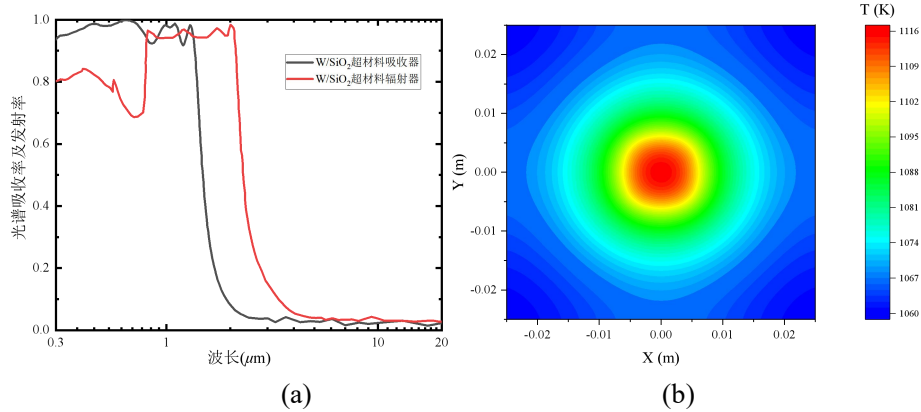


图 5 (a) W/SiO₂ 超材料吸收/辐射器的光谱吸收率及发射率；(b) $CR=1000$ 时，辐射器下表面的温度分布

为研究二者性能表现差异，将聚光比设置为 100~1000，计算屋顶形腔式辐射器及平板辐射器表面温度和 STPV 系统效率如图 6 所示。从图 6 (a) 可以看出，当聚光比从 10 增加到 1000 时，平板型辐射器由于辐射效率远低于腔式辐射器，辐射器温度在 $CR=1000$ 时最高温仅有 1116.4 K，而此时腔式辐射器侧表面最高温为 1812.4 K，下表面最高温度为 1930.0 K。此外，对于平板型辐射器 $CR=100$ 时，其温差为 5.7 K，而腔式辐射器的侧表面温差为 50.7 K，下表面温差为 51.34 K，在 $CR=1000$ 时，平板型辐射器温差为 56.5 K，腔式辐射器侧表面温差为 305.7 K，下表面温差为 376.6 K。由此可见，不论是平板型还是腔式辐射器，在低聚光比下辐射器表面温差较低，表面温度分布较为均匀，然而随着聚光比的逐渐增加，两种辐射器的温差均增大，温度分布不均匀性也在逐渐加剧。这主要是因为，对于平板型辐射器，随着聚光比的增大，且吸收器-辐射器的面积比小于 1 的情况下，吸收器中心能量比四周高得多，从而导致辐射器温差的出现。而对于腔式辐射器，随着聚光比的增大，太阳能照射到腔内侧中心的能量也在增大，凹面结构会反射能量的同时也会使能量聚集，因此温差也随着聚光比的增大而增大。当 $CR=1000$ 时，在腔内部凹面结构中心的辐射功率密度达到了 94.5 W/cm²，而腔内部辐射功率密度最小值为 59.9 W/cm²。由此可见，随着聚光比的增大，辐射器温差会增大，并且平板型辐射器温差是小于腔式辐射器表面温差的，但值得注意的是，腔式辐射器表面温度是远高于平板型辐射器。

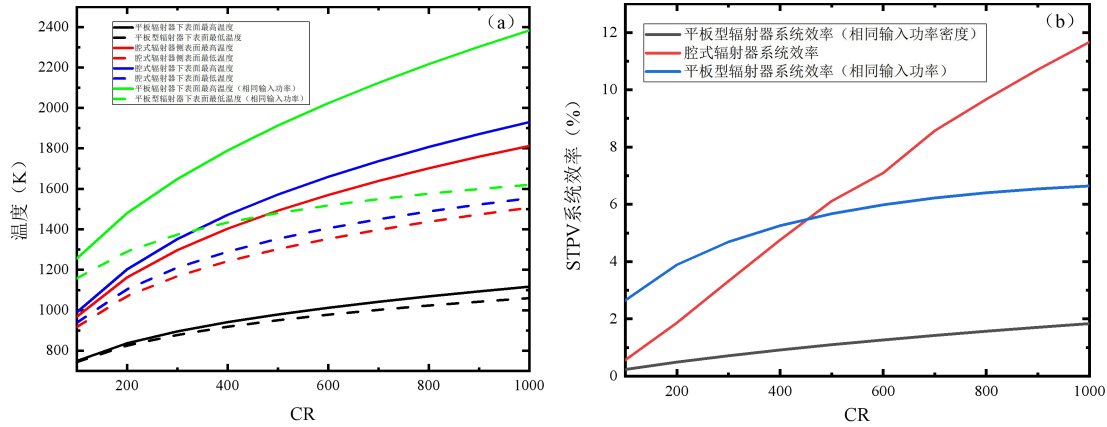


图 6 平板型辐射器与腔式辐射器 (a) 温度对比及 (b) 系统效率对比

另外,如图 6(b)所示,是平板型辐射器与腔式辐射器在 GaSb STPV 系统中的性能表现对比情况。可以发现平板型辐射器的系统效率是低于腔式辐射器的。聚光比为 1000 时,配备材料型腔式辐射器的 STPV 系统效率为 11.67%,而平板结构型辐射器的 STPV 系统效率为 1.83%。其主要原因是平板型辐射器辐射效率远低于腔式辐射器,其能量损失主要由吸收器对太阳能的反射和本身的自发射以及辐射器侧表面和上表面的辐射无效区产生。CR=1000 时,辐射器辐射无效区产生的能量损失就占输入太阳能量的 46%。而对于腔式辐射器而言,该结构辐射器能量损失的主要是太阳能进入辐射器腔后凹面结构对辐射束的反射,但腔式辐射器的小孔作用便是将降低该部分损失。

在上述基于相同能量输入功率密度的工况下,平板型吸收/辐射器的整体输入功率仅有 100W,而腔式辐射器系统输入功率为 1740W。为探究平板型辐射器与腔式辐射器系统输入相同功率 1740W 的情况下,二者的性能表现差异,我们计算了此时辐射器的温度和 STPV 系统效率如图 6(a)(b)所示。可以看到,当二者的输入功率一致时,平板型辐射器的温度显著上升,其最高温度高于腔式辐射器侧表面和下表面的最高温度,并且最低温度也高于腔式辐射器的侧表面及下表面最低温度。此外,值得注意的是,聚光比 100~1000 范围内,平板型辐射器的温差也从 97.4 K 上升到 762.9 K,远高于腔式辐射的侧表面及下表面温差。对系统效率进行分析可以发现,平板型辐射器在 $CR < 500$ 时系统效率是高于腔式辐射器,其主要原因是二者输入相同的辐射能时,腔式辐射器体积高于平板型辐射器,前者的导热热阻是高于后者的,因此前者温度是低于后者,此时腔式辐射器输出的电池可转化能量是低于平板型辐射器的。然而,随着聚光比的增大,腔式辐射器温度逐渐上升,辐射器输出的电池可转化辐射能也逐渐增大。虽然此时平板型辐射器的温度仍然高于腔式辐射器,但是腔式辐射器具有 5 个辐射有效区,这些辐射有效区输出的电池可转化能量总和是高于平板型辐射器的,因此在 $CR > 500$ 后,腔式辐射器系统效率高于平板型辐射器系统。

综上所述,在相同的输入功率密度下,对比腔式辐射器与平板型辐射器的温度表现时,虽然平板型辐射器的温差低于腔式辐射器,但其温度也是远低于腔式辐射器的。同时,腔式辐射器的系统效率在聚光比为 100~1000 的范围内,也是高于平板型辐射器的。在相同的输入功率下,平板型辐射器的温度会高于腔式辐射器,但是其温差也远高于腔式辐射器。此外,腔式辐射器系统效率在 $CR < 500$ 时是低于相同输入功率的平板型辐射器系统的。值得注意的是,我们选用的平板型吸收/辐射器是更具有光谱选择性的结构型吸收/辐射器,而腔式辐射器是光谱效率较低的材料型辐射器。

2.3 腔式辐射器 STPV 系统性能分析

2.3.1 不同类型辐射器对系统性能的影响

基于上述研究发现,材料型辐射器在 $CR=1000$ 时,光谱效率为 52.9%。而结构型辐射

器光谱效率普遍会高于材料型辐射器，因此为提高 STPV 系统整体效率，需要对辐射器的光谱性能进行优化。我们分析了当其他边界条件不变的情况下，腔式辐射器辐射面为一维 Mo/HfO₂ 辐射器时系统的性能表现，如图 7（a）所示为该辐射器的光谱发射率随波长变化图，图 7（b）所示，为结构型腔式辐射器系统效率随聚光比的变化。当替换为结构型辐射器时，CR=1000 时，该辐射器的光谱效率为 68.6%，此时系统效率为 16.0%。其原因是当辐射器的光谱效率提高后，辐射器转化的电池可利用的辐射能增大，从而提高电池效率，最终提高系统效率。由此可见，为提高腔式辐射可考虑在腔式辐射器辐射面替换为光谱性能更好的结构型辐射器。

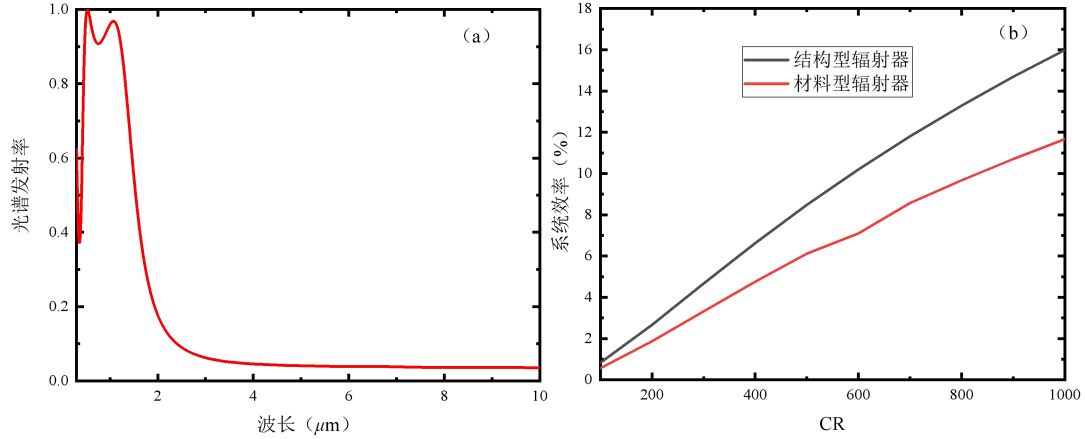


图 7 （a）一维 Mo/HfO₂ 辐射器光谱发射率随波长变化；（b）结构型腔式辐射器系统效率随聚光比的变化

2.3.2 腔式辐射器内腔发射率对系统性能的影响

由上述分析可知，除腔式辐射器外辐射面对系统性能表现有较大影响外，腔式辐射器的能量接收腔也同样对系统性能表现有着至关重要的影响。在上述我们已经对腔形状结构对辐射器性能的影响展开了分析，除结构外，腔内部的发射率也影响着辐射器的性能表现。计算中取聚光比为 1000，外辐射面仍然为陶瓷材料型选择性辐射器，腔内部发射变化范围为 0.1~1，图 8 为腔内部发射率变化时辐射器表面温差和 STPV 系统效率。当腔内发射率从 0.1 增大到 1 时，侧表面温差逐渐减小，下表面温差逐渐增大，其中，侧表面温差从 312.2 K 下降至 293.2 K，而下表面温差从 214.8 K 增大至 261.8 K。侧表面和下表面的平均温度均随着腔内部发射率的增大而增大。下表面温差随着腔内发射率的增大而增大的原因是当太阳辐射能进入腔内时，由于基尔霍夫定律，发射率等于吸收率，腔内部发射率增大，腔底部对入射辐射能吸收的越多，从而导致能量集中于屋顶形辐射器的凹面结构中心，从而导致下表面温差增大，进而导致侧表面的温差降低。因此，STPV 系统效率随着内部腔发射率的增大而增大。

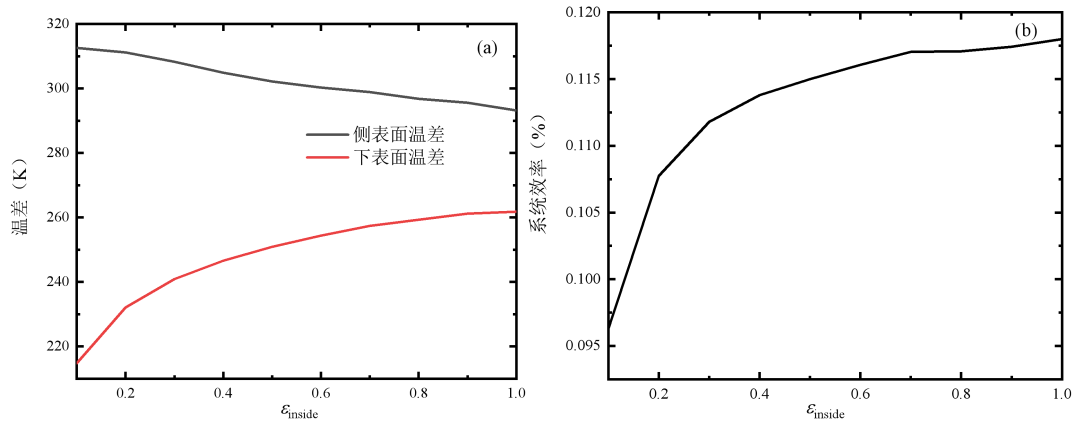


图 8 (a)辐射器表面温差和(b)STPV 系统效率随腔内发射率的变化

3 结 论

本文构建了腔式辐射器系统的能量传输模型,首先讨论了不同腔内部结构对辐射器性能的影响,通过该研究选出性能表现较好的腔内部结构,基于该种辐射器将其与平板型辐射器进行性能对比。最后,对腔式辐射器 STPV 系统性能进行综合分析。结果表明,球形辐射器和屋顶形辐射器的辐射效率和温度较高,辐射效率分别为 80%和 72%,侧表面平均温度分别为 1757.6 K 和 1653.9 K,下表面平均温度分别为 1862.5 K 和 1743.0 K。主要原因是该两种辐射器结构具有独特的凹面结构可以增大辐射束的反射次数,从而减少从腔口逸出的辐射束。此外,平板型辐射器的辐射效率低于腔式辐射器,导致前者系统效率也低于后者。在相同输入功率密度的工况下,腔式辐射器系统效率在 $CR=1000$ 时,大约是平板型辐射器 STPV 系统的 6.3 倍。在相同输入功率的情况下,腔式辐射器系统效率大约为平板型辐射器系统效率的 2 倍。在对腔式辐射器的性能研究工作中,为保证腔式辐射器的高温稳定性,我们先选用耐高温且稳定的陶瓷材料型辐射器,其光谱效率在 $CR=1000$ 时为 52.9%,为进一步提高腔式辐射器系统效率,我们尝试使用结构型辐射器对其进行光谱优化,一维 Mo/HfO₂ 辐射器的光谱效率在相同条件下为 68.6%,最终系统效率比材料型辐射器系统效率高 4.3% ($CR = 1000$)。此外,我们对腔内部发射对辐射器性能的影响进行分析,发现随着腔内部发射率的增大,辐射器侧表面温差逐渐减小,而下表面温差逐渐增大,同时 STPV 系统效率逐渐增大。综上所述,在相同工况下,腔式辐射器在减少能量损失及提高表面温度均匀性方面均优于平板型辐射器,该结构辐射器可为进一步推动 STPV 系统实用化奠定基础。

References

- [1] LIAO T, CHEN X, YANG Z, et al. Parametric characteristics of a solar thermophotovoltaic system at the maximum efficiency [J]. *Energy Conversion and Management*, 2016, 126: 205-9.
- [2] WANG Z, KORTGE D, HE Z, et al. Selective emitter materials and designs for high-temperature thermophotovoltaic applications [J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2022, 238: 111554.
- [3] BHATT R, GUPTA M. Design and validation of a high-efficiency planar solar thermophotovoltaic system using a spectrally selective emitter [J]. *Optics Express*, 2020, 28(15): 21869-90.
- [4] ZHANG G, WEI J, WANG Z, et al. Investigation into effects of non-uniform irradiance and photovoltaic temperature on performances of photovoltaic/thermal systems coupled with truncated compound parabolic concentrators [J]. *Applied Energy*, 2019, 250: 245-56.
- [5] 周洁, 庞志伟, 卢晓啸. 稀土辐射器 TPV 利用高温余热发电的性能研究 [J]. *动力工程学报*, 2011, 31(01): 64-8.
- [6] 刘季韬. 基于光子晶体选择性辐射器的热光伏系统研究 [D]; 中国科学院大学(中国科学院近代物理研究所), 2021.
- [7] 张文斌, 王博翔, 赵长颖. 基于贝叶斯优化的选择性热光伏辐射器设计 [J]. *工程热物理学报*, 2021, 42(11): 2965-71.
- [8] 梁李江. 匹配铈化镓热光伏电池的超材料辐射器设计、制造和试验 [D]; 浙江大学, 2020.
- [9] CHAN W R, BERMEL P, PILAWA-PODGURSKI R C, et al. Toward high-energy-density, high-efficiency, and moderate-temperature chip-scale thermophotovoltaics [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2013, 110(14): 5309-14.
- [10] SUEMITSU M, ASANO T, INOUE T, et al. High-efficiency thermophotovoltaic system that employs an emitter based on a silicon rod-type photonic crystal [J]. *ACS Photonics*, 2019, 7(1): 80-7.
- [11] CHIRUMAMILLA M, KRISHNAMURTHY G V, KNOPP K, et al. Metamaterial emitter for thermophotovoltaics stable up to 1400 C [J]. *Scientific reports*, 2019, 9(1): 1-11.
- [12] KIM J H, JUNG S M, SHIN M W. Thermal degradation of refractory layered metamaterial for thermophotovoltaic emitter under high vacuum condition [J]. *Optics Express*, 2019, 27(3): 3039-54.
- [13] BHATT R, KRAVCHENKO I, GUPTA M. High-efficiency solar thermophotovoltaic system using a nanostructure-based selective emitter [J]. *Solar Energy*, 2020, 197: 538-45.
- [14] LENERT A, BIERMAN D M, NAM Y, et al. A nanophotonic solar thermophotovoltaic device [J]. *Nature Nanotechnology*, 2014, 9(2): 126-30.
- [15] KOHIYAMA A, SHIMIZU M, KONNO K, et al. Effective photon recycling in solar thermophotovoltaics using a confined cuboid emitter [J]. *Optics Express*, 2020, 28(26): 38567-78.
- [16] KOHIYAMA A, SHIMIZU M, YUGAMI H. Unidirectional radiative heat transfer with a spectrally selective planar absorber/emitter for high-efficiency solar thermophotovoltaic systems [J]. *Applied Physics Express*, 2016, 9(11): 112302.
- [17] 朱柯羽. 基于非均温吸收/辐射器的太阳能热光伏系统性能分析与优化 [D]; 苏州大学, 2021.

- [18] REDDY G S, REDDY T B, KUMAR M V. A MATLAB based PV Module Models analysis under Conditions of Nonuniform Irradiance [J]. *Energy Procedia*, 2017, 117: 974-83.
- [19] 王虎军. 应用于热光伏系统的选择性辐射器的制备及辐射性能的研究 [D]; 中国科学技术大学, 2015.
- [20] WANG H, CHANG J-Y, YANG Y, et al. Performance analysis of solar thermophotovoltaic conversion enhanced by selective metamaterial absorbers and emitters [J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2016, 98: 788-98.
- [21] TIAN J, SHAN S, CHEN B, et al. Performance analysis and selective emitter design for an efficient concentrated solar thermophotovoltaic system based on cavity-structured absorber and high-bandgap cell [J]. *Thermal Science and Engineering Progress*, 2023, 40: 101767.
- [22] WU X, YE H, WANG J. Experimental analysis of cell output performance for a TPV system [J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2011, 95(8): 2459-65.
- [23] ROY-LAYINDE B, BURGER T, FAN D, et al. Sustaining efficiency at elevated power densities in InGaAs airbridge thermophotovoltaic cells [J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2022, 236: 111523.
- [24] SURENDRA GUPTA M V N, BAIG H, AMEEN E, et al. Numerical modeling and performance enhancement of micro combustor powered thermophotovoltaic systems using high contrast gratings [J]. *Applied Thermal Engineering*, 2022, 215: 118935.
- [25] CHAN W, HUANG R, WANG C, et al. Modeling low-bandgap thermophotovoltaic diodes for high-efficiency portable power generators [J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2010, 94(3): 509-14.
- [26] SHOAEE E. Performance assessment of thermophotovoltaic application in steel industry [J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2016, 157: 55-64.
- [27] XUAN Y, CHEN X, HAN Y. Design and analysis of solar thermophotovoltaic systems [J]. *Renewable Energy*, 2011, 36(1): 374-87.
- [28] 陈雪, 宣益民, 韩玉阁. STPV 系统中辐射吸收器热分析及优化 [J]. *中国科学(E 辑: 技术科学)*, 2009, 39(10): 1757-65.
- [29] WANG H, YE H, ZHANG Y. Preparation and performance evaluation of Er₂O₃ coating-type selective emitter [J]. *Science China Technological Sciences*, 2014, 57: 332-8.

太阳能直接驱动的钙基复合空心微球 储能实验研究

陈龙, 朱琪斌*

(南京航空航天大学能源与动力学院, 南京 210016)

(Tel:15251766358, Email:zhuqb@nuaa.edu.cn)

摘要: 钙循环热化学储能是聚光太阳能发电中最有前景的储能技术。但 CaCO_3 太阳吸收率低, 需间接加热达到反应温度, 能量损失严重。此外, CaCO_3 易发生烧结, CO_2 传质影响严重。本文通过制备 Zr-Mn 掺杂的钙基复合空心微球, 重点研究了 CaCO_3 的光谱吸收率对太阳能利用率的影响及多孔形貌对 CO_2 扩散传质影响。结果表明: 钙基复合空心微球平均太阳吸收率最高可达 82.88%, 可由太阳能直接驱动, 辐射损失减少, 孔体积比商业 CaCO_3 提升了 1 个量级, CO_2 的扩散传质得以显著增强。

关键词: 热化学储能; 太阳吸收率; 辐射换热; 传质强化; 空心球

0 前言

在各种可再生能源中, 太阳能因其分布广泛、绿色环保且资源禀赋丰厚, 成为全世界最为青睐的清洁能源之一^[1]。聚光太阳能发电技术(CSP)是太阳能利用的重要途径之一, 近十年来得到了迅速的发展^[2]。然而, 太阳能却容易受到昼夜交替、天气、环境的影响, 具有间歇性, 波动性等弊端。因此, 需要将聚光太阳能发电技术和热能储存技术结合起来, 把太阳能以热能的形式储存起来, 在需要的时候使其持续稳定的输出, 从而克服太阳能自身存在的弊端。第一代和第二代 CSP 技术使用的储热材料工作温度分别在 400°C 和 565°C 以下^[3-6]。为了达到更高的能量利用效率, 下一代 CSP 技术将工作温度和太阳能发电效率将提高到 700°C 和 40%以上, 这对储能材料的耐热性提出了更高的要求^[7, 8]。目前, 迫切需要寻找一种新的储热方式, 应用到第三代 CSP 中。相对于第一代的显热储热和第二代的潜热储热, 热化学储热以其工作温度高、储能密度高、储能周期长等优点, 在高温储热中更占优势^[9-11]。而在热化学储能的候选材料中, CaCO_3 以其成本低、环保、无毒和更合适的工作温度范围(700-1000°C)成为第三代 CSP 最具前途的应用材料^[12-14]。

利用 CaCO_3/CaO 组成的钙循环系统可以实现能量的储存/释放。能量的储存/释放可由以下化学反应式描述^[15]:

基金项目: 中国博士后创新人才支持计划(项目批准号: BX20220389)和江苏省“卓博计划”(项目批准号: 2022ZB216)。



正反应为煅烧反应，此过程吸收能量使化学键断裂。逆反应为酸化反应，通过重整化学键释放能量。

在能量储存/释放的条件下，煅烧温度和酸化温度都很高 ($>700^\circ\text{C}$)，这远远超过了 CaCO_3 的塔曼温度 (533°C) [16]。因此，会造成 CaCO_3 的烧结，将会严重影响 CO_2 的扩散传质，从而降低了循环稳定性和储能密度。为了克服这一难题，Li 等[17]通过改变微观形貌，并且掺杂抗烧结的 Al 元素，合成了双壳铝稳定 CaO 基空心微球，虽然一定程度上强化了 CO_2 的扩散传质，改善了循环稳定性，但是在低于 700°C 的条件下经过 30 次循环之后，仍然有大量的孔隙结构被破坏，储能密度下降了约 39.6%。除此之外，由于 CaCO_3 直接捕获太阳能的能力较低，因此，常规的钙循环聚光太阳能发电系统采用间接传热的方式将热量传递到反应室，通过表面加热的方式以达到反应温度。这一过程中存在壁温高，吸热面与 CaCO_3 之间热阻大等缺点，其中最重要的是辐射热损失严重，根据辐射换热公式可知，辐射热损失和温度呈几何倍数的关系，这将会造成严重的能量损失[18]。Xuan 等[18]发现掺杂 Fe 和 Mn 混合氧化物不仅可以提高 CaCO_3 在 700°C 下的循环稳定性，而且光谱吸收率也有了较大的改善，可实现太阳能直接驱动反应，提高了能量的利用效率，但是该方法制得的储能材料无法适应 800°C 以上的工作温度，高温环境下孔隙结构遭到了不可逆的破坏， CO_2 的扩散传质受到严重影响，循环稳定性急速下降。因此需要开发一种可以强化 CO_2 的扩散传质，光谱吸收率高的钙基材料。

Xuan 等[18]的研究表明，掺杂 Mn 元素可以显著提高 CaCO_3 对太阳能的捕获能力，但是，抗烧结能力还有待改善，而 Zr 元素和 CaCO_3 可以在高温下反应生成抗烧结能力较强的 CaZrO_3 ，从而改善 CaCO_3 的热循环稳定性。因此，我们通过掺杂 Zr 元素和 Mn 元素来改善钙基储能材料的循环稳定性和光谱吸收能力，并且通过模板辅助法来改变钙基储能材料的微观形貌，以达到强化 CO_2 扩散传质的目的。本文主要讨论了 Zr 的掺杂和空心微球形貌对 CO_2 扩散传质的强化；以及 Mn 的掺杂对平均太阳吸收率的提高，从而减少了能量损失。

1 实验部分

1.1 试剂和原料

所有采用的试剂均为分析纯级，无需进一步提纯。四水合硝酸钙、葡萄糖、尿素和十六烷基三甲基溴化铵 (CTAB) 购自阿拉丁化工股份有限公司。硝酸锰溶液和硝酸锆五水合物购自上海麦克林生化科技股份有限公司。

1.2 钙基复合空心微球的合成

首先，将 18 g 的葡萄糖和 0.9 g 的 CTAB 分散到 120 ml 去离子水中，然后将混合溶液在 180°C 下水热 8 h。将反应产物用酒精和去离子水过滤洗涤 5 遍，去除多余杂质。然后将所得固体 (碳质微球) 在 90°C 烘箱中干燥 12 h。将 2 g 碳质微球、15 g 尿素、18.9 g 四水合硝酸钙、一定量的硝酸锰溶液和硝酸锆五水合物溶解到 100 ml 去离子水中，在 90°C 的油浴锅中水解 4 h，将反应后的产物通过真空抽滤分离后，放到 90°C 烘箱中干燥 12 h。将上述固体在马弗炉中以 $2^\circ\text{C}/\text{min}$ 达到 500°C 之后，保温 2 h，然后再以 $2^\circ\text{C}/\text{min}$

达到 800°C，保温 1 h 煅烧。将煅烧之后的产物置于管式炉中，CO₂ 流量为 100 ml/min，升温速率为 10°C/min，700°C 酸化 2 h，即得所述钙基复合空心微球。本文将 Zr、Mn 掺杂的钙基复合空心微球命名为 CaX-ZrY-MnZ，X、Y、Z 分别表示前体溶液中 Ca、Zr、Mn 离子的摩尔比。本文以商业 CaCO₃ 作为对照。本工作重点研究了 Mn 的掺杂量对钙基复合空心微球光谱吸收率的影响，选取了 Ca:Zr 摩尔比为 450:1 作为负载基体，因为在该比例下合成的钙基复合空心微球球形度较好，并且储能密度较高。

1.3 钙基复合空心微球的表征

采用 X 射线衍射仪（德国 Bruker 公司 D8 ADVANCE 型）检测钙基复合空心微球晶体组分，衍射角范围为 20-80°。采用扫描电镜（SEM，德国 Zeiss 公司，Geminin300 型）来观察钙基复合空心微球的微观形貌特征。用物理吸附仪（美国 Micromeritics 公司，ASAP2460 型）分析了钙基复合空心微球的比表面积和孔体积特性。通过 Brunauer-Emmett-Teller(BET)方程和 Barrett-Joyner-Halenda(BJH)方程分别得到了基于 N₂ 吸收和脱附的比表面积和孔体积。用紫外-可见-近红外(UV-VIS-NIR)光谱仪（美国 Perkinelmer 公司，λ1050+型）测量了样品在 200~2000 nm 波段内的光谱反射率。通过以下公式计算平均太阳吸收率：

$$A_{\text{sol}} = \frac{\int_{200\text{nm}}^{2000\text{nm}} \alpha(\lambda) I(\lambda)_{\text{AM1.5D}} d\lambda}{\int_{200\text{nm}}^{2000\text{nm}} I(\lambda)_{\text{AM1.5D}} d\lambda} \quad (2)$$

式中 $\alpha(\lambda)$ ， $I(\lambda)_{\text{AM1.5D}}$ 是在 AM1.5D 条件下测量的光谱吸收率和光谱辐照度， λ 代表波长。

1.4 能量储存测试

在同步热分析仪（METTLER TOLEDO TGA/DSC 3+）上对钙基复合空心微球的热化学储能性能进行了测试，整个测试过程如下：在氧化铝坩埚中装入约 5 mg 的样品，以 20° C/min 的升温速率达到 800°C，然后在 100 mL/min 的纯 N₂ 气氛下煅烧 15 min。碳化过程在 800°C 下，100 mL/min 的纯 CO₂ 的气氛下进行 20 分钟。将煅烧/碳化过程重复 20 次，以测试样品的循环稳定性。

采用储能密度 D_n 来评价样品的储能性能，如下式所示：

$$D_n = \frac{(m_{\text{car},N} - m_{\text{cal},N})\Delta H / M_{\text{CO}_2}}{m_i} \quad (3)$$

式中， N 为煅烧/碳化循环次数， $m_{\text{car},N}$ 和 $m_{\text{cal},N}$ 分别表示在第 N 个循环中碳化/煅烧过程结束时钙基复合空心微球的质量， M_{CO_2} 为 CO₂ 的摩尔质量， m_i 表示测试开始时样品的原始质量。

2 结果与分析

采用 XRD 分析了钙基复合空心微球和商业 CaCO₃ 的晶体特性，如图 1 所示，钙基复合空心微球的 XRD 图谱表明，碳质模板被彻底去除，钙基复合空心微球由 CaCO₃、

CaZrO_3 和 Ca_2MnO_4 组成。从图 1 中可以看出，绝大多数的衍射峰是 CaCO_3 的峰，这是因为 CaCO_3 的结晶度和含量较高。 CaCO_3 形成是因为在 90°C 的温度下，尿素水解后与 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 发生了反应而生成的。 CaZrO_3 和 Ca_2MnO_4 相的出现表明在高温下 CaCO_3 与 ZrO_2 和 MnO_2 发生了反应，并且证明了 Zr 元素和 Mn 元素的成功掺杂。

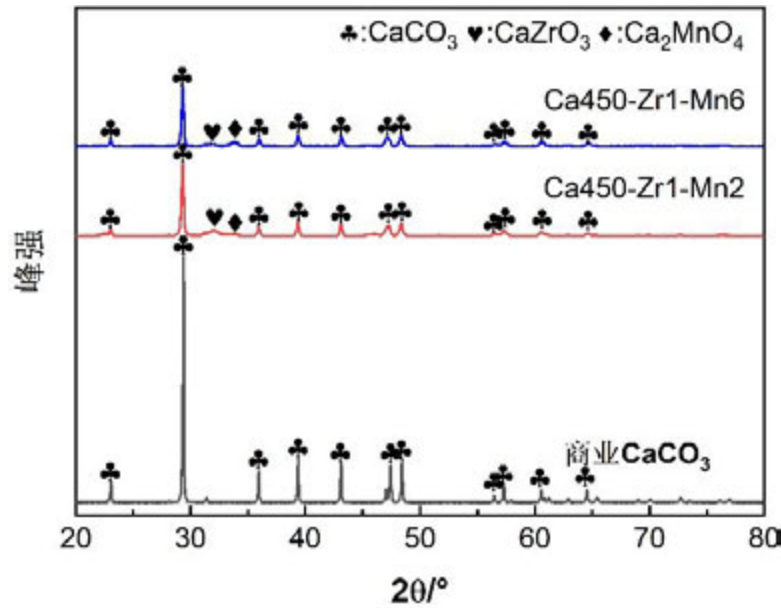


图 1 商业 CaCO_3 、 Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 的 XRD 曲线

商业 CaCO_3 、 Ca450-Zr1 、 Ca450-Mn1 、 Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 的光谱吸收率如图 2 所示，由公式计算商业 CaCO_3 、 Ca450-Zr1 、 Ca450-Mn1 、 Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 的平均太阳吸收率如表 2 所示，掺杂 Mn 元素后，极大地提高了钙基复合空心微球对太阳能光子的捕获能力，增强了光学吸收率，并且随着掺杂量的增加，平均太阳吸收率越高。掺杂后的钙基复合空心微球的平均太阳吸收率可高达 82.88%，是纯碳酸钙的 13.5 倍（纯碳酸钙对太阳辐射的吸收率仅为 6.14%）。在不考虑辐射热阻的情况下，并且平均太阳吸收率等于发射率，可由以下公式计算单位面积的辐射换热量：

$$q = \sigma A_{\text{sol}} (T_1^4 - T_2^4) \quad (4)$$

式中 q 表示单位面积的换热量， σ 为辐射常数， T_1 、 T_2 分别为高温物体和低温物体的温度。

根据公式可知，单位面积的换热量与平均太阳吸收率成正比，平均太阳吸收率的大幅提高，钙基复合空心微球可以直接吸收太阳辐射的热量以达到反应所需要的反应温度。若通过间接传热达到反应温度，辐射热损失和温度的 4 次方成正比，则会造成严重的能量损失。因此，本方法避免了通过间接传热造成的能量损失，提高了能量利用效率，充分利用了太阳能。

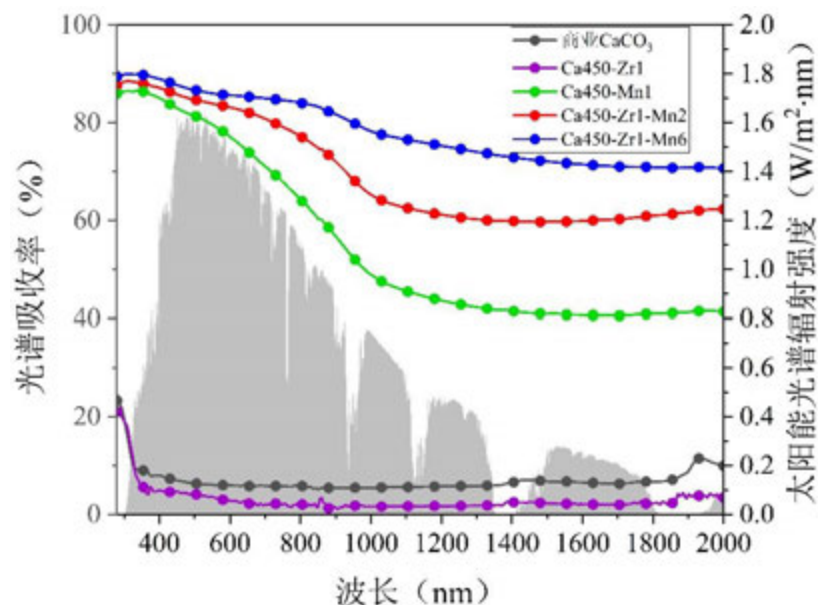


图2 商业 CaCO_3 、Ca450-Zr1、Ca450-Mn1、Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 的光谱吸收率

表 1 商业 CaCO_3 、Ca450-Zr1、Ca450-Mn1、Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 的平均太阳吸收率

样品名称	平均太阳吸收率(%)
商业 CaCO_3	6.14
Ca450-Zr1	2.77
Ca450-Mn1	66.49
Ca450-Zr1-Mn2	76.59
Ca450-Zr1-Mn6	82.88

图3为制备的钙基复合空心微球在20个循环中的储能密度曲线(D_n)。其中Ca450-Zr1-Mn2储能密度的提升最为显著,商业 CaCO_3 在第20个循环的储能密度仅为668 kJ/kg,而Ca450-Zr1-Mn2的储能密度为1115 kJ/kg,约为商业 CaCO_3 的1.7倍。Ca450-Zr1-Mn6的循环曲线具有与Ca450-Zr1-Mn2相同的变化趋势,但是其储能密度相对于Ca450-Zr1-Mn2较低,造成这样的结果是因为提高Mn的掺杂量会使有效的 CaCO_3 成分减少,而不参与反应的的惰性成分(CaZrO_3 和 Ca_2MnO_4)含量增加,从而使钙基复合空心微球的储能密度降低。总体来看,钙基复合空心微球的循环稳定性明显优于商业 CaCO_3 ,经过20个高温循环之后,储能密度仍然保持在较高水平。主要是因为 CaCO_3 的塔曼温度较低,随着循环次数的增加,其发生了严重的烧结,破坏了孔隙结构,导致 CO_2 的扩散传质受到了严重的影响, CO_2 难以与内部的活性物质反应。而钙基复合空心

微球性能的提升可以从以下两个方面解释：1) 生成了 CaZrO_3 ，为钙基复合空心微球提供了物理屏障，有效的阻碍了 CaCO_3 之间的烧结。2) 从表 2 可以看出，所合成的空心微球具有较高的比表面积和孔体积，有效的增加了反应的活性位点和孔隙率。此外，由于钙基复合空心微球形成的 CaZrO_3 物理屏障有效的保留了孔隙结构和孔体积增加的综合作用，从而使 CO_2 的扩散传质得到了改善，相较于商业 CaCO_3 有了大幅的提升，因此，钙基复合空心微球的循环稳定性得到了显著的改善。

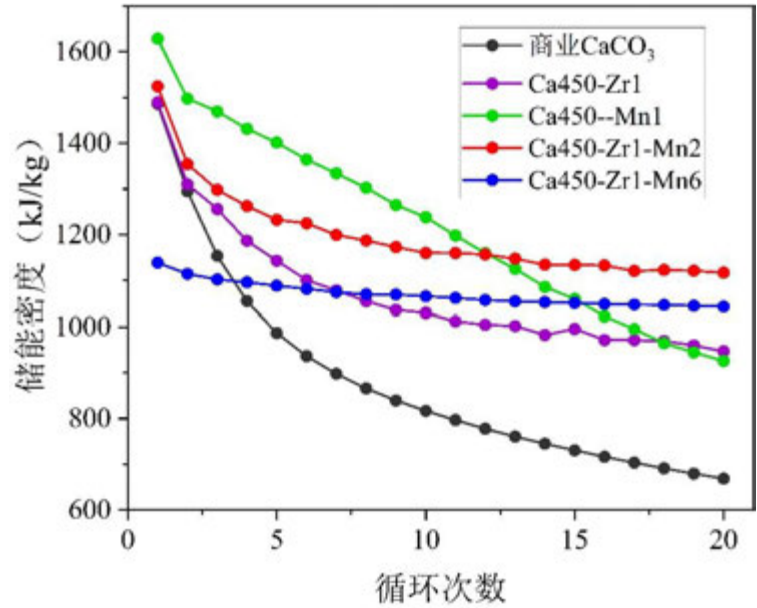


图 3 商业 CaCO_3 、Ca450-Zr1、Ca450-Mn1、Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 的储能密度曲线

表 2 商业 CaCO_3 、Ca450-Zr1、Ca450-Mn1、Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 的比表面积和孔体积

样品名称	比表面积(m^2/g)	孔体积(cm^3/g)
商业 CaCO_3	0.4	0.0016
Ca450-Zr1	2.0	0.0076
Ca450-Mn1	1.5	0.0036
Ca450-Zr1-Mn2	5.6	0.0316
Ca450-Zr1-Mn6	7.3	0.0489

用扫描电镜对商业 CaCO_3 和合成的 Ca450-Zr1-Mn2、Ca450-Zr1-Mn6 钙基复合空心微球的形貌进行了研究。图 4 (a) 为商业 CaCO_3 循环之前的微观形貌，可以看得出表面几乎没有孔隙结构，这将会限制 CO_2 向内部的扩散。图 4(b)和(c)分别为 Ca450-Zr1-Mn2，

Ca450-Zr1-Mn6 循环之前的微观形貌，从图中可以看出，两种钙基复合空心微球均形成了尺寸均匀的球形结构，且表面都有多孔结构，这与表 2 所得出的结论一致。图 4（d-f）分别为商业 CaCO_3 、Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 经历过 20 个高温循环之后的微观形貌。可以明显的观察到，商业 CaCO_3 循环之后发生了严重的烧结，形成了致密的表面， CO_2 的扩散传质受到了严重的影响。钙基复合空心微球在循环之后也出现一些烧结的现象，但是仍然保留了大部分空心微球形貌。这再次证明了负载在空心微球表面的 CaZrO_3 可以起到物理屏障作用，有效的阻止了 CaCO_3 粒子之间的烧结，并且可以较好的缓冲煅烧和酸化造成的体积变化，保持了良好的结构。之所以可以形成球形结构，是因为碳质模板表面具有丰富的含氧官能团，对金属阳离子具有较高的吸附能力。然后通过尿素的缓慢水解，将吸附在碳质模板表面的金属阳离子沉淀到表面。最后，通过较为缓慢的升温速率去除碳质模板，表面的金属阳离子沉淀物和碳质模板由于沿径向的收缩速率不同，随着碳质模板的逐渐分解，表面的金属阳离子沉淀物达到成壳的浓度，进而形成空心微球结构^[17]。碳质模板分解产生的 CO_2 气体从内部逸出，所以形成了多孔结构，强化了扩散传质。

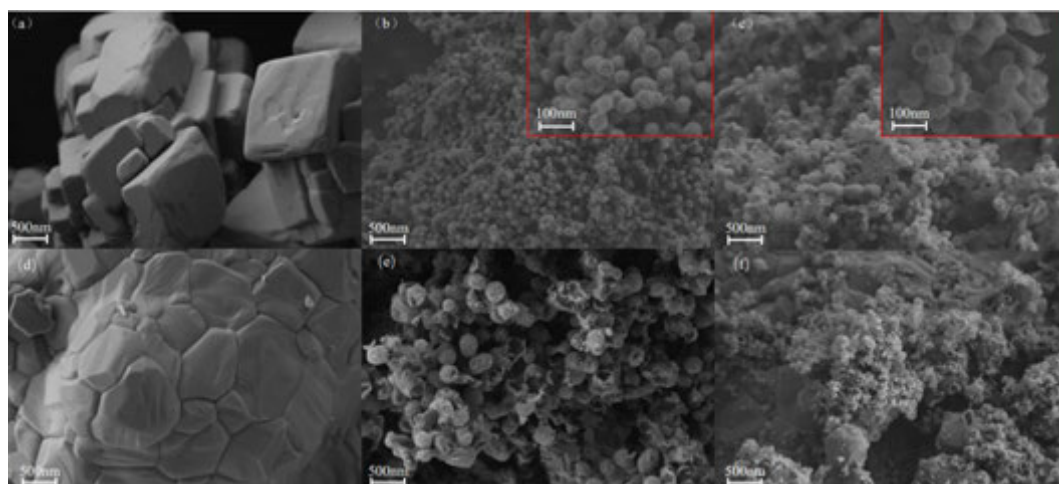


图 4 (a-c)分别为商业 CaCO_3 、Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 循环前的 SEM 图像，(d-f)分别为商业 CaCO_3 、Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6 循环后的 SEM 图像

3 结论

本文以碳质微球为模板，采用尿素水解法制备了不同 Ca/Zr/Mn 摩尔比（Ca450-Zr1-Mn2 和 Ca450-Zr1-Mn6）的钙基复合空心微球。通过对其进行了一系列的表征实验得出以下结论：

- （1）掺杂的 Mn 元素与 CaCO_3 反应形成的 Ca_2MnO_4 可大幅提高 CaCO_3 的平均太阳吸收率，最高可达 82.88%，是商业 CaCO_3 的 13.5 倍。平均太阳吸收率的提高，辐射换热量相应得以提升，因此，钙基复合空心微球可直接利用太阳能驱动进行能量的储存，避免了间接传热造成的能量损失，能量利用率显著提高。

-
- (2) 通过合成空心多孔微球的形貌, 钙基复合空心微球的比表面积和孔体积大幅提升, 从而提供了更多的反应活性位点和 CO_2 扩散的通道, CO_2 的扩散传质得以强化。
- (3) 掺杂的 Zr 元素与 CaCO_3 反应形成的 CaZrO_3 可以稳定 CO_2 扩散的通道, 有效的阻碍 CaCO_3 粒子之间随着循环次数的增加而产生严重的烧结, 极大的减少了对 CO_2 的扩散传质的不利影响。

参考文献

- [1] Hui Liu, Junshe Zhang, Jinjia Wei. Mn and Mg synergistically stabilized CaO as an effective thermochemical material for solar energy storage. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2023, 252: 112202
- [2] N. Caldés, Y. Lechón. Socio-economic and environmental assessment of concentrating solar power (CSP) systems. *Concentrating Solar Power Technology*, 2012. 120-150
- [3] O. A. J. de Meyer, F. Dinter, S. Govender. Thermal Resistance Model For CSP Central Receivers. *Solarpaces 2015: International Conference on Concentrating Solar Power and Chemical Energy Systems*, 2016, 1734
- [4] C. Prieto, P. Cooper, A. I. Fernandez, et al. Review of technology: Thermochemical energy storage for concentrated solar power plants. *Renewable & Sustainable Energy Reviews*, 2016, 60: 909-929
- [5] Madjid Sarvghad, Salar Delkassar Maher, David Collard, et al. Materials compatibility for the next generation of Concentrated Solar Power plants. *Energy Storage Materials*, 2018, 14: 179-198
- [6] L. L. Vant-Hull. Central tower concentrating solar power (CSP) systems. *Concentrating Solar Power Technology*, 2012. 240-283
- [7] Ya-Ling He, Yu Qiu, Kun Wang, et al. Perspective of concentrating solar power. *Energy*, 2020, 198: 117373
- [8] M. T. Islam, N. Huda, A. B. Abdullah, et al. A comprehensive review of state-of-the-art concentrating solar power (CSP) technologies: Current status and research trends. *Renewable & Sustainable Energy Reviews*, 2018, 91: 987-1018
- [9] A. J. Carrillo, J. Gonzalez-Aguilar, M. Romero, et al. Solar Energy on Demand: A Review on High Temperature Thermochemical Heat Storage Systems and Materials. *Chemical Reviews*, 2019, 119(7): 4777-4816
- [10] P. Pardo, A. Deydier, Z. Anxionnaz-Minvielle, et al. A review on high temperature thermochemical heat energy storage. *Renewable & Sustainable Energy Reviews*, 2014, 32: 591-610
- [11] L. A. Weinstein, J. Loomis, B. Bhatia, et al. Concentrating Solar Power. *Chemical Reviews*, 2015, 115(23): 12797-12838

-
- [12] A. Bayon, R. Bader, M. Jafarian, et al. Techno-economic assessment of solid-gas thermochemical energy storage systems for solar thermal power applications. *Energy*, 2018, 149: 473-484
- [13] R. Chacartegui, A. Alovio, C. Ortiz, et al. Thermochemical energy storage of concentrated solar power by integration of the calcium looping process and a CO₂ power cycle. *Applied Energy*, 2016, 173: 589-605
- [14] C. Ortiz, R. Chacartegui, J. M. Valverde, et al. Power cycles integration in concentrated solar power plants with energy storage based on calcium looping. *Energy Conversion and Management*, 2017, 149: 815-829
- [15] S. E. B. Edwards, V. Materic. Calcium looping in solar power generation plants. *Solar Energy*, 2012, 86(9): 2494-2503
- [16] J. Q. Feng, H. X. Guo, S. P. Wang, et al. Fabrication of multi-shelled hollow Mg-modified CaCO₃ microspheres and their improved CO₂ adsorption performance. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 321: 401-411
- [17] S. Li, J. Q. Feng, X. C. Kou, et al. Al-Stabilized Double-Shelled Hollow CaO-Based Microspheres with Superior CO₂ Adsorption Performance. *Energy & Fuels*, 2018, 32(9): 9692-9700
- [18] L. Teng, Y. M. Xuan, Y. Da, et al. Modified Ca-Looping materials for directly capturing solar energy and high-temperature storage. *Energy Storage Materials*, 2020, 25: 836-845

粗糙度对含非极性辐射器近场热光伏系统性能的影响

李松¹, 赵军明¹, 刘林华²

(1. 哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150001

2. 山东大学(青岛) 能源与动力工程学院, 山东 青岛 266237)

Tel.: 0451-86412138, Email: jmzhao@hit.edu.cn

摘要: 粗糙度在热光伏发电系统制造中不可避免, 近场热光伏系统中辐射器与光伏电池的辐射传热以表面波电磁模式为主导, 而该模式依附于表面浅层区域, 极易受表面微结构的影响。本文研究粗糙度对由非极性辐射器石墨以及砷化镓(InAs)电池构成的近场热光伏系统性能的影响, 分析系统性能与辐射换热过程、光电转化过程的量化关系。针对辐射换热过程, 利用等效多层近似法以及涨落电动力学求得了不同粗糙度下的辐射换热量。对于光电转化过程, 使用解析近似法获得了系统的功率密度及效率。分析表明, 一定的表面粗糙度可提升系统的性能, 在 50~200 nm 的平均距离下, 5 nm 以内的粗糙度最多能够提升 10.7 % 的功率密度以及 1.5 % 的效率。

关键词: 近场辐射换热; 粗糙表面; 近场热光伏

0 引言

余热回收和深空探测等应用领域亟需小型热电转化设备。对此, 目前主要有两种可行技术: 热电发电技术和热光伏发电技术。热电发电技术的效率一般仅有 3~7 %^[1], 其热源温度需控制在 1000 K 以下。热光伏发电技术的效率可达 40 %, 其热源温度需控制在 1000 K~2000 K^[2,3]。基于上述数据, 高温下热光伏发电技术相比于热电发电技术更具备发展潜力。在传统的热光伏系统中, 辐射器和热光伏电池之间的距离较远, 两者间仅能通过传播波进行辐射换热, 其换热量受到黑体辐射极限的限制。当热辐射器和热光伏电池的距离小于黑体辐射波长(达到近场区)时, 会产生“光子隧穿”效应, 使得辐射换热量超过黑体辐射极限^[4-7]。近场热光伏系统利用了“光子隧穿”效应来提升功率密度及效率, 该系统在本世纪初已经通过定性验证^[8,9]。近年来, 随着近场辐射换热实验技术的发展^[10-12], 近场热光伏系统得到了定量验证^[13-17]。

粗糙度在热光伏发电系统制造中不可避免，近场热光伏系统中辐射器与光伏电池的辐射传热以表面波电磁模式为主导，而该模式依附于表面浅层区域，极易受表面微结构的影响。粗糙度会影响系统中辐射换热过程，进而对近场热光伏系统性能（功率密度及效率）产生影响。基于上述分析，近场热光伏性能分析中不能够将粗糙表面简单忽略。然而，由于粗糙表面几何形状的复杂性以及缺乏有效的分析方法，研究粗糙度对近场辐射换热、近场热光伏性能的影响是非常困难的。到目前为止，只有非常有限的工作研究了粗糙度对近场辐射换热的影响。Chen 和 Xuan^[18]基于有限时域差分以及 Wiener 混沌多项式方法，研究了两个高斯随机表面德鲁德模型平板间的近场热辐射换热。该研究表明，近场辐射换热热流密度的抑制或增强取决于表面粗糙度以及粗糙表面相关长度。Biehs 等^[19]通过微扰理论研究了两个具有高斯随机粗糙表面的 SiC 平板间的近场辐射换热。研究表明，表面电磁模式在粗糙表面中会发生散射且会增强近场辐射换热。最近，Xu 等^[20]提出了一种等效多层近似法，研究了具有高斯随机粗糙表面 SiC 平板间的近场辐射换热。研究表明，粗糙表面会引起低于 SiC 共振频率的多重表面声子极化激元（SPPs）耦合，这使得光谱红移且带隙以下的光谱辐射热流密度得到显著增强。

根据 Xu 等^[20]以及 Biehs 等^[19]的研究，粗糙表面会引起极性平板之间的光谱红移并在共振频率以下的光谱辐射热流密度会显著增强。此外，热光伏电池只利用频率高于热光伏电池带隙能量的光子来发电。基于以上两点，分析粗糙度会对近场热光伏系统性的影响是十分复杂的，这需要考虑表面粗糙度与辐射器、热光伏电池材料之间的耦合作用。对此，本文作者此前针对该耦合作用，研究了粗糙表面对含有相同等离子体辐射器和不同热光伏电池的近场热光伏系统性能的影响^[21]。研究表明，在相同的平均距离下，功率密度会随着粗糙度的增加而提升。效率可被提升或降低，这取决于辐射器的等离子体频率和热光伏电池的带隙之间的关系。然而，在已有的近场热光伏实验中，辐射器除等离子体辐射器钨^[13]、掺杂硅^[15,22]外，还有非极性辐射器石墨^[3]。目前，粗糙度对含有非极性辐射器的近场热光伏系统性能的影响尚处于空白。

本文将研究粗糙度对由非极性辐射器石墨/砷化铟（InAs）热光伏电池构成的热光伏系统性能的影响，分析不同粗糙度下系统性能与辐射换热过程、光电转化过程的量化关系。针对辐射换热过程，将利用等效多层近似法以及涨落电动力学分析不同粗糙度下的辐射换热量。对于光电转化过程，本文将根据解析近似法获得系统的功率密度及效率。

1 模型与方法

本文首先介绍近场热光伏系统构成及随机粗糙表面生成方法。图 1(a)为近场热光伏系统示意图，该系统由石墨辐射器、500 μm 厚的砷化铟（InAs）热光伏电池以及热沉组成。系统

工作过程中，石墨辐射器维持在 1800 K，热光伏电池通过热沉维持在 300 K。InAs 热光伏电池带隙为 0.345 eV，对应的波长为 3.6 μm 。此外，由于辐射器和热光伏电池的幅面尺寸一般远大于其厚度，辐射过程中的边缘效应微弱。为便于分析，后续可将其视为无限大多层介质处理。

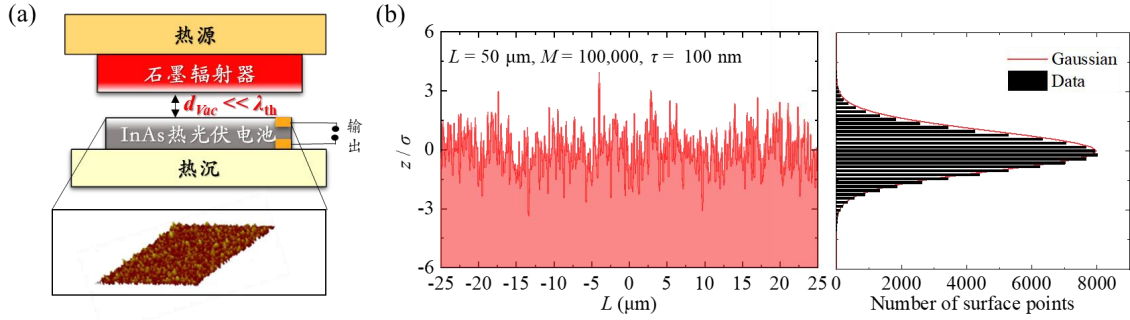


图 1 具有粗糙表面的近场热光伏系统示意图、生成的随机粗糙表面图以及高斯分布对比的表面高度分布图。(a) 近场热光伏系统由石墨辐射器、InAs 热光伏电池和热沉组成。(b) 参数为 $M = 100,000$, $L = 50 \mu\text{m}$, $\tau = 0.1 \mu\text{m}$ 的随机粗糙表面。

本文利用了 Thorsos 的频谱法生成了高斯随机粗糙表面^[23]，其高度随表面位置变化函数为：

$$z = \zeta(x) = \frac{1}{L^2} \sum_{m=-M/2}^{m=M/2-1} F(k_{x_m}) \exp(ik_{x_m} x), \quad (1)$$

式中， L 为粗糙表面相关长度， M 为粗糙表面高度点数量， $k_{x_m} = 2\pi m/L$ ， $F(k_{x_m})$ 由下式计算：

$$F(k_{x_m}) = 2\pi L \sqrt{W(k_{x_m})} \times \begin{cases} [N(0,1) + iN(0,1)]/\sqrt{2}, & m \neq 0, M/2 \\ N(0,1), & m = 0, M/2, \end{cases} \quad (2)$$

式中， $N(0,1)$ 表示标准高斯分布， $W(k_{x_m})$ 为定义为

$$W(k_{x_m}) = \frac{\sigma^2 \tau^2}{4\pi} \exp\left(-\frac{k_{x_m}^2 \tau^2}{4}\right) \quad (3)$$

式中， τ 为相关度， σ 为均方根高度或粗糙度。在已有近场热光伏实验中，表面粗糙度约 1 nm^[13,14]，基于此，本文后续将考虑 0 nm（理想光滑表面）、1 nm、3 nm 和 5 nm 的粗糙度。

图 1(b) 是基于频谱法生成的一个高斯随机粗糙表面图（其参数为 $M = 100,000$, $L = 50 \mu\text{m}$, $\tau = 0.1 \mu\text{m}$ ），以及与高斯分布对比的表面高度分布图。表面高度分布是统计了 100 个随机粗糙表面得到的，其与高斯分布基本一致。根据高斯分布，表面点落在 $z = -3\sigma$ 到 $z = 3\sigma$ 区域的概率为 99.8%。这表明可认为粗糙区域表面高度点均落在这个范围内。此外，表面高度的系统统计值 $\langle z \rangle = 0$ ，即表面高度与 $z = 0$ 的偏差之和为零。

图 2(a)给出了具有粗糙面的近场热光伏系统示意图。图中 d_{vac} 为真空间隙, d_m 为平均距离, 即 $z_1 = 0$ 和 $z_2 = 0$ 之间的距离。为了简化分析, 假设辐射器和热光伏电池的粗糙度是相同的。在辐射器或热光伏电池中, $z = -3\sigma$ 到 $z = 3\sigma$ 为粗糙区, 其余区域为块材区。此外, d_m 与 d_{vac} 之间的关系满足 $d_m = d_{\text{vac}} + 6\sigma$ 。在理想系统中, 粗糙度 σ 等于 0, 真空间隙等于平均距离, 即 $d_{\text{vac}} = d_m$ 。

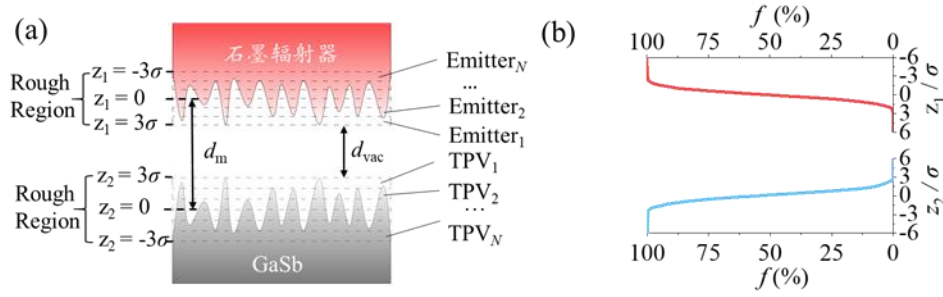


图 2 具有粗糙面的近场热光伏系统示意图以及体积填充率分布图。(a) 具有高斯随机粗糙面的辐射器和热光伏电池的示意图。(b) 沿 z 方向的体积填充率分布图。

Xu 等^[20]以及 Biehs 等^[19]以平均距离 d_m 为基准, 对比了含有粗糙表面的平板系统与理想平板系统中的近场辐射换热。为了保持与此前研究的延续性, 本文选取相同的平均距离 d_m 来比较含粗糙表面的近场热光伏系统与理想近场热光伏系统的性能。本文考虑的平均距离 d_m 范围从 50 nm 至 200 nm, 这基于已有的近场热光伏实验中辐射器与热光伏电池间最小间距可达 60 nm^[15]。此外, 可根据对每个位置的 100 个随机粗糙表面的统计, 得到沿 z 方向位置变化的体积填充率分布图, 如图 2(b)所示。结果表明, 填充率 f 随着 z_1 或 z_2 的增加而减少。在后续章节中, 将通过填充率分布得到粗糙区域各层的光学特性, 最终用在辐射换热过程的量化计算当中。

1.1 粗糙表面之间近场辐射换热求解模型

最近, Xu 等^[20]提出了一种等效多层近似法来分析粗糙表面之间的近场辐射换热。该方法与 Biehs 等^[19]采用的二阶摄动方法相比, 表现良好且易于实施。因此, 本文将采用等效多层近似法来量化具有粗糙表面的辐射器和电池之间的近场辐射换热。该方法首先将粗糙表面区域划分为多个混合介质层, 划分后的示意图如图 2(a)所示。粗糙区域被划分为 N 层, 任意一层可视为由块材和真空构成的混合介质层。每个混合介质层的光学介质层可通过有效介质理论计算。目前, 有效介质理论有 Bruggeman 有效介质模型以及 Maxwell-Garnett 有效介质模型。其中, Bruggeman 有效介质模型可以在任意填充率下使用, 而 Maxwell-Garnett 有效介质模型只可以在低填充率下使用^[24]。本文填充率的变化范围很宽泛, 因而每一层的介电函数将根据 Bruggeman 有效介质理论进行计算, 即

$$f(z/\sigma) \frac{\epsilon_{\text{bulk}} - \epsilon_{\text{eff}}}{\epsilon_{\text{bulk}} + 2\epsilon_{\text{eff}}} + (1 - f(z/\sigma)) \frac{\epsilon_{\text{vac}} - \epsilon_{\text{eff}}}{\epsilon_{\text{vac}} + 2\epsilon_{\text{eff}}} = 0, \quad (4)$$

式中, $f(z)$ 为位置处于归一化高度 z/σ 的填充率, ϵ_{eff} 为等效层的介电函数, ϵ_{vac} 为真空介电函数, ϵ_{bulk} 为石墨或热光伏电池的介电函数, 其数据取自文献^[25]。值得注意的是, 该方程存在两个解, 取介电函数虚部大于 0 的解。

图 3(a) 为石墨介电函数的实部随归一化高度 z_1/σ 和 ω 的变化而变化图。在粗糙区, 当 z_1/σ 从 -3 增加到 3 时, 石墨的介电函数实部值从真空的介电函数实部值到块材的介电函数实部值过渡, 并且计算区域内的介电函数实部值均大于 0。所有区域内介电函数数值不满足表面激元的激发条件, 即 $1 + \epsilon(\omega) = 0$ ^[26]。因而, 含粗糙表面的石墨不论粗糙区域还是块材区域均不支持表面激元。这不仅可从光学性质上印证了石墨是非极性材料, 也可印证由真空和非极性材料构成的混合材料也为非极性材料。图 3(b) 为 InAs 的介电函数实部随 z_2/σ 和 ω 的变化图。在粗糙区, 当 z_2/σ 从 -3 增加到 3 时, InAs 介电函数实部值同样从真空的介电函数实部值到块材的介电函数实部值过渡。不同于石墨, InAs 的介电函数实部存在小于 0 的区域。根据此前所述的表面激元的激发条件, InAs 粗糙区以及块材区将支持极化激元。

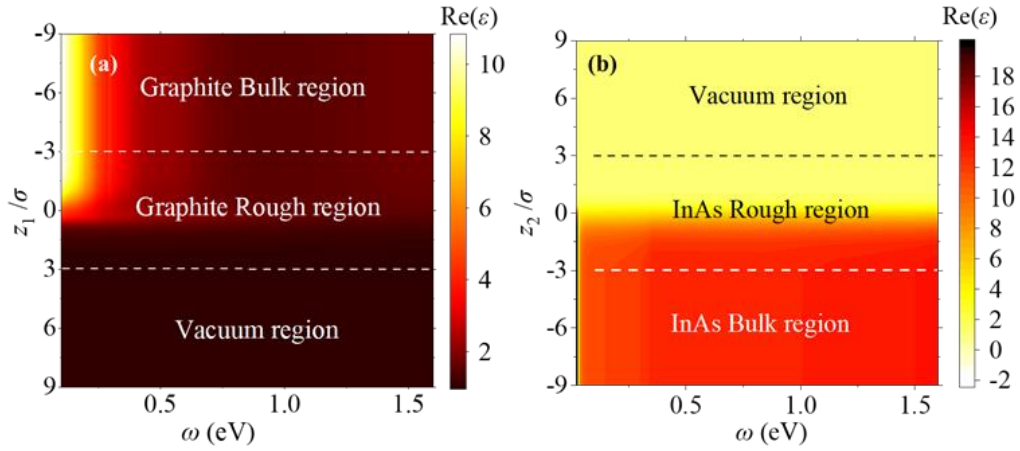


图 3 具有粗糙表面的石墨辐射器以及 InAs 热光伏电池介电函数实部分布图。(a) 石墨辐射器介电函数随归一化高度 z_1/σ 和角频率 ω 的变化图。(b) InAs 热光伏电池介电函数随 z_2/σ 和角频率 ω 变化图。近场热光伏系统的粗糙度为 σ 。

在获得了每一层混合介质的光学性质后, 等效多层近似法应用涨落电动力学以及传输矩阵法来量化介质间的近场辐射换热过程。根据涨落电动力学, 辐射器和电池之间的近场辐射换热热流密度为^[28]:

$$P_{\text{rad}} = \int_0^\infty q_\omega(T_1, T_2, \omega) d\omega = \frac{1}{4\pi^2} \int_0^\infty [\Theta(T_1, \omega) - \Theta(T_2, \omega)] \int_0^\infty \beta \xi(\omega, \beta) d\beta d\omega, \quad (5)$$

式中, $\Theta(T, \omega) = \hbar\omega / \exp(\hbar\omega / k_B T - 1)$ 是普朗克简谐振子能, \hbar 是约化普朗克常数, k_B 是玻尔兹曼常数, ω 是角频率, β 是平行于界面的波矢的分量。 $\xi(\omega, \beta) = \xi_s(\omega, \beta) + \xi_p(\omega, \beta)$ 是能量传输系数, 即

$$\xi_j(\omega, \beta) = \begin{cases} \frac{(1 - |R_{1j}|^2)(1 - |R_{2j}|^2)}{|1 - R_{1j}R_{2j}e^{2ik_{z0}d}|^2}, & \beta < k_0 \\ \frac{4[\text{Im}(R_{1j})\text{Im}(R_{2j})]e^{-2|k_{z0}|d}}{|1 - R_{1j}R_{2j}e^{-2ik_{z0}d}|^2}, & \beta > k_0 \end{cases} \quad (6)$$

式中, j 代表 s 或 p 极化, k_0 和 k_{z0} 分别为真空波矢和其在 z 方向分量, R_{1j} 和 R_{2j} 为多层膜的反射系数, 可采用传输矩阵法进行计算^[29]。传输矩阵法能够有效处理多层膜中的多次反射、透射等传播过程来求解反射系数。电磁波在辐射器或热光伏电池中传播过程如图 4 所示。电磁波在上述介质中传播时, 振幅呈线性变化。这是由于本文中材料为线性介质, 且麦克斯韦方程组是线性方程。基于此, 可知

$$\begin{bmatrix} E_{1B}^i \\ E_{1B}^R \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} E_{NA}^i \\ E_{NB}^R \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{NA}^i \\ E_{NB}^R \end{bmatrix} \quad (7)$$

式中, M 为传输矩阵; E_{1B}^i 为入射进入介质 2 前的电磁波振幅; E_{1B}^R 为反射回介质 1 后的电磁波振幅; E_{NA}^i 为入射进入介质 N 后的电磁波振幅; E_{NB}^R 为反射回介质 $N-1$ 前的电磁波振幅。由于右侧无入射波, $E_{NB}^R = 0$ 。基于此, 上式可简化为:

$$E_{1B}^i = M_{11}E_{NA}^i, E_{1B}^R = M_{21}E_{NA}^i \quad (8)$$

根据反射系数的定义, 膜系的反射系数等于膜系的反射波振幅除以膜系的入射波振幅, 即

$$R = E_{1B}^R / E_{1B}^i = M_{21} / M_{11} \quad (9)$$

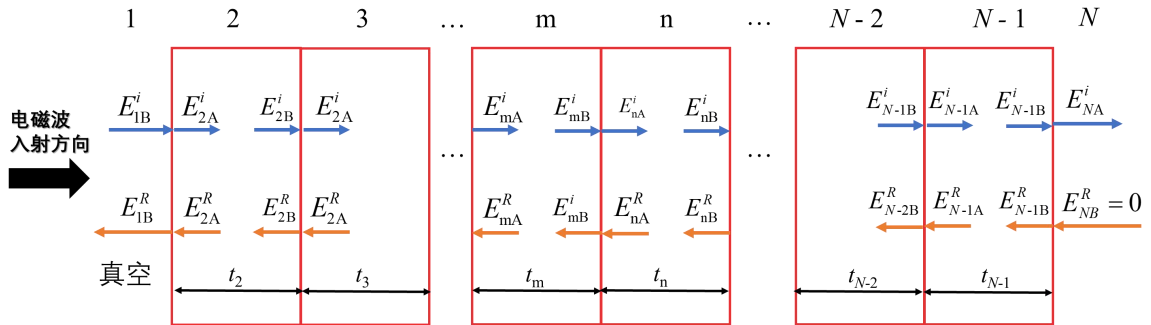


图 4 电磁波在辐射器或热光伏电池中传播过程示意图。

传输矩阵可根据电磁波在介质中传播物理过程进行推导。从图 4 中可以看出, 电磁场在介质中有两种传播过程, 一种是穿透界面的传播过程, 另一种是在介质中的传播过程。每次穿过界面或者在介质中传播时, 电磁波的振幅在数学形式上振幅将有一次线性变化, 即

$$M = D_{12}P_2D_{23}\cdots P_mD_{mn}P_n\cdots D_{N-2N-1}P_{N-1}D_{N-1N} \quad (10)$$

式中, D_{mn} 为穿透介质 m 与介质 n 之间界面的线性变换矩阵, P_m 为在介质 m 中传播的线性变换矩阵。由于电磁场在介质传播过程中的振幅呈线性变化, 电磁场穿过 m - n 界面前后的电磁波振幅可写成如下形式:

$$\begin{bmatrix} E_{mB}^i \\ E_{mB}^R \end{bmatrix} = D_{mn} \begin{bmatrix} E_{nA}^i \\ E_{nA}^R \end{bmatrix} \quad (11)$$

式中, $D_{mn} = \frac{1}{t_{mn}} \begin{bmatrix} 1 & r_{mn} \\ r_{mn} & 1 \end{bmatrix}$, r_{mn} 为介质 m 与介质 n 之间的反射系数, t_{mn} 为介质 m 与介质 n 之间的透射系数。值得注意的是, 公式既适用于 s 波, 也适用于 p 波。当计算 s 波时, 代入相应的反射系数 r_{mn}^s 以及透射系数 t_{mn}^s 。其系数的具体形式为

$$r_{mn}^s = \frac{k_{mz}/\mu_m - k_{nz}/\mu_n}{k_{mz}/\mu_m + k_{nz}/\mu_n}, \quad t_{mn}^s = \frac{2k_{mz}/\mu_m}{k_{mz}/\mu_m + k_{nz}/\mu_n} \quad (12)$$

式中, 对于非磁性介质, $\mu_m = 1, \mu_n = 1, k_{mz} = \sqrt{\varepsilon_m k^2 - \beta^2}$, 其中 β 为水平波矢。类似地, 当计算 p 波时, 代入相应的反射系数 r_{mn}^p 以及透射系数 t_{mn}^p 。其系数的具体形式为

$$r_{mn}^p = \frac{k_{mz}/\varepsilon_m - k_{nz}/\varepsilon_n}{k_{mz}/\varepsilon_m + k_{nz}/\varepsilon_n}, \quad t_{mn}^p = \frac{2k_{mz}/\varepsilon_m}{k_{mz}/\varepsilon_m + k_{nz}/\varepsilon_n} \quad (13)$$

电磁场在经过介质 m 前的振幅与经过介质 m 后的振幅之间的线性关系, 可写成如下形式:

$$\begin{bmatrix} E_{mA}^i \\ E_{mA}^R \end{bmatrix} = P_m \begin{bmatrix} E_{mB}^i \\ E_{mB}^R \end{bmatrix} \quad (14)$$

式中, $P = \begin{bmatrix} \exp(-ikt_m) & 0 \\ 0 & \exp(ikt_m) \end{bmatrix}$ 。其中, t_m 为介质 m 的厚度。

1.2 近场热光伏系统性能分析方法

在热光伏系统中, 热光伏电池可利用能量在带隙 E_g 之上的光子来发电。解析近似模型常被用于量化该光电转化过程^[30,31]。热光伏电池的伏安特性由以下公式给出:

$$I = I_o \left[\exp(eV/k_B T) - 1 \right] - I_{ph} \quad (15)$$

其中 I 为电流密度, V 为电压, I_0 为饱和电流, I_{ph} 为光生电流, e 为电子电荷量, k_B 为玻尔兹曼常数。假设每个被吸收的能量高于带隙 E_g 的光子以效率 η_q 产生电子-空穴对, 则光生电流计算如下

$$I_{ph} = e \int_{\omega_g}^{\infty} \eta_q(\omega) \frac{q_{\omega}(T_1, T_2, \omega)}{h\omega} d\omega. \quad (16)$$

式中, q_{ω} 为发射器与热光伏电池之间的光谱辐射热流密度, ω_g 为光伏电池带隙 E_g 对应的频率, $\eta_q(\omega)$ 为热光伏电池的内量子效率^[32]。图 5 给出了 InAs 热光伏电池的内部量子效率。

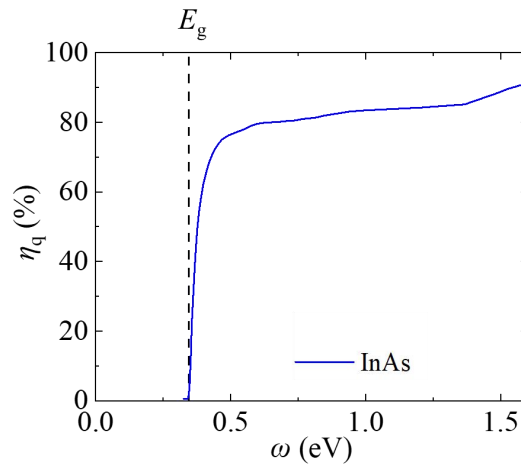


图 5 InAs 的内量子效率。

饱和电流 I_0 可以根据下式计算:

$$I_o = en_i^2 \left(\frac{\sqrt{D_h}}{N_D \sqrt{\tau_h}} + \frac{\sqrt{D_e}}{N_A \sqrt{\tau_e}} \right), \quad (17)$$

式中, n_i 为本征载流子浓度, $n_i = 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$; N_D 为施主浓度, N_A 为受主浓度, D_e 和 D_h 分别为电子和空穴的扩散系数, τ_e 和 τ_h 分别为 p - n 结中 p 区和 n 区的电子-空穴对寿命。InAs 的电学参数如表 1 所示^[33]。

表 1 InAs 的电学参数

参数	p 区	n 区
载流子浓度	$N_A = 1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$	$N_D = 1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$
扩散系数	$D_e = 1000 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$	$D_h = 1.2 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$
载流子寿命	$\tau_e = 30 \text{ ns}$	$\tau_h = 3 \text{ } \mu\text{s}$

基于光生电流和饱和电流, 开路电压 (对应于 $I = 0$) 可据下式计算^[34]:

$$V_{oc} = \frac{k_B T}{e} \ln \frac{I_{ph}}{I_o}. \quad (18)$$

热光伏电池的功率密度 P 可根据下式计算：

$$P_{\text{cell}} = I_{\text{ph}} V_{\text{oc}} \left[1 - \frac{1}{\ln(I_{\text{ph}} / I_o)} \right] \left\{ 1 - \frac{\ln[\ln(I_{\text{ph}} / I_o)]}{\ln(I_{\text{ph}} / I_o)} \right\}. \quad (19)$$

利用式和，近场热光伏系统的效率可计算为

$$\eta = \frac{P_{\text{cell}}}{P_{\text{rad}}} \times 100\%. \quad (20)$$

2 结果与讨论

2.1 粗糙表面对近场辐射换热的影响

为研究粗糙表面对近场辐射换热的影响做准备，本文将先研究理想的石墨/InAs 近场热光伏系统中的辐射换热过程。图 6(a)给出了理想系统 ($\sigma = 0 \text{ nm}$) 当平均距离 $d_m = 50 \text{ nm}$ 时的能量传输系数云图，其为频率 ω 和归一化波矢 β/β_0 的函数（其中 β_0 等于 ω_{ev}/c_0 ， $\omega_{\text{ev}} = 1.518 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ ）。可以看出，一部分电磁模式存在于真空的色散曲线之下，另一部分电磁模式在真空的色散曲线和石墨色散曲线之间。这说明在理想系统中近场辐射换热仅可通过传播模式、受抑模式进行辐射换热。系统中的辐射换热具体过程如图 6(b)所示，其中的受抑模式是由全反射引起的倏逝波。此外，由于能量传输云图在石墨色散曲线之上并不存在亮区，这表明系统中并不存在表面模式，这与非极性辐射器的特性相印证。

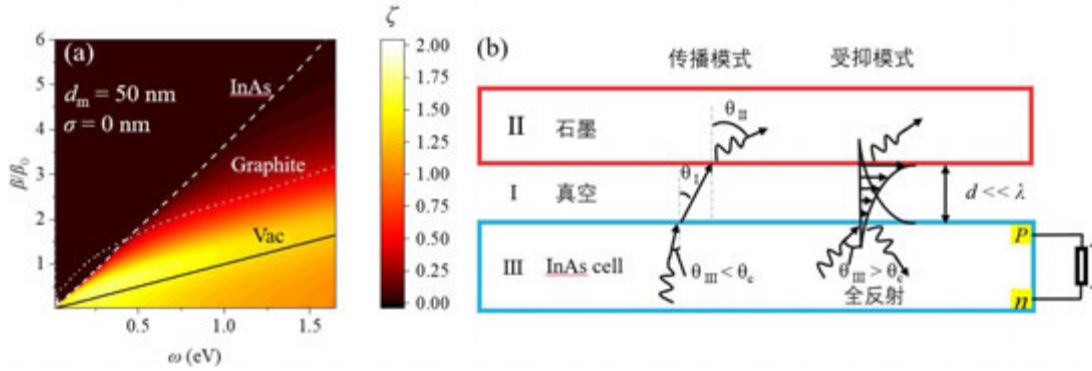


图 6 (a) 理想石墨/InAs 近场热光伏系统的能量传输系数云图以及能量传输系数差值云图。实线为真空的色散曲线，点线为光在石墨中的色散曲线，点划线为光在 InAs 热光伏电池中的色散曲线。

(b) 热光伏系统辐射换热过程示意图。

本部分对比理想系统和带有粗糙表面系统的能量传输系数，来研究粗糙表面对近场辐射换热的影响。图 7(a)和(b)分别给出了理想系统 ($\sigma = 0 \text{ nm}$) 与带有粗糙度为 5 nm 的系统 ($\sigma =$

5 nm)当平均距离 $d_m = 50$ nm 时的能量传输系数云图, 其为频率 ω 和归一化波矢 β/β_0 的函数 (其中 β_0 等于 ω_{ev}/c_0 , $\omega_{ev} = 1.518 \times 10^{15}$ rad/s)。可以看出, 带有粗糙度为 5 nm 的系统的能量传输系数云图与理想系统的能量传输系数云图相比, 两者差异很小。为了对比图 7(a)和(b)之间的差异, 图 7(c)给出了两者能量传输系数差值云图, 其为 $\sigma = 5$ nm 的能量传输系数减去理想系统的能量传输系数。可以看出, 粗糙表面总体上增强了倏逝波的传输, 但抑制了传播波的传输。由于粗糙表面对倏逝波的增强明显强于其对传播波的抑制作用, 粗糙表面会对辐射传输起到增强作用。

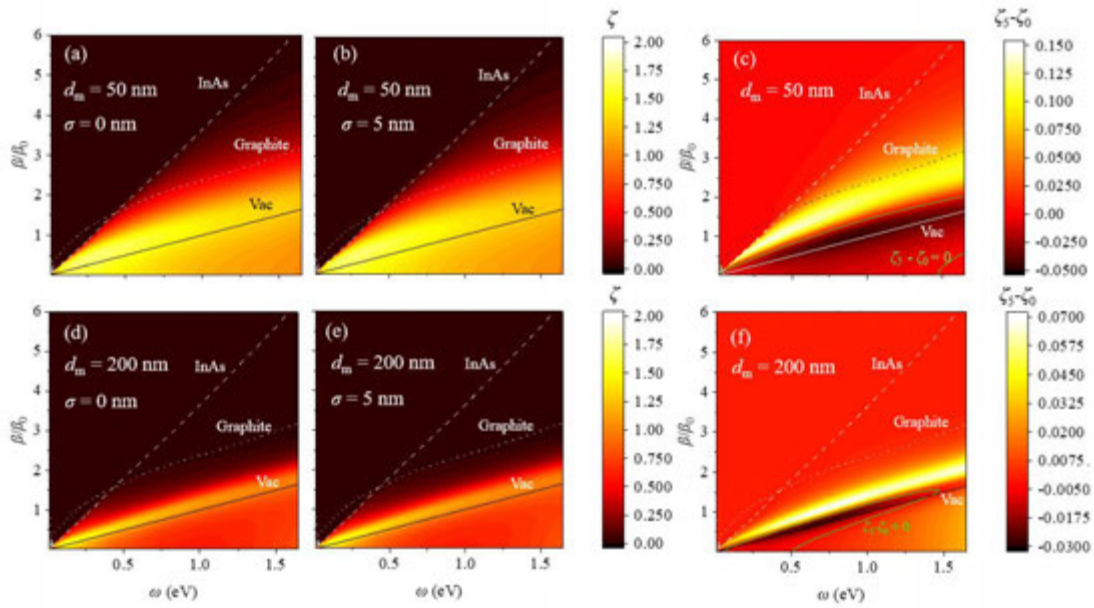


图 7 当 $d_m = 50$ nm 和 $d_m = 200$ nm 时, 具有不同粗糙表面的石墨/InAs 近场热光伏系统的能量传输系数云图以及能量传输系数差值云图。能量传输系数差值为 $\sigma = 5$ nm 的能量传输系数减去理想系统的能量传输系数。 β_0 等于 ω_{ev}/c_0 。实线为真空的色散曲线, 点线为光在石墨中的色散曲线, 点划线为光在 InAs 热光伏电池中的色散曲线。

图 7(d)、(e)和(f)为平均距离 d_m 为 200 nm 时, $\sigma = 0$ nm、 $\sigma = 5$ nm 的能量传输系数云图以及能量传输系数差值云图。同样地, 粗糙表面会对辐射传输起到增强作用。此外, 通过对比图 7(c)和图 7(f)可以看出, 随着平均距离 d_m 的增加, 粗糙表面对倏逝波的增强作用在减小。

下面对具有不同粗糙度表面的近场辐射换热热流密度进行分析。图 8(a)和(b)为平均距离 d_m 分别为 50 nm 和 200 nm 时, 不同粗糙度下的光谱辐射热流密度图。结果表明, 随着粗糙度 σ 的增加, 光谱辐射热流密度 q_ω 会随之增强。这是由于粗糙表面会对辐射传输起到增强作用。在电池带隙 E_g 以上的频域, 带有粗糙表面的系统的光谱辐射热流密度 q_ω 比理想系统的光谱辐射热流高, 这表明粗糙表面可提升功率密度以及效率。然而, 在电池带隙 E_g 以下的频域, 带有粗糙表面的系统的光谱辐射热流密度 q_ω 同样也得到了增强, 这表明粗糙表面也会使更多低

光子被转换成热，效率会因此降低。带有粗糙表面系统的效率变化需要综合考虑带隙之上与带隙之下的光谱辐射热流密度的变化。此外，通过比较图 8(a)和(b)，粗糙表面导致光谱辐射热流密度 q_ω 的增强会随着平均距离 d_m 的增加而减小。这表明粗糙表面对辐射换热的影响随着平均距离的增加而减小，这是由于粗糙表面对倏逝波的增强作用在减小。

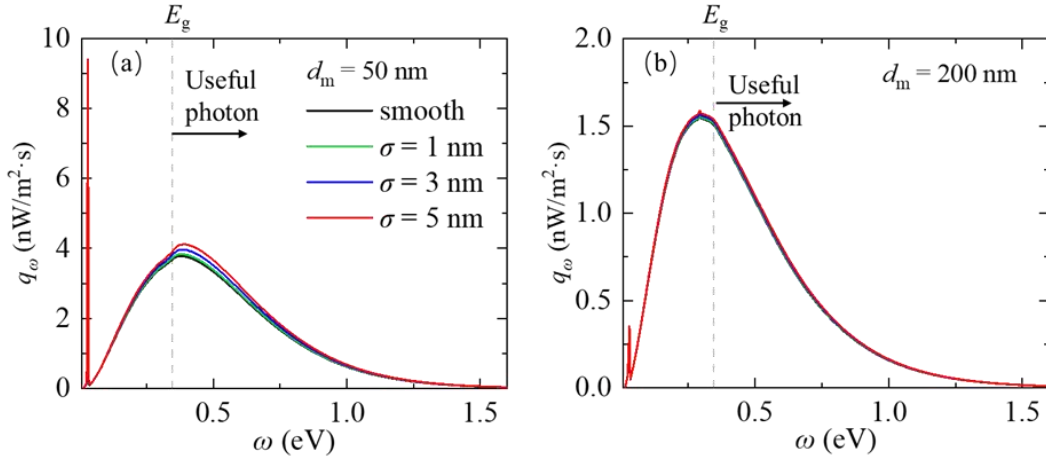


图 8 光谱辐射热流密度随着频率变化图。(a) 当 $d_m = 50$ nm 时，具有不同粗糙度的近场热光伏系统的光谱辐射热流密度图。(b) 当 $d_m = 200$ nm 时的光谱辐射热流密度图。

2.2 粗糙表面对近场热光伏系统性能的影响

基于此前粗糙度对近场热光伏系统中近场辐射换热的影响，本节将分析粗糙度对近场热光伏系统性能的影响。图 9(a)为石墨/InAs 近场热光伏系统的功率密度 P 与平均距离 d_m 的关系图。可以看出，功率密度 P 随着平均距离 d_m 的增加而减小，并在不同的平均距离 d_m 上随着粗糙度 σ 的增加而增加。为了更直观地对比具有粗糙表面的系统和理想系统的性能差异，本文将具有粗糙表面系统的功率密度 P_{rough} 除以理想系统的功率密度 P_{smooth} 来进行归一化（即 $P_{\text{rough}}/P_{\text{smooth}}$ ），归一化结果如图 9(b)所示。归一化功率密度 $P_{\text{rough}}/P_{\text{smooth}}$ 随着粗糙度 σ 的增加而增加，且随着平均距离 d_m 的增加而减小。这表明粗糙表面提升了近场热光伏系统功率密度 P 。当粗糙度 σ 为 5 nm 或更小时，含有粗糙表面的近场热光伏系统功率密度 P 可提高 10.7 %。此外，这种提升作用随着平均距离 d_m 的增加而减小，这是由于粗糙表面对近场辐射换热的增强会随着平均距离 d_m 的增加而减小。图 9(d)和(e)分别为近场热光伏系统效率和归一化效率图。结果表明，近场热光伏系统的效率 η 随着粗糙度 σ 的增加而增加。粗糙度对效率的提升较小，最高可提升 1.5 %。

目前，使用平均距离 d_m 和真空间隙 d_{vac} 来分析粗糙表面对近场热光伏系统性能的影响仍然存在一些争议。例如，光栅之间的距离是由两个光栅表面之间的真空间隙来定义的。为了避免这一争议和研究的全面性，本文分析了热光伏功率密度和效率随真空间隙 d_{vac} 的变化。图

9(c)和(f)给出近场热光伏系统的功率密度和效率随着真空间隙 d_{vac} 的变化。在相同的真空间隙定义下，效率以及功率密度均减小。

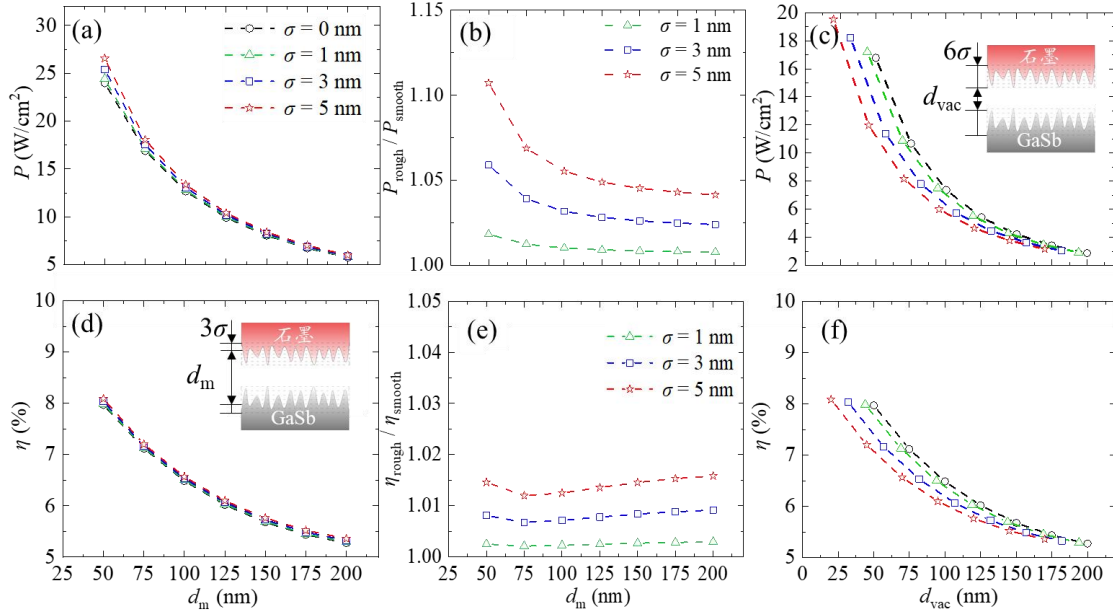


图 9 不同平均距离 d_m 或真空间隙 d_{vac} 下，具有不同粗糙度的近场热光伏系统性能。(a) 不同平均距离 d_m 下的功率密度。(b) 不同平均距离 d_m 下的归一化功率密度。(c) 不同真空间隙 d_{vac} 下的功率密度。(d) 不同平均距离 d_m 下的效率。(e) 不同平均距离 d_m 下的归一化效率。(f) 不同真空间隙 d_{vac} 下的效率。

本文结果表明，一定的表面粗糙度可提高近场热光伏系统的性能。在 50 ~ 200 nm 的平均距离下，5 nm 以内的粗糙度最多能够提升 10.7 % 的功率密度以及 1.5 % 效率。本文作者此前研究了含极性辐射器的近场热光伏系统^[21]。研究表明，在相同的平均距离下，粗糙度会增加功率密度，而效率可以提高或降低。这取决于辐射器的等离子体频率和热光伏电池的带隙之间的关系。本文与此前研究的区别在于，粗糙表面对近场热光伏性能的影响将不再取决于辐射器等离子体频率与热光伏电池带隙的关系。

3 结论

在近场热光伏系统中，以倏逝波为主导的辐射换热过程会受到表面粗糙度的影响，进而影响到系统的性能。本文研究了粗糙度对含有非极性辐射器的近场热光伏系统性能的影响，分析了系统性能与辐射换热过程、光电转化过程的量化关系。分析表明，近场辐射换热仅可通过传播模式、受抑模式进行辐射换热。在一定的粗糙度下，粗糙表面会增强倏逝波的辐射换热以及光谱辐射热流密度，进而提升近场热光伏系统的性能。在 50 ~ 200 nm 的平均距离下，

5 nm 以内的粗糙度最多能够提升 10.7 % 的功率密度以及 1.5 % 的效率。此外，随着平均距离的增加，粗糙表面对倏逝波的增强作用会减小，对近场辐射换热的增强会减小，进而对近场热光伏的性能增强也会减小。

4 参考文献

- [1] Datas A, Martí A. Thermophotovoltaic energy in space applications: Review and future Potential[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2017, 161: 285–296.
- [2] Hamid Elsheikh M, Shnawah D A, Sabri M F M, et al. A review on thermoelectric renewable energy: Principle parameters that affect their Performance[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2014, 30: 337–355.
- [3] Mittapally R, Majumder A, Reddy P, et al. Near-Field Thermophotovoltaic Energy Conversion: Progress and Opportunities[J]. *Physical Review Applied*, 2023, 19(3): 037002.
- [4] Hargreaves C M. Anomalous radiative transfer between Closely-spaced Bodies[J]. *Physics Letters A*, 1969, 30(9): 491–492.
- [5] Ghashami M, Geng H, Kim T, et al. Precision Measurement of Phonon-Polaritonic Near-Field Energy Transfer between Macroscale Planar Structures Under Large Thermal Gradients[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(17): 175901.
- [6] Rousseau E, Siria A, Jourdan G, et al. Radiative heat transfer at the Nanoscale[J]. *Nature Photonics*, 2009, 3(9): 514–517.
- [7] Shen S, Narayanaswamy A, Chen G. Surface Phonon Polaritons Mediated Energy Transfer between Nanoscale Gaps[J]. *Nano Letters*, 2009, 9(8): 2909–2913.
- [8] DiMatteo R. Micron-gap ThermoPhotoVoltaics (MTPV)[C]//THERMOPHOTOVOLTAIC GENERATION OF ELECTRICITY: Sixth Conference on Thermophotovoltaic Generation of Electricity: TPV6. AIP. 2004. Freiburg (Germany).
- [9] DiMatteo R S, Greiff P, Finberg S L, et al. Enhanced photogeneration of carriers in a semiconductor via coupling across a nonisothermal nanoscale vacuum Gap[J]. *Applied Physics Letters*, 2001, 79(12): 1894–1896.
- [10] Lu L, Zhang B, Ou H, et al. Enhanced Near-Field Radiative Heat Transfer between Graphene/hBN Systems[J]. *Small*, 2022, 18(19): 2108032.
- [11] Shi K, Chen Z, Xing Y, et al. Near-Field Radiative Heat Transfer Modulation with an Ultrahigh Dynamic Range through Mode Mismatching[J]. *Nano Letters*, 2022, 22(19): 7753–7760.
- [12] Shi K, Chen Z, Xu X, et al. Optimized Colossal Near-Field Thermal Radiation Enabled by Manipulating Coupled Plasmon Polariton Geometry[J]. *Advanced Materials*, 2021, 33(52): 2106097.
- [13] Bhatt G R, Zhao B, Roberts S, et al. Integrated Near-field thermo-photovoltaics for heat Recycling[J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 2545.
- [14] Inoue T, Ikeda K, Song B, et al. Integrated Near-Field Thermophotovoltaic Device Overcoming Blackbody Limit[J]. *ACS Photonics*, 2021, 8(8): 2466–2472.
- [15] Fiorino A, Zhu L, Thompson D, et al. Nanogap Near-field Thermophotovoltaics[J]. *Nature Nanotechnology*, 2018, 13(9): 806–811.
- [16] Lucchesi C, Cakiroglu D, Perez J-P, et al. Near-Field Thermophotovoltaic Conversion with High Electrical Power Density and Cell Efficiency above 14%[J]. *Nano Letters*, 2021, 21(11): 4453–4459.

4524–4529.

- [17] Mittapally R, Lee B, Zhu L, et al. Near-field thermophotovoltaics for efficient heat to electricity conversion at high power Density[J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1): 4364.
- [18] Chen Y, Xuan Y. The influence of surface roughness on nanoscale radiative heat flux between two Objects[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2015, 158: 52–60.
- [19] Biehs S-A, Greffet J-J. Influence of roughness on Near-field heat transfer between two Plates[J]. *Physical Review B*, 2010, 82(24): 245410.
- [20] Xu D Y, Bilal A, Zhao J M, et al. Near-field radiative heat transfer between rough surfaces modeled using effective media with gradient distribution of dielectric Function[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2019, 142: 118432.
- [21] Li S, Xu D, Zhao J, et al. Random rough surface effects on the performance of Near-field thermophotovoltaic System[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2023, 202: 123713.
- [22] Song J, Jang J, Lim M, et al. Thermophotovoltaic Energy Conversion in Far-to-Near-Field Transition Regime[J]. *ACS Photonics*, 2022, 9(5): 1748–1756.
- [23] Thorsos E I. The validity of the Kirchhoff approximation for rough surface scattering using a Gaussian roughness Spectrum[J]. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 1988, 83(1): 78–92.
- [24] Zhang Z M. *Nano/microscale heat Transfer*[M]. Second edition edition. Cham, Switzerland: Springer, 2020.
- [25] Palik E D. *Handbook of optical constants of Solids*[M]. Orlando San Diego New York: Academic press, 1985.
- [26] Joulain K, Mulet J-P, Marquier F, et al. Surface electromagnetic waves thermally excited: Radiative heat transfer, coherence properties and Casimir forces revisited in the near Field[J]. *Surface Science Reports*, 2005, 57(3–4): 59–112.
- [27] Xu D, Zhao J, Liu L. Near-field thermal radiation of gradient refractive index slab: Internal Polaritons[J]. *Applied Physics Letters*, 2021, 119(14): 141106.
- [28] Polder D, Van Hove M. Theory of Radiative Heat Transfer between Closely Spaced Bodies[J]. *Physical Review B*, 1971, 4(10): 3303–3314.
- [29] Francoeur M, Pinar Mengüç M, Vaillon R. Solution of Near-field thermal radiation in one-dimensional layered media using dyadic Green's functions and the scattering matrix Method[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2009, 110(18): 2002–2018.
- [30] Whale M, Cravalho E G. Modeling and performance of microscale thermophotovoltaic energy conversion Devices[J]. *IEEE Transactions on Energy Conversion*, 2002, 17(1): 130–142.
- [31] Song J, Han J, Choi M, et al. Modeling and experiments of Near-field thermophotovoltaic conversion: A Review[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2022, 238: 111556.
- [32] Xu W, Liu Y, Tang L, et al. Simulation of Zinc-diffused InAs cells for low temperature thermophotovoltaic Systems[J]. *Infrared Physics & Technology*, 2021, 115: 103719.
- [33] Levinshtein M. *Handbook series on semiconductor parameters*[M]. World Scientific, 1997.
- [34] Laroche M, Carminati R. Near-field thermophotovoltaic energy Conversion[J]. *J. Appl. Phys.*, 2006: 11.

光诱导纳米流体汽化过程中颗粒聚集对辐射特性的影响

张一帆, 安巍*

(同济大学机械与能源工程学院, 上海, 201804)

(Tel: 19145698764, Email: anwei@tongji.edu.cn)

摘要: 光诱导下纳米流体产生的汽泡在很多新兴产业中具有重要的应用价值。汽泡的演变以及由此产生的纳米颗粒聚集对纳米流体的辐射特性有重要影响。本文基于有限元方法, 研究了在光诱导纳米流体汽化过程中金纳米颗粒聚集数量和聚集形态对辐射特性的影响。结果表明, 随着纳米流体汽化过程的进行, 汽泡的演变过程使辐射特性呈现明显的时间尺度上的非线性演化规律, 在汽化循环阶段表现出周期性演化模式。

关键词: 辐射特性, 汽化过程, 纳米汽泡, 表面等离子共振, 聚集形态

0 前言

悬浮在液体中的金属纳米颗粒在聚焦辐射的诱导下, 可以非常高效地发生汽化^[1]。这一过程在光流体控制^[2]、生物医学^[3]等新兴应用中具有重要意义。纳米颗粒(nanoparticles, NPs)与可见光的相互作用可以激发局域表面等离子共振(localized surface plasmon resonance, LSPR)效应, 表现为在特定波长(LSPR 波长)下对光的强烈吸收和散射, 从而有效地将光子能量转化为热量, 使等离子体纳米颗粒变成纳米级的高温“局域热源”和具有时变增强电场的“带电粒子”^[1]。在两者的共同作用下当周围流体温度升高至旋节温度后, 会在纳米颗粒周围形成等离子体纳米汽泡(plasmonic nanobubble, PNB)。PNB 生成后, 会在周围产生微对流, 位于 PNB 一定距离内的粒子可以被吸引向 PNB。一旦粒子与 PNB 表面接触, 表面张力和压力之间的平衡将粒子捕获在 PNB 表面。同时, PNB 将在浮升力和微对流运动的共同作用下逐渐上升, 并可能与其它汽泡发生凝并。当纳米颗粒/汽泡复合体(nanoparticle-bubble complexes, P-B Complexes)上升至流体表面时, 汽泡会破裂并释放蒸汽^[4]。随后, 因浮力减小, 部分粒子聚集在重力作用下下沉到纳米流体深处, 此时聚集体很可能不再分离为单个粒子, 而是成为团簇。在光诱导下在纳米颗粒团簇周围产生 PNB, 然后重复 PNB 的不断增长、合并与消散过程, 最后形成汽化循环过程。随着汽化过程的不断重复进行, 这种聚集体很可能越来越多, 每个聚集体包含的粒子也越来越多。

可以发现, 在光诱导纳米流体汽化过程中, 由于 PNB 的演变以及由此产生的纳米颗粒聚集现象, 纳米流体的辐射特性在汽化过程与汽化过程的进行密切相关。一些研究者研究了在激光照射下单个和集群金属纳米颗粒周围汽泡的成核和初始生长, 虽然一些研究涉及到对汽泡产生时探针激光瞬态衰减强度, 以及纳米颗粒的 LSPR 峰值位移的测量^[5], 但由于汽泡事件的时间尺度为纳秒级别, 对检测仪器的时间分辨率提出了很高的要求, 只能产生有限的时间分辨率结果, 造成 PNB 动力学中的早期事件被掩盖了。同时, 由于可用的探测波长范围有限, 光诱导 PNB 演变过程中的光谱信息仍然缺乏^[6]。

基于模拟的方法因不受实验条件和仪器分辨率等因素的限制, 可以为研究光诱导纳米流体汽化过程中不同阶段的详细辐射特性演变规律提供新的思路。Setoura 等人^[7]在 Mie 理论的基础上考虑了介质折射率的梯度变化, 计算了浸没在水中单个金纳米颗粒(gold nanoparticle, AuNP)被不同直径汽泡包围时的消光光谱。模拟结果表明, 在光诱导

下，当颗粒周围以核壳结构形成 PNB 时，散射强度峰值波长产生了明显蓝移，消光强度有很大程度衰减。蓝移和衰减的程度与颗粒尺寸、颗粒聚集状态、汽泡尺寸等因素密切相关。遗憾的是，以往的研究主要集中在光诱导下纳米流体汽化过程中纳米颗粒周围产生 PNB 的初始阶段，对粒子聚集等过程中辐射特性的变化以及影响因素研究较少。在目前的工作中，我们考虑了纳米颗粒团簇效应和汽泡对辐射特性的影响，采用有限元方法(finite element method, FEM)，研究了 AuNPs 聚集个数和形态对复合体消光截面、反照度、LSPR 峰值波长的影响。

1 辐射特性计算理论及模拟方法

1.1 金纳米颗粒及纳米颗粒/汽泡复合体的辐射特性计算理论

单个金纳米球的辐射特性使用 Mie 散射理论获得准确的麦克斯韦方程的分析解。然而，为了获得 PNB 存在的复杂结构下金纳米颗粒的辐射特性，本研究采用基于 FEM 的高精度的数值方法计算纳米颗粒的辐射特性。当产生局域表面等离子共振时，入射光能将最大化地转化为热量。根据坡印亭定理，由纳米颗粒产生的能量可以写成：

$$Q = \iiint q dV = \iiint \frac{1}{2} \text{Re}(\mathbf{J} \cdot \sigma \mathbf{E}) dV \quad (1)$$

其中， q 是在颗粒体积上集成的纳米结构内的电磁功率损耗密度， \mathbf{J} 是电流密度。 \mathbf{E} 是纳米结构内部的电场，可以通过使用 FEM 来数值求解 Maxwell 方程得到^[8]：

$$\nabla \times \mu_r^{-1} [\nabla \times \mathbf{E}(r)] - k_0^2 \left(\epsilon_r - j \frac{\sigma}{\omega_0 \epsilon_0} \right) \mathbf{E}(r) = 0 \quad (2)$$

其中， μ_r 是相对磁导率， ω_0 是激光的角频率。 ϵ_r 是随频率变化的相对介电常数， $\epsilon_r = (n - ik)^2$ ， n 和 k 是复折射率。 σ 是电导率。 $k_0 = 2\pi/\lambda$ 表示波数， λ 表示波长。

纳米颗粒的吸收截面表征其对光的吸收特性，是波长的函数。将纳米结构中吸收的能量 Q 除以入射光的强度 I_0 ，可以得到吸收截面的表达式：

$$C_{\text{abs}} = \frac{1}{I_0} \iiint Q dV \quad (3)$$

散射截面可以定义为：

$$C_{\text{sc}} = \frac{1}{I_0} \iint (\mathbf{n} \cdot \mathbf{S}_{\text{sc}}) dS \quad (4)$$

其中， \mathbf{n} 是从纳米颗粒指向外部的法矢， \mathbf{S}_{sc} 是散射强度（坡印廷）矢量， I_0 是入射强度。对纳米颗粒的闭合表面进行积分。

纳米颗粒的消光截面是上述两个截面之和：

$$C_{\text{ext}} = C_{\text{abs}} + C_{\text{sc}} \quad (5)$$

由于汽泡对入射光只有散射作用而没有吸收作用，因此，汽泡的消光截面 $C_{\text{ext-B}}$ 可以表示为：

$$C_{\text{ext-B}} = C_{\text{abs-B}} + C_{\text{sc-B}} = C_{\text{sc-B}} \quad (6)$$

因此，当纳米颗粒周围产生汽泡时，P-B complexes 的消光截面 $C_{\text{ext-C}}$ 是纳米颗粒的散射截面 $C_{\text{ext-P}}$ 和汽泡的散射截面 $C_{\text{ext-B}}$ 之和。

$$C_{\text{ext-C}} = C_{\text{ext-P}} + C_{\text{ext-B}} \quad (7)$$

此外，我们用光谱散射反照度 ω 来衡量全波段的散射能量占入射辐射能量的比例。反照度是被 P-B complexes 反射而不吸收的能量的比例。

$$\omega = \frac{C_{sc-B}}{C_{ext-C}} = \frac{C_{sc-P} + C_{sc-B}}{C_{ext-P} + C_{ext-B}} \quad (8)$$

1.2 纳米颗粒聚集过程有限元模拟物理模型

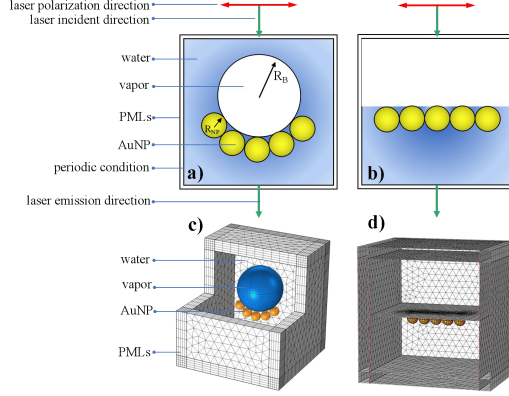


图 1 辐射特性 FEM 计算模型示意图: (a) AuNPs 聚集于 PNB 边界; (b) PNB 溢出后, AuNPs 聚集于液体表面。(c)(d) FEM 模型对应的网格。

Fig. 1 Schematic diagram of the FEM computational model for the radiative properties. (a) Aggregation of AuNPs at the PNB boundary. (b) Aggregation of AuNPs on the liquid surface after PNB dissipation. (c-d) Meshes corresponding to the FEM model.

光诱导纳米流体汽化不同阶段的纳米颗粒辐射特性的 FEM 计算模型如图 1a-b 所示, 模型所对应的网格如图 1c-d 所示。本研究中, 我们使用有限元仿真软件 Comsol Multiphysics 试用版求解 Maxwell 方程。如图 1a 所示, 入射光沿 z 轴方向由上方向下入射, 沿 x 轴偏振。水域边界使用周期性边界条件, 网格由物理场控制, 软件可以根据几何形状和输入参数确定最合适的网格分布。此外, 我们使用完美匹配层(perfectly matched layers, PMLs)来截断计算域, 防止入射电磁波在边界处反射。在如图 2(a)所示的 AuNP/PNB/水的同心球结构模型中, 球形 AuNP 被一个同心球形 PNB (折射率为 1.0) 包围, 浸在水中 (折射率为 1.33)。PNB (半径为 R_B) 是 AuNP (半径为 R_P) 表面和周围水介质之间的蒸汽层。为了获得准确的 LSPR 波长并减小计算时间, 参数化扫描的波长在 LSPR 波长范围内间隔为 1 nm, 其余波长范围内间隔为 10 nm。

2. 纳米颗粒聚集过程的有限元模拟结果

2.1 PNB 诱导的纳米颗粒聚集阶段 P-B complexes 辐射特性的演变

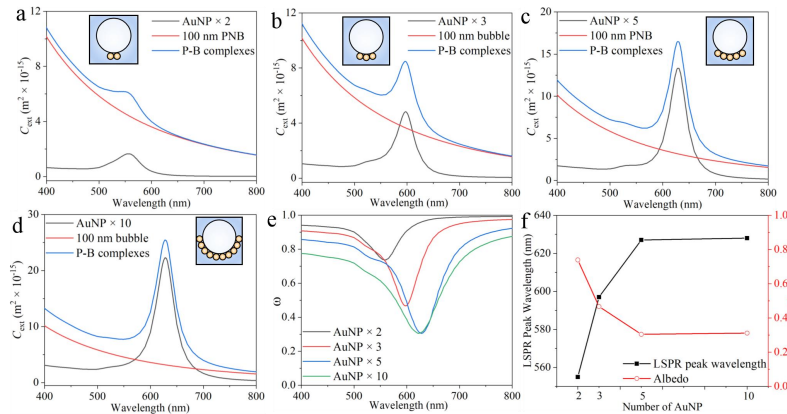


图 2. 半径 100 nm 的 PNB 周围吸引 10 nm 半径 AuNP 聚集后 P-B complexes 的辐射特性变化。(a)-(d) 半径为 100 nm 气泡周围吸引不同个数 AuNP 聚集后 AuNP 聚集体、PNB 以及 P-B complexes 的消光截面变化。插图为 PNB 周围吸引 AuNP 聚集的辐射特性计算模型。AuNP 聚集个数对(e)P-B complexes 的反照度(f)AuNP 聚集 LSPR 峰值波长以及在峰值波长上 P-B complexes 反照度的影响。

Fig. 2 Radiative properties of P-B complexes formed by attracting AuNPs with a radius of 10 nm around a PNB with a radius of 100 nm. (a-d) Extinction cross sections of AuNP aggregates, PNB, and P-B complexes after attracting different numbers of AuNPs around a PNB. The illustration is the schematic diagram of the corresponding calculation model. Dependence of the (e) albedo and (f) LSPR peak wavelength and albedo of P-B complexes on the number of aggregated AuNPs.

如图 2a-d 所示，我们设置了 100 nm 半径 PNB 周围吸引 10 nm 半径的 AuNP 聚集，计算了 AuNP 聚集个数对 P-B complexes 辐射特性的影响。当 AuNP 聚集个数达到 3 个时，AuNP 聚集体的消光效果超过 PNB，并且随着 AuNP 聚集个数的增加，聚集体的消光效果逐渐占据主导地位。随着 AuNP 聚集个数的增加，AuNP 聚集体的 LSPR 峰值波长发生明显红移，但当聚集个数由 5 个增加至 10 个时，LSPR 峰值波长几乎不变。P-B complexes 的反照度随着纳米颗粒聚集个数逐渐降低，在 LSPR 峰值波长处达到最小值，且在聚集的纳米颗粒个数达到 3 个时，反照度低于 0.5，表明随着纳米颗粒的聚集，P-B complexes 消光作用逐渐由入射光的散射作用过渡到聚集体对入射光的吸收作用。

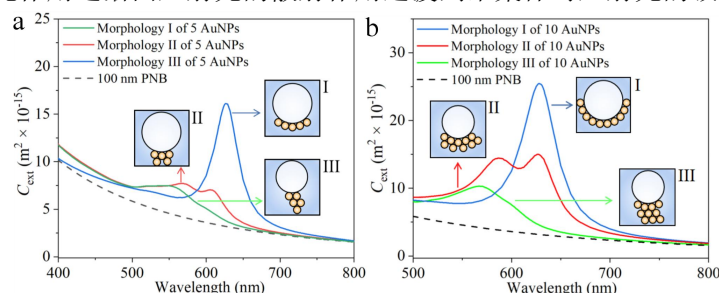


图 3 纳米颗粒聚集形态对 P-B complexes 消光特性的影响。100 nm 直径 PNB 周围吸引(a) 5 个(b) 10 个 AuNPs 聚集，聚集层数对消光特性的影响。

Fig. 3 Effect of the number of AuNP aggregation layers on the radiative properties of P-B complexes when (a) 5 and (b) 10 AuNPs with a radius of 10 nm are attracted around a 100 nm radius PNB.

然而，纳米颗粒在汽泡球面上可能并不是规则的分布成一串，而是分布在汽泡球面上呈二维结构，甚至少数分布在第一层粒子的外围，呈三维结构。我们设置了 PNB 周围吸引 5 个（图 3a）和 10 个（图 3b）AuNPs 聚集，对比了在 PNB 周围形成一层粒子（聚集形态 I）、两层（聚集形态 II）和三层（聚集形态 III）时 P-B complexes 的消光特性。从图 3 不难看出，纳米颗粒的聚集形态对其消光特性起决定性作用。当聚集的纳米颗粒个数相同时，随着聚集层数的增加，P-B complexes 的消光截面峰值逐渐降低，LSPR 峰值波长发生明显蓝移。值得注意的是，当纳米颗粒在 PNB 外聚集两层时，出现了两个明显的消光峰。

此外，当纳米颗粒聚集为多层时，由于上层 AuNP 对下层有明显的遮蔽作用，纳米颗粒聚集体的辐射特性相较于与光源偏振方向平行时会有一定程度的衰减。但总体趋势可以总结为：聚集体的吸收特性相对于单个粒子明显变强，LSPR 峰值波长明显红移，LSPR 的峰宽也比单个粒子时更宽。

2.2 PNB 消散阶段纳米颗粒聚集体辐射特性的演变

图 4a 的插图是 PNB 消散后聚集于流体表面的 AuNPs 聚集体辐射特性计算模型示意图，我们计算了当 PNB 消散后半径为 10 nm 的 AuNP 聚集个数（2 个、3 个、5 个和 10 个）对聚集体辐射特性的影响。如图 4a-d 所示，随着 AuNP 聚集个数的增加，AuNP 聚集体的消光截面峰值不断增加，与聚集个数呈现出线性关系。LSPR 峰值波长发生明显红移，但当 AuNP 聚集个数由 5 个增加至 10 个时，LSPR 峰值波长增加不明显。当汽泡消散后，纳米颗粒聚集体的反照度随着纳米颗粒聚集个数的增加而增加，呈现线性关系，但反照度均未超过 0.5，消光效果主要以纳米颗粒聚集体对光能的吸收为主。与图 3 类似，我们设置了流体表面 5 个（图 5e）和 10 个（图 5f）AuNPs 聚集，对比了在液面形成不同聚集形态时 P-B complexes 的消光特性。可以发现，当纳米颗粒聚集个数相同时，

随着聚集层数的增加，P-B complexes 的消光截面逐渐降低，LSPR 峰值波长发生蓝移。当 10 个 AuNPs 在液面聚集为两层时，出现了两个明显的消光峰。

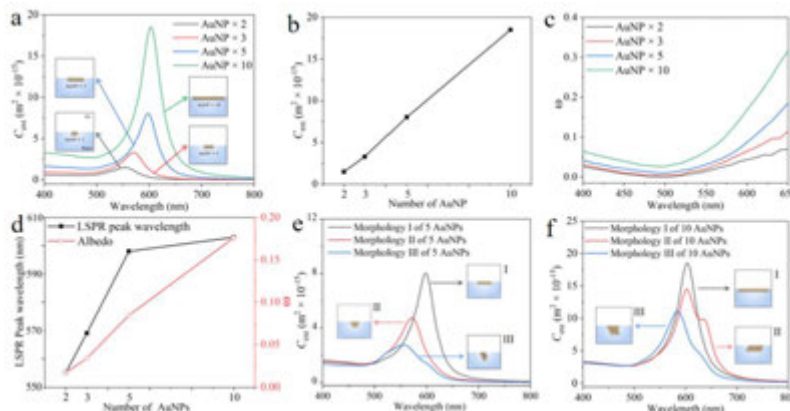


图 4. PNB 消散后半径 10 nm 的 AuNPs 在流体表面聚集后聚集体辐射特性的变化。AuNPs 聚集个数对纳米颗粒聚集体(a)消光截面(b)消光截面峰值(c)反照度(d)LSPR 峰值波长和反照度的影响。(e-f)纳米颗粒聚集形态对纳米颗粒消光特性的影响。

Fig. 4 Radiative properties of aggregates formed by AuNPs with a radius of 10 nm on the fluid surface after PNB dissipation. Dependence of (a) extinction cross section (b) peak extinction cross section (c) albedo (d) LSPR peak wavelength and albedo at LSPR peak wavelength of AuNP aggregates on the number of aggregated AuNPs. (e-f) Effect of aggregation morphology on the extinction properties of AuNP aggregates.

2.3 纳米流体汽化过程中辐射特性的非线性演化

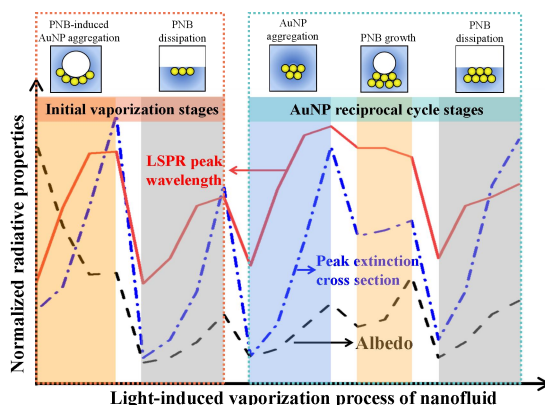


图 5. 光诱导纳米流体汽化过程中辐射特性非线性演化规律。

Fig. 5 Non-linear evolution of radiative properties during light-induced vaporization process of nanofluid.

图 5 总结了光诱导纳米流体汽化过程中汽化初始阶段以及后续粒子往复循环阶段 P-B complexes 的辐射特性（LSPR 峰值波长、消光截面峰值、LSPR 峰值波长下的反照度）归一化的变化过程。可以明显看出，纳米流体在光诱导的汽化过程中，辐射特性随着汽化过程的进行呈现明显的时间尺度上的非线性演化规律。当然，粒子的往复循环运动可能仅在流体的局部存在，且已被 Domínguez-Juárez 等人^[9]的实验初步证实。

在 PNB 诱导的 AuNPs 聚集过程中，随着聚集的 AuNPs 数量的增加，P-B complexes 的消光峰值显著增加，反照度逐渐减小。反照度的降低表明纳米颗粒聚集对入射光的吸收作用逐渐增加。AuNP 聚集体的 LSPR 峰值波长发生显著红移，表明纳米颗粒聚集对 LSPR 峰值波长的红移效果强于气泡的蓝移效果。当 PNB 消散后，随着 AuNP 聚集个数的增加，AuNP 聚集体的消光截面峰值不断增加，LSPR 峰值波长发生红移，但当聚集个数增加到一定程度后，红移的效果不明显。反照度随着聚集个数的增加不断增加但仍然较低，消光效果主要以纳米颗粒聚集体对光能的吸收为主。

在汽化初始阶段纳米颗粒较少聚集,在后续的粒子往复循环阶段中,纳米颗粒聚集会逐渐增多。当纳米颗粒聚集体下沉到纳米流体中时,随着纳米颗粒聚集个数的增加,聚集体的 LSPR 峰值波长发生红移,消光峰值逐渐增加,反照度逐渐增加但仍处于较低水平。当纳米颗粒团簇周围产生 PNB 时,随着 PNB 尺寸的增加,P-B complexes 的 LSPR 峰值波长有轻微蓝移,消光峰值和反照度均逐渐增加。当 PNB 消散后,此时纳米颗粒聚集体的聚集数量较初始阶段中 PNB 消散阶段有明显增加,此时聚集体辐射特性的变化趋势与初始阶段中的汽泡消散阶段相似,但增加程度较初始阶段更强。当流体完全蒸发后,辐射特性变化的最终结果与纳米颗粒的聚集状态密切相关。

3. 结 论

本文建立了纳米流体在光诱导汽化过程中考虑 PNB 演变过程的辐射特性 FEM 计算模型,分析了在 PNB 演变不同阶段中 AuNP 尺寸、PNB 尺寸以及聚集状态对辐射特性(LSPR 峰值波长、消光截面、反照度)的影响。数值计算结果表明,在纳米流体汽化过程中,P-B complexes 的辐射特性随着汽化过程的进行呈现明显的非线性演化规律,在汽化循环阶段表现出周期性演化模式。

通过分析辐射特性变化可以得到如下结论:

1. PNB 的产生会使纳米颗粒的 LSPR 峰值波长发生蓝移,AuNPs 的聚集会使聚集体的 LSPR 峰值波长发生红移。在 PNB 存在的情况下,复合体的 LSPR 峰值波长变化取决于 PNB 对其的蓝移作用和 AuNPs 聚集对其的红移作用的竞争,但一般而言,颗粒聚集的红移作用要强于汽泡的蓝移作用。

2. AuNPs 的聚集会增加 P-B complexes 的消光截面峰值。

3. 当 PNB 存在时,P-B complexes 的反照度是否超过 0.5 取决于纳米颗粒聚集体与 PNB 的消光截面的相对大小。当 PNB 消散后,纳米颗粒的聚集会增加聚集体的反照度,但反照度低于 PNB 存在时,表现为对入射光能较强的吸收。

4. AuNPs 的聚集形态对聚集体辐射特性有显著影响。随着聚集层数的增加,聚集体的消光截面峰值减小,LSPR 峰值波长发生蓝移,峰宽增加,并可能出现多个消光峰。

目前的研究结果表明了光诱导纳米流体汽化过程中辐射特性的非线性演化规律,而且揭示了粒子参数和汽泡参数对辐射特性的影响规律。这些变化会影响到纳米流体对光源能量的吸收进而影响纳米流体内部的传热,最终会影响到 PNB 的生成和演变过程。整个过程相互耦合,也是光诱导纳米流体蒸发过程中辐射特性非线性变化的根本原因。

参考文献

- [1] Zhao Chang, An Wei, Zhang Yi-fan, et al. Impact of enhanced electric field on light-induced evaporation process of plasmonic nanofluid. *International Journal of Heat and Mass Transfer*. 2022,189(15): 122708.
- [2] Zhang Kai, Jian Ao-qun, Zhang Xu-ming, et al. Laser-induced thermal bubbles for microfluidic applications. *Lab on a Chip*. 2011, 11(7): 1389-1395.
- [3] Shakeri-Zadeh Ali, Zareyi Hajar, Sheervalilou Roghayeh, et al. Gold nanoparticle-mediated bubbles in cancer nanotechnology. *Journal of Controlled and Release*. 2021, 330: 49-60.
- [4] Neumann Jörg, Brinkmann Ralf. Nucleation dynamics around single microabsorbers in water heated by nanosecond laser irradiation. *Journal of Applied Physics*. 2007, 101(11): 114701.
- [5] Fang Zhe-yu, Zhen Yu-rong, Neumann Oara, et al. Evolution of light-induced vapor generation at a liquid-immersed metallic nanoparticle. *Nano Letters*. 2013, 13: 1736-1742.
- [6] Kotaidis Vassilios, Plech Anton. Cavitation dynamics on the nanoscale. *Applied Physics Letters*. 2005, 87(21): 213102.
- [7] Setoura Kenji, Werner Daniel, Hashimoto Shuichi. Optical scattering spectral thermometry and refractometry of a single gold nanoparticle under cw laser excitation. *The Journal of Physical Chemistry C*. 2012, 116(29): 15458-15466.
- [8] Zhao Jing, Pinchuk Aantoliy O, McMahon Jeffrey M, et al. Methods for describing the electromagnetic properties of silver and gold nanoparticles. *Accounts of Chemical Research*. 2008, 41(12): 1710-1720.
- [9] Domínguez-Juárez JL, Vallone S, Lempel A, et al. Influence of solvent polarity on light-induced

thermal cycles in plasmonic nanofluids. *Optica*. 2015, 5(2): 447-453.

一维梯度折射率介质辐射-导热的格子 Boltzmann 模型

魏屹杰, 刘晓川, 朱克勇, 黄勇
(北京航空航天大学 航空科学与工程学院, 北京, 100191)
(Tel: 18611374351, Email: huangy@buaa.edu.cn)

摘要: 针对于梯度折射率介质内能量输运过程的数值模拟问题, 提出了一种求解辐射-导热耦合问题的统一格子-Boltzmann 模型。在统一格子框架内, 导热微分方程和辐射传递方程可以进行耦合求解。一些数值案例被用于验证本文所提出的数值模型的特性。结果表明, 本文提出数值模型具有良好的数值稳定性, 并且可以准确地求解梯度折射率介质内的稳态和瞬态辐射-导热问题。

关键词: 梯度折射率; 耦合传热; 格子 Boltzmann 方法

0 前言

梯度折射率介质是指一类折射率呈非均匀分布的介质, 在国防工业^[1]、生物医学^[2]、电子通信^[3]等领域有着广泛的应用。辐射-导热是梯度折射率介质内的能量输运的主要形式, 由于其具有较强的复杂性, 解析求解十分困难, 因此学者们提出了诸多数值模拟方法对其进行研究, 如光线追踪法^[4]、谱方法^[5]、有限元素法^[6,7]等。

格子玻尔兹曼方法(lattice Boltzmann Method, LBM)是一种高效、简洁的介观数值方法, 其在求解流动问题上已经展现出了独特的优势, 同时也逐渐被推广到其他领域^[8-10]。而在辐射传输相关问题的求解中, LBM 不同于传统数值方法, 既不需要统计大量光线轨迹, 也不需要离散求解复杂的积分-微分方程, 能够大大简化求解过程、节省计算资源。同时, 由于 LBM 是一种天然的瞬态演化算法, 因此能够高效地求解瞬态问题。但目前, 应用于求解辐射传输相关问题的 LBM 仍处于起步阶段, 因此针对相关数值模型进行研究是有必要的。

Mishra 等^[11]首先将 LBM 应用于求解辐射传输问题, 并在此基础上研究了均匀折射率介质内的辐射-导热。但该方法由于引入了虚光速、辐射平衡等假设, 因此难以解决诸如强散射、梯度折射率等复杂问题。Ma 和 Dong 等^[12]基于流体守恒方程提出了一种求解辐射传输问题的 LB 模型, Bindra 等^[13]进一步将该形式拓展至二维辐射传输问题的求解上。Yi 等^[14]提出了一种新的适用于求解均匀折射率介质内稳态辐射传输方程的 LB 模型, 这种模型具有严格的数学物理背景, 并能适用于求解稳态下的辐射-对流、辐射-导热等耦合问题。

然而上述数值模型主要集中于求解均匀折射率介质内的纯辐射传输问题，针对于梯度折射率介质内辐射-导热耦合问题，尤其是瞬态耦合问题的 LBM 还未见报道。本文给出了一种用于求解一维梯度折射率介质内辐射-导热耦合问题的统一格子 Boltzmann 模型。数值结果表明，本文所提出的数值模型在求解梯度折射率介质内的稳态和瞬态辐射-导热耦合问题时均具有较高的准确性。该模型有望为梯度折射率介质内能量输运问题的数值模拟提供一种新的思路。

1 数学模型

1.1 控制方程

辐射-导热耦合传热是参与性介质内的基本能量传输方式，其控制方程为导热微分方程和辐射传输方程(Radiative Transfer Equation, RTE)^[6,7]:

$$\rho C \partial_t T = \lambda \nabla^2 T - \nabla \cdot \mathbf{q}_R \quad (1a)$$

$$\frac{n}{c_0} \frac{\partial \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t)}{\partial t} + \boldsymbol{\Omega} \cdot \nabla \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) = \mathbf{S}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) \quad (1b)$$

公式中 ρ , C , λ 和 n 分别为介质的密度、比热、导热系数和折射率, c_0 为真空光速, T 为温度, \mathbf{I} 为辐射强度, $\boldsymbol{\Omega} = \mu \mathbf{i} + \eta \mathbf{j} + \xi \mathbf{k}$ 为方向向量。此外, 式(1a)中的辐射热流梯度 $\nabla \cdot \mathbf{q}_R$ 和式(1b)中的辐射源项 \mathbf{S} 分别定义为:

$$\nabla \cdot \mathbf{q}_R = k_a \left[4n^2 \sigma T^4 - \int_{4\pi} \mathbf{I} d\boldsymbol{\Omega} \right] \quad (2a)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{S}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) = & -k_e \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) + n^2 k_a \mathbf{I}_b(\mathbf{r}, t) + \frac{k_s}{4\pi} \int_{4\pi} \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}', t) \Phi(\boldsymbol{\Omega}', \boldsymbol{\Omega}) d\boldsymbol{\Omega}' \\ & - \frac{1}{2n^2 \sin \theta} \partial_\theta (\mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) (\xi \boldsymbol{\Omega} - \mathbf{k}) \cdot \nabla n^2) - \frac{1}{2n^2 \sin \theta} \partial_\varphi (\mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) (\mathbf{s}_1 \cdot \nabla n^2)) \end{aligned} \quad (2b)$$

公式中 $k_e = k_a + k_s$, k_e , k_a 和 k_s 分别表示介质的衰减系数、吸收系数和散射系数, σ 为斯特潘-玻尔兹曼常数, \mathbf{I}_b 表示黑体辐射强度, Φ 为散射相函数, 向量 \mathbf{s}_1 的定义式为 $\mathbf{s}_1 = -\sin \varphi \mathbf{i} + \cos \varphi \mathbf{j}$ 。

为处理 RTE 中的折射率梯度项, 引入辐射方向修正 $\mathbf{u} = \boldsymbol{\Omega} / n$ 。此外, 在瞬态问题的求解上, 为避免辐射传输方程中由光速引起的过小时间步长, 还需要对辐射传输方程进行时间无量纲化, 令 $t^* = c_0 t / L$, 同时为保持耦合方程的统一格式, 导热微分方程也进行同样的时间无量纲化处理, 此时式(1)转换为如下形式:

$$\frac{\partial T(\mathbf{r}, t^*)}{\partial t^*} = \frac{\lambda L}{c_0 \rho C} \nabla^2 T(\mathbf{r}, t^*) - \frac{L}{c_0 \rho C} \nabla \cdot \mathbf{q}_R(\mathbf{r}, t^*) \quad (3a)$$

$$\frac{\partial \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t^*)}{\partial t^*} + \nabla \cdot L \mathbf{u} \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t^*) = \frac{L}{n} \mathbf{S}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t^*) + L \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t^*) \nabla \cdot \mathbf{u} \quad (3b)$$

式中 L 为求解域的特征尺寸。

1.2 耦合格子 Boltzmann 模型

根据式(3), 本文提出的求解辐射-导热耦合问题的格子 Boltzmann 演化方程具有如下形式^[15,16]:

$$f_i(\mathbf{r} + \mathbf{e}_i \Delta t^*, t^* + \Delta t^*) - f_i(\mathbf{r}, t^*) = \frac{-1}{\tau_c} [f_i(\mathbf{r}, t^*) - f_i^{eq}(\mathbf{r}, t^*)] - \frac{L \Delta t \varpi_i}{c_0 \rho C} \nabla \cdot \mathbf{q}_R(\mathbf{r}, t^*) \quad (4a)$$

$$g_i(\mathbf{r} + \mathbf{e}_i \Delta t^*, \Omega, t^* + \Delta t^*) - g_i(\mathbf{r}, \Omega, t^*) = \frac{-1}{\tau_R} [g_i(\mathbf{r}, \Omega, t^*) - g_i^{eq}(\mathbf{r}, \Omega, t^*)] \\ \Delta t^* \left[\mathbf{F}_{i0}(\mathbf{r}, \Omega, t^*) + \frac{\Delta t^*}{2} \partial_t \mathbf{F}_{i0}(\mathbf{r}, \Omega, t^*) + \mathbf{F}_{i1}(\mathbf{r}, \Omega, t^*) \right] \quad (4b)$$

公式中, f_i 和 g_i 分别为温度分布函数和辐射强度分布函数, 与之对应的 f_i^{eq} 和 g_i^{eq} 为平衡分布函数, τ_c 和 τ_R 分别为导热松弛因子和辐射松弛因子, \mathbf{F}_{i0} 和 \mathbf{F}_{i1} 为源项分布函数。平衡分布函数具有如下形式^[15,16]:

$$f_i^{eq} = \varpi_i T \quad (5a)$$

$$g_i^{eq} = \varpi_i \mathbf{I} \left[1 + \frac{\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{L} \mathbf{u}}{c_s^2} + \frac{(\mathbf{u} \cdot \mathbf{u} - c_s^2 \mathbf{E}) : (\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{c}_i - c_s^2 \mathbf{E})}{2c_s^4} \right] \quad (5b)$$

源项分布函数具有如下形式^[16]:

$$\mathbf{F} = \frac{L}{n} \mathbf{S} + L \mathbf{I} \nabla \cdot \mathbf{u} \quad (6a)$$

$$\mathbf{F}_{i0} = \varpi_i \mathbf{F} \quad (6b)$$

$$\mathbf{F}_{i1} = \varpi_i (\mathbf{F} + L \mathbf{I} \nabla \cdot \mathbf{u}) \frac{\mathbf{c}_i \cdot (1 - 1/2\tau_r) \cdot \mathbf{L} \mathbf{u}}{c_s^2} \quad (6c)$$

宏观物理参数可由如下关系给出^[15]:

$$T = \sum f_i \quad (7a)$$

$$\mathbf{I} = \sum g_i \quad (7b)$$

本文所提出的 LB 模型可以针对辐射过程和导热过程在统一格子框架内进行耦合求解。针对于一维梯度折射率介质内的辐射-导热问题, 本文采用经典的 D1Q3 格子框架, 其对应的格子信息为^[8]:

$$\mathbf{c}_i = \mathbf{e}_i c = \begin{cases} (0, 0), & i = 0 \\ c, & i = 1 \\ -c, & i = 2 \end{cases} \quad (8a)$$

$$c_s = \frac{c}{\sqrt{3}}, \quad \varpi_i = \begin{cases} 2/3, & i = 0 \\ 1/6, & i = 1, 2 \end{cases} \quad (8b)$$

式中, 下标 i 表示格子方向, \mathbf{e}_i 为单位向量, $c = \Delta x / \Delta t$ 表示格子速度, c_s 表示格子声速, ϖ_i 表示格子方向权重。

2 结果及分析

2.1 模型检验

在辐射-导热耦合问题中，通常使用辐射-导热耦合系数 N_{plk} 和无量纲时间 ζ 对其进行描述，其定义式为^[11]：

$$N_{plk} = \frac{\lambda k_e}{4\sigma T_{ref}^3}, \zeta = \frac{\lambda k_e^2 t}{\rho C} \quad (9)$$

式中 T_{ref} 表示特征温度，选取冷边温度 T_0 为特征温度。本文针对一维梯度折射率介质内的辐射-导热耦合传热问题进行了研究，求解域为一维无限大平板，为保持与基准解条件一致，其光学厚度设置为 $\tau_L = k_e L = 1$ ，耦合系数为 $N_{plk} = 0.04409$ ，散射反照率为 $\omega = 0$ 。在初始条件下，整个平板处于温度 $T_0 = 1000$ K，当 $t > 0$ 时刻，平板上边界突然被加热至 $T_1 = 1500$ K，并保持温度不变，同时假设各物性参数不随时间改变。在辐射项离散处理上采取 PCA 角度离散^[6]，边界条件处理采取非平衡外推边界^[16]。迭代过程中，以温度作为收敛判据，当残差小于 10^{-6} 时，认为系统到达了稳态。

图 1 所示为数值模型的网格无关性检验结果，可以看到当网格数 N_x 大于 40，温度分布结果间的平均相对误差已经不再随网格的加密而发生明显变化，说明了其具有良好的数值稳定性。综上，在本文后续的计算中，均选取网格数为 40，以满足计算需求。

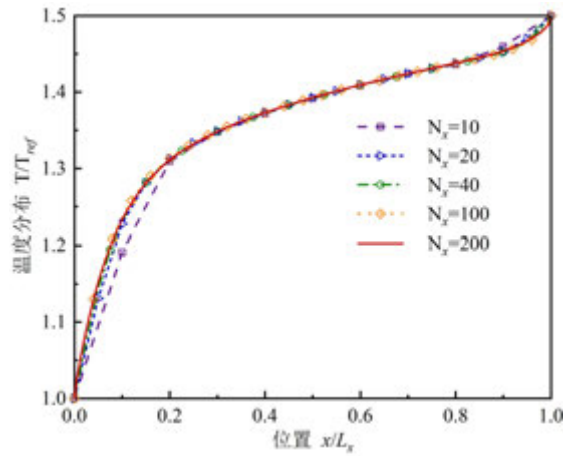


图 1 网格无关性检验

2.2 梯度折射率介质中的稳态辐射-导热

首先研究了具有线性梯度折射率分布 $n = 1.2 + 0.6x$ 和 $n = 1.8 - 0.6x$ 的一维无限大平板内的辐射导热，其温度场结果如图 2 所示，作为对比，图中还展示了折射率为 1.5 的均匀折射率平板内的温度分布。通过与光线追踪方法所得结果进行对比^[4]，可以看到 LBM 的结果与基准结果吻合良好。

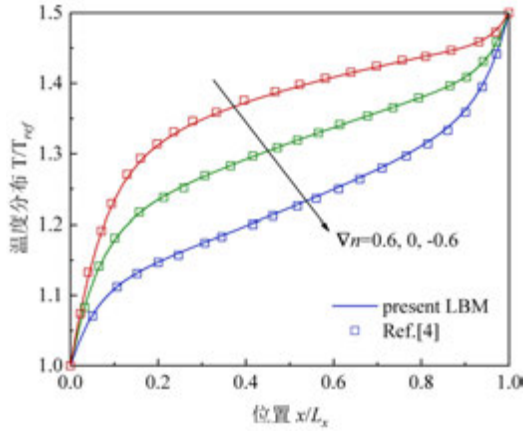


图2 线性梯度折射率介质内的稳态温度分布

接下来，具有三角函数型折射率分布下一维介质内的辐射导热。如图3所示，其折射率分布满足 $n = 1.8 - 0.6\sin(\pi x / L_x)$ ，曲线 1-3 分别对应于黑边界发射率 $\varepsilon_0 = \varepsilon_1 = 1.0$ ，非对称灰边界发射率 $\varepsilon_0 = 0.2, \varepsilon_1 = 1.0$ 和 $\varepsilon_0 = 1.0, \varepsilon_1 = 0.2$ 。通过与稀疏网格伽辽金方法 (meshless local Petrov-Galerkin, MLPG) 所得结果进行对比^[6]，可以看到 LBM 的结果与基准结果同样吻合良好。

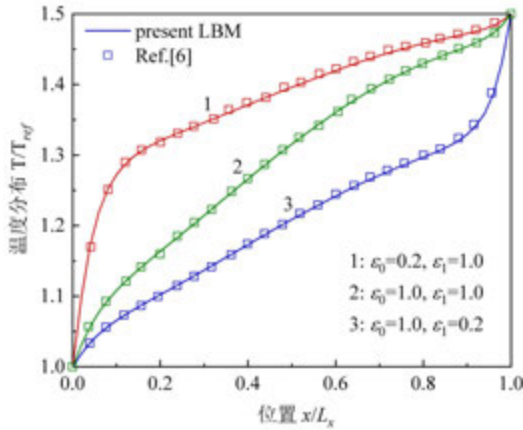


图3 三角函数型梯度折射率介质内的稳态温度分布

在说明了 LBM 计算精度的基础上，为进一步说明其计算效率，采用求解梯度折射率介质中辐射传输问题常用的蒙特卡洛光线追踪方法 (Monte Carlo Method, MCM)^[4] 与本文所提出的 LBM 进行对比，采用的编译器为 Matlab R2018b，计算平台为 Intel(R) Core(TM) i7-10875H CPU。表 1 对比了两种方法求解 $n = 1.2 + 0.6x$ 的纯吸收、无散射介质稳态辐射-导热问题的收敛时间。可以看到在不同网格数和离散方向数下，LBM 的计算效率均高于 MCM。当网格数和离散方向数较少时，LBM 的计算效率并没有明显高于 MCM，但随着网格数和离散方向数的增加，MCM 求解所需的输入光线数大幅增加，从而导致其收敛时间显著增加，而 LBM 的计算效率受网格数和离散方向数的影响则相对较小。

表 1 LBM 与 MCM 计算时间实验误差

网格数	离散方向数	MCM 收敛时间 (秒)	LBM 收敛时间 (秒)
50	100	62	43
50	200	121	99
100	100	310	52
100	200	616	140

综上所述, 通过不同条件下对于 LBM 计算精度和计算效率的验证, 表明了求解梯度折射率介质中的稳态辐射-导热问题时, LBM 具有良好的性能。

2.3 梯度折射率介质中的瞬态辐射-导热

格子玻尔兹曼方法是一种典型的瞬态演化方法, 因此非常适合于求解瞬态问题。本节研究纯吸收、无散射条件($\omega=0.0, \varepsilon=1.0$)下, 折射率分布为 $n=1.2+0.6x$ 的一维无限大平板内的瞬态辐射-导热。其对应于无量纲时间 $\zeta=0.001, 0.005, 0.015$ 时刻以及稳态时刻的温度场响应如图 4 所示。以谱配置离散坐标法(spectral discrete ordinates method, SP-DOM)所得的结果作为基准结果^[5], 可以看到 LBM 结果与基准结果吻合良好。说明了本文所提出的 LB 模型同样适用于求解梯度折射率介质内的瞬态辐射-导热耦合问题。

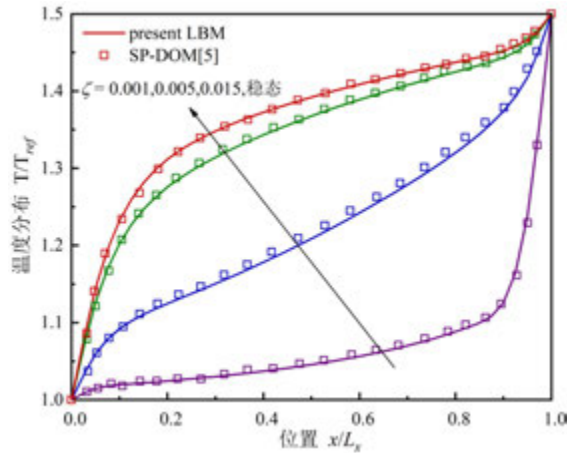


图 4 线性梯度折射率介质内的瞬态温度响应

3 结 论

综上所述, 本文建立起了一种求解梯度折射率介质内一维辐射-导热耦合问题的格子 Boltzmann 模型。相比于传统方法中对导热和辐射过程采取不同处理, 本文提出的 LBM 采用统一格子框架对导热和辐射进行耦合求解, 并充分发挥了 LBM 作为瞬态演化算法的良好数值特性, 将其进一步拓展到瞬态问题的求解当中。数值验证表明本文提出的统一格子 Boltzmann 模型在求解梯度折射率介质内的辐射-导热稳态问题和瞬态问题时均具有良好的准确性和较高的计算效率。

利用 LBM 优良的数值特性, 本文所提出的数值模型还有望拓展到求解多维问题、复杂条件下的辐射-导热问题, 为梯度折射率介质内能量输运过程的研究提供一种高效、

可靠的数值工具。

参考文献

- [1] Li Y, Zhu Q. Luneburg Lens with Extended Flat Focal Surface for Electronic Scan Applications. *Optics Express*, 2016, 24(7): 7201-11.
- [2] 宣文静, 吕昊. 梯度折射率球透镜和棒透镜在眼睛光学中的研究. 科技信息, 2012, (2): 2.
Xuan W J, Lv H. Research on Graded-index Spherical Lens and Rod Lens in Eye Optics. *Technological Information*, 2012, (2): 2.
- [3] Chen Y Z, Yao T F, Xiao H, et al. Theoretical Analysis of Heat Distribution in Raman Fiber Lasers and Amplifiers Employing Pure Passive Fiber. *IEEE Photonics Journal*, 2020, 12(6).
- [4] Xia X L, Huang Y, Tan H P, et al. Simultaneous Radiation and Conduction Heat Transfer in a Graded Index Semitransparent Slab with Gray Boundaries. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2002, 45(13): 2673-88.
- [5] Sun Y S, Li B W. Spectral Collocation Method for Transient Combined Radiation and Conduction in an Anisotropic Scattering Slab with Graded Index. *Journal of Heat Transfer-Transactions of the ASME*, 2010, 132(5): 052701.
- [6] Liu L H, Zhang L, Tan H P. Finite Element Method for Radiation Heat Transfer in Multi-Dimensional Graded Index Medium. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2006, 97(3): 436-45.
- [7] Liu L H, Tan J Y, Li B X. Meshless Approach for Coupled Radiative and Conductive Heat Transfer in One-Dimensional Graded Index Medium. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2006, 101(2): 237-48.
- [8] 何雅玲, 王勇, 李庆. 格子 Boltzmann 方法的理论及应用. 北京: 科学出版社, 2009.
He Y L, Wang Y, Li Q. Lattice Boltzmann Method: Theory and Application. Beijing: *Science Press*, 2009.
- [9] Mcnamara G R, Zanetti G. Use of the Boltzmann Equation to Simulate Lattice-Gas Automata. *Physical Review Letters*, 1988, 61(20): 2332-5.
- [10] Sharma K V, Straka R, Tavares F W. Current Status of Lattice Boltzmann Methods Applied to Aerodynamic, Aeroacoustic, and Thermal Flows. *Progress in Aerospace Sciences*, 2020, 115: 100616.
- [11] Asinari P, Mishra S C, Borchellini R. A Lattice Boltzmann formulation for The Analysis of Radiative Heat Transfer Problems in a Participating Medium. *Numerical Heat Transfer Part B-Fundamentals*, 2010, 57(2): 126-46.
- [12] Ma Y, Dong S, Tan H. Lattice Boltzmann Method for One-Dimensional Radiation Transfer. *Physical Review E*, 2011, 84(1): 016704.
- [13] Bindra H, Patil D V. Radiative or Neutron Transport Modeling Using A Lattice Boltzmann Equation Framework. *Physical Review E*, 2012, 86(1): 016706.
- [14] Yi H L, Yao F J, Tan H-P. Lattice Boltzmann Model for a Steady Radiative Transfer Equation. *Physical Review E*, 2016, 94(2): 023312.
- [15] Liu X C, Wu S, Zhu K Y. Mesoscopic lattice Boltzmann model for radiative heat transfer in graded-index media, *Physical Review Research* 4(1) (2022) 013125.

- [16] Wei Y J, Liu X C, Zhu K Y. A unified lattice Boltzmann framework for combined radiation-conduction heat transfer, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 200 (2023) 123513.

基于拓扑声子极化激元的纳米粒子间热辐射传热调控

龚震, 王博翔, 赵长颖*

(上海交通大学工程热物理研究所, 上海 200240)

(Tel: 021-34204541 Email: changying.zhao@sjtu.edu.cn)

摘要: 得益于拓扑系统所特有的鲁棒性, 拓扑声子极化激元 (Topological Phonon Polaritons, TPhPs) 在热辐射传热调控、红外信号传输、红外探测和热管理等方面均有十分巨大的潜在应用价值。本文基于二维 Su-Schrieffer-Heeger (SSH) 模型设计了一种由 SiC 纳米粒子构成的具有高阶拓扑局域态的二维晶格, 该结构可以利用 TPhPs 调控 SiC 纳米间的热辐射传热。利用电偶极子假设和涨落耗散理论分析了该晶格的能带结构, 计算了纳米粒子间的热辐射传热功率。结果表明, TPhPs 在纳米粒子间的热辐射换热过程中占有主导地位。相较于周期性排布的纳米粒子阵列而言, 本文所设计的晶格在面外极化模式下对粒子间热辐射传热具有增强作用, 而对面内极化模式下的热辐射传热则具有抑制作用, 这些发现对拓扑热辐射器件的理论设计和加工具有指导意义。

关键词: 2 维 SSH 模型, 多体体系传热, 拓扑声子极化激元, 热辐射传热调控

0 前言

作为一种新的物质态, 物质的拓扑态具有许多新奇的现象和特性, 一经发现和提出就引起了研究者们极大的研究兴趣。拓扑体系具有的重要特征就是其能够支持很强的局域态存在^[1], 即态密度分布在边界处远高于整体。依据拓扑理论的体边对应原则, 拓扑绝缘体能够实现整体绝缘而在低一个维度的边界处导通。除此之外, 近年来学者还发现了不服从传统体边对应原则的高阶拓扑态^[2], 即对于一个 n 阶 d 维的拓扑绝缘体中存在 $d-1, d-2, \dots, d-n-1$ 维的局域态。得益于拓扑保护机制, 这些特性能够在很大程度上免于无序或是缺陷的干扰, 具有较强的鲁棒性, 在各个领域都有广阔的应用前景。最早在电子领域研究广泛, 近年来不少研究者将拓扑绝缘体相关的概念和理论推广到热辐射领域^[3], 由于拓扑态所具备的高鲁棒性和高局域特性, 能够将电磁场局域在光子晶体的低维边界, 同时对缺陷和无序等加工误差的容忍程度更高, 这些有点使得拓扑态在热辐射传热调控^[4]、热辐射波谱特性调控^[5]、温度探测^[6]和热管理等领域表现出巨大的潜在应用价值。例如, Biehs 等人^[7]指出, 在由链式纳米粒子所构成的特定拓扑体系中, 拓扑态在端点处纳米粒子间的热辐射传热中占据主导作用; Wang 等人^[8]将 SiC 纳米粒子排布成 AAH 链, 利用拓扑态的局域作用实现了两端粒子间热辐射传热的增强。

然而, 现有研究中多数强调了拓扑态在热辐射传热中的增强作用, 而抑制作用却鲜

有提及或关注。此外，有关热辐射拓扑态的研究大多集中于一维结构，对于高阶拓扑态的关注较少。高阶拓扑结构中不仅存在着一维结构中的角模态，同时还有边模态的存在，这些拓扑边界态为粒子间热辐射传热提供了潜在的更为丰富的调控手段。本文提出了利用 SiC 球形纳米粒子来类比构建二维 Su–Schrieffer–Heeger (SSH) 拓扑体系，通过特定的结构排布和电偶极子假设以类比电子体系中的 SSH 模型，借助其所支持的高阶拓扑边界态，即能实现粒子间热辐射换热的增强，也能实现粒子间热辐射换热的抑制，对于元器件的热管理设计具有一定的指导作用。

1 模型介绍

1.1 二维 SSH 晶格结构及拓扑特性

二维 SSH 型晶格如图 1 (a) 所示，它可以通过方型晶格在 x 方向上设置粒子间距为交替的 d_x 和 $a_x - d_x$ ，同时在 y 方向上设置粒子间距为交替的 d_y 和 $a_y - d_y$ 以实现在两个方向上的二聚化。此时，图 1 (a) 中阴影区域即成为二维 SSH 晶格的一个超胞，每个超胞中含有 4 个 SiC 纳米粒子。元胞的具体几何结构参数如图 1 (b) 所示，定义两个方向上的二聚化参数为 $\beta_i = d_i/a_i$ ($i = x, y$)，当 $\beta_i < 0.5$ 时，在 i 方向上元胞内粒子的相互作用强于元胞间粒子的相互作用（图中红色虚线所示）；当 $\beta_i = 0.5$ 时，元胞内粒子的相互作用与元胞间粒子的相互作用相同，此时二维 SSH 晶格退化成为普通的方型晶格；当 $\beta_i > 0.5$ 时，元胞内粒子的相互作用强于元胞间粒子的相互作用（图中蓝色虚线所示意的晶格）。

由于元胞中含有四个纳米颗粒，晶格将会有四条能带。 β_i 从小于 0.5 到大于 0.5 变化的过程中，第一和第三条能带的本征模式的对称性将会发生反转，这表明随着 β 逐渐增大，能带汇聚到狄拉克点又重新打开的过程中，SSH 晶格发生了拓扑相变^[9]。二维 SSH 晶格的拓扑相图如图 1 (c) 所示，括号内的两个参数分别为两个方向上的 Zak 相位^[10]，当光子晶体的 Zak 相位不为零时，晶格将会在边界处产生高阶拓扑态，即二维结构中能够同时观察到边模式和角模式的存在。

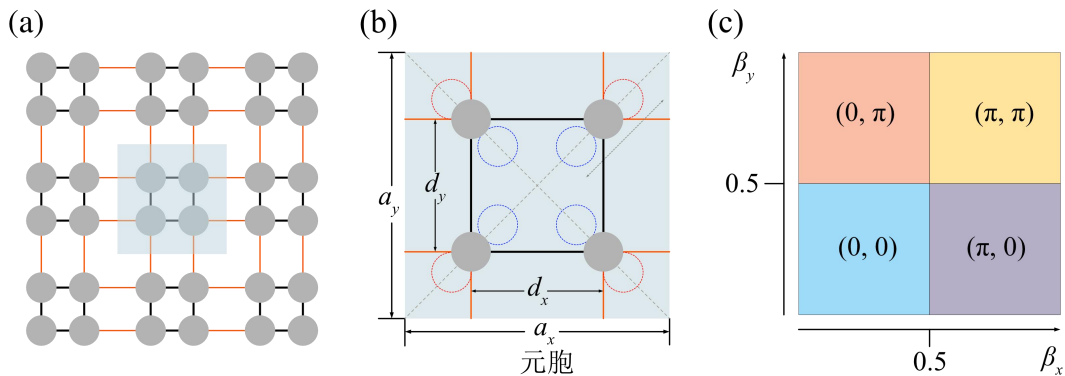


图 1 二维 SSH 模型及其拓扑特性 (a) 二维 SSH 模型纳米粒子晶格几何结构示意图 (b) 二维 SSH 纳米粒子晶格元胞示意图 (c) 二维 SSH 模型纳米粒子晶格在不同结构参数下的拓扑相图

1.2 电偶极子近似

SiC 在 11 μm 处会激发声子极化激元 (Phonon Polaritons, PhPs)，其介电常数可以通过 Drude-Lorentz 模型来描述：

$$\varepsilon_p(\omega) = \varepsilon_\infty \left(1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\omega\gamma} \right) \quad \#(1)$$

其中 ω 为角频率， $\varepsilon_\infty = 6.7$ 为高频极限， $\omega_T = 790 \text{ cm}^{-1}$ 为横光学频率， $\omega_L = 966 \text{ cm}^{-1}$ 为纵光学频率， $\gamma = 5 \text{ cm}^{-1}$ 为阻尼系数^[11]。本文中，SiC 纳米粒子的半径 r_{SiC} 处于纳米粒子共振波长的 1/10 数量级，且远小于热辐射特征波长，此时电偶极辐射占主导，因此可以近似认为每一个纳米粒子均为电偶极子，其电极化率可以表示为^[12]：

$$\alpha(\omega) = \frac{4\pi r_{\text{SiC}}^3 \alpha_0(\omega)}{1 - 2i\alpha_0(\omega)(k_0 r_{\text{SiC}})^3/3} \quad \#(2)$$

其中 $k_0 = \omega/c$ 为真空波数， $\alpha_0 = (\varepsilon_0 - 1)/(\varepsilon_0 + 2)$ ，为单个球形纳米粒子的极化率。

当相邻纳米粒子最近距离 d 大于粒子本身的特征长度时，纳米粒子阵列对外界激励电场的响应可以表示其对外加电场的相应和对晶格内其它偶极子所激发电场的相应，其具体形式为：

$$\mathbf{p}_j(\omega) = \alpha(\omega)\varepsilon_0 \left[\mathbf{E}_{\text{inc}}(\omega, \mathbf{r}_j) + \mu_0\omega^2 \sum_{i \neq j} \mathbf{G}_0(\omega, \mathbf{r}_j, \mathbf{r}_i) \mathbf{p}_i \right] \quad \#(3)$$

其中 ε_0, μ_0 分别为真空介电常数和真空磁导率， \mathbf{E}_{inc} 表示外界激励电场， $\mathbf{G}_0(\omega, \mathbf{r}_j, \mathbf{r}_i)$ 为自由空间并矢格林函数，其物理意义为 \mathbf{r}_i 处偶极子在 \mathbf{r}_j 处所产生的激励。式 (4) 即为耦合偶极子方程，当晶格不受外加电场驱动，即 $\mathbf{E}_{\text{inc}} = 0$ 时，上述方程退化成为一个特征值问题

$$\mathbf{M} |\mathbf{p}\rangle = \alpha^{-1} |\mathbf{p}\rangle \quad \#(4)$$

其中 $M_{ij, i \neq j} = \omega^2/c^2 \mathbf{G}_0(\mathbf{r}_j, \mathbf{r}_i) M_{ii} = 0$ 。所得到的一系列特征值的实部即为特征频率，虚部为阻尼系数，所对应的特征向量为特征模态。

由于拓扑边界态在晶格边界处表现出较强的局域特性，这里采用参与率倒数 (Inverse Participation Ratio, IPR) 作为特征模式局域程度的指标，IPR 的定义式为^[13]：

$$\text{IPR} = \frac{\sum_i^n |\mathbf{p}_i|^4}{\left(\sum_i^n |\mathbf{p}_i|^2 \right)^2} \quad \#(5)$$

从 IPR 的表达式可知 IPR 介于 n^{-1} 和 1 之间，IPR 接近于 1 时表明能量被完全局域在某一个粒子中；IPR 接近于 n^{-1} 表明能量均匀地分布在每一个粒子中；IPR 接近于 m^{-1} (m 为正整数) 时，表明晶格能量的局域程度和完全局域在 m 个粒子中的程度相当。值得注意的是，并非所有高 IPR 对应的特征模态都是拓扑非平庸的，例如安德森局域^[14]，它虽然具有很高的局域特性，但其拓扑特性却是平庸的。

1.3 粒子间辐射换热量的计算

对于自身温度大于绝对零度（0 K）的物体，它会因自身热涨落而发射电磁波。热涨落所引起的电、磁流具有随机性，但它们在不同位置 and 不同时刻激发的涨落电磁场是相关的，并且与物体自身的温度有关。

本文所设计的纳米粒子间换热采用涨落耗散理论进行计算，它的具体原则是将纳米粒子所等效的电偶极子看作是热涨落所引起的涨落偶极矩和电场诱导所引起的诱导偶极矩两部分组成，从而可以得到电场和涨落偶极矩之间的总体格林函数 $\mathbf{G} = \{\mathbf{G}^{ij, i \neq j}\}_{n \times n}$ 。

根据随机涨落电场之间的关联函数可以得到第 i 个纳米粒子到第 j 个纳米粒子之间的热辐射传输功率^[15]

$$\mathcal{P}_{i \rightarrow j} = 3 \int \frac{d\omega}{d\pi} \Theta(\omega, T_j) \mathcal{T}_{ij}(\omega) \quad (6)$$

其中 $\Theta(\omega, T_j)$ 为普朗克谐振子的能量， \hbar 为约化普朗克常数， k_b 为玻尔兹曼常数，

$$\mathcal{T}_{ij}(\omega) = \frac{4}{3} \left(\frac{\omega}{c} \right)^4 \chi_i \chi_j \text{Tr} [\mathbf{G}^{ij} \mathbf{G}^{ij\dagger}]$$

为传输因子其中 $\chi_i = \text{Im}(\alpha_i) - k_0^3 |\alpha|^2 / (6\pi)$ ， \mathbf{G}^{ij} 为分块矩阵中的项。

i 和 j 粒子之间的净换热功率为：

$$\mathcal{P}_{\text{net}}^{ij} = |\mathcal{P}_{i \rightarrow j} - \mathcal{P}_{j \rightarrow i}| \quad (7)$$

1.2 结构设计和局域态

图 2 (a) 给出了所设计的有限周期的拓扑非平庸结构的示意图，晶格的蓝色区域部分是 5×15 个 $\beta = 0.25$ 的拓扑平庸的二维 SSH 元胞，橙色部分是 5×15 个 $\beta = 0.75$ 的拓扑非平庸二维 SSH 元胞。

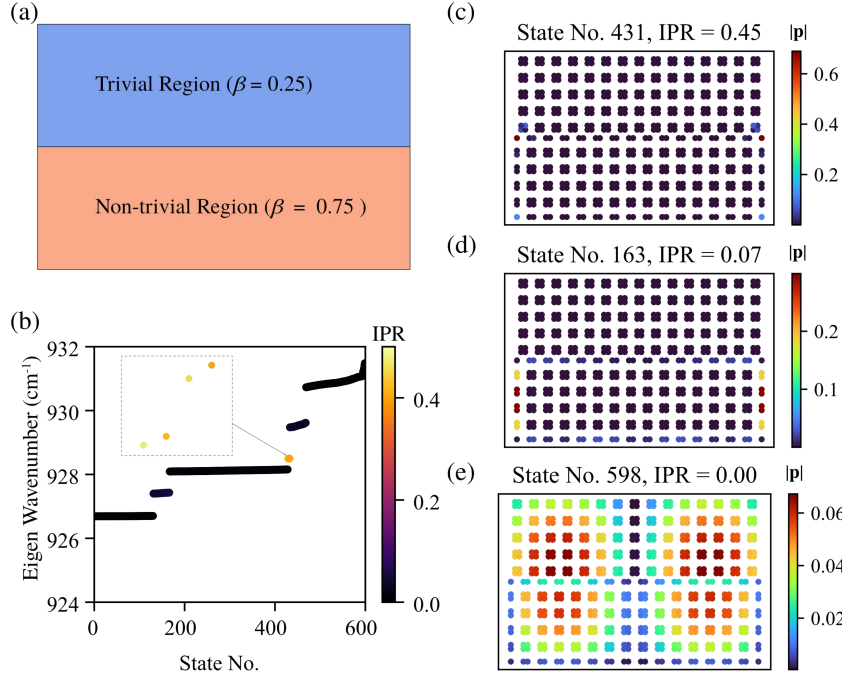


图2 有限周期的二维 SSH 晶格，(a) 几何结构示意图 (b) 拼接晶格的 OP 能带，子图为带隙中的角态 (c) 拼接晶格的体态 (d) 拼接晶格的边界态 (e) 拼接晶格的角态

图2 (b) 绘制了晶格在垂直平面方向上极化 (Out-of-plane mode, OP 模式) 的能带结构, OP 模式只有z方向一个方向上的极化, 因此本征模的个数和纳米粒子的总个数一致。将本征频率实部按照从小到达的顺序绘制在坐标轴上, 颜色对应于 IPR 的大小。OP 模式下的位于 $928.15 \sim 928.5 \text{ cm}^{-1}$ 处带隙内的第 429-432 号本征模具有高局域态特征, 其 $IPR \sim 1/2$, 这意味这偶极矩主要分布在某两个纳米粒子处, 图2 (c) 绘制了第 431 号本征模的归一化偶极矩分布, 图中可见能量被局域在拼接晶格的界面拓扑非平庸一侧的两端点粒子处, 即二维 SSH 晶格对应的高阶拓扑态, 可以预见局部场增强的作用下, 两端点纳米粒子间的热辐射换热势必会得到增强。位于 $926.7 \sim 928.1 \text{ cm}^{-1}$ 处带隙的本征模 $IPR \sim 1/20$, 对应图2 (d) 的归一化偶极矩分布, 图2 (e) 展示了体模式下的归一化偶极矩分布, $IPR \sim 0$, 能量近乎均匀地分布在每一个偶极子中, 且分布表现出较强的对称性。

2 粒子间热辐射传热

根据涨落耗散定理可以计算二维 SSH 纳米粒子间的热辐射传热, 本文关注图3 (a) 所示的晶格拼接处靠近拓扑非平庸一侧的两纳米粒子间热辐射传热。假定左侧粒子的温度为 310 K, 其余纳米粒子的温度均保持在 300 K, 采用式 (6) 可以计算得到两粒子间的热辐射传热谱功率。为了分析 TPhPs 对热辐射的调控作用, 本文还同时计算了 $\beta_{x,y} = 0.5$ 参数下的拓扑非平庸晶格在相同位置的两纳米粒子间的热辐射传热。图3 (a-c) 分别绘制了 OP 模式对热辐射传热的贡献、面内极化 (In-plane, IP) 模式对热辐射传热的贡献以及总的热辐射传热谱功率。

从图3 (a) 中, OP 模式下拼接晶格中纳米粒子间热辐射换热的谱功率最大值为

$7.726 \times 10^{-22} \text{ W}\cdot\text{cm}$ ，而拓扑平庸晶格纳米粒子间热辐射传热的谱功率最大值为 $6.968 \times 10^{-22} \text{ W}\cdot\text{cm}$ ，从最大值来看采用拓扑非平庸的二维 SSH 晶格和拓扑平庸的二维 SSH 晶格相拼接的形式相较于 $\beta = 0.5$ 下的常规二维 SSH 晶格有了 29% 的提升；两种晶格在 OP 模式下热辐射换热的总功率分别为 $3.14 \times 10^{-19} \text{ W}$ 和 $2.83 \times 10^{-19} \text{ W}$ ，二者相比也有 10.6% 的增强。同时图中注意到，两种晶格热辐射传热功率谱所处的峰值波数位置不同，拼接晶格的峰值波数为 928.34 cm^{-1} ，而常规晶格的峰值波数为 928.74 cm^{-1} ，拼接晶格的峰值波数和拓扑边界态所处的本征波数十分接近，这表明在 OP 模式下拓扑声子极化激元在粒子间热辐射传热中起到了增强作用。

图 3 (b) 绘制了 IP 模式对热辐射传热的贡献，显然 IP 模式下常规晶格的传热功率更大，这是由于 IP 模式的格林函数中缺少 $1/r$ 项而致使 TPhP 不能被远距离传播。此外，IP 模式下的非平庸晶格中，TPhP 的存在还在一定程度上一致了热辐射通过体态传播。综合上述两点原因，在面内模式下拓扑非平庸晶格中的传热相较于平庸晶格表现为抑制作用。图 3 (c) 绘制了拼接晶格和常规晶格的总辐射传热功率。拼接晶格的粒子间换热功率为 $8.85 \times 10^{-20} \text{ W}$ ，常规晶格的总辐射传热功率为 $9.10 \times 10^{-20} \text{ W}$ ，总辐射功率约有 2.7% 的下降。

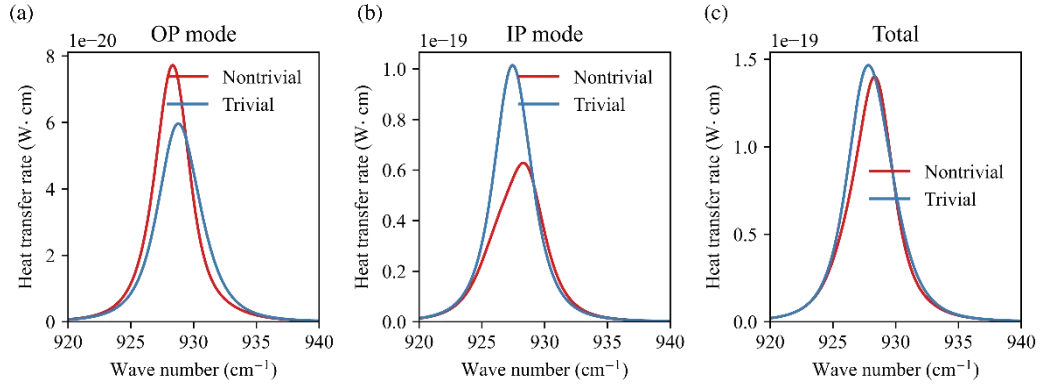


图 3 拼接晶格和拓扑平庸晶格的热辐射传热谱功率 (a) OP 模式下的热辐射传热谱功率 (b) IP 模式下的热辐射传热谱功率 (c) 总传热谱功率

由于 SiC 材料的 $\gamma = 5 \text{ cm}^{-1}$ ，远远大于带隙本身的波数宽度，因此在功率谱中无法区分各个模态的贡献，为了进一步探究拓扑边界态在纳米粒子间传热所起到的作用，本文人为将 SiC 的阻尼系数设为 $\gamma = 1 \text{ cm}^{-1}$ 。所计算得到的结果如图 4 所示，从左至右分别为 OP 模式、IP 模式以及总的粒子间传热谱功率。图 4 (a) 可以看到热辐射传输功率得到了明显的增强，拼接晶格的辐射总功率为常规晶格的 4.1 倍，同时峰值波数和拓扑角态所在的波数一致，这更加印证了在 OP 模式下 TPhPs 对热辐射的增强作用。

图 4 (b) 中可以看到相比于常规晶格，拼接晶格的热辐射传热仍表现出抑制特性。与此同时，从拼接晶格功率谱的峰值波数来看，最高谱功率峰值出现的波数位置为 928.54 cm^{-1} ，这与 IP 能带中角态所对应的特征波数是一致的，从而可以判断在 IP 模式下，TPhPs 对热辐射的贡献仍然占据主导作用。

图 4 (c) 绘制了粒子间总的热辐射传热功率, 结果表明在此情况下 OP 模式对传热占主导, TPhPs 在 OP 模式下对的增强大于在 IP 模式下的抑制, 拼接晶格相较于常规晶格在热辐射传热功率上有 22.7%的提升。

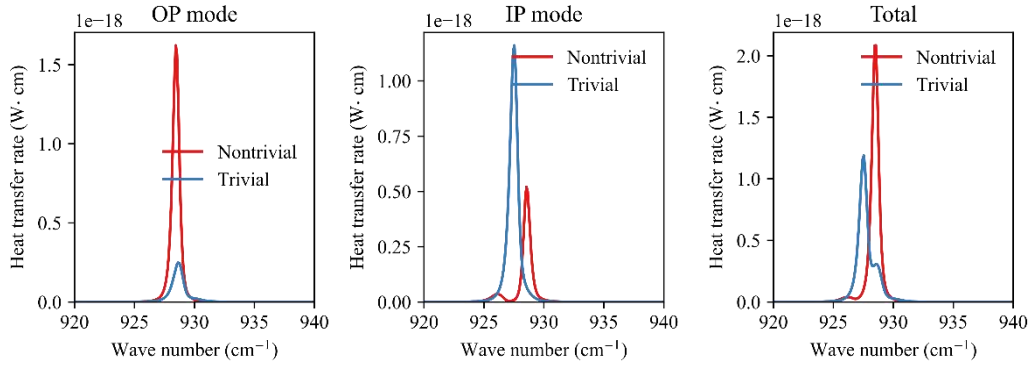


图 4 人为设定低阻尼系数下的拼接晶格和拓扑平庸晶格的热辐射传热谱功率 (a) OP 模式下的热辐射传热谱功率 (b) IP 模式下的热辐射传热谱功率 (c) 总传热谱功率

4 结 论

本文基于二维 SSH 模型, 设计了一种 SiC 纳米粒子颗粒所组成的拓扑非平庸的二维 SSH 晶格和拓扑平庸的二维 SSH 晶格相拼接的晶格, 提出利用二维 SSH 模型中的高阶拓扑保护态来调控 SiC 纳米粒子间的热辐射传热。通过对晶格能带拓扑特性和高阶拓扑本征模的理论计算, 证实了所设计的拼接晶格确实存在高阶拓扑边缘态, 同时表现出较强的局域效果。利用涨落耗散理论和耦合偶极子方程分析了纳米粒子间的热辐射换热。计算结果表明, 在拼接晶格中, 高阶拓扑态对粒子间的热辐射传输起主导作用, 同时对于 OP 模式, TPhPs 能够增强粒子间换热, 而对于 IP 模式, TPhPs 则会抑制纳米粒子间的热辐射换热。该研究在红外信号处理、热辐射传热调控等领域具有潜在应用价值, 对拓扑热辐射器件的理论设计和加工具有指导意义。

参考文献

- [1] Hasan M Z, Kane C L. Colloquium: topological insulators[J]. Reviews of modern physics, 2010, 82(4): 3045.
- [2] Kim M, Jacob Z, Rho J. Recent advances in 2D, 3D and higher-order topological photonics[J]. Light: Science & Applications, 2020, 9(1): 130.
- [3] Biehs S A, Ben-Abdallah P. Heat transfer mediated by the Berry phase in nonreciprocal many-body systems[J]. Physical Review B, 2022, 106(23): 235412.
- [4] Ott A, Biehs S A. Radiative heat flux through a topological Su-Schrieffer-Heeger chain of plasmonic nanoparticles[J]. Physical Review B, 2020, 102(11): 115417.
- [5] Xiao M, Zhang Z Q, Chan C T. Surface impedance and bulk band geometric phases in one-dimensional

- systems[J]. Physical Review X, 2014, 4(2): 021017.
- [6] Wang B X, Zhao C Y. Terahertz topological plasmon polaritons for robust temperature sensing[J]. Physical Review Materials, 2020, 4(7): 075201.
 - [7] Ott A, An Z, Kittel A, et al. Thermal near-field energy density and LDOS in topological 1D SSH chains and 2D SSH lattices of plasmonic nanoparticles[J]. arXiv preprint arXiv:2109.03073, 2021.
 - [8] Wang B X, Zhao C Y. Topological phonon polariton enhanced radiative heat transfer in bichromatic nanoparticle arrays mimicking Aubry-André-Harper model[J]. Physical Review B, 2023, 107(12): 125409.
 - [9] Wang B X, Zhao C Y. High-order topological quantum optics in ultracold atomic metasurfaces[J]. arXiv preprint arXiv:2108.01509, 2021.
 - [10] Chen Y, Lin Z K, Chen H, et al. Plasmon-polaritonic quadrupole topological insulators[J]. Physical Review B, 2020, 101(4): 041109.
 - [11] Wheeler M S, Aitchison J S, Chen J I L, et al. Infrared magnetic response in a random silicon carbide micropowder[J]. Physical Review B, 2009, 79(7): 073103.
 - [12] Tervo E, Zhang Z, Cola B. Collective near-field thermal emission from polaritonic nanoparticle arrays[J]. Physical Review Materials, 2017, 1(1): 015201.
 - [13] Wang B X, Zhao C Y. Interferences and localization in disordered media with anisotropic structural correlations[J]. Journal of Applied Physics, 2021, 130(13): 133101.
 - [14] Wang R, Röntgen M, Morfonios C V, et al. Edge modes of scattering chains with aperiodic order[J]. Optics Letters, 2018, 43(9): 1986-1989.
 - [15] Ben-Abdallah P, Biehs S A, Joulain K. Many-body radiative heat transfer theory[J]. Physical review letters, 2011, 107(11): 114301.

基于 Powell 方法的半透明介质光学参数重建研究

常忠浩, 孙双成*

(重庆大学能源与动力工程学院, 重庆 400044)

(Tel: 023-65103512, Email: scsun@cqu.edu.cn)

摘要: 本文采用 Powell 方法对半透明介质的光学参数进行重建。首先建立了基于时域信息的光学参数重建模型, 并采用离散坐标法求解辐射传输方程; 然后介绍了 Powell 方法的基本原理; 最后利用边界的出射辐射强度建立目标函数, 采用 Powell 方法同时重建了半透明介质的吸收系数和散射系数, 并且研究了测量误差对重建结果的影响。计算结果表明 Powell 方法可以精确的同时重建介质的吸收和散射系数, 当测量误差增加到 15% 时, Powell 方法仍然可以较为精确的重建出吸收和散射系数的数值。

关键词: 辐射反问题; Powell 方法; 辐射传输方程; 光学参数重建;

0 前言

半透明介质广泛存在于各种工业领域中, 如生物组织, 燃烧火焰和陶瓷材料等^[1,2]都属于半透明介质。半透明介质的光学参数可以用来分析和优化光子的传输过程, 但是在一般情况下, 无法直接测量介质内部的光学参数, 而介质边界的出射辐射强度是可以直接测量的。所以在分析介质边界出射信号中光子携带的介质内部信息的同时, 利用最优化方法重建介质内部的光学参数场, 可以得到其内部结构的图像, 而且还可以实现内部结构的无损检测。综上所述, 光学参数重建是一种有效的探测方法, 应用于许多实际工程领域, 如光学成像, 荧光成像, 无损测量和红外遥感等^[3-6]领域。

光学参数重建可以归结为是一类辐射反问题, 目前求解辐射反问题的方法主要分为梯度类优化方法和智能优化算法。在智能优化算法的应用中, Qi 和 Ruan 等^[7]利用微粒群算法反演了吸收系数、散射系数、衰减系数、辐射源项等。Zhang 等^[8]利用蚁群优化算法研究了一维瞬态辐射传输反问题, 并提出了三种改进的蚁群优化算法, 提高了半透明介质光学厚度和散射反照率的反演精度和计算效率。Stephany 等^[9]将蚁群优化算法和 Levenberg-Marquardt 方法结合反演了空间分布的一维各向同性散射介质的散射反照率。智能优化算法具有模型简单等优点, 但是其容易陷入局部最优值并且需要花费较长的计算时间。

在梯度类方法的应用中, A. Dehghanian 等^[10]利用共轭梯度法与获得敏感系数的直接技术来估计一维可变指数介质内吸收和散射系数的分布。Khayyam 和 Sarvari^[11]使用共轭梯度法同时反演了吸收系数、散射系数和散射相函数。Qiao 等^[12]采用离散坐标法求解时

域辐射传递方程，采用伴随差分法求解目标函数关于吸收系数和散射系数的梯度分布，利用重启动共轭梯度法重建了各向同性散射和各向异性散射半透明介质内的光学参数场。梯度类优化方法具有迭代次数少和计算结果稳定等优点，但是对计算初值的依赖性强，并且求解梯度的过程较为复杂。

Powell 优化算法^[13]是 Powell 提出的一种不需要计算目标函数的导数而直接使用目标函数值的直接解法。该方法不需要对目标函数求导，即进行复杂的梯度计算，从而节省了计算资源，并且在目标函数不连续的时候也可以使用。其搜索方向采用共轭方向，能够在较少的迭代步之后达到收敛，可以有效的改善如智能算法一样容易陷入局部最优解的情形。利用 Powell 方法求解辐射反问题的研究还未见报道。

本文采用 Powell 方法对半透明介质的光学参数进行重建。首先建立了基于时域信息的光学参数重建模型，并采用离散坐标法求解辐射传输方程。然后利用边界的出射辐射强度建立目标函数，采用 Powell 方法同时重建了半透明介质的吸收系数和散射系数，并且研究了测量误差对重建结果的影响。

1 正问题模型

假设介质内部温度为 0 K，忽略介质的自身发射。当准直激光入射半透明介质如图 1 所示，可以用时域辐射传输方程描述激光在介质内部的传输过程^[14]：

$$\frac{n}{c} \frac{\partial I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t)}{\partial t} + \frac{\partial I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t)}{\partial s} = -\beta_c I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) + \frac{\kappa_s}{4\pi} \int_{4\pi} I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}', t) \Phi(\boldsymbol{\Omega}', \boldsymbol{\Omega}) d\boldsymbol{\Omega}' \quad (1)$$

式中， n 表示介质折射率； c 表示光速； I 表示辐射强度； \mathbf{r} 和 t 分别表示空间位置和时间； β_c 表示衰减系数， $\beta_c = \kappa_a + \kappa_s$ ； κ_a 和 κ_s 表示吸收和散射系数； $\boldsymbol{\Omega}$ 和 $\boldsymbol{\Omega}'$ 表示散射方向和入射方向。

$$\Phi(\boldsymbol{\Omega}', \boldsymbol{\Omega}) = \frac{1 - g^2}{[1 + g^2 - 2g \cos(\boldsymbol{\Omega} - \boldsymbol{\Omega}')]^{3/2}} \quad (2)$$

式中， $\Phi(\boldsymbol{\Omega}', \boldsymbol{\Omega})$ 表示散射相函数，本文考虑 Henyey-Greenstein 散射相函数； g 表示散射不对称因子。

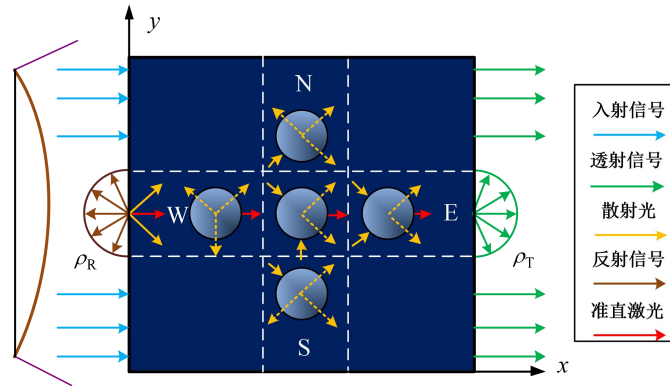


图 1 激光辐照下半透明介质辐射传输示意图

对于漫反射边界条件，辐射传输方程的边界条件可表示为：

$$I_w(\mathbf{\Omega}, t) = \varepsilon_w I_{b,w}(t) + \frac{1 - \varepsilon_w}{\pi} \int_{\mathbf{n}_w \cdot \mathbf{\Omega}' > 0} I_w(\mathbf{\Omega}', t) |\mathbf{n}_w \cdot \mathbf{\Omega}'| d\mathbf{\Omega}' \quad \mathbf{n}_w \cdot \mathbf{\Omega} < 0 \quad (3)$$

式中， ε_w 表示介质壁面的发射率； \mathbf{n}_w 表示壁面外法线方向的单位向量。

介质内部的辐射强度 I 包含平行光 I_c 和散射光 I_d ，介质内辐射强度可以写为

$$I(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) = I_c(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) + I_d(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) \quad (4)$$

其中，平行光的传输服从兰贝特定律，即：

$$\frac{n}{c} \frac{\partial I_c(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t)}{\partial t} + \frac{\partial I_c(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t)}{\partial s} = -\beta_e I_c(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) \quad (5)$$

将式(4)和式(5)带入式(1)可得：

$$\frac{n}{c} \frac{\partial I_d(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t)}{\partial t} + \frac{\partial I_d(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t)}{\partial s} = -\beta_e I_d(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) + S_{t,t}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) \quad (6)$$

$$S_{t,t}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) = S_{d,t}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) + S_{c,t}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) \quad (7)$$

式中， $S_{t,t}$ 表示扩散光和平行光产生的总源项； $S_{d,t}$ 和 $S_{c,t}$ 分别表示辐射传输模型中扩散光和平行光引起的辐射源项，可表示为：

$$S_{d,t}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) = \frac{\kappa_s}{4\pi} \int_{4\pi} I_d(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}', t) \Phi(\mathbf{\Omega}, \mathbf{\Omega}') d\mathbf{\Omega}' \quad (8)$$

$$S_{c,t}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) = \frac{\kappa_s}{4\pi} \int_{4\pi} I_c(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}', t) \Phi(\mathbf{\Omega}, \mathbf{\Omega}') d\mathbf{\Omega}' \quad (9)$$

当入射激光采用方波脉冲时，平行光的辐射强度为：

$$I_c(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t) = I_{in} \exp(-\beta_e s_0) \left[H(ct - s_0) - H(ct - ct_p - s_0) \right] \delta(\mathbf{\Omega} - \mathbf{\Omega}') \quad (10)$$

式中， t_p 为激光的脉冲宽度； s_0 为入射激光的传输距离； δ 和 H 表示 Dirac-Delta 函数和 Heaviside 函数； I_{in} 表示入射激光强度。

采用离散坐标法(Discrete Ordinate Method, DOM)对式(6)离散，可得：

$$\frac{n}{c} \frac{\partial I_{d,t,x,y}^m}{\partial t} + \xi^m \frac{\partial I_{d,t,x,y}^m}{\partial x} + \eta^m \frac{\partial I_{d,t,x,y}^m}{\partial y} = -\beta_e I_{d,t,x,y}^m + S_{t,t,x,y}^m \quad (11)$$

式中， $I_{d,t,x,y}^m$ 表示 t 时刻坐标 (x, y) 处第 m 个离散方向的扩散光辐射强度； ξ^m 和 η^m 表示 x

方向和 y 方向的方向余弦；对上式各微分项进行差分计算，并选用阶梯差分格式，可得：

$$I_{d,t,x,y}^m = \frac{A^m I_{d,t-\Delta t,x,y}^m + B^m I_{d,t,xu,y}^m + C^m I_{d,t,x,yu}^m + S_{t,t,x,y}^m}{A^m + B^m + C^m + \beta_e} \quad (12)$$

$$S_{t,t,x,y}^m = \frac{\kappa_s}{4\pi} \sum_{l=1}^{N\Omega} w^l I_{d,t,x,y}^l \Phi(\mathbf{\Omega}^m, \mathbf{\Omega}^l) + S_{c,t,x,y}^m \quad (13)$$

$$A^m = 1/(c\Delta t)$$

$$B^m = \xi^m / \Delta x$$

$$C^m = \eta^m / \Delta y$$

式中， w^l 表示第 l 个散射方向的权重； $N\Omega$ 表示离散立体角的总数；角标 xu 和 yu 表示 x 方向和 y 方向的上游位置，取值与辐射传输方向有关，可根据下式计算：

$$I_{d,t,xu,y}^m = \begin{cases} I_{d,t,x-\Delta x,y}^m & \xi^m > 0 \\ I_{d,t,x+\Delta x,y}^m & \xi^m < 0 \end{cases}$$

$$I_{d,t,x,yu}^m = \begin{cases} I_{d,t,x,y-\Delta y}^m & \eta^m > 0 \\ I_{d,t,x,y+\Delta y}^m & \eta^m < 0 \end{cases} \quad (14)$$

半透明介质边界处的出射辐射强度可以通过求解得到的平行光和扩散光的辐射强度求得，可表示为：

$$E(\mathbf{r}, t) = \int_{\Omega \cdot \mathbf{n} > 0} I(\mathbf{r}, \Omega, t) \Omega \cdot \mathbf{n} d\Omega \quad (15)$$

2 Powell 算法

Powell 优化算法是 Powell 于 1964 年提出的一种不需要计算目标函数的导数而直接使用目标函数值的直接解法。在 Powell 算法中，首先采用坐标轴方向作为第一轮搜索方向进行一维搜索迭代。然后将第一轮迭代的初始点与最末一个极小值点连接构成新的方向，以该新的方向作为最末一个方向，淘汰第一个方向，从而得到下一轮迭代的 n 个搜索方向。依此下去，直至逼近极值点。如果直接将新的方向替换旧的方向，那么随着迭代次数的增加，搜索方向可能趋于线性相关，这将导致新的方向组共轭方向个数减小，从而使迭代运算退化到一个较低维空间中进行，因此无法得到真正的极值点。为了避免这种情况的发生，在公式(21)和(22)中建立了一个判断条件，以确定是否需要在阶段结束后更换搜索方向以及应该替换上一个阶段中的哪一个方向，尽可能的避免搜索方向线性相关。该算法的步骤如下：

首先根据正问题求解得到的边界测量信号，建立如下目标函数

$$F(\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \sum_d \sum_n \left[\frac{M_d^n - E_d^n(\mathbf{x})}{M_d^n} \right]^2 \quad (16)$$

式中， \mathbf{x} 表示待重建的光学参数； M_d^n 和 $E_d^n(\mathbf{x})$ 分别表示真实光学参数对应的边界测量信号和反演得到的光学参数对应的边界测量信号；上角标 n 表示时层数量；下角标 d 表示第 d 个信号探测器。

步骤一： 给定初值 $\mathbf{x}^{(0)}$ ；设置初始迭代次数 $k=1$ ，误差精度 $\varepsilon=0.001$ ；设置 n 个线性无关的单位坐标向量作为初始搜索方向如公式(17)所示。

$$\mathbf{d} = [\mathbf{d}_1^T, \mathbf{d}_2^T, \dots, \mathbf{d}_n^T] = \begin{bmatrix} 1 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & 1 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & 1 \end{bmatrix} \quad (17)$$

步骤二： 计算目标函数 $F_0 = F(\mathbf{x}^{(0)})$ ；依次按照公式(18)沿方向 \mathbf{d}_k 作一维搜索求出步

长 α_{k-1} ，得到更新后的迭代点 $\mathbf{x}^{(k)} = \mathbf{x}^{(k-1)} + \alpha_{k-1} \mathbf{d}_k$ 和此迭代点对应的目标函数

$$F_k = F(\mathbf{x}^{(k)}).$$

$$F(\mathbf{x}^{(k-1)} + \alpha_{k-1} \mathbf{d}_k) = \min F(\mathbf{x}^{(k-1)} + \alpha \mathbf{d}_k) \quad (18)$$

步骤三：如果 $k = n$ ，则转到步骤四；若 $k < n$ ，则令 $k = k + 1$ ，转到步骤二。

步骤四：如果满足公式(19)的条件，则停止计算并输出 $\mathbf{x}^* = \mathbf{x}^{(n)}$ ；否则，转到步骤五。

$$\begin{cases} |F_n - F_0| \leq \varepsilon \\ F_n \leq \varepsilon \end{cases} \quad (19)$$

步骤五：令最大下降量 Δ 满足公式(20)；获得映射点以及映射点的目标函数

$$F^* = F(2\mathbf{x}^{(n)} - \mathbf{x}^{(0)}).$$

$$\Delta = \max_{\substack{0 \leq k \leq n-1 \\ 0 \leq m \leq n-1}} (F_k - F_{k+1}) = F_m - F_{m+1} \quad (20)$$

步骤六：如果满足公式(21)和公式(22)的条件，则搜索方向 \mathbf{d} 不变，当 $F(\mathbf{x}^{(n)}) < F^*$ 时，

$$\text{令 } \mathbf{x}^{(0)} = \mathbf{x}^{(n)}, F_0 = F(\mathbf{x}^{(n)}), \text{ 当 } F(\mathbf{x}^{(n)}) \geq F^* \text{ 时, 令 } \mathbf{x}^{(0)} = 2\mathbf{x}^{(n)} - \mathbf{x}^{(0)}, F_0 = F^*, \text{ 令 } k = 1,$$

转步骤二；否则，转步骤七。

$$F^* \geq F_0 \quad (21)$$

$$(F_0 + F^* - 2F_n)(F_0 - F_n - \Delta)^2 \geq \frac{\Delta}{2}(F_0 - F^*)^2 \quad (22)$$

步骤七：根据公式(23)更新搜索方向 \mathbf{d} 。

$$\begin{aligned} \mathbf{d}_k &= \mathbf{d}_k \quad (k = 1, 2, \dots, m) \\ \mathbf{d}_k &= \mathbf{d}_{k+1} \quad (k = m + 1, \dots, n - 1) \\ \mathbf{d}_n &= \mathbf{x}^{(n)} - \mathbf{x}^{(0)} \end{aligned} \quad (23)$$

步骤八：一维搜索求 $\bar{\alpha}$ 满足公式(24)，令 $\mathbf{x}^{(0)} = \mathbf{x}^{(n)} + \bar{\alpha} \mathbf{d}_n$ ， $F_0 = F(\mathbf{x}^{(0)})$ ， $k = 1$ ，转

步骤二。

$$F(\mathbf{x}^{(n)} + \bar{\alpha} \mathbf{d}_n) = \min F(\mathbf{x}^{(n)} + \alpha \mathbf{d}_n) \quad (24)$$

Powell 算法的计算流程如图 2 所示。

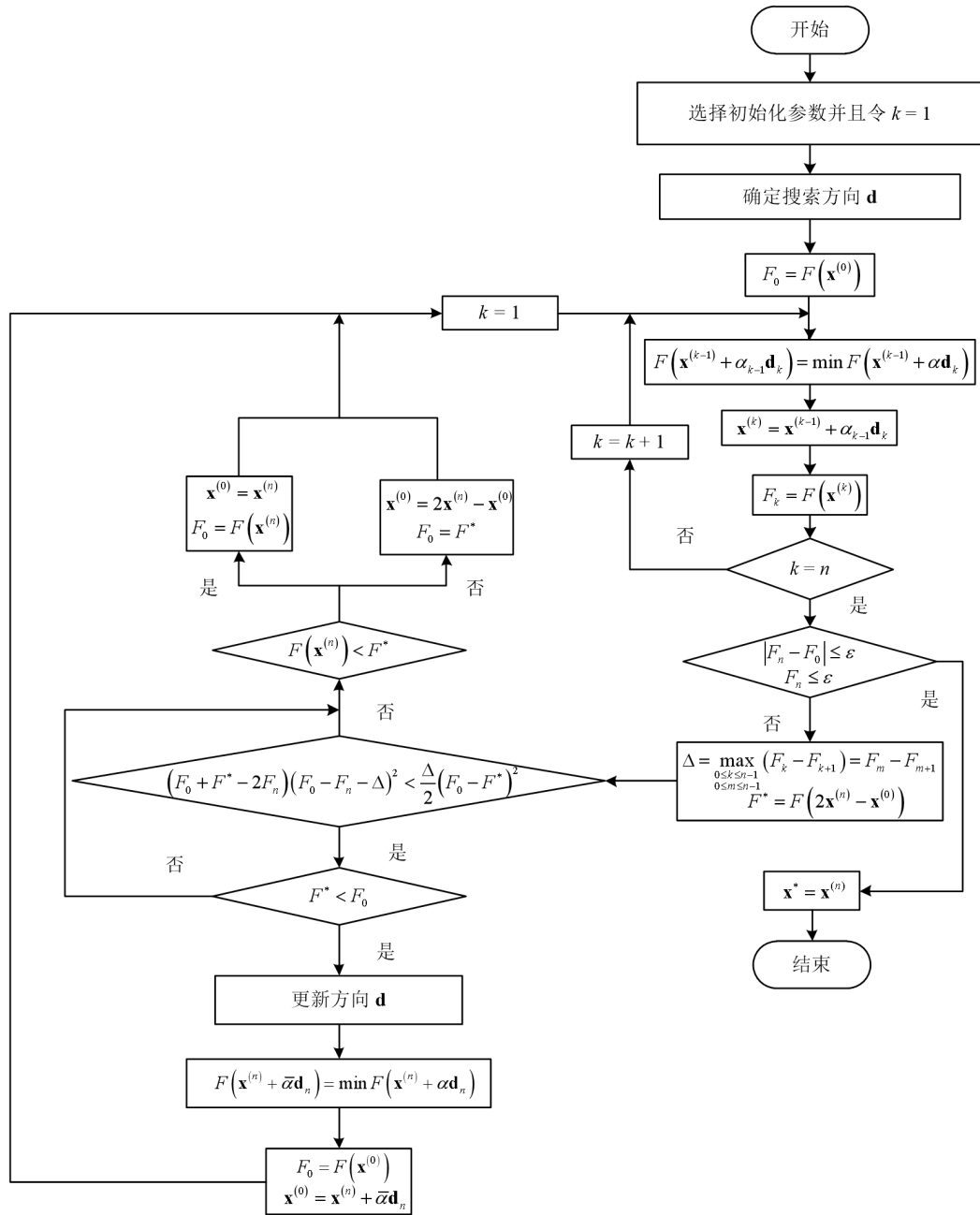


图 2 Powell 方法的计算流程图

3 半透明介质光学参数重建

3.1 时域信息重建模型

激光作用下基于时域信息的半透明介质光学参数重建模型如图 3 所示。对于一些工程材料，其内部的物性分布较为均匀，并且在工况变化不大的情况下可认为其内部光学参数分布是均匀的，所以本研究采用内部光学参数分布均匀的介质作为研究对象。介质尺寸为 $4 \times 4 \text{cm}^2$ ，激光从介质左侧边界点垂直入射，介质左边界和右边界均匀布置 8 个

探测器。计算区域网格划分为 21×21 ，立体角离散为 24 个方向，脉冲宽度设置为 $t_p = 0.1\text{ns}$ ，探测时间为 0.5ns ，离散为 150 个时层。计算机配置信息为 Intel Core i5-8400 CPU。

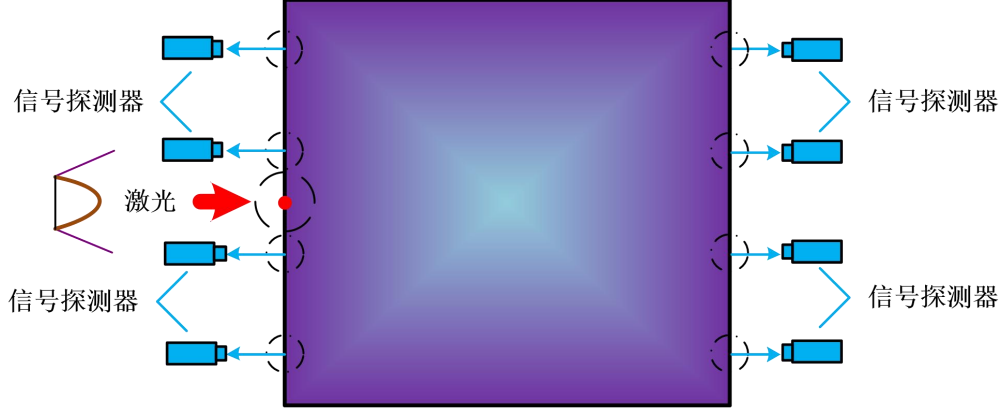


图 3 时域信息重建模型示意图

为了衡量光学参数重建的精度，引入如下相对误差：

$$\varepsilon_{\text{rel}} = \frac{|x_{\text{est}} - x_{\text{exa}}|}{x_{\text{exa}}} \times 100\% \quad (25)$$

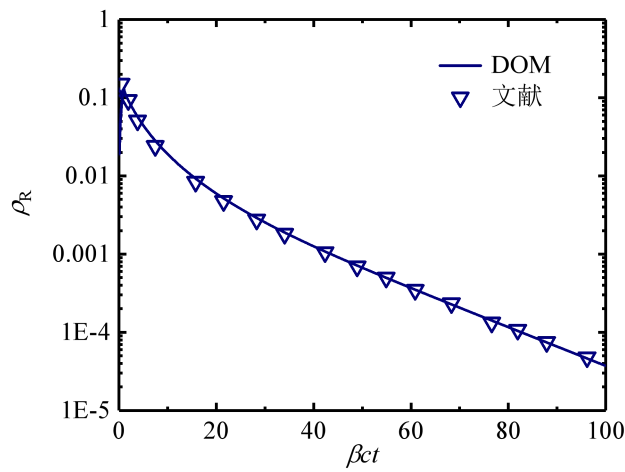
式中， x_{est} 和 x_{exa} 表示反演得到的光学参数值和真实的光学参数值。

3.2 正问题验证

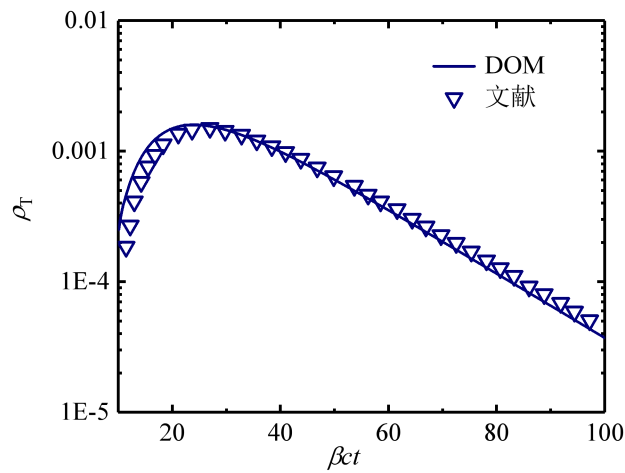
在进行光学参数重建之前，首先应确保时域信息重建计算模型的可靠性，即正问题准确性验证。半透明介质的参数设置与文献^[15]相同，如表 1 所示。采用离散坐标法^[16]求解时域辐射传输方程，本文计算结果与文献结果对比，如图 4 所示。从中可以看出，本文模拟结果与文献吻合良好，证明了正问题计算模型的可靠性。

表 1 时域信息重建模型验证参数设置

参数	单位	值
$N_x \times N_y$	—	41×41
κ_a	m^{-1}	0.002
κ_s	m^{-1}	9.998
ct_p	m	0.1
$c\Delta t$	m	0.01
L_x	m	1.0
L_y	m	1.0
$N\Omega$	—	80
g	—	0.0



(a)左壁面反射信号



(b)右壁面透射信号

图 4 二维时域辐射传输求解模型验证

3.3 时域信息重建模型光学参数重建结果

半透明介质的吸收和散射等光学参数代表了介质对入射激光的吸收和散射能力，并且对光子在介质中的传输有着重要的影响。因此，重建介质的光学参数是光学成像的基础。表 2 是研究均匀光学参数重建选取的四个算例。

表 2 均匀光学参数重建参数设置

参数	单位	算例 1	算例 2	算例 3	算例 4
κ_a	cm^{-1}	0.5	0.1	0.01	0.005
κ_s	cm^{-1}	1.0	0.5	0.5	1.0
g	—	0.8	0.9	0.8	0.9

首先运用 Powell 方法分别对四个算例的吸收系数和散射系数进行重建，重建结果如

表 3 和表 4 所示, 吸收系数和散射系数分别得到了精确的重建, 表明 Powell 方法具有较强的单参数反演能力。

表 3 吸收系数重建结果

参数	算例 1		算例 2		算例 3		算例 4	
	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$
κ_a	0.49997	0.0060	0.09994	0.0600	0.01000	0.0000	0.0050	0.0000

表 4 散射系数重建结果

参数	算例 1		算例 2		算例 3		算例 4	
	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$
κ_s	1.00025	0.0250	0.49990	0.0200	0.49997	0.0060	1.00029	0.0290

进一步运用 Powell 方法对吸收和散射系数进行同时重建, 重建结果如表 5 所示。四个算例的目标函数都较快的收敛到了设定的收敛精度如图 5 所示。从重建结果可以看出吸收散射相当介质(算例 1 和算例 2)的光学参数得到了精确的重建。但是有许多介质在近红外波段呈现较强的散射特性, 本研究设置了两个强散射性介质(算例 3 和算例 4)作为算例, 对强散射性介质同时进行重建。从重建结果可以看出当散射吸收比达到 200 时仍然可以精确的同时重建吸收和散射系数, 证明 Powell 方法可以适用于强散射性介质的光学参数重建。同时其中有一些介质例如生物组织对近红外光呈现出很强的向前散射特性($g = 0.8$ 和 $g = 0.9$), 由散射相函数定义可知, 散射因子 g 越大, 向前散射越明显, 作为主要测量信号的反射信号就会减弱, 会对光学参数重建造成一定的阻碍。但是从重建结果可以看出, 强向前散射介质的参数重建结果的相对误差仍然较小, 证明 Powell 方法可以适用于强向前散射介质的光学参数重建。

表 5 吸收和散射系数同时重建结果

参数	算例 1		算例 2		算例 3		算例 4	
	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$
κ_a	0.49998	0.0040	0.09999	0.0100	0.01000	0.0000	0.00500	0.0000
κ_s	0.99992	0.0080	0.49995	0.0100	0.49999	0.0020	1.00002	0.0020

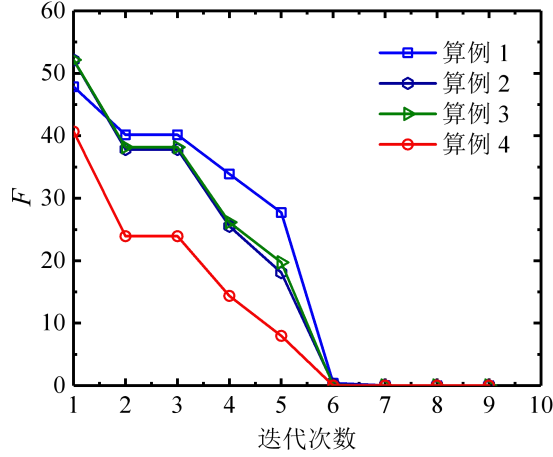


图 5 目标函数的收敛曲线

考虑到实际测量过程中测量误差是无法避免的，添加如下随机测量误差到测量信号中：

$$M_{\text{mea}} = M_{\text{exa}} + \sigma\zeta \quad (26)$$

式中， ζ 表示期望值为 0、标准差为 1 的正态分布随机数； σ 表示标准差。当测量误差为 $\gamma\%$ 时，99%置信度区间内的标准差定义为：

$$\sigma = \frac{M_{\text{exa}} \times \gamma\%}{2.576} \quad (27)$$

算例 1 作为研究测量误差对重建结果影响的研究对象。随着测量误差的增加，吸收系数和散射系数的重建误差随之增大如表 6 所示。当测量误差增加到 15% 时，Powell 方法仍然可以准确的重建得到重建结果，吸收和散射系数的相对误差仅为 1.9740% 和 0.2770%，证明重建模型具有较强的鲁棒性。

表 6 不同测量误差下吸收系数和散射系数同时重建结果

参数	$\gamma = 0\%$		$\gamma = 5\%$		$\gamma = 10\%$		$\gamma = 15\%$	
	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$	x_{est}	$\varepsilon_{\text{rel}} [\%]$
κ_a	0.49998	0.0040	0.50321	0.6420	0.50650	1.3000	0.50987	1.9740
κ_s	0.99992	0.0080	1.00110	0.1100	1.00201	0.2010	1.00277	0.2770

4 结论

本文采用 Powell 算法重建了均匀半透明介质的吸收和散射系数。采用离散坐标法求解了辐射传输方程，使用得到的边界出射辐射强度建立目标函数，并采用 Powell 方法对光学参数进行重建，最后研究了测量误差对重建结果的影响。主要得出以下结论：

(1) Powell 方法可以准确的同时重建半透明介质的吸收和散射系数。

(2) 即使存在测量误差，Powell 方法仍然可以准确的得到重建结果，证明 Powell 方法的鲁棒性强。

参考文献

- [1] Liu D, Yan J H, Wang F, et al. Experimental reconstructions of flame temperature distributions in laboratory-scale and large-scale pulverized-coal fired furnaces by inverse radiation analysis. *Fuel*, 2012, 93(1): 397-403.
- [2] Ruan C, Yu T, Chen F E, et al. Experimental characterization of the spatiotemporal dynamics of a turbulent flame in a gas turbine model combustor using computed tomography of chemiluminescence. *Energy*, 2019, 170: 744-51.
- [3] Chrobak L, Malinski M. On Investigations of the Optical Absorption Coefficient of Gold and Germanium Implanted Silicon with the Use of the Non-destructive Contactless Photo Thermal Infrared Radiometry. *Journal of Electronic Materials*, 2019, 48(8): 5273-8.
- [4] Gaggioli E L, Bruno O R. Parallel inverse-problem solver for time-domain optical tomography with perfect parallel scaling. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2022, 290.
- [5] Guo Y L, Huang C C, Li Y M, et al. Hyperspectral reconstruction method for optically complex inland waters based on bio-optical model and sparse representing. *Remote Sensing of Environment*, 2022, 276.
- [6] Qiao Y B, Qi H, Ren Y T, et al. Application of SQP algorithm for fluorescence tomography with the time-domain equation of radiative transfer. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2017, 193: 21-30.
- [7] Qi H, Ruan L M, Zhang H C, et al. Inverse radiation analysis of a one-dimensional participating slab by stochastic particle swarm optimizer algorithm. *International Journal of Thermal Sciences*, 2007, 46(7): 649-61.
- [8] Zhang B, Qi H, Ren Y T, et al. Inverse transient radiation analysis in one-dimensional participating slab using improved Ant Colony Optimization algorithms. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2014, 133: 351-63.
- [9] Stephany S, Becceneri J C, Souto R P, et al. A pre-regularization scheme for the reconstruction of a spatial dependent scattering albedo using a hybrid ant colony optimization implementation. *Applied Mathematical Modelling*, 2010, 34(3): 561-72.
- [10] Dehghanian A, Sarvari S M H. Reconstruction of Absorption and Scattering Coefficients in a One-Dimensional Parallel Plane Variable Index Media. *Iranian Journal of Science and Technology-Transactions of Mechanical Engineering*.
- [11] Khayyam S, Sarvari S M H. Inverse Estimation of Thermal Properties in a Semitransparent Graded Index Medium With Radiation-Conduction Heat Transfer. *Journal of Heat Transfer-Transactions of the Asme*, 2018, 140(9).
- [12] Qiao Y B, Qi H, Chen Q, et al. Multi-start iterative reconstruction of the radiative parameter distributions in participating media based on the transient radiative transfer equation. *Optics Communications*, 2015, 351: 75-84.
- [13] Powell M J. A new algorithm for unconstrained optimization [M]. *Nonlinear programming*. Elsevier. 1970: 31-65.
- [14] Sun S C, Qi H, An X Y, et al. Non-destructive testing of ceramic materials using mid-infrared

ultrashort-pulse laser. *Applied Physics B-Lasers and Optics*, 2018, 124(4).

- [15] Sakami M, Mitra K, Hsu P F. Analysis of light pulse transport through two-dimensional scattering and absorbing media. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2002, 73(2-5): 169-79.
- [16] Mishra S C, Chugh P, Kumar P, et al. Development and comparison of the DTM, the DOM and the FVM formulations for the short-pulse laser transport through a participating medium. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2006, 49(11-12): 1820-32.

基于 VO₂ 的金字塔结构热致发射率 可调性能分析

孙一帆, 裴俊*, 陶正巍, 岳童童, 赵军明

哈尔滨工业大学能源科学与工程学院空天热物理工信部重点实验室, 黑龙江哈尔滨 150001

Tel: 0451-86412138, Email: qiujuan@hit.edu.cn

摘要: 航天器智能热控制系统需要具有较好的发射率调制性能($\Delta\epsilon$)。本文提出一种基于 VO₂ 的金字塔结构薄膜。利用 FDTD 软件进行仿真计算, 探究该结构的发射率调控性能以及金字塔结构二面角 β 和 VO₂ 厚度 δ 对发射率调控性能 $\Delta\epsilon$ 的影响。基于 MP 共振理论, 该结构在高温 373K 下具有较高发射率, 在 300K 与 373K 之间具有较大的发射率变化量, $\Delta\epsilon$ 高达 0.7; 通过改变结构参数, 高温发射率可达到 $\epsilon_H=0.962$ 。本文提出的薄膜结构具有优异的发射率调制性能, 适用于航天器的热控应用。

关键词: 发射率调控; 二氧化钒; 金字塔结构

0 引言

航天器电子设备为保证正常运行并维持较长寿命, 需要将工作温度限制在一定温度区间内, 但由于太阳辐射强度、太阳辐射角度及内部热负荷的动态变化, 航天器热控制系统需要对热环境进行瞬态响应。相比于主动热控制系统, 智能热控制系统具有成本低、重量轻、体积小、稳定可靠等优点, 使其成为目前航天器热控制的关键一环^[1]。智能热控制系统通过调节散热器发射率实现温度调控, 当系统温度高于理想温度时, 提高发射率, 向外辐射能量, 实现降温目的; 当系统温度低于理想温度时, 降低发射率, 减少能量辐射, 以保持系统温度, 可调性能通常用发射率变化量 $\Delta\epsilon=\epsilon_{\text{hot}}-\epsilon_{\text{cold}}$ 表征。

基于相变材料的热致变色薄膜具有高低温发射率切换性能, 可以为航天器提供有效的热控制。二氧化钒(VO₂)具有很好的热致变色特性, 是作为智能热控制系统的理想材料, 受到各国学者广泛关注。二氧化钒(VO₂)相变温度为 340K 左右, 相变温度前后, VO₂ 具有绝缘态($T<340\text{K}$)到金属态($T>340\text{K}$)的转变过程。在低温状态下, 二氧化钒对红外辐射高透明, 高温状态时, 对红外辐射高反射。根据上述二氧化钒光学特性, 诸多学者基于二氧化钒(VO₂)提出多层薄膜结构, Wang^[2]制备了 Ag/AlO₃/VO₂ 多层结构, 研究了 VO₂ 厚度对器件性能的影响, 该多层薄膜在 5-15 μm 红外波段发射率调制达到 0.53。Heungsoo Kim 通过仿真和实验的方法研究了 Si/VO₂/BaF₂/Au 多层结构, 通过实验测量得到, 该结构在 300K 与 373K 的发射率变化量 $\Delta\epsilon$ 为 0.47, 半球发射率变化量为 $\Delta\epsilon_{\text{hemis}}$ 为 0.35^[3]。Zengyan Du 制备了 Ag/SiO₂/VO₂ 三层薄膜, 该结构在 293K 时红外发射率为 0.07, 在 353K 时具有 0.59 的高红外发射率, 其变化值 $\Delta\epsilon=0.52$ ^[4]。相比于多层薄膜设计, 基于二氧化钒的微结构设计研究较少。Kai Sun 等人提出一种图案化的 VO₂ 元表面设计, 该结构由后向反射器、SiO₂ 间隔层、VO₂ 元表面组成, 研究了 VO₂ 元表面在不同特征尺寸、相邻元表面间隙尺寸下, 太阳吸收率和发射率调控范围 $\Delta\epsilon$ 的变化, 得出结论, 与相对应的薄膜相比, 这种微结构降低了太阳吸收率, 提高了发射率可调性, $\Delta\epsilon$ 为 0.48^[5]。Matthew J.Dicken 分别在 VO₂ 表面上制备了 Ag 谐振环及在基底上制备了 VO₂/Ag 双层谐振环, 研究了该结构在高低温下的共振性能变化^[6]。

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(52076062), 中央高校基本科研业务费专项资金资助(项目编号: 2023FRFK06007)

随着技术发展，制造纳米级锥体微结构技术趋于成熟，多种微金字塔结构薄膜已经被研究。在本次工作中，将二氧化钒(VO_2)与微金字塔结构结合，应用 FDTD 软件进行数值模拟计算，探究 $\text{BaF}_2/\text{VO}_2/\text{Si}/\text{Al}$ 组成的金字塔薄膜结构在红外波段 ($2\text{-}25\mu\text{m}$) 的发射率调制性能，探究二倍角 β 及二氧化钒(VO_2)厚度对结构发射率调制性能的影响。

1 物理模型

所研究的微金字塔结构是基于一维光栅的叠加思想。在这项工作中，与 $\text{BaF}_2/\text{VO}_2/\text{Si}/\text{Al}$ 多层薄膜相对应，以二氧化钒 (VO_2) 为金字塔结构的外壳，硅 (Si) 作为内部介质材料，铝 (Al) 为基底，外部空间填充氟化钡 (BaF_2)，如图 1 所示。内部金字塔底部边长以 l_x 、 l_y 表示，外部金字塔底部边长以 L_x 、 L_y 表示，在本次工作中，考虑结构对称性，即 $L_x=L_y, l_x=l_y$ ， β 为倾斜面与底面的二面角， δ 为 VO_2 薄膜厚度， h 为 Al 基底厚度^[7]。

由于结构对称性，采用 TM 极化波与 TE 极化波计算结果相同。在本工作中，FDTD 仿真采用 TM 极化波正入射，仿真区域上下边界为完全匹配层(PML)边界条件，其他边界采用周期性(Periodic)边界条件。

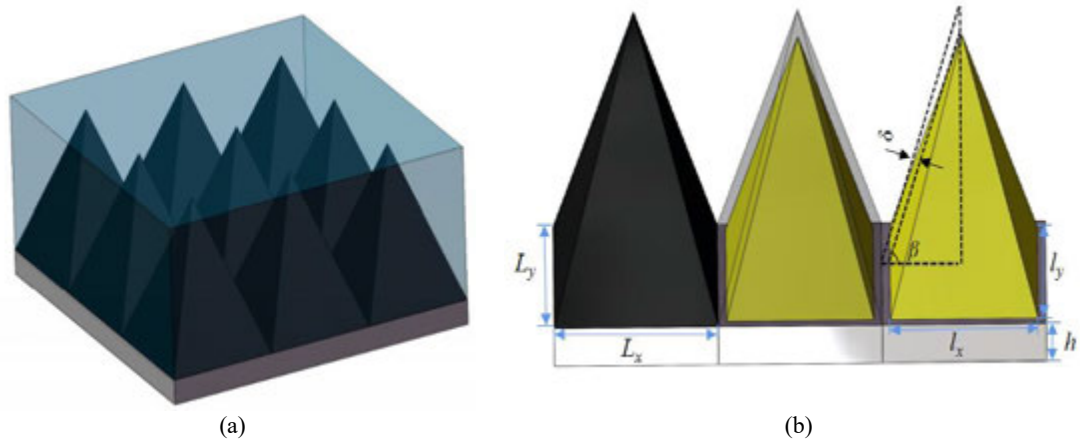


图 1 金字塔微结构示意图

2 结果与讨论

2.1 VO_2 微金字塔结构薄膜发射率调制性能

首先研究了 VO_2 微金字塔结构薄膜在 $2\text{-}25\mu\text{m}$ 波段的光学性能。金字塔底部边长 $L_x=L_y=2\mu\text{m}$ ， VO_2 薄膜厚度 δ 为 28nm ，二面角 β 为 80° ，基底厚度 h 为 $0.5\mu\text{m}$ 。利用时域有限差分法(FDTD)计算薄膜的光谱反射率 $R(\lambda)$ 和光谱透射率 $T(\lambda)$ ，根据 $\alpha(\lambda)=1-R(\lambda)-T(\lambda)$ 关系得到光谱吸收率，由于基底厚度足够大，光谱透射率可忽略不计，则 $\alpha(\lambda)=1-R(\lambda)$ 。二氧化钒相变温度在 340K 左右，因此仿真温度分别选择为 300K 和 373K ，计算结果如图 2 所示。

图中黑色虚线为当前温度下黑体辐射能量分布，如图 2(a)所示，当温度为 300K 时，黑体辐射能量分布区域较为广泛，在 $5\text{-}25\mu\text{m}$ 波段分布。当温度为 373K 时，如图 2(b)，黑体辐射能量主要集中在 $2\text{-}15\mu\text{m}$ 范围内。

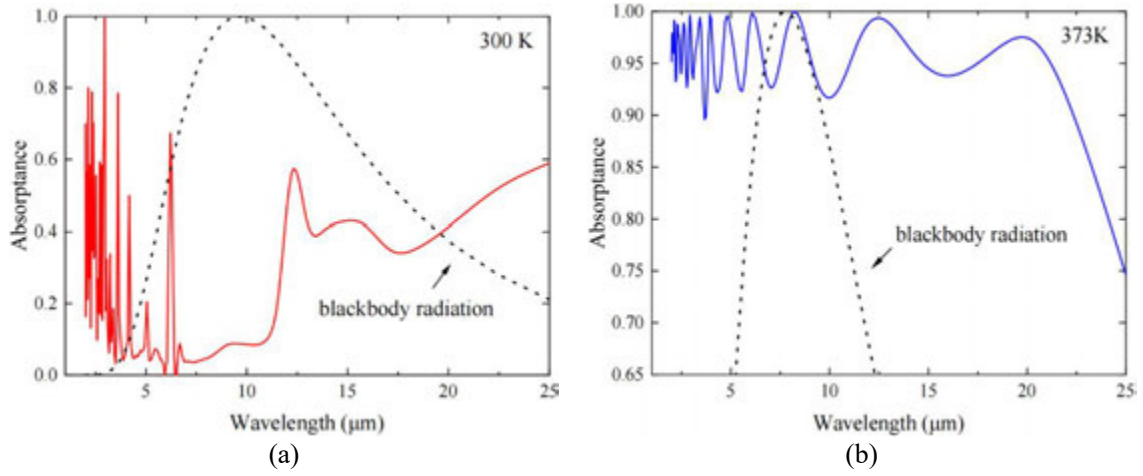


图2 VO₂微金字塔结构薄膜在(a) 300K 和 (b) 373K 温度下的光谱吸收率

从图中可见,在短波长范围内,光谱吸收率随波长变化剧烈,波长大于 10μm 后,变化较为缓和。在 300K 温度下,VO₂ 处于绝缘态,外层 BaF₂ 及 VO₂ 对中红外波段具有高透过性, Si 在 1-7μm 及远红外波段同样具有高透过性,在中红外波段略有吸收,此时,该薄膜类似于镜面反射器,大多数光线被 Al 基底反射,使具有较低的光谱吸收率。温度升高至 373K 后,VO₂ 转变为金属态,形成一个金字塔状吸收器,由图 2(b)可见,波段 2-25μm 内的光谱吸收率高于 90%,在整个研究波段都具有较强吸收。

根据基尔霍夫定律,光谱发射率 ϵ_λ 等于光谱吸收率 α_λ ,积分发射率 ϵ 可由下列式子计算:

$$\epsilon = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} (1 - R(\lambda, T)) M(\lambda, T) d\lambda}{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} M(\lambda, T) d\lambda} \quad (1)$$

其中, $R(\lambda, T)$ 为温度 T 时的光谱反射率, $M(\lambda, T)$ 为温度 T 时的对应波长的黑体辐射能,由普朗克函数给出。在 300K 温度下,该结构的积分发射率 ϵ_L 为 0.275,在 373K 时,积分发射率 ϵ_H 为 0.954,因此该结构在 300K 和 373K 温度下的中红外波段发射率变化 $\Delta\epsilon=0.68$ 。

2.2 高温下 VO₂ 微金字塔结构薄膜吸收机理

本节探究该结构的吸收机理。上述结构在波长 $\lambda=2.3$ 、4.8、8.4、17.1、25μm 的 TM 波正入射下,结构中心界面的电磁场分布图如图 3 所示。该结构可看作是不同栅距的一维(1D)光栅的叠加^[7],如图 3(a),红色箭头为电流密度矢量方向,当受到变化电磁场的作用,在金字塔内部形成多个闭环感应电流,这些感应电流又会产生新的磁场,与入射的电磁波产生强烈的耦合作用,将电磁能限制在中介介质区域内,如图 3(a)中黑色圆圈所示,结构内部出现磁环陷阱,形成 MP 共振吸收,相邻金字塔单元区域也会形成共振吸收。图 3 中可见,当波长较小时,该结构对电磁波的吸收分成多个区域,随着波长的增加,MP 共振区数量减少,并且共振区域面积增加。从图 3 的(d)(e)中可见,当波长进一步增加,金字塔内部吸收电磁波的能力减弱,磁场更多地集中在两个相邻金字塔中间区域的底部。不同波长在金字塔内部吸收位置不同,这可以通过一维光栅的吸收原理来解释。从图 2 和图 3 可以看出,当波长较大时,没有明显的 MP 共振区域,结构对电磁波的吸收能力下降,但从图 2 可以看出,辐射能量主要集中在小于 20μm 波长内,因此对较大波长吸收能力的下降对整体发射率可调性能的影响并不太大,当温度更高时,辐射能量峰值左移,长波段的影响将会更小。

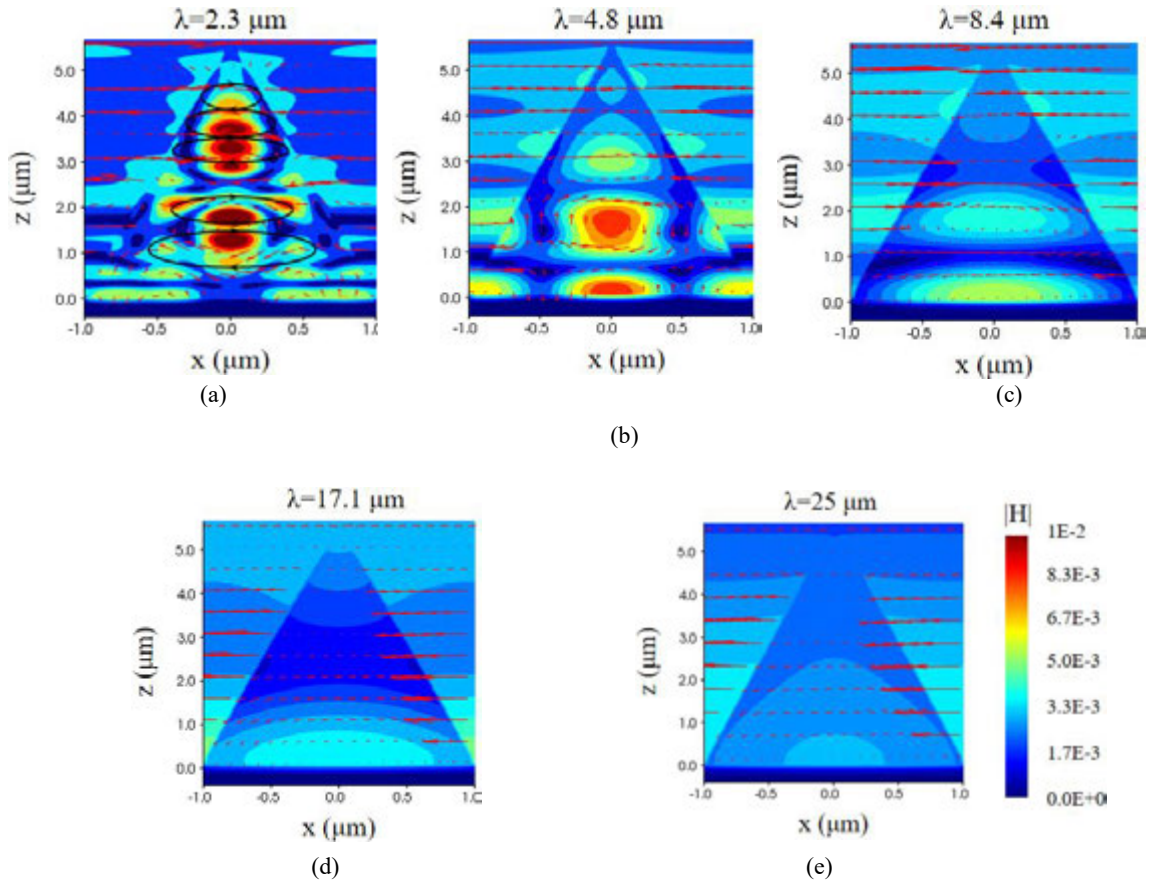


图3 各波长下，结构中心面电磁场分布图

2.3 二面角 β 和 VO_2 厚度对发射率可调性能的影响

在此之前，我们以某一尺寸的金字塔结构为案例，研究了该尺寸下结构的发射率调制性能，阐述了吸收机理，但对于微结构设计，尺寸的变化将会影响对电磁波的吸收性能。因此，本小节探究了金字塔侧壁与底面间的二面角 β 及 VO_2 厚度变化对发射率调制性能的影响。

对于 2.1 小节中的结构，保持其他结构参数不变，二面角 β 分别为 80° 、 70° 、 60° 、 50° ，低温 300K 和高温 373K 下，光谱吸收率如图 4 所示。图 4(a)(b)分别给出了 300K 温度下，波长 2-2.5 μm 和 4.5-25 μm 范围的光谱吸收率，随着二面角 β 增加，该结构在整个波段的吸收率增加，当波长大于 11 μm 时，光谱吸收率增加更加明显。如图 4(a)所示，随着二面角 β 的增加，光谱吸收峰发生红移，这种现象在图 4(b)中 12 μm 处也能够体现出来。当温度处于 373K 时，从图 4(c)中可以看出，随着二面角 β 增加，短波段的吸收效果先减弱后增强，而对较长波段的吸收效果随着二面角 β 增加逐渐增强。在图 4(d)中，分别给出了高低温下积分发射率 ε_L 、 ε_H 随 β 的变化情况。当 β 增大时，300K 和 373K 时的发射率都随之增加，当 β 为 80° 时，结构的高温发射率可以达到 0.954，当 β 为 50° 时，结构的低温发射率可以低至 0.053。但是，发射率变化量 $\Delta\varepsilon$ 并不随着 β 单调变化，正如图中所示，在二面角 β 为 70° 时， $\Delta\varepsilon$ 最大，此时 $\Delta\varepsilon=0.70$ ， $\varepsilon_L=0.168$ ， $\varepsilon_H=0.866$ 。当 β 在其他角度下，也具有较好的发射率可调性能，在 β 等于 50° 、 60° 、 80° 时， $\Delta\varepsilon$ 分别为 0.54、0.66、0.68。

当结构的二面角增加时，金字塔结构高度也会增加，相当于更多不同宽度的一维光栅的叠加，因此高温和低温下的吸收性能随之增加，但高度增加也会带来加工制备的难度，因此根据加工条件及使用需求求选择相应的结构二面角 β 是有必要的。

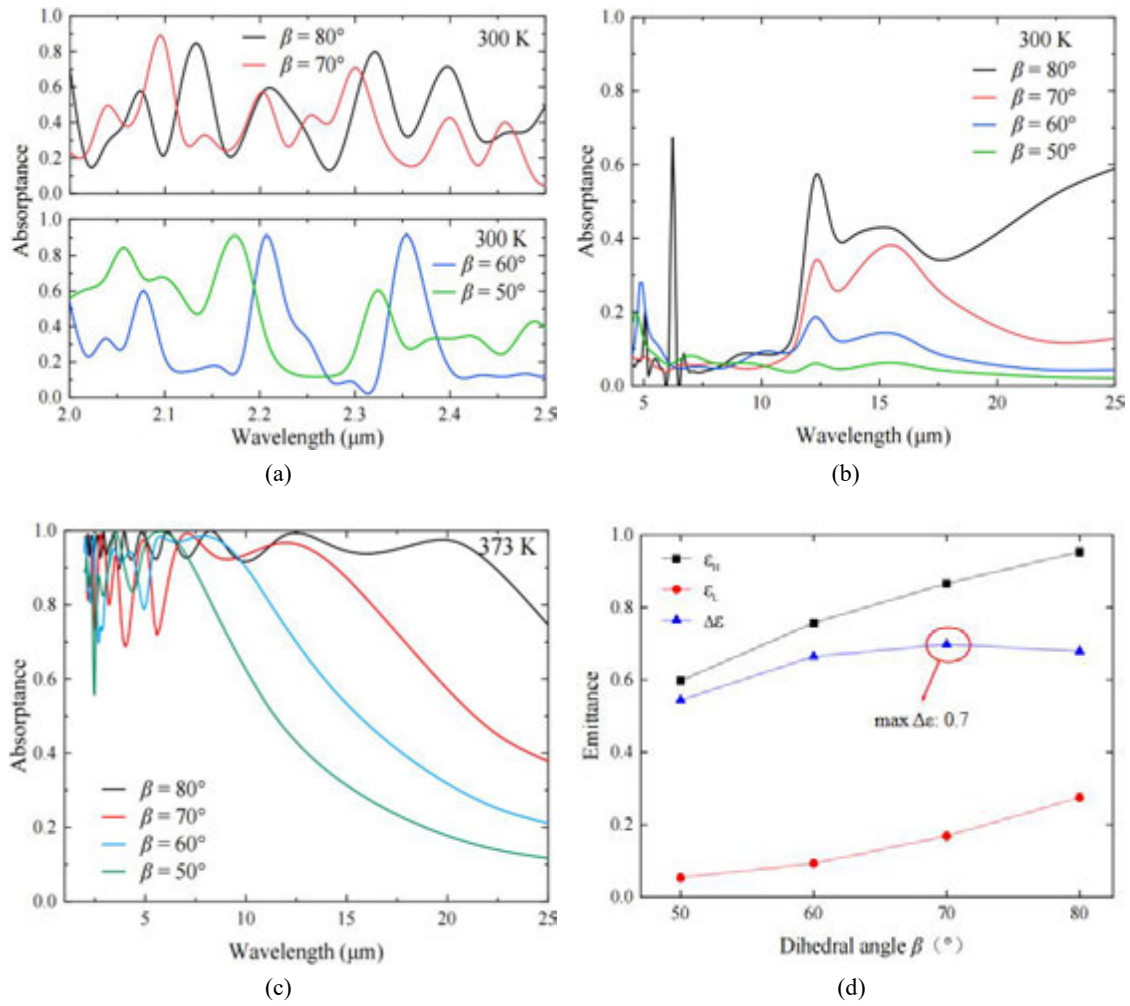


图4 二面角 β 对光谱吸收率和积分发射率的影响(a)300K 温度下, 2-2.5 μm 波段吸收光谱 (b)300K 温度下, 4.5-25 μm 波段吸收光谱 (c)373K 温度下, 2-25 μm 波段吸收光谱 (d)发射率随二面角 β 的变化情况

接下来改变 2.1 小节中二氧化钒(VO_2)厚度, 探究结构高低温发射率及发射率调控性能随 VO_2 厚度的变化情况。其他结构参数不变, 设置 VO_2 厚度 δ 分别为 28nm、48nm、68nm、88nm, 图 5 给出了相应的光谱吸收率及积分发射率曲线图。图 5(a)(b)中可见, 在 300K 时, 结构的吸收强度随 VO_2 厚度变化较为明显, 光谱吸收率随厚度的增加而增加, 且光谱吸收率形状相似。二氧化钒厚度对其影响主要在大于 12 μm 的波段, 这与二氧化钒本身在 12 μm 后波段的消光系数 k 大幅提高有关, 因此厚度越大, 其 VO_2 自身对电磁波的吸收也会越大。而在 373K 时, 如图 5(c), VO_2 厚度改变对结构的吸收性能影响较小。高温下, 结构的积分发射率 ϵ_H 均大于 0.9, 当 δ 为 48nm 时, ϵ_H 最大, 此时 $\epsilon_H=0.962$ 。低温时, 结构的积分发射率 ϵ_L 随着 VO_2 厚度增加而增大, 如图 5(d)。随着 δ 增加, 发射率变化量 $\Delta\epsilon$ 逐渐下降, 当 δ 为 28nm 时, $\Delta\epsilon$ 最大为 0.68。与图 4 相比, 可见, 二面角 β 对高温发射率和低温发射率都具有一定影响, 而二氧化钒(VO_2)厚度对高温发射率的影响较小, 对低温发射率影响相对较大。

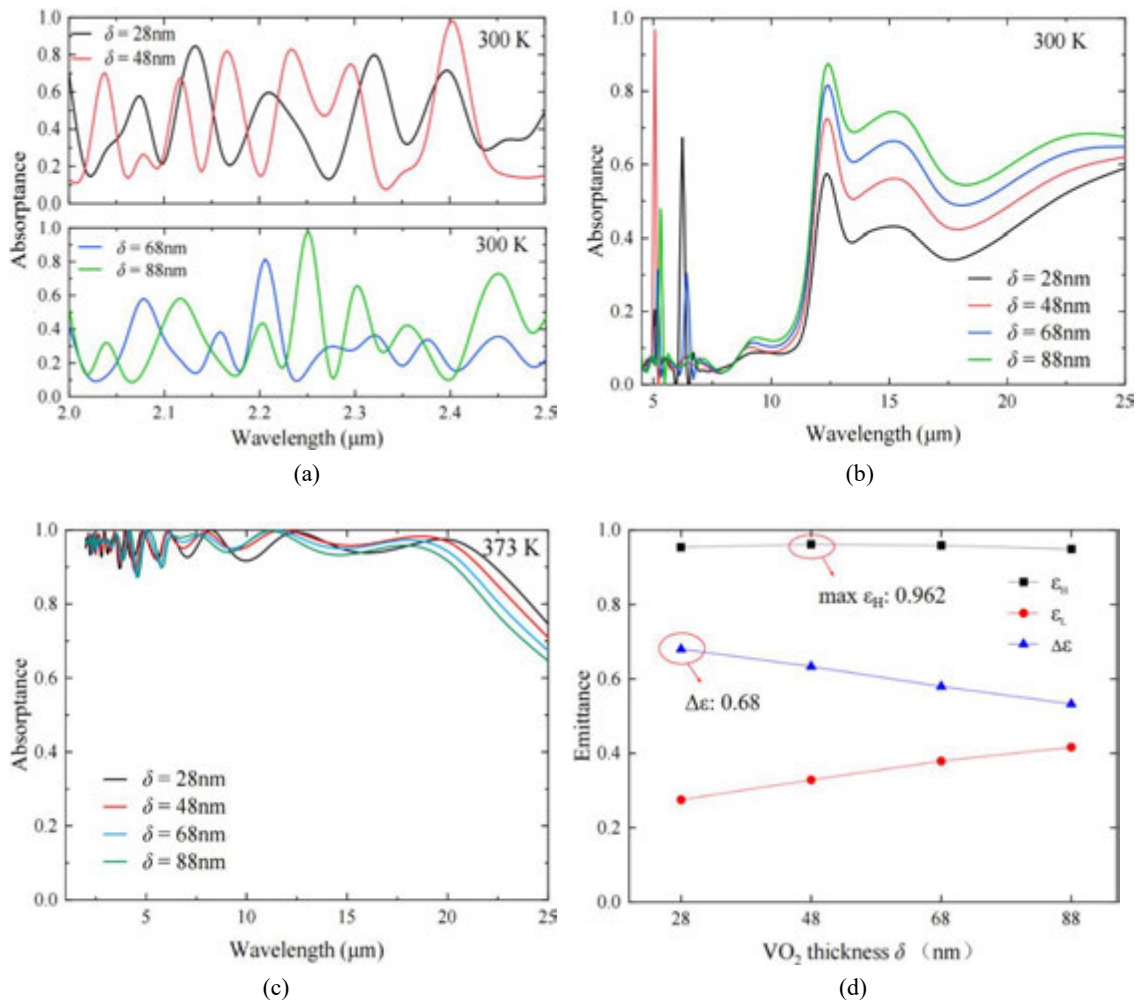


图5 VO₂厚度对光谱吸收率和积分发射率的影响(a)300K 温度下, 2-2.5μm 波段吸收光谱 (b)300K 温度下, 4.5-25μm 波段吸收光谱 (c)373K 温度下, 2-25μm 波段吸收光谱 (d)发射率随 VO₂厚度 δ 的变化情况

将本工作计算结果与国内外学者所提出薄膜结构的研究结果进行对比, 如图 6 所示。目前所研究的 VO₂ 薄膜大部分以多层结构为主, 且发射率变化量在 0.4 和 0.5 左右。通过一些技术手段可提高结构的发射率调制性能, 由 Au 衬底上的空心球形 VO₂ 粒子组成的方形晶格阵列超表面的发射率可调性能够达到 0.63^[10]; 以超低折射率材料 CaF₂ 作为谐振腔, 结构优化后的发射率可调性达到 0.66^[9]; 优化后的两层 VO₂ 和两层 ZnSe 相互叠加的多层器件, 发射率变化达到 0.69^[8]。

相比于文献给出的结果, 本工作得到的计算结果中, VO₂ 薄膜厚度 δ 为 28nm, 二面角 β 为 70°时, 最高发射率可调性达到 0.7。虽然文献[8]中结构具有 0.69 的发射率调控性能, 但是它的高温发射率 ϵ_{H} 仅为 0.772, 而本结构的高温发射率 ϵ_{H} 能够达到 0.866, 当结构二面角 80°, 二氧化钒厚度为 48nm 时, 高温发射率高达 0.962。本结构通过一维光栅的二维对应, 在高温条件下实现了宽带吸收, 使其具有较好的发射率可调性能及高温发射率, 结构性能较好, 为航天器热控提供了新思路。

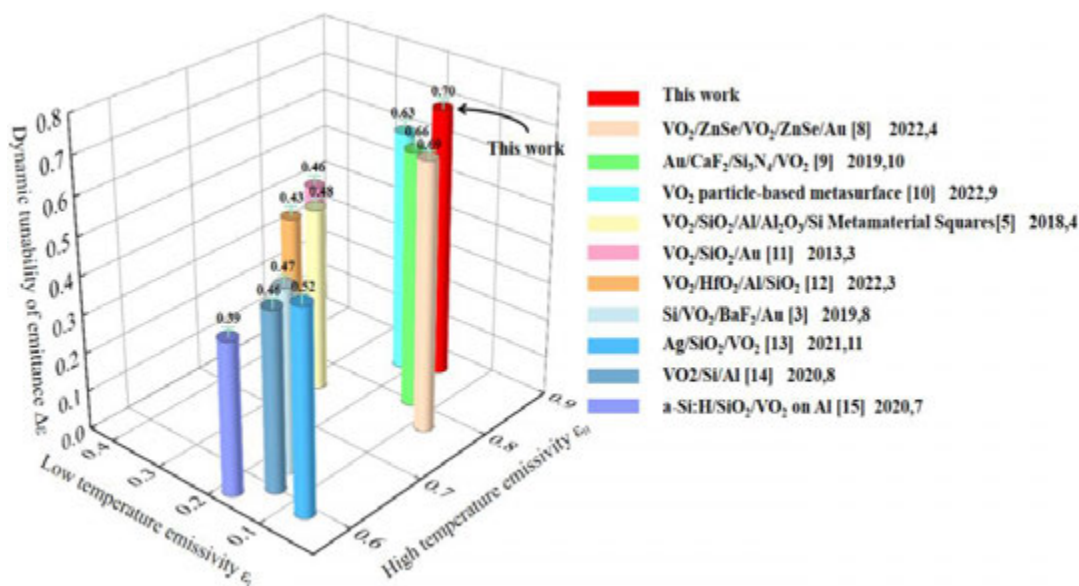


图6 低温发射率 ϵ_L ，高温发射率 ϵ_H 和发射率调控性能 $\Delta\epsilon$ 对比图

3 结 论

本文提出了一种基于二氧化钒(VO₂)的金字塔薄膜结构。利用时域有限差分法(FDTD)计算了该薄膜结构在 2-25 μm 光谱范围内的发射率。基于 MP 共振理论，在高温下，结构具有较高的吸收率。当二面角 β 增加时，发射率调制能力 $\Delta\epsilon$ 先增加后减小，而 $\Delta\epsilon$ 随着 VO₂ 厚度 δ 增加逐渐减小。总体上，该结构在 VO₂ 薄膜厚度 δ 为 28nm，二面角 β 为 70° 时，具有较高的发射率调制性能 $\Delta\epsilon=0.7$ ；当 δ 为 48nm，二面角 β 为 80° 时，结构的高温发射率可达到 $\epsilon_H=0.962$ 。通过与国内外学者所提出 VO₂ 薄膜结构的最新研究结果进行对比，本文提出的薄膜结构具有更为优异的发射率调制性能，适用于航天器的热控制应用。

参考文献

- [1] Tachikawa S, Nagano H, Ohnishi A, et al. Advanced Passive Thermal Control Materials and Devices for Spacecraft: A Review. International Journal of Thermophysics, 2022, 43(6): 91
- [2] Wang X, Jin H, Wang B, et al. Thermochromic VO₂ based Sandwich Structure Ag/Al₂O₃/VO₂ with Low Solar Absorption and Tunable Emittance for Spacecraft. Journal of Applied Physics, 2022, 131(13): 135301
- [3] Kim H, Cheung K, Auyeung R C Y, et al. VO₂-based Switchable Radiator for Spacecraft Thermal Control. Scientific reports, 2019, 9(1): 1-8
- [4] Du Z, Li M, Xu S, et al. VO₂-based Intelligent Thermal Control Coating for Spacecraft by Regulating Infrared Emittance. Journal of Alloys and Compounds, 2022, 895: 162679
- [5] Sun K, Riedel C A, Urbani A, et al. VO₂ Thermochromic Metamaterial-based Smart Optical Solar Reflector. Acs Photonics, 2018, 5(6): 2280-2286
- [6] Dicken M J, Aydin K, Pryce I M, et al. Frequency Tunable Near-infrared Metamaterials based on VO₂ Phase Transition. Optics Express, 2009, 17(20): 18330-18339
- [7] Liu Y, Qiu J, Zhao J, et al. General Design Method of Ultra-broadband Perfect Absorbers based on Magnetic Polaritons. Optics Express, 2017, 25(20): A980-A989
- [8] Shrewsbury B K, Morsy A M, Povinelli M L. Multilayer Planar Structure for Optimized Passive Thermal

Homeostasis. *Optical Materials Express*, 2022, 12(4): 1442-1449

- [9] Beaini R, Baloukas B, Loquai S, et al. Thermochromic VO₂-based Smart Radiator Devices with Ultralow Refractive Index Cavities for Increased Performance. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2020, 205: 110260
- [10] Xie B, Dong J, Zhao J, et al. VO₂ Particle-based Intelligent Metasurface with Perfect Infrared Emission for the Spacecraft Thermal Control. *Applied Optics*, 2022, 61(35): 10538-10547
- [11] Hendaoui A, Émond N, Dorval S, et al. VO₂-based Smart Coatings with Improved Emittance-switching Properties for an Energy-efficient Near Room-temperature Thermal Control of Spacecrafts. *Solar energy materials and solar cells*, 2013, 117: 494-498
- [12] Xu X, Gu J, Zhao H, et al. Passive and Dynamic Phase-change-based Radiative Cooling in Outdoor Weather. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2022, 14(12): 14313-14320
- [13] Du Z, Li M, Xu S, et al. VO₂-based Intelligent Thermal Control Coating for Spacecraft by Regulating Infrared Emittance. *Journal of Alloys and Compounds*, 2022, 895: 162679
- [14] Taylor S, Long L, McBurney R, et al. Spectrally-selective Vanadium Dioxide based Tunable Metafilm Emitter for Dynamic Radiative Cooling. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2020, 217: 110739
- [15] Numan N, Mabakachaba B, Simo A, et al. VO₂-based Active Tunable Emittance Thermochromic Flexible Coatings. *Journal of the Optical Society of America A*, 2020, 37(11): C45-C49

可移动式地基大气 CO₂ 吸收光谱监测平台

张辰颢, 任涛, 赵长颖
(上海交通大学中英国际低碳学院, 上海 201306)
(Email: tao.ren@sjtu.edu.cn)

摘要: 大气中的二氧化碳(CO₂)是目前对人类影响最大的温室气体, 准确的区域 CO₂ 测量手段对碳源碳汇监测, 对实现“双碳”目标具有重要意义。大气层中的 CO₂ 会吸收穿过大气的太阳光谱辐射, 其吸收强度与大气中的 CO₂ 浓度密切相关。因此, 通过在地表测量大气对太阳的吸收光谱便成为获取大气 CO₂ 浓度信息的一种有效手段。目前基于高光谱遥感测量方式的碳监测以天基卫星观测和固定站点地基观测为主, 这些方法对区域碳排放的监测缺少足够的时空分辨率。而建立可移动式地基遥感监测平台将是对天基卫星遥感监测手段的重要补充。本文基于傅立叶红外光谱测量技术建立了可移动式地基大气 CO₂ 吸收光谱监测平台, 并通过大气辐射传输计算验证了光谱测量结果的正确性。本研究为后续开发可移动式地基大气 CO₂ 浓度监测平台奠定了重要基础。

关键词: 大气辐射传输, 二氧化碳, 太阳光谱, FTIR,

0. 前言

二氧化碳(CO₂)作为最重要的温室气体, 在大气中的含量自工业革命以来持续增加。二氧化碳的增加导致了全球变暖, 对气候、生物和人类健康产生了诸多不利影响。尽管全球范围内已经采取了诸多减排措施, 全球二氧化碳排浓度依然在持续增长^[1]。其中导致二氧化碳排放增加的主要因素是人类活动: 如化石燃料燃烧、工业活动和土地利用变化等^[2]。因此, 为了更好地预测未来二氧化碳的增长趋势, 以减轻温室效应的影响, 实现对碳排放的有效监测, 获取大气中二氧化碳浓度的分布信息具有重要意义^[4]。然而, 大气气体浓度的测量存在复杂的季节性变化和年周期性变化, 气体种类多, 空间范围广, 不同高度下所对应的温度、压强均不同^[5], 因此有必要采取对垂直空间的持续观测。持续准确的二氧化碳观测对理解全球碳循环、制定温室气体减排政策以及预测未来的气候变化都具有重要意义^[6]。

近年来, 研究者们已经利用了多种方法和技术来测量大气中的二氧化碳浓度。其中原位技术通常用于监测对流层中的二氧化碳浓度, 可以提供高测量数据的精度^[7]。此外, 非色散红外气体分析仪(NDIR)和光腔衰减光谱(CRDS)也被用于监测地表二氧化碳在长时间内的变化; 积分路径差分吸收(IPDA)激光雷达系统被用于测量二氧化碳的平均干空气混合比(XCO₂), 差分吸收激光雷达(DIAL)系统则可以提供边界层以下二氧化碳剖面的变化信息^[8-10]。然而, 这些方法都面临时间或空间上连续测量的困难, 也受制于所能到达的采样点的限制, 收集信息的能力和范围有限^[11]。而对大范围、长时间气候变化的研究, 则需要更高精度和更高空间分辨率的大气温室气体浓度测量数据的支持。因此, 日本于 2009 年和 2018 年相继发射的 GOSAT^[12](Greenhouse gases Observing SATellite)和 GOSAT-2 卫星^[13], 美国于 2014 年和 2018 年相继发射的 OCO-2^[14](Orbiting Carbon Observatory, OCO)和 OCO-3 卫星^[15], 我国于 2016 发射的碳卫星 TanSat^[16], 以及法国计划将于 2024 年发射的 MicroCarb 卫星^[17], 都在遥感探测的空间分辨率、卫星的重访周期、温室气体柱浓度的反演精度等方面做了大幅提升。尽管借助全新一代的天基遥感监测手段, 针对温室气体浓度的观测能力得到了显著提升, 但是其观测任务依然以科学探索为主, 目前卫星遥感观测的时空分辨率以及针对温室气体浓度的反演精度

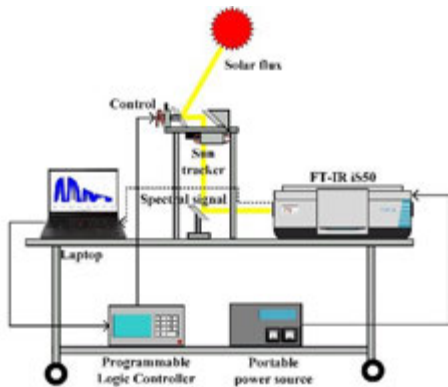
还不足以全方位地捕捉全球和区域碳源和碳汇的变化特征。

地基高光谱技术是一种高精度的大气气体浓度测量方法，其原理是利用高光谱分辨率傅里叶红外光谱仪进行太阳辐射监测，并据此反演大气温室气体相关的参数。其主要原理是太阳辐射经过大气的选择性吸收之后会形成独特的吸收光谱曲线，经过地基高分辨率傅里叶红外光谱仪的测量，可以记录大气垂直方向的有效信息。再经过反演算法的反演重建，就可以定量分析出大气中温室气体含量的相关参数，在温室气体遥感监测领域发挥着重要作用^[18-20]。地基高光谱遥感观测以分布在全球的总碳柱观测网络（Total Carbon Column Observing Network, TCCON）为主。目前，TCCON 已先后建立了分布全球的 35 个观测站点，覆盖了从北纬 80 度到南纬 45 度的区域，但由于地基遥感监测站点稀疏，对于地理环境较差、气候环境恶劣的区域无法布置观测站点，因此在全球碳监测和碳循环评估过程中不能提供大范围高精度的数据支持。截止 2023 年 4 月更新的数据显示，中国境内也仅有安徽合肥^[21]和北京香河^[22]两个大气监测站点被纳入了 TCCON 全球观测网络。TCCON 站点通过将高光谱分辨率的傅里叶红外光谱仪 IFS-125HR（或 IFS-120HR）与太阳追踪光学通道（Sun Tracker）相结合，监测并记录大气下行太阳光谱。由于站点记录的太阳光谱只经过单次大气层相互作用且不经地面反射作用，所以相比天基监测手段 TCCON 数据具有更高的光谱信噪比（Signal-noise Ratio, SNR），能够从光谱维度挖掘更准确的大气温室气体信息。地基站点的监测结果被广泛应用于对遥感卫星产品反演的验证工作^[23,24]。但由于地基 TCCON 站点测量仪器庞大，建设成本高，仅适用于对 TCCON 固定站点所处空间位置温室气体浓度的测量。

建立可移动式地基遥感监测平台将是对固定式地基遥感测量以及天基卫星遥感监测手段的重要补充。地基大气二氧化光谱测量实验系统可以在可控的辐射传输路径上实现大气辐射的测量，最终提供可靠的碳监测的数据。本文基于小型傅里叶红外光谱仪，于上海交通大学临港校区搭建了可移动式地基太阳光谱测量平台，并已经通过该平台测量了当地的高分辨率太阳辐射光谱。同时本文通过大气辐射传输的高光谱分辨率计算，对实验测量数据进行了验证。本文所建立的可移动式光谱测量平台以及大气辐射传输计算模型为后续进一步开发可移动式地基大气 CO₂ 浓度监测平台奠定了重要基础。

1. 地基实验平台

本研究实验平台的搭建旨在实现对太阳光谱的高精度采集，以研究太阳光在不同波段下的辐射特性，实现后期对 CO₂ 气体柱浓度的反演测量。实验平台位于上海市浦东新区上海交通大学临港校区，经度为 121.89° E，纬度为 30.88° N，海拔高度为 3.5m。图 1(a)所示为可移动式地基大气 CO₂ 吸收光谱监测平台的设计图，主要由太阳追踪仪及电机控制系统，傅里叶红外光谱仪和笔记本电脑及便携式电源组成。图 1(b)为平台的实物图。



(a)实验平台设计图

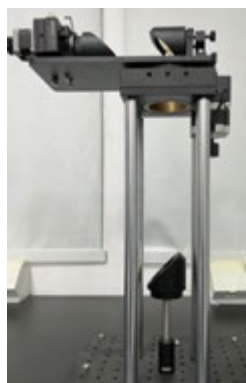


(b)实验平台实物图

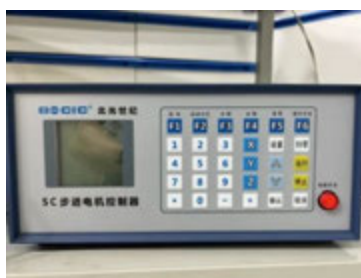
图 1 可移动式地基大气 CO₂ 吸收光谱测量平台

1.1 太阳光路追踪系统

由于太阳辐射为平直光源，且随时间非线性变化。因此，建立一个稳定的太阳光路追踪系统是获得准确太阳光谱的关键。本文的光路追踪系统有三台光学反射镜组成，这些光学反射镜都采用了金反射镀膜镜片，在测量光谱波段 3700-8000cm⁻¹ 范围内具有稳定的高发射率 (0.99)。实验平台上的两台反射镜分别用于捕捉当前位置下太阳的天顶角和方位角，并将光路导入实验台上的第三台反射镜，再经过垂直反射将光线导入傅立叶红外光谱仪中，整个光学追踪台如图 2(a)所示。为了实现对太阳光谱的高精度采集，本实验台利用了高精度的 SC100 步进电机进行太阳位置的实时追踪，如图 2(b)所示。该追踪仪首先通过获取当前时刻的时间和经纬度信息，计算得出该时刻下的太阳方位角和高度角，并据此驱动电机转动反射镜片，以实现太阳位置的准确追踪。追踪仪的追踪精度达到 0.1 度，可以满足本实验测量的需要。在测量过程中，傅里叶红外光谱仪在最高分辨率下单次测量时间为 2 分 12 秒。在该时长下，追踪仪的控制精度可保障对太阳光谱测量的需求。傅里叶红外光谱仪的实时观测软件也可监测光谱数据的采集状况，以保证最强辐射信号能被成功导入光谱仪，以此提高实验测量的信噪比。



(a)太阳光学追踪台



(b)SC100 步进电机

图 2 太阳光路追踪系统图

1.2 红外光谱信号测量系统

本文建立的移动式地基光谱测量平台采用了 Thermo Scientific Nicolet iS50 傅立叶变换红外光谱仪 (FTIR)，探测器采用液氮冷却的 MCT-B 红外探测器，光谱测量范围可达 400-11700 cm⁻¹，最高分辨率可达 0.125 cm⁻¹。FTIR 配套的 Omnic 软件可用于光谱信息的采集和卷积处理，系统还可通过内部多面反光镜的方式收集外部光源的光谱信息，并根据光源信息自动调整其光栅大小，确保测量精度和可靠性。

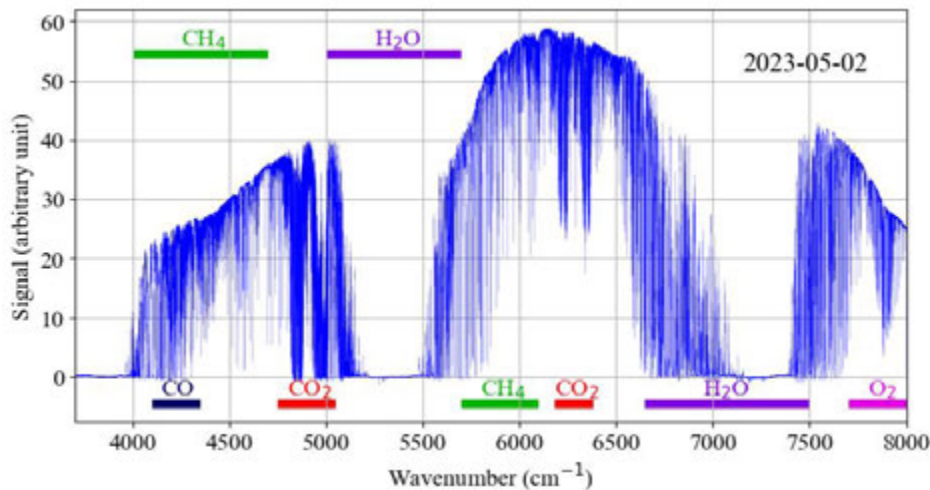
基于大气遥感测量反演大气 XCO₂ 的首要条件是能够在高光谱分辨率下对大气 CO₂ 吸收谱带进行测量；为了保障反演的精度，一般采集多个 CO₂ 吸收波段信息。本文主要利用如表 1 所示的二氧化碳吸收波段，这两段光谱范围主要覆盖了短波红外范围内的二氧化碳吸收光谱。表 1 中的 CO₂-弱和 CO₂-强谱带中的“弱”和“强”分别是基于对应光谱范围内 CO₂ 分子吸收的相对强弱而决定的。

表 1 大气气体分子吸收谱带

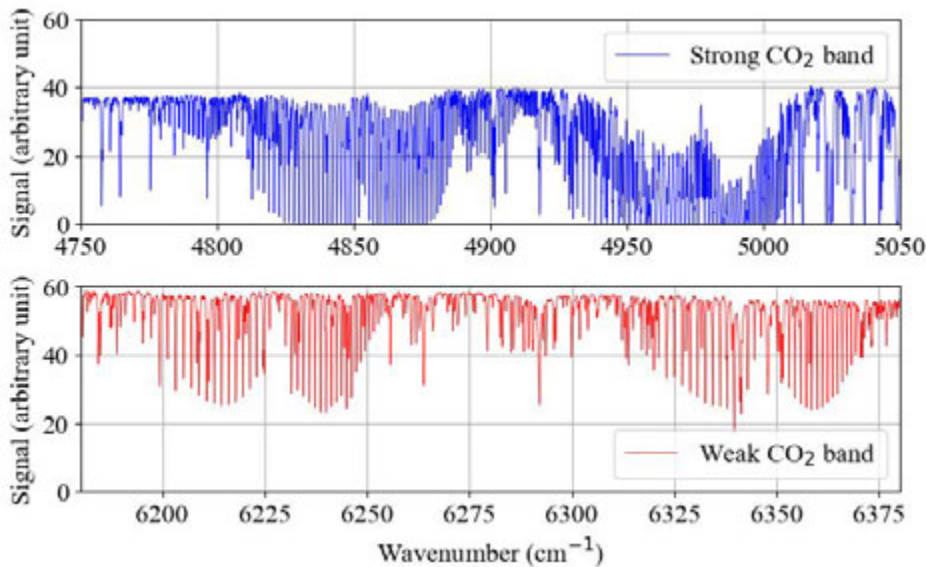
观测谱带	光谱范围[μm]	光谱范围[cm ⁻¹]	吸收气体
CO ₂ -弱	1.590~1.622	6170~6290	CO ₂ , H ₂ O
CO ₂ -强	2.043~2.083	4800~4900	CO ₂ , H ₂ O

1.3 信号采集及相关结果

大气吸收光谱测量实验通常选择白天晴朗无云的天气条件下进行，这样做的目的是尽可能减少大气中气溶胶颗粒对大气吸收的影响。实验中太阳光由光路追踪器反射进入傅立叶红外光谱仪，并进行持续扫描，以此提高光谱测量的信噪比，便于后续提高 XCO_2 的反演求解的精度。图 3 中展示了在 2023 年 5 月 2 日收集到的一组光谱信息。图 3(a) 显示了实验得到的全部光谱测量范围 ($3700\text{--}8000\text{cm}^{-1}$) 内的太阳辐射光谱，图中对主要气体的吸收谱段进行了标注。而图 3(b) 展示了后续将被用于 XCO_2 反演的两个 CO_2 吸收波段，本文也将基于这两个波段进行大气辐射传输计算建模。



(a)地基实验平台测量得到太阳光谱（2023-05-02 数据）



(b)实验测量的 CO_2 吸收光谱波段

图 3 地基实验平台信号采集结果

需要注意的是，图 3 中的纵坐标仅为大气辐射强度的一个相对值，是太阳辐射信号基于背景的吸收强度，而不是绝对辐射强度。因此，需要进行归一化处理，将信号强度标准化，以便进行比较和分析。

2.大气辐射传输正向计算模型

2.1 大气辐射传输正向计算模型

大气辐射传输的正向计算模型主要目的是模拟地基光谱测量平台接收到的实际光谱，即以大气层顶端太阳辐射、地球大气参数（温度、浓度、压强等）及传感器相关仪器参数作为输入信息，根据分子吸收光谱理论模拟太阳辐射与大气分子之间的相互作用关系，最终模拟地基平台接收到的太阳光谱的过程。正向计算模型的模拟精度影响着最终反演结果的好坏，是大气 CO₂ 反演工作中极为重要的一环。

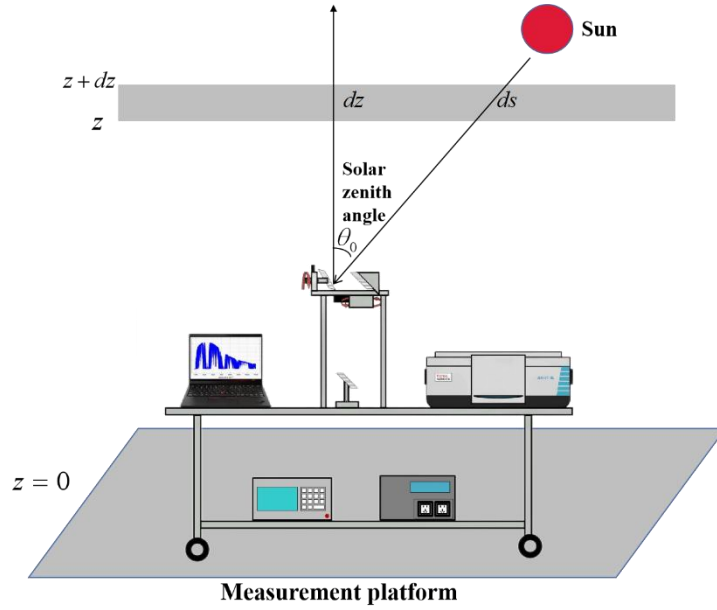


图 4 地基观测大气辐射传输模型路径示意图

图 4 展示的是太阳辐射在大气中传输并到达地基观测平台的示意图。假设大气是具有一定厚度的平板，太阳辐射以天顶角 θ_0 入射至大气层顶端，与大气相互作用后被大气吸收，最终到达光谱仪。假设大气分层第 i 层的厚度为 ds_i ，该层大气中的压强，温度和气体浓度均匀分别，分别为 p_i 、 T_i 、 x_i ，则到达光谱仪的太阳辐射强度 I_η 可由式(1)来表示：

$$I_\eta = I_{\eta,0} \exp\left(-\frac{1}{\cos\theta_0} \int_0^h \kappa_{\eta,i}(p_i, T_i, x_i) dz_i\right) \rho^3 \quad (1)$$

式中， $I_{\eta,0}$ 是大气层顶端的太阳光谱辐射强度， ρ 是反射镜的反射率。式(1)的计算过程中并未对光谱的分辨率进行特别说明，为了准确模拟光谱仪测量的辐射光谱，一般需要先计算逐线 (line-by-line, LBL) 光谱，再和 FTIR 的仪器线型函数 (ILSF, Instrument Line Shape Function) 进行卷积，才能使模拟光谱具有和实验测量光谱相同的光谱分辨率。实验过程中，地基测量平台中 FTIR 使用的截断函数为 Boxcar 函数，其主要优势是在频域中为矩形函数，具有平坦的频率响应，可以保留宽带光谱信号的形状和信息，同时具有较好的信号平滑和噪声滤波效果，可以降低测量信号的噪声水平。针对该 FTIR 设备我们使用了由式(2)所示的线型函数：

$$\Gamma(\eta) = \frac{8.33}{\text{Res}} \text{sinc}\left(\frac{8.33\pi}{\text{Res}}\eta\right) \quad (2)$$

其中 Res 为名义分辨率。经过卷积后的太阳辐射光谱可以用式(3)表示：

$$I_{\eta,c} = \int_0^\infty I_{\eta,0} \exp\left(-\frac{1}{\cos\theta_0} \int_0^h \kappa_{\eta,i}(p_i, T_i, x_i) dz_i\right) \rho^3 \Gamma(\eta - \eta') d\eta' \quad (3)$$

2.2 测量和模拟的 CO₂ 光谱结果的对比

大气分层是正向计算中非常重要的一个环节。根据大气层内不同海拔高度和气压区间的分布特点，合理划分和细化大气层能够准确地模拟辐射信号在大气层内的传输过程。在合理的大气分层网格内，可假设每层内大气为均质状态。本文采用 OCO-2 卫星反演任务所采用的大气分层，因 OCO-2 数据公开发布时间与实际时间存在一定的延迟，因此我们采用其于 2023 年 2 月 22 日在地基实验测量区域（上海交通大学临港校区）的温度、湿度、大气压和二氧化碳浓度垂直分布信息，同时与我们 2023 年 2 月 22 日通过 FTIR 测量得到的光谱对比，以作为模拟结果的验证，通过式（3）模拟计算地基光谱测量平台所能获取的太阳辐射光谱，并与当天的实测结果进行了对比。图 5 展示了该天该地区从 OCO-2 发布的产品数据获取的各个海拔高度上的压力、温度、二氧化碳浓度、水蒸气浓度信息。

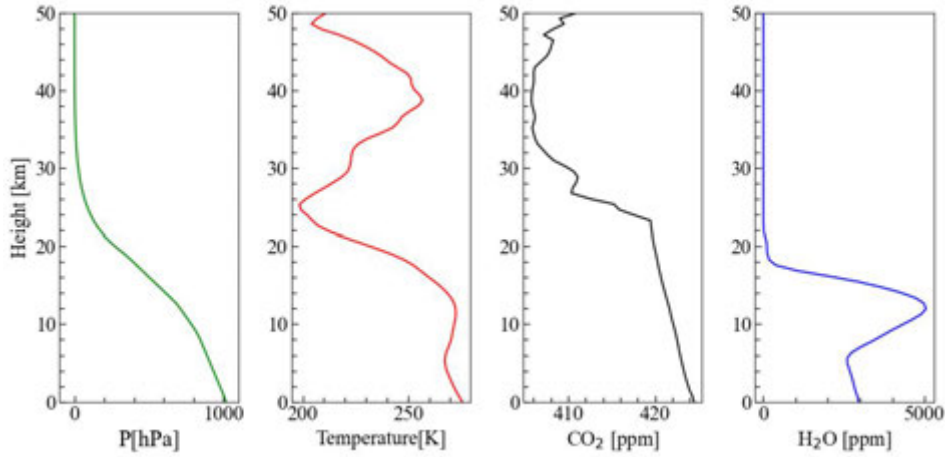
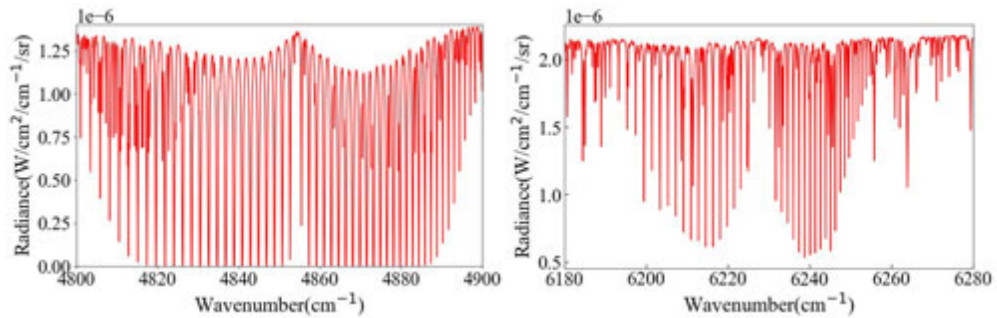


图 5 正向计算模拟验证中所采用的大气状态垂直分布信息

式(3)中，大气层顶端太阳光谱采用罗拉多大学拉斯普金斯分校发布的高分光谱分辨率实验测量光谱^[25]，二氧化碳和水蒸气的吸收系数由本课题组开发的逐线吸收系数机器学习模型^[26]提供。模拟计算获得的 CO₂ 强、弱波段如图 6 所示。为了将正向辐射传输计算的结果和实验测量结果进行比较，我们将模拟和实测光谱以统一的标准进行了归一化处理，最终的对比结果如图 7 所示。



(a) CO₂ 强波段(b) CO₂ 弱波段

图 6 正向计算模拟光谱

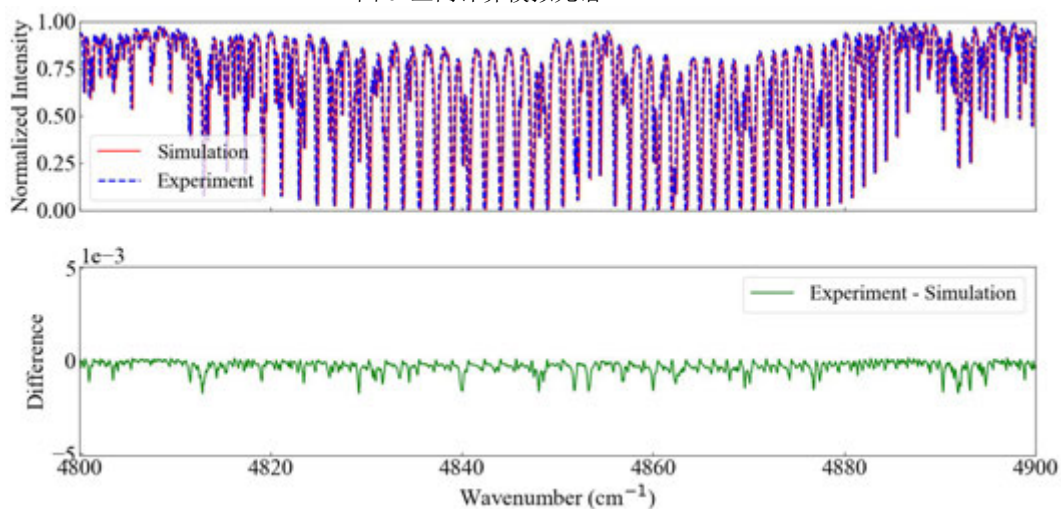
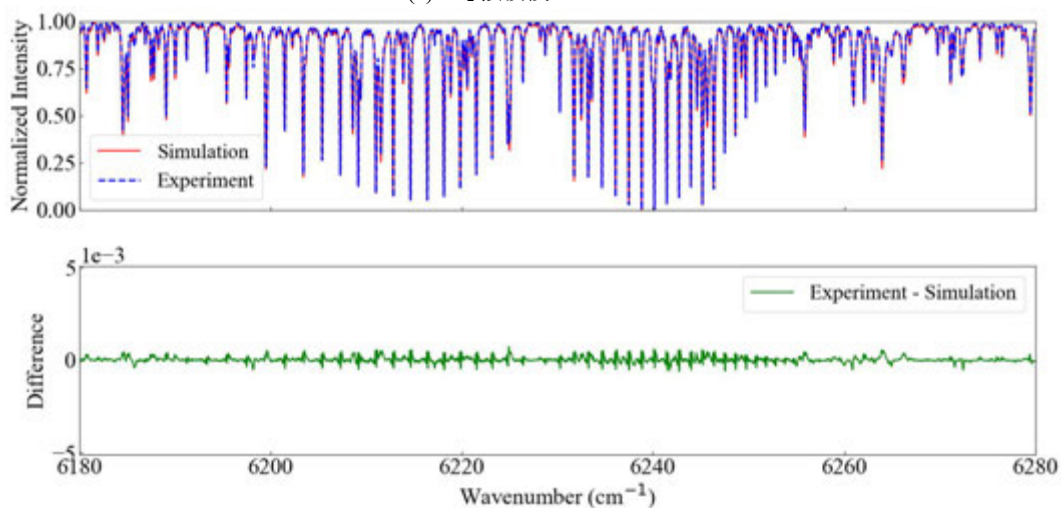
(a)CO₂ 强波段(b) CO₂ 弱波段

图 7 模拟光谱和实验光谱归一化对比图

从图 7 的结果可以看到, 在 CO₂ 弱波段(6180-6280cm⁻¹), 正向计算的 CO₂ 与实验测量所获得的 CO₂ 基本一致, 误差保持在 0.5% 以内。在 CO₂ 强波段(4800-4900cm⁻¹), 正向计算得到的 CO₂ 误差略高于 CO₂ 弱波段, 但总体误差同样保持在 0.5% 以内。

3. 结论

本文利用地基高光谱 FTIR 建立了大气 CO₂ 光谱测量平台, 并通过实验获得了高分辨率的太阳辐射光谱。通过建立正向大气辐射传输计算模型, 对 CO₂ 两个吸收谱段对应的实测光谱强度进行了模拟计算。结果表明, 在 CO₂ 弱波段和 CO₂ 强波段, 正向大气辐射传输计算模型的辐射光谱能够与地基实验光谱测量结果良好匹配, 误差均在 0.5% 以内。本文旨在为最终建立可移动式地基 XCO₂ 监测平台提供光谱测量系统以及大气辐射传输正向计算模型。

参考文献

- [1] Pachauri R K, Allen M R, Barros V R, et al. Climate Change 2014: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change[M]//Pachauri R K, Meyer L. EPIC3Geneva, Switzerland, IPCC, 151 p., pp. 151, ISBN: 978-92-9169-143-2. Geneva, Switzerland: IPCC, 2014: 151.
- [2] Crippa M, Guizzardi D, Solazzo E, et al. GHG emissions of all world countries booklet 2021report[M]. 2021.
- [3] Kiel M, Wunch D, Wennberg P O, et al. Improved retrieval of gas abundances from near-infrared solar FTIR spectra measured at the Karlsruhe TCCON station[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2016, 9(2): 669-682.
- [4] Sepúlveda E, Schneider M, et al. Long-term validation of tropospheric column-averaged CH₄ mole fractions obtained by mid-infrared ground-based FTIR spectrometry[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2012, 5(6): 1425-1441.
- [5] Pak B C, Langenfelds R L, Young S A, et al. Measurements of biomass burning influences in the troposphere over southeast Australia during the SAFARI 2000 dry season campaign[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2003, 108(D13).
- [6] Ciais P, Sabine C, Bala G, et al. Carbon and other biogeochemical cycles[M]//Climate change 2013: the physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, 2014: 465-570.
- [7] Sawa Y, Machida T, Matsueda H, et al. Seasonal changes of CO₂, CH₄, N₂O, and SF₆ in the upper troposphere/lower stratosphere over the Eurasian continent observed by commercial airliner[J]. Geophysical Research Letters, 2015, 42(6): 2001-2008.
- [8] Schibig M F, Steinbacher M, Buchmann B, et al. Comparison of continuous in situ CO₂ observations at Jungfraujoch using two different measurement techniques[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2015, 8(1): 57-68.
- [9] Singh U N, Refaat T F, Ismail S, et al. Feasibility study of a space-based high pulse energy 2 μm CO₂ IPDA lidar[J]. Applied Optics, 2017, 56(23): 6531-6547.
- [10] Shibata Y, Nagasawa C, Abo M. Development of 1.6 μm DIAL using an OPG/OPA transmitter for measuring atmospheric CO₂ concentration profiles[J]. Applied Optics, 2017, 56(4): 1194-1201.
- [11] Olsen S C, Randerson J T. Differences between surface and column atmospheric CO₂ and implications for carbon cycle research[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2004, 109(D2).
- [12] Yokota T, Yoshida Y, Eguchi N, et al. Global Concentrations of CO₂ and CH₄ Retrieved from GOSAT: First Preliminary Results[J]. SOLA, 2009, 5: 160-163.
- [13] Suto H, Kataoka F, Kikuchi N, et al. Thermal and near-infrared sensor for carbon observation Fourier transform spectrometer-2 (TANSO-FTS-2) on the Greenhouse gases Observing SATellite-2 (GOSAT-2) during its first year in orbit[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2021, 14(3): 2013-2039.
- [14] Hakkarainen J, Ialongo I, Tamminen J. Direct space-based observations of anthropogenic CO₂ emission areas from OCO-2[J]. Geophysical Research Letters, 2016, 43(21): 11,400-11,406.
- [15] Eldering A, Taylor T E, O'Dell C W, et al. The OCO-3 mission: measurement objectives and expected performance based on 1 year of simulated data[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2019, 12(4): 2341-2370.
- [16] Ran Y, Li X. TanSat: a new star in global carbon monitoring from China[J]. Science Bulletin, 2019, 64(5): 284-285.
- [17] Wu K, Palmer P I, Wu D, et al. Theoretical assessment of the ability of the MicroCarb satellite city-scan observing mode to estimate urban CO₂ emissions[R]. Gases/Remote Sensing/Instruments and Platforms, 2022.
- [18] Sepúlveda E, Schneider M, Hase F, et al. Tropospheric CH₄ signals as observed by NDACC FTIR at globally distributed sites and comparison to GAW surface in situ measurements[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2014, 7(7): 2337-2360.
- [19] Barthlott S, Schneider M, Hase F, et al. Using XCO₂ retrievals for assessing the long-term consistency of NDACC/FTIR data sets[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2015, 8(3): 1555-1573.
- [20] Té Y, Jeseck P, Franco B, et al. Seasonal variability of surface and column carbon monoxide over the megacity Paris, high-altitude Jungfraujoch and Southern Hemispheric Wollongong stations[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, 16(17): 10911-10925.
- [21] Wang W, Tian Y, Liu C, et al. Investigating the performance of a greenhouse gas observatory in Hefei, China[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2017, 10(7): 2627-2643.
- [22] Yang Y, Zhou M, Langerock B, et al. New ground-based Fourier-transform near-infrared solar absorption measurements of XCO₂, XCH₄ and XCO at Xianghe, China[J]. Earth System Science Data, 2020, 12(3): 1679-1696.
- [23] Pollard D F, Sherlock V, Robinson J, et al. The Total Carbon Column Observing Network site

- description for Lauder, New Zealand[J]. *Earth System Science Data*, 2017, 9(2): 977-992.
- [24] Parker R, Boesch H, Cogan A, et al. Methane observations from the Greenhouse Gases Observing SATellite: Comparison to ground-based TCCON data and model calculations[J]. *Geophysical Research Letters*, 2011, 38(15).
- [25] King R J, Warner C. Solar Decathlon: energy we can live with[C]//*Proceedings of 3rd World Conference on Photovoltaic Energy Conversion*, 2003: 3. 2003: 2139-2142 Vol.3.
- [26] Xie F, Ren T, Zhao Z, et al. A machine learning based line-by-line absorption coefficient model for the application of atmospheric carbon dioxide remote sensing[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2023, 296: 108441.

某直流燃烧室燃气辐射换热特性研究

毕研策, 刘雨昂, 杨卫华*, 孙志刚
(南京航空航天大学能源与动力学院, 南京 210016)
(Tel:18822034004, Email:biyance@qq.com)

摘要: 燃烧室作为航空发动机的核心部件之一, 其热防护性能对燃烧室的使用寿命至关重要。本文采用数值计算方法针对燃烧室辐射换热特性进行研究, 得到以下结果: 油气比、燃烧室压力和燃烧室来流空气温度均对壁面辐射热流密度产生一定影响, 其中, 油气比、燃烧室压力对壁面辐射热流密度的变化起着关键作用; 存在最佳油气比和燃烧室压力, 使得燃烧室内部辐射热流密度值最大。本研究对于提高燃烧室热防护性能可靠性设计具有重要意义。233401

关键词: 燃烧室, 热防护, 辐射热流, 油气比

0 前言

燃烧室作为航空发动机的核心部件之一, 起到将化学能转化为热能的作用, 其工作环境恶劣, 导致燃烧室热防护性能对其使用寿命具有重要影响。热防护设计方案的可行性和安全系数取决于固体温度场计算结果, 而固体温度场计算结果的可靠性由燃烧室热流计算精度决定。燃烧室热流包括对流热流和辐射热流, 而辐射热流的占比远高于对流热流。因此, 为了获得较为准确的固体温度场, 有必要精确计算燃烧室辐射热流, 但影响辐射热流的因素众多, 它不仅与产生辐射热流的介质性质相关, 还受到辐射热流传播过程中沿程介质性质的影响, 精确评估辐射热流还存在较大难度。

目前, 国内外学者针对上述辐射热流问题进行了相关研究。1987年美国普渡大学的Viskanta^[1]在总结当前燃烧系统中热辐射计算的研究现状时, 指出了燃烧系统中燃气具有很明显的谱带特性, 而燃气中的颗粒散射对辐射产生的影响微乎其微, 可以采用 Rayleigh 进行近似。1994年NASA研究中心研究了涡轮发动机隔热涂层中辐射对壁面温度的影响, 其指出部分热辐射能够穿透隔热涂层, 且随着温度的升高, 涂层内辐射也会增加, 因此对于隔热涂层的研究需要考虑辐射的影响^[2]。同年, 南京航空航天大学的赵坚行^[3]在研究燃气轮机燃烧室中贴体网格的生成与应用时, 对流场的计算将流动燃烧以及辐射进行了多物理场耦合, 其中辐射计算采用了热通量法辐射模型来估算辐射通量和壁面温度, 这有效的提高了计算精度。

2002年哈尔滨工程大学的孟岚^[4]采用六通量辐射模型对燃烧室内辐射传输进行数值仿真研究, 指出随着模型尺寸的增大, 辐射所占比例也会增加, 火焰筒内壁温度是燃气的对流换热和壁面与燃气之间辐射传输耦合情况下的一个平衡温度, 且受辐射影响较大。2004年西安交通大学的张文普^[5]同样采用六通量辐射模型对燃气轮机环形燃烧室内燃烧流动进行数值计算, 表明辐射热流对燃烧室内流动换热具有重要影响。2006年英国格拉

斯哥大学的 Paul^[6]采用离散坐标系下的 DO 模型对辐射传输进行求解, 考虑了水蒸汽和二氧化碳两种参与性介质, 并采用灰体模型对介质辐射物性进行模拟, 结果表明在对燃烧室内的热辐射传输进行计算时需考虑炭黑对辐射的影响。2008 年法国 EM2C 研究团队采用自编程的大涡模拟代码 AVBP 和辐射求解代码 RADIATION 研究了 LES 与辐射对燃烧室的耦合换热影响^[7]。

2016 年印度贾达普大学的 Datta^[8]研究了燃气轮机旋流器对燃烧室内炭黑和热辐射的影响, 指出旋流速度对热辐射具有明显的影响, 热辐射对燃烧室壁面温度的升高起重要作用。2012 年清华大学的王文萍^[9, 10]采用 P1 结合 WSGG 的模型对燃气轮机高温部件对流/导热/辐射耦合的流动换热机理进行了研究, 结果表明当燃气温度为 800℃ 时, 辐射换热已不可忽略, 导热-对流-辐射之间的相互作用也将变得更加复杂。哈尔滨工业大学的王振华^[11]利用数值计算方法, 针对某型航空发动机分析了不同工况下燃烧室壁面、燃烧室出口面以及一级静叶表面辐射热流分布特性, 结果表明燃烧室出口辐射热流密度分布的不均匀性加剧了一级静叶叶片温度分布的不均匀性, 导致燃气高温区和高辐射热流区的静叶表面温度水平高于平均水平近 200-300K。

综上所述, 国内外众多学者主要是利用数值计算方法针对特定型号燃烧室内部辐射热流进行了研究, 但针对直流燃烧室辐射换热特性鲜有研究。因此, 本文针对现有燃烧室工况条件, 开展直流燃烧室辐射换热特性仿真研究, 以期提高燃烧室辐射热流计算精度, 对于提高燃烧室热防护设计方案的可靠性具有重要意义。

1 数值计算方法

1.1 几何模型与边界条件

根据某直流燃烧室, 本文设计了燃烧室火焰筒几何模型, 如图 1 (a) 所示。几何模型主要有两部分构成, 一是火焰筒气体进口段, 该段主要安装了进气面板, 进气面板上开有两圈进气孔, 其中内环开有 36 个直径为 3mm 的进气孔, 外环开有 30 个直径为 5mm 的进气孔, 进气面板中央是旋流器, 旋流器中间为燃油喷嘴, 图 1 (b)。在进气段下游是火焰筒体, 长度 L (L 表示火焰筒壁面沿流向距离火焰筒头部的长度) 为 250mm, 内径 D 为 100mm。一定质量流量的空气流经旋流器和孔板后, 与燃油喷嘴喷出的航空煤油进行混合、燃烧后排出火焰筒。通过监测不同油气比、火焰筒内部压力下火焰筒内壁面上某一位置处的辐射热流密度, 研究油气比、燃烧室压力对火焰筒内壁面某位置热流密度的影响规律。

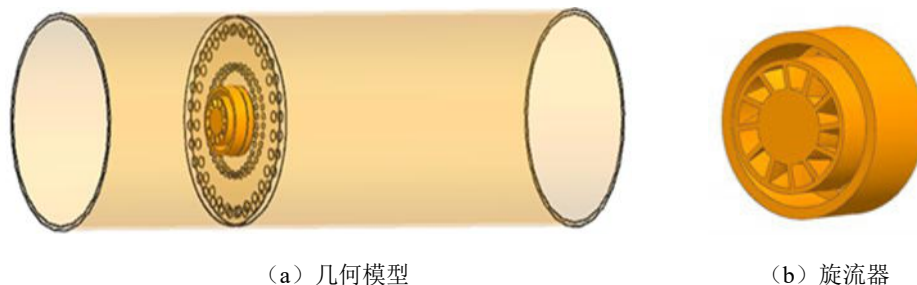


图 1 火焰筒几何模型与旋流器

燃烧室空气入口为质量流量入口；出口边界设为压力出口，相对压力为 0 Pa，温度为 300 K；燃烧室壁面材料设置为 steel，火焰筒内壁面热边界条件为耦合边界，外壁面设置为辐射边界，内部发射率为 0.8，外部发射率为 0.75；离散相中燃油入口为质量流量，燃油直径为 0.05 mm，喷雾半角为 17°；重力加速度方向竖直向下，大小为 9.81 m/s²。

数值仿真的计算参数：油气比为0.02、0.04、0.06，燃烧室燃烧压力变化为0、2 atm、4 atm、8 atm以及10 atm，进口温度变化为300 K、400 K、500 K、600 K、700 K、800 K、900 K以及1000 K。详细的计算参数如表1所示。

表 1 不同工况参数表

工况	油气比 α	燃烧室内部压力 P_c (atm)	主流进口温度 T_a (K)
Case1	0.06	2	300
Case2		4	
Case3		8	
Case4		10	
Case5	0.04	0	300
Case6		2	
Case7		4	
Case8		8	
Case9		10	
Case10	0.02	0	300
Case11		2	
Case12		4	
Case13		8	
Case14		10	
Case15	0.06	0	400
Case16		0	500
Case17		0	600
Case18		0	700
Case19		0	800
Case20		0	900
Case21		0	1000

1.2 计算方法与模型验证

湍流模型采用 Realizable $k-\varepsilon$ 双方程模型；壁面函数采用标准壁面函数，标准壁面函数能为大多数边界限制流提供合理、精确的预测；燃烧模型采用 PDF (Probability Density Function) 非预混燃烧模型，燃烧过程中煤油 ($C_{12}H_{23}$ 代替) 采用 DPM (Discrete Phase Model) 模型注入，注入类型为 cone，蒸发组分为 $C_{12}H_{23}$ ，考虑颗粒辐射相互作用，湍流扩散采用随机轨道模型；压力速度耦合采用 SIMPLE 算法；辐射模型采用 DO (Discrete Ordinates) 辐射模型。

为验证计算模型的可靠性，文中对油气比为 0.06 工况下测点 1 和测点 2 处（如图 2 所示）火焰筒内壁面平均热流密度的实验值与模拟值进行了比较，如图 3 所示。其中，测点 1 和测点 2 截面处辐射热流密度模拟值与实验值相对误差分别为 11.12%、8.17%，表明在误差允许范围内，模拟值与实验值较为吻合，该计算模型比较可靠。

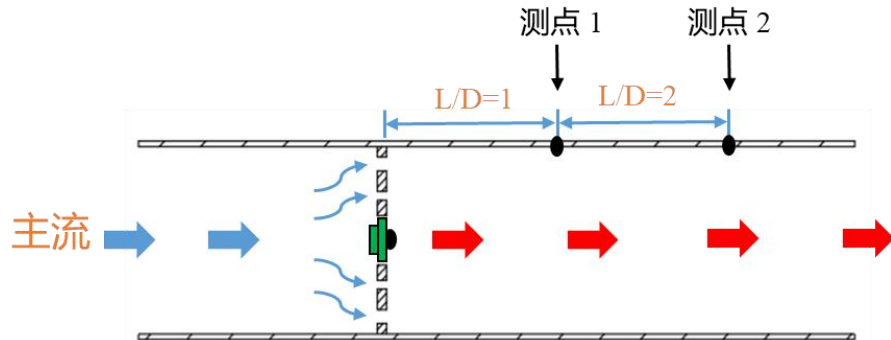


图 2 测点与燃油喷嘴相对位置示意图

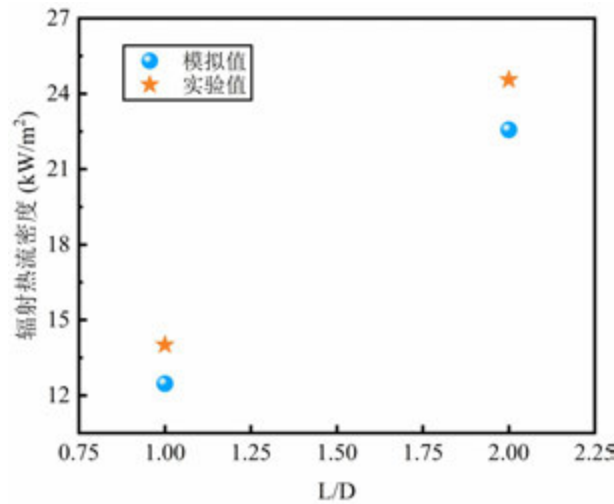


图 3 模拟值与实验值对比

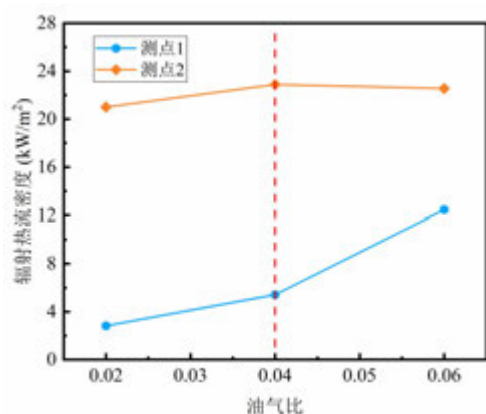
2 计算结果与分析

本文将重点研究油气比、燃烧室内部压力和来流空气温度对直流燃烧室火焰筒内壁面辐射热流密度的影响规律，以明晰上述因素对直流燃烧室火焰筒内壁面辐射热流的影响程度。

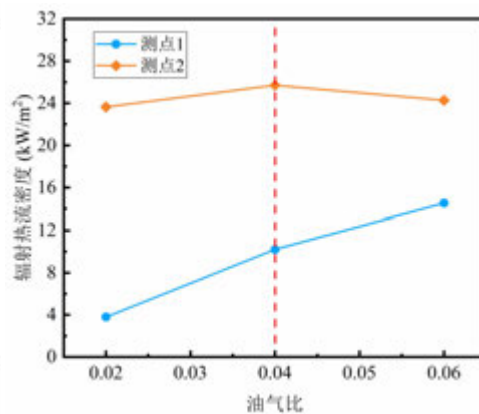
2.1 油气比对壁面辐射热流密度的影响

图4为燃烧室压力分别为0 atm、2 atm、4 atm、8 atm以及10 atm工况下，测点1和测点2辐射热流密度随油气比的变化规律图。图中清晰显示，不同燃烧室内部压力下测点1位置处的辐射热流密度随油气比的增加呈递增的变化趋势，而测点2位置处的辐射热流密度呈单峰对称分布。

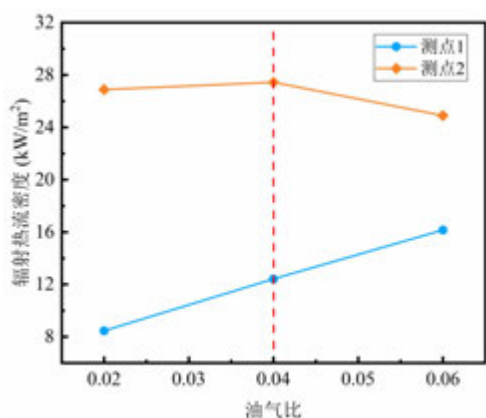
上述现象说明，一定燃烧室内部压力下，测点1位置辐射热流密度随油气比的增加而升高，测点2位置辐射热流密度随油气比的增加呈先升高后降低的变化趋势。主要原因是测点1位置距离火焰筒头部相对较近，燃油经喷嘴以一定角度喷出后，流经测点1位置处的燃油质量流量较低，在贫油燃烧状态下该点辐射热流密度较低，随着油气比的增大，该位置处燃油流量增加，燃烧更剧烈；而测点2位置距离火焰筒头部相对较远，更多的燃油喷射到该位置，燃烧剧烈，随着油气比的增加燃烧更剧烈，当油气比达到0.06时，该点处于富油状态，燃烧不充分，导致该位置处辐射热流密度降低。



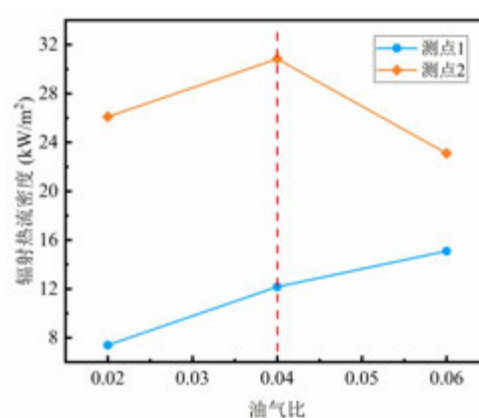
(a) 压力为 0 atm



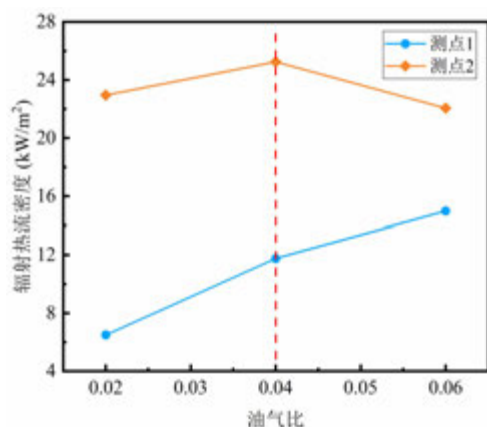
(b) 压力为 2 atm



(c) 压力为 4 atm



(d) 压力为 8 atm



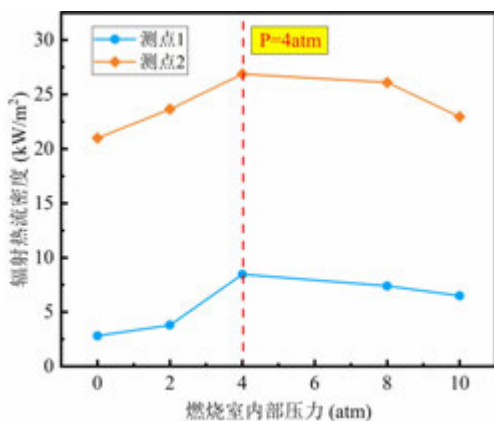
(e) 压力为 10 atm

图 4 不同燃烧室压力下测点 1、2 辐射热流密度随油气比的变化

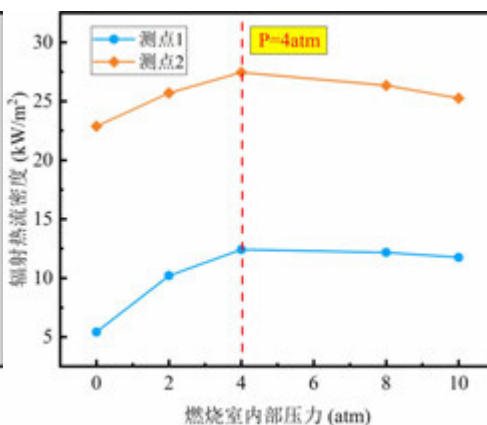
2.2 燃烧室压力对壁面辐射热流密度的影响

图 5 为油气比分别为 0.02、0.04 和 0.06 工况下，测点 1 和测点 2 辐射热流密度随燃烧室压力的变化规律图。图中清晰显示，不同油气比下测点 1、测点 2 位置处的辐射热流密度呈单峰对称分布。

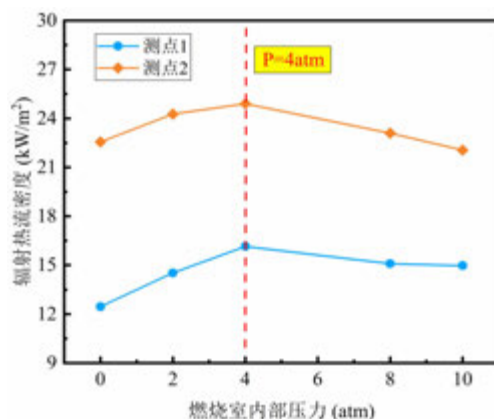
上述现象说明，在一定油气比下，测点 1、测点 2 位置辐射热流密度随燃烧室压力的增加呈先升高后降低的变化趋势。主要原因是高温高压环境使液滴的蒸发速率快速增加，随着压力的增加，燃烧更充分，这提高了火焰的辐射能力，使辐射热流密度增大，但过高的压力会影响燃油和空气在火焰筒头部的入射压力，进而降低燃油和空气的化学反应，导致测点 1、2 位置处的辐射热流密度下降。



(a) 油气比为 0.02



(b) 油气比为 0.04



(c) 油气比为 0.06

图 5 不同油气比下测点 1、2 辐射热流密度随燃烧室压力的变化

2.3 燃烧室来流温度对壁面辐射热流密度的影响

图 6 为燃烧室来流空气进口温度分别为 300 K~1000 K 工况下，测点 1 和测点 2 辐射热流密度随燃烧室来流空气进口温度的变化规律图。图中清晰显示，壁面辐射热流密度随燃烧室来流空气进口温度的升高呈递增的趋势，且热流密度变化率随燃烧室来流空气进口温度的升高呈先降低后趋于稳定的变化趋势，如图 7 所示。

上述现象说明，在一定油气比下，测点 1、测点 2 位置辐射热流密度随燃烧室来流空气进口温度的增加而升高，且升高幅度逐渐降低。主要原因是高温环境使液滴的蒸发速率快速增加，随着来流空气温度的增加，燃烧更充分，这提高了火焰的辐射能力，使辐射热流密度增大，当来流空气温度达到煤油沸点后，燃烧趋于稳定状态，对辐射热流密度影响较小。

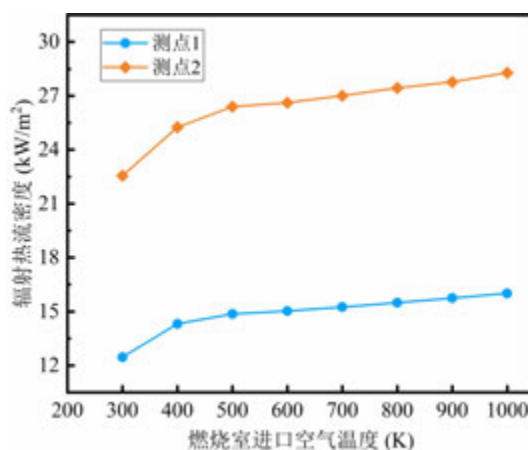


图 6 测点 1、2 辐射热流密度随燃烧室来流温度的变化

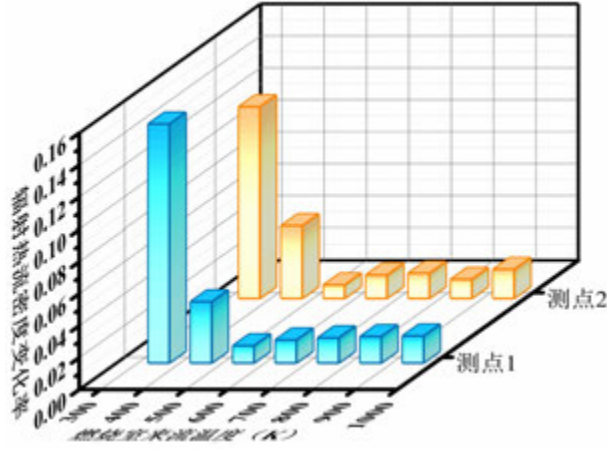


图7 测点1、2辐射热流密度变化率随来流温度的变化

综上所述，油气比、燃烧室压力和燃烧室来流空气温度均对壁面辐射热流密度产生一定影响。取上述三个因素影响下的测点1、2处壁面辐射热流密度平均变化率作为评价指标，分析各指标所占的比例。

以来流空气温度影响下的热流密度平均变化率为例，如图7所示，测点1处的热流密度平均变化率为 $\overline{\eta'_T} = \frac{\sum \eta'_T}{n} = 0.037$ ，测点2处的热流密度平均变化率为 $\overline{\eta''_T} = \frac{\sum \eta''_T}{n} = 0.034$ 。同

理，油气比影响下测点1、2热流密度平均变化率（ $\overline{\eta'_O}$ 、 $\overline{\eta''_O}$ ）分别为0.707和-0.006，

压力影响下测点1、2热流密度平均变化率（ $\overline{\eta'_P}$ 、 $\overline{\eta''_P}$ ）分别为0.215和0.017。利用

$$\xi'_i = \frac{\overline{\eta'_i}}{\sum_{i=T,O,P} \overline{\eta'_i}}, \quad \xi''_i = \frac{\overline{\eta''_i}}{\sum_{i=T,O,P} \overline{\eta''_i}}$$

得到测点1位置处油气比、压力和来流空气进口温度工况下的

各指标权重系数 ξ'_i 分别为0.737、0.224和0.39；测点2位置处油气比、压力和来流空气

进口温度工况下的各指标权重系数 ξ''_i 分别为0.105、0.597和0.298。因此，油气比、燃

烧室压力对壁面辐射热流密度的变化起着关键作用。

3 结 论

本文采用ANSYS Fluent软件对直流燃烧室火焰筒进行了数值仿真，研究了油气比、燃烧室内压力 and 燃烧室来流空气进口温度对壁面辐射热流密度的影响规律。研究结果如下：

(1) 一定燃烧室内压力下，测点1位置辐射热流密度随油气比的增加而升高，测点2位置辐射热流密度随油气比的增加呈先升高后降低的变化趋势，并且存在一个最

佳油气比使得测点 2 位置处辐射热流密度最大, 该最佳油气比为 0.04。

(2) 在一定油气比下, 测点 1、测点 2 位置辐射热流密度随燃烧室压力的增加呈先升高后降低的变化趋势, 并且存在一个最佳燃烧室内部压力使得这两个测点位置处辐射热流密度最大, 该最佳燃烧室内部压力为 4 atm。

(3) 在一定油气比下, 测点 1、测点 2 位置辐射热流密度随燃烧室来流空气进口温度的增加而升高。

(4) 油气比、燃烧室压力和燃烧室来流空气温度均对壁面辐射热流密度产生一定影响, 其中油气比、燃烧室压力对壁面辐射热流密度的变化起着关键作用。

参考文献

- [1] VISKANTA R, MENG M. Radiation heat transfer in combustion systems [J]. Progress in Energy and Combustion Science, 1987, 13(2): 97-160.
- [2] SIEGEL R, SPUCKLER C M. Analysis of thermal radiation effects on temperatures in turbine engine thermal barrier coatings [J]. Materials Science and Engineering: A, 1998, 245(2): 150-159.
- [3] 赵坚行, 刘全忠. 燃气轮机燃烧室中贴体网格的生成与应用 [J]. 推进技术, 1994, 2(1): 6-13.
- [4] 孟岚. 燃气轮机燃烧室三维湍流的数值仿真 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学, 2002.
- [5] 张文普, 丰镇平. 燃气轮机环形燃烧室内燃烧流动的数值模拟 [J]. 动力工程, 2004, 24(1): 37-40.
- [6] PAUL M, JONES W. Radiative heat transfer in a model gas turbine combustor [J]. WIT Transactions on Engineering Sciences, 2006, 5(3): 413-421.
- [7] DOS SANTOS R G, LECANU M, DUCRUIX S, et al. Coupled large eddy simulations of turbulent combustion and radiative heat transfer [J]. Combustion and Flame, 2008, 152(3): 387-400.
- [8] GHOSE P, PATRA J, DATTA A, et al. Prediction of soot and thermal radiation in a model gas turbine combustor burning kerosene fuel spray at different swirl levels [J]. Combustion Theory and Modelling, 2016, 1(3): 1-29.
- [9] 王文萍. 燃气轮机高温部件对流/导热/辐射耦合的流动传热机理研究 [D]. 北京: 清华大学, 2012.
- [10] 尹洪, 王文萍, 任静, et al. 燃烧室出口辐射对气膜冷却传热影响研究 [J]. 工程热物理学报, 2012, 33(2): 214-217.
- [11] 王振华. 发动机热端部件高温非灰介质辐射换热的数值研究[D]. 哈尔滨工业大学, 2017.

基于 OCO-2 卫星辐射光谱测量的大气 XCO₂ 快速反演

谢逢欣^{1,2}, 任涛¹, 赵长颖¹

(¹上海交通大学中英国际低碳学院, 上海 201306; ²东京大学大气与海洋研究所, 日本千叶 277-8564)
(Email: tao.ren@sjtu.edu.cn)

摘要: 随着大气中二氧化碳(CO₂)等温室气体含量的不断上升, 全球气候极端变化更加频繁, 对人类生产生活的各个方面都产生了影响。目前, 天基遥感卫星监测手段作为实现全球范围内高时空分辨率监测大气 CO₂ 含量的优选方法, 得到了各国和地区的重视。与传统的 CO₂ 柱浓度(XCO₂)反演算法所采用的逐步迭代优化的方法不同, 本研究提出了一种基于大气辐射传输模拟和数据驱动的监督式神经网络方法, 用于解决大气 CO₂ 浓度反演中遇到的非线性反问题。该方法使用卫星测量的大气吸收光谱数据为输入, 可实现快速反演大气层内部 XCO₂ 的含量。与 OCO-2 卫星任务采用的传统反演方法相比, 神经网络模型的预测结果以毫秒级的效率实现了对 XCO₂ 的高精度反演预测, 反演误差约为 2 ppm (0.5%)。与此同时, 本文还将神经网络模型的反演结果与东亚地区多个 TCCON 站点提供的高精度 XCO₂ 测量数据进行了对比, 模型预测的结果也能够匹配 XCO₂ 的季节性变化和逐年增长的趋势。

关键词: 辐射传输, 二氧化碳, 机器学习, 卫星遥感

0. 前言

自工业革命以来, 人类生产活动导致大量以二氧化碳为主的温室气体排入大气。温室气体的持续增加导致全球变暖, 对人类的生产生活产生了诸多不利的影响^[1]。准确估算大气中的碳通量可以提供必要的碳排放基础数据, 对于国家和地区减少二氧化碳排放至关重要。然而, 要获取碳通量的准确估算, 需要通过数据同化的方式, 从各地二氧化碳柱浓度(XCO₂)中协同求解不同地区间的二氧化碳浓度数据^[2]。大气层内二氧化碳的含量难以通过气球或飞行器等直接方式进行全球范围内的大面积测量。目前主要的监测方式是通过光谱仪记录特定 CO₂ 吸收波段的光谱数据, 然后根据特定的反演算法获取大气中 CO₂ 的浓度信息。目前全球大气二氧化碳监测主要分为地基站点监测和天基遥感卫星监测两种。

地基站点监测以分布在全球的总碳柱观测网络(Total Carbon Column Observing Network, TCCON)为主^[3]。地基遥感监测站点分布稀疏, 对于地理环境较差、气候环境恶劣的区域无法布置观测站点。因此, 在全球碳监测和碳循环评估过程中无法提供大范围高精度的数据支持。但得益于 TCCON 站点搭建的超高光谱分辨率的光谱仪能够获取高信噪比的大气吸收光谱数据, 地基站点反演的 XCO₂ 具有极高的准确度: 在晴朗天空背景下精度能达到 0.1% (<0.4 ppm), 在相对晴朗的天气条件下(少量云层、气溶胶粒子), 精度也能达到 0.25% (<1 ppm) 以内^[4]。由于 TCCON 站点相对较高的精度和准确度, TCCON 数据被广泛用于卫星反演产品的验证和模型比较。

高光谱遥感温室气体卫星通过在卫星上搭载光谱仪来接收穿过地球大气层以及地表相互作用之后的太阳辐射光谱, 并据此展开温室气体相关参数的反演。太阳辐射经过地球大气的吸收、散射并与地表作用后被卫星遥感探测器所接收。高光谱遥感卫星相对于地基观测, 太阳辐射信号经过了更多的大气层光程, 观测光谱携带更多潜在信息, 但从卫星观测光谱中提取出有效信息的难度也更大。相对于地基监测手段, 天基监测不受空间地理和时间的限制, 有望实现对全球和区域范围内温室气体浓度的高分辨率动态

监测。因此,基于卫星平台的天基监测手段也成为各国温室气体监测未来发展的重要方向。中国于2016年发射的TanSat卫星^[5]、日本分别于2009年和2018年发射的GOSAT (Greenhouse Gases Observing SATellite)系列卫星^[6,7]、以及美国于2014年和2018年年发射的OCO (Orbiting Carbon Observatory)系列卫星^[8]等都是为了实现大范围二氧化碳等温室气体的监测任务而开发的。其他计划的天基温室气体监测任务包括法国国家空间研究中心的MicroCarb^[9]任务和欧洲航天局的哥白尼二氧化碳监测CO2M^[10]任务等。单一碳卫星受到分辨率、测量幅宽以及气象条件的限制,对区域碳排放监测能够提供的高分率测量数据非常有限。为了更好地利用卫星遥感数据服务于温室气体监测,主流的温室气体监测卫星都朝着更高的光谱分辨率、更高的空间分辨率、更大的地面幅宽方向发展。这些发展将有利于探测温室气体分子吸收光谱中更精细的特征,有助于提高温室气体的探测精度和时空分辨率。然而,获取满足碳源和碳汇监测的卫星数据集,仅有卫星探测技术的提高还不足,还需要大幅提高卫星遥感温室气体浓度反演的精度和效率。尽管下一代温室气体遥感卫星的探测能力将得到有效的提升,但是任何单独一颗卫星依然无法满足对全球碳源和碳汇动态监测的需求,需要将碳监测卫星组合成一个多源的观测系统,建立碳监测卫星体系,进而高效率、全方位捕捉区域碳源碳汇的变化特征。为了高效地反演多源卫星测量的高光谱分辨率的海量遥感数据,反演高精度的大气温室气体浓度分布,从而产生高时空分辨率的多源温室气体观测数据产品,开发全新的高精度、大通量温室气体反演方法,将是亟需解决的关键问题之一。

针对温室气体高光谱遥感监测,国内外主流的反演算法主要是基于全物理场的非线性最优化理论,在非线性迭代过程中对大气层中各物理量不断进行优化更新,使得辐射传输正向计算模拟的光谱与实际观测的光谱相匹配,达到反演监测区域温室气体浓度的效果。反演求解过程中仍需要频繁地从高分辨率光谱吸收系数数据库中进行插值进而获取气体的光谱吸收系数,并重复进行辐射传输计算,严重影响了反演计算的效率。由于这些因素的限制,基于非线性迭代最优化理论的反演算法已经成为高精度高光谱遥感温室气体监测研究中的重要瓶颈。

近年来,机器学习在各项研究领域中发挥优异的性能,挖掘数据之间潜在的非线性关系被当作机器学习最基础也是最重要的应用之一。诸多的研究也已经将机器学习应用于遥感反演领域。Hadji-Lazaro等人^[11]针对天底点模式(Nadir Mode)下的高光谱分辨率天基测量光谱,利用神经网络模型反演了全球范围内CO总柱浓度的分布,证明了机器学习模型对大气微量气体反演任务的可行性。Blackwell^[12]利用星载大气红外探测仪等仪器数据提出了一种基于机器学习的新式反演大气温度和湿度廓线的统计方法。对于CO₂监测,David等人^[13]和Bréon等人^[14]先后尝试利用多层感知机人工神经网络模型建立了欧洲气象中心CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service)数据库的XCO₂与OCO-2卫星监测光谱之间的关联联系。然后,他们所使用的CAMS数据库中的XCO₂是以百公里级的空间分辨率进行插值获取的,与卫星实际观测的目标点的大气状态存在较大区别。此外,他们建立模型时所采用的测试数据集并没有超越训练数据集集所属的时间范围,并没有进一步验证模型是否能够应用于“未来”卫星光谱数据的反演任务中。实际遥感应用的泛化性值得进一步的探究和验证。

综上,本研究基于OCO-2卫星提供的全球监测的高光谱数据,建立了更完善且准确的XCO₂反演的机器学习模型。模型能够对卫星监测的大气光谱数据以毫秒级的速度进行准确地反演,摆脱了传统非线性迭代优化模型中重复进行的高光谱模拟过程,同时也实现了在时间的尺度上对“未来”二氧化碳浓度的预测。模型反演结果与OCO-2卫星传统方法反演的结果以及TCCON站点测量的结果进行对比和验证。本研究在确保XCO₂反演精度结同时,极大地提升了光谱反演的效率,为未来可预见的海量天基多源遥感高光谱数据的快速反演提供了有效的解决方案。

1. 反演模型训练

1.1 机器学习模型的构建

本研究所建立的机器学习模型基于经典多层感知机（MLP）人工神经网络，用于从 OCO-2 卫星观测的大气吸收光谱中反演对应的 XCO_2 值，本文将其称之为“MLP- XCO_2 模型”。结合 OCO-2 卫星运行模式和大气辐射传输原理，该 MLP 人工神经网络的输入层所需元素总结为三类：

光谱信息：本文 MLP- XCO_2 模型输入层的卫星光谱数据选取 $1.6\ \mu\text{m}$ 的弱 CO_2 波段（ WCO_2 ）和 $2.06\ \mu\text{m}$ 的强 CO_2 波段（ SCO_2 ）。虽然 OCO-2 卫星也记录了包括 O_2-A 波段在内的三个波段光谱数据，但 O_2-A 波段的作用是为了快速判断、筛选并排除气溶胶等粒子大气含量较大的观测点，服务于数据的预处理过程，以排除这些难以取得准确反演结果的观测点，从而避免占用的过多的计算资源，而 CO_2 大气浓度分布的信息主要是从上述两个 CO_2 吸收波段中反演获取的。因此，本文所建立的基于数据驱动的机器学习模型， O_2-A 波段的光谱信息并不会为最终 XCO_2 的反演提供有效的信息。尽管机器学习模型有能力自行辨别这些信息，避免对最终结果的干扰，但直接剔除冗余信息会让训练过程更高效。这种处理方式的可行性在 Bréon 等人^[14]的研究中也已经得到了验证。

地理位置信息：本文构建的模型中，太阳、卫星与观测点三者共同决定的四个观测角度（卫星天顶角、卫星方位角、太阳天顶角以及太阳方位角）被列入输入层的元素中。在数据输入形式上，不同于其他三个角度，太阳天顶角在辐射传输方程中主要以余弦的方式呈现，而其余角度均以弧度的形式输入。除角度外，本研究在输入层中还加入了日地距离、地球与卫星的相对速度这两个卫星实时记录的信息。日地距离直接影响太阳光谱强度的上限；而地球与卫星的相对速度则影响 OCO-2 卫星光栅光谱仪光栅点和波长之间的对应关系，二者均能直接影响最终光谱的辐射强度。

先验信息（Profile）：在传统的 OCO-2 卫星的反演算法中，温度、 H_2O 廓线的优化自由度仅为 1，即只有一个参数用以修正温度和 H_2O 廓线，而不改变先验廓线的大气分层状态。然而，计算 XCO_2 的所需的大气分层权函数需要 H_2O 完整的廓线分布信息，而且大气各层温度的变化则会直接影响大气内吸收性气体（ CO_2 和 H_2O 等）对太阳辐射信号的吸收，直接影响卫星最终接收到的辐射信号强度。因此，在本文的研究中，我们在神经网络模型输入层采用了大气所有分层的温、湿度廓线信息。

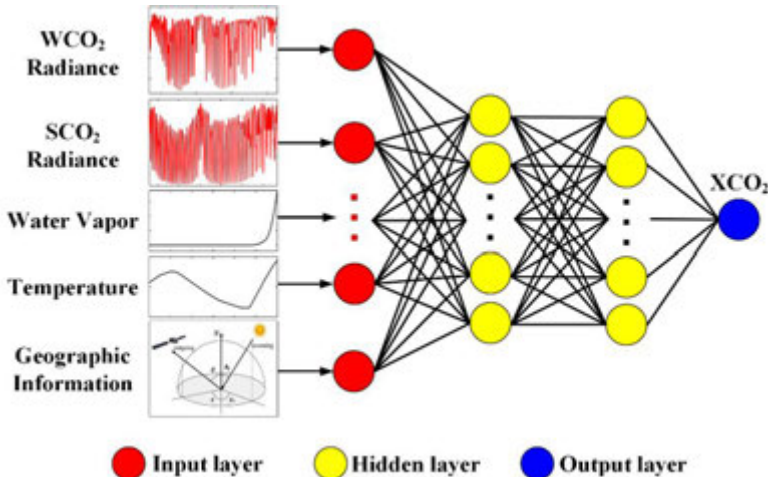


图 1. 反演模型 MLP- XCO_2 神经网络结构图

综上，神经网络的输出层为 XCO_2 。输入层为筛选后的光谱信息、预处理后的地理位置信息、必要的先验信息（Profile），整个神经网络框架图如图 1 所示，输入层信息汇

总如表 1 所示。

表 1 MLP-XCO₂ 神经网络输入层元素明细表

输入类型	元素名称	元素个数
光谱信息	CO ₂ -Weak	525
	CO ₂ -Strong	755
地理位置信息	太阳天顶角的余弦	1
	太阳方位角	1
	卫星天顶角	1
	卫星方位角	1
	太阳-地球距离	1
	卫星-地球相对速度	1
先验信息	温度廓线	20
	水汽廓线	20
	地表压力	1
总计		1327

1.2 数据检索筛选

在进行模型训练之前，本文对 OCO-2 卫星数据所覆盖的范围进行了必要地筛选。若不对数据范围加以筛选，OCO-2 卫星所记录的一年内的光谱数据（L1B 文件）总量就超过 5TB。假设将 OCO-2 卫星 2016 年至 2020 年全部的光谱数据、温室气体反演产品数据、反演算法所涉及的参数等全部考虑在内，五年份的文件大小总计将超过 40TB，这使得基于数据驱动的机器学习模型需要超大容量的存储空间来存储并生成对应的所需的训练与测试集。其次，天基卫星的反演结果的准确性（或可信度）对每个观测点都各不相同。若将数据质量较差的样本收入神经网络训练的数据集中，不可避免地会偏移机器学习模型训练的权重，增加模型的训练难度和模型的不确定度。基于以上原因，本文目前仅针对东亚陆地地区（经纬度范围：20°N-45°N，110°E-145°E，如图 2 所示）、选用了 Nadir 卫星监测模式下、QF（Quality Flag）综合评测结果“Good”的 OCO-2 观测数据，用于后续反演的研究工作。东亚地区现有多个 TCCON 站点，即图 2 红点标识区域。针对东亚地区开展研究工作也有利于后续利用 TCCON 数据对反演结果进行验证。此外，如果基于东亚地区建立的模型能够高效且准确地实现 XCO₂ 的反演工作，一方面能够为训练全球统一的反演模型进行可行性研究，另一方面后续也可以通过“拼图化”的方式对全球各地区的 XCO₂ 反演工作直接提供有效的解决方案。

基于上述的筛选条件，本文基于卫星产品数据所建立的机器学习模型，共收集了 2016-2018 年间 3、6、9、12 月份的 OCO-2 卫星观测数据与反演结果作为训练数据，2019-2020 年间同等月份的 OCO-2 卫星观测数据与反演结果作为测试样本，对训练完成后的模型在时间尺度上的实用性进行测试。“未来可预测性”需要训练完成的模型能够在超出训练样本的时间范围中也能够预测出准确的结果，这是本文所建立的反演模型所需要具备的基本特征之一。当 MLP-XCO₂ 反演模型能够利用“未来”测量的卫星观测光谱准确预测 XCO₂，才能够满足未来对大规模、高精度的温室气体大气分布的实时反演的需求。基于以上的筛选条件，本文在该地区共收集到了 2016-2018 年间的 86613 份数据样本，2019 年的样本数据量为 24204，2020 年为 32292。

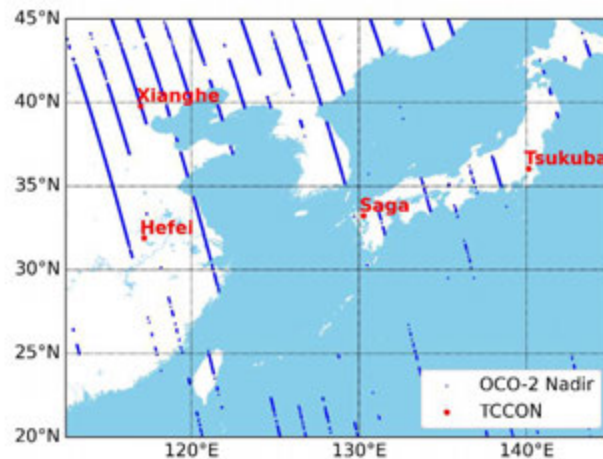


图 2. OCO-2 卫星在东亚地区测点的分布图以及该区域的 TCCON 站点

2 基于卫星产品数据的机器学习模型

本文首先采用上文中检索筛选的 OCO-2 卫星产品数据进行神经网络模型的训练，测试通过已有的卫星观测光谱以及其反演产品建立人工神经网络预测模型的可行性。本节建立的人工神经网络模型的超参数、神经网络各层的结构如表 2 所示。

表 2. MLP-XCO₂ 神经网络模型超参数、隐藏层结构和模型大小

模型名称	优化器	隐藏层结构	激活函数	模型大小
MLP-XCO ₂	Adam	(1000,500,300,100,20)	ReLU	20.5

基于卫星产品数据所建立的 MLP-XCO₂ 的训练、测试以及预测结果如图 3 所示，其中图 3(a)与 3(b)两幅子图分别为基于 2016–2018 年训练样本对模型的训练以及测试结果。测试数据集数据集是预先从样本数据中抽离的 5% 未参与模型训练的数据；图 3 (c)与 3(d)两幅子图分别为对 2019 和 2020 年光谱测量样本的 XCO₂ 反演（预测）结果。从图 3 所展示的结果可以观察到，机器学习模型在训练样本的年限范围内具有出色的预测能力，其均方根误差（RMSE）能够保持在 1 ppm 以内，完全能够胜任并代替 OCO-2 繁琐费时的反演算法；然而在对不在训练数据所属年份的 2019 和 2020 年进行测试时，不难看出预测结果出现了明显的滞后性偏移，且偏移的程度随着年份逐渐增大。机器学习模型的预测结果在 2019–2020 年测试样本范围内明显低于 OCO-2 反演的结果，偏差的逐年增加值与二氧化碳年平均增长值（约 2.5 ppm^[15]）相匹配。这说明机器学习模型并没有成功辨别出二氧化碳逐年递增的现象。作为基于历史产品数据的机器学习模型，偏差值的确定是一项后验性的工作，而这些后验信息在基于历史数据而建立的模型中是不存在的：模型并不具备足够对未来观测数据进行反演预测的可信度。

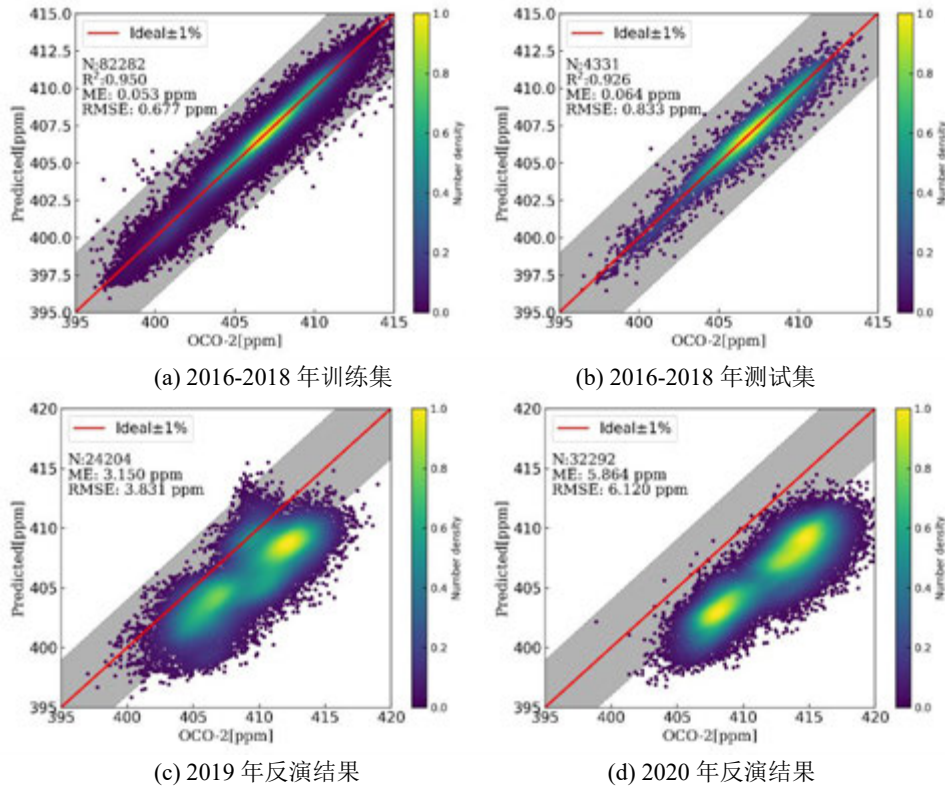


图 3. 基于 OCO-2 卫星产品数据训练的机器学习模型测试结果与 OCO-2 卫星产品结果对比图

3 基于大气辐射传输模拟数据的机器学习模型

上述基于 OCO-2 卫星的历史数据所建立的机器学习模型并不具备对“未来”的预测能力。因此，本文计划通过对未来可能出现的 CO_2 大气分布进行预先估计，再基于这些后验信息采用大气辐射传输计算（正向计算）生成与之对应的模拟卫星观测数据。本文基于大气辐射传输模拟数据所建立的 XCO_2 机器学习反演模型能够保持较高的预测精度，可以消除模型预测的系统性滞后偏差。

3.1 正向计算模型

为了能让基于模拟数据机器学习模型的训练样本有和卫星观测数据相似的特征，本文建立了一套以开源大气辐射传输模型 ReFRACtor^[16]为基础的大气辐射求解正向计算模型，并对卫星实际观测的大气吸收光谱进行了模拟。ReFRACtor 模型对卫星观测光谱的模拟主要由两部分组成，分别为大气状态模型（Atmospheric State）和正向计算模型（Forward Model）。大气状态模型负责收集输入端获取的大气各热力学状态廓线（压力、温度等）、各主要气体（ H_2O 、 CO_2 等）的大气廓形；正向计算模型主要负责大气层内分层的辐射传输过程和地表反射过程的数值求解。

OCO-2 卫星观测的辐射信号光谱范围主要是短波红外（Short-wave-infrared, SWIR）的二氧化碳波段，其信号以大气层顶部的太阳辐照度（Solar Irradiance）为基准，通过大气层吸收、地表反射和大气再吸收后被卫星探测器所接收。对于波数为 η 的辐射信号，ReFRACtor 模型在大气层分层中对如式（1）所示的辐射传输方程^[17]（Radiative Transfer Equations, RTE）进行数值求解：

$$\mu \frac{dI_{\eta}(\tau_{\eta}, \mu, \phi)}{d\tau_{\eta}} = -I_{\eta}(\tau_{\eta}, \mu, \phi) + J_{\eta}(\tau_{\eta}, \mu, \phi) \quad (1)$$

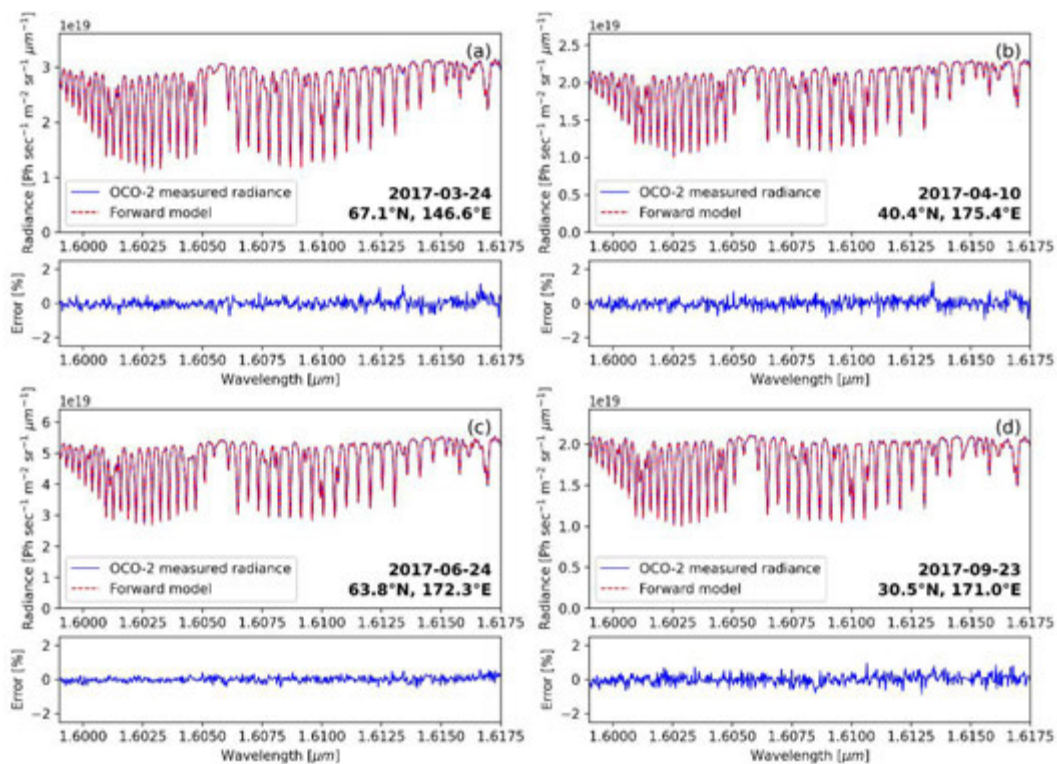
其中 I_{η} 是光谱辐射亮度 (Spectral Radiance), τ 表示辐射信号传播路径上的光谱光学厚度 (Optical Thickness, OT), μ 表示传输方向的余弦, 在大气向下传输过程中, μ 是太阳天顶角 θ (Solar Zenith) 的余弦; ϕ 表示传输过程的方位角 (Azimuth), J 表示辐射传输方程的源函数, 包含辐射传输过程中的散射项与发射项。针对本文 OCO-2 卫星观测的太阳光谱主导的 SWIR 波段, 辐射传输方程式(1)在求解时满足大气顶层向下和地表反射后向上情况下的两个边界条件, 分别为式 (2) 和 (3) [17]:

$$I_{\eta}(0, \mu, \phi) = S_{0,\eta} / \pi \quad \text{for } 0 \leq \mu \leq 1 \quad (2)$$

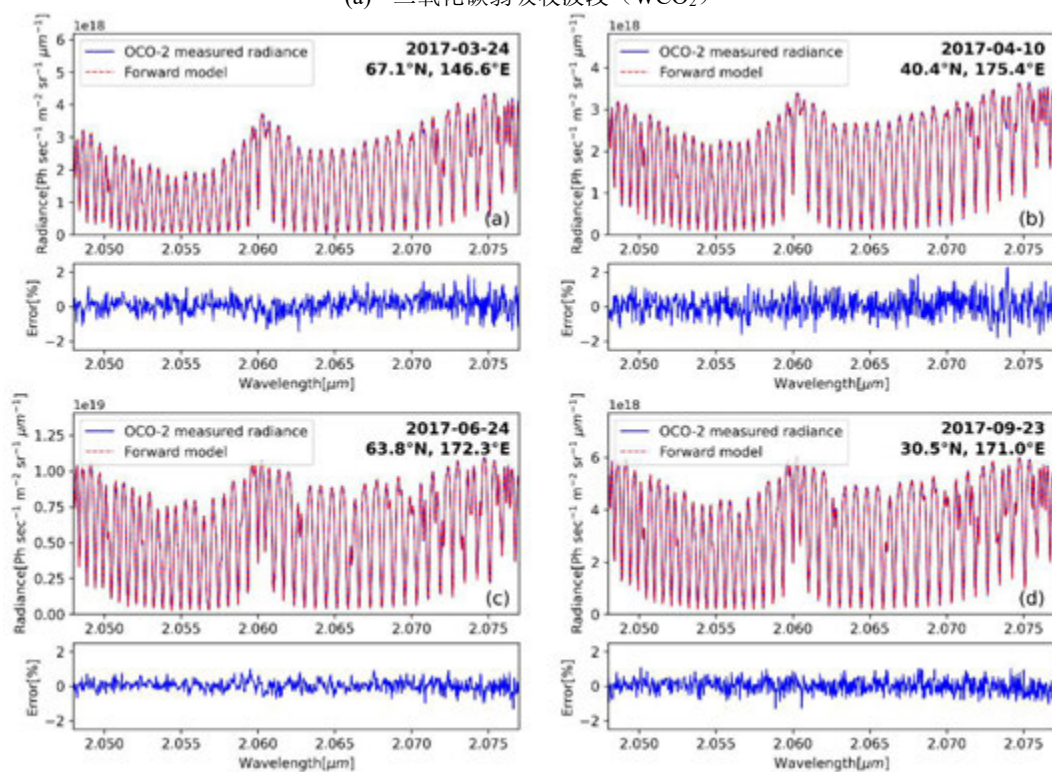
$$I_{\eta}(\tau_{0,\eta}, \mu, \phi) = \frac{1}{\pi} \int_0^1 d\mu' \int_0^{2\pi} d\phi' \mu' \rho(\mu, \phi; \mu', \phi') I_{\eta}(\tau_{0,\eta}, \mu', \phi') \\ + \frac{\mu_0}{\pi} \rho_{\eta}(\mu, \phi; \mu_0, \phi_0) S_{0,\eta} \exp\left(-\frac{\tau_{0,\eta}}{\mu_0}\right) \quad \text{for } -1 \leq \mu \leq 0 \quad (3)$$

其中 $S_{0,\eta}$ 为入射的大气层顶部太阳辐照度; τ_{η} 为大气垂直总光学厚度, ρ 代表地表反照率 (Albedo)。式(2)和式(3)分别代表太阳光谱首次进入大气层时下行传输的初始边界条件和经过地表反射后未受到大气层二次影响状态下的上行传输边界条件。在 ReFRACtor 模型中, 计算 ρ 的地表反射模型定义为双向反射分布函数 [18] (Bidirectional Reflectance Distribution Function、BRDF), 受入射方向角 θ_0 、入射方位角 ϕ_0 、出射方向角 θ 和出射方位角 ϕ 共同决定。

本文针对 OCO-2 卫星观测的两个 CO_2 主要波段: $1.6 \mu\text{m}$ 的弱 CO_2 波段 (W CO_2) 和 $2.06 \mu\text{m}$ 的强 CO_2 波段 (S CO_2), 采用大气辐射传输计算, 模拟计算卫星观测的大气吸收光谱, 通过与卫星测量的光谱进行对比, 验证正向计算模拟的可靠性。为了提高正向计算的效率并节省内存空间, 本文将课题组开发的神经网络气体逐线光谱吸收系数预测模型 [19] 嵌入 ReFRACtor 当中, 最后通过优化的正向计算模型模拟了实际 OCO-2 卫星记录的观测光谱。模拟过程中所需要的大气垂直谱线分布信息通过检索 OCO-2 发布的 L1B、L2std 数据产品获取。图 4 展示了针对不同测量时间和测点模拟计算与卫星观测光谱的对比。通过对比卫星实际观测光谱可以发现, 本研究建立的基于 ReFRACtor 正向计算模型在不同的 CO_2 波段均有具有很高的准确性, 相对误差均保持在 1% 以内, 此模型为后续通过模拟光谱数据进行驱动的机器学习模型的建立提供了可靠的保障。



(a) 二氧化碳弱吸收波段 (WCO₂)



(b) 二氧化碳强吸收波段 (SCO₂)

图 4. 正向计算模型模拟结果与 OCO-2 卫星实际观测光谱结果的对比

3.2 基于模拟数据生成模型训练集

尽管前文的正向计算结果表明本文所建立的大气辐射传输计算模型能够准确模拟卫星的观测光谱，可以为机器学习模型的训练提供数据。然而，训练机器学习模型所需的数据集也包括了大气状态参数。最简单的生成大气状态参数的方法是以当前大气状态为基准，使得大气分层内的气体浓度、温度和压力等参数在一定范围内随机变化，以此生成尽可能多的泛化数据组合。然而在模拟计算卫星观测光谱的过程中，涉及大量的输入参数，包括但不限于：大气内温湿度廓线、各吸收性气体廓线、气溶胶分布情况、地表反照率及观测时的各种地理位置、观测角度等信息。若上述每一种变量都随机生成，以此产生训练模型所需的模拟数据，一方面所需的泛化样本数量极为庞大，另一方面将会导致部分样本不具备物理意义，无法对模型提供有效的训练。例如，太阳、观测点与卫星三者共同决定的四个观测角度（两个方位角、两个天顶角）在卫星周期性运行期间存在固定的组合，随机取值的组合样本在现实中可能并不存在，此类模拟卫星的样本在训练集中无法为实际卫星观测样本提供有效的信息。因此，在生成模拟光谱训练集之前，有必要对正向计算模型中涉及的变量在实际卫星运行期间的变化情况进行统计和筛选。

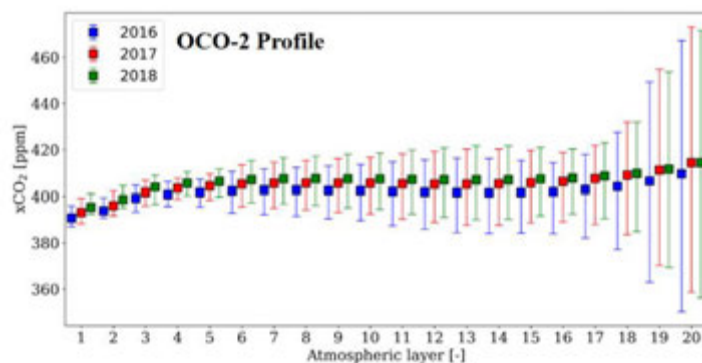


图 5. 2016 - 2018 年 OCO-2 卫星反演二氧化碳产品的垂直分布年变化图

二氧化碳垂直廓线在 ReFRACtor 模型中按照压力被分为 20 层大气分层。本文通过对 OCO-2 卫星已有产品反演的先验分别在 2016-2018 年全年进行了统计，各分层的平均数与最大最小值如图 5 所示。从图中能够看出，大气层顶层至近地面二氧化碳的含量差距逐渐扩大，越靠近地面其不确定度更大。然而随着年份的增加，二氧化碳各层的含量与上下限则是稳定地偏移，这使得每年二氧化碳可能出现的分布情况变得有迹可循。本文通过以 2016 年 CO₂ 的 OCO-2 反演垂直分布为基准，以逐年递增 2.5 ppm 的方式模拟随后年份的二氧化碳大气分布，达到覆盖所需预测年份可能出现的 CO₂ 大气分布的效果，用来生成所需训练年份的模拟光谱。

除了二氧化碳大气垂直分布廓线参数外，正向计算模型还需输入的其他大气状态参数，如地表压力、地表温度、水汽廓线、温度廓线、观测角度等。通过对东亚地区长达五年的 OCO-2 卫星观测记录数据的统计，能够较为直观的展示出各参数的年变化规律，即虽然这些参数存在季节性高低变化，但每年都呈现出周期性变化的规律，统计结果如图 6 所示。因此，对于这些变量本文仅采用了 2016 年的观测数据作为基准。

综上所述，本文基于 2016 年 OCO-2 卫星全年观测数据的均采样共 10000 组观测样本为基准，生成了 2016-2020 年的模拟光谱，总计五万组训练样本，用于训练新的 MLP-XCO₂ 机器学习模型。新模型仅通过 2016 年所记录 OCO-2 卫星的数据为基准，通过数据增强 (Data Augmentation) 使模型能够准确高效地实现对“未来”(2017-2020 年) 的 XCO₂ 反演工作。

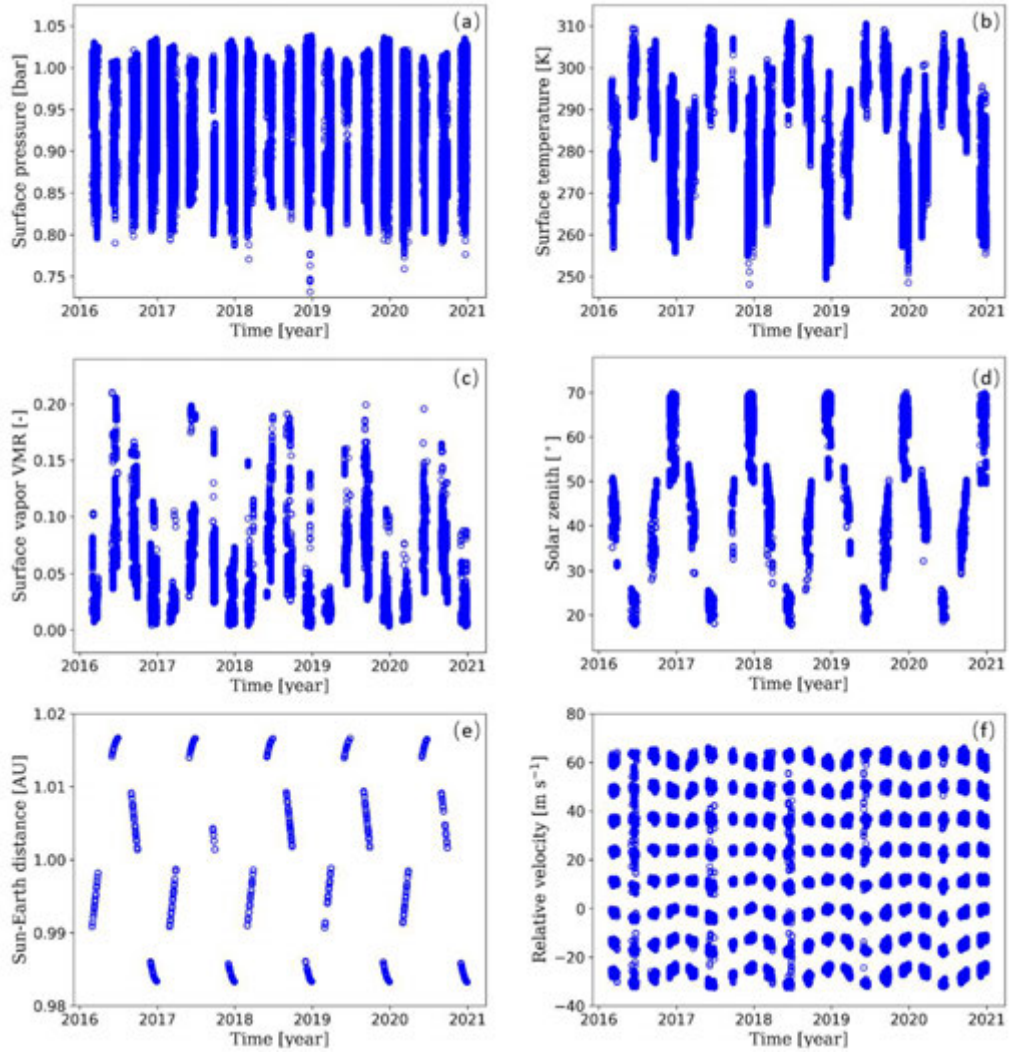


图 6. 2016-2020 年 OCO-2 卫星产品记录的各变量逐年变化

4. XCO₂ 反演结果及分析

4.1 与 OCO-2 卫星反演产品的对比

为了展示基于模拟数据训练的机器学习模型的反演效果，MLP-XCO₂ 模型的结构与超参数选取同原来基于 OCO-2 卫星产品数据训练并优化完成的模型相同，如表 2 所示，以此说明前后模型的泛化能力的差距。

图 7(a)展示模型对于测试数据的反演结果；图 7(b)展示了 MLP-XCO₂ 模型对 OCO-2 卫星在 2016 年观测光谱的反演结果，并与 OCO-2 反演的结果进行了对比。图 8(a)、(b)、(c)、(d)分别展示了 MLP-XCO₂ 模型对 2017 年至 2020 年 XCO₂ 的预测，用于反演测试的数据集样本与图 3 中的数据完全一致。

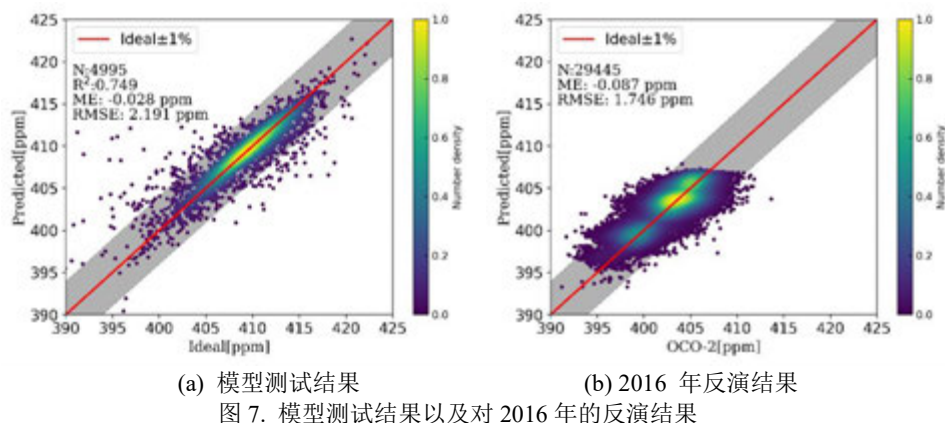


图 7. 模型测试结果以及对 2016 年的反演结果

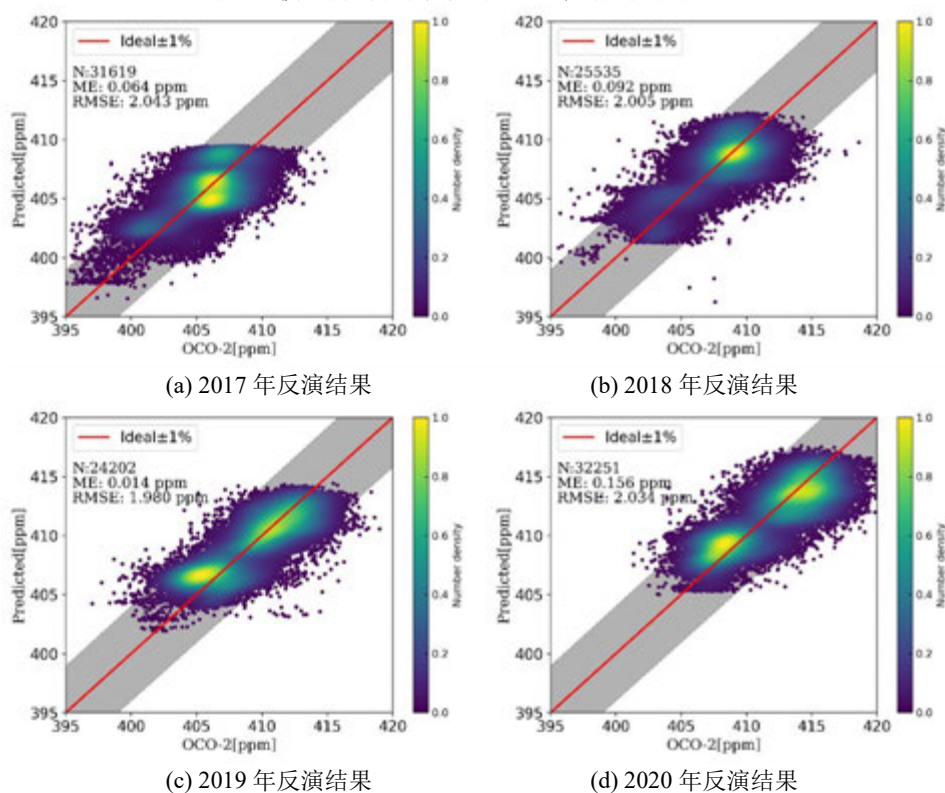


图 8. 2017-2020 年 OCO-2 卫星观测光谱反演结果

从上述测试结果得散点图能够看出，基于模拟数据的机器学习训练模型能够准确且稳定地预测出二氧化碳逐年增长的趋势，并且 RMSE 能保持在 2ppm 左右（0.5%）。与之前基于历史产品数据的机器学习模型相比，基于模拟数据的 MLP-XCO₂ 模型最大的优势是通过对未来可能出现的 CO₂ 大气分布进行合理地预测，通过大气辐射传输计算以此生成与之对应的卫星观测光谱。以这样的模拟数据对机器学习模型进行训练，能够有效地消除“滞后性系统偏差”，能够保持对“未来”大气中 XCO₂ 较高的预测精度。

4.2 与 TCCON 站点反演结果的对比

本文在与 OCO-2 卫星反演数据对比的基础上，还针对 MLP-XCO₂ 训练数据集所属的东亚地区，将 OCO-2 卫星 Nadir 模式的反演结果、MLP-XCO₂ 的反演结果与 TCCON 站点提供的数据进行了对比。图 2 中标出了三个 TCCON 站点，分别是日本筑波站点

(Tsukuba, Japan)、日本佐贺站点 (Saga, Japan) 和中国合肥站点 (Hefei, China)。中国香河站点由于建站时间较迟, 且 OCO-2 卫星以 15-16 天为周期覆盖全球, 导致能够对比的数据样本极少, 因此在本文的工作中不做比较。图 9 为三者数据在三个不同的 TCCON 站点观测区域的反演结果对比的时间序列图。OCO-2 卫星运行于地球特定高度的卫星轨道, 卫星能够稳定保持观测点的当地时间基本相同。由于 TCCON 站点所采用的 IFS-125HR 光谱仪测量与 OCO-2 卫星测量相互独立, 且各自每次测量需要一定的时间, 因此本本根据表 3 的范围对 TCCON 的样本数据和 OCO-2 卫星观测数据进行了时空筛选, 以获取时空相互匹配的大气监测数据。

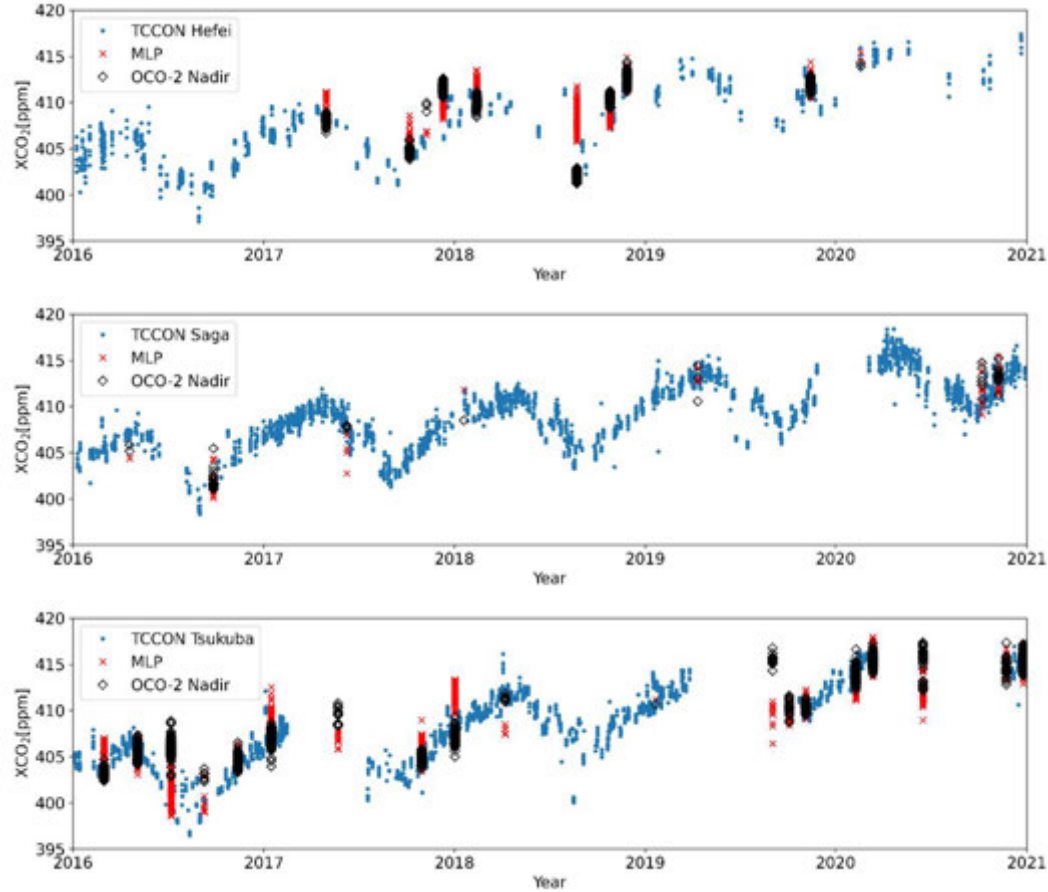


图 9. 基于模拟数据训练的机器学习模型与 TCCON 和 OCO-2 算法反演柱浓度结果的对比

表 3. TCCON 站点与 OCO-2 卫星 Nadir 模式观测样本对照标准表

TCCON 站点	站点筛选时间	卫星观测筛选坐标	卫星观测当地时间
Tsukuba	12:48-12:58	36.05°N±0.2°,140.12°E±0.2°	12:53
Saga	13:30-13:40	33.24°N±0.2°,130.29°E±0.2°	13:35
Hefei	13:20-13:30	31.90°N±0.2°,117.17°E±0.2°	13:25

从图 9 展示的三组时间序列对比图能够看出, 基于模拟数据训练的 MLP-XCO₂ 模型反演的结果能够匹配 TCCON 站点准确反演的 XCO₂ 结果, 并且在长达 5 年的时间内均保持稳定的准确度。同时 MLP-XCO₂ 的预测结果成功地匹配了不同的季节的周期变化以及 XCO₂ 的增长趋势, 并且能够在部分观测样本 (Tsukuba: 2016 年 6 月、2019 年 9 月;

Saga: 2019 年 4 月; Hefei: 2017 年 11 月) 中优于 OCO-2 卫星反演的结果, 和地基高精度 TCCON 站点的反演结果匹配得更好。

4.3 反演效率

不同于 OCO-2 卫星传统的基于最优化理论的反演算法需要重复地对观测的光谱进行高精度的光谱模拟, MLP-XCO₂ 模型在实际应用时能够直接根据接收的光谱数据与记录的地理位置信息快速获取目标点的 XCO₂ 值。虽然机器学习模型需要预先花费时间进行模拟数据集的生成和神经网络的参数的优化工作, 但训练成功的模型能够直接用于对未来天基观测数据的实时反演工作。同时, 得益于 MLP 模型中矩阵运算这一特点, MLP-XCO₂ 模型的计算效率远优于传统的反演算法。在本文的研究中, 装载 AMD Ryzen-7 5800X 的 CPU 完成单次正向计算就需要约 10 s, 而 MLP-XCO₂ 模型在同款的 CPU 中反演 TCCON 三个站点对应的 1846 组 OCO-2 卫星光谱的数据只需要 0.708 s, 平均每组光谱只需 0.38 ms; 反演 32251 组 OCO-2 卫星 2020 年测试集共计 2.294 s, 平均每组光谱只需 0.07 ms, 极大地缩减了 XCO₂ 的反演时间。

5. 结论

本文旨在利用机器学习高效的回归反演能力, 建立基于大气辐射传输模拟数据的机器学习模型, 用于实现对卫星观测光谱的高效反演。以此克服基于最优化迭代的传统算法对 XCO₂ 的低效反演问题。本文先后对基于卫星产品数据和基于模拟数据的 XCO₂ 反演进行了机器学习模型的建模、训练和测试, 并对东亚地区 OCO-2 卫星陆地观测点测量的大气吸收光谱进行了长时间序列的反演预测, 模型反演结果与 OCO-2 反演数据以及 TCCON 的反演数据进行了对比。结果表明, 基于模拟光谱数据的机器学习模型能够有效地消除滞后性偏差, 同时具备毫秒级(<1 ms)的反演效率、较高的准确度(约 2 ppm)以及长时间的预测稳定性。

参考文献

- [1] Legg, S., IPCC, 2021: Climate change 2021-the physical science basis. Interaction, 2021. **49**(4): p. 44-45.
- [2] Yang, D., et al., Monitoring carbon dioxide from space: Retrieval algorithm and flux inversion based on GOSAT data and using CarbonTracker-China. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2017. **34**: p. 965-976.
- [3] Toon, G., et al. Total column carbon observing network (TCCON). in *Hyperspectral Imaging and Sensing of the Environment*. 2009. Optica Publishing Group.
- [4] Messerschmidt, J., et al., Calibration of TCCON column-averaged CO₂: the first aircraft campaign over European TCCON sites. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011. **11**(21): p. 10765-10777.
- [5] Liu, Y., et al., The TanSat mission: preliminary global observations. *Science Bulletin*, 2018. **63**(18): p. 1200-1207.
- [6] Nakajima, M., A. Kuze, and H. Suto. The current status of GOSAT and the concept of GOSAT-2. in *Sensors, Systems, and Next-Generation Satellites XVI*. 2012. SPIE.
- [7] Yokota, T., et al., Global concentrations of CO₂ and CH₄ retrieved from GOSAT: First preliminary results. *Sola*, 2009. **5**: p. 160-163.
- [8] Taylor, T.E., et al., Evaluating the consistency between OCO-2 and OCO-3 XCO₂ estimates derived from the NASA ACOS version 10 retrieval algorithm. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, 2023. **2023**: p. 1-61.
- [9] Pascal, V., et al. An improved microcarb dispersive instrumental concept for the measurement of greenhouse gases concentration in the atmosphere. in *International Conference on Space Optics—ICSO 2014*. 2017. SPIE.

- [10] Kuhlmann, G., et al. Detectability of CO₂ emission plumes of cities and power plants with the Copernicus Anthropogenic CO₂ Monitoring (CO2M) mission. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2019. **12**(12): p. 6695-6719.
- [11] Hadji-Lazaro, J., et al. An inversion algorithm using neural networks to retrieve atmospheric CO total columns from highgreenhouse gases concentration in the atmosphere. in *InternatiAtmospheres*, 1999. **104**(D19): p. 23841-23854.
- [12] Blackwell, W.J.. A neural-network technique for the retrieval of atmospheric temperature and moisture profiles from high spectral resolution sounding data. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 2005. **43**(11): p. 2535-2546.
- [13] David, L., et al. XCO₂ estimates from the OCO-2 measurements using a neural network approach. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2021. **14**(1): p. 117-132.
- [14] Bréon, F.-M., et al. On the potential of a neural-network-based approach for estimating XCO₂ from OCO-2 measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2022. **15**(18): p. 5219-5234.
- [15] Nordebo, S., et al. Estimating the short-time rate of change in the trend of the Keeling curve. *Scientific Reports*, 2020. **10**(1): p. 21222.
- [16] McDuffie, J. Reusable Framework for Retrieval of Atmospheric Composition(ReFRACtor) software. 2017. <https://github.com/ReFRACtor>.
- [17] David C., et al. Orbiting Carbon Observatory-2 & 3(OCO-2 & OCO-3) Level 2 Full Physics Retrieval Algorithm Theoretical Basis. 2021, Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology: Pasadena, California.
- [18] Breon, F. M., et al. A BRDF–BPDF database for the analysis of Earth target reflectances. *Earth System Science Data*, 2017. **9**(1): p. 31-45.
- [19] Xie, F., et al. A machine learning based line-by-line absorption coefficient model for the application of atmospheric carbon dioxide remote sensing. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2023. **296**: p. 108441.

基于 Elfouhaily 谱的复杂海况海面辐射特性研究

张跃¹, 高鹏¹, 陈奇祥¹, 袁远¹

(哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001)

(Tel:13285487164, Email:yuanyuan83@hit.edu.cn)

摘要: 复杂海况下的辐射传输模型是卫星遥感等领域的反演算法的基础。本文建立了一种复杂海况下辐射传输模型, 能够实现含泡沫粒子系的高等级复杂海况的辐射特性仿真。首先建立了基于 Elfouhaily 谱的粗糙海面模型。其次, 根据表面风速等级, 建立了海面泡沫粒子群的光学参数物性数据库。基于此, 验证了泡沫光学参数库以及复杂海况辐射传输模型的准确性。最后, 结合 TRMM 卫星数据产品的温度及海面风速数据, 分析了典型地理位置的辐射特性时空变化规律。

关键词: 复杂海况; 粗糙海面; 泡沫粒子群; 辐射特性

0 前言

海面辐射传输模型是卫星遥感、海洋生态环境监测以及海上目标探测与识别等多个领域的理论基础。它决定着现有的卫星数据产品反演算法和目标识别的准确性和可靠性^[1]。随着高分辨率、高光谱、多波段、多源同步数据等天基光学探测载荷的发展, 考虑多要素的精细海面辐射传输模型是一个重要的课题。

海面辐射传输模型分为随机粗糙海面建模和海面辐射特性仿真两个部分。当前卫星数据产品采用的粗糙海面建模包括几何构造法、分形法^[2]、物理模型法^[3]、动力模型法^[4]、海面功率谱模型法^[5]以及视觉效果法^[6]等。这些方法考虑了海面风速、风向角对海面形貌的影响。基于此类方法, 结合典型的海面形貌, 同时考虑海面云雾粒子^[7]、气溶胶粒子^[8]、水下悬浮粒子^[9]等多个参数, 通过卫星获得的辐射特性数据采用辐射传输方程对海面的风速、风向角等参数进行反演, 生成特定参数的卫星产品数据^[10]。对于辐射传输方程计算时, 多采用 Mie 理论计算吸收、散射系数^[11]。但是, 随着海浪风速等级的增加, 表面会产生破碎浪等悬浮泡沫粒子系, 且高海况下的泡沫粒子系不符合 Mie 理论的尺度参数范畴。现有的物性参数数据库无法完全表征吸收、散射系数以及散射相函数。此外, 现有的卫星数据产品多基于远洋条件的 PM 谱, 无法对高海况条件下的海面纹理进行精细仿真^[12]。因此, 随着高分辨率、高光谱、多波段等天基光学探测载荷的发展, 更精细的海面细节(海面泡沫、高海况纹理)成为制约卫星产品准确性的重要因素。

基于上述需求, 本文提出了复杂海况条件下的辐射传输模型。首先, 建立了基于 Elfouhaily 谱的粗糙海面模型, 可考虑 1~5 级海况。其次, 针对高海况等级破碎浪粒子, 基于几何光学理论, 建立了海面泡沫及破碎浪粒子群的光学参数算法并进行了算法验证。随后, 通过对海面建模仿真分析了海面风速与海面起伏以及泡沫数量、分布的关系, 建立了相应的光学特性数据库。在此基础上, 与实验测量的辐射特性对比, 验证了复杂海况条件下的辐射传输模型(覆盖 0~5 级海况条件)。最后, 结合 TRMM 卫星数据产品的温度及海面风速数据, 分析了典型地理位置的辐射特性时空变化规律。该模型可为高海况等级的卫星测量数据反演提供依据。

1 模型

1.1 基于 Elfouhaily 谱的海面建模

1.1.1 海浪谱模型

Elfouhaily, T^[13]在 1997 年提出一个包含重力以及毛细波曲率的全方位海面方差谱, 表示为两个高频和低频曲率谱的和:

$$S(k) = \frac{B_l + B_h}{k^3} \quad (1)$$

其中 B_l 和 B_h 分别表示低频曲率谱和高频曲率谱对方差的贡献。

低频曲率谱 B_l 通过下面公式求解:

$$B_l = 0.5\alpha_p (c_p/c) F_p \quad (2)$$

$$F_p = L_{PM} J_p \exp\left\{-0.3162\Omega_c (\sqrt{k/k_p} - 1)\right\} \quad (3)$$

$$c = \sqrt{(g/k)(1 + (k/k_m)^2)} \quad (4)$$

$$L_{PM} = \exp\left[-1.25(k_p/k)^2\right] \quad (5)$$

$$J_p = \gamma^\Gamma \quad (6)$$

$$\gamma = \begin{cases} 1.7 & \Omega_c \leq 1 \\ 1.7 + 6 \lg \Omega_c & \Omega_c > 1 \end{cases} \quad (7)$$

$$\Gamma = \exp\left\{-\frac{1}{2\sigma^2} \left[\left(\sqrt{k/k_p} - 1\right)^2\right]\right\} \quad (8)$$

$$\sigma = 0.08(1 + 4\Omega_c^{-3}) \quad (9)$$

其中, α_p 代表长波的广义 Phillips-Kitaigorodskii 平衡范围, 取决于无量纲波浪年龄 Ω_c , 即 $\alpha_p = 0.006\Omega_c^{0.55}$; Ω_c 是给定风速下的波浪的年龄, 对于充分发展的海洋, 取值为 0.84 (多用于 PM 谱), 对于“成熟”的海洋, 取值为 1, 对于“年轻”的海洋, Ω_c 可取 2~5; $k_p = k_o \Omega_c^2$ 代表海谱最大值对应的空间波数, 其中 $k_o = g/U_{10}^2$; c 是波的相速度; $c_p = \sqrt{g/k_p}$ 为峰值频率下的波浪的相速度; g 为当地重力加速度, 单位为 m/s^2 。

高频曲率谱 B_h 可以通过下面公式求解:

$$B_h = 0.5\alpha_m (c_m/c) F_m \quad (10)$$

$$F_m = L_{PM} J_p \exp\left[-0.25(k/k_m - 1)^2\right] \quad (11)$$

$$\alpha_m = \begin{cases} 0.01 \times [1 + \ln(u^*/c_m)] & u^* \leq c_m \\ 0.01 \times [1 + 3 \ln(u^*/c_m)] & u^* > c_m \end{cases} \quad (12)$$

其中, α_m 代表短波的广义 Phillips-Kitaigorodskii 平衡范围参数, 取决于无量纲参数

u^*/c_m ， u^* 是摩擦速度，单位为 m/s^2 ， c_m 是在曲率谱中假定的重力-毛细波峰值波数 $k_m = 370.0 \text{ rad/m}$ 下的最小相速度，数值为 0.23 m/s ； c 是波的相速度。

1.1.2 粗糙海面生成

为了更真实的仿真随即粗糙海面，本软件采用 Monte Carlo 方法，结合上述海浪谱模型，模拟生成海面的高度场。Monte Carlo 法的基本思想是对白噪声进行傅里叶变换，在频域对海面的功率谱进行滤波，再进行傅里叶逆变换得到海面的高度场^[14]。设海面在 x 和 y 方向上的长度分别为 L_x 和 L_y ，等间隔离散点数分别为 N_x 和 N_y ，相邻点的距离分别为 $\Delta x = L_x/N_x$ 和 $\Delta y = L_y/N_y$ 。海面上点坐标可以表示为 $x_m = m \cdot \Delta x$ 和 $y_n = n \cdot \Delta y$ ，其中 $m = -N_x/2+1, \dots, N_x/2+1$ 且 $n = -N_y/2+1, \dots, N_y/2+1$ 。每点的海面高度 $z(x_m, y_n)$ 可以表示为

$$z(x_m, y_n) = \frac{1}{L_x L_y} \sum_{m_k=-N_x/2+1}^{N_x/2} \sum_{n_k=-N_y/2+1}^{N_y/2} \hat{z}(k_{m_k}, k_{n_k}) \cdot \exp(j(k_{m_k} x_m + k_{n_k} y_n)) \quad (13)$$

$$\hat{z}(k_{m_k}, k_{n_k}) = \frac{2}{\sqrt{2}} \pi [L_x L_y \Psi(k_{m_k}, k_{n_k})]^{0.5} [\rho(k_{m_k}, k_{n_k}) + i\sigma(k_{m_k}, k_{n_k})] \quad (14)$$

上式中， $k_{m_k} = 2\pi m_k / L_x$ ， $k_{n_k} = 2\pi n_k / L_y$ ， $\rho(k_{m_k}, k_{n_k})$ 和 $\sigma(k_{m_k}, k_{n_k})$ 表示均值为 0，方差为 1 的正态分布。方向海浪谱 $\Psi(k_{m_k}, k_{n_k})$ 的表达式由矢量谱扩展到二维空间得到。为使 $z(x_m, y_n)$ 为实数，式中的傅里叶相位需满足 $\hat{z}(k_{m_k}, k_{n_k}) = \hat{z}(-k_{m_k}, -k_{n_k})$ ， $\hat{z}(k_{m_k}, -k_{n_k}) = \hat{z}(-k_{m_k}, k_{n_k})$ 。

1.2 海面泡沫粒子系辐射模型

泡沫作为一种多粒子体系，表现出复杂的几何结构（包括非球形粒子和几何结构的不对称性等），以及呈现各向异性特性（包括物性的不均匀性等）。同时，多粒子之间存在着散射、吸收等耦合现象，从而导致了复杂的辐射传输特性，因此海面仿真需要考虑泡沫对辐射特性仿真的影响。

1.2.1 泡沫粒子辐射特性模型

对于已知的气泡分布，泡沫粒子群的光学特性可以由下面公式估计出来：

$$j = N_0 \bar{Q}_j S \quad (15)$$

$$\bar{Q}_j = \frac{\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} Q_j(\tau) psd(\tau) \pi r^2 dr}{\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} psd(\tau) \pi r^2 dr} \quad (16)$$

$$S = \int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} psd(\tau) \pi r^2 dr \quad (17)$$

其中， \bar{Q}_j 为平均光学效率因子； S 为平均几何面积； N_0 为气泡群粒子数目； $psd(\tau)$ 为气泡粒径分布。

泡沫粒子群由具有特定分布的水滴及气泡粒子组成，泡沫单粒子处于几何光学尺度，其光线传输路径如图 1 所示。本文基于 Monte Carlo 算法，跟踪光线在所有组成泡沫的单粒子中的传输路径，最终对整个泡沫散射特性进行分析。

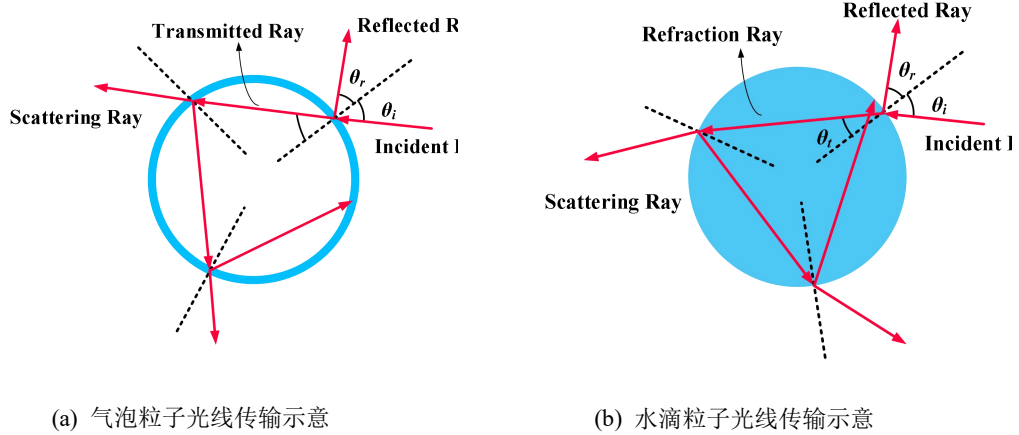


图1 泡沫单粒子辐射传输示意图

1.2.2 泡沫粒子系几何空间分布和尺寸分布

为了准确的描述泡沫粒子的空间分布和相互作用，本文采用团簇分形结构用来表征泡沫粒子群的形貌，采用均匀物性的球形粒子来描述泡沫粒子，团簇聚集体的分形性质可以通过式(18)~(20)进行表述，同时利用 Skorupski 等^[15]开发的程序生成了具有不同结构的泡沫团簇粒子，如图 2(a)~(c)所示。

$$N = k_f \left(\frac{R_g}{a} \right)^{D_f} \quad (18)$$

$$R_g^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\vec{r}_i - \vec{r}_0)^2 \quad (19)$$

$$\vec{r}_0 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \vec{r}_i \quad (20)$$

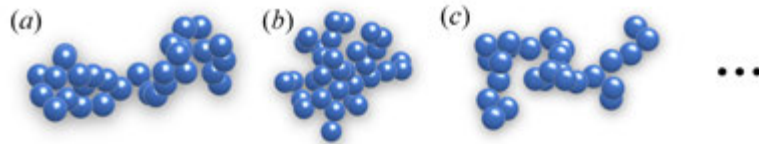


图2 典型泡沫粒子的分形结构。(a)Filippov 泡沫粒子团簇分形模型。(b)Ballistic Aggregation 泡沫粒子聚集分形模型。(c)泡沫粒子随机漫步模型。

选择对数正态分布^[16]作为描述海面泡沫粒子的粒径分布函数 $p(r)$ 的模型，以更好地解释和反映泡沫粒子数量随粒径变化的趋势，并且对数正态分布能够较为全面地考虑泡沫粒子的非对称性和尾部延伸情况，如下式所示：

$$p(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot r \ln \sigma_g} \cdot \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{\ln(r/\bar{r})}{\ln \sigma_g} \right]^2 \right\} \quad (21)$$

式中， r 为气泡半径， \bar{r} 为气泡平均半径， σ_g 为几何平均偏差。

1.2.3 泡沫光学辐射参数

泡沫是由水和空气等多个组分构成的多相系统，具有多散射、衰减等复杂的光学特

性。泡沫中的水分子与周围空气之间发生相互作用，在界面处发生折射和反射现象，导致光线在泡沫内部的传播路径发生改变，从而引起泡沫对光的散射和吸收。泡沫的光学辐射特性受到泡沫的几何特征、太阳以及周围海水背景辐射等因素的影响。此外，水的复折射率也是影响泡沫光学特性的重要因素，图 3 展示了水的复折射率随波长变化的情况。

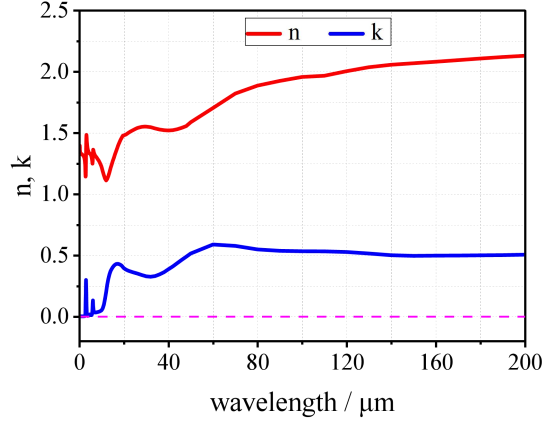


图 3 水的复折射率随波长变化规律

1.3 复杂海况下的海面辐射传输模型

本研究采用辐射传递方程描述海水表面的辐射传输过程。该方程基于对辐射传播和吸收、散射过程的物理机制建立，能够较为准确地模拟海洋环境中光线的传递和分布规律^[17, 18]。通过对海水表面辐射传输过程进行辐射传递方程建模，可以更深入地了解海洋表层的辐射特性，该方程如下所示：

$$\frac{dI_{\lambda}(s)}{ds} = -k_{a\lambda}I_{\lambda}(s) - k_{s\lambda}I_{\lambda}(s) + k_{a\lambda}I_{b\lambda}(s) + \frac{k_{s\lambda}}{4\pi} \int_{4\pi} I_{\lambda}(s, \vec{\Omega}') \Phi_{\lambda}(\vec{\Omega}', \vec{\Omega}) d\Omega' \quad (22)$$

式中： $k_{a\lambda}$ 表示光谱吸收系数； $k_{s\lambda}$ 表示光谱散射系数； $\vec{\Omega}$ 表示光线的入射方向； $\vec{\Omega}'$ 表示光线散射方向； Ω' 表示光线散射方向的立体角； $I_{\lambda}(s)$ 和 $I_{b\lambda}(s)$ 表示在辐射能量传递方向 $\vec{\Omega}$ 上，在位置 s 上的光谱辐射强度和黑体发射光谱辐射强度； $\Phi_{\lambda}(\vec{\Omega}', \vec{\Omega})$ 称为光谱散射相函数，用来描述散射能量在整个空间的分布。

本文采用蒙特卡洛方法求解海面的辐射传递方程。该方法基于随机抽样和统计分析原理，可以有效地模拟海面复杂场景下的光传输过程，并得到准确可靠的结果。

2 结果及分析

2.1 模型验证

海面泡沫粒子系辐射特性是复杂海况下辐射传输算法的基础。为此，本节进行泡沫粒子系辐射特性的验证，然后根据其辐射特性，结合海面泡沫及破碎浪粒子群的光学参数，建立对应的光学特性数据库。在此基础上，完成复杂海况海面辐射传输模型的建立。最后与实验测量的海面辐射特性对比，验证模型的精度与准确性。

2.1.1 泡沫粒子系辐射特性验证

根据第 1.2 节所述的泡沫单粒子辐射传输模型，利用蒙特卡洛方法进行辐射传输方程(公式 18)的求解，获得泡沫单粒子（单气泡）的光散射相函数。Kokhanovsky^[19]针对

气泡粒子给出了光散射相函数，并与气泡的光线传输蒙特卡洛算法进行了对比验证，具有较好的拟合效果。如图 4，红线表示本文针对泡沫气泡单粒子的蒙特卡洛辐射传输算法计算的水滴散射相函数，蓝线表示 Kokhanovsky 所给出的水滴散射相函数。结果表明，两种散射相函数的趋势一致且拟合度较高。当散射角位于 60° 至 80° 之间时，Kokhanovsky 散射相函数的幅度显著增加。猜测这是由于气泡反射光线的相位差在该散射角范围内正好增强了干涉效应，从而导致了散射相函数幅度的提高。然而，泡沫的辐射传输算法难以考虑这种情况对泡沫辐射特性进行准确的描述。

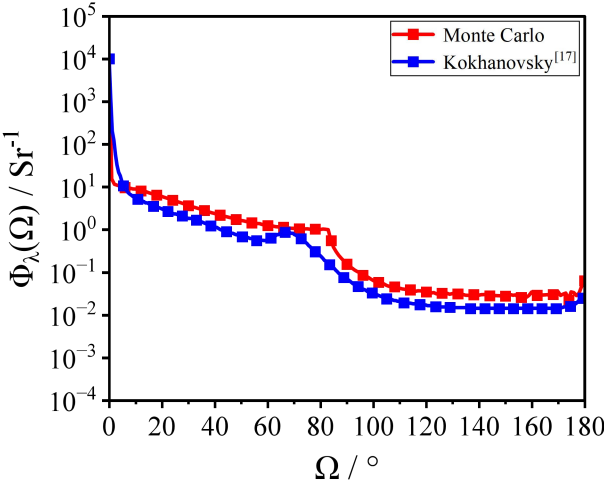


图 4 泡沫单粒子散射相函数结果对比

2.2.2 海面辐射传输特性算法验证

在泡沫粒子系物性参数及光学特性数据库建立之后，采用 Monte Carlo 方法建立并求解 1.4 节复杂海况下的海面辐射传输模型。为了验证海面辐射传输模型平均辐射亮度计算结果的精度以及正确性，本文针对 0~5 级海况开展了海上实验，并与仿真模拟结果进行验证性计算，计算结果如表 1 所示，其中探测器中波探测波段为 $3.7\sim 4.8\mu\text{m}$ 。结果表明，仿真结果与海上实验结果相对误差均在 20% 以内。因此本文建立的海面辐射传输模型能够较为有效地模拟预测海面的辐射特性，并为进一步优化海面辐射模型提供了参考和思路。

表 1 海面实验与仿真算法结果对比

海况	海面风速 m/s	水温 K	辐射亮度实验值 $\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{Sr})$	辐射亮度仿真值 $\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{Sr})$	相对误差
0	0.5	29 8.2	1.124	1.098	2.31%
1	1.3	30 4.5	1.421	1.258	11.47%
2	2.2	29 9.1	1.165	1.040	10.73%
3	4.9	30 2.8	1.256	1.182	5.89%
4	6.6	30 2.8	1.513	1.238	18.18%
5	11.9	30 2.8	1.065	1.181	10.89%

3.2 海面建模仿真

本小节利用海面模型对下表 2 中列出的海面条件进行海面高度场的仿真，海面仿真探测器分辨率参数设置为 500×500 ，得到如图 3 所示的海面高度场。图 5 显示，在相同的海面仿真条件下，随着海面风速的提高，海面产生更多的波浪，导致海面的起伏更加明显。这是由于较高的风速将携带更多的能量传递给海面，使得海面波具有更高的振幅和频率，从而引起更高、更陡峭的波浪。

表 2 海面仿真软件高度场仿真默认参数

主要仿真参数	数值	主要仿真参数	数值
经纬度	(0° E,0° N)	探测器俯仰角	0°
探测器高度	100m	探测器滚转角	0°
探测器观测角度	天顶角 0°	探测器偏航角	0°
	圆周角 0°	海水温度	288.0K
海面风向角	0.78540rad	海面空气温度	298.0K
叶绿素浓度	0.1		

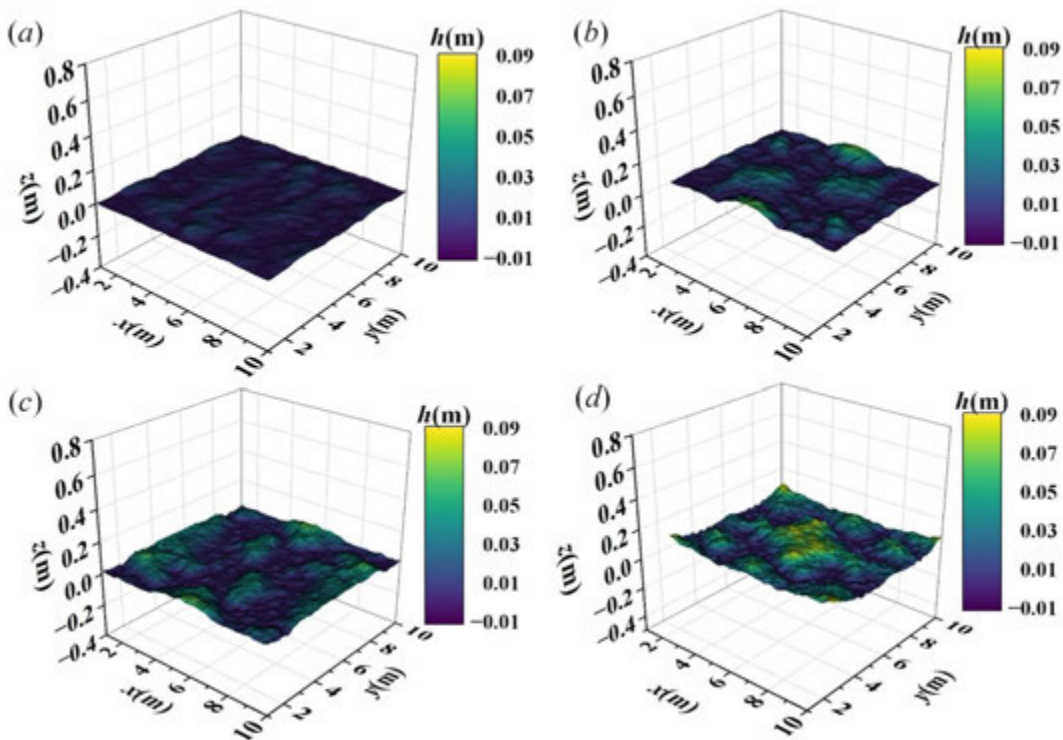


图 5 不同风速下海面仿真高度场三维图。(a)风速为 1m/s。(b)风速为 5m/s。(c)风速为 10m/s。(d)风速为 15m/s。

3.3 海面辐射特性分析

3.3.1 不同风速下海面辐射亮度空间分布

本文基于上述模型，利用海面辐射传输仿真算法，针对不同风速下的海面情况进行了模拟，并展示了涵盖 3~5 级多种风速条件下的海面仿真结果。本次海面仿真探测器探

测波长为 $7.7\sim 9.3\mu\text{m}$ ，探测器分辨率为 500×500 ，选取位置为经纬度为 0° ，海面风速分别为 5m/s 、 7m/s 、 9m/s 以及 12m/s ，探测器俯仰角、滚转角以及偏航角为 0° ，海面仿真温度为 292.0K ，海面上方空气温度为 303.0K ，探测器天顶角和圆周角均为 0° ，仿真结果如图 6 所示。

仿真结果表明，随着海面风速等级的增加，海面泡沫和波浪增多且更加聚集，海面波浪的纹理更加明显。这是由于海面上的泡沫和海浪是海洋能量的一种表现形式，海面风速的增加导致海面能量增加，并使得海面上水流剧烈变化，进一步加剧了海水表面泡沫和海浪的生成。因此，在随机海面相同及气象等条件相同时，随着海面风速等级的增高，海水表面的反射率增强，导致海面部分区域辐射亮度明显增强。

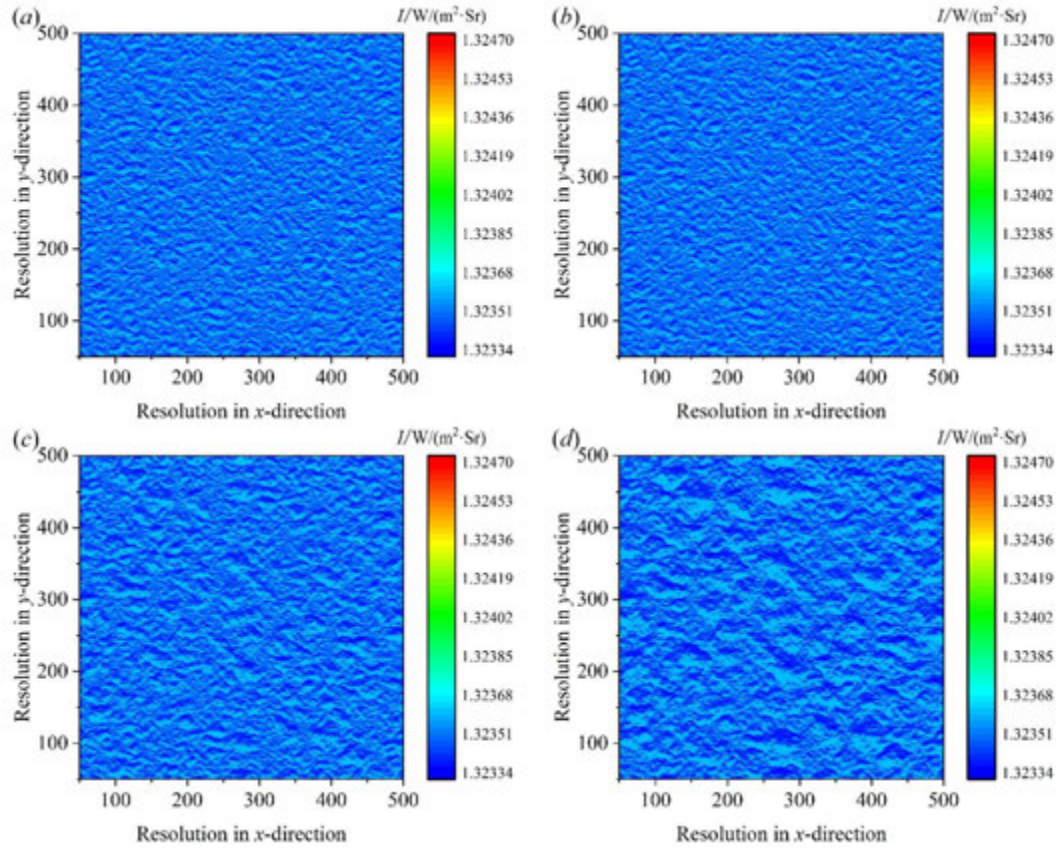


图 6 不同风速下海面辐射亮度仿真图。(a)风速为 1m/s 。(b)风速为 5m/s 。(c)风速为 9m/s 。(d)风速为 12m/s 。

3.3.2 海面辐射亮度时间分布

本文利用 TRMM 卫星遥感数据，结合相关气象数据，针对不同时段（早 8 时、中 12 时和晚 16 时），采用海面辐射传输算法对 2022 年 12 月份的海面平均辐射亮度进行了计算。结果显示，海面平均辐射亮度随月份存在明显的变化趋势，八月份海面平均辐射亮度最高，在二月份平均辐射亮度为最低值，即在夏季海面平均辐射亮度最高，而冬季最低。一方面，海水温度随季节存在差异，使得海面自身发射能量存在变化；另一方面，在冬季和春季通常大气云层较多，而夏季和秋季天空晴朗，导致太阳反射能量的不同，从而影响了海面平均辐射亮度随月份呈现出明显的季节性变化。

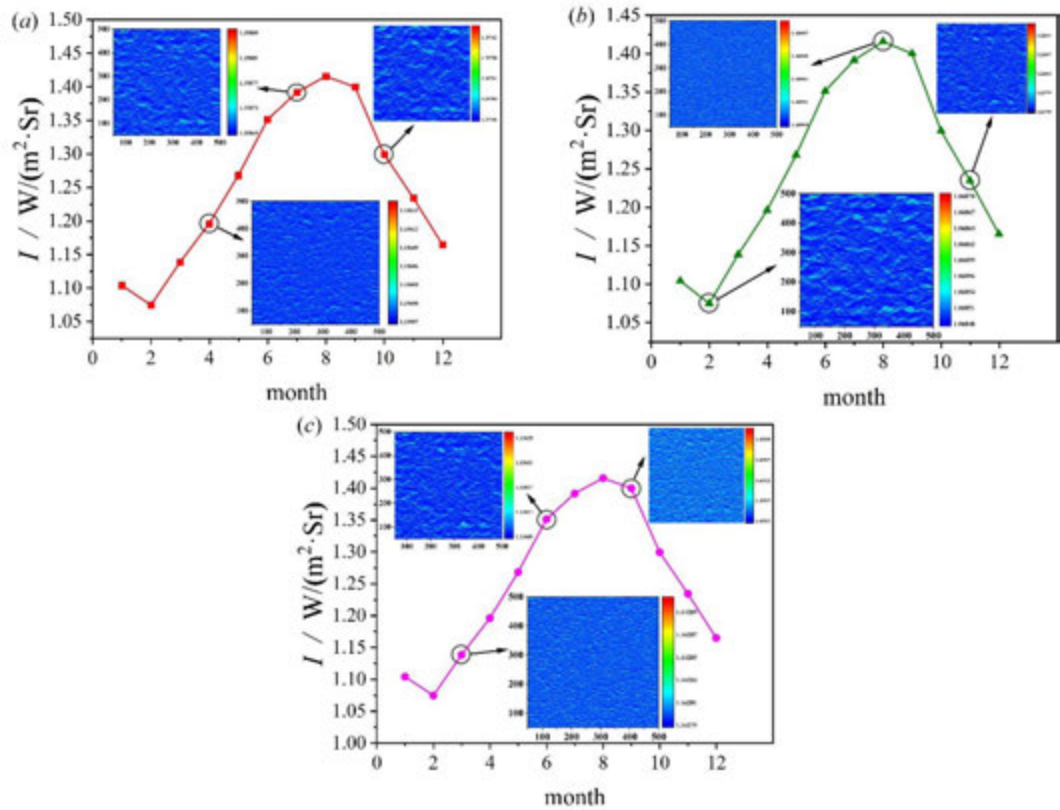


图 7 不同时刻 12 月份海面平均辐射亮度分布。(a)时刻为 8 时。(b)时刻为 12 时。(c)时刻为 20 时。

4 结论

本文基于 Elfouhaily 谱模型和基于谱快速傅里叶变换对粗糙海面进行海面几何建模, 并从几何光学尺度出发对海上泡沫粒子系建立辐射特性模型, 最后采用 Monte Carlo 方法进行海面光线辐射传输算法的计算, 对深入研究海洋光学特性、提高遥感数据处理精度和水下通信等方面提供了重要的参考价值。本文得出具体结论如下:

(1)验证海面泡沫粒子系辐射特性模型的有效性以及可靠性。本文对海面泡沫粒子辐射特性进行了散射特性的验证, 并与 Kokhanovsky 所给出的泡沫单粒子散射相函数计算结果进行对比, 结果表明本文泡沫粒子辐射传输模型具有较高的准确度。

(2)对海面辐射传输算法进行了实验验证。选取了覆盖 0~5 级海况的海上实验, 将实验测量的平均辐射亮度结果与相同条件下仿真结果进行比对, 结果表明实验值与仿真值的相对误差不超过 20%, 得出模型具有较高精度与可靠性。

(3)对海面几何建模进行了仿真及分析。仿真结果表明海面起伏随风速具有较为明显的变化, 并指出较高的海面风速携带更高能量导致海面波具有更高的频率和振幅, 影响海面产生不同起伏变化。

(4)分析了典型地理位置海面辐射亮度的时空变化。通过对相同地点以及相同气象条件, 在不同风速下海面辐射仿真, 探究海面辐射亮度在不同风速下的空间分布, 结果表明随着风速的提高, 海面辐射亮度纹理明显提高, 泡沫和波浪的纹理明显增强。另外利用卫星反演数据, 对相同地点、相同时刻的海面仿真, 探究海面平均辐射亮度在一年不同月份的时间分布, 结果表明海面平均辐射亮度在一年之中存在明显的变化, 经讨论发

现海水温度和不同季节云层变化时海面辐射亮度随月份变化的两个主要因素。

参考文献

- [1] FANG X, AN D. Evaluation on sea surface wind speed product of Fengyun-3D satellite microwave radiation imager using ERA-5 dataset [J]. *International Journal of Remote Sensing*, 2022, 43(10): 3671-91.
- [2] 朱缓. 基于分形算法的海面动态仿真 [D]; 哈尔滨理工大学.
- [3] SCHWENGER F, REPASI E. Sea surface simulation in the infrared modeling and validation; proceedings of the Targets and Backgrounds XII: Characterization and Representation, F, 2006 [C].
- [4] AGOSHKOV V, ZALESNY V, SHUTYAEV V, et al. Variational data assimilation for a sea dynamics model [J]. *Russian Journal of Numerical Analysis and Mathematical Modelling*, 2022, 37(3): 131-42.
- [5] CHANG Z, HAN F, SUN Z, et al. Three-dimensional dynamic sea surface modeling based on ocean wave spectrum [J]. *海洋学报:英文版*, 2021, 40(10): 11.
- [6] 印桂生, 王海玲, 张菁, et al. 分形算法调和的海浪模拟方法 [J]. *哈尔滨工程大学学报*, 2011, 32(11): 6.
- [7] KUŚMIERCZYK-MICHULEC J, SCHULZ M, RUELLAN S, et al. Aerosol composition and related optical properties in the marine boundary layer over the Baltic Sea [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2001, 32(8): 933-55.
- [8] YONG, LI, XIN, et al. Numerical simulations and comparative analysis for two types of storm surges in the Bohai Sea using a coupled atmosphere-ocean model [J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2019, v.38(09): 39-51.
- [9] JERZY D, BOGDAN W. Solar radiation in the Baltic Sea [J]. *OCEANOLOGIA*, 2010, 52(4): 621-48.
- [10] 林文明, 郎姝燕, 赵晓康, et al. 中法海洋卫星散射计近海岸海面风场反演研究 [J]. *海洋学报*, 2021.
- [11] MA L X, WANG F Q, WANG C A, et al. Investigation of the spectral reflectance and bidirectional reflectance distribution function of sea foam layer by the Monte Carlo method [J]. *Appl Opt*, 2015, 54(33): 9863-74.
- [12] WAN Y, ZHANG X, DAI Y, et al. Research on a method for simulating multiview ocean wave synchronization data by networked SAR satellites [J]. *Journal of Marine Science and Engineering*, 2019, 7(6): 180.
- [13] ELFOUHAILY T, CHAPRON B, KATSAROS K, et al. A unified directional spectrum for long and short wind-driven waves [J]. *Journal of Geophysical Research Oceans*, 1997, 102(C7).
- [14] CAILLAULT K, FAUQUEUX S, BOURLIER C, et al. Infrared multiscale sea surface modeling; proceedings of the Remote Sensing of the Ocean, Sea Ice, and Large Water Regions 2006, F, 2006 [C]. SPIE.
- [15] SKORUPSKI K, MROCZKA J, WRIEDT T, et al. A fast and accurate implementation of tunable algorithms used for generation of fractal-like aggregate models [J]. 2014, 404: 106-17.
- [16] WINKEL E S, CECCIO S L, DOWLING D R, et al. Bubble-size distributions produced by wall injection of air into flowing freshwater, saltwater and surfactant solutions [J]. 2004, 37(6): 802-10.
- [17] 阮立明 谈 夏 刘. 红外辐射特性与传输的数值计算:计算热辐射学 [M]. 红外辐射特性与传输的数值计算:计算热辐射学, 2006.
- [18] 余其铮. 辐射换热原理 [M]. 辐射换热原理, 2000.
- [19] KOKHANOVSKY A A. Single light scattering: Bubbles versus droplets [J]. *American Journal of Physics*, 2004, 72(2): 258.

直接储存太阳能的高热导率钙基复合材料研究

曾繁迪¹, 笕云^{1,2*}

(1. 南京航空航天大学能源与动力学院, 南京 210016;

2. 南京航空航天大学综合能源研究院, 南京 210016)

Tel: 025-84315488 Email: yunda@nuaa.edu.cn

摘要：碳酸钙热化学储能是解决太阳能间歇性和波动性局限的有效方法。然而碳酸钙材料具有热导率低、吸光性能弱、储能性能衰减严重等缺点。本文通过浸渍法在 AlN 陶瓷骨架上负载 Mn/Cr 共掺杂的钙基材料，制备出基于 AlN 陶瓷骨架的钙基复合材料，有效提升钙基材料的热导率、太阳能吸收率、循环储能性能。实验结果表明：制备的钙基复合材料热导率超过 $15.5 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ，平均光谱吸收率高达 82.56%，体积储能密度 20 个循环后仅衰减 21%，各项性能远超纯 CaCO_3 ($0.44 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, 衰减 78%)。
关键词：钙基储热材料；热导率；光谱吸收率；热化学储能

0 引言

能源是经济发展的第一命脉和物质基础。从全球大环境下看，世界能源格局正在向清洁、低碳、绿色、高效、多元化方向转变，实现碳达峰、碳中和目标是全球大势、时代命题，关乎全人类未来发展^[1]。众所周知，太阳能储量丰富，取之不尽、用之不竭，被认为是替代传统化石能源的一种极具前途的能源^[2-4]。但由于太阳能存在时间间歇性和不确定的波动性等局限^[5,6]，很难提供连续稳定的能量输出。储能技术可将太阳能辐射先储存起来，在需要的时候再释放出来，解决能源供给和需求在时间、空间和强度上的不匹配问题，最大限度地提高系统的能源利用效率。

目前储热技术主要包括显热、潜热、热化学等三种方式。显热储热技术具有热循环稳定性强、寿命长等特点，并能与容器材料兼容，适用范围广^[7]。潜热储存技术一般采用相变材料作为储热介质，利用材料相变时实现储热/释热，具有温度波动幅度小等优点。热化学储能技术具有储能密度高、储能时间长、可以适用于较大型的系统等优点^[8]。热化学储存技术不受存储空间位移与储热环境的限制，是目前最优良的储能技术。

钙循环(CaL)是第三代聚光太阳能发电厂利用超临界二氧化碳动力循环进行热化学储能的一种极有潜力的方法。钙循环热化学储能具有成本低、吸附动力学快、理论容量大——较高的储能密度(3.26 GJ/m^3)和较高的运行温度($700 \sim 1000^\circ\text{C}$)等优点而成为研究热点。然而，碳酸钙储热性能随着循环次数增加而衰减，许多研究人员致力于提高钙基材料的循环稳定性，选择掺杂塔曼温度较高的惰性载体以构建稳定骨架，如 MgO ^[9,10]、 Al_2O_3 ^[11,12]、 ZnO ^[13,14]、 TiO_2 ^[15]、 CeO_2 ^[16]、 ZrO_2 ^[17-19]和 SiO_2 ^[20]等。一般制备出的碳酸钙

复合材料色泽偏白，光学吸收率低。为了提升光学吸收率，已有学者提出黑色掺杂的改进方法。Da 等^[21]通过溶胶-凝胶法合成 CaO 复合材料，采用二元金属元素掺杂 Mn 和 Fe。实验结果表明，这种掺杂策略提高了光学吸收率和循环稳定性，Ca/Mn/Fe 的摩尔比为 100:4:8 时材料的平均光谱吸收高达 89.81%，是纯碳酸钙的 8.26 倍。

CaCO₃ 的热导率非常低，传热效率直接影响储热/释热的速率。目前研究者主要聚焦于添加高热导率材料以增强复合材料整体导热性能。Li 等^[22]采用挤出滚圆法制备了新型 SiC/Mn 共掺杂 CaO 球团，单独添加 SiC 和 Mn 都提高了 CaO 基球团的储热能力。SiC 的添加提高了 CaO 颗粒的导热性，共掺杂的 CaO 颗粒具有良好的导热性，热导率提升至原始 CaO 颗粒的 3.2 倍。Zhu 等^[23]通过溶胶-凝胶法将 Mn 和 Cr 元素掺杂到 CaCO₃ 中，将四针形氧化锌晶须 (TZnO) 直接混入复合材料中。TZnO 在复合材料中充当导热桥，当将 5% 的 TZnO 添加到 Cr/Mn 掺杂的 CaCO₃ 中时，热导率提升至 0.464 W·m⁻¹·K⁻¹。通过对反应动力学的非等温分析，发现加入 TZnO 可以有效加速反应，这对直接太阳能驱动热化学储能的应用非常有利。然而，目前的研究对碳酸钙材料的热导率提升十分有限，制备出的钙基复合材料热导率依然低于 1.5 W·m⁻¹·K⁻¹。

本文针对传统碳酸钙材料存在热导率低、光学吸收能力弱、循环储热性能差等瓶颈问题，提出 AlN 陶瓷骨架负载 Mn/Cr 共掺杂 CaCO₃ 的钙基复合材料制备方法，有效提升了钙基材料的热导率、太阳能吸收率、循环储能性能。本文从材料组分、结构形貌等方面对钙基复合材料进行了系统表征，探讨不同 Mn/Cr 掺杂比例对钙基复合材料光学吸收率、热导率、储能循环性能的影响，建立了高热导率钙基复合材料提升太阳能储存性能的有效方法。

1 实验部分

1.1 材料制备

1.1.1 氮化铝骨架制备

制备氮化铝骨架使用的试剂如下：中国上海阿拉丁化学试剂有限公司购买氮化铝 (99.5%, 2 μ m)、氧化钇(99.99%, metals basis)和四乙烯五胺(TEPA)。十二烷基硫酸三乙醇胺 (C₁₈H₄₁NO₇S, AR)、聚丙烯酸(平均 MV~250000)购自广东翁江化学试剂有限公司。无水乙醇 (99.7%, C₂H₆O) 购自中国上海国药集团化学试剂有限公司。IB-104(酰胺-铵盐共聚物)购自日本 Kuraray 有限公司。以上化学品具有分析纯度，无需进一步处理。聚氰酸酯购于建筑材料商店。

由于 AlN 粉末与水接触会发生水解反应，对热导率产生不利影响，本次实验对 AlN 粉末进行抗水解处理。现研究中主要采取的方法有表面化学改性和表面物理包覆两类，采用表面物理包覆法可达到 AlN 粉末抗水解的目的，且可去除抗水解膜层以保持其 AlN 纯度^[24]。制备氮化铝骨架的步骤如下：

首先以质量比为 100:3:75 的比例称取 AlN 粉末，氧化钇和无水乙醇置于球磨罐中，置于球磨机中以 300rpm 速率搅拌 30min，获得浆液后加入 0.2 wt.% 的乙醇分散剂聚丙烯酸，置于球磨机中以 300rpm 速率搅拌 30min，接着再加入 1 wt.%(根据粉末质量计算)的聚氰酸酯，置于球磨机中以 300rpm 速率搅拌 30min。将球磨罐中的浆液移出至烧杯之后，

加入与聚氰酸酯相同质量的四乙烯五胺，并使用机械搅拌以 500rpm 的速率下搅拌 1h，加速二者反应，在 AlN 粉末表面形成一层防水膜。然后将处理过的粉末放入 100℃的烘箱中烘干，恒温 24h，取出研磨后得到具有抗水解效果的 AlN 粉末。

将预定量的处理过的 AlN 粉末、去离子水、0.3 wt.%的用作胶凝剂和分散剂的 Ib-104 混合，然后置于球磨机中以 300rpm 速率下搅拌 30min，取出浆料后，加入 1 wt.%(根据浆料质量计算)的发泡剂十二烷基硫酸盐三乙醇胺，并在机械搅拌 1000rpm 速率下搅拌 30min，使得空气充分进入浆料以形成所需的多孔结构。接着将发泡后的浆料倒入可拆卸的模具中，在室温下自然干燥 48h。然后将干燥后的多孔 AlN 坯体放入马弗炉中，在空气以 1 °C·min⁻¹ 的加热速率加热到 650℃，恒温 4h，以去除之前所有残余的试剂和杂质得到 AlN 坯体。最后，将烧净的 AlN 坯体置如热压炉中，在 1950℃的 N₂ 气氛中恒温 4h，退火至室温后即可得到烧结的 AlN 骨架。将烧结的 AlN 骨架使用取样机和线切割机切割成直径 12.7mm，厚度 1mm 或 3mm 的圆片，以备后续使用。

1.1.2 钙基复合材料制备

制备钙基复合材料使用的试剂如下：中国上海阿拉丁化学试剂有限公司购买四水合硝酸钙（99%，Ca(NO₃)₂·4H₂O）、九水合硝酸铬（99.5%，Cr(NO₃)₃·9H₂O）、硝酸锰溶液（溶液中 50 wt.%的 Mn(NO₃)₂）等。所有化学品具有分析纯度，无需进一步处理。

制备钙基复合材料的步骤如下：

首先制备前驱体溶液，将预定量的 Ca(NO₃)₂·4H₂O，Cr(NO₃)₃·9H₂O，Mn(NO₃)₂ 溶液，置于干净的烧杯中，加入去离子水得到 10mL 溶液，采用磁力搅拌方式将混合溶液以速度 500rpm 分散搅拌 60min，得到前驱体溶液。然后，采用浸渍法，将孔隙率为 65%左右的氮化铝骨架（厚度 1mm 和 3mm 各一组）浸渍在前驱体溶液中，浸渍 5min。最后将浸渍后的氮化铝骨架使用管式炉在空气氛围中煅烧，控温程序为从 20℃以 10 °C·min⁻¹ 的速率升温至 800℃并保持恒温 40min，然后以 10 °C·min⁻¹ 的速率降温至 700℃并通入 CO₂，在 CO₂ 氛围下碳酸化 30min，退火至室温。重复浸渍、煅烧和碳酸化的步骤 6 次，最后制备成复合储热材料，制成的复合储热材料孔隙率在 50%左右。

同样，按照上述步骤制备其他掺杂钙基复合材料。不同掺杂含量的样品简称为 CaCO₃-xMn-yCr@AlN，其中 x、y 为钙基复合材料中各种掺杂金属元素的摩尔百分（参考 Ca 为 100），例如，CaCO₃-8Mn-8Cr@AlN 表明 Ca:Mn:Cr 的摩尔比为 100:8:8。

表 1 样品名称及掺杂比例

Table 1 Sample Name and Doping Ratio

样品名称	骨架质量	负载材料质量	掺杂摩尔比(Ca:Mn:Cr)
<i>CaCO₃@AlN</i>	252.95mg	148.33mg	-
<i>CaCO₃-8Mn-8Cr@AlN</i>	230.83mg	210.30mg	100:8:8
<i>CaCO₃-12Mn-4Cr@AlN</i>	295.41mg	189.80mg	100:12:4
<i>CaCO₃-4Mn-12Cr@AlN</i>	291.78mg	131.76mg	100:4:12

1.2 材料表征

钙基复合材料通过 X 射线衍射 (XRD, Bruker D8 Advance) 测定材料的结晶相组成，

使用 $Cu K\alpha$ 作为辐射源(40 kV,150 mA), 衍射角为 20° 至 80° 。使用扫描电子显微镜 (SEM, Carl Zeiss Gemini SEM 300)观察钙基复合材料的表面微观形貌,并使用其配备的 X 射线能谱仪 (EDS,Bruker XFlash) 观察 Ca、C、O、Mn、Cr、Al、N 元素在钙基复合材料上的分布。X 紫外可见近红外分光光度计 (UV-VIS-NIR ,PerkinElmer Lambda 1050+), 测试钙基复合材料的光谱吸收特性, 波长范围从 300nm 至 2500nm , 变化以覆盖整个太阳光谱。热导率测试使用激光瞬态导热测量仪 (LFA 500, Linseis)获得 AlN 骨架和钙基复合材料的热导率, 本次实验中每个样品测试三次, 取算术平均值。

使用热重分析仪 (TGA、Linseis TGA PT1100) 测试钙基复合材料的储能性能。开始时通入 $160\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ 的 CO_2 , 并以 $10^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 的速率将样品从室温加热至 800°C 。接着进行煅烧反应: 通入 $160\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ 的 N_2 将样品恒温 800°C 保持 25min; 再进行碳化反应: 通入 $160\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ 的 CO_2 将样品恒温 800°C 保持 20min。重复煅烧和碳化的过程, 共完成 20 个循环。

2 结果与讨论

2.1 钙基复合材料组分表征

图 1 显示了四种不同掺杂的钙基复合材料循环前、20 个循环后的 XRD 谱图。如图 1(a)所示, 四种钙基复合材料的 XRD 谱图中均出现了 AlN、 CaCO_3 的衍射峰, 没有出现其他额外的衍射峰, 说明复合材料中存在 CaCO_3 和 AlN 物相, 并且 CaCO_3 与 AlN 不发生化学反应而生成其他杂质相。图 1(b)显示了四种不同掺杂的钙基复合材料 20 个循环后的 XRD 谱图, 可以发现, 复合材料中的主要成分均为 CaCO_3 和 AlN, 而在 20 个循环时后均有少量 CaO, 可以解释为, 随着循环的进行, 由于 CaCO_3 煅烧而烧结将导致 CaO 碳酸化过程不能完全反应, 碳酸化过程将残留 CaO 于复合材料中。值得注意的是, 对于 Mn/Cr 共掺杂的 CaCO_3 复合材料, XRD 谱图中没有探测到 Mn 和 Cr 元素的信号, 这是因为锰和铬元素负载含量较少, 低于 XRD 分辨极限, 所以需要其他表征方法确认 Mn/Cr 元素的存在。

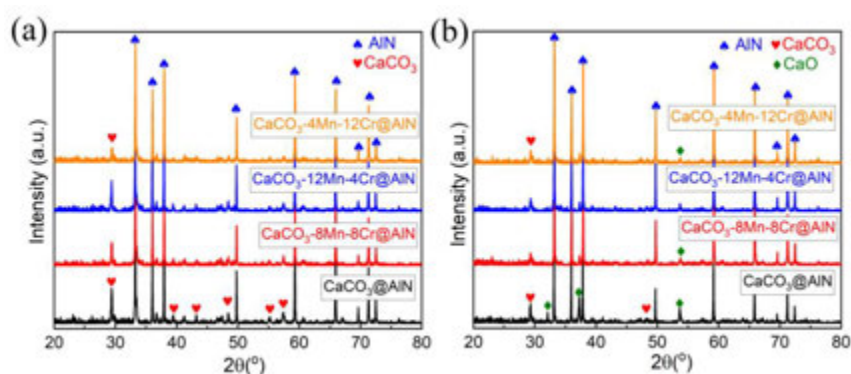


图 1 钙基复合材料循环前后的 XRD 谱图比较: (a)循环前; (b)20 次循环后

Fig. 1 Comparison of XRD spectra of calcium matrix composites before and after cycling: (a) before cycling; (b) After 20 cycles

通过在钙基前驱体溶液浸渍的方法将钙基材料负载在 AlN 骨架表面,

$\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ 样品其微观结构如图 2 所示。图 2(a)为 AlN 骨架的 SEM 图，图 2(b)展示了负载钙基材料的多孔 AlN 骨架复合后的 SEM 图，可清晰的看到 AlN 多孔骨架上确实被钙基材料覆盖。负载了钙基材料的 AlN 骨架的 EDS 谱图如图 2 (c)所示，Al、N、Ca、C、O、Mn 和 Cr 元素均匀地分布在视野中，表明所制备的钙基复合材料元素分布均匀。进一步可以清楚地看到，Ca、C、O 元素主要分布在 AlN 表面，O 元素铺满了界面，这是因为 CaCO_3 和 Mn、Cr 的金属氧化物都含有 O 元素。Ca 元素可表示 CaCO_3 的分布，Mn、Cr 元素可表示其对应金属氧化物的分布。因此，EDS 能谱图证明 Mn/Cr 共掺杂的钙基复合材料中存在 Mn 和 Cr 元素。

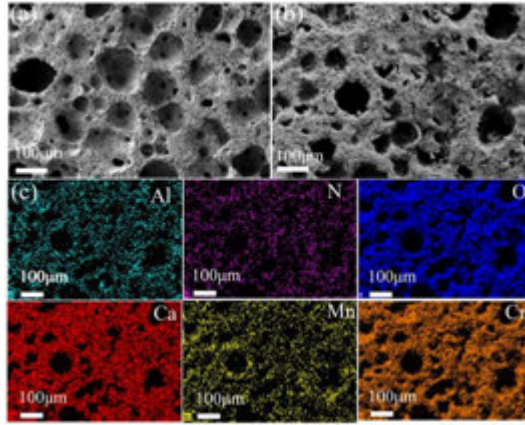


图 2 AlN 骨架及 $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ 样品的 SEM-EDS 谱图(a)AlN 骨架 SEM 微观图;(b) $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ 样品 SEM 微观图;(c) $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ 样品 EDS 谱图

Fig. 2 AlN skeleton and $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ SEM-EDS spectra of samples (a) SEM micrograph of AlN skeleton; (b) $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ SEM micrograph of the sample; (c) $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ EDS spectra of samples

2.2 光学吸收特性和热导率

图 3(a)所示的是制备的钙基复合材料实物照片，从照片中可以看出，AlN 陶瓷骨架负载纯 CaCO_3 时，样品为白色，而负载 Mn/Cr 共掺杂的 CaCO_3 时，样品转变为黑色，说明光学吸收能力得到极大提升。图 3(b)所示的是不同 Mn/Cr 掺杂比例的复合钙基材料光谱吸收图，从图中可以清楚看出，Mn/Cr 二元掺杂可以有效地提高光谱吸收率，其中样品 $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$ 的光谱吸收率最高，与其外观颜色最黑保持一致。

定义平均光谱吸收率 A_{ave} 定量评估不同掺杂含量样品的光学吸收能力，可表示为：

$$A_{ave} = \frac{\int_{200nm}^{2500nm} A(\lambda) I(\lambda) d\lambda}{\int_{200nm}^{2500nm} I(\lambda) d\lambda}$$

式中 λ 是波长， $A(\lambda)$ 是光谱吸收率， $I(\lambda)$ 是标准 AM1.5G 条件下的太阳辐射光谱。

不同样品的平均光谱吸收率如图 3(c)所示，从图中可以看出，样品 $\text{CaCO}_3\text{@AlN}$ 、

$\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ 、 $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$ 、 $\text{CaCO}_3\text{-4Mn-12Cr@AlN}$ 的平均光谱吸收率分别为 22.36%、82.09%、82.56%和 81.87%，掺杂 Mn、Cr 二元金属氧化物的钙基复合材料的平均光谱吸收率均超过 80%，是纯 CaCO_3 基复合材料 $\text{CaCO}_3\text{@AlN}$ 的 3.6 倍以上，其中 $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$ 样品表现出最高的平均光谱吸收率。这些结果清楚地说明了由于 Mn、Cr 金属氧化物的掺杂，钙基复合材料的光吸收显著增强。因此，掺杂 Mn、Cr 元素是提高钙基复合材料光吸收性能的有效途径。

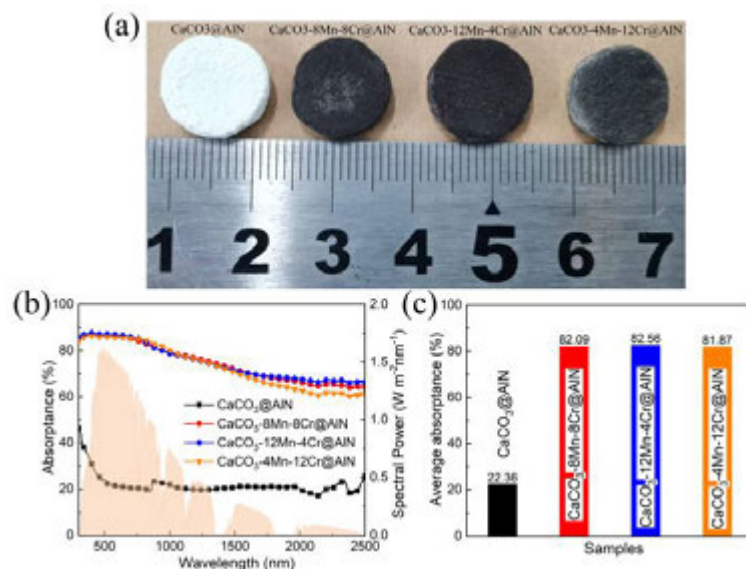


图 3 不同掺杂比例钙基复合材料的光吸收特性(a)样品照片;(b)吸收光谱;(c)平均光谱吸收率。

Fig. 3 Light absorption characteristics of calcium matrix composites with different doping ratios (a) sample photos; (b) absorption spectrum; (c) average spectral absorptivity.

具有不同掺杂比例的钙基复合材料的热导率如图 4 所示，可以清楚地看到，与商业纯碳酸钙相比，在 AlN 多孔陶瓷骨架上负载钙基材料可以有效地提高钙基复合材料的热导率，对于纯碳酸钙，热导率非常低，仅为 $0.44 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 。通过测量， $\text{CaCO}_3\text{@AlN}$ 、 $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$ 、 $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$ 、 $\text{CaCO}_3\text{-4Mn-12Cr@AlN}$ 的比热容分别为 0.998 、 0.990 、 1.035 、 $0.941 \text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ，配合测量的热扩散率计算出样品热导率分别为 15.73 、 19.66 、 16.40 和 $22.98 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ，以 AlN 骨架为基底的钙基复合材料的热导率均超过 $15.5 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ，是纯 CaCO_3 的 35.75 倍以上。高热导率 AlN 骨架提供了优异的传热通道，因此，以 AlN 骨架为基底负载复合材料是提高钙基复合材料热导率的有效途径，为提高储能速率做出极大贡献。

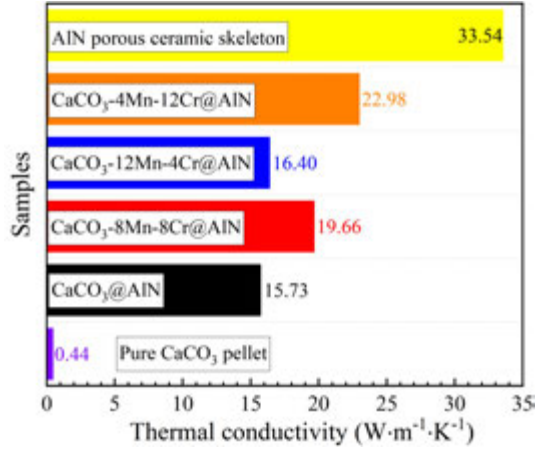


图 4 不同掺杂比例钙基复合材料和纯 CaCO₃ 压片的热导率

Fig. 4 Thermal conductivity of calcium matrix composites and pure CaCO₃ pellet with different doping ratios

2.3 储能循环性能

在实际应用中，受空间所限，体积储能密度比质量储能密度更重要。体积储能密度可以表示为：

$$E_{V,N} = \frac{m_{car,N} - m_{cal,N}}{M_{CO_2}} \cdot \frac{\Delta H}{V} + \frac{C_P \cdot m_{cal,N} (T_{cal} - T_{amb})}{V}$$

其中， $E_{V,N}$ 是 N 次循环后材料的储能密度， $m_{car,N}$ 是 N 次循环碳酸化后材料的质量， $m_{cal,N}$ 是 N 次循环煅烧后材料的质量， M_{CO_2} 是 CO_2 的相对分子质量， ΔH 是 $800^\circ C$ 下的化学反应焓 ($167.6 KJ \cdot mol^{-1}$)， V 是钙基复合材料的体积， C_P 是钙基复合材料的比热容， T_{cal} 工作的煅烧温度， T_{amb} 是工作的环境温度。从公式可以看出，体积储能密度分为两部分，一部分为热化学储能，一部分为显热储能。

图 5(b)表示了纯 CaCO₃ 压片的储能性能，可以清楚地看到，纯 CaCO₃ 的储热由热化学储能和显热储能共同组成，热化学储能占据更高的比例，且由于纯 CaCO₃ 本身热化学储能性能衰减过快的原因，总体的储能性能也在 20 个循环内迅速下滑。而从图 5(c)~(f) 中可以看到，AIN 陶瓷骨架负载 Mn/Cr 共掺杂 CaCO₃ 的钙基复合材料的储能也由热化学储能和显热储能共同组成，但热化学储能和显热储能占据的比例较为接近，热化学储能性能也远优于纯 CaCO₃，所制备的钙基复合材料的总体储能性能在 20 个循环内表现出远高于纯 CaCO₃ 的稳定性。

图 5(a)所示的是不同掺杂比例的钙基复合材料的总体体积储能性能，虽然掺杂后使得首次储能密度仅有纯碳酸钙的一半左右，但不同掺杂比例的钙基复合材料的储能密度都远高于现有工业使用的熔盐显热储热的储能密度，为熔盐储能密度的 1.7 倍以上，所以和熔盐相比，使用钙基复合材料对储热系统更具吸引力。不同掺杂比例的钙基复合材料的平均储能密度 $CaCO_3-12Mn-4Cr@AIN > CaCO_3-8Mn-8Cr@AIN > CaCO_3@AIN >$

$\text{CaCO}_3\text{-4Mn-12Cr@AlN}$ 。通过图 5(e)(b)可知, 样品 $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$ 的储热密度在 20 次循环后仅下降了 292.47MJ/m^3 (占比 15.3%), 而纯 CaCO_3 压片的储热密度下降了 $2,227.37\text{MJ/m}^3$ (占比 60.4%)。虽然纯 CaCO_3 压片在第一次循环时具有 3686.77MJ/m^3 的最高储能密度, 但随着循环次数的增加而严重衰减。经过 20 次循环后, 纯 CaCO_3 压片的储能密度仅为 1459.40MJ/m^3 , 仅有循环前储能密度的 39.6%。这是由于纯 CaCO_3 的严重烧结和团聚造成的, 堵塞了 CaCO_3 内部的孔隙并抑制了 CO_2 的扩散。而样品 $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$ 在经过 20 次循环后, 储能密度依旧稳定在 1620.57MJ/m^3 以上, 样品 $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$ 展现出更好的循环稳定性, 说明通过按照比例地掺杂 Mn 和 Cr 元素, 可以极大地提高循环稳定性。这是因为高塔曼温度的 Mn、Cr 氧化物使 CaCO_3 颗粒间隔开, 并增强了复合材料的骨架结构, 有效地抑制 CaCO_3 的迁移, 从而抑制其烧结。

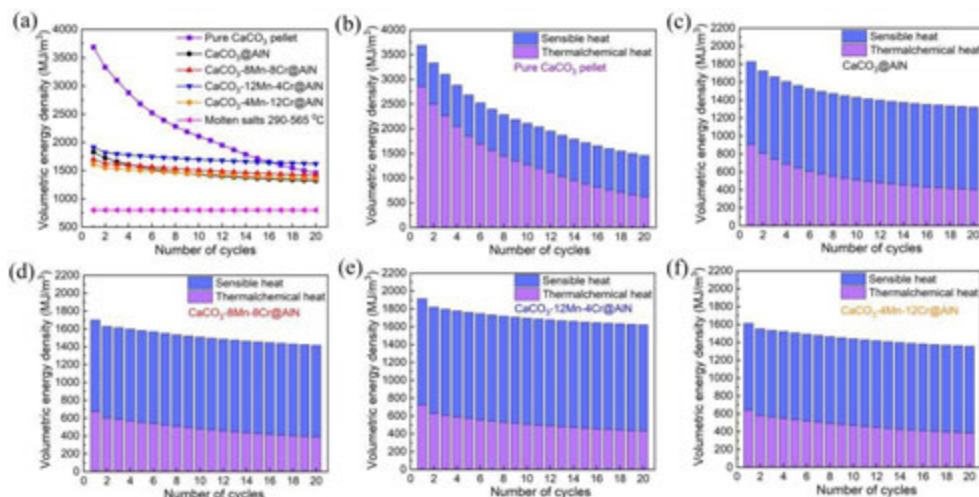


图 5 钙基复合材料体积储能密度(a)样品储能密度比较图(b)纯 CaCO_3 压片;(c) $\text{CaCO}_3\text{@AlN}$;(d) $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$;(e) $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$;(f) $\text{CaCO}_3\text{-4Mn-12Cr@AlN}$ 的体积储能密度

Fig. 5 Volumetric energy storage density of calcium matrix composite (a) comparison diagram of sample energy storage density (b) pure CaCO_3 pellet; (c) $\text{CaCO}_3\text{@AlN}$; (d) $\text{CaCO}_3\text{-8Mn-8Cr@AlN}$; (E) $\text{CaCO}_3\text{-12Mn-4Cr@AlN}$; (f) $\text{CaCO}_3\text{-4Mn-12Cr@AlN}$ volumetric energy storage density

3 结 论

本文针对传统碳酸钙材料存在热导率低、吸光性能弱、储能性能衰减严重等瓶颈问题, 提出在 AlN 陶瓷骨架上负载钙基复合材料的新型设计方法, 通过浸渍法在 AlN 陶瓷骨架上成功负载 Mn/Cr 共掺杂的钙基材料, 制备出基于 AlN 陶瓷骨架的钙基复合材料, 有效提升了钙基材料的热导率、太阳能吸收率、循环储能性能。实验结果表明: 制备的钙基复合材料展现出极高的热导率, 热导率超过 $15.5\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, 是纯 CaCO_3 ($0.44\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) 的 35.75 倍以上, 与纯 CaCO_3 相比提升了两个数量级, 显著降低传热阻力, 使得储能速率大幅提升。同时, 钙基复合材料具有全光谱吸收能力和优异的循环储能性能。

能, 平均光谱吸收率高达 82.56%, 是负载纯 CaCO_3 的 3.7 倍, 体积储能密度在 20 个循环后仅衰减 21%, 远低于纯 CaCO_3 (衰减 78%), 良好的循环稳定性归功于高塔曼温度的 Mn、Cr 的金属氧化物抵抗 CaCO_3 分子的热运动, 对烧结具有抑制作用。因此, 本论文制备的钙基复合材料兼具高热导率、高太阳能吸收率、高循环稳定性等优点, 可用于太阳能直接驱动的热化学储能系统。

参考文献

- [1] 匡立春, 邹才能, 黄维和, 等. 碳达峰碳中和愿景下中国能源需求预测与转型发展趋势. 石油科技论坛, 2022, 41(1):9
Kuang Lichun, Zou Caineng, Huang Weihe, et al. China's Energy Demand Projection and Energy Transition Trends under Carbon Peak and Carbon Neutrality Situation. PETROLEUM SCIENCE AND TECHNOLOGY FORUM, 2022, 41(1):9
- [2] Anuj Banswar, Naveen Kumar Sharma, Yog Raj Sood, et al. Renewable energy sources as a new participant in ancillary service markets. Energy Strategy Reviews, 2017, 18:106-120
- [3] Jijian Lian, Yusheng Zhang, Chao Ma, et al. A review on recent sizing methodologies of hybrid renewable energy systems. Energy Conversion and Management, 2019, 199:112027
- [4] Joseph Stekli, Levi Irwin, et al. Technical Challenges and Opportunities for Concentrating Solar Power With Thermal Energy Storage. Journal of Thermal Science and Engineering Applications, 2013
- [5] Renaud K. de_Richter, Tingzhen Ming, et al. Fighting global warming by GHG removal: Destroying CFCs and HCFCs in solar-wind power plant hybrids producing renewable energy with no-intermittency. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2016
- [6] Ugo Pelay, Lingai Luo, Yilin Fan, et al. Thermal energy storage systems for concentrated solar power plants. Renewable and Sustainable Energy Reviews, 2017
- [7] 刘冠杰, 韩立鹏, 王永鹏, 等. 固体储热技术研究进展. 应用能源技术, 2018(3):4
Liu Guanjie, Han Lipeng, Wang Yongpeng, et al. Research Progress of Solid Thermal Storage Technology. Applied Energy Technology, 2018(3):4
- [8] Huili Zhang, Jan Baeyens, Gustavo Cáceres, et al. Thermal energy storage: Recent developments and practical aspects. Progress in Energy and Combustion Science, 2016, 53:1-40
- [9] Sicong Tian, Jianguo Jiang, Feng Yan, et al. Synthesis of Highly Efficient CaO-Based, Self-Stabilizing CO_2 Sorbents via Structure-Reforming of Steel Slag. Environmental Science & Technology, 2015, 49(12):7464
- [10] Ke Wang, Feng Gu, Peter T. Clough, et al. Porous MgO-stabilized CaO-based powders/pellets via a citric acid-based carbon template for thermochemical energy storage in concentrated solar power plants. Chemical Engineering Journal, 2020, 390:124163
- [11] Hao Sun, Yingjie Li, Xian Yao Yan, et al. Thermochemical energy storage performance of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CeO}_2$ co-doped CaO-based material under high carbonation pressure. Applied Energy, 2020, 263:114650
- [12] Monica Benitez-Guerrero, Jose Manuel Valverde, Pedro E. Sanchez-Jimenez, et al. Calcium-Looping

- performance of mechanically modified Al_2O_3 -CaO composites for energy storage and CO_2 capture. The Chemical Engineering Journal, 2017:S1385894717321058
- [13] Azhar Abbas Khosa, J. Yan, C.Y. Zhao. Investigating the effects of ZnO dopant on the thermodynamic and kinetic properties of CaCO_3 /CaO TCES system. Energy, 215
- [14] Hao Liu, Sufang Wu. Preparation of High Sorption Durability Nano-CaO-ZnO CO_2 Adsorbent. Energy & fuels, 2019, 33(AUG.):7626-7633
- [15] Shengbin Bai, Jian Sun, Zijian Zhou, et al. Structurally improved, TiO_2 -incorporated, CaO-based pellets for thermochemical energy storage in concentrated solar power plants. Solar Energy Materials and Solar Cells, 2021, 226:111076
- [16] Hongxia Guo, Jiaqi Feng, Yujun Zhao, et al. Effect of micro-structure and oxygen vacancy on the stability of (Zr-Ce)-additive CaO-based sorbent in CO_2 adsorption. Journal of CO_2 Utilization, 2017, 19:165-176
- [17] Marcin Broda, Christoph R. Müller. So-gel-derived, CaO-based, ZrO_2 -stabilized CO_2 sorbents. Fuel, 2014, 127:94-100
- [18] Hamid R. Radfarnia, Maria C. Iliuta. Development of Zirconium-Stabilized Calcium Oxide Absorbent for Cyclic High-Temperature CO_2 Capture. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2012, 51(31):10390-10398
- [19] Hongxia Guo, Shengping Wang, Chun Li, et al. Incorporation of Zr into Calcium Oxide for CO_2 Capture by a Simple and Facile Sol-Gel Method. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2016:acs.iecr.5b04112
- [20] Caifeng Huang, Min Xu, Xiulan Huai, et al. Template-Free Synthesis of Hollow $\text{CaO}/\text{Ca}_2\text{SiO}_4$ Nanoparticle as a Cyclically Stable High-Capacity CO_2 Sorbent. ACS Sustainable Chemistry & Engineering, 2021, 9(5)
- [21] Yun Da, Yimin Xuan, Liang Teng, et al. Calcium-based composites for direct solar-thermal conversion and thermochemical energy storage. Chemical Engineering Journal, 2020, 382: 122815
- [22] Boyu Li, Yingjie Li, Yehui Dou, et al. SiC/Mn co-doped CaO pellets with enhanced optical and thermal properties for calcium looping thermochemical heat storage. Chemical Engineering Journal, 2021, 423(5):130305
- [23] Qibin Zhu, Yimin Xuan, Xianglei Liu. Enhancing direct solar thermochemical performance of modified CaCO_3 with thermal transport networks composed of tetrapod-shaped ZnO whiskers. Solar Energy Materials and Solar Cells, 2022, 248: 111981
- [24] Yonggang Xu, Chi Yang, Jun Li, et al. Development of AlN/epoxy composites with enhanced thermal conductivity. Materials, 2017, 10(12): 1442

基于 Tamm 等离子体极化激元与单层 WS₂ 激子的耦合吸收增强

周 昆, 孙希贤

(中国矿业大学 安全工程学院, 江苏 徐州 221116)

摘 要 单层二硫化钨 (WS₂) 在过渡金属硫化物 (TMDCs) 中表现出最大的振荡强度和最小的阻尼因子, 但因单层 WS₂ 仅有单原子层厚度而使得其本征激子吸收很弱, 限制了其在实际光电器件中的应用。为了增强单层 WS₂ 激子的局域吸收, 借助 Tamm 等离子体极化激元 (TPPs) 激发时在间隔层内电场强度大幅增强的特点, 提出了单层 WS₂ 和 TPPs 结构组成的复合结构。利用严格耦合波分析法研究了 TPPs 模式对单层 WS₂ 激子跃迁吸收增强的影响。研究表明, 当复合结构中间隔层厚度为 392 nm 时, 复合结构中单层 WS₂ 的 A 激子局域吸收比其本征吸收增强近 5 倍。此外, 当照射在复合结构上的 TM (TE) 偏振波入射角小于约 15° (14°) 时, 复合结构中可以获得显著的激子耦合吸收增强。所设计的复合结构为增强单层 WS₂ 的激子局域吸收提供了一种简单的途径, 有助于单层 WS₂ 基光电器件的设计。

关键词 单层二硫化钨; 激子吸收; Tamm 等离子体极化激元; 严格耦合波分析法

中图分类号 O482.31 **文献标志码** A

Coupled absorption enhancement based on Tamm plasmon polaritons and monolayer WS₂ excitons

ZHOU Kun, Sun Xixian

*School of Safety Engineering, China University of Mining and Technology, Xuzhou
221116, China*

Abstract Monolayer tungsten disulfide (WS₂) exhibits the largest oscillation intensity and the smallest damping factor among the transition metal dichalcogenides (TMDCs), but its intrinsic exciton absorption is weak owing to its atomic layer thickness, limiting its application in practical optoelectronic devices. In order to enhance the localized absorption of monolayer WS₂ excitons, a hybrid structure consisted of monolayer WS₂ and Tamm plasmon polaritons (TPPs) structure is proposed by virtue of the greatly enhanced electric field intensity in the spacer layer when the TPPs mode is excited. The effect of TPPs modes on the absorption enhancement of the exciton transition in monolayer WS₂ was investigated by rigorous coupled wave analysis. When the thickness of the spacer layer of the hybrid structure is 392 nm, A exciton localized absorption of the monolayer WS₂ in the hybrid structure is nearly 5 times enhanced than its intrinsic absorption. Furthermore, when the incident angle of the TM (TE) polarized wave impinging on the composite structure is less than about 15° (14°), significant exciton-coupled absorption enhancement can be achieved within the hybrid structure. The hybrid structure provides a simple way to enhance the

基金项目: 国家自然科学基金资助(52204258)

通信作者: zhoukun0209@163.com

localized absorption of monolayer WS_2 exciton, which is helpful for the design of monolayer WS_2 -based optoelectronic devices.

Key words monolayer tungsten disulfide; exciton absorption; Tamm plasmon polaritons; rigorous coupled wave analysis

1 引言

化学式为 MX_2 ($\text{M} = \text{W}, \text{Mo}; \text{X} = \text{S}, \text{Se}$) 的过渡金属硫化物 (TMDCs) 在转变为单层时, 其带隙会从间接带隙转变为直接带隙^[1]。作为典型的二维 TMDCs, 单层 WS_2 表现出最大的振荡强度和最小的阻尼因子, 这些特性使其成为在可见光波段实现激子耦合的最佳 TMDCs^[2]。同时, 单层 WS_2 由于具有独特的光学和电学特性, 在场效应晶体管^[3, 4]、光致发光^[5-7]、光电检测^[8, 9]、光伏电池^[10]和光电晶体管^[11, 12]等诸多领域中引起广泛关注。虽然单层 WS_2 具有很高的吸收系数和独特的光致发光特性, 但由于其仅有单原子层厚度使得本征吸收很弱, 限制了其在光电器件中的应用。

增强光与单层 WS_2 的相互作用对单层 WS_2 基光电器件的应用具有重要意义。过去一段时间, 利用不同结构配置激发的电磁响应模式来增强单层 WS_2 的局域吸收成为一研究热点, 如局域表面等离子体共振^[13]、法布里-珀罗共振^[14, 15]、导模共振^[16-18]及表面等离子体极化激元^[19, 20]等, 但上述模式均需复杂的结构设计, 这增加了制造难度且会对单层 WS_2 造成损害而影响其性能。与上述电磁响应模式相比, Tamm 等离子体极化激元 (TPPs) 模式无需诸如棱镜或光栅等复杂光子结构设计, 可直接被 TE 或 TM 偏振光激发, 且激发 TPPs 模式无特定入射角的限制; TPPs 模式已成功被应用于完美吸收、非线性光学和金属/半导体激光器等领域。

前期已有关于用 TPPs 模式来增强石墨烯和 TMDCs 局域吸收的研究, 但涉及如何增强单层 WS_2 激子跃迁吸收的研究相对较少。在本文中, 提出用 Tamm 等离子体结构和单层 WS_2 组成的复合结构来实现单层 WS_2 激子的耦合局域吸收增强, 尤其是涉及单层 WS_2 的 A 激子。接下来将利用严格耦合波分析法 (RCWA) 研究 TPPs 模式对单层 WS_2 激子跃迁吸收增强的影响。

2 结构模型与数值计算方法

为了增强单层 WS_2 激子的局域吸收, 提出了如图 1 所示的 Tamm 等离子体结构和单层

WS₂ 构成的复合结构，即基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构，其由超薄 Ag 膜、SiO₂ 间隔层、交替排列的 Si 层和 SiO₂ 层组成的分布式布拉格反射镜（DBR）以及夹在 SiO₂ 间隔层中的单层 WS₂ 组成。图 1 中 d_0 表示单层 WS₂ 厚度， d_1 表示 Ag 膜厚度， d_2 (d_3) 代表单层 WS₂ 到 Ag 膜（DBR）之间的厚度， d_4 (d_5) 为 DBR 中 Si (SiO₂) 层厚度， N 为 DBR 的周期数。除非另有说明外，本研究中结构参数设置为 $d_1 = 30$ nm, $d_2 = 0$ nm, $d_3 = 392$ nm, $d_4 = 44$ nm, $d_5 = 105$ nm, $N = 5$, $\theta = 0^\circ$ 。

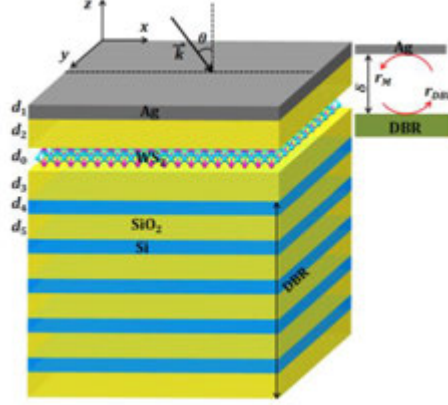


图1 基于单层WS₂的TPPs结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of monolayer WS₂-based TPPs structure

本文中用 RCWA 法^[21]计算 Tamm 等离子体结构和基于单层 WS₂ 构成复合结构的光谱辐射特性，计算中 Si 和 SiO₂ 的介电函数参考至文献^[22]，Ag 的介电函数为

$$\varepsilon = \varepsilon_{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma}, \quad (1)$$

其中， $\varepsilon_{\infty} = 3.7$ ， $\omega_p = 1.38 \times 10^8$ rad/s 和 $\gamma = 2.73 \times 10^{13}$ rad/s 分别为 Ag 的高频介电常数、等离子体频率和散射率^[23]。单层 WS₂ 的厚度 $d_0 = 0.618$ nm，其介电函数 $\varepsilon_{\text{WS}_2}$ 可用 Lorentz 振子模型表示^[24]

$$\varepsilon_{\text{WS}_2}(\omega) = \varepsilon_b + \sum_j \frac{f_j}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j}. \quad (2)$$

3 计算结果与分析

3.1 基于 TPPs 模式的单层 WS₂ 局域吸收增强

设垂直入射的光波为 TM 偏振光，图 2 (a) 给出了利用 RCWA 法计算得到的单层 WS₂、DBR 结构、单层 WS₂ 覆盖的 DBR 结构、TPPs 结构（无单层 WS₂）以及基于单层 WS₂ 的

TPPs 结构在 500~700 nm 范围内的光谱吸收率。结果表明：对于单层 WS₂，在 517 nm 和 616 nm 处存在光谱吸收率约为 12%和 18%的吸收峰，其分别由单层 WS₂ 的 B 激子和 A 激子跃迁引起；对于 DBR 结构，因为在相关波长区域内入射光几乎全被反射，因此无明显的吸收；对于单层 WS₂ 覆盖的 DBR 结构，在 A 激子处的吸收率约为 7%，这远小于其本征吸收，说明单层 WS₂ 覆盖的 DBR 结构抑制了单层 WS₂ 的 A 激子的吸收。

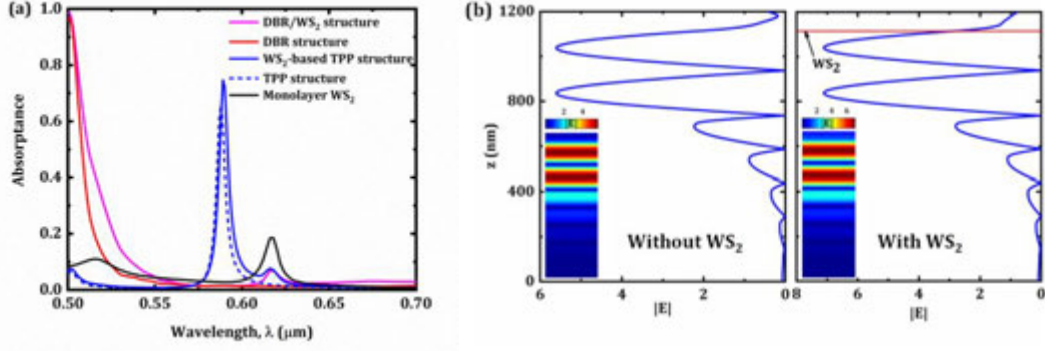


图2 (a) 几种配置的光谱吸收率；(b) TPPs结构和基于单层WS₂的TPPs结构在共振波长沿x-z截面的电场振幅分布

Fig.2 (a) Normal spectral absorbance of different configurations; (b) Electric field amplitude profile of the TPPs structure and monolayer WS₂-based TPPs structure along the x-z cross-section at their resonant wavelengths.

TPPs 模式的激发需设置特定结构，即金属/电介质间隔层/DBR（本文中为 Ag/SiO₂ 间隔层/DBR），且 TPPs 模式激发时满足以下关系式^[25]

$$r_M r_{DBR} \exp(2i\varphi) = 1, \quad (3)$$

其中， φ 代表界面之间的相变， r_M 和 r_{DBR} 分别表示从 SiO₂ 间隔层入射到 Ag 层和 DBR 层的反射系数，可以表示为

$$r_M = \frac{n_{SiO_2} - n_{Ag}}{n_{SiO_2} + n_{Ag}} \approx \exp \left[i \left(\pi + 2n_{SiO_2} \frac{\omega}{\sqrt{\epsilon_\infty} \omega_p} \right) \right], \quad (4)$$

$$r_{DBR} = \exp \left[i\beta \frac{\omega - \omega_0}{\omega_0} \right], \quad (5)$$

这里 $\beta = (\pi n_{SiO_2}) / |n_{SiO_2} - n_{Si}|$ ， $\omega_0 = \pi c / (2n_{Si} d_4) = \pi c / (2n_{SiO_2} d_5)$ 是 Bragg 频率。对于上述 TPPs 结构（无单层 WS₂），经式（3）计算理论得到的共振波长约为 585.6 nm，这与图 2（a）中的数值计算结果基本一致。当在 TPPs 结构的 SiO₂ 间隔层中添加一单层 WS₂ 形成基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构时，基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构的共振波长在 588.9 nm 且吸收率约为 77%，而作为对比 TPPs 结构（无单层 WS₂）在共振波长 585.6 nm 的吸收率仅为 64%；上述研究表明在 TPPs 结构中添加单层 WS₂ 可改善整个复合结构的吸收率。

上边用理论方法分析了 TPPs 模式激发时的共振波长，但更明显的是 TPPs 模式激发时，间隔层的电场振幅会大幅增强^[13]。因此，图 2（b）给出了 TPPs 结构和基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构在其共振波长处沿 x - z 截面的电场振幅分布。结果表明复合结构中电场振幅增强主要集中在 SiO₂ 间隔层，且 TPPs 结构中最大电场振幅为 5.6 V/m，而基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构中的最大电场振幅为 7.1 V/m；上述结果表明尽管单层 WS₂ 仅有原子层厚度，但因其具有较大的吸收系数，且发生 TPPs 模式引起吸收和单层 WS₂ 本征吸收的耦合，使复合结构表现出吸收增强和电场振幅增大的特征。为计算基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构中 WS₂ 的局域吸收增强，其功率损耗密度为^[26-28]

$$w(x, z) = 0.5 \varepsilon_0 \omega \varepsilon''(x, z) |\mathbf{E}(x, z)|^2, \quad (6)$$

这里 ε_0 、 $\varepsilon''(x, z)$ 和 $\mathbf{E}(x, z)$ 分别表示真空中的介电常数、材料介电函数的虚部以及复合结构中的电场振幅。因此，在给定体积 V 内，基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构中单层 WS₂ 的局域吸收率可以表示为

$$\alpha = \frac{\iiint w(x, z) dV}{0.5 c_0 \varepsilon_0 |\mathbf{E}_{\text{inc}}|^2 S_{\text{area}} \cos \theta}, \quad (7)$$

其中分母是外部入射电磁能量在投影面积 S_{area} 以 θ 角入射的能量份额。在基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构中单层 WS₂ 在共振波长 588.9 nm 处的局部吸收率增加至 58.9%，相比悬浮单层 WS₂ 的本征吸收提高了约 3.3 倍。

3.2 结构参数对 TPPs 耦合增强 WS₂ 激子吸收

单层 WS₂ 基器件中由激子跃迁引起的高光吸收对实现显著的光电响应具有特别重要的意义，尤其是激子跃迁吸收对单层 WS₂ 的光致发光起着非常重要的作用，然而激子跃迁引起的本征吸收较弱，因此极有必要进一步增强单层 WS₂ 的激子吸收。为此需调整复合结构的 TPPs 共振波长与单层 WS₂ 的激子跃迁波长匹配来增强激子的局域吸收。TPPs 模式引起的共振峰极大地依赖于结构参数配置，接下来首先探究 SiO₂ 间隔层厚度对 TPPs 共振波长及光谱吸收率的影响。图 3（a）中虚线所示的 TPPs 结构的光谱吸收率，随着 SiO₂ 间隔层厚度从 330 nm 增加到 410 nm，TPPs 共振波长从 542 nm 增加到 636 nm 且光谱吸收率逐渐降低。相比之下，对于图 3（a）中实线所示的基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构的光谱吸收率，当 SiO₂ 间隔层厚度为 330 nm、350 nm 和 370 nm 时，除了由 TPPs 模式引起的吸收峰外，还出现了由单层 WS₂ 的 A 激子跃迁引起的吸收峰。当 SiO₂ 间隔层厚度为 392 nm 时，基于单层

WS₂ 的 TPPs 结构中的共振波长与单层 WS₂ 的 A 激子跃迁波长恰好匹配,此时基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构的光谱吸收率接近 100%, 而作为对比 TPPs 结构的光谱吸收率仅为 61%, 这表明通过调谐基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构的共振波长位置实现了 TPPs 模式与 A 激子的耦合吸收增强, 此时 A 激子跃迁波长处的局域吸收率约为 90.2%。

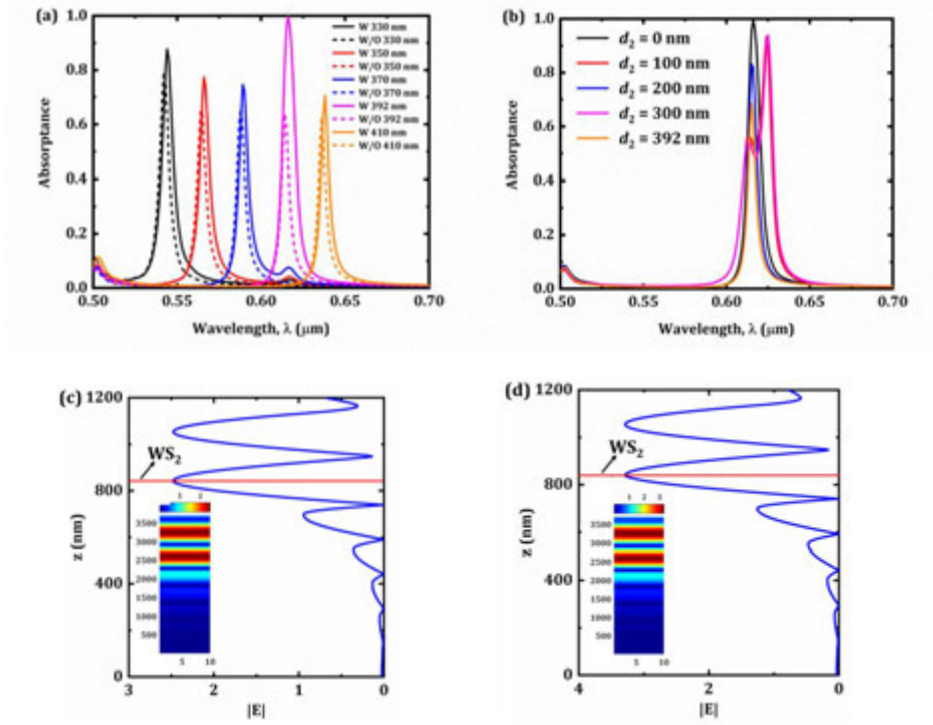


图3 不同 (a) 间隔层厚度和 (b) WS₂位置 d_2 下复合结构的光谱吸收率; $d_2 = 100$ nm时, (c) $\lambda = 615.8$ nm

和 (d) $\lambda = 623.8$ nm复合结构中沿 x - z 截面的电场振幅分布

Fig. 3 Absorbance of the hybrid structure at different (a) spacer layer thicknesses and (b) WS₂ positions d_2 ; at $d_2 = 100$ nm, electric field amplitude distribution of the hybrid structure along the x - z cross-section at (c) $\lambda = 615.8$ nm and (d) $\lambda = 623.8$ nm

如前所述, TPPs 模式的激发会使得电介质间隔层内的电场振幅大幅增加; 图 3 (b) 给出了在保持 SiO₂ 间隔层厚度 $d_2 + d_3 = 392$ nm 时, 调谐单层 WS₂ 在 SiO₂ 间隔层中的位置对基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构吸收率的影响。研究结果表明调节单层 WS₂ 在 SiO₂ 间隔层中的位置可以调谐基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构的峰值吸收率。文献中的研究表明 TPPs 共振波长几乎不随单层石墨烯或 MoS₂ 在间隔层中位置的变化而变化。然而本研究中出现一个有趣的现象, 当 $d_2 = 100$ nm 或 $d_2 = 300$ nm 时, 上述由 TPPs 模式引起的吸收峰会劈裂成两个峰。接下来以 $d_2 = 100$ nm 为例阐述两个吸收峰的产生原因, 图 3 (c) 和图 3 (d) 给出了基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构在峰值波长 615.8 nm 和 623.8 nm 处沿 x - z 截面的电场振幅分布, 结果表明在基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构中单层 WS₂ 内的电场振幅分布在两个共振波长下均最强。尽管单层 WS₂ 仅有原子层厚度, 但单层 WS₂ 的高介电常数实部足以影响基于单层 WS₂ 的

TPPs 结构中的电场振幅分布，且单层 WS₂ 的介电常数虚部也可以改变其电场振幅强度，特别是在 A 激子位置。因此在 615.8 nm 处的吸收主要由 A 激子跃迁引起，而在 623.8 nm 处的吸收主要归因于 TPPs 模式与单层 WS₂ 的耦合增强。此外当在共振波长 615.8 nm 和 623.8 nm 时，单层 WS₂ 在基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构中的局域吸收率分别为 55.5% 和 89.7%。

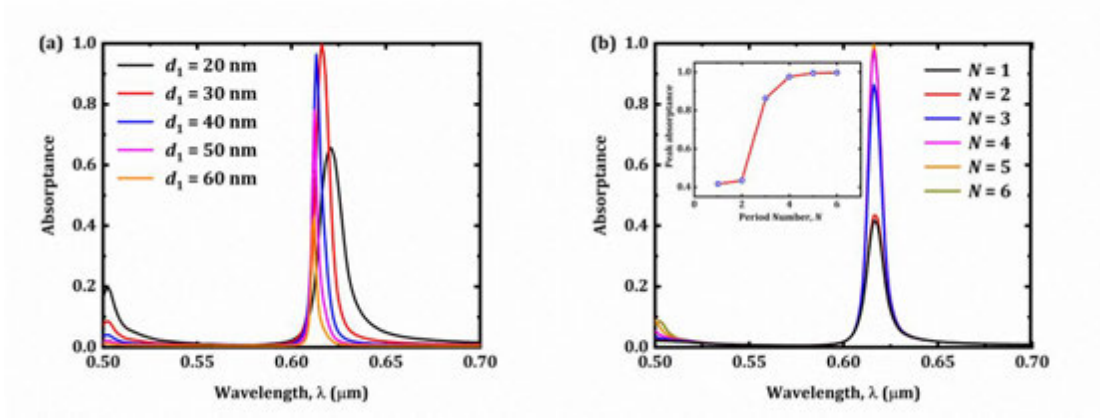


图4 基于单层WS₂的TPPs结构在不同结构参数下的光谱吸收率：（a）Ag厚度 d_1 ，（b）DBR周期数 N

Fig. 4 Spectral absorbance of monolayer WS₂-based TPPs structure under different structural parameters: (a) Ag thickness d_1 ; (b) DBR period number N

金属膜厚度对激发 TPPs 模式起着至关重要的作用，图 4（a）中的结果表明 TPPs 共振波长对 Ag 厚度 d_1 有较大的敏感性，随着 d_1 从 20 nm 增大到 60 nm，TPPs 共振波长向短波方向移动，且吸收率先增大后减小；当 $d_1 = 30$ nm 时，TPPs 共振波长恰好与单层 WS₂ 的 A 激子跃迁波长相匹配，此时整个结构的光谱吸收率在 TPPs 模式和 A 激子耦合下得到增强。除了金属膜厚度，DBR 在 TPPs 结构中起完美反射层的作用，可抑制入射光的透射；DBR 中 Si 和 SiO₂ 层厚度满足 $4n_{Si}d_4 = 4n_{SiO_2}d_5 = \lambda_0$ [25]，其中 λ_0 为 Bragg 波长。图 4（b）为改变 DBR 周期数 N 对单层 WS₂ 的 A 激子跃迁吸收的影响。由于入射光在 DBR 中传输时几乎不发生耗散，因此增大 DBR 周期数 N 几乎不影响 TPPs 共振波长位置。增加 DBR 周期数 N 可以显著提高 A 激子跃迁的局域吸收率，当 $N \geq 5$ 时 A 激子处耦合增强的吸收率接近 100%，这是由于给定 DBR 的反射率达到了饱和值。此外，由于单层 WS₂ 的 A 激子跃迁吸收的贡献，在实现 100% 吸收的基础上明显地减小了 TPPs 中 DBR 的周期数 N [29-32]。以上讨论为实验设计中选择合适的 Ag 厚度 d_1 和 DBR 周期数 N 来优化 A 激子跃迁的局域吸收率提供了理论指导。

3.3 入射角对耦合增强单层 WS₂ 激子吸收的影响

激子跃迁是单层 WS₂ 的固有属性，激子跃迁波长不随入射角的变化而变化 [33]。上述仅

研究了针对基于单层 WS_2 的 TPPs 结构在法向入射时的光谱响应。接下来将研究入射角对基于单层 WS_2 的 TPPs 结构光谱吸收率的影响，同时将探索通过 TPPs 模式实现单层 WS_2 激子耦合增强吸收的最佳入射角范围。图 5 (a) 和图 5 (b) 分别给出了在 TM 偏振和 TE 偏振下基于单层 WS_2 的 TPPs 结构光谱吸收率随波长和入射角的变化规律，其中插图显示了不同入射角下的吸收率曲线，白色虚线和圆圈分别表示单层 WS_2 的 A 激子和 TPPs 共振波长的位置。TM 偏振和 TE 偏振均可激发 TPPs 模式，当 TM (TE) 偏振波的入射角小于 15° (14°) 时，可在基于单层 WS_2 的 TPPs 结构中实现 TPPs 模式与单层 WS_2 的 A 激子之间耦合吸收增强，而当 TM (TE) 偏振波的入射角大于 15° (14°) 时，TM (TE) 偏振下耦合增强的吸收峰劈裂为两个峰。其中一个是由单层 WS_2 的 A 激子跃迁引起的吸收峰，且在 TM (TE) 偏振下其波长位置不随入射角的增加而改变^[33]；另一个是由 TPPs 模式引起的且随着入射角度的增加具有明显的蓝移现象，这是 TPPs 模式的典型特征^[25, 30, 31]。因此，要通过 TPPs 模式增强单层 WS_2 的 A 激子跃迁局域吸收，合适的 TM (TE) 偏振波的入射角应小于 15° (14°)。

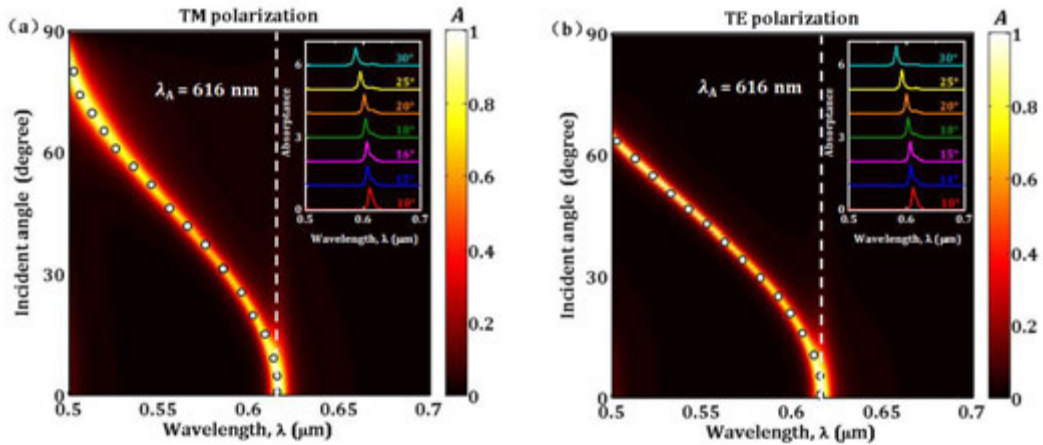


图5 基于单层 WS_2 的TPPs结构的光谱吸收率随波长和入射角的变化规律：（a）TM偏振，（b）TE偏振
Fig. 5 Spectral absorbance of the monolayer WS_2 -based TPPs structure as a function of wavelength and incident angle: (a) TM polarization, (b) TE polarization

4 结论

基于 TPPs 模式激发时在间隔层内电场强度大幅增强的特点,提出基于单层 WS_2 的 TPPs 结构来增强单层 WS_2 的 A 激子局域吸收。当基于单层 WS_2 的 TPPs 结构中 Ag 膜和 SiO_2 间隔层厚度分别调整到 30 nm 和 392 nm 时, TPPs 模式的响应波长与单层 WS_2 的 A 激子位置匹配,此时基于单层 WS_2 的 TPPs 结构的光谱吸收率接近 100%; 同时在单层 WS_2 的 A 激子处局域吸收率可以提至到 90.2% (相比于 A 激子处的本征吸收增强约 5 倍)。进一步的研究

表明, 改变 WS₂ 在间隔层中的位置可以优化单层 WS₂ 的局部吸收率。随着 DBR 的周期数增加至 $N = 5$, 基于单层 WS₂ 的 TPPs 结构的吸收率可以达到 100%, 这远低于所报道的 TPPs 基复合结构^[29, 31, 32]。此外, 当 TM (TE) 偏振的入射角小于约 15° (14°) 时, 可以在复合结构的协助下获得耦合增强的 A 激子局域吸收。通过 TPPs 模式实现耦合增强单层 WS₂ 的 A 激子局域吸收将有助于 WS₂ 基光学和光电器件的潜在应用。

参考文献

- [1] Li Y, Chernikov A, Zhang X, et al. Measurement of the optical dielectric function of monolayer transition-metal dichalcogenides: MoS₂, MoSe₂, WS₂, and WSe₂ [J]. *Physical Review B*, 2014, 90(20): 205422.
- [2] Fernandez H A, Withers F, Russo S, et al. Electrically Tuneable Exciton-Polaritons through Free Electron Doping in Monolayer WS₂ Microcavities [J]. *Advanced Optical Materials*, 2019, 7(18): 1900484.
- [3] Braga D, Gutiérrez Lezama I, Berger H, et al. Quantitative determination of the band gap of WS₂ with ambipolar ionic liquid-gated transistors [J]. *Nano letters*, 2012, 12(10): 5218-5223.
- [4] Liu Y, Guo J, Wu Y, et al. Pushing the performance limit of sub-100 nm molybdenum disulfide transistors [J]. *Nano letters*, 2016, 16(10): 6337-6342.
- [5] Gutiérrez H R, Perea-López N, Elías A L, et al. Extraordinary room-temperature photoluminescence in triangular WS₂ monolayers [J]. *Nano letters*, 2013, 13(8): 3447-3454.
- [6] Hill H M, Rigosi A F, Roquelet C, et al. Observation of excitonic Rydberg states in monolayer MoS₂ and WS₂ by photoluminescence excitation spectroscopy [J]. *Nano letters*, 2015, 15(5): 2992-2997.
- [7] 戴银, 李林, 苑汇帛, 等. InGaAs/GaAs应变量子阱的发光特性研究[J]. *光学学报*, 2014, (11): 342-347.
Dai Y, Li L, Yuan H B, et al. Research on photoluminescence properties of InGaAs/GaAs strained quantum well [J]. *Acta optica sinica*, 2014, (11): 342-347.
- [8] Pawbake A S, Waykar R G, Late D J, et al. Highly transparent wafer-scale synthesis of crystalline WS₂ nanoparticle thin film for photodetector and humidity-sensing applications [J]. *ACS applied materials & interfaces*, 2016, 8(5): 3359-3365.
- [9] 张明辉, 胡立恩, 姚丹, 等. 石英音叉增强光声光谱甲烷检测系统 [J]. *光学学报*, 2020, 40(24): 2430001.
Zhang M H, Hu L E, Yao D, et al. Quartz tuning fork enhanced photoacoustic spectroscopic methane detection system [J]. *Acta optica sinica*, 2020, 40(24): 2430001.
- [10] Gan L-Y, Zhang Q, Cheng Y, et al. Photovoltaic heterojunctions of fullerenes with MoS₂ and WS₂ monolayers [J]. *The journal of physical chemistry letters*, 2014, 5(8): 1445-1449.
- [11] Yu Y, Zhang Y, Song X, et al. PbS-decorated WS₂ phototransistors with fast response [J]. *Acs Photonics*, 2017, 4(4): 950-956.
- [12] Gong F, Luo W, Wang J, et al. High-sensitivity floating-gate phototransistors based on WS₂ and MoS₂ [J]. *Advanced Functional Materials*, 2016, 26(33): 6084-6090.
- [13] Zhou K, Song J, Lu L, et al. Plasmon-enhanced broadband absorption of MoS₂-based

- structure using Au nanoparticles [J]. *Optics Express*, 2019, 27(3): 2305-2316.
- [14] Li H, Chen B, Qin M, et al. Strong plasmon-exciton coupling in MIM waveguide-resonator systems with WS₂ monolayer [J]. *Optics Express*, 2020, 28(1): 205-215.
- [15] 沈川, 韦穗, 虞海秀, 等. 基于亚波长光栅结构的硅基液晶器件模型研究 [J]. *光学学报*, 2020, 40(3): 0305001.
- Shen C, Wei S, Yu H X, et al. Model of liquid crystal on silicon device with sub-wavelength grating structure [J]. *Acta optica sinica*, 2020, 40(3): 0305001.
- [16] Liu J-T, Wang T-B, Li X-J, et al. Enhanced absorption of monolayer MoS₂ with resonant back reflector [J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115(19): 193511.
- [17] Zheng J, Barton R A, Englund D. Broadband coherent absorption in chirped-planar-dielectric cavities for 2D-material-based photovoltaics and photodetectors [J]. *Acs Photonics*, 2014, 1(9): 768-774.
- [18] 宋志, 路畅, 魏国军, 等. 反射型光变色超表面滤光结构 [J]. *光学学报*, 2021, 41(20): 2023001.
- Song Z, Lu C, Wei G J, et al. Reflective metasurface filter with optical variable color [J]. *Acta optica sinica*, 2021, 41(20): 2023001.
- [19] Butun S, Tongay S, Aydin K. Enhanced light emission from large-area monolayer MoS₂ using plasmonic nanodisc arrays [J]. *Nano letters*, 2015, 15(4): 2700-2704.
- [20] Sobhani A, Lauchner A, Najmaei S, et al. Enhancing the photocurrent and photoluminescence of single crystal monolayer MoS₂ with resonant plasmonic nanoshells [J]. *Applied physics letters*, 2014, 104(3): 031112.
- [21] 周云, 叶燕, 申溯, 等. 亚波长光栅结构彩色滤光片研究 [J]. *光学学报*, 2011, 31(1): 0123003.
- Zhou Y, Ye Y, Shen S, et al. Research on the characteristics of sub-wavelength grating color filter [J]. *Acta optica sinica*, 2011, 31(1): 0123003.
- [22] Yang Z-Y, Ishii S, Yokoyama T, et al. Narrowband wavelength selective thermal emitters by confined Tamm plasmon polaritons [J]. *Acs Photonics*, 2017, 4(9): 2212-2219.
- [23] Johnson P B, Christy R-W. Optical constants of the noble metals [J]. *Physical Review B*, 1972, 6(12): 4370.
- [24] Gonçalves P, Bertelsen L, Xiao S, et al. Plasmon-exciton polaritons in two-dimensional semiconductor/metal interfaces [J]. *Physical Review B*, 2018, 97(4): 041402.
- [25] Kaliteevski M, Iorsh I, Brand S, et al. Tamm plasmon-polaritons: Possible electromagnetic states at the interface of a metal and a dielectric Bragg mirror [J]. *Physical Review B*, 2007, 76(16): 165415.
- [26] Brenner K-H. Aspects for calculating local absorption with the rigorous coupled-wave method [J]. *Optics Express*, 2010, 18(10): 10369-10376.
- [27] Zhou K, Cheng Q, Lu L, et al. Dual-band tunable narrowband near-infrared light trapping control based on a hybrid grating-based Fabry-Perot structure [J]. *Optics Express*, 2020, 28(2): 1647-1656.
- [28] Zhou K, Cheng Q, Song J, et al. Highly efficient narrow-band absorption of a graphene-based Fabry-Perot structure at telecommunication wavelengths [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(14): 3430-3433.
- [29] Lu H, Gan X, Mao D, et al. Nearly perfect absorption of light in monolayer molybdenum disulfide supported by multilayer structures [J]. *Optics Express*, 2017, 25(18): 21630-21636.

- [30] Lu H, Gan X, Jia B, et al. Tunable high-efficiency light absorption of monolayer graphene via Tamm plasmon polaritons [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(20): 4743-4746.
- [31] Zhou K, Lu L, Song J, et al. Ultra-narrow-band and highly efficient near-infrared absorption of a graphene-based Tamm plasmon polaritons structure [J]. *Journal of Applied Physics*, 2018, 124(12): 123102.
- [32] Hu J, Yao E, Xie W, et al. Strong longitudinal coupling of Tamm plasmon polaritons in graphene/DBR/Ag hybrid structure [J]. *Optics Express*, 2019, 27(13): 18642-18652.
- [33] Thygesen K S. Calculating excitons, plasmons, and quasiparticles in 2D materials and van der Waals heterostructures [J]. *2D Materials*, 2017, 4(2): 022004.

近场热辐射辅助的航天器热控皮肤性能优化

汪国云¹, 徐德宇¹, 赵军明¹

(1. 哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150001)

(Tel.: 0451-86412138, Email: jmzhao@hit.edu.cn)

摘要: 可调发射率热控对处于复杂多变空间热环境的航天器安全可靠运行十分关键, 目前主流的可调发射率热控措施存在诸多瓶颈, 最近提出的近场热辐射辅助热控皮肤优势明显, 但有待进一步优化。本文阐明了真空间距、匹配层掺杂浓度对热控皮肤性能的影响机制, 结果表明真空间距和匹配层掺杂浓度存在最优值使得热控皮肤的发射率调节性能最佳, 给出了中远红外波段下热控皮肤性能较优的参数范围, 优化后获得了阴影区低于 0.1 的最小发射率, 拓宽了热控皮肤的发射率调节范围。本文为近场热辐射热控皮肤提供了设计和优化参考。

关键词: 航天器热控; 可调发射率; 近场热辐射; 金属/绝缘体/半导体

0 前言

空间热环境非常苛刻, 有效的热控措施是保证航天器安全可靠运行和长期稳定工作的关键。为应对复杂多变的空间热环境和动态内部热载荷, 众多学者对航天器可调发射率热控技术开展了研究, 包括几何结构改变的器件^[1-7]、热致变色器件^[8-16]和电致变色器件^[17-23]。几何结构改变器件支持发射率的快速、主动和大范围调节, 但存在活动部件。热致变色器件支持发射率的被动、全固态、自适应调节, 但材料相变温度过高或相变温区过大。电致变色器件支持主动和大范围调节, 但仅在两种发射率状态间可调。总的来说, 现行技术各具优势, 但又各有局限, 尚未出现一种技术兼具全固态、主动、准确、大范围调节等优点, 新的技术路径有待开发。

目前可调发射率航天器热控方案的研究大都集中在远场热辐射调控, 由于光子隧穿机制, 近场辐射传热可以远超黑体辐射极限, 理论研究和实验验证的进展推动了其在热调控方面的应用^[24-26], 近场辐射对传热的增强机制可扩大热流调节范围, 为热流调控提供了有效途径。Papadakis 等^[27]提出了金属/氧化物/半导体(MOS)结构热开关, 外加偏压使得半导体层的载流子积累或耗尽, 导致了参与近场辐射传热介质的光学性质改变, 数值研究了近场热流的电压调控机制。Thomas 等^[28]和 Shi 等^[29]以石墨烯作为 MOS 结构半导体层, 实验上证实了电压对近场热流的调控作用。利用载流子的电场效应调控近场辐射换热, 提升了传热器件的响应速度, 而对传热介质光学性质的电压调控可使其介电函数呈现梯度分布, 实现了电压对近场辐射热流的大范围调节^[30]。最近 Xu 等^[31]基于金属/绝缘体/半导体(MIS)结构提出了近场热辐射辅助的航天器智能热控皮肤, 为航天器变发射率热控提供了新思路, 可实现受控表面发射率的主动快速、连续精确和大范围调控, 数值模拟结果表明发射率调节量最大可达 0.71, 但这方面研究正处于起步阶段, 其参数有待进一步优化。

文献^[31]提出的近场热辐射辅助热控皮肤的原理可概括为: 对参与近场辐射传热介质(如 MIS)施加电压调控介质的光学性质(介电函数), 导致热控皮肤的近场辐射热阻可调, 最终实现电压对航天器受控表面发射率的调节。本文基于此理论框架对 MIS 结构近场热辐射热控皮肤展开真空间距和匹配层掺杂浓度的参数优化, 以期通过降低最小发射率来增大发射率调节量, 并给出 MIS 结构热控皮肤性能较优的真空间距和匹配层掺杂浓度的参数范围。本文的研究结果将为基于 MIS 结构的新型热控皮肤的设计提供参考。

1 理论模型

文献[31]提出的近场热辐射辅助热控皮肤主要包括四部分：MIS 结构、纳米级真空间隙、金属基底上覆盖的半导体匹配层和最外层的光学太阳反射镜(OSR)，如图 1 所示。文献[31]还给出了热控皮肤的实施示例，具体参数如表 1 所示，半导体层、绝缘层和匹配层的厚度分别记为 t_1 、 t_2 和 t_3 ，半导体层和匹配层的初始掺杂浓度（受主杂质浓度）分别记为 N_S 和 N_M ，匹配层介电常数记为 ϵ_1 。对 MIS 结构施加不同的电压，载流子浓度分布的改变导致了半导体层介电函数的变化，使得电压能够调节热控皮肤的近场辐射热阻，最终实现了受控表面温度的电压可调。为便于和其他可调发射率方案进行比较，引入文献[31]定义的等效发射率 $\epsilon_{\text{eff}} = \epsilon(T_S^4 - T_L^4)/(T_H^4 - T_L^4)$ 来衡量热控皮肤的散热能力，其中 ϵ 为 OSR 的发射率，考虑到导热热阻远小于近场辐射热阻，本文假设真空间隙两侧恒温且温度分别为 T_H 和 T_S ， T_L 为深空温度(4 K)。

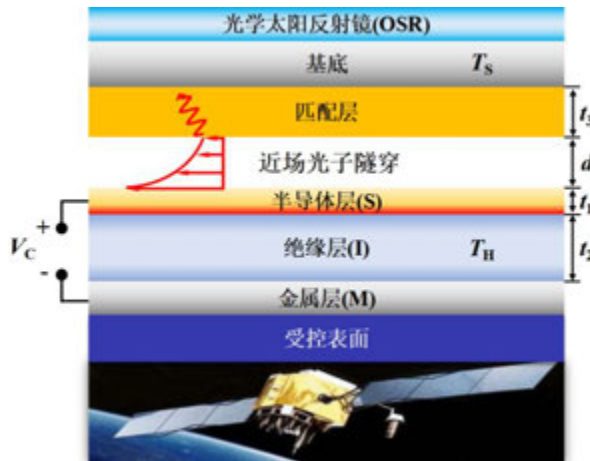


图 1 MIS 结构近场热辐射辅助热控皮肤的结构示意图

表 1 近场辐射辅助的热控皮肤实施示例^[31]

介质层	材料	参数	备注
半导体层 (S)	p 型掺杂硅	$N_S = 1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ $t_1 = 10 \text{ nm}$	受主完全电离
匹配层	p 型掺杂硅	$N_M = 1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ $t_3 = 50 \text{ nm}$	受主完全电离；对性能没有本质影响
绝缘层(I)	理想绝缘体	$\epsilon_1 = 4$ $t_2 = 100 \text{ nm}$	不支持表面声子极化激元；无击穿
金属层(M)	铝	—	对近场传热的影响很小
匹配层基底	铝、银、金等金属	—	传热贡献小；足够厚
真空间隙	—	$d = 30 \text{ nm}$	纳米柱维持；足够小保证近场效应

求解 MIS 结构的泊松方程可得到电势分布，借助玻尔兹曼统计可给出一定电压下半导体层的载流子浓度分布，一维泊松方程如下^[32-34]：

$$\frac{d}{dx}(\epsilon_{\text{dc}} \frac{d\psi}{dx}) = -\rho(x) \quad (1)$$

其中, ϵ_{dc} 为所研究介质的介电常数。 $\rho(x)$ 为电荷密度 Asm^{-3} , 对于绝缘体, $\rho(x)=0$, 而对于半导体, 其由固定的电离施主和电离受主、运动的空穴和电子组成^[32-34]:

$$\rho(x) = q[N_D - N_A + p(x) - n(x)] \quad (2)$$

式(2)中, N_D 、 N_A 、 $p(x)$ 、 $n(x)$ 分别为电离施主浓度、电离受主浓度、空穴浓度和电子浓度。空穴浓度和电子浓度由对应位置的电势 (玻尔兹曼统计) 确定^[32-34]:

$$p(x) = p_0 \exp\left[\frac{-\psi(x)q}{k_B T}\right] \quad (3)$$

$$n(x) = n_0 \exp\left[\frac{\psi(x)q}{k_B T}\right] \quad (4)$$

其中, n_0 和 p_0 满足 $p_0 n_0 = n_i^2$, n_i 为本征载流子浓度, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为半导体的绝对温度, q 为单位电子电荷 ($q = 1.602 \times 10^{-19} \text{ As}$)。对一维泊松方程的求解采用控制体积法, 为验证程序正确性将计算结果与文献[31]进行了对比, 结果很好吻合, 并进行了网格无关性验证。

介电函数建立了介质微观粒子运动与宏观光学性质的联系, 对参与近场辐射传热的半导体介电函数建模采用 Drude 模型^[35-37], 并考虑电子和空穴的贡献。空穴和电子的散射率采用文献[36]和[37]给出的公式对其建模。载流子浓度的空间梯度分布导致了参与近场辐射传热半导体层的梯度折射率 (介电函数), 其近场热流的计算利用文献[38]所述的等效多层介质近似方法。运用多层系统的涨落电动力学, 可以给出温度分别为 T_H 和 T_S 的两均匀、各向同性、非磁性介质间的近场辐射热流表达式^[35,39]:

$$q_{\text{net}} = \frac{1}{\pi^2} \int_0^\infty d\omega [\Theta(\omega, T_H) - \Theta(\omega, T_S)] \int_0^\infty s(\omega, \beta) d\beta \quad (5)$$

其中 $\Theta(\omega, T) = \hbar\omega / [\exp(\hbar\omega / k_B T) - 1]$ 是在角频率 ω 和平衡温度 T 下普朗克振子的平均能量, \hbar 为普朗克常数除以 2π 。 $\Theta(\omega, T_H) - \Theta(\omega, T_S)$ 为普朗克振子平均能量的差值, 称为普朗克窗口。 β 是平行于界面的波矢分量。 $s(\omega, \beta)$ 为交换函数, 对 β 的积分可视为普朗克黑体分布的加权函数, 包括传播波 ($\beta < \omega/c$) 和倏逝波 ($\beta > \omega/c$) 的贡献, β 在不同的积分区间, $s(\omega, \beta)$ 取不同的形式^[35,39]:

$$s(\omega, \beta) = \begin{cases} \frac{\beta(1-\rho_{01}^s)(1-\rho_{02}^s)}{4|1-R_{01}^s R_{02}^s e^{i2\gamma_0 d}|^2} + \frac{\beta(1-\rho_{01}^p)(1-\rho_{02}^p)}{4|1-R_{01}^p R_{02}^p e^{i2\gamma_0 d}|^2}, & (\beta < \omega/c) \\ \frac{\beta \text{Im}(R_{01}^s) \text{Im}(R_{02}^s) e^{-2\text{Im}(\gamma_0) d}}{|1-R_{01}^s R_{02}^s e^{-2\text{Im}(\gamma_0) d}|^2} + \frac{\beta \text{Im}(R_{01}^p) \text{Im}(R_{02}^p) e^{-2\text{Im}(\gamma_0) d}}{|1-R_{01}^p R_{02}^p e^{-2\text{Im}(\gamma_0) d}|^2}, & (\beta > \omega/c) \end{cases} \quad (6)$$

公式(6)中, “+” 号左侧项是 s 极化 (TE 波) 的贡献, “+” 号右侧项是 p 极化 (TM 波) 的贡献。 $\text{Im}()$ 为取复数的虚部。 $\gamma_0 = \sqrt{k_0^2 - \beta^2}$ 是垂直于真空界面的波矢分量, $k_0 = \omega/c$ 为真空波矢的大小。 R_{0i}^j 是真空和介质 i 之间 j 极化的有效反射系数, $j = s$ 或 p , $\rho_{0i}^j = |R_{0i}^j|^2$ 为有效反射率。对于本文涉及的多层结构间的近场辐射传热, 有效反射系数可通过传输矩阵法计算^[35]。由于交换函数在 $\omega = 1 \times 10^{12} \text{ rad/s} \sim 4 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ 范围外值很小, 与普朗克窗口的匹配性很差导致此波段范围外光谱热流很小, 因而在误差允许范围内以下热流的计算中 ω 均取 $1 \times 10^{12} \text{ rad/s} \sim 4 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ (中远红外波段)。

2 结果与讨论

本文对表 1 中所列的影响热控皮肤近场热阻的部分参数展开研究, 阐明真空间距、匹配层掺杂浓度对热控皮肤性能的影响机制, 并进行优化以提升热控皮肤的发射率调节性能。为获得最佳的发射率调控效果, 期望找到合适的参数使得一定电压范围内的最小近场热流更低, 同时能保证近场热流变化范围更宽。

2.1 真空间距对热控皮肤性能的影响

远场辐射传热极限由斯忒藩-波尔兹曼定律给出, 两热源间的辐射传热与距离无关。而当两热源的间距 d 接近或小于一定温度 T 下的热特征波长 λ_{th} (维恩位移定律给出) 时, 近场热辐射的光子隧穿机制将导致远超黑体辐射极限的传热增强, 此时辐射传热由光子隧穿主导^[35,40]。室温下间距比微米量级小时, 近场热流随间距减小而急剧增加, 可超过黑体极限 3~5 个数量级^[40], 很多近场辐射传热实验也验证了近场辐射热流对间距依赖性^[41-45]。通过控制变量研究间距 $d = 10$ nm、20 nm、30 nm、50 nm 和 100 nm 时的近场热流, T_H 和 T_S 分别为 310 K 和 290 K, 其它参数设置与表 1 相同, 结果如图 2(a)和(b)所示。随着 d 的增大, 相同电压 V_C 下的近场热流迅速减小, d 对近场热流影响显著。注意到改变 d 并不能对 MIS 电学特性产生任何影响, 耗尽区的电压范围不变。在 $V_C = -100$ V ~ 100 V 范围内近场热流随电压变化具有一定的对称性, 这是因为 MIS 结构中半导体层在反型状态时空穴和电子的作用反转, 对近场热流影响与积累状态等效。 d 越大时虽然零偏压对应的近场热流很小, 但近场热流的调节量也减小了, 存在较优的间距使得热控皮肤的发射率调节性能最佳。

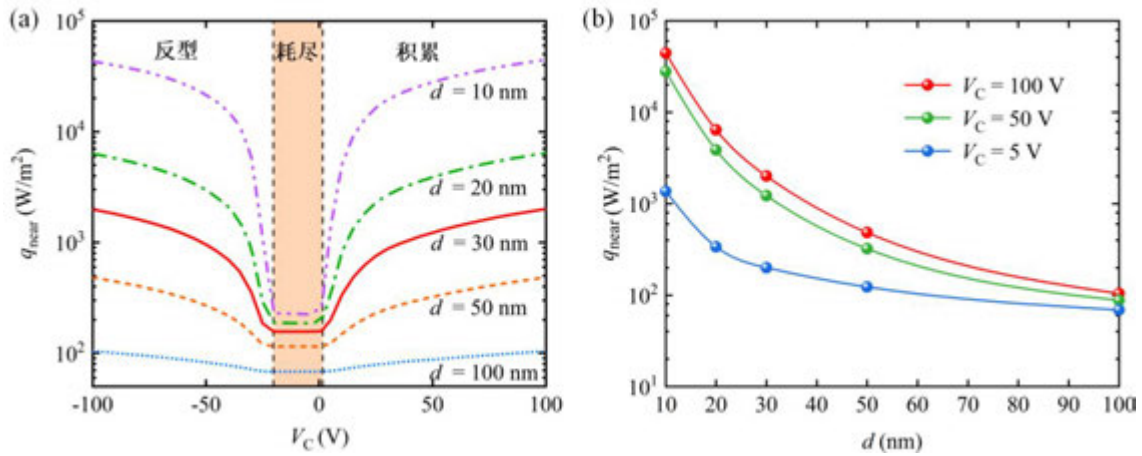


图 2 (a) 真空间距 $d = 10$ nm、20 nm、30 nm、50 nm、100 nm 时近场热流随 V_C 的变化
(b) $V_C = 100$ V, 50 V 和 5 V 时近场热流随 d 的变化

利用表 1 中的参数进行数值计算以揭示电压调控近场辐射热流的机制。图 3(a)展示了 V_C 分别为 -10 V、50 V 和 100 V 时半导体层的空穴浓度分布, x_{sem} 表示半导体层中任意位置到绝缘层/半导体层界面的垂直距离。施加正 V_C 时, 载流子浓度增加了几个数量级。与初始空穴浓度 $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 相比, 负 V_C 时空穴浓度下降到很低的水平。施加不同电压可实现对半导体层载流子浓度分布的调控, 载流子浓度呈现梯度分布, 引起半导体层的光学梯度折射率, 二者通过 Drude 模型建立映射关系。图 3(b)给出了不同载流子浓度 p 型掺杂硅的介电函数实部。图中红色和黑色虚直线分别表示真空/半导体激发 SPPs 的条件 $\text{Re}(\epsilon) + 1 = 0$ 和绝缘体/半导体激发 SPPs 的条件 $\text{Re}(\epsilon) + \epsilon_l = 0$, 交点表示在对应的载流子浓度下半导体与相应介质界面间的 SPPs 共振。电压调控近场辐射传热的机制可由式(6)给出的交换函数揭示。图 3(c)和(d)给出了 $V_C = -10$ V 和 100 V 时的交换函数云图。 $V_C = -10$ V 时, 半导体层载流子浓度低于 $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, 介电函数实部大于 0, 其与真空的界面不支持 SPPs。 $\omega = 2.0 \times 10^{14} \sim 3.5 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ 的范围内聚集的大量电磁态归因于匹配层/真空界面的 SPPs, 尽管 SPPs 在匹配层/真空界面上被激发, 但此时 MIS 不支持表面波, $\beta > n_{ins} \omega/c$ 的 SPPs 不能被 MIS 结构吸收, 只有 $\beta < n_{ins} \omega/c$ 的表面模式才能通过绝缘体发挥作用, n_{ins} 为绝缘层介电常数, 波导模式光子隧穿真空间隙, 主导近场

传热。 $V_C = 100$ V 时，真空/半导体界面以及绝缘体/半导体界面都支持 SPPs。半导体层中介电函数梯度分布，不同载流子浓度的介质有效层界面上支持的 SPPs 发生耦合，产生更多的低频表面模式。与 $V_C = -10$ V 相比， $V_C = 100$ V 时在 $\omega = 0.6 \times 10^{14}$ rad/s 处的低频区域有一个高交换函数的明亮区域。

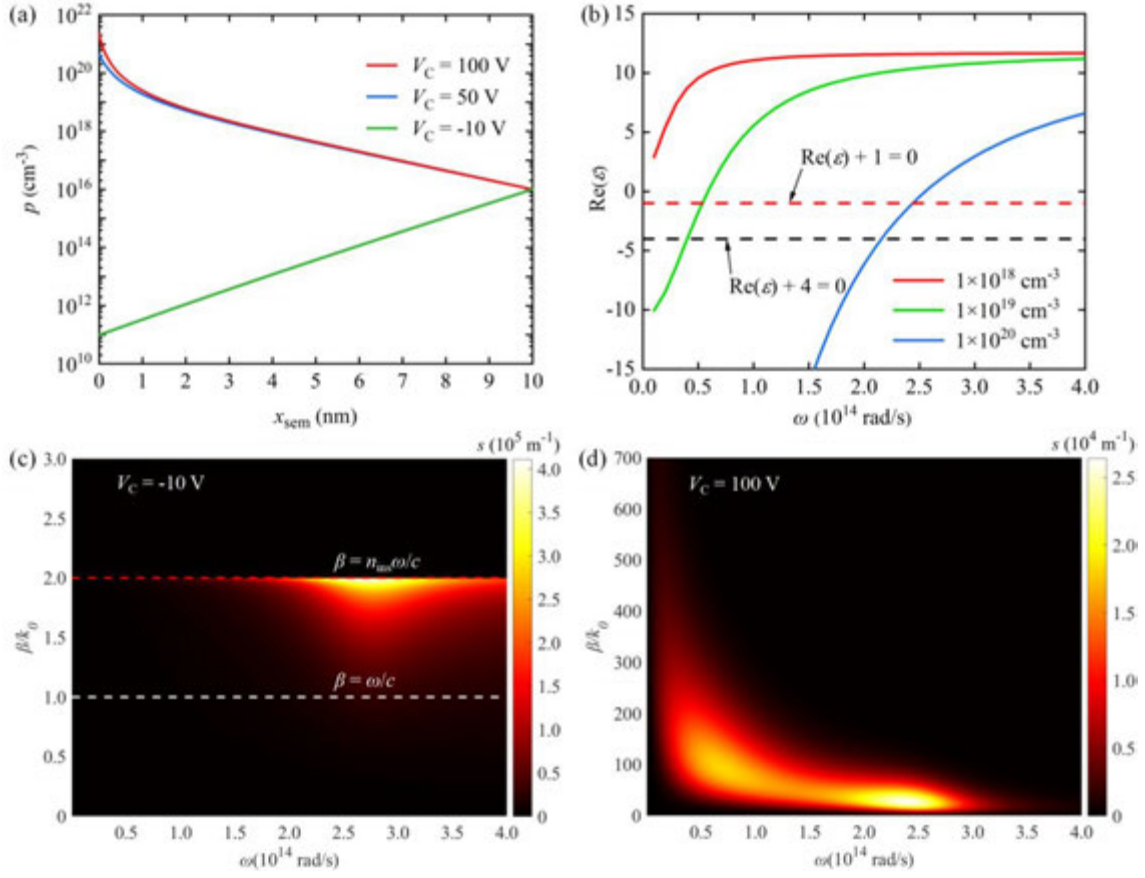


图 3 (a) 不同电压下半导体层的空穴浓度分布；(b) 不同空穴浓度下的 p 型掺杂硅的介电函数的实部；
(c) $V_C = -10$ V 的交换函数云图；(d) $V_C = 100$ V 的交换函数云图

图 4 给出了间距 d 对发射率调节量 $\Delta\epsilon_{\text{eff}} = \epsilon_{\text{eff,max}} - \epsilon_{\text{eff,min}}$ 的影响，其中 $\epsilon_{\text{eff,max}}$ 和 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 为一定电压范围内的最小和最大发射率。图 4(a) 对应了受控表面正对太阳的情况，受控表面接收到功率密度为太阳常数 ($S = 1367$ W/m²) 的太阳照射，此处忽略了地球的反照和地球红外辐射，因为它们比 S 小得多^[46,47]，此时热控皮肤处于外热流最大的情况，记为“日照区”并假设 OSR 的太阳吸收率 $\alpha_s = 0.1$ ，红外发射率 $\epsilon = 0.9$ 。图 4(b) 对应了地球位于受控表面和太阳的中间的情况，受控表面无太阳辐照，并忽略了地球红外辐射，此时热控皮肤处于最冷的情况，记为“阴影区”，OSR 的 $\alpha_s = 0$ ， $\epsilon = 0.9$ 。在受控表面温度 $T_H = 300$ K，电压 $V_C = [-10, 100]$ V 时，对于日照区和阴影区， d 增大均会减小 $\epsilon_{\text{eff,max}}$ 和 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ ，但两者减小的速度不同，导致了 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 先略微增大，后迅速减小。使得日照区和阴影区下 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 最大的最佳间距 d 约为 13 nm。当 $d \leq 30$ nm 时， d 增大并未导致 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 明显降低，意味着大于最佳间距仍然能保证有效的调节效果，不必追求很小的真空间距，毕竟技术上在小间距下兼顾大的换热面积和高平行度十分困难。

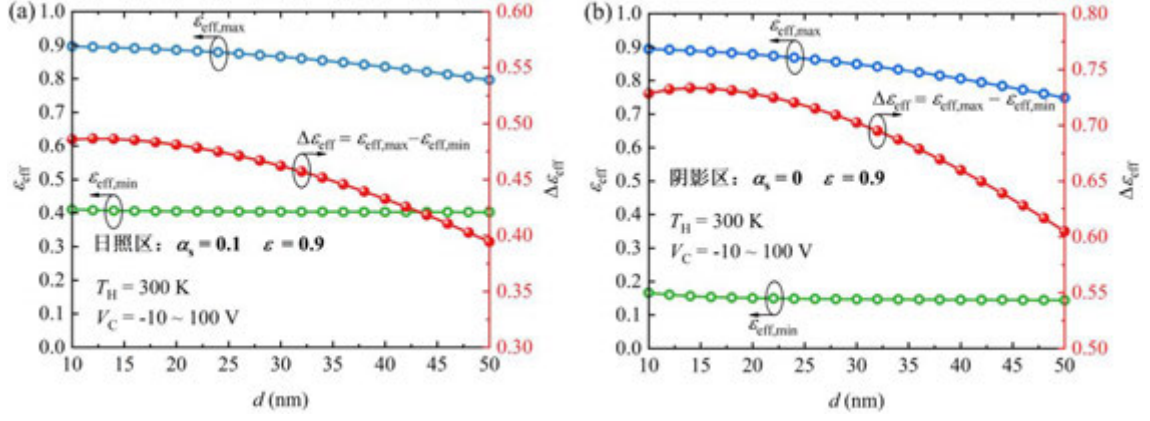


图4 $V_C = [-10, 100]$ V 内最大发射率 $\epsilon_{\text{eff,max}}$ 、最小发射率 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 和发射率调节量 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 随真空间距 d 的变化

(a) 日照区; (b) 阴影区

2.2 匹配层掺杂浓度对热控皮肤性能的影响

匹配层掺杂浓度 $N_M = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 10^{18} cm^{-3} , 10^{19} cm^{-3} , 10^{20} cm^{-3} 和 10^{21} cm^{-3} 时近场热流随电压 V_C 的变化如图 5(a) 所示, T_H 和 T_S 分别为 310 K 和 290 K, 其它参数设置与表 1 相同。 N_M 升高时, 零偏压下的近场热流未发生较大变化, 但高电压下的近场热流先增加后减少, $N_M = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 时近场热流最大, 如图 5(b) 中插图所示。改变 N_M 并不会影响 MIS 的特性, 尽管匹配层掺杂浓度提高了, 但零偏压下 MIS 侧半导体层的载流子浓度很低, MIS 对匹配层热辐射的吸收很弱, 近场热流很小且基本不随 N_M 发生改变。 $N_M = 10^{17} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 时高电压下的近场热流增加了, 由文献[27]可知, 载流子浓度增加 (受主完全电离, 载流子浓度等于掺杂浓度), 匹配层/真空界面支持的表面等离激元(SPPs)的共振频率 ω_{res} 蓝移(SPPs 激发条件 $\epsilon(\omega_{\text{res}}) + 1 = 0$), 共振波矢也增加了, 大波矢 SPPs 蓝移导致了光谱热流峰值增大且峰值位置蓝移, 如图 5(b) 和 (c) 所示, 近场热流增加。

当 N_M 进一步升高, SPPs 的 ω_{res} 继续蓝移, 交换函数与普朗克窗口 (图 5(b) 中黑色点划线) 的匹配性变差, 光谱热流峰值降低。 N_M 越大还会造成 N_M 对应的介电函数穿过 $\text{Re}[\epsilon(\omega)] = -1 \pm 0.5$ 的频率区间更宽, 如图 5(c) 所示。当 N_M 从 10^{19} cm^{-3} 增大到 10^{21} cm^{-3} 时, 位于青色阴影区域 ($\text{Re}[\epsilon(\omega)] = -1 \pm 0.5$) 的频率范围从 $\Delta\omega_1$ 增大到了 $\Delta\omega_3$, 意味着将会有更宽频率范围的非常接近 SPPs 共振的模式存在, 结果较大光谱热流对应的频率区间拓宽了。虽然 N_M 增大导致了光谱热流频率区间拓宽, 但 SPPs 的 ω_{res} 蓝移非常严重, 如图 5(c) 所示, 与普朗克窗口的匹配性变差, 最终导致 $10^{19} \sim 10^{21} \text{ m}^{-3}$ 的匹配层掺杂浓度范围内近场热流降低。

近场热流随 N_M 增大而先增加后减少, 且 N_M 变化并不影响零偏压和反型状态的近场热流, 意味着在相同电压范围内存在一个最佳的匹配层掺杂浓度 N_M 使得热控皮肤的性能最优。图 5(e) 和 (f) 分别给出了 $T_H = 300 \text{ K}$, $V_C = [-10, 100] \text{ V}$ 下日照区和阴影区 $\epsilon_{\text{eff,max}}$ 、 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 和 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 随 N_M 的变化。 $N_M = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 时阴影区的最大 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 为 0.787, 对应的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 云图 (OSR 的不同吸收发射比和发射率参数下的热控皮肤发射率调节量 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$) 如图 5(d) 所示, $N_M = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 下 $\Delta\epsilon_{\text{eff}} > 0.7$ 的区域很大, 热控皮肤的发射率调节性能的更优。从图 5(e) 和 (f) 中还可以发现, $N_M = 10^{17} \sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 时 (图中的蓝色阴影区), 日照区和阴影区下热控皮肤的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 均没有太大变化, 而当 $N_M \geq 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时, 近场热流变化范围很小, 日照区和阴影区下的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 均下降很多。因此 N_M 不宜过高, 在 $10^{17} \sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 的掺杂浓度下热控皮肤的性能是有保证的。

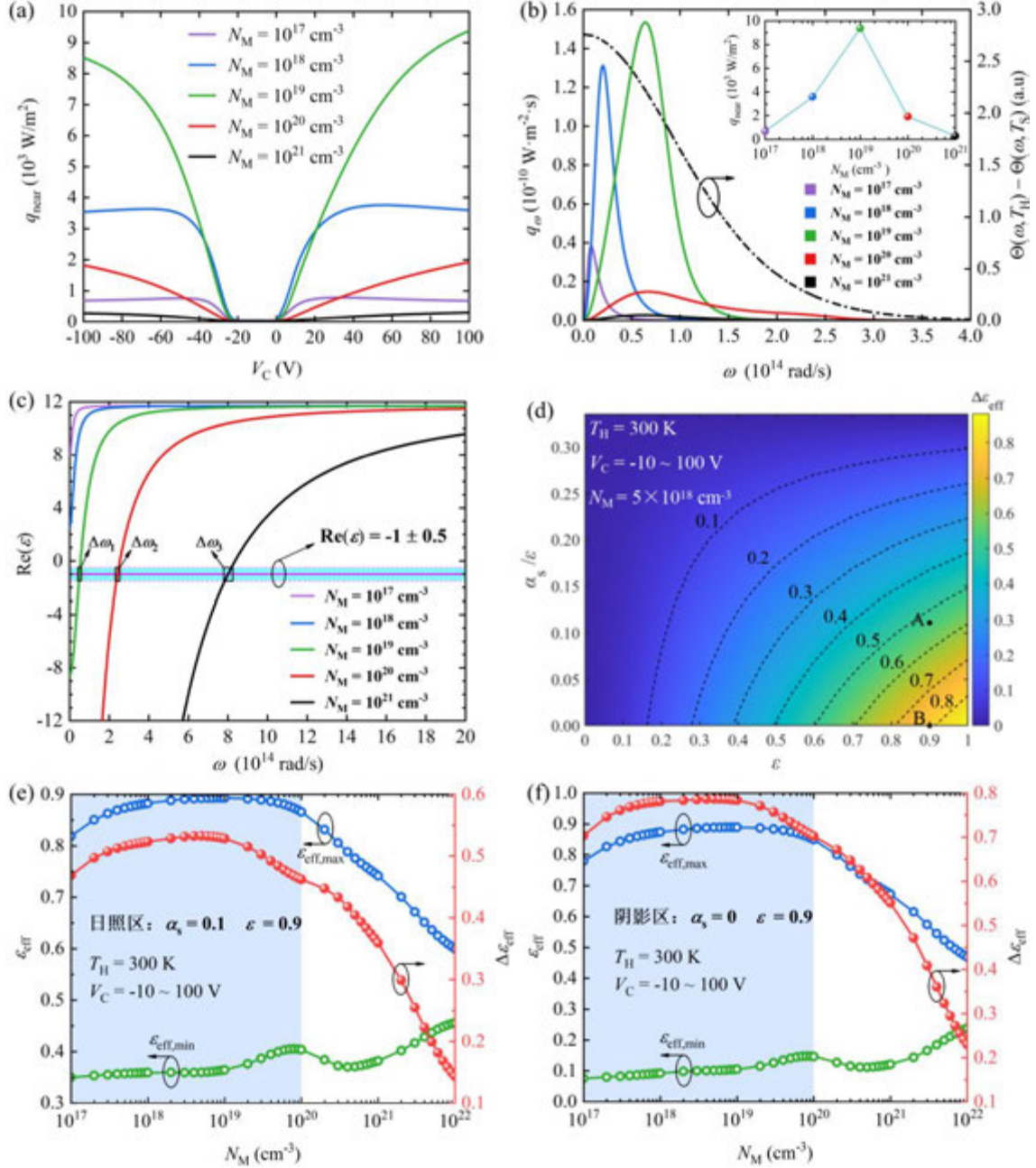


图 5 (a) 匹配层掺杂浓度 N_M 对 $[-100, 100]$ V 电压范围内近场热流的影响; (b) $V_C = 100$ V 时不同 N_M 的光谱热流, 插图表示 $V_C = 100$ V 时的总热流随 N_M 的变化; (c) 不同 N_M 对应的介电函数; (d) $N_M = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 对应的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 云图; (e)-(f) 日照区和阴影区 $\epsilon_{\text{eff,max}}$ 、 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 和 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 随 N_M 的变化

2.3 热控皮肤参数优化结果及分析

以上分析结果表明, 存在最优的真空间距 d 和匹配层掺杂浓度 N_M 使得热控皮肤的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 最大。利用 Nelder-Mead 优化算法 (局部最优) 对 d 和 N_M 进行优化, 目标函数为 $V_C = [0, 100]$ V 时日照区对应的 $1/\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ (优化 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 最大等价于优化其倒数最小), 其它参数与表 1 中保持一致以便于比较优化后的性能提升。优化过程容差为 1×10^{-6} , 最终的 d 和 N_M 优化值分别为 50 nm 和 10^{19} cm^{-3} 。优化后的 d 大于了 30 nm, 可获得更低的最小近场热流, 但也导致了近场热流调节量减小, 而合适的匹配层掺杂浓度可保证大的近场热流调节量, 且不改变最小近场热流, 二者的共同作用下, 使得热控皮肤的近场热流调节性能最优。图 6 给出了 $T_H = 300$ K, $V_C = [-10, 100]$ V (优化参数后发生反型的电压并未改变), 热控皮肤的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 和 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 随 OSR 参数的变化。对比文献[31]中结果发现, $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 等高线向左上角移动, 相同 OSR 参数下的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 提高了,

同时 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 小于 0.1 的区域扩大了，可获得更低的最小发射率。

表 2 给出了 $T_H = 300 \text{ K}$ 时 MIS 结构近场辐射辅助热控皮肤优化前后日照区和阴影区的 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 、 $\epsilon_{\text{eff,max}}$ 和 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ ，以及优化后发射率相对于优化前的变化量。日照区和阴影区（图 6 中的 A 和 B 两标记点）对应的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 分别为 0.52(0.36 ~ 0.88)和 0.77(0.09 ~ 0.86)，相较于表 1 中参数计算的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 提升了 13%和 10%。对比文献[31]给出的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 最大值 0.71，优化结果仍然提高了 8.5%。值得一提的是，优化后阴影区的 $\epsilon_{\text{eff,min}} = 0.09$ ，降低了 40%，低于 0.1 的 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 有效拓宽了发射率调节量 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ ，同时有利于航天器在阴影区保温。优化后 MIS 结构近场辐射热控皮肤的发射率调节性能得到了提升，且真空间距更大，实际中更容易实现。

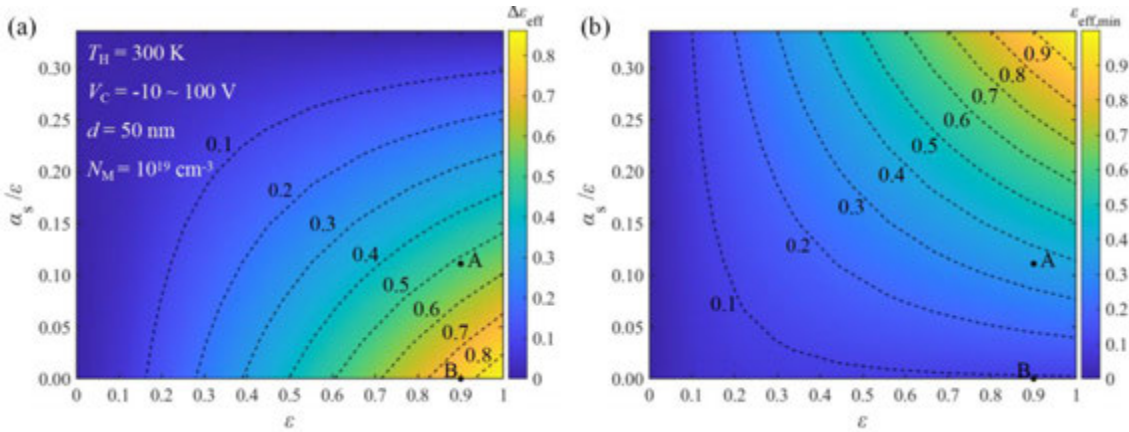


图 6 (a) OSR 的 ϵ 和 α_s/ϵ 对热控皮肤的 $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ 影响；(b) 图(a)相同参数下的 $\epsilon_{\text{eff,min}}$ 云图

表 2 MIS 结构热控皮肤优化前后日照区和阴影区的发射率调节性能对比

MIS 结构热控皮肤的参数	日照区			阴影区		
	$\epsilon_{\text{eff,max}}$	$\epsilon_{\text{eff,min}}$	$\Delta\epsilon_{\text{eff}}$	$\epsilon_{\text{eff,max}}$	$\epsilon_{\text{eff,min}}$	$\Delta\epsilon_{\text{eff}}$
未优化($d = 30 \text{ nm}$, $N_M = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)	0.86	0.40	0.46	0.85	0.15	0.70
优化后($d = 50 \text{ nm}$, $N_M = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)	0.88	0.36	0.52	0.86	0.09	0.77
优化前后发射率的相对变化量	2.3%	10%	13%	1.2%	40%	10%

3 结论

本文对影响 MIS 结构近场热辐射辅助热控皮肤性能的部分参数展开了研究，阐明了真空间距、匹配层掺杂浓度对热控皮肤性能影响的机制。中远红外波段下的研究表明，真空间距和匹配层掺杂浓度存在最优值使得热控皮肤的发射率调节性能最佳，并给出了控制变量下热控皮肤性能较优的参数范围。对真空间距和匹配层掺杂浓度进行优化后，获得了阴影区低于 0.1 的最小发射率，拓宽了热控皮肤的发射率调节范围。本文的研究结果为基于 MIS 结构的新型热控皮肤的设计和优化提供参考。

参考文献

- [1] Darrin A G, Osiander R, Champion J, et al. Variable emissivity through MEMS technology[J]. AIP Conference Proceedings, American Institute of Physics, 2000, 504(1): 803-808.
- [2] Osiander R, Firebaugh S L, Champion J L, et al. Microelectromechanical Devices for Satellite Thermal Control[J]. IEEE Sensors Journal, 2004, 4(4): 525-531.
- [3] Biter W, Oh S. Performance Results of the ESR from the Space Technology 5 Satellites[A]. AIP Conference Proceedings[C]. Albuquerque, New Mexico (USA): AIP, 2007, 880: 59-65.
- [4] Cao S Z, Chen X K, Wu G, et al. Study on Design and Fabrication of Micro Thermal Control Louvers[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2011.

- [5] Ueno A, Suzuki Y. Parylene-based active micro space radiator with thermal contact switch[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(9): 093511.
- [6] Han S-H, Kang S-J, Oh H-U, et al. Performance verification of mems variable emissivity radiator for spacecraft thermal control systems[A]. 2016 IEEE 29th International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS)[C]. Shanghai, China: IEEE, 2016: 1212-1215.
- [7] Athanasopoulos N, Siakavellas N J. Smart patterned surfaces with programmable thermal emissivity and their design through combinatorial strategies[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 12908.
- [8] Hendaoui A, Émond N, Dorval S, et al. VO₂-based smart coatings with improved emittance-switching properties for an energy-efficient near room-temperature thermal control of spacecrafts[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2013, 117: 494-498.
- [9] Sun K, Riedel C A, Urbani A, et al. VO₂ Thermochromic Metamaterial-Based Smart Optical Solar Reflector[J]. *ACS Photonics*, American Chemical Society, 2018, 5(6): 2280-2286.
- [10] Kim H, Cheung K, Auyeung R C Y, et al. VO₂-based switchable radiator for spacecraft thermal control[J]. *Scientific Reports*, Nature Publishing Group, 2019, 9(1): 11329.
- [11] Du Z Y, Li M, Xu S C, et al. VO₂-based intelligent thermal control coating for spacecraft by regulating infrared emittance[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2022, 895: 162679.
- [12] Wang X, Jin H, Wang B, et al. Thermochromic VO₂ based sandwich structure Ag/Al₂O₃/VO₂ with low solar absorption and tunable emittance for spacecraft[J]. *Journal of Applied Physics*, 2022, 131(13): 135301.
- [13] Zhang S, Cao X, Luan Y, et al. Preparation and Properties of Smart Thermal Control and Radiation Protection Materials for Multi-functional Structure of Small Spacecraft[J]. *Journal of Materials Science & Technology*, 2011, 27(10): 879-884.
- [14] Fan D S, Li Q, Xuan Y M, et al. Thermal radiation from silicon microcavity coated with thermochromic film[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2016, 144: 331-338.
- [15] Lu T, Fan D S, Li Q, et al. Nanometer thick thermochromic film based on K-doped manganite oxide prepared by magnetron sputtering[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2017, 704: 366-372.
- [16] Chen C, Yu F, Xu N, et al. Tunable thermal radiation surface based on the K-doped manganite[J]. *Ceramics International*, 2020, 46(10): 15646-15653.
- [17] Trimble C L. Electrochromic emittance modulation devices for spacecraft thermal control[C]. *AIP Conference Proceedings*. Seoul (Korea): AIP, 2000, 504: 797-802.
- [18] Anthony Paris, Anderson K. Electrochromic Radiators for Microspacecraft Thermal Control[J]. *Proceedings of the Small Satellite Conference*, 2005, Technical Session VIII: Advanced Technologies I: SSC05-VIII-01.
- [19] Demiryont H, Moorehead D. Electrochromic emissivity modulator for spacecraft thermal management[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2009, 93(12): 2075-2078.
- [20] Teissier A, Dudon J-P, Aubert P-H, et al. Feasibility of conducting semi-IPN with variable electro-emissivity: A promising way for spacecraft thermal control[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2012, 99: 116-122.
- [21] Chandrasekhar P, Zay B J, Lawrence D, et al. Variable-emittance infrared electrochromic skins combining unique conducting polymers, ionic liquid electrolytes, microporous polymer membranes, and semiconductor/polymer coatings, for spacecraft thermal control[J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2014, 131(19): n/a-n/a.
- [22] Tian Y L, Zhang X, Dou S L, et al. A comprehensive study of electrochromic device with variable infrared emissivity based on polyaniline conducting polymer[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2017, 170: 120-126.
- [23] Yang X W, Cong S, Li J, et al. An aramid nanofibers-based gel polymer electrolyte with high mechanical and heat endurance for all-solid-state NIR electrochromic devices[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2019, 200: 109952.
- [24] Song B, Fiorino A, Meyhofer E, et al. Near-field radiative thermal transport: From theory to experiment[J]. *AIP Advances*, 2015, 5(5): 053503.
- [25] Pascale M, Giteau M, Papadakis G T. Perspective on near-field radiative heat transfer[J]. *Applied Physics Letters*, 2023, 122(10): 100501.
- [26] Picardi M F, Nimje K N, Papadakis G T. Dynamic modulation of thermal emission -- a Tutorial[J]. *Journal of Applied Physics*, 2023, 133(11): 111101.
- [27] Papadakis G T, Zhao B, Buddhiraju S, et al. Gate-Tunable Near-Field Heat Transfer[J]. *ACS Photonics*, 2019, 6(3): 709-719.
- [28] Thomas N H, Sherrott M C, Broulliet J, et al. Electronic Modulation of Near-Field Radiative Transfer in Graphene Field Effect Heterostructures[J]. *Nano Letters*, 2019, 19(6): 3898-3904.
- [29] Shi K Z, Chen Z Y, Xing Y X, et al. Near-Field Radiative Heat Transfer Modulation with an

- Ultrahigh Dynamic Range through Mode Mismatching[J]. *Nano Letters*, 2022, 22(19): 7753-7760.
- [30] Xu D Y, Zhao J M, Liu L H. Photonic p-n junction: An ideal near-field heat flux modulator[J]. *Physical Review B*, 2022, 106(12): L121403.
- [31] Xu D Y, Zhao J M, Liu L H. Near-field radiation assisted smart skin for spacecraft thermal control[J]. *International Journal of Thermal Sciences*, 2021, 165: 106934.
- [32] 刘恩科, 朱秉升, 罗晋升编著. 半导体物理学[M]. 北京: 电子工业出版社, 2011: 56-236.
Liu E K, Zhu B S, Luo J S. *Physics of semiconductor*[M]. Beijing: Publishing House of Electronics Industry, 2011: 56-236.
- [33] Kingston R H, Neustadter S F. Calculation of the Space Charge, Electric Field, and Free Carrier Concentration at the Surface of a Semiconductor[J]. *Journal of Applied Physics, American Institute of Physics*, 1955, 26(6): 718-720.
- [34] Sze S M, Ng K K. *Physics of semiconductor devices*[M]. Third Edition. Hoboken, N.J: Wiley-Interscience, 2007: 197-240.
- [35] Zhang Z M. *Nano/Microscale Heat Transfer*[M]. Cham: Springer International Publishing, 2020: 407-722.
- [36] Basu S, Lee B J, Zhang Z M. Near-field radiation calculated with an improved dielectric function model for doped silicon. *Journal of Heat Transfer* 2009; accepted for publication.
- [37] Basu S, Lee B J, Zhang Z M. Infrared Radiative Properties of Heavily Doped Silicon at Room Temperature[J]. *Journal of Heat Transfer*, 2009, 132(2).
- [38] Xu D Y, Bilal A, Zhao J M, et al. Near-field radiative heat transfer between rough surfaces modeled using effective media with gradient distribution of dielectric function[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2019, 142: 118432.
- [39] Joulain K, Mulet J-P, Marquier F, et al. Surface electromagnetic waves thermally excited: Radiative heat transfer, coherence properties and Casimir forces revisited in the near field[J]. *Surface Science Reports*, 2005, 57(3-4): 59-112.
- [40] Basu S, Zhang Z M, Fu C J. Review of near-field thermal radiation and its application to energy conversion[J]. *International Journal of Energy Research*, 2009, 33(13): 1203–1232.
- [41] St-Gelais R, Zhu L, Fan S, et al. Near-field radiative heat transfer between parallel structures in the deep subwavelength regime[J]. *Nature Nanotechnology*, Nature Publishing Group, 2016, 11(6): 515-519.
- [42] Song B, Thompson D, Fiorino A, et al. Radiative heat conductances between dielectric and metallic parallel plates with nanoscale gaps[J]. *Nature Nanotechnology*, Nature Publishing Group, 2016, 11(6): 509-514.
- [43] Lim M, Song J, Lee S S, et al. Tailoring near-field thermal radiation between metallo-dielectric multilayers using coupled surface plasmon polaritons[J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 4302.
- [44] Salihoglu H, Nam W, Traverso L, et al. Near-Field Thermal Radiation between Two Plates with Sub-10 nm Vacuum Separation[J]. *Nano Letters*, 2020, 20(8): 6091-6096.
- [45] Rincón-García L, Thompson D, Mittapally R, et al. Enhancement and Saturation of Near-Field Radiative Heat Transfer in Nanogaps between Metallic Surfaces[J]. *Physical Review Letters*, 2022, 129(14): 145901.
- [46] Miao J Y, Zhong Q, Zhao Q W, et al. *Spacecraft Thermal Control Technologies*[M]. Singapore: Springer Singapore, 2021: 19-35.
- [47] Mermer E, Ünal R. Passive thermal control systems in spacecrafts[J]. *Journal of the Brazilian Society of Mechanical Sciences and Engineering*, 2023, 45(3): 160.

非辐射复合倏逝波对近场热光伏系统 饱和电流的影响

王天兵¹, 李松¹, 赵军明¹

(1.哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150001)

Tel.: 0451-86412138, Email: jmzhao@hit.edu.cn

摘要: 近场热光伏系统电池内部同时存在辐射复合与非辐射复合, 对于近场热光伏系统性能的分析有着重要影响。本文探究在仅考虑辐射复合与同时考虑非辐射复合两种情况下近场效应倏逝波对饱和电流的影响, 通过数值模拟量化不同间距及电池厚度下的 $J-V$ 特性与输出功率。结果表明, 仅考虑辐射复合时, 近场效应会极大增加饱和电流; 考虑非辐射复合, 近场效应对饱和电流的影响被削弱, 饱和电流得以保持在较小变化范围内, 此时采用解析近似计算是可行的。过高的辐射器温度会使饱和电流变化较大, 解析近似模型将失效。

关键词: 近场效应; 性能分析模型; 非辐射复合

0 前言

在我们的日常生活中, 能将热能转化为电能的热机发挥着重要作用, 这个过程通常是基于蒸汽这种传统工质进行能量循环的。热电、热光伏等固态热电转换方法与之相比, 没有运动部件, 实现了模块化、无噪音的能量转换。其中, 热电能量转换近年来受到广泛关注, 取得重大进展^[1], 但在高温下, 热电材料并不稳定, 同时热电发电技术转换效率一般只有 3~7 %^[2]。而热光伏作为另一种固态热电转换方式, 能将辐射器发射的热辐射直接转化为电能, 具有较高的效率 (~40%)^[3]和良好的热稳定性, 在余热回收和深空探测等领域具有重要前景。

在远大于特征波长的传热尺度下, 热辐射存在黑体辐射极限, 热光伏系统很难达到相当高的输出功率。为了有效提高 TPV 器件转换性能, Whale 和 Cravalho^[4]提出了近场热光伏器件的概念, 利用近场下的倏逝波来增强辐射功率, 大大增强了热辐射的输入。目前已有多项实验表明近场热光伏系统的输出功率可以超过远场热光伏数倍甚至数十倍, 如 Fiorino 等^[5] (40 倍远场功率) 与 Mittapally 等^[6] (4-8 倍远场功率) 开展的近场热光伏实验, 这表明近场热光伏系统具有远超远场热光伏的输出功率。

近场热光伏实验存在控制辐射器与电池的真空间距、亚波长尺度下保持较大温差、低带隙电池的制造等困难^[7]，目前近场热光伏系统的大部分研究是通过理论计算开展的，需要使用性能分析模型进行描述。目前主要的性能分析模型包括解析近似模型、详细平衡分析模型、少数载流子分离模型以及泊松漂移-扩散模型。其中解析近似模型与详细平衡分析模型因分析过程简便得到广泛使用^[5,6,8,9]。关于这两种性能分析模型比较，Feng 等^[10]在仅考虑辐射复合的情况下将两种模型计算得到的 J - V 特性曲线进行对比，指出近场效应会极大影响辐射复合，解析近似模型无法体现这种影响。而实际热光伏电池还存在非辐射复合过程，同样对系统性能产生影响，在考虑非辐射复合后，近场效应可能将不再产生很大影响。Mittapally 等^[6]采用详细平衡分析模型对实验数据进行参数拟合，考虑了利用表面复合速度表达的 SRH 复合及俄歇复合。据此，除了辐射复合，本文还将考虑 SRH 复合，俄歇复合以及表面复合这三类非辐射复合过程。

本文将在不同情况下，对比两种性能分析模型的计算结果，得到其应用范围。在仅考虑辐射复合与考虑非辐射复合两种情况下，通过数值模拟方法，利用基于涨落电动力学的近场辐射理论来计算辐射器和热光伏电池之间的近场辐射换热，并利用解析近似模型与详细平衡分析模型来分析热光伏电池性能。对比二者得到的 J - V 特性曲线与输出功率，指出近场效应在不同情况下对饱和电流的影响，从而说明某些情况下采用解析近似分析模型的合理性。

1 计算方法与条件

1.1 解析近似模型

解析近似模型是第一个基于涨落电动力学的性能分析模型，在分析 J - V 特性时，该模型利用到能量高于带隙能量的光子产生的总光电流 J_{ph} ，和以肖克利二极管方程的形式给出的电池内部产生的暗电流 J_{dark} ^[11]：

$$J(V) = J_{sc} - J_{dark} = J_{sc} - J_0 \left\{ \exp\left(\frac{eV}{k_B T_c}\right) - 1 \right\} \quad (1)$$

其中 e 为电子电量， V 为电势差， T_c 为电池温度， J_{sc} 为短路电流，通常视为与光电流 J_{ph} 相等， J_0 为饱和电流。计算光电流时量子效率设为 100%，故短路电流为^[12]

$$J_{sc} = J_{ph} = e \int_{E_g/h}^{\infty} \frac{q_{\omega}}{\hbar \omega} d\omega \quad (2)$$

其中 q_{ω} 为光谱热流，下标 ω 为相应的频率。在低注入近似条件下，基于 pn 结的光伏电池的饱和电流可以利用少数载流子的扩散来表示^[13]：

$$J_0 = e \left(\frac{n_i^2}{N_d} \sqrt{\frac{D_h}{\tau_h}} + \frac{n_i^2}{N_a} \sqrt{\frac{D_e}{\tau_e}} \right) \quad (3)$$

其中 D_e 与 D_h 分别为电子和空穴的扩散系数, N_d 和 N_a 为施主和受主浓度。 τ_e 和 τ_h 分别为电子和空穴的复合寿命, 各复合过程载流子有着不同的复合寿命。载流子的总寿命由各复合过程载流子寿命得出^[14]:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{Auger}} + \frac{1}{\tau_{SRH}} + \frac{1}{\tau_{RR}} \quad (4)$$

上式反映的是只考虑热光伏电池内部的复合过程时得到的饱和电流, 在 **pn** 结掺杂区域的尺度远大于扩散长度时, 公式是成立的。而当电池厚度与载流子扩散长度相当, 或表面复合速率相当大时, 表面复合速率需要通过饱和电流体现出来。Tong 等^[15]在 100% 内量子效率假设下模拟了使用薄膜电池的近场热光伏系统, 在计算中将考虑了表面复合的饱和电流定义为

$$J_0 = \frac{eD_e n_i^2}{L_e N_a} \times \frac{S_e \cosh(t_p / L_e) + (D_e / L_e) \sinh(t_p / L_e)}{(D_e / L_e) \cosh(t_p / L_e) + S_e \sinh(t_p / L_e)} + \frac{eD_h n_i^2}{L_h N_d} \times \frac{S_h \cosh(t_n / L_h) + (D_h / L_h) \sinh(t_n / L_h)}{(D_h / L_h) \cosh(t_n / L_h) + S_h \sinh(t_n / L_h)} \quad (5)$$

其中 S_e 与 S_h 为电子或空穴的表面复合速度, t_p 和 t_n 分别为除去耗尽区外的 **p** 型与 **n** 型掺杂区域的厚度。对于薄膜型光伏电池, 由于电子空穴对的传播距离减小, 非辐射体内复合损失减少, 因而能降低饱和电流, 提高内部量子效率, 可以提高光伏电池的电学性能。

为简化性能分析过程, 解析近似模型作了两个关键性假设: 载流子复合寿命是均匀一致, 且内量子效率与间隙距离无关。因此, 解析近似模型极大地简化了 J - V 特性的模拟计算, 便于对热光伏系统的性能进行评估。

1.2 详细平衡分析模型

详细平衡分析模型来自 Shockley 和 Queisser 在 1961 年探究 **pn** 结太阳能电池效率极限时提出的^[11]。详细平衡分析引入了恒定的化学势 $\mu = qV$ 玻色-爱因斯坦分布进行修正^[16]

$$\psi(\omega, T) = \begin{cases} \frac{1}{\exp(\frac{\hbar\omega}{k_B T}) - 1}, & (\hbar\omega < E_g) \\ \frac{1}{\exp(\frac{\hbar\omega - \mu}{k_B T}) - 1}, & (\hbar\omega \geq E_g) \end{cases} \quad (6)$$

化学势修正会影响普朗克简谐振子能 $\Theta(\omega, T, V) = \hbar\omega\Psi(\omega, T, V)$ ，由于电池内部载流子空间分布无法得到，且假定了无限大的载流子迁移率，暗电流无法像解析近似模型那样用少数载流子的扩散给出，需要重新定义。根据 DeSutter 等^[17]研究，电池内部详细平衡分析的 J - V 特性表达为^[11]

$$J = q[F_{12}(0) - F_{21}(V) - R(V)] \quad (7)$$

其中 F_{ij} 表示从 i 部分到 j 部分能量高于带隙的光子通量，下标 1 和 2 分别代表辐射器与热光伏电池。 $V=0$ 时，化学势为 0，相当于没有进行修正，所以得到的短路电流与解析近似模型得到的一致。使用详细平衡分析，热光伏电池的量子效率设为 100%，得到 F_{ij} 的表达式^[18]

$$F_{ij}(V) = \frac{1}{\pi^2} \int_{\omega_g}^{\infty} \frac{\Theta(\omega, T_i, V_i)}{\hbar\omega} \left[\int_0^{\infty} \xi(\omega, \beta) \beta d\beta \right] d\omega \quad (8)$$

其中 β 为波矢平行于平板表面的分量， ξ 为某一频率 ω 与 β 下平板间的能量传输系数。辐射复合的计算包含在光子通量的计算中，这是由恒定的化学势修正来得到的，可以体现出近场效应对辐射复合的影响，其余的复合过程单独计算。电池载流子非辐射复合率 $R(V) = R_{\text{Auger}} + R_{\text{SRH}} + R_{\text{surf}}$ ，由俄歇复合、SRH 复合与表面复合三部分构成^[7]：

$$R_{\text{Auger}} = r_{\text{Auger}} \times t = (C_e n + C_h p)(np - n_i^2)t \quad (9)$$

$$R_{\text{SRH}} = r_{\text{SRH}} \times t = \frac{(np - n_i^2)t}{\tau_{\text{SRH},h}(n + n_{t,b}) + \tau_{\text{SRH},e}(p + p_{t,b})} \quad (10)$$

$$R_{\text{surf}} = \frac{np - n_i^2}{(n + n_{t,s})/S_h + (p + p_{t,s})/S_e} \quad (11)$$

其中 C_e 与 C_h 分别为电子和空穴的俄歇复合系数， t 为电池厚度， $n_{t,b}$ 与 $p_{t,b}$ 为电子与空穴陷阱浓度，通常设为与 n_i 相等^[16]。 S_e 与 S_h 为电子与空穴表面复合速率， $n_{t,b}$ 与 $p_{t,b}$ 为电子与空穴表面陷阱浓度，通常亦设为与 n_i 相等^[16]。电池偏压 V 会影响载流子的浓度，由恒定化学势假设，得到载流子浓度与偏压的关系

$$pn = p_0 n_0 \exp\left(\frac{qV}{k_B T_c}\right) \quad (12)$$

其中 n_0 与 p_0 分别为平衡时电池内电子与空穴浓度。非平衡状态下，载流子浓度与平衡载流子浓度间的差值为非平衡载流子浓度，记为 Δn 与 Δp 。对于近场热光伏系统中的光伏电池载流子浓度是由光子注入引起的，而非载流子的注入，故产生的非平衡子浓度满足 $\Delta n = \Delta p$ 。结合公式(7)-(12)，可得到对应参数下近场热光伏系统的 J - V 特性。

1.3 近场热光伏系统结构及参数

本文进行热流计算与性能参数计算采用的热光伏系统结构如图 1 所示，辐射器材料为 W，视为半无限大平板，并与电池保持真空间距 d ；热光伏电池材料为 GaSb，其厚度为 t ，电池一侧基底材料具有恒定为 1 的相对介电常数（真空），将电池平均分为两层，上层为 p 型掺杂区，下层为 n 型区，所用到的 GaSb 光学参数来自^[19]，电学参数来自^[20]，用到的电学参数列在表 1 中。分别利用解析近似模型与详细平衡分析模型计算系统的 $J-V$ 特性与输出功率，分仅考虑辐射复合与考虑非辐射复合两种情况。仅考虑辐射复合情况下，对比不同间距下 $J-V$ 特性曲线，说明近场效应对辐射复合的影响。考虑非辐射复合时，对比不同电池厚度下 $J-V$ 特性曲线，说明何种厚度下两种模型的计算结果相近。

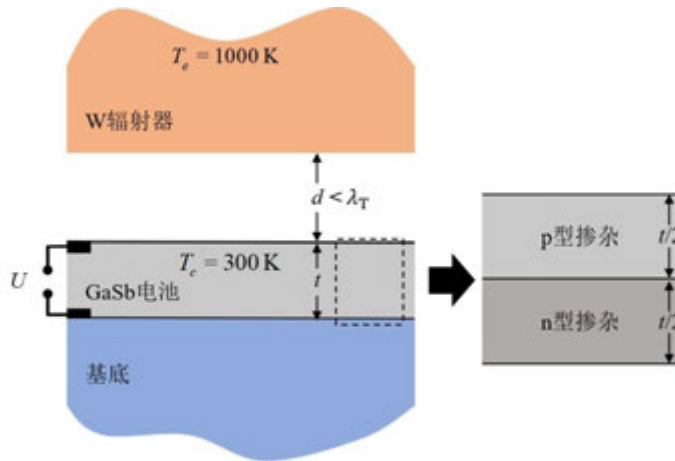


图 1 近场热光伏系统结构简图

表 1 GaSb 电学参数

参数	数据
掺杂浓度	$n_i = 4.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$
本征载流子浓度	$N_a = N_d = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$
俄歇复合系数	$C_p = C_n = 2.26 \times 10^{-27} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$
弛豫时间(Auger)	$\tau_{\text{Auger}} = 20 \text{ } \mu\text{s}$
弛豫时间(SRH)	$\tau_{\text{SRH}} = 10 \text{ ns}$
弛豫时间(rad)	$\tau_{\text{rad}} = 40 \text{ ns}$
禁带宽度	$E_g = 0.354 \text{ eV}$
扩散系数	$D_e = 129 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \quad D_h = 39 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$
表面复合速度	$S_e = S_h = 1 \text{ m/s}$

2 结果与讨论

2.1 仅考虑辐射复合近场效应对饱和电流的影响

Feng 等^[10]将两种模型下得到的 W 和 InAs 近场热光伏系统的 J - V 特性进行比较, 其中解析近似模型用到的暗电流大小由远场下详细平衡分析的计算结果拟合得出。采用同样的方法, 在仅考虑辐射复合的情况下, 采用解析近似模型与详细平衡分析模型, 计算得到 W 和 GaSb 近场热光伏系统的 J - V 特性, 如图 2 所示。在间距 $10\text{ }\mu\text{m}$ 时, 二种性能分析模型的计算结果保持一致。随着距离减小, 短路电流增大, 这是由于近场效应的影响, 增大了光子通量, 使得单位时间内辐射换热光子数量增加, 促进了电池内部与表面电子空穴对激发数目的增加, 因此光电流增加。解析近似模型采用恒定的饱和电流计算 J - V 特性, 得到的开路电压随间距减小而逐渐增大, 在 $10\text{ }\mu\text{m}$ 、 100 nm 与 10 nm 间距下分别为 0.533 V 、 0.577 V 、 0.620 V , 而详细平衡分析计算得到的开路电压保持在 0.533 V 基本不变, 如果借助详细平衡分析中饱和电流这一说法理解, 便是说明详细平衡分析模型中是“饱和电流”是随着间距的减小而逐渐增加的。由于近场效应对饱和电流的修正, 即便光电流增加, 也能使开路电压保持在某一位置附近几乎不发生变化; 解析近似模型中使用恒定的复合寿命无法体现近场效应的影响, 表现为不同间距下的 J - V 曲线可以通过平移实现重合。

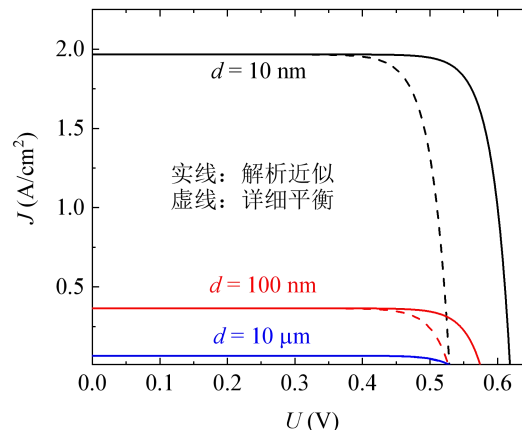


图 2 不同间距下的 J - V 特性对比

在详细平衡分析模型中, 近场效应的影响体现在传输系数的极大增加。对于公式(7), 由于引入化学势对电池侧普朗克谐振子的修正, 这种修正改变了高温与低温谐振子能差值大小。近场下, 平面间换热的传输系数很大, 积分后的传输系数将这种差别放大。由于详细平衡分析将电池的外发光描述为辐射复合过程, 该模型体现了近场效应对辐射复合寿命产生的影响。

注意到 Feng 等使用的解析近似模型中采用的饱和电流为拟合参数，是同一条件下详细平衡分析远场下计算得到的结果，如此选取的饱和电流在本系统中对应的辐射复合寿命接近 46 s，远大于通常计算采用的辐射复合寿命 40 ns^[13,15]，因此，这个比较仅体现近场效应对辐射复合的影响，但并不能作为实际性能分析的结果。

2.2 考虑非辐射复合时近场效应对饱和电流的影响

除了辐射复合，热光伏电池内发生的复合过程还有非辐射复合，包括 SRH 复合、俄歇复合以及表面复合。对于 GaSb 电池，非辐射复合寿命远小于辐射复合，说明非辐射复合的影响要大于辐射复合。结合第一部分的计算方法，在考虑非辐射复合的情况下，改变 GaSb 电池厚度，得到 W 和 GaSb 近场热光伏系统在 10 nm 间距下的 J - V 特性与输出功率密度，如图 3 和表 2 所示。对比发现两者在低电池厚度下两种性能分析模型的 J - V 特性十分接近，在电池厚度 10 μm 时开路电压的差值小于 0.002 V，输出功率解析近似模型仅与详细平衡分析相差 0.67%，此时两者的计算结果几乎一致。只有在电池厚度相当大时，两者才存在明显差距。由 1.1 节可知解析近似模型不能准确描述性能参数的一个重要原因便是没有考虑近场效应对辐射复合的影响，但在考虑了非辐射复合后这种影响并没有体现在小电池厚度的 J - V 特性曲线中。由于实际采用的热光伏电池厚度通常在几微米以内^[5,6,8,9]，因此采用解析近似模型虽然没有考虑近场效应的对辐射复合的影响，但计算误差通常很小。

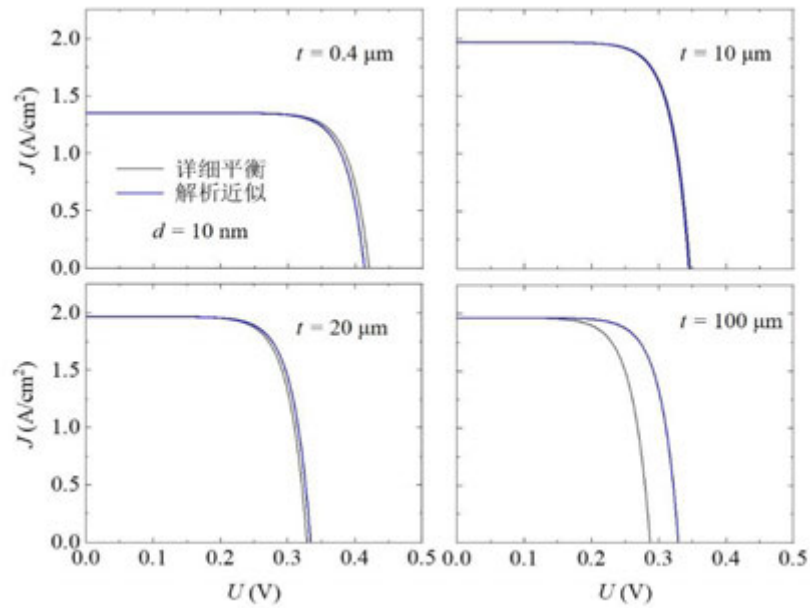


图 3 间距为 10 nm、不同电池厚度下的 J - V 特性曲线

表 2 不同电池厚度下的输出功率

$t(\mu\text{m})$	输出功率(W/m^2)		相差量(%)
	解析近似	详细平衡	
0.4	4332.70	4406.70	- 1.68
10	5055.10	5089.30	- 0.67
20	4866.20	4767.70	2.06
100	4775.70	4027.40	18.58

当 $\hbar\omega - \mu \gg k_{\text{B}}T$ ，即满足韦恩近似条件时，可以将公式(6)分母的“-1”项省略掉，从而转化为与解析近似模型相近的、利用光电流和暗电流表示的 J - V 特性^[10]。韦恩近似后得到的暗电流与解析近似模型意义相近，反映电池内部及表面发生的复合过程的进行程度。表 3 为 0.4 μm 电池厚度时，在仅考虑辐射复合与考虑非辐射复合两种情况下，利用详细平衡分析模型与解析近似模型得到的饱和电流。详细平衡分析模型的计算结果表明，仅考虑辐射复合情况下，10 nm 间距（近场）的饱和电流能大于 2 μm 间距（远场）下的十几倍，说明近场效应或倏逝波极大促进了辐射复合过程；考虑非辐射复合情况下，近场与远场下饱和电流几乎相同，说明近场效应对饱和电流的影响被非辐射复合削减，对于 GaSb 这种非辐射复合占主导的热光伏电池来说，这种影响几乎可以忽略。

表 3 仅考虑辐射复合与考虑非辐射复合两种情况下，两种计算模型得到的饱和电流

饱和电流 (A/m^2)	详细平衡分析			解析近似
	$d = 10 \text{ nm}$	$d = 100 \text{ nm}$	$d = 2 \mu\text{m}$	
仅考虑辐射复合	2.7029×10^{-5}	5.0016×10^{-6}	8.3745×10^{-7}	8.3745×10^{-7}
考虑非辐射复合	1.2×10^{-3}	1.2×10^{-3}	1.2×10^{-3}	1.5×10^{-3}

2.3 解析近似模型适用条件

2.2 节关于近场效应对饱和电流的影响的探究是在 1000 K 辐射器温度下进行的，在更高温度下两种模型的表现还需进一步探究。为探究可能存在的解析近似模型失效的情况，保持间距 $d = 10 \text{ nm}$ ，电池厚度 0.4 μm ，改变辐射器温度，得到两种模型在对应温度下计算得到的输出功率，如表 4 所示。在 800 K-2000 K 温度范围内，温度的提升对于系统输出功率的变化影响巨大，高辐射器温度下的输出功率相比于低温辐射器系统多几个数量级。虽然温度的影响巨大，但两种模型在相同辐射器温度下的输出功率并不会相差太多，1200 K 附近两者最为接近，温度升高或降低都将增大这种差异，但在计算

温度范围内，输出功率的差异是可以接受的。

表 4 不同温度下两种模型计算得到的输出功率

$T_c(K)$	输出功率(W/m^2)		相差量(%)
	解析近似	详细平衡	
800	334.14	340.90	-1.99
1000	4332.7	4406.7	-1.68
1200	25091	25493	-1.58
1400	91630	93151	-1.63
1600	250210	255060	-1.90
1800	561550	575710	-2.46
2000	1096400	1134900	-3.39

相较于详细平衡分析，解析近似模型采用恒定饱和电流，而对于改变间距，饱和电流明显变化的情况来说，解析近似模型并不适用。为探究解析近似模型失效条件，本文在不同辐射器温度与间距下计算 GaSb 电池中产生的饱和电流，得到的结果如表 5 所示。在 1200 K 辐射器温度以下，详细平衡分析模型得到的饱和电流在远场与近场下几乎相同，解析近似模型仍适用。但随着辐射器温度的升高，远场下的饱和电流并没有太大的变化，而近场条件下的饱和电流变化明显，同样在 10 nm 间距下，在 2000 K 辐射器温度的饱和电流约为 1000 K 时的 1/10，说明近场辐射对饱和电流的影响增加了。由于解析近似模型采用恒定饱和电流，并不能体现出这一变化。结合饱和电流计算结果来看，解析近似模型在 1200 K 辐射器温度以下对的性能描述是合理的，在此温度范围之外，解析近似模型将不能很好的描述系统的性能。

表 5 不同温度与间距下得到的饱和电流

单位: A/m^2

$T_c(K)$	详细平衡分析			解析近似
	$d = 10 \text{ nm}$	$d = 100 \text{ nm}$	$d = 2 \text{ }\mu\text{m}$	
1000	1.2×10^{-3}	1.2×10^{-3}	1.2×10^{-3}	1.5×10^{-3}
1200	1.0×10^{-3}	1.2×10^{-3}	1.2×10^{-3}	
1400	6.4×10^{-4}	1.1×10^{-3}	1.2×10^{-3}	
1600	3.4×10^{-4}	8.6×10^{-4}	1.1×10^{-3}	
1800	1.9×10^{-4}	8.6×10^{-4}	1.0×10^{-3}	
2000	1.2×10^{-4}	8.1×10^{-4}	8.6×10^{-4}	

3 结论

本文探究了近场效应对性能分析结果的影响,利用两种性能分析模型计算得到系统的 J - V 特性及输出功率并进行对比。在仅考虑辐射复合的情况下,近场效应将极大增加热光伏电池饱和电流。由于非辐射复合的存在,近场效应对饱和电流的影响被削弱。对于以 GaSb 为热光伏电池的热光伏系统,10 μm 电池厚度、1200 K 辐射器温度以下,利用两种模型计算得到的结果相近,采用解析近似模型进行模拟计算不会产生过高估计,而过高的辐射器温度条件下饱和电流变化较大,解析近似模型将失效。

4 参考文献

- [1] Alam H, Ramakrishna S. A review on the enhancement of figure of merit from bulk to nano-thermoelectric materials[J]. Nano Energy, 2013, 2(2): 190–212.
- [2] Datas A, Martí A. Thermophotovoltaic energy in space applications: Review and future potential[J]. Solar Energy Materials and Solar Cells, 2017, 161: 285–296.
- [3] LaPotin A, Schulte K L, Steiner M A, Buznitsky K, Kelsall C C, Friedman D J, Tervo E J, France R M, Young M R, Rohskopf A, Verma S, Wang E N, Henry A. Thermophotovoltaic efficiency of 40%[J]. Nature, 2022, 604(7905): 287–291.
- [4] Whale M D, Cravalho E G. Modeling and performance of microscale thermophotovoltaic energy conversion devices[J]. IEEE Transactions on Energy Conversion, 2002, 17(1): 130–142.
- [5] Fiorino A, Zhu L, Thompson D, Mittapally R, Reddy P, Meyhofer E. Nanogap near-field thermophotovoltaics[J]. Nature Nanotechnology, 2018, 13(9): 806–811.
- [6] Mittapally R, Lee B, Zhu L, Reihani A, Lim J W, Fan D, Forrest S R, Reddy P, Meyhofer E. Near-field thermophotovoltaics for efficient heat to electricity conversion at high power density[J]. Nature Communications, 2021, 12(1): 4364.
- [7] Song J, Han J, Choi M, Lee B J. Modeling and experiments of near-field thermophotovoltaic conversion: A review[J]. Solar Energy Materials and Solar Cells, 2022, 238: 111556.
- [8] Inoue T, Ikeda K, Song B, Suzuki T, Ishino K, Asano T, Noda S. Integrated Near-Field Thermophotovoltaic Device Overcoming Blackbody Limit[J]. ACS Photonics, 2021, 8(8): 2466–2472.
- [9] Inoue T, Koyama T, Kang D D, Ikeda K, Asano T, Noda S. One-Chip Near-Field Thermophotovoltaic Device Integrating a Thin-Film Thermal Emitter and Photovoltaic Cell[J]. Nano Letters, 2019, 19(6): 3948–3952.
- [10] Feng D, Tervo E J, Yee S K, Zhang Z M. Effect of Evanescent Waves on the Dark Current of Thermophotovoltaic Cells[J]. Nanoscale and Microscale Thermophysical

- Engineering, 2020, 24(1): 1–19.
- [11] Shockley W, Queisser H J. Detailed Balance Limit of Efficiency of p-n Junction Solar Cells[J]. Journal of Applied Physics, 1961, 32(3): 510–519.
 - [12] Francoeur M, Vaillon R, Mengüç M P. Thermal Impacts on the Performance of Nanoscale-Gap Thermophotovoltaic Power Generators[J]. IEEE Transactions on Energy Conversion, 2011, 26(2): 686–698.
 - [13] Laroche M, Carminati R, Greffet J-J. Near-field thermophotovoltaic energy conversion[J]. Journal of Applied Physics, 2006, 100(6): 063704.
 - [14] Euthymiou P C, Skountzos P A, Ravanos C E, Hadjikitidis B E. Dependence of surface recombination velocity of p-type InSb on temperature and alpha particle bombardment[J]. Solid State Communications, 1981, 37(9): 733–736.
 - [15] Tong J K, Hsu W-C, Huang Y, Boriskina S V, Chen G. Thin-film ‘Thermal Well’ Emitters and Absorbers for High-Efficiency Thermophotovoltaics[J]. Scientific Reports, 2015, 5(1): 10661.
 - [16] Feng D, Tervo E J, Vasileska D, Yee S K, Rohatgi A, Zhang Z M. Spatial profiles of photon chemical potential in near-field thermophotovoltaic cells[J]. Journal of Applied Physics, 2021, 129(21): 213101.
 - [17] DeSutter J, Vaillon R, Francoeur M. External Luminescence and Photon Recycling in Near-Field Thermophotovoltaics[J]. Physical Review Applied, 2017, 8(1): 014030.
 - [18] Chen K, Santhanam P, Sandhu S, Zhu L, Fan S. Heat-flux control and solid-state cooling by regulating chemical potential of photons in near-field electromagnetic heat transfer[J]. Physical Review B, 2015, 91(13): 134301.
 - [19] Palik D E. Handbook of Optical Constants of Solids[M]. Academic Press:San Diego,1985[2022-12-19].
 - [20] Kret J, Tournet J, Parola S, Martinez F, Chemisana D, Morin R, Mata M de la, Fernández-Delgado N, Khan A A, Molina S I, Rouillard Y, Tournié E, Cuminal Y. Investigation of AlInAsSb/GaSb tandem cells – A first step towards GaSb-based multi-junction solar cells[J]. Solar Energy Materials and Solar Cells, 2021, 219: 110795.

基于机器学习的多层双曲材料薄膜近场热辐射开关优化设计

廖涂威, 鞠生宏, 赵长颖

(上海交通大学, 中英国际低碳学院, 上海, 201306)

(Tel: 021-80160860, Email: shenghong.ju@sjtu.edu.cn)

摘要: 近场辐射热调控器在热二极管、热晶体管与热存储器中等领域有着广泛的应用前景。然而, 近场辐射结构的设计是一个具有高自由度和高计算成本的复杂问题, 机器学习为新材料的设计提供了更加便捷和高效的技术支持。本文提出了一种基于双曲材料 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的三层膜结构热调控器, 通过多层前馈神经网络和贝叶斯优化结合的循环优化方式, 对多层膜的旋转角度, 进行优化设计, 达到最大的旋转热调控比例。用所提出优化流程设计出基于 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的最优多层膜结构仅通过旋转的方式, 其近场辐射调控比例可以达到大于 4.9, 相较单层膜结构热调控器提高了 53%。

关键词: 近场热辐射; 双曲材料; 热调控器; 机器学习; 贝叶斯优化¹

0 前言

近年来, 类比于电流的热流调控引起了广泛关注, 因为在热信息处理、纳米电子学的热管理以及热转电等方面起着越来越重要的作用。通过控制热流, 已经实验性和理论性地提出了大量的热器件, 如热二极管¹⁻³、晶体管^{4,5}、开关⁶、逻辑门/电路和存储器^{7,8}, 这些器件都是在热流控制方面取得的成果。早期的热调制研究主要集中在热传导上, 通过工程化体材料和纳米结构材料中的声子传输来实现。然而, 基于声子的热调制可能存在一些限制, 如声子传输速度较慢和局部 Kapitza 阻抗的存在会大幅降低声子热流⁹。

近场热辐射已被理论和实验证明, 在激发表面等离子体/声子极化子^{10,11}、非共振双曲线模式或双曲面表面等离子体/声子极化子时¹²⁻¹⁴, 其远远超过 Stefan-Boltzmann 定律规定的黑体极限数倍。这种高效的辐射能量传输近年来已被应用于热调制¹⁵⁻¹⁸。通过改变两个物质之间的间隙距离可以实现辐射热流的调制。然而, 这种方法往往存在一些缺点。例如, 在深近场范围内, 辐射热流对间隙距离非常敏感, 并且随着距离的增加而下降, 因此需要非常精确地控制间隙距离以达到所需的调制效果。对于没有传播波干涉效应和驻波场中光子隧穿的远场, 由于视角系数的减小, 具有有限表面积的物体的辐射热流也会随着间隙距离的减小而减小。然而, 宏观尺寸的间隙空间可能会抑制微/纳尺度器件的应用。Biehs 等人提出了通过作用于两个极化/金属光栅的相对方向来调制辐射热流的方法¹⁹。这种替代的调制技术可以在一定程度上缓解基于变化间隙距离的调制器的前述缺点, 但是光栅的制备将是一个巨大的挑战, 因为粗糙度和制造精度应保证在几纳米以内。

双曲材料 (HMs) 由于其介电常数张量的分量具有相反的符号而表现出超双曲色散特性, 因此引起了广泛的研究兴趣^{20,21}。由于其支持高波矢模式的能力, HMs 中的局部光学密度大大增强, 有效促进了热辐射。最近, 有关远场热辐射的研究表明, 由 HMs 组成的层状结构具有出色的物理特性²²⁻²⁶。在许多研究中, 分别研究了支持双曲声子极化子 (HPs) 的自然 HMs (如 hBN 和 $\alpha\text{-MoO}_3$), 以增强 RHT^{13,27}。在基于 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的 NFRHT 方面的以往研究主要集中在天然 HMs 的块材料上, 这些堆叠结构并没有被涉及, 值得进一步研究。

本文提出了一种基于双曲材料 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的多层结构近场辐射调控器。该调控器适用于从深近场到远场各种间隙距离的变化。在纳米厚度的 $\alpha\text{-MoO}_3$ 薄膜和纳米尺度的间隙距离下，调制对比度可以高达4.9以上，相较于基于hBN的旋转热调控器，具有更大的热流密度。高调制性能的基础机制将被详细分析。这种基于双曲材料的非接触式热调制器不需要将对象制成纳米结构。该方法可以避免应对制造和加工子纳米结构时所面临的困难，如表面质量、误差积累和缺陷等。在此，我们探讨了该调制器的物理原理，并分析了调制对比度与和材料特性、间隙距离和层膜厚度之间的关系。我们的工作为开发具有高效热流控制性能的可扩展和可重复制造的热调制器提供了一个新思路。

1 理论与方法

1.1 基于多层膜 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的热调控器模型

针对单层膜结构基于 $\alpha\text{-MoO}_3$ [010]的热调控器，如图1(a)所示，控制间距为20 nm,随着层膜厚度从1 nm增大到25 nm，调控比例逐渐增大，当层膜厚度为25 nm时达到峰值，此时调控比例为3.3。随着层膜厚度的继续增大，调控比例开始下降，当层膜厚度大于1000 nm时，旋转调控比例趋于平稳。图2(b)控制层膜厚度在1000nm，改变间距，热辐射量随着间距的增加显著减小，间距对调控比例影响显著。

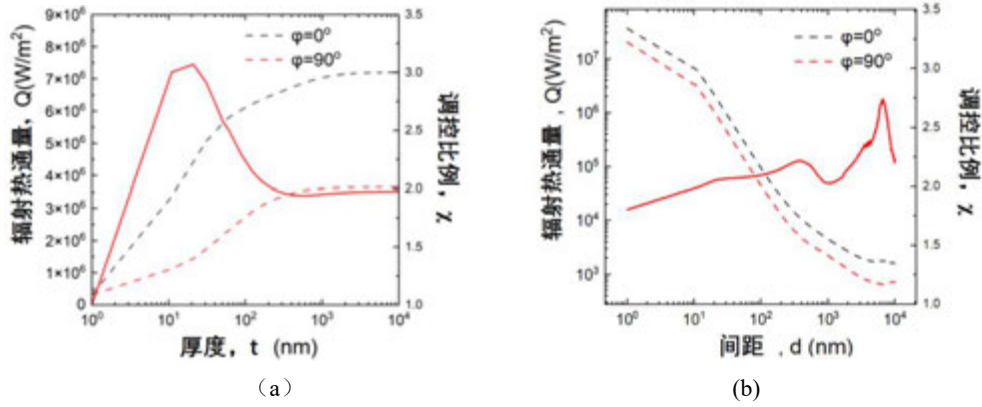


图1 单层 $\alpha\text{-MoO}_3$ 结构热流密度和调控比例 (a) 随厚度变化(b)随间距变化

对于多层膜结构的热调控器，其调控效果有望得到进一步的提升。由于层膜数的增加，结构的几何参数自由度显著增加，最优参数的设计愈发困难。本文研究了一个基于 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的三层膜结构非接触近场辐射热调控器，如图2所示，其中发射器和接收器被假设为半无限。发射器温度 T_h 为300K，吸收器温度 T_l 为0K，层膜旋转角为 ϕ_i ，($i=1, 2, 3, 4, 5, 6$)，选择参数范围如表1所示，通过机器学习的方式，对旋转调控的热调控器进行高效设计，以期达到更大的旋转调控比例。

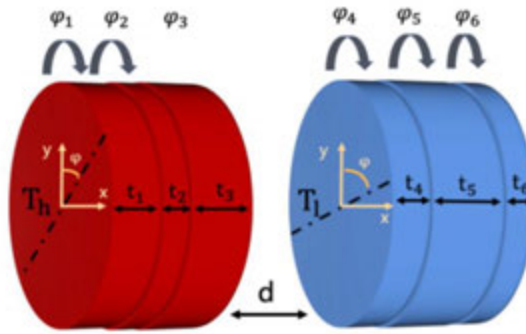


图2 多层膜结构热调控器示意图，吸收发射端被真空间距 d 分隔

1.2 机器学习优化方法

在本研究中，我们将两种数据驱动的机器学习方法——多层前馈神经网络和贝叶斯优化（BO）结合起来，提出了一个建模和优化近场热设备的流程图，如图 3 所示。该流程图采用以下创新点：首先，使用基于拉丁超立方抽样（LHS）的方法，通过在模型高梯度处增加采样点的变密度采样方法来选取合理的采样点。这些采样点通过精确的 NFRHT 方法计算得出，以构建我们的初始训练数据集。其次，训练多层前馈神经网络作为替代模型，从输入特征向量构建一个功能模型到对应的输出特征向量，输入为层膜旋转角度 φ_i ($i = 1, 2, 3, 4, 5, 6$)，输出为预测相应结构的近场热辐射量（NFRHT）。最后，应用贝叶斯优化到代理模型上，基于贝叶斯优化过程来确定十个最优结构，将得到的最优结构添加进初始训练集中再次进行学习，即是一次循环。为了设计出最优的旋转调控器，首先针对固定 20nm 的间隔距离和 7nm 的层膜厚度，利用优化流程，对多层膜的旋转角度进行优化设计，得到最大，最小热通量各自对应的旋转角度，计算得到调控比例 χ 。循环迭代，直到搜索到该问题全局最优结构，收敛效果如图 4 所示。

表 1 多层热调控器参数优化范围

参数	旋转角度 φ_i	层膜厚度 t_i /nm	间距 d /nm
下界	0	(7)	(20)
上界	90	(7)	(20)

通常，当输入和输出 NFRHT 之间的功能关系变得更加复杂时，需要更大的训练数据集和网络体系结构才能保持良好的预测性能神经网络对学习较简单的函数有偏向性，并且参数空间中的均匀输入数据分布很难学习高梯度组件，通常无法训练。为了解决这个挑战，生成非均匀的输入数据分布，对高梯度区域进行更多的采样。主要通过全局敏感性分析来帮助识别陡峭变化（梯度）的重要参数，从而生成我们额外采样的点。结果表明，真空间隙距离 d 是最具影响力的参数，符合 NFRHT 中现有的渐近波理论。

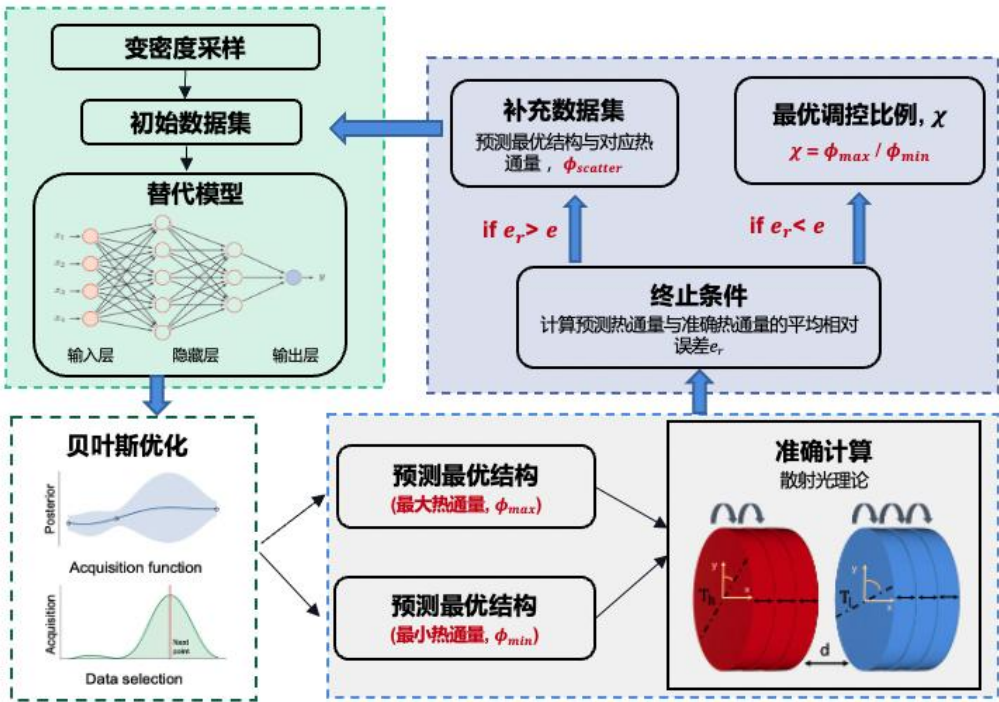


图 3 优化流程示意图

为了说明我们提出的 ML 方法的效率，表 2 列出了图 3 中多层超材料设计的每个部分的预计时间。在我们的工作站（2*Intel Xeon Gold 6271）上，基于散射方法计算 2000 个点需要大约 33 小时。每次循环添加十个最优结构，计算耗时约十分钟，采用 Levenberg-Marquardt 算法来优化神经网络模型。与贝叶斯正则化算法相比，L-M 方法具有更快的训练速度。单次训练耗时约 1 分钟。在建立代理模型之后，贝叶斯优化可以在 30 秒内找到最优参数。我们还需要提到的是，训练过程尚未完全优化。仍有空间来提高速度和精度。

表 2: 所提出工作流程设计多层热调控器的预计时间

流程	准确计算	替代模型训练	优化
计算时长	~50h/3000 points	~100min	~50min

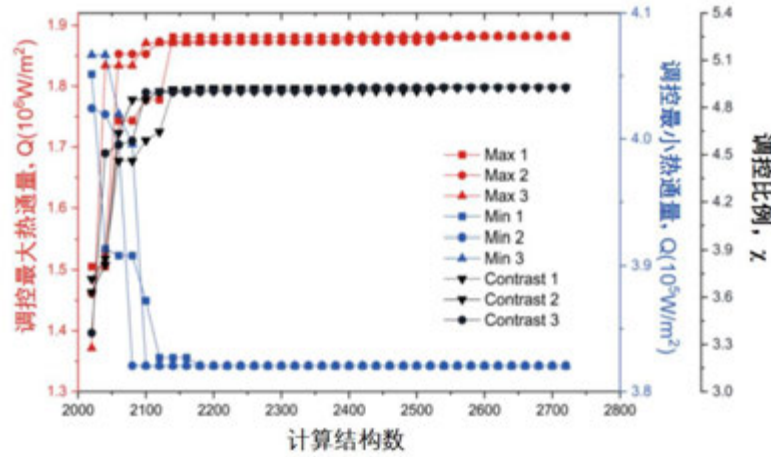


图 4 层膜角度优化收敛图

1.3 计算方法

作为一个各向异性材料， $\alpha\text{-MoO}_3$ 的光学响应与其主轴的方向有关。 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的主相对介电常数分量可以用以下 Lorentz 方程描述²⁸:

$$\epsilon_m = \epsilon_{\infty,m} \left(1 + \frac{\omega_{LO,m}^2 - \omega_{TO,m}^2}{\omega_{TO,m}^2 - \omega^2 - j\omega\Gamma_m} \right), \quad m = x, y, z \quad (1)$$

其中 ω 是角频率， x, y, z 表示三个主轴，分别对应于 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的晶体方向 [100], [001], [010][100],[001],[010]，沿着这些方向，晶体的晶格常数分别为 $a=0.396$ 、 $a=0.396$ nm、 $c=0.369$ nm 和 $b=1.385$ nm²⁹。我们计算中使用的详细参数来自参考文献²⁸，相对介电常数分量的实部如图 5 所示。可以看到， ϵ_x 、 ϵ_y 和 ϵ_z 的实部在三个光谱区域内都呈现出负值，这些区域分别为 1.0273×10^{14} 至 1.6041×10^{14} rad/s， 1.5457×10^{14} 至 1.8322×10^{14} rad/s， 1.8058×10^{14} 至 1.8925×10^{14} rad/s。这些区域对应于 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的三个 Reststrahlen 带，在这些区域内，电磁波传播的色散可以表现出双折射的特性。双折射带的存在显著影响了 $\alpha\text{-MoO}_3$ 双轴晶体之间的非辐射强热传输，下面将进行讨论。

本文研究了一个被真空间隔 d 的 $\alpha\text{-MoO}_3$ 发射体和接收体之间的非辐射热传输(NFRHT)，如图 2 所示，其中发射器和接收器被假设为半无限。考虑沿着每个晶向的 NFRHT，例如，当 [010] 垂直于表面时，热通量被认为沿着 [010] 晶向。此外，发射体两个与辐射热流方向垂直的主轴相对于接收体的主轴旋转了一个角度 φ 。假设接收体的相对介电常数张量为 ϵ ，则发射体的相对介电常数张量为¹⁵:

$$\begin{pmatrix} \cos\varphi & -\sin\varphi & 0 \\ \sin\varphi & \cos\varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \epsilon \begin{pmatrix} \cos\varphi & \sin\varphi & 0 \\ -\sin\varphi & \cos\varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2)$$

根据波动-耗散定理和双线性格林函数的互易性，介质 1 和 2 之间的 NFRHF 可以表示为：

$$Q = \frac{1}{8\pi^3} \int_0^\infty [\theta(\omega, T_1) - \theta(\omega, T_2)] d\omega \int_0^{2\pi} \int_0^\infty \xi(\omega, \beta, \varphi) \beta d\beta d\varphi \quad (3)$$

其中 $\theta(\omega, T) = \hbar\omega / (e^{\hbar\omega/k_B T} - 1)$ 是在温度 T 下具有平均能量的普朗克振子的平均能量，其中 \hbar 是规范化普朗克常数， k_B 是玻尔兹曼常数， β 是平行波矢分量， φ 是方位角。 $\xi(\omega, \beta, \varphi)$ 被称为能量传输系数或声子隧穿概率。

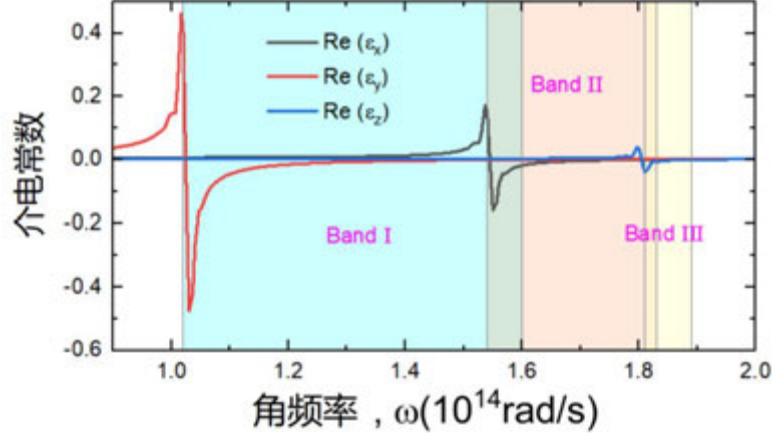


图 5 α -MoO₃沿 x,y,z 三个方向的介电常数实部

2 结果与讨论

本次角度优化中假设发射体温度为 300K，接收体温度为 0K。将间隔距离 d 固定在 20nm，各层膜厚度 t_i 均固定在 7nm，对[010]晶向的 α -MoO₃各层膜进行 0 至 90 度的旋转调控的优化设计，得到的最大和最小热通量分别计算为 1881948.70 W/m²和 382060.1326 W/m²，旋转调控比例为 4.92，相较单层结构的热调控器，提高了 53%。为了展示大 NFRHF 和相对旋转角度变化的大调制对比度的物理机制，在图 5 中绘制角度优化后得到最优结构的光谱热通量，其中旋转角度参数的取值如表 3 所示。可以看出，当真空间隙距离 d 处于亚微米区域时， α -MoO₃实现了巨大的热通量。当旋转角度 φ_i 为[0 90 0 90 0 90]时，在三个 Reststrahlen 带中热通量显著增强。此外，在 $x = 1.8228 \times 10^{14}$ rad/s 处出现一个非常尖锐的峰值。当旋转角度 φ_i 等于[0 0 0 90 90 90]时，与旋转角度 φ_i 等于[0 90 0 90 0 90]时相比，Reststrahlen 带中沿三个方向的热通量都会减小。特别地，在热通量沿[010]方向时，当旋转角 φ_i 为[0 0 0 90 90 90]时，可以看到热通量在 1.2705×10^{14} 到 1.5457×10^{14} rad/s 的谱带中急剧下降。我们将增强的 Reststrahlen 带和尖锐峰的热通量归因于激发的双曲等离子体激元 (HPPs) 和双曲面表面声子极化子 (HSPPhPs)。接下来，将研究 HPPs 和 HSPPhPs 的特性，以及主轴取向和旋转角度对辐射热通量的影响。这些问题可以通过查看波矢空间中的能量传输系数分布来理解。

表 3 角度优化后得到最大最小热通量对应参数

参数	φ_1	φ_2	φ_3	φ_4	φ_5	φ_6	厚度 t_i /nm	间距 d /nm
最大热通量	0	90	0	90	0	90	(7)	(20)
最小热通量	0	0	0	90	90	90	(7)	(20)

图 7 (a) 和 7 (b) 展示了当旋转角度 φ 等于[0 0 0 90 90 90]和[0 0 0 90 90 90]度时，发射体和接收体在 $\omega = 1.06 \times 10^{14}$ rad/s 处的波矢分量 k_x 和 k_y 变化时的能量传输系数。这里， k_x

和 k_y 分别表示 β 在 x 轴和 y 轴上的投影。从图 7 (a) 中可以看出, 在原点四周区域有大量的热通量, 用明亮的颜色表示, 这是激发 HPPs 的标志。实质上, HPPs 是一种体积模式, 其色散关系在各向异性材料中体现为双曲线形。双曲线形的色散关系可以保证模式在材料中具有无限大的波矢分量。因此, 已经广泛地表明, 由于激发了 HPPs, 超双折射单轴材料和超材料之间的极大非辐射热传递可以实现。从文献中得知, 双曲声子极化在 $\alpha\text{-MoO}_3$ 中存在条件可以表示为:

$$\frac{(\varepsilon_y k_y^2 + \varepsilon_x k_x^2)}{\varepsilon_z} < 0 \quad (4)$$

其中假定 $k_y \gg k_0, k_x \gg k_0$, 具体地说, HPPs 存在区间可以表示为

$$-\sqrt{-\frac{\varepsilon_x}{\varepsilon_y}} < \frac{k_y}{k_x} < \sqrt{-\frac{\varepsilon_x}{\varepsilon_y}} \quad (5)$$

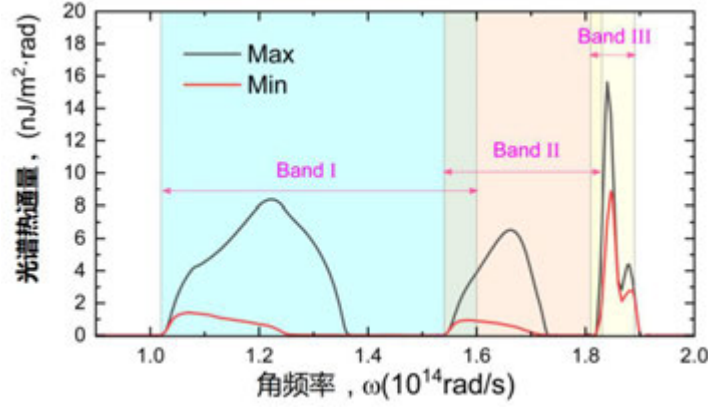


图 6 角度优化后最优结构的光谱辐射量

图 7 (a) (b) 展示了在 $x = 1.06 \times 10^{14}$ rad/s 处, 相对介电常数为 $\varepsilon_x = -109 + j 13.4$, $\varepsilon_y = 7.06 + j 0.0193$, $\varepsilon_z = 2.76 + j 0.000673$ 。利用公式 (5) 并忽略 em ($m = x, y, z$) 的虚部, 可以得到 k_x — k_y 平面上 HPPs 区域的边界曲线为 $k_y = 3.93 k_x$, 经过 90 度旋转为 $k_y = 0.254 k_x$, 如图 7 (a) (b) 中两条亮色虚线所示。图 7 (b) 可以看到, 这两条线将具有大热流的区域包围起来, 明显由亮色表示。当旋转角度 φ_i 等于 $[0 \ 0 \ 0 \ 90 \ 90 \ 90]$ 时, 发射体和接收器的 HPPs 区域可以部分重叠。在这种情况下, 仅在图 7 (b) 中亮色指示的四个重叠区域中发现大的能量传输系数。因此, 与图 7 (a) 中显示的情况相比, 热流减小了。换句话说, 这种减少来自于发射体和接收器之间 HPPs 的不对准。

图 7 (c) 和 7 (d) 显示了在 $x = 1.2 \times 10^{14}$ rad/s 处发射体和接收器之间的能量传输系数 n 随着波矢分量 k_x 和 k_y 变化的情况。在图 5 (c) 中, 明亮颜色清楚地显示了激发的 HPPs, 类似于图 5 (a) 中的情况。在 $x = 1.2 \times 10^{14}$ rad/s 处, 主要相对介电常数分量的值为 $\varepsilon_x = -15.3 + j 0.482$, $\varepsilon_y = 8.08 + j 0.0389$, $\varepsilon_z = 2.82 + j 0.00105$ 。因此, 在 k_x — k_y 平面上, HPPs 区域的边界曲线可以获得为 $k_y = 1.38 k_x$, 经过 90 度旋转为 $k_y = 0.72 k_x$, 如图 7 (c) 和 7 (d) 中两条亮色虚线所示。

图 7 (e) 和 7 (f) 展示了在 $x = 1.84 \times 10^{14}$ rad/s 处, 出现热通量的尖峰时的能量传输系数分布, 图 7 (e) 所有方位角上都会激发 VHPs 根据 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的介电常数 $\varepsilon_x = 1.81 + j 0.0202$, $\varepsilon_y = 0.116 + j 0.0541$, $\varepsilon_z = -3.75 + j 0.342$ 分别计算, 这是由于由于 $\varepsilon_x > 0$, $\varepsilon_y > 0$, $\varepsilon_z < 0$ 的各向异性 $\alpha\text{-MoO}_3$ 引起。然而, 在白线内侧区域代表的更亮的颜色所表示的大热通量不能归因于 HPPs。我们解释了这种热通量增强是由于 Dyakonov 波的共振引起的, 这是一种特殊类型的表面波, 在各向同性介质和各向异性介质之间的界面上被激发。研究人员已经开始研究如何利用 Dyakonov 波增强两个双曲线单轴介质之间的非辐射近场热传递。由于它们的色散关系具有超双曲线的特性, 因此 Dyakonov 波被称为超双曲面声子极化子 HSPHPs。针对具有主要相对介电常数分量为正值的单轴和双轴材料, Dyakonov 波已经得到了全面的研究, 这是导致热通量尖峰的主要贡献。当旋转角度为 $[0 \ 0 \ 0 \ 90 \ 90 \ 90]$ 时, 增强

的热通量分布在图 7 (f) 所示的区域内。由于发射体和接收体之间的 HPPs 和 HSPhPs 错位，与图 7 (e) 中的情况相比，有着类似但更小的热通量。

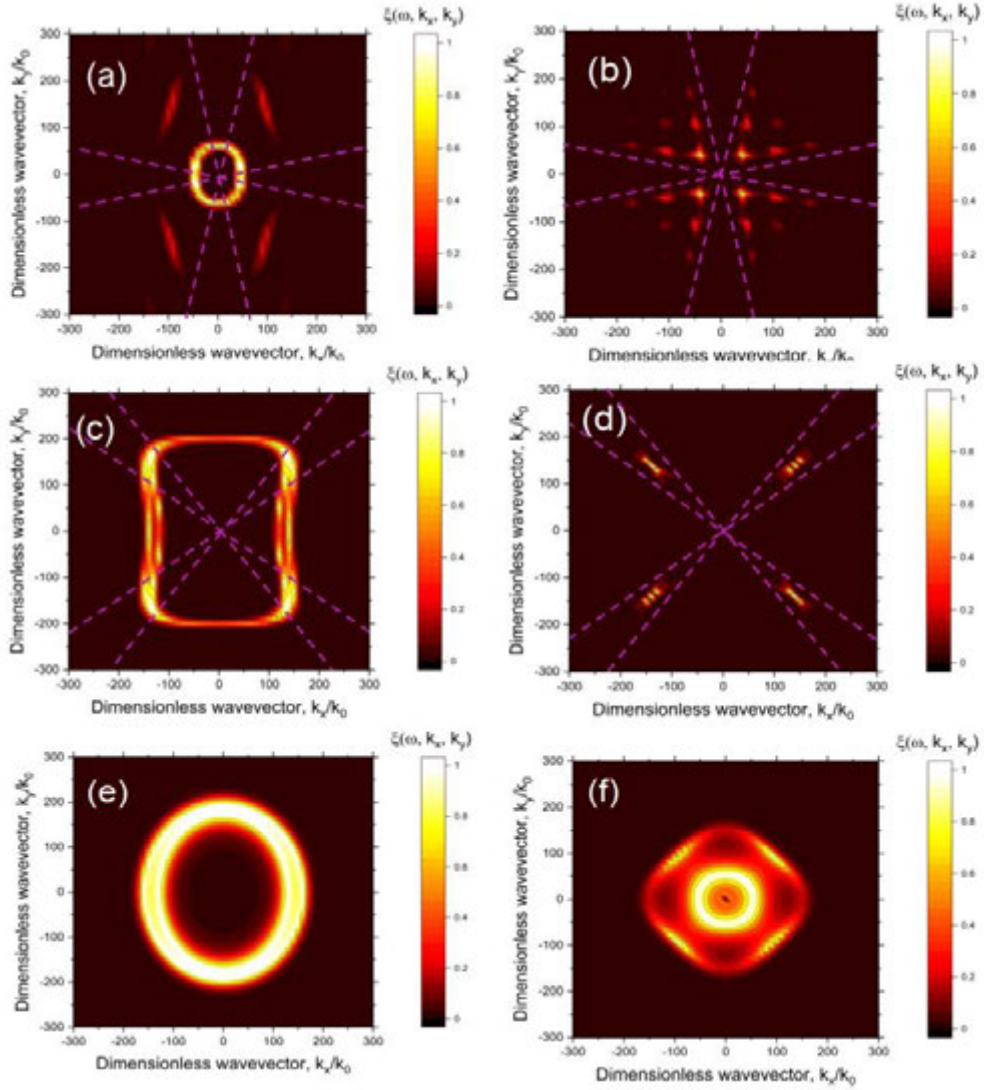


图 7 能量传输系数分布 (a) 调控最大热通量结构在 1.06×10^{14} rad/s 处 (b) 调控最小热通量结构在 1.06×10^{14} rad/s (c) 调控最大热通量结构在 1.2×10^{14} rad/s (d) 调控最小热通量结构在 1.2×10^{14} rad/s (e) 调控最大热通量结构在 1.84×10^{14} rad/s (f) 调控最小热通量结构在 1.84×10^{14} rad/s

3 结论

本文利用多层前馈神经网络和 BO 算法结合的机器学习方法对基于双曲材料 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的多层热调控器进行优化设计，以获得最大的旋转热调控比例。多层前馈神经网络被训练用于模拟多层介质超材料之间的热通量，贝叶斯优化算法用于寻找对应最大辐射热通量的几何参数。文章首次对多层膜旋转热调控器进行探究， $\alpha\text{-MoO}_3$ 因其支持双曲声子极化子 HPs 的大近场辐射热通量，与各向异性的旋转调控特性，被选取为调控器材料。机器学习结果表明，经过层膜旋转角度优化的多层结构热调控器，调控比例可以达到 4.93，相较单层膜结构热调控器提高了 53%。其物理机理主要是由于发射器层膜不同角度的堆叠，使 HPs 沿各波矢方向均有激发，从而达到较大的调控热通量，由于发射体和接收体之间的 HPPs 和 HSPhPs 错位，达到较小的调控热通量，从而达到较大的旋转调控比例。以上研究发现对高自由度近场辐射结构优化问题具有一定的指导。

参考文献

1. J. Hu, X. Ruan, and Y. P. Chen: 'Thermal Conductivity and Thermal Rectification in Graphene Nanoribbons: A Molecular Dynamics Study', *NANO LETTERS*, 2009, 9(7), 2730-2735.
2. T. Avanesian and G. Hwang: 'Thermal diode in gas-filled nanogap with heterogeneous surfaces using nonequilibrium molecular dynamics simulation', *JOURNAL OF APPLIED PHYSICS*, 2016, 120(16).
3. S. Sadeghzadeh and N. Rezapour: 'A study of thermal conductivity in graphene diodes and transistors with intrinsic defects and subjected to metal impurities', *SUPERLATTICES AND MICROSTRUCTURES*, 2016, 100, 97-111.
4. P. Ben-Abdallah and S.-A. Biehs: 'Near-Field Thermal Transistor', *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 2014, 112(4).
5. K. Joulain, Y. Ezzahri, J. Drevillon, and P. Ben-Abdallah: 'Modulation and amplification of radiative far field heat transfer: Towards a simple radiative thermal transistor', *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 2015, 106(13).
6. Y. Yang, S. Basu, and L. Wang: 'Vacuum thermal switch made of phase transition materials considering thin film and substrate effects', *J Quant Spectrosc Ra*, 2015, 158, 69-77.
7. W.-H. Hsu and R. H. Victora: 'Heat-assisted magnetic recording — Micromagnetic modeling of recording media and areal density: A review', *Journal of magnetism and magnetic materials*, 2022, 563, 169973.
8. B. D. Terris, H. Nemoto, D. S. Kercher, R. Ruiz, T. C. Strand, T. D. Boone, J. A. Katine, E. Dobisz, A. Hirotsune, O. Hellwig, V. Rawat, C. C. Poon, J.-L. Li, N. Robertson, H. Balamane, T. R. Albrecht, and B. C. Stipe: 'Magnetic recording at 1.5 Pb m^{-2} using an integrated plasmonic antenna', *Nature photonics*, 2010, 4(7), 484-488.
9. P. Ben-Abdallah and S.-A. Biehs: 'Contactless heat flux control with photonic devices', *AIP ADVANCES*, 2015, 5(5).
10. J. P. Mulet, K. Joulain, R. Carminati, and J. J. Greffet: 'Enhanced radiative heat transfer at nanometric distances', *MICROSCALE THERMOPHYSICAL ENGINEERING*, 2002, 6(3), 209-222.
11. S. Shen, A. Narayanaswamy, and G. Chen: 'Surface Phonon Polaritons Mediated Energy Transfer between Nanoscale Gaps', *NANO LETTERS*, 2009, 9(8), 2909-2913.
12. H. Liu, K. Shi, K. Zhou, Q. Ai, M. Xie, and X. Wu: 'Enhancement and modulation of three-body near-field radiative heat transfer via anisotropic hyperbolic polaritons', *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2023, 208.
13. J. Zhang, H. Liu, K. Zhang, J. Cao, and X. Wu: 'Radiative heat transfer between multilayer hyperbolic materials in both near-field and far-field', *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2023, 202.
14. D. N. Basov, M. M. Fogler, and F. J. Garcia de Abajo: 'Polaritons in van der Waals materials', *Science*, 2016, 354(6309).
15. X. Liu, J. Shen, and Y. Xuan: 'Pattern-free thermal modulator via thermal radiation between Van der Waals materials', *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2017, 200, 100-107.
16. Y. Hu, Y. Sun, Z. Zheng, J. Song, K. Shi, and X. Wu: 'Rotation-induced significant modulation of near-field radiative heat transfer between hyperbolic nanoparticles', *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2022, 189.
17. Y. Xuan: 'An overview of micro/nanoscaled thermal radiation and its applications', *PHOTONICS AND NANOSTRUCTURES-FUNDAMENTALS AND APPLICATIONS*, 2014, 12(2), 93-113.
18. Y. Yang and L. Wang: 'Electrically-controlled near-field radiative thermal modulator made of graphene-coated silicon carbide plates', *J Quant Spectrosc Ra*, 2017, 197, 68-75.

19. S. A. Biehs, F. S. S. Rosa, and P. Ben-Abdallah: 'Modulation of near-field heat transfer between two gratings', *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 2011, 98(24).
20. P. Shekhar, J. Atkinson, and Z. Jacob: 'Hyperbolic metamaterials: fundamentals and applications', *Nano convergence*, 2014, 1(1), 14.
21. M. Ye, B. Qiang, S. Zhu, M. J. Dai, F. K. Wang, Y. Luo, Q. Wang, and Q. J. Wang: 'Nano-Optical Engineering of Anisotropic Phonon Resonances in a Hyperbolic α -MoO₃ Metamaterial', *ADVANCED OPTICAL MATERIALS*, 2022, 10(19).
22. X. H. Wu, C. J. Fu, and Z. M. Zhang: 'Near-Field Radiative Heat Transfer Between Two α -MoO₃ Biaxial Crystals', *J Heat Trans-T Asme*, 2020, 142(7).
23. H. Liu, K. Yu, K. Zhang, Q. Ai, M. Xie, and X. Wu: 'Effect of substrate on the near-field radiative heat transfer between α -MoO₃ films', *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2023, 210.
24. N. C. Passler, M. Jeannin, and A. Paarmann: 'Layer-resolved absorption of light in arbitrarily anisotropic heterostructures', *PHYSICAL REVIEW B*, 2020, 101(16).
25. Y. S. Sun, D. R. Zhang, B. Y. Wu, H. T. Liu, B. Yang, and X. H. Wu: 'Metasurfaces Assisted Twisted α -MoO₃ for Spinning Thermal Radiation', *MICROMACHINES*, 2022, 13(10).
26. X. Liu and Y. Xuan: 'Super-Planckian thermal radiation enabled by hyperbolic surface phonon polaritons', *SCIENCE CHINA-TECHNOLOGICAL SCIENCES*, 2016, 59(11), 1680-1686.
27. X. H. Wu and C. J. Fu: 'Near-field radiative heat transfer between uniaxial hyperbolic media: Role of volume and surface phonon polaritons', *J Quant Spectrosc Ra*, 2021, 258.
28. Z. Zheng, N. Xu, S. L. Oscurato, M. Tamagnone, F. Sun, Y. Jiang, Y. Ke, J. Chen, W. Huang, W. L. Wilson, A. Ambrosio, S. Deng, and H. Chen: 'A mid-infrared biaxial hyperbolic van der Waals crystal', *SCIENCE ADVANCES*, 2019, 5(5).
29. W. Ma, P. Alonso-Gonzalez, S. Li, A. Y. Nikitin, J. Yuan, J. Martin-Sanchez, J. Taboada-Gutierrez, I. Amenabar, P. Li, S. Velez, C. Tollan, Z. Dai, Y. Zhang, S. Sriram, K. Kalantar-Zadeh, S.-T. Lee, R. Hillenbrand, and Q. Bao: 'In-plane anisotropic and ultra-low-loss polaritons in a natural van der Waals crystal', *Nature*, 2018, 562(7728), 557-+.

涡轮后机匣辐射-对流耦合传热特性分析

李振环¹, 吴小军², 贺业光¹, 李润东¹

(1. 沈阳航空航天大学 能源与环境学院, 辽宁省 沈阳市 110136;

2. 中国航发沈阳发动机研究所, 辽宁省 沈阳市 110015)

(Tel: 024-89724818, Email: lizhenhuan_daniel@163.com)

摘要: 针对涡轮后机匣开展了辐射-对流耦合传热仿真模拟, 并采用加权灰气体模型考虑夹层腔内燃气介质辐射, 求解获得了流体域流场和固体域温度场, 分析了表面辐射和燃气辐射因素对机匣内传热特性及冷却效率的影响。结果表明: 后机匣内燃气侧与冷气侧的核心换热区域为高半径处的双夹层通道, 承力框架热侧换热系数分布受入口段效应和主流燃气加热作用主导; 忽略热辐射会引起机匣壁面换热特性显著的预测偏差, 考虑热辐射的壁面整体换热系数达到不考虑时的 4.8 倍; 燃气辐射会对热侧壁面施加额外的辐射热负荷, 并使燃气腔温分布趋于均匀; 考虑热辐射作用后的综合热效率会显著降低, 受主流燃气影响的局部区域可低至 0.2 以下。

关键词: 后机匣; 辐射-对流耦合传热; 热辐射; 换热特性; 冷却效率

0 前言

涡轮后机匣是位于航空发动机后部大型承力部件, 在发动机运行过程中起到了多重关键性作用^[1]。这其中的首要作用是为低压转子提供支撑; 其次, 整流罩通常设计为流线型体, 可将低压涡轮出口燃气的矢量流向整流为轴向, 具有气动导向性; 此外, 由于其位于低压涡轮和尾喷管之间, 也为后部区域的二次流系统提供了封严和冷却的路径。

这些结构特点及其面临的复杂热环境都加大了后机匣冷却结构设计及相应的换热特性分析难度。因为后机匣直接承载低压涡轮出口燃气的热负荷, 现有的关于后机匣的研究多集中于材料机械性能分析方面。龚梦贤等^[2]利用 NASTRAN 分析系统对某涡轮后机匣及其附属承力构件进行了应力分析和静强度检验。高志坤等^[3]针对试车过程中出现的裂纹进行了故障分析, 发掘出原始铸造工艺缺陷是主导诱发原因。然而, 机匣的机械性能失效与否是与基体的温度分布紧密相关的。如何避免产生巨大的温度应力是另一方面潜在性的解决途径。

目前众多学者已针对机匣结构的冷却设计提出了有针对性的强制对流换热措施, 主流方式为射流冲击冷却。张井山等^[4]针对机匣中的典型换热结构开展了斜向冲击射流对肋状机匣内表面换热特性的试验研究。何康等^[5]针对多层涡轮机匣设计了阵列冲击/气膜冷却结构, 并开展了不同冲击雷诺数和横流出流比条件下冲击靶板表面对流换热特性试验研究。王鹏飞等^[6]设计了机匣试验件, 验证了高温、高压工作条件下冲击冷却管的冷却效果, 并获得了机匣表面的换热规律。刘远见等^[7]采用热膜法研究了高压涡轮机匣内部加强肋表面的换热规律, 并以试验结果揭示了加强肋表面换热系数与肋高度和冲击雷诺

数的耦合作用。张书华等^[8]采用瞬态液晶测量方法对带有冲击、凹槽和阵列抽吸结构的涡轮机匣表面换热特性进行了研究。

以上射流冲击通道设计多针对主动间隙控制机匣结构。而对于后机匣整流罩的叶型结构而言，设计者们多在其内部设计夹层冷却流路^[9]。无论是冲击射流冷却结构或是夹层通道冷却结构，对流传热强的局部壁面均会呈现低温区，导致高温燃气侧壁面对其产生显著的辐射加热作用。随着发动机涡轮进口气体温度的不断提高，该辐射加热作用将愈加明显^[10]。然而，现有的关于机匣内流动换热仿真研究大多数并未考虑辐射加热影响。王天壹等^[11]针对带有气膜冷却结构的涡轮导向叶片的辐射-对流仿真计算表明入口燃气的辐射作用会使得叶片的冷却效率有所下降。故为了精确分析和评估后机匣内部冷却流路结构的换热效果，亦应对其开展辐射-对流耦合仿真计算。

本文针对典型的带有夹层腔冷却通道的后机匣模型开展了辐射-对流高温耦合传热数值计算，重点考察辐射换热的影响，对后机匣内部流场、壁面换热特性以及影响其内部辐射换热的各方面因素展开了分析，为后机匣内部的换热设计提供了一定的参考价值。

1 计算模型建立

1.1 研究对象

图1为本文开展仿真计算所采用的后机匣结构整体截面示意图。导流管和承力框架之间构成了排大气冷却流路腔，承力框架和整流罩之间构成了漏入燃气的夹层腔，此两腔构成了计算模型的两个流体域。下文统称冷却气流域和燃气流域。除这两个腔室之外，其余部件构成了模型中的固体域，主要包括整流罩、承力框架、导流管与隔热层结构。如图所示，发动机运行过程中整流罩与涡轮出口燃气直接接触，并且部分燃气漏入夹层腔内。

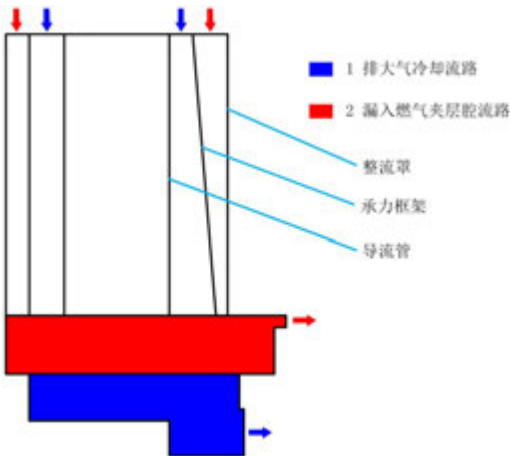


图1 涡轮后机匣整体结构示意图

图2给出了构建的固体域(灰色)、排大气冷却流体域(蓝色)和漏入燃气夹层腔流体域(红色)各自的三维几何模型，组装后形成后机匣整体三维几何模型。因后机匣结构具有周向对称性，模型仅截取整环的1/8开展数值仿真计算。

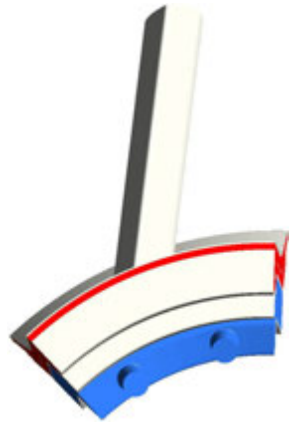


图2 涡轮后机匣整体三维仿真几何模型

1.2 网格划分及边界条件

采用 ICEM 生成非结构化网格, 并保证模型两侧周期面上的网格节点是一一对应关系。图 3 为包括流体域和固体域的模型整体网格划分示意。在流体域和固体域交界的流体域一侧壁面上生成 10 层边界层网格, 并设定足够小的首层网格高度以保证第一层网格节点落入粘性底层内来捕捉壁面附近的大梯度流动特征。

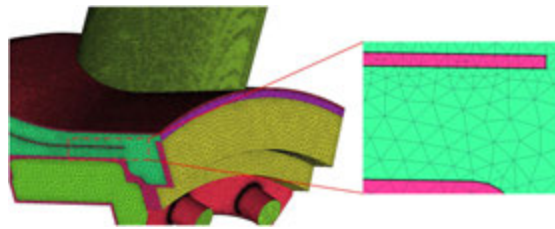


图3 整体三维网格划分

排大气流路进口设为压力入口边界, 排大气流路出口设为质量流量出口边界; 漏入燃气夹层腔入口设为速度入口边界, 假定漏入燃气的速度为 1m/s , 夹层腔出口设定为压力出口边界; 整流罩外壁面的温度分布依据低压涡轮出口燃气温度空间分布数据给出, 即整流罩外壁面处于燃气中心区域温度值最高, 而两端区域温度值偏低。两侧扇段截面设置为周期边界。

文中考虑三维通道内各壁面之间辐射换热以及夹层腔内燃气介质的参与性辐射换热。其中, 冷却流路腔热侧壁面(整流罩内侧壁面)发射率设置为 0.8 ; 燃气夹层腔冷侧壁面(承力框架外侧壁面)为本文重点关注区域, 通过设定三种不同发射率值(0.15 、 0.3 和 0.8)来研究壁面发射率变化对壁面换热特性的影响; 冷却流路腔冷侧壁面(导流管壁面)发射率设置为 0.8 。

依据文献^[12-13]设定燃气组分仅为水蒸气及二氧化碳, 这两种气体只在明显的波数附近吸收或发射能量, 并且吸收和发射能力大小还取决于当地温度。这两种特点使得求解燃气辐射热流的计算量十分庞大, 为此, 本文基于加权灰气体模型(WSGGM)计算燃气的吸收系数^[14], 具体采用 fluent UDF 中的 DEFINE_WSGGM_ABS_COEFF 宏函数。该宏函数依据文献中燃气吸收系数随波数变化曲线, 以三种不同吸收系数的灰气体加一种辐

射透明气体来等效模拟燃气热辐射特性。文中设定燃气中水蒸气的权重为 0.65，二氧化碳的权重为 0.35。

1.3 数值计算方法

文中选用 SST $k-\omega$ 湍流双方程模型^[15]，该模型兼具有 $k-\varepsilon$ 和 $k-\omega$ 两种湍流模型的优点，在近壁面保留了原始的 $k-\omega$ 模型，而在远离壁面区域应用了 $k-\varepsilon$ 模型，是目前应用较广泛的两方程模型。计算模型为定常模型，求解器采用压力基的 Coupling 求解器，该求解器为耦合算法，与 Simple 和 PISO 算法不同，其动量方程与质量方程是耦合为一个方程组进行求解的。空间离散方面选用二阶迎风格式，梯度项离散方面采用基于网格的 Least Squares 格式。选用 DO(离散坐标法)的辐射换热模型开展辐射换热计算，选取原因为 DO 模型对于含有辐射参与性介质(燃气)和周期边界的数值计算模型具有极好的适用性^[16]。此外，为提升 DO 模型求解精度，设置其辐射强度求解空间角度离散为 4×4 ，且每个交错控制角被进一步分割为 2×2 个像素元。

2 仿真结果分析

3.1 流场及换热分析

图 4 给出了后机匣内外侧燃气域和内侧冷却流体域内的流线形态和温度场分布。由图可知，在高半径区域的燃气，经过内层的冷却气流路通过承力框架壁面的冷却作用后，进入轮毂腔室内出现了显著的温度降低现象，燃气温度从入口的 1200K 数值基本降低至 980K 以下。而在冷却流体域一侧，冷却气流自高半径位置向低半径位置沿导流管方向流下，沿程不断吸收燃气侧经承力框架传递的热量，在到达低半径位置的轮毂腔室时，局部温度值也有所升高。由于燃气域的气流以漏入方式进入，流速值很小($\leq 1.0\text{m/s}$)，不具备与低径向位置承力框架之间的冲击换热能力，故可认为燃气侧与冷气侧的核心换热区域为高半径处的双夹层通道(位于最内侧的导流管与最外侧的整流罩之间)。

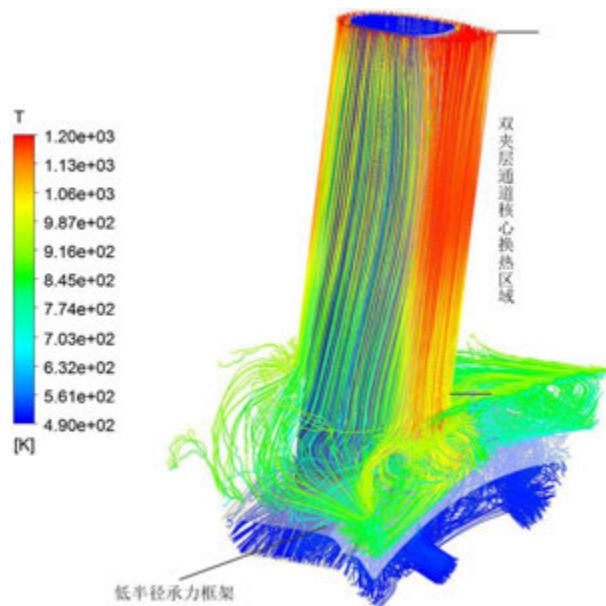


图 4 后机匣内冷却域和燃气域流线温度分布

为分析各夹层壁面的换热特性，图 5 给出了燃气夹层腔冷热侧壁面(承力框架外侧)的换热系数分布云图。因壁面的换热系数分布具有三维特征，无法以面上某一截面轮廓线准确表征，文中采用径向 y 向的 100 份等距分割的方式来进行处理，求取每一个截距上的平均换热系数，绘制出沿径向高度上的换热系数分布曲线。

由图 5 可看出，燃气夹层腔冷侧壁面的对流换热系数沿径向自上而下呈现出初始进口区域极高，中部外部燃气温度影响区域出现局部极值，而低半径弯转区域极低的特点。这是因为管内强制流动换热系数的大小一定程度上取决于流动阶段和传热状态。在初始进口区域，气流与壁面之间的换热处于入口段阶段，由于入口段的热边界层较薄，故这一区域的表面换热系数初始值较高。但对于夹层内流动，两边界层在极短的区间内便汇合，故其随径向距离降低很快。而到了径向的中半径区域，燃气夹层的热侧壁面受到低压涡轮后燃气冲刷作用温度再度升高，这侧壁面通过辐射换热作用增加了热侧壁面的热流密度，依据牛顿冷却公式可知，这部分区域的换热系数有所提升，且在燃气冲刷的中心区域，换热系数升至局部极值。随着燃气向低半径区域流动，换热系数又再度降低，至低半径转弯位置处，已降低至 $50\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$ 以下。

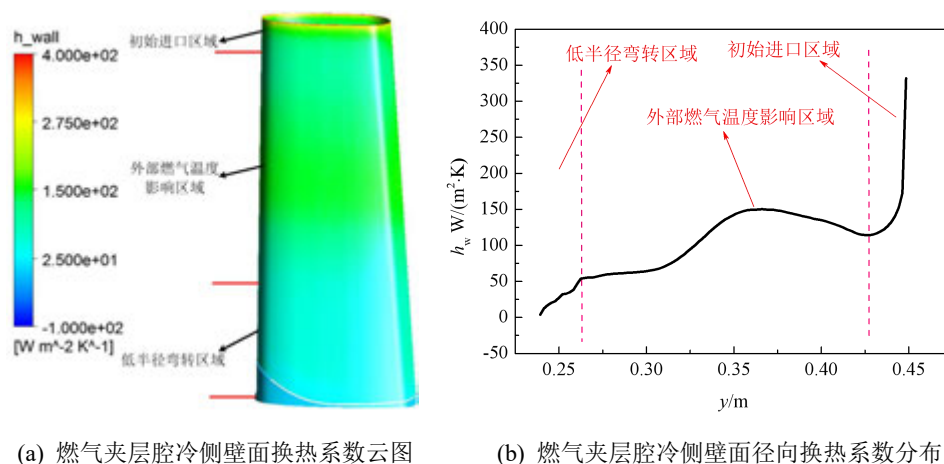


图 5 燃气夹层腔冷侧壁面换热系数分布

3.2 壁面发射率的影响

考虑到承力框架的强度需求，其表面(燃气夹层腔冷热侧壁面)温度分布是设计人员所重点关注的。因承力框架表面发射率的变化可能对其换热特性产生显著影响，故本节对其重点考察。

图 6 为不考虑辐射换热及考虑辐射换热的不同壁面发射率条件($\epsilon=0.15, 0.3, 0.8$)时，该壁面的温度分布云图。由图可知，在不考虑热辐射时，壁面温度均在 600K 以下，而考虑热辐射时，壁面温度随着发射率增大而明显增大，其中低压涡轮出口燃气作用的中半径区域表现得尤为明显，在壁面发射率达到 0.8 时，这部分区域的温度值已达到 800K 左右。这说明该壁面在其发射率较大的情况下会受到外部整流罩壁面强烈的辐射加热作用，即辐射热效应不可忽略。

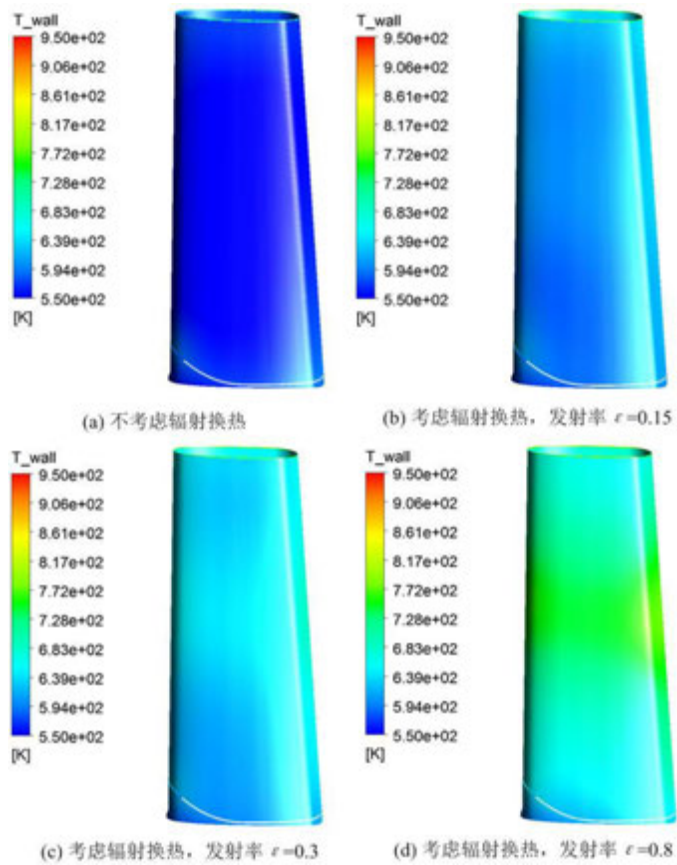


图 6 不同发射率条件下燃气夹层腔冷侧壁面温度分布

图 7 给出了不同发射率条件下该壁面沿径向上的等截距平均总热流密度和辐射热流密度分布曲线图，其中，每一对相同颜色曲线对应同一发射率。由图可知，随着壁面发射率的增加，壁面总辐射热流和辐射热流数值均迅速增加。其中，当发射率为 0.8 时，辐射热流密度的分布趋势和数值已与总热流密度十分接近，说明辐射热流占据的权重值较大。

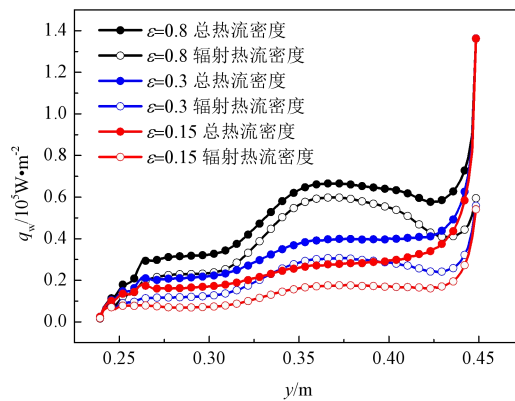


图 7 不同发射率条件下燃气夹层腔冷侧壁面总热流密度及辐射热流密度分布对比

图 8 给出了不同发射率条件下该壁面的换热系数分布曲线，并以不考虑辐射换热的

换热系数分布曲线作为参照。由图可知，除了初始进口区域之外，其余区域的换热系数数值大小被辐射换热热流密度所主导。在壁面发射率条件($\varepsilon=0.15, 0.3, 0.8$)时，考虑辐射换热的整体平均换热系数依次为不考虑辐射换热工况下的 2.1、2.8 和 4.8 倍。由此可见，壁面发射率为极其重要的热辐射物性参数，其大小将会带来明显的温度及换热强度差异。

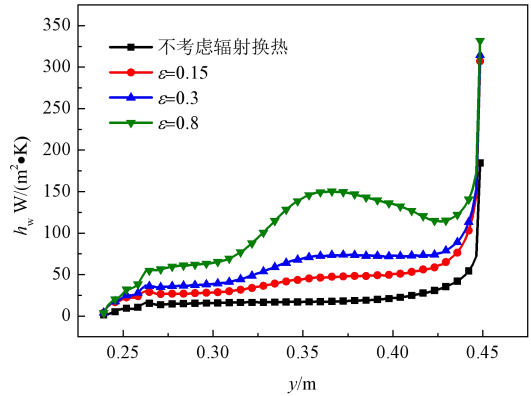


图 8 不同发射率条件下燃气夹层腔冷侧壁面换热系数分布对比

3.3 燃气辐射的影响

前文的结果并没有考虑燃气夹层腔内燃气辐射的影响，仅考虑了夹层腔内的壁面之间辐射换热，而实际工况下发动机内燃气是对热射线具有较强吸收作用的混合气体，而且其自身作为辐射参与性介质也会对周围包裹壁面产生辐射热流。由于实际的燃气组分和热辐射物性十分复杂，本文仅参考文献[17]中物性数据结合加权灰气体模型对燃气辐射作用进行简单评估，旨在比较考虑气体辐射和不考虑气体辐射作用时燃气夹层腔冷侧壁面温度、换热系数分布以及腔内燃气温度的变化。

图 9 给出了在该壁面发射率为 0.8 条件下考虑夹层内燃气辐射和仅考虑夹层之间壁面辐射换热的壁面温度分布云图。由图可知，考虑燃气辐射时该壁面的整体温度分布要高于不考虑燃气辐射的工况，这是因为腔室夹层内的燃气作为参与性介质对壁面也有一定的辐射传热贡献量。特别地，燃气辐射使得中半径区域壁面的高温范围有所扩大。

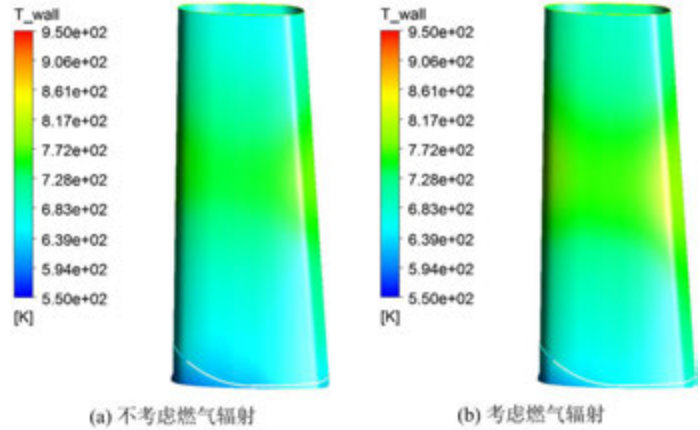


图 9 壁面温度对比($\varepsilon=0.8$)

图 10 比较了考虑及不考虑燃气辐射时，燃气夹层腔内中截面的温度分布云图。由图

可知，考虑燃气辐射时，腔室内的燃气温度整体有所升高，并且温度分布有所均匀。这是因为燃气参与辐射换热而吸收了一定的辐射能，这部分能量可视为源项，使其温度升高。此外，燃气介质之间也相互进行辐射热交换，高温燃气区域向低温燃气区域发射辐射能，而低温燃气区域吸收这部分辐射能，故这种介质之间辐射热交换的作用一定程度上“拉平”了内部的温度分布。

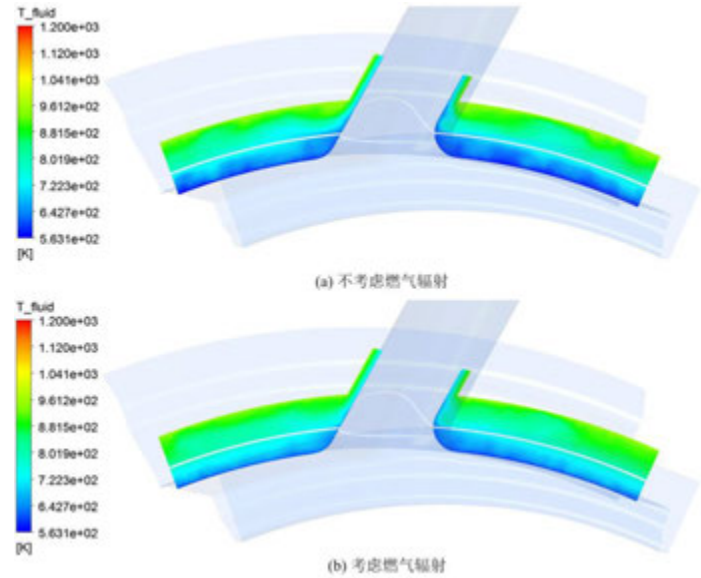


图 10 燃气腔内气流截面温度对比($\epsilon=0.8$)

为评估考虑燃气辐射后壁面对流换热系数的相对变化情况，图 11 对比了考虑及不考虑燃气辐射时壁面换热系数分布曲线。由图可知，夹层腔内的燃气辐射因对壁面施加了额外的辐射热流密度，故增加了壁面与气流之间的对流换热强度，整体上的平均换热系数相对仅考虑壁面辐射的工况提升了约 19.5%。综上分析，在夹层腔内有燃气漏入的情况下，仅考虑壁面之间辐射换热，很可能低估了承力框架热侧壁面所受到的热载荷。本质上的原因，一方面体现在没有考虑燃气介质本身吸收辐射热而温度有所提升，另一方面体现在没有考虑燃气介质对冷侧壁面的额外辐射加热作用。

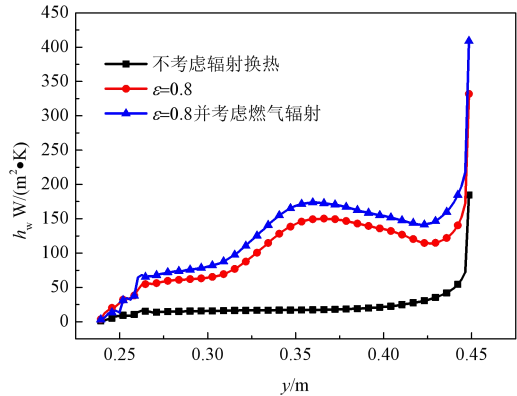


图 11 壁面换热系数分布对比($\epsilon=0.8$)

3.4 热辐射的综合分析

为综合分析辐射热效应的影响，引入综合冷却效率 φ ，该参数表达式定义为

$$\varphi = \frac{T_g - T_b}{T_g - T_c} \quad (1)$$

其中， T_g 为漏入的高温燃气温度， T_b 为燃气域冷侧壁面温度， T_c 为空气系统通入冷却气温度。

在稳态传热条件下，可认为高温燃气侧经过一定厚度的内部支架板向低温冷气通道内传递的热流值恒定。如图 12 所示，综合冷却热效率 φ 依据传热学教材中热阻的概念，表达为下式

$$\varphi = \frac{\frac{d_g}{Nu_g \lambda_g}}{\frac{d_g}{Nu_g \lambda_g} + \frac{\delta_m}{\lambda_m} + \frac{d_c}{Nu_c \lambda_c}} \quad (2)$$

其中， T_m 为冷气通道热侧壁面的温度， d_g 和 d_c 分别为高温燃气域和低温空气系统域对应的当量直径， δ_m 为内部支架板的厚度； Nu_g 为燃气侧对应的努塞尔数， Nu_c 为冷却气侧对应的努塞尔数； λ_g 和 λ_c 分别为燃气和冷气的导热系数， λ_m 为内部支架板的导热系数。

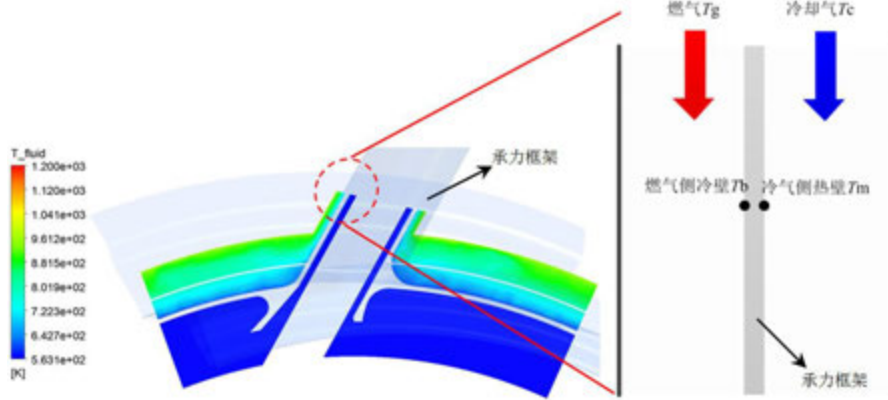


图 12 双夹层冷却通道热阻分析

当考虑热辐射时，燃气侧冷壁表面会在对流换热热流密度 q_c 的基础上产生附加辐射热流密度 q_r ，此时，综合冷却热效率 φ 的表达式变为

$$\varphi = \frac{\frac{d_g}{Nu_g \lambda_g}}{\frac{d_g}{Nu_g \lambda_g} + \frac{q_c}{q_c} \left(\frac{\delta_m}{\lambda_m} + \frac{d_c}{Nu_c \lambda_c} \right) + \frac{q_r}{q_c} \left(\frac{\delta_m}{\lambda_m} + \frac{d_c}{Nu_c \lambda_c} \right)} \quad (3)$$

从上式中可看出，当燃气侧冷壁受到高温外壁面和燃气的共同辐射作用而产生附加辐射热流密度 q_r 时，综合冷却热效率 φ 的数值将有所减小，而减小的程度取决于辐射热

流密度和对流换热热流密度的两者比值 q_r/q_c ，即辐射热流密度的占比越大，综合冷却热效率 ϕ 的数值就越小。

选取不考虑辐射换热的算例、仅考虑壁面间辐射换热的算例和既考虑壁面间辐射换热又考虑燃气辐射算例就热辐射对 ϕ 值的影响进行讨论，得到了壁面上沿径向高度上的综合冷却效率分布曲线，如图 13 所示。不考虑热辐射作用时，冷却气流路对承力框架的冷却效果较好，整体平均冷却效率在 0.92 左右，并即使在初始进口区域也可以达到 0.6 以上；而考虑热辐射作用后，由于总热流的增加，整体综合冷却效率大幅度下降，其中仅考虑壁面辐射的整体平均冷却效率为 0.36，同时考虑燃气辐射的整体平均热效率为 0.34。可见考虑热辐射作用后，冷却气流路对承力框架的冷却效果已变得较差，尤其是处于低压涡轮出口燃气冲刷核心的中半径区域， ϕ 值已低至 0.2 上下。故在试验和设计过程中应重点关注此部分区域的热载荷及热应力变化情况，必要时可采用热防护措施对此区域进行一定程度的辐射加热屏蔽。

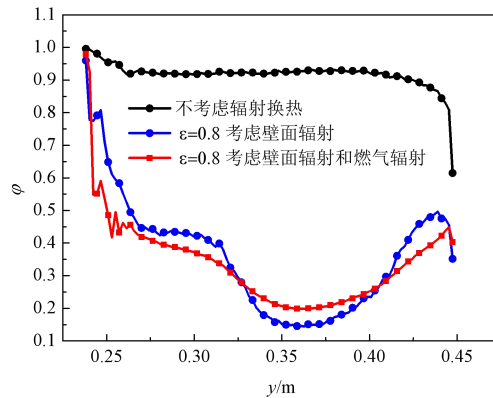


图 13 考虑及不考虑辐射换热时综合冷却效率分布

4 结 论

本文针对发动机涡轮后机匣开展了流-固热耦合模拟，通过讨论考虑及不考虑热辐射的内部流场、壁面换热特性和综合冷却热效率等参数，分析了壁面发射率和燃气辐射等因素对承力框架壁面的传热特性和冷却性能的影响。结果表明：

1)后机匣内燃气侧与冷气侧的核心换热区域为高半径处的双夹层通道，燃气夹层腔冷侧壁面换热系数呈现出进口区域受流动入口段影响极高，中部区域受燃气冲刷的辐射加热作用出现局部极值的分布特点；

2)不考虑热辐射会引起承力框架热侧壁面换热特性预测的显著偏差，并且随着发射率的增大，偏差急剧加大。在发射率为 0.8 时，考虑辐射换热的承力框架热侧壁面整体平均换热系数已达到不考虑辐射换热工况的 4.8 倍；

3)考虑燃气辐射时，燃气夹层腔内的燃气介质会相对仅考虑壁面辐射的工况额外施加给承力框架热侧壁面约 10kW/m^2 的辐射热流密度，并且燃气介质因相互之间进行辐射热交换，内部温度分布更趋于均匀化；

4)通过引入综合热效率参数并结合双夹层通道热阻分析模型，分析表明考虑热辐射

作用后的综合冷却热效率会有所降低, 并且降低程度取决于辐射热流密度和对流换热热流密度的两者比值。在发射率为 0.8, 考虑热辐射时, 承力框架中半径区域热侧的综合冷却热效率已低至 0.2 以下, 故必要时应对该区域采用热辐射屏蔽措施。

参考文献

- [1] 庄来杰, 丁小飞, 马斯博. 涡轮后机匣支点弹性支撑结构优化研究. 航空科学技术, 2019, 30(10): 41-44.
- [2] 龚梦贤, 古远新. 涡轮后机匣应力分析. 燃气涡轮试验与研究, 1995, 16(3): 29-31.
- [3] 高志坤, 迟庆新, 卜嘉利. 某涡轮后机匣裂纹失效机理分析. 航空发动机, 2018, 44(6): 6-10.
- [4] 张井山, 毛军逵, 李毅等. 高压涡轮主动间隙控制机匣内部换热特性试验. 航空动力学报, 2014, 29(2): 298-304.
- [5] 何康, 毛军逵, 夏木云等. 带横流非均匀冲击/气膜复合冷却特性试验研究. 南京航空航天大学学报, 2017, 49(3): 376-381.
- [6] 王鹏飞, 曾军, 李天禄等. 高压涡轮主动间隙热控制系统机匣传热特性试验. 航空动力学报, 2018, 33(1): 165-173.
- [7] 刘远见, 毛军逵, 江华等. 高压涡轮机匣加强肋表面换热特性试验. 航空动力学报, 2017, 32(11): 2619-2628.
- [8] 张书华, 张丽, 朱惠人等. 涡轮机匣换热实验. 航空动力学报, 2011, 26(5): 1011-1016.
- [9] 冯亚辉, 刘火星. 涡轮后机匣流场性能实验研究. 工程热物理学报, 2017, 38(5): 941-949.
- [10] 乔加飞. 对转涡轮气动优化设计及其热斑效应的研究: [学位论文]. 北京: 工程热物理研究所, 2012.
- [11] 王天壹, 宣益民. 热辐射对气膜冷却叶片冷却性能影响. 航空动力学报, 2018, 33(8): 1801-1810.
- [12] 楚化强, 冯艳, 曹文健. 灰气体加权和辐射模型综合评估及分析. 物理学报, 2017, 66(9): 094207.
- [13] Wang Z H, Dong S K, He Z H. Numerical analysis of radiative heat transfer in an inhomogeneous and non-isothermal combustion system considering H₂O/CO₂/CO and soot. International Journal of Numerical Methods for Heat & Fluid Flow, 2017, 27(9): 1967-1985.
- [14] Denison M K, Webb B W. A spectral line-based weighted-sum-of-gray-gases model for arbitrary RTE solvers. Transactions of the ASME, 1993, 115: 1004-1012.
- [15] Menter F R. Two-equation eddy-viscosity turbulence models for engineering applications. AIAA Journal, 1994, 32(8): 1598-1605.
- [16] Zhu Q B, Xuan Y M. Performance analysis of a volumetric receiver composed of packed shaped particles with spectrally dependent emissivity. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2018, 122: 421-431.
- [17] Alexis C, Pierre V. The total emissivities of high-temperature flames. Combustion and Flame, 1983, 49: 101-108.

基于吸收光谱成像的激光阵列优化研究

刘梓煊, 杨力, 牛志田, 高包海, 任亚涛, 齐宏

(哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001)

(Tel: 0451-86412638, Email: qihong@hit.edu.cn)

摘要: 发动机燃烧器的温度场和浓度场探测对提高燃烧效率和保障安全具有重大意义。基于层析吸收光谱技术在发动机燃烧器领域有广泛研究, 如何优化其光路布置以获得更优的重构效果尤为重要。本文建立基于层析吸收光谱的火焰参数场重建模型, 开发了探测光路排布方式的优化方法。针对非轴对称火焰, 采用模拟退火算法和哈里斯鹰算法对不同光束数量下的光路排布进行优化。结果表明: 优化后的光路排布的成像误差显著低于传统的规则光路排布, 提高了探测质量。此外, 哈里斯鹰算法在优化结果和计算效率都要优于模拟退火算法。

关键词: TDLAS 技术; 光路优化; 高温火焰; 层析成像

0 引言

发动机内部燃烧流动特性的检测与评价成为当前航空发动机研究的热点, 对燃烧室内流动进行高精度、高速度的测量, 对航空航天、火电、环境监测等领域具有重要意义^[1]。可调谐半导体激光吸收光谱技术 (Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy, TDLAS) 是一种非接触式燃烧诊断测量技术, 其广泛应用在环境监测^[2]、痕量分析^[3]、燃烧诊断^[4]和等离子体诊断^[5]等领域。TDLAS 技术测量原理和方法形成于上个世纪, 在本世纪时得到广泛的使用。TDLAS 技术的快速发展离不开以下几个因素: 光通讯及光电子技术发展、逐步完善的光谱数据库、测试技术的发展。光通讯及光电子技术的发展解决了激光源、激光探测以及多路激光的合束和分解问题。逐步完善的光谱数据库为吸收谱线的选择和光谱数据的反演提供了强有力的工具, 测试技术的发展解决了多通道、高精度数据采集和实时处理的问题。同时, TDLAS 技术还具有结构紧凑, 数据处理速度快以及多个变量数据同时在线检测等优点。

在实际的燃烧过程中, 燃烧器件的空间限制了光束布置的数量, 仅允许有限的光束访问。在这种有限的空间采样情况下, 优化光束布置以实现较为准确的重建非常重要^[6]。在气体分布二维重建中, 传统采用平行光束或者扇形光束的投影方式, 投影角度、光线数目等因素直接影响了重建结果的质量。在实际的燃烧装置中, 由于空间有限, 很难安装许多光学传感器。为了优化燃烧系统中的性能或最小化传感器, 研究人员在断层重建中需要选择传感器的最佳分布方式。通过激光吸收层析成像选择平行、扇形或不规则且稀疏的光束排列。扇形光束布置节省了发射器的成本, 但重建图像的角部造成失真。不规则光束布置使用优化策略来减少光束的数量, 对提升测量精度显得尤为重要。

李宁等^[8]对 ART 中松弛因子进行了修正,提出了修正的自适应代数迭代法,有效提高了重建结果的精确度。Hansen 等^[7]针对代数迭代算法和联合代数迭代算法详细讨论了松弛因子、迭代次数对重建结果的影响,给出了相应的停止法则,同时在迭代中引入了非负的限制条件,有效减少了重建结果误差。Matthew 等^[9]设计了一种新的光路布置算法,研究系数矩阵的数学属性如何与衰减数据的信息含量相关,进而形成了波束布置设计算法的基础,该算法最大限度地减少了对关于浓度分布的附加假设信息的依赖。当应用于模拟激光吸收层析成像实验时,与该文献中的其他光束布置相比,优化的光束布置显示出更精确的重建。宋俊玲等^[10]研究了平行光束和扇形光束投影时网格数目和投影光线数目的关系,提出了虚拟光线方法,可以有效提高重建结果质量。此外,针对扇形光束投影,研究了光线分布的优化策略。Xin 等^[11]研究了燃烧诊断中断层重建的秩亏问题,将调节方程的权重随穿过网格单元的射线数而修正。提出了一种新的调节方法,在新的调节方法中,考虑了相邻网格值以及穿过网格单元的光线数量的影响。数值模拟结果表明,新的调整方法抑制了无光线交叉网格的重建误差,并成功地抑制了四个投影角的角失真。通过数值研究检验了权重系数和平滑因子对重建的影响。最后,燃烧实验表明,新的调节方法可以降低重建误差,特别是在非射线交叉条件下。上述等人都为提高温度探测质量而对光路排布方式有所研究,但是其光路排布方式都不是最优的,优化程度有待提高,本文利用模拟退火算法和哈里斯鹰算法对光路排布优化进行了进一步研究。

燃烧诊断方法的本质都是求解反问题,即基于观测数据来反解物理系统参数的过程。反问题也是最优化问题,在内燃机和燃气轮机这种实际的燃烧装置中,其空间限制了光束布置的数量。为了优化燃烧系统的性能并且减少传感器数量,在断层重建中选择传感器的最佳分布方式对提高温度成像质量具有重要的意义。本文先建立了基于 TDLAS 的温度场重建技术,而后利用模拟退火算法和哈里斯鹰算法对光路排布优化。

1 线性层析火焰成像测量模型

基于 TDLAS 与 CT 相融合的层析吸收谱 (TAS) 技术,通过在多个光路上采集到的光谱测量信息,以测量信号为输入量,通过反问题求解,得到了被测区域在二维分布上的温度与浓度信息,测量区域如图 1 所示。沿着射线进行视在光线法测量,整个测量谱线的积分吸光度可以写成离散化表达式

$$A_{\nu,j} = \sum_{i=1}^N [PS(T)X]_{\nu,j} L_{i,j} = \sum_{i=1}^N f_{\nu,j} L_{i,j} \quad (1)$$

式中, $A_{\nu,j}$ 代表第 j 条频率为 ν 的激光在穿过被测区域后所得到的积分吸光度, N 是网格点的总数 ($j=1,2,\dots,N$, $N=n^2$), 根据层析成像理论, 在两个独立谱线的波长下计算各网格的吸收系数 $f_{\nu,j}$ 包含谱线强度 $S_{\nu,j}(T)$, 待测物质 X 的气体摩尔分数以及总压参数 P , 从而推断出待测组分的气体温度和浓度, $L_{i,j}$ 是射线 i 穿过网格点 j 的长度, 但这个长度只与角度和位置有关。当投影光线总数为 M 时, 可表示为

$$\begin{cases} L_{11}f_1 + L_{12}f_2 + \dots + L_{1N}f_N = A_1 \\ L_{21}f_1 + L_{22}f_2 + \dots + L_{2N}f_N = A_2 \\ \vdots \\ L_{M1}f_1 + L_{M2}f_2 + \dots + L_{MN}f_N = A_M \end{cases} \quad (2)$$

式中, A_M 代表 M 条光束在经过待测区域后经过测量所得到的积分吸光度矩阵, M 是矩

阵的维度； L_{MN} 代表了被测区域的投影系数矩阵，其行数与列数分别表示网格划分的数量与探测光束的数量，在实验过程中，其数值可通过激光二极管与探测装置的相对关系而得到； f_N 即吸光度系数矩阵，是需要求解的物理量，在计算得到吸光度系数矩阵后，若已知待测场的温度，则可以计算得到待测区域的浓度，实现对待测区域的二维温度浓度测量。

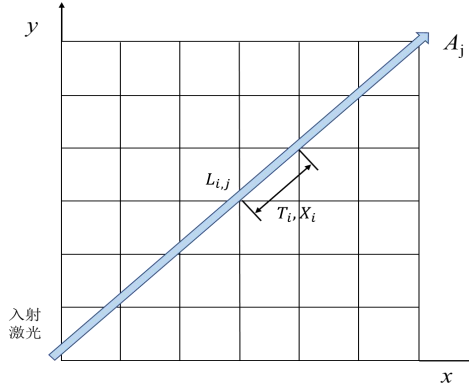


图1 测量区域示意图

在实际应用中，被测介质温度、浓度分布常为未知，这使其成为一个非线性的反演问题，很难直接求解。为实现温度和组分浓度的协同测量，将“双线比值法”与分布式光纤传感技术相结合，对两条不同的吸收谱线建立方程组

$$\begin{cases} \mathbf{A}_{J,V_1} = \mathbf{f}_{J,V_1} \mathbf{L}_{J,V_1} \\ \mathbf{A}_{J,V_2} = \mathbf{f}_{J,V_2} \mathbf{L}_{J,V_2} \end{cases} \quad (3)$$

线强函数 $S_i(T)$ 的物理含义是吸收跃迁线对特定频率 ν 的激光在一定条件下吸收强弱描述，线强函数随温度变化，可由下式表示^[12]

$$S_i(T) = S(T_0) \frac{Q(T_0)}{Q(T)} \frac{T_0}{T} \exp \left[-\frac{hcE''}{k} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] \frac{1 - \exp \left(-\frac{hcv_0}{kT} \right)}{1 - \exp \left(-\frac{hcv_0}{kT_0} \right)} \quad (4)$$

温度可以从测量到的两条不同谱线的积分吸光度比值推算出来。由于两个积分吸光度是在压强和路径长度和组分浓度相同的情况下得到的，因此这两个积分之比很容易简化为线强度之比^[13]

$$R(T) = \frac{A_1}{A_2} = \frac{\int PLXS_1(T) \Phi_{\nu_1} d\nu}{\int PLXS_2(T) \Phi_{\nu_2} d\nu} = \frac{S_1(T_0)}{S_2(T_0)} \exp \left[-\frac{hc}{k} (E_2'' - E_1'') \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] \quad (5)$$

测量组分温度 T 可由两条低态跃迁能不同吸收谱线得到，温度 T 关系式如下

$$T = \frac{\frac{hc}{k} (E_2'' - E_1'')}{\ln \left[\frac{A_1}{A_2} \right] + \ln \left[\frac{S_2(T_0)}{S_1(T_0)} \right] + \frac{hc}{k} \frac{(E_2'' - E_1'')}{T_0}} \quad (6)$$

在对组分温度 T 进行测量后，可以根据已有数据计算得到组分浓度，如下式所示

$$X_i = \frac{A_i}{PS_{v_i}(T)L} \quad (7)$$

2 光路优化模型

2.1 模拟退火算法

模拟退火算法（SA）最早由 Metropolis^[16]提出，以固态物质退火过程为切入点，以一般组合最优化问题为研究对象。模拟退火算法是一种普适性较强的优化算法，在迭代阶段，模拟退火算法按照蒙特卡罗算法的迭代解策略，使求解过程具有一定概率跳出局部最优解，从而获得全局最优解。它的物理退火过程包括三个步骤：

（1）加热步骤：这样做的目的是为了加强颗粒的热运动，从而使它们从平衡状态中脱离出来。当温度高到一定程度，固体就会融化成液态，这样就消除了系统中原有的不均匀性。

（2）等温步骤：在温度恒定的情况下，系统状态随自由能的变化而变化，在自由能最小值时，系统达到平衡态。

（3）冷却步骤：减慢粒子的热运动，降低系统能量，获得晶体结构。

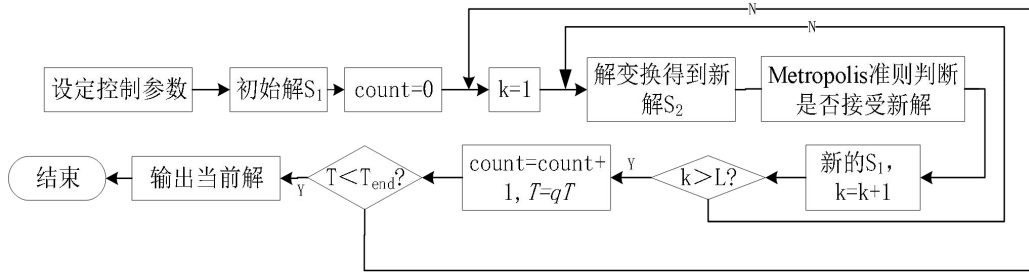


图2 模拟退火算法求解流程图

采用模拟退火算法时，需设定降温速率 q ，初始温度 T_0 ，终端温度 T_{end} ，链长 L 等主要控制参数。它的控制核心是 Metropolis 准则，如果目标优化函数是 $f(S)$ ，那么当前解的结果是 $f(S_1)$ ，新解结果是 $f(S_2)$ ，结果差值为 $df=f(S_2)-f(S_1)$ ，Metropolis 准则为

$$P = \begin{cases} 1, \dots, d \cdot df < 0 \\ \exp\left(-\frac{df}{T}\right), \dots, df \geq 0 \end{cases} \quad (10)$$

如果 $df < 0$ ，则以概率 1 接受新的结果；否则接受新的结果。使用降温速率 q 来进行降温，也就是 $T = qT$ ，如果 T 小于终端温度，那么就会停止迭代并输出当前的状态，否则就会继续迭代。在 CT-TDLAS 二维重构求解中，模拟退火算法直接以温度场 T 、浓度场 X 为未知量来求解，因此其被称作为非线性求解方法。利用模拟退火算法求解函数的极值， $f(x) = (x-2)^2 + 4$ ， $-2 < x < 2$ ，经过 0.08s 算出最小值为 2.0007。这验证了所开发的模拟退火算法的准确性和计算的高效性。

2.2 哈里斯鹰优化算法

哈里斯鹰优化算法(HHO)是 Aaha 等^[17]提出的一种群体优化算法，该算法模拟哈里

斯鹰的捕食行为，主要分为探索阶段、探索与开发转换阶段和开发阶段。

(1) 探索阶段

哈里斯鹰会利用眼睛追踪和发现猎物，但有时候也会看不到猎物。因此，哈里斯鹰会花费几个小时去等待、观察和监视沙漠地带。在算法的计算中，将哈里斯鹰视为每一个可能的方案，在迭代过程中寻找的猎物为该状态下的最优方法或接近最优的方案。哈里斯鹰在领地内随机居住在树上，根据自己的判断随机选择两种策略。如果每一种栖息策略的机会 q 是相等的，那么在 $q < 0.5$ 的情况下，哈里斯鹰会根据其他成员及猎物的位置来选择栖地；当 $q > 0.5$ 的时候，哈里斯鹰会随机选择一颗大树作为自己的栖息地，具体模型为

$$X(t+1) = \begin{cases} X_{rand}(t) - r_1 |X_{rand}(t) - 2r_2 X(t)| & q \geq 0.5 \\ (X_{rabbit}(t) - X_m(t)) - r_3 (LB + r_4 (UB - LB)) & q < 0.5 \end{cases} \quad (11)$$

其中， $X(t+1)$ 即将要进行迭代过程中哈里斯鹰的所处位置， $X_{rabbit}(t)$ 代表了目前状态下最优解位置（即最优方案所处的位置）， $X(t)$ 是本次迭代中哈里斯鹰所处的位置， r_1 、 r_2 、 r_3 、 r_4 和 q 是 $(0, 1)$ 中的随机数， LB 、 UB 代表了算法中需求解的未知数的上边界和下边界， X_{rand} 是本次迭代过程中哈里斯鹰随机选择的地点， $X_m(t)$ 为哈里斯鹰在迭代中位置的平均值。

$$X_m(t) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N X_i(t) \quad (12)$$

(2) 探索到开发的转换

HHO 算法由“探索”向“开发”转变，并根据“猎物”逃逸能量的大小，在“开发”过程中不断切换。当被捕食者逃走时，他们的能量会大大减少。被捕食者的外泄能量是

$$E = 2E_0 \left(1 - \frac{t}{T}\right) \quad (13)$$

其中 E 表示被捕食者（兔子）的外泄能量， T 是迭代过程所需的最大次数， E_0 被捕食者初始具有的能量。初始能量在迭代的过程是随机的，其范围在 $(-1, 1)$ 内。当初始能量的数值从 0 下降至 -1 时，被捕食者记录当前物理位置，而当初始能量的值从 0 上升到 1 时，兔子开始加强自己的活动状态。总的来说，外泄能量在迭代过程中不断减小。当外泄能量 $|E| \geq 1$ 时，哈里斯鹰执行全局搜索确定兔子所在的坐标，因此，算法在此时进入探索阶段；当 $|E| < 1$ ，算法试图寻找探索阶段解决方案的邻域。总之， $|E| \geq 1$ 进行探索， $|E| < 1$ 进行开发（exploitation）。

(3) 开发阶段

在这一阶段，捕食者会对上一阶段所确定的目标猎物发动袭击。但被捕食者通常都会设法逃走。因此，在现实环境中，可能会产生不同类型的追逐行为。根据哈里斯鹰捕食策略的不同和兔子的行为模式，提出了四种模拟捕食阶段的可能策略。

被捕猎者总想逃离危险。设 r 为被捕食者在突然袭击前逃跑的几率，成功与失败的几率均为对半开，当 $r = 0.5$ 时，代表逃跑失败。不管被捕食者做什么，哈里斯鹰总是用强硬的或温和的包围的方式抓住它。这就意味着它们会从不同的方向对猎物进行温和或激烈的围攻，这取决于被捕食者的体力。哈里斯鹰在进行捕猎的过程中很聪明，根据已有情况的判断逐步接近猎物的位置，与同伴进行呼应，一同去击杀被捕食者；接着，哈

里斯鹰加强了围攻，这样就可以轻易地捕获精疲力竭的被捕食者。定义参数 E 来建模这一策略，在模型中使得算法能够仿照哈里斯鹰根据情况选择软围攻或硬围攻。当 $E \geq 0.5$ 时，进行软围攻；当 $E < 0.5$ 时，进行硬围攻。

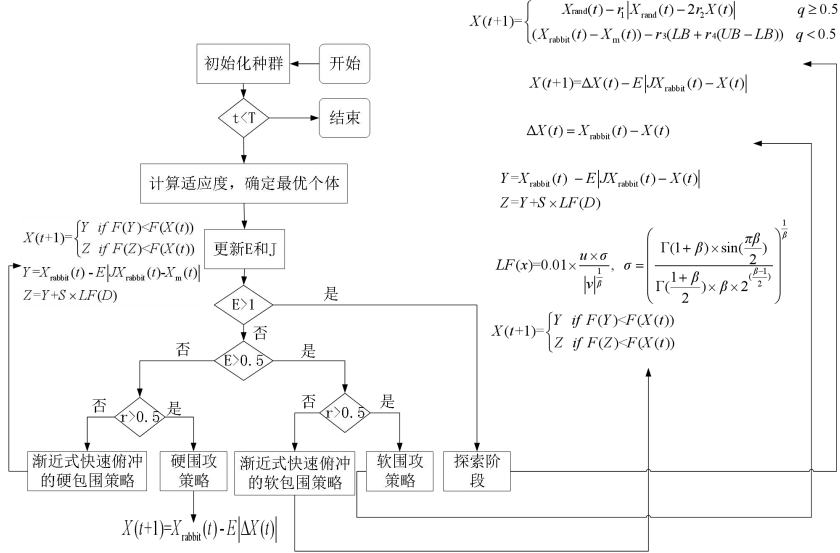


图3 HHO算法流程图

HHO 算法较大的优势是其优化过程不受外部参数影响，能够准确找到目标函数的最优解，基于 HHO 算法进行光路优化的步骤如下：

(1) 定义种群大小、迭代次数、目标函数等初始参数，随机生成变量，并计算初始解的目标值，同时为了算法进行迭代，再次生成随机变量，更新全局最佳解，储存迭代数据进行后期比较。

(2) 进入探索阶段，根据算法的规则更新随机光路坐标位置，根据计算的大小分别对坐标进行扰动；进入开发阶段后，先后进行硬围攻和软围攻，根据计算公式更新每次迭代下的坐标位置和目标值。

(3) 进入渐进式快速俯冲包围策略，根据公式更新目标值以及对应坐标，一次迭代结束后，更新全局最佳解，记录下每代的最佳解，按照指定的迭代次数重复迭代，迭代结束后，得到最优光路和最佳重建精度。

对于整个模型的迭代，在本次模拟中本质是优化模型问题中的回归问题，损失函数 L 为

$$L = \text{MSE} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (T_{ri} - T_{mi})^2 \quad (14)$$

式中， N 为单个温度矩阵一维展开后的网格总数， T_m 优化算法每次迭代计算得到的温度， T_r 为实际设定温度场。利用所开发的哈里斯鹰优化算法对二元函数 $z = x^2 + y^2$ 进行优化求解其最小值，经过 1000 次迭代，模型的适应度函数误差达到 2.91×10^{-20} ，这验证了算法的正确性。

3 随机光路优化结果

在实际的测量过程中，所测量的对象往往是多模态的火焰，因此在进行光路优化的过程中，首先选用多模态双峰火焰作为测量对象对于光路布置进行优化。在优化过程中，

还应考虑优化算法的参数设置，模拟退火算法进行优化光路布置如表 1 所示

表1 模拟退火算法参数设置

初始温度	结束温度	降温速率	链长
100	1	0.9	10

在该参数设置下，对随机生成光路进行一轮优化，每个温度下迭代次数为 10，历经 44 次迭代温度收敛，优化过程终止，火焰形态选择多模态火焰。同时对于 HHO 优化算法，设定迭代次数为 500，种群大小为 20，进行迭代，对于整个光路优化算法的迭代，使用下式所示的均方根差误差作为评价指标

$$RE_T = MSE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (T_{ri} - T_{mi})^2 \quad (15)$$

式中， N 为使用的温度分布函数在每个网格上的温度， T_{mi} 在算法中不同的光路每次迭代得到的温度， T_{ri} 为实际设定温度分布。

3.1 对称测量光路优化

对称测量光路是指在光路生成的过程中，四条对称边均有光束发射。使用模拟退火算法在 20、32、40 条光路布置下优化结果和最佳光路布置如下图 4 所示。经过模拟退火算法优化后的光路图如图 4 所示，可以看到，在经过算法优化后，随机光路穿过网格区域较为均匀，重建效果相对于未经优化的随机光路大大提升。由图 5 可以看出，随机布置光线数量对于重建的效果有着一定影响，在使用 20 条随机光线进行光路布置测量火焰温度场并未较好的反映出多模态火焰的形态，使用 32 条和 40 条光线重建火焰温度场能够较好反应多模态火焰的形态，火焰图像清晰。同时应注意到，对于二维平面而言，32 条光束重建多模态火焰对于其中峰值较高的温度峰重建效果较好，对于另一峰的重建效果则不太理想，二维平面图像上该峰形态较小，仅有尖端突出；40 条光束重建多模态火焰的温度场区域清晰，重建效果是三种不同数量光束中最优的选择。

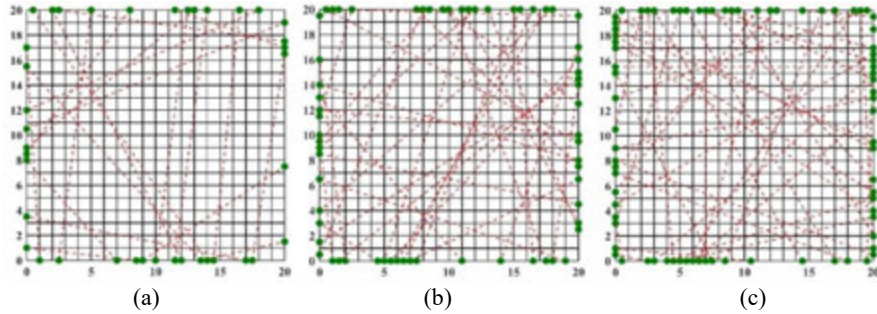


图4 SA优化后得到的光束布置：(a) 20条光束；(b) 32条光束；(c) 40条光束

从表 2 中可以看出，使用 32 条光束和 40 条光束的随机光路布置平均相对误差要小于 20 条光束布置的测量，32 条光束的 40 条光束重建所得火焰温度场误差均小于使用 40 条光束平行光路布置所得误差，可以认为重建温度场质量符合要求。而重建浓度场误差相对较大，光束数量提升对于浓度场的测量精度提升效果不大，总的来说，温度的重建要优于浓度的重建效果，其原因可能在于选取的吸收线在较低温度范围内的吸收线较弱，在反演浓度时边界层会受到外加测量误差的影响，在反演温度时采用两条吸收线强

度之比来消除两条吸收线共同引入的噪声。

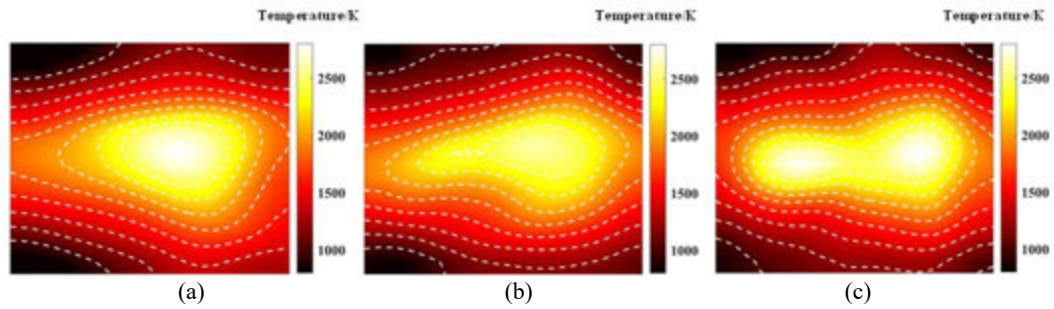


图5 SA优化后得到的重构火焰温度：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

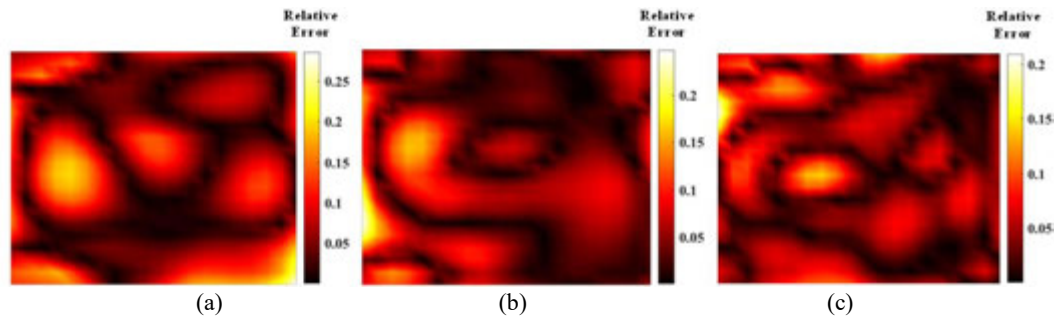


图6 SA优化后得到的重构火焰温度相对误差：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

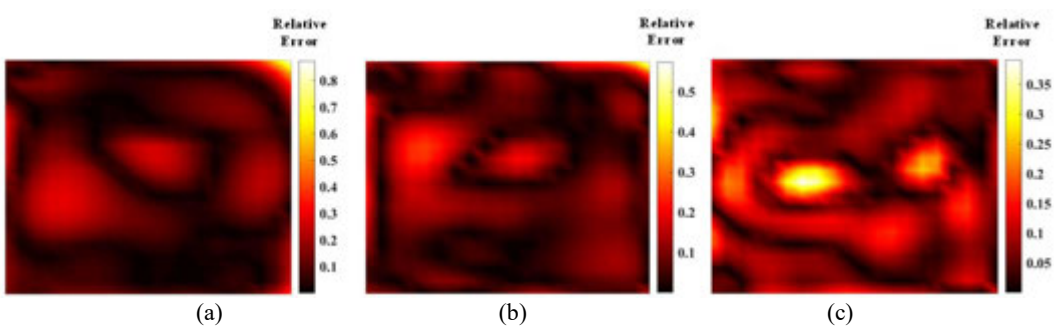


图7 SA优化后得到的重构火焰浓度相对误差：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

表2 SA优化后火焰温度浓度场平均相对误差

误差水平	20条光束	32条光束	40条光束
温度平均相对误差	0.068533	0.050513	0.044168
浓度平均相对误差	0.1046	0.080279	0.081921

由图 6 和 7 可以看到，使用 32 条和 40 条光束在浓度的重建效果上要优于使用 20 条光线重建得到的浓度，重建火焰浓度场的相对误差主要集中在多模态火焰的火焰峰处，在火焰低温以及根部区域，重建质量较高，较大的测量误差主要集中于测量边缘区域，但对于 40 光束布置所测量的浓度场而言，在图像的中心区域出现了较大测量误差，对比图 4，可以看到该区域穿过的光线束较为稀疏，有一些网格甚至没有被光线穿过，造成了较大的测量误差。温度场整体重建效果较理想，误差主要集中在边缘区域和光线稀疏处。总的来说，使用模拟退火算法优化后得到的光路布置能提升重建效果，是否更改算法使用参数或使用新的优化算法后，重建效果能得到进一步提升，有待进一步验证。

对于模拟退火算法的研究以及对于光路优化的应用已经有了相当多的研究，因此利用一种新的优化算法实现对于随机光路的优化布置，算法参数如上文所述布置，设定为迭代次数 500，种群大小为 20 进行计算，优化所得光路布置如图 8 所示。

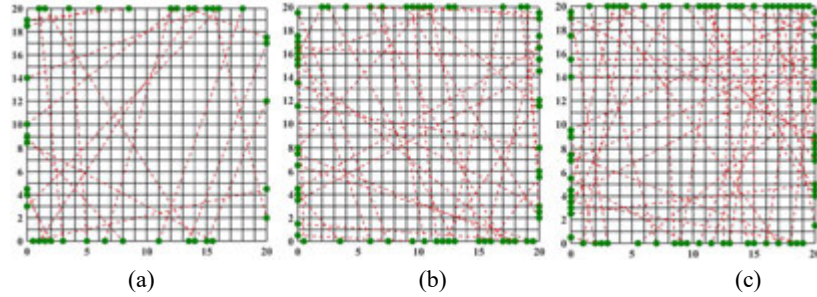


图8 HHO优化后得到的光束布置：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

通过对比 HHO 算法优化后得到的光束布置和经 SA 算法得到的光路布置图，在 20 条光路布置条件下，两者光路分布以及网格中光束的穿过情况大致相同，但对于 32 条和 40 条光路布置而言，经 HHO 算法优化后的随机光路布置没有较大的稀疏性，光线所穿过的网格较为均匀，以上光路分布重建流场温度浓度分布的质量还有待其他信息进行验证分析，根据这三种光路布置对非轴对称火焰的二维温度和浓度场进行了重建。

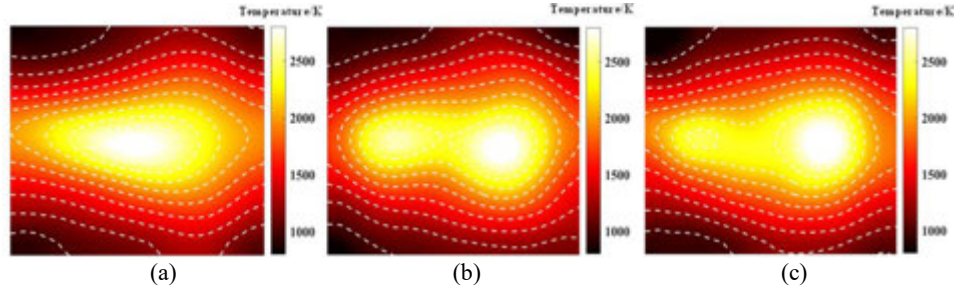


图9 HHO优化后得到的重构火焰温度：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

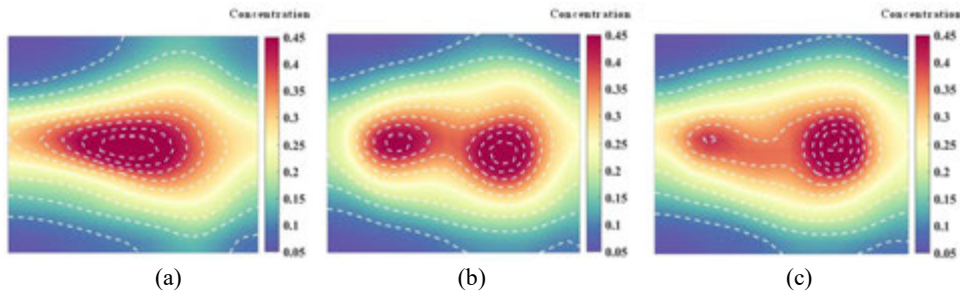


图10 HHO优化后得到的重构火焰浓度：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

从图 9 和 10 可以看出，与模拟退火算法类似，20 条光束布置时的光路进行测量得到的温度与浓度场重建效果质量不佳，未能正确反映火焰形态，浓度场与温度场的测量结果是一致的。相较于模拟退火算法对 32 条光束的优化结果，使用 HHO 算法对光路进行优化布置后的测量精度大大提高，重建的温度与浓度场图像均能够清晰的得到火焰的分布形态，40 条光束优化后的光路布置重建形态较好，误差还有待进一步讨论分析。总的来说，HHO 算法较于模拟退火算法，大大提升了 32 条光束生成的随机光路进行测量的精度，为在受限空间中进行光路布置优化提供了参考。

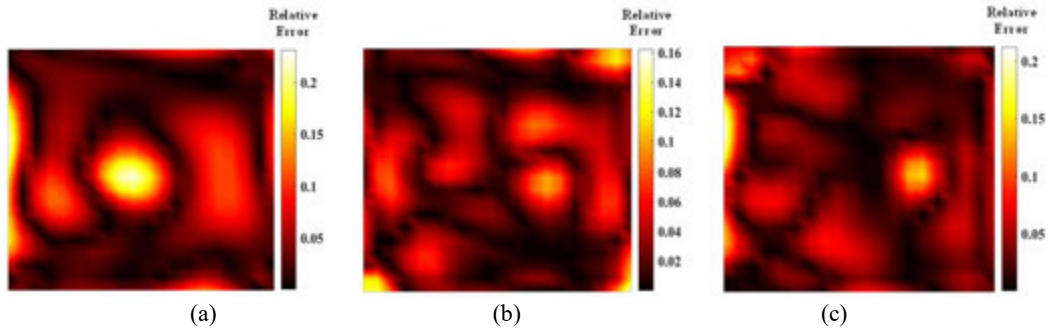


图11 HHO优化后得到的重构火焰温度相对误差: (a)20条光束; (b)32条光束; (c)40条光束

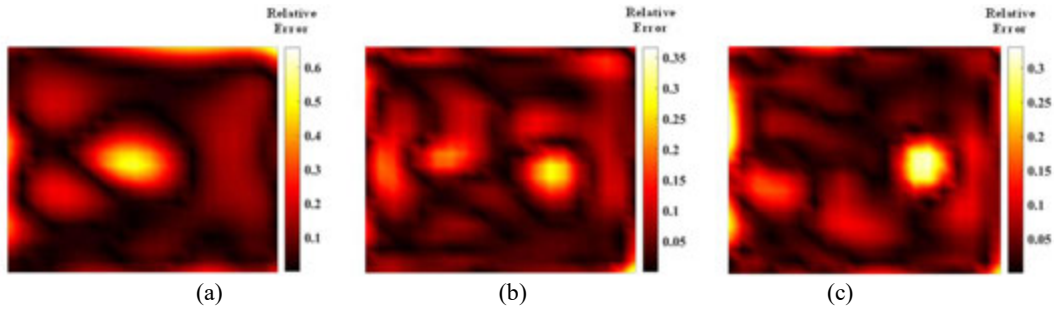


图12 HHO优化后得到的重构浓度相对误差: (a)20条光束; (b)32条光束; (c)40条光束

优化后的光路重建火焰温度场的质量大幅提升,但在光线数为20时,均不能较好地体现多模态火焰形态,分析原因在于有大量网格未被激光所穿过。提升光线数量,其重建效果能够得到大幅提升,光线数为32条使用HHO算法进行优化所得温度场平均相对误差比40条光线平行光路布置测得温度场误差小0.005,当随机光路数提升至40条时,重建效果并未明显提升,可以推断,光线数量达到32条之后成像质量不再改变。HHO算法的成像质量和成像速度均高于SA算法所得光路,验证了新型优化算法的可行性和有效性。同时,测量误差较大的地方均与光路布置的稀疏有关系,通过调整测量区域的大小以及光束分布可以改善成像质量。

表3 SA算法与HHO算法优化效果对比

	SA(20)	HHO(20)	SA(32)	HHO(32)	SA(40)	HHO(40)
温度平均相对误差	0.069	0.049	0.051	0.031	0.044	0.038
浓度平均相对误差	0.105	0.112	0.08	0.064	0.081	0.061

表4 SA算法与HHO算法计算时间对比

	SA(20)	HHO(20)	SA(32)	HHO(32)	SA(40)	HHO(40)
算法运行时间/h	4.393	4.27	4.59	3.967	4.672	4.546

3.2 非对称测量光路优化

实际测量中对称布置受限,只能采用非对称形式。对非对称测量的随机光路同样进行了光路优化布置,在这里,采用了三条边布置激光器和探测器的排列。两种算法优化后的非对称随机光路布置如图13和图14所示,可以看到模拟退火算法优化后的非对称

随机光路在 20 及 32 条光束的光路布置较为均匀，为了提高重建的质量，在迭代过程往往会把优势侧纳入到火焰测量的区域内，而弱势侧很可能是火焰分布较少的区域，在该区域布置较多光线对于测量精度的提升作用不大。在光束布置数量为 40 的时候，随着光线数量的提升，光路的布置开始变得均匀，经 HHO 算法优化后的光路在弱势侧仍有较多的光束存在。

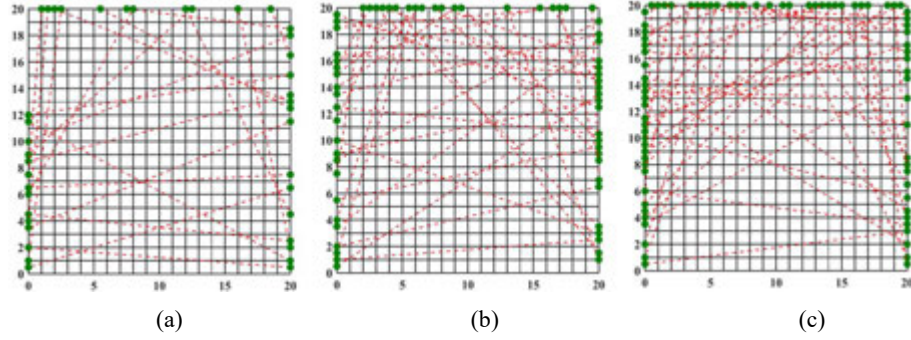


图13 SA优化后得到的非对称光束布置：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

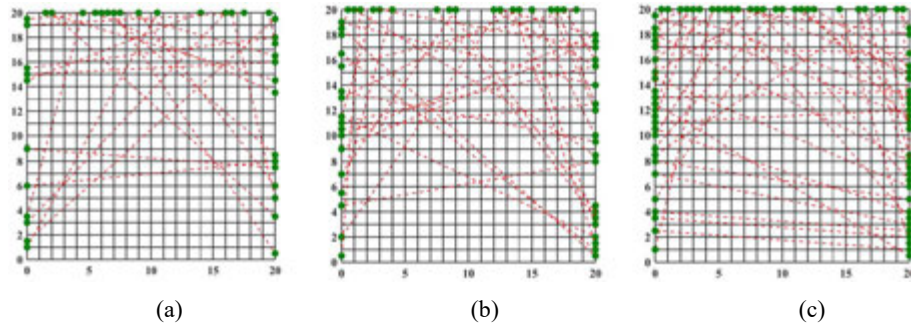


图14 HHO优化后得到的非对称光束布置：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

非对称分布光路布置对火焰测量的精度仍需根据火焰分布分析，非对称随机光路重建火焰温度与浓度场效果如图 15 和图 16 所示，经两种算法优化后的非对称光路进行测量，可以看到两种算法优化后的光路对于双峰温度场优化后的光路测量所得火焰温度场较符合原始火焰场的结构，对于双峰中其中一峰测量效果较好，另一峰未能实现测量；虽然优化后的非对称光路在光路布置图中可以看到在弱势侧出现一定的空白，实际测量中，这些空白处产生了伪影，与实际火焰温度场结构不符。40 条光束经两种算法优化后重建效果基本一致，两种算法优化后的非对称光路在优势侧均展现了较好的测量效果。

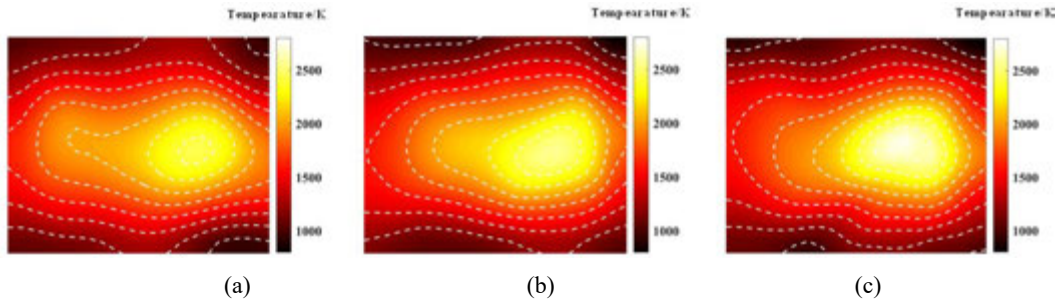


图15 SA优化非对称光路后得到的重构火焰温度：(a) 20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

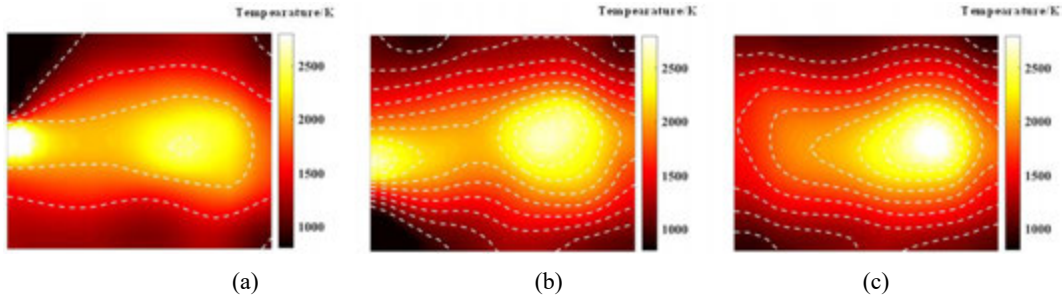


图16 HHO优化非对称光路后得到的重构火焰温度：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

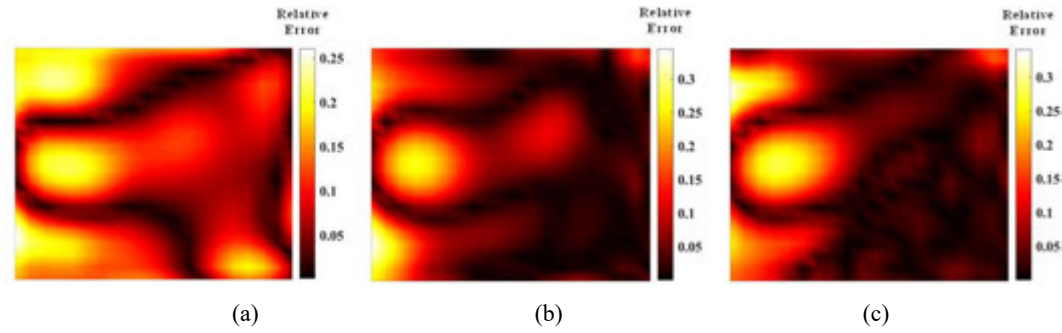


图17 SA优化非对称光路温度平均误差分布：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

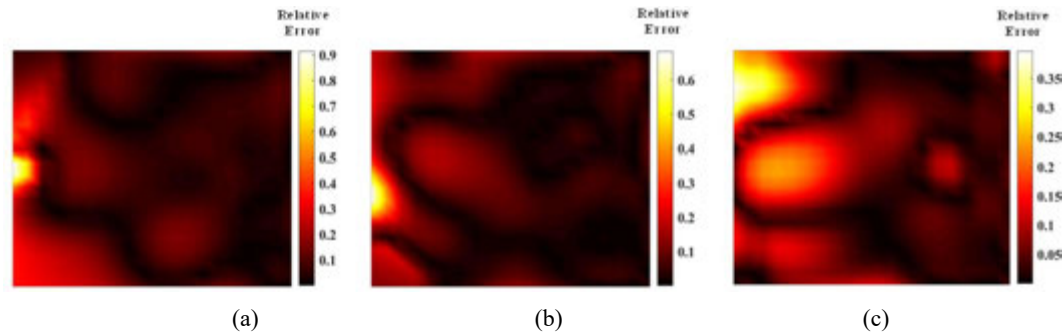


图18 HHO优化非对称光路温度平均误差分布：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

表5 两种算法优化后火焰温度场误差

平均误差水平	20 条光束	32 条光束	40 条光束
SA	0.10265	0.069943	0.070704
HHO	0.098709	0.068818	0.069981

从图 17-18 和表 5 的数据可以看到，非对称光路重建火焰的平均相对误差以及温度场的质量均不及对称光路重建火焰的质量，因此应主要观察在光路优势侧流场的重建质量。经 HHO 优化后的非对称随机光路在光路优势侧重建误差较小，误差较大的地方集中于光路布置的弱势侧，同样光路布置的数量决定着最终误差的大小，在对非对称光路优化的结果上，HHO 优化结果要优于模拟退火算法算法，分析原因，HHO 在进行每次迭代的过程中，进行光路扰动所需时间要少于模拟退火算法算法，对于非对称光路的生成，模拟退火算法的适配度没有 HHO 算法高，对于非对称光路的计算需要更多的计算时间，对于非对称光路，HHO 也适用于进行优化迭代。

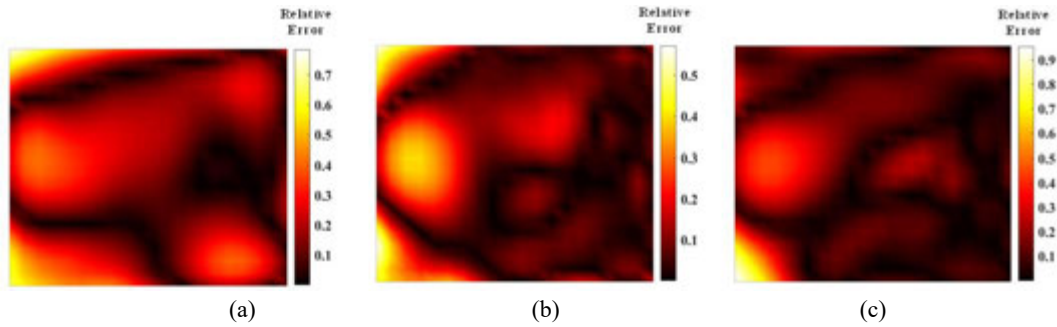


图19 SA优化非对称光路浓度平均误差分布：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

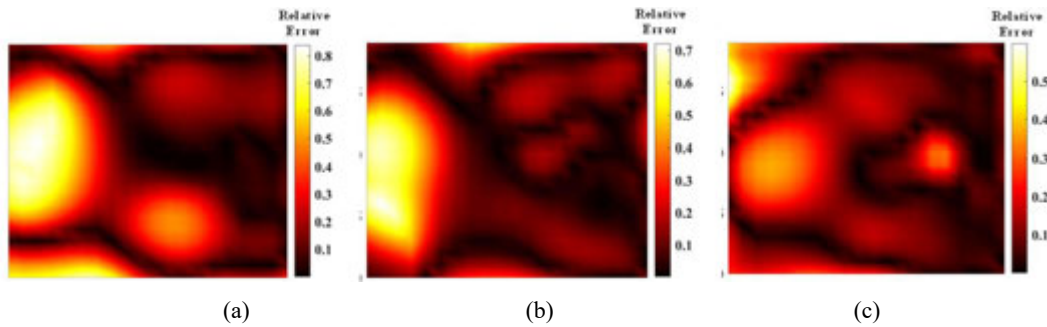


图20 HHO优化非对称光路浓度平均误差分布：(a)20条光束；(b)32条光束；(c)40条光束

表6 两种算法优化后火焰浓度场误差

平均误差水平	20 条光束	32 条光束	40 条光束
SA	0.24795	0.17094	0.13411
HHO	0.19036	0.11742	0.12394

从浓度测量的结果来看，非对称光路进行浓度测量误差结果较大，在应用非对称光路对流场进行测量的过程中，应尽量避免使用非对称光路进行浓度测量。两种优化算法测量火焰浓度场平均误差最小的光束数分别是 32 条和 40 条。对于非对称光路布置，光路布置的稀疏性对重建结果有着很大的影响，在后续进行优化的过程中，应着重考虑如何使光路在测量区域中尽量均匀分布，对于光路的弱势侧，如何通过调节光路生成中的参数让弱势测有更多的光线参与测量，值得深入研究。

4 结论

本文在利用 TDLAS 技术测量火焰温度浓度场的基础上，建立了随机光路的模型，并用该模型建立了随机光路的优化模型，采用了模拟退火算法和哈里斯鹰算法分别对随机光路进行了优化，光路优化对象主要是针对非轴对称火焰。经过研究得出如下结论：

- (1) 本文所建立的基于 TDLAS 技术的探测模型对于非对称火焰温度场和浓度场均具有良好重建效果，成像精度和成像质量较高，验证了模型的正确性和技术的可行性。
- (2) 本文分别利用模拟退火算法和哈里斯鹰算法对 20、32、40 条光束布置下的光路排布方式展开优化。结果表明，优化后的光路排布方式优于规则传统排布方式，且哈里斯鹰算法在优化结果和计算效率都要优于模拟退火算法。
- (3) 非对称测量光路的优化结果表明光路生成优势侧的测量结果具有较强的可用性，且浓度的测量误差大于温度测量误差。

参考文献

- [1] 刘重阳, 张祥, 刘勇. 不稳定燃烧状态多尺度峭度诊断方法[J]. 航空动力学报: 1-12.
- [2] Z. R. Zhang, T. Pang, Y. Yang, et al. Development of a tunable diode laser absorption sensor for online monitoring of industrial gas total emissions based on optical scintillation cross-correlation technique [J]. Optics Express, 2016, 24(10): A943-A955.
- [3] B. Chen, Y. R. Sun, Z. Y. Zhou, et al. Ultrasensitive, self-calibrated cavity ring-down spectrometer for quantitative trace gas analysis [J]. Applied Optics, 2014, 53(32): 7716-7723.
- [4] C. S. Goldenstein, R. M. Spearrin, J. B. Jeffries, et al. Infrared laser absorption sensors for multiple performance parameters in a detonation combustor [J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2015, 35: 3739-3747.
- [5] P. Adánek, J. Olejníček, M. Čada, et al. Time-resolved tunable diode laser absorption spectroscopy of pulsed plasma [J]. Optics Letters, 2013, 38(14): 2428-2430.
- [6] Tao Yu, Bo Tian, and Weiwei Cai, "Development of a beam optimization method for absorption-based tomography," Opt. Express 25, 5982-5999 (2017).
- [7] Gordon R, Bender R, Herman G T. Algebraic reconstruction techniques (ART) for three – dimensional electron microscopy and X-ray photography [J]. Journal of Theoretical Biology, 1970,29 (3) :471 - 481.
- [8] 李宁, 翁春生. 基于多波长激光吸收光谱技术的气体浓度和温度二维分布遗传模拟退火重建研究[J]. 物理学报, 2010, 59(10): 6914-6920.
- [9] Matthew G. Twynstra and Kyle J. Daun, "Laser-absorption tomography beam arrangement optimization using resolution matrices," Appl. Opt. 51, 7059-7068 (2012).
- [10] Song J, Hong Y, Wang G, et al. Algebraic tomographic reconstruction of two - dimensional gas temperature based on tunable diode laser absorption spectroscopy [J]. Applied Physics B, 2013, 112(4): 529-537.
- [11] M. Xin, J. Song, W. Rao, Y. Hong, Y. Jiang. An efficient regulation approach for tomographic reconstruction in combustion diagnostics based on TDLAS method.[J] Chin J Aeronaut, 33 (12) (2020) 3158-3166.
- [12] 孙鹏帅. 基于 TDLAS 技术的燃烧场温度与气体浓度分布重建研究[D]. 中国科学技术大学, 2017.
- [13] 赵靖蓉. 基于 TDLAS 的高温气流温度和速度测量方法研究[D]. 大连理工大学, 2022.
- [14] Yu T, Cai W. Benchmark evaluation of inversion algorithms for tomographic absorption spectroscopy[J]. Applied Optics, Optica Publishing Group, 2017, 56(8): 2183–2194.
- [15] 黄兴. 基于主被动光学探测的发光火焰多物理量场重建[D]. 哈尔滨工业大学, 2019.
- [16] Ingber, L. Simulated annealing: Practice versus theory[J]. Mathematical and Computer Modelling, 1993, 18(11): 29-57.
- [17] Aaha B, Sm C, Hf D, et al. Harris hawks optimization: Algorithm and applications[J]. Future Generation Computer Systems, 2019, 97: 849-872.

基于近场热辐射的串联式智能热控器件

陈琦, 徐德宇, 赵军明

(哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001)

(Tel: 13224516039, Email: jmzhao@hit.edu.cn)

摘要: 为使基于近场热辐射的智能热控器件具备更大等效发射率调节范围, 本文利用遗传算法设计了器件重要结构的尺寸, 并提出了一种两个近场热辐射单元串联的新型智能热控薄膜器件。相较于非串联器件, 串联器件的最大、最小等效发射率都降低, 等效发射率调控范围增大。当 T_H 为 300K 时, 串联器件无外热流时最大可调等效发射率为 0.744, 有外热流时最大可调等效发射率达 0.498。为取得相同的等效发射率, 串联器件的两个调控电压都比非串联器件调控电压大。

关键词: 智能热控, 近场热辐射, 串联设计, 发射率调节。

0 前言

随着航天器的微小型化、载荷热流密度的升高及姿态轨道机动的复杂化, 对航天器热控辐射能力的要求越来越高, 仅靠传统被动热控技术难以满足要求。变发射率智能热控皮肤能灵活应对航天器内热源与外热流的变化。通过反馈机制, 变发射率智能热控皮肤可根据温度和其他控制信号改变其热控性能, 减小航天器设备的温度波动, 保护设备在理想的工作温度范围内工作, 使航天器或内部设备获得一个良好的、稳定的、均匀的温度水平, 也可以降低空间外热流造成的结构、设备热变形的不利影响, 因此成为热控技术发展的重要研究方向。

目前能进行变发射率调控的主动热控薄膜材料或器件主要包括 MEMS 百叶窗、可变形智能表面、微型热开关辐射器、电致变色主动热控薄膜材料以及热致可变发射率热控薄膜材料^[1-6]。微型百叶窗最大等效发射率调节范围为 0.1~0.9^[7], 但存在较大的机械故障风险。类似百叶窗的可变形智能表面理论最大等效发射率差值为 0.8^[8], 但研究未考虑辐射的方向性, 且反复热变形可靠性有待考证。静电开关最大等效发射率差值为 0.74^[9], 但其驱动电压较大。

基于机械原理的变发射率热控器件在航天器上应用时有移动机械部件的功率需求和可靠性风险, 这推动了变发射率材料的发展, 包括电致变色材料和热致变色材料。电致可变发射率涂层利用某些材料的电致变色效应, 在包含电致变色层的多层薄膜材料中, 通过外加直流电场连续、可逆地改变薄膜材料的光学性质, 从而实现太阳能吸收比或红外热发射率的连续调控。国内外目前有多家研究机构开展了电致变色热控器件的研究工作, 主要有美国 Eclipse Energy System 公司研制的基于氧化钨的电致变色薄膜^[10]、美国 Ashwin-Ushas 公司与美国航空航天局合作研发的聚苯胺智能热控涂层^[11]、兰州物理研究所研制的基于氧化钨的全固态电致变色热控薄膜^[12]等。较理想的电致变色热控材料

发射率可以从 0.06 变化到 0.77^[10], 但太空环境产生的静电电压以及带电粒子辐照可能造成其功能不可控, 实际发射率可能达不到理想状态。

热致可变发射率涂层是根据自身的温度高低来改变本身的热光学性质, 结构简单、重量轻、可靠性高, 是最为理想的, 但也是最难实现的。MPB 通信公司以及欧空局开发了一种基于氧化钒的被动薄膜型智能辐射片, 其发射率的动态调节超过 0.45, 质量不超过 100mg/m²^[13]。日本空间和宇宙科学研究所和 NEC 公司研制了两种智能型辐射装置^[14], $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ 在温度低于 280K 时发射率急剧变化, 高温时发射率高。 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 在温度低于 260K 时发射率急剧变化, 低温时发射率低。国内兰州空间技术物理研究所、南京理工大学及上海硅酸盐研究所都进行了陶瓷型智能热控材料的研究, 最高理论值可以达到 0.62^[15]。热致变色涂层发射率调节范围相对较小, 且受相变温度的影响, 应用灵活性较差。

Xu 等^[16]利用近场辐射热流大范围动态调控机制提出了一种新型航天器智能热控皮肤方案, 为航天器热控皮肤设计开辟了一条新途径。该研究表明, 相对于只能随温度被动调节的热致变色器件, 所提出的基于近场辐射的热控皮肤可以通过电压主动控制发射率。相对于同样使用电压控制的电致变色器件, 基于近场辐射的热控皮肤可连续、准确、大范围地调节发射率, 这使其优于部分只能在着色和漂白两种状态之间调节的电致变色器件, 且所设计的热控皮肤外侧是耐空间环境的热控涂层, 空间稳定性较优。

本文在 Xu 等^[16]设计的非串联智能热控薄膜器件基础上优化结构尺寸, 提出基于近场热辐射调控的串联式智能热控薄膜器件。本文首先利用遗传算法计算出限定条件下非串联薄膜器件等效发射率变化范围最大时近场热辐射单元的尺寸, 再根据该优化后的近场热辐射单元结构设计了两个近场热辐射单元串联传热的新型智能薄膜器件, 对比了非串联智能薄膜器件和串联式智能薄膜器件在不同电压下等效发射率的变化, 探讨了温度和外热流对器件等效发射率的影响。

1 智能热控薄膜器件概念

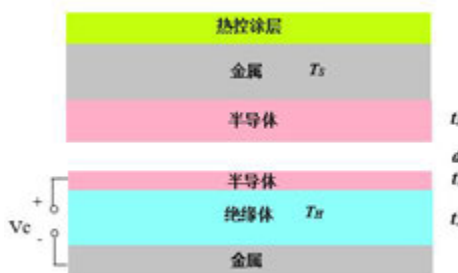


图 1 非串联智能热控薄膜器件原理图

本文提出一种基于近场热辐射调控的串联式智能热控薄膜器件, 近场热辐射单元由金属-绝缘体-半导体复合层、真空层、半导体匹配层、金属层组成, 其中, 金属-绝缘体-半导体复合层可通过电压控制半导体内的载流子密度, 进而改变半导体的介电函数, 从而改变真空两侧薄膜层内的近场热辐射。非串联的智能热控薄膜器件结构见图 1, 其主要由两部分功能模块组成: 近场热辐射单元, 附着于近场热辐射单元外表面的热控涂层。

串联式智能热控薄膜器件结构见图 2，其主要由三部分功能模块组成：近场热辐射单元 1，近场热辐射单元 2，附着于近场热辐射单元 2 外表面的热控涂层。

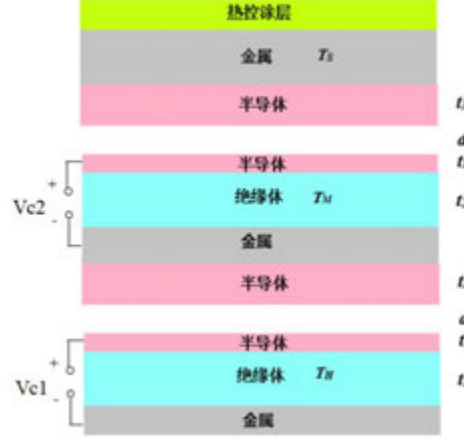


图 2 串联式智能热控薄膜器件原理图

1.1 串联式智能热控薄膜器件传热

假设近场热辐射单元 1 中的金属-绝缘体-半导体复合层温度为 T_H ，近场热辐射单元 1 的半导体匹配层及近场热辐射单元 2 中的金属-绝缘体-半导体复合层温度为 T_M ，近场热辐射单元 2 的半导体匹配层温度为 T_S 。近场热辐射单元 1 的热辐射 q_{near1} 和近场热辐射单元 2 的热辐射 q_{near2} 相等，器件吸收的外热流 q_{ext} 及器件对外的热辐射 q_{out} 之间存在式(2)的关系

$$q_{near1}(T_H, T_M, V_{C1}) = q_{near2}(T_M, T_S, V_{C2}) \quad (1)$$

$$q_{near2}(T_M, T_S, V_{C2}) + q_{ext} = q_{out} \quad (2)$$

为了简化设计，设置 T_H 、 T_M 、 T_S 满足式(3)的关系

$$T_M = \frac{(T_H + T_S)}{2} \quad (3)$$

由于薄膜器件面对太空进行辐射换热，器件对外的热辐射 q_{out} 可由器件最表面热控涂层的发射率 ε 、温度 T_S 和太空温度 T_L 计算，如式(4)

$$q_{out} = \varepsilon \sigma (T_S^4 - T_L^4) \quad (4)$$

q_{out} 也可由智能热控薄膜器件内侧复合层温度 T_H 和器件等效发射率 ε_{eff} 计算，

$$q_{out} = \varepsilon_{eff} \sigma (T_H^4 - T_L^4) \quad (5)$$

根据式(4)和(5)，智能热控薄膜器件等效发射率由式(6)定义：

$$\varepsilon_{eff} = \frac{(T_S^4 - T_L^4)}{(T_H^4 - T_L^4)} \varepsilon \quad (6)$$

1.2 电压对复合层的调控

金属-绝缘体-半导体复合层内的电压可通过泊松方程式(7)求解,

$$\frac{d}{dx} \left(\varepsilon_{dc} \frac{d\psi}{dx} \right) = -\rho(x) \quad (7)$$

其中 ε_{dc} 是材料的静态介电常数; $\rho(x)$ 是材料的电荷密度, 其可由式(8)详细计算

$$\rho(x) = q[N_D - N_A + p(x) - n(x)] \quad (8)$$

其中 N_D 、 N_A 、 p 、 n 分别是施主、受主、空穴和电子的浓度。本文半导体材料为 p 型掺杂硅, N_D 、 N_A 不随电压变化, N_D 和 n 相对于 N_A 、 p 小几个数量级, 可忽略不计, p 与电压的关系为

$$P = N_A \exp\left(\frac{-q\psi}{k_B T}\right) \quad (9)$$

式(9)的边界条件为: 半导体与真空界面的边界电压为 0, 绝缘体与金属界面的边界电压为 $-V_c$ 。

1.3 近场热辐射计算

对于 p 型掺杂硅, 其介电函数可由 Drude 模型近似

$$\varepsilon_{sem} = \varepsilon_{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\Gamma} \quad (10)$$

其中, ω_p 是等离子频率, 可由材料的载流子浓度确定

$$\omega_p = \sqrt{Ne^2 / \varepsilon_0 m^*} \quad (11)$$

金属-绝缘体-半导体复合层和半导体匹配层之间的近场热辐射可根据两侧材料的介电函数和温度计算得到

$$q_{near} = \frac{1}{\pi^2} \int_0^{\infty} d\omega [\Theta(\omega, T_H) - \Theta(\omega, T_S)] \int_0^{\infty} s(\omega, \beta) d\beta \quad (12)$$

其中,

$$\Theta(\omega, T) = \hbar\omega / [\exp(\hbar\omega / k_B T) - 1] \quad (13)$$

$$s(\omega, \beta) = \begin{cases} \frac{\beta(1-\rho_{01}^s)(1-\rho_{02}^s)}{4|1-R_{01}^s R_{02}^s e^{i2\gamma_0 d}|^2} + \frac{\beta(1-\rho_{01}^p)(1-\rho_{02}^p)}{4|1-R_{01}^p R_{02}^p e^{i2\gamma_0 d}|^2}, (\beta < \omega/c) \\ \frac{\beta \operatorname{Im}(R_{01}^s) \operatorname{Im}(R_{02}^s) e^{-2\operatorname{Im}(\gamma_0) d}}{|1-R_{01}^s R_{02}^s e^{-2\operatorname{Im}(\gamma_0) d}|^2} + \frac{\beta \operatorname{Im}(R_{01}^p) \operatorname{Im}(R_{02}^p) e^{-2\operatorname{Im}(\gamma_0) d}}{|1-R_{01}^p R_{02}^p e^{-2\operatorname{Im}(\gamma_0) d}|^2}, (\beta > \omega/c) \end{cases} \quad (14)$$

由于金属-绝缘体-半导体复合层中半导体的载流子浓度梯度式分布，该侧的反射系数可由传输矩阵方法计算得到。

2 智能热控薄膜器件设计与分析

2.1 近场热辐射单元反设计

本文设计的薄膜器件近场热辐射单元金属-绝缘体-半导体复合层中，金属为 Al，绝缘体为 Si_3N_4 ，绝缘体厚度 t_2 为 100nm。半导体为 p 型掺杂硅，无外加电压时其空穴浓度为 $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ，厚度待定。真空层厚度也待定。匹配层半导体为 p 型掺杂硅，空穴浓度为 $1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ，厚度 t_3 为 50nm，匹配层外侧的金属是 Al。金属外侧喷涂 KS-ZT 白漆，其红外发射率为 0.9，太阳光谱吸收比为 0.1，白漆层不参与近场热辐射。

为使设计的薄膜器件具有最优热控性能，需要使得薄膜在电压调控下具有最大的等效发射率差值。式(15)计算电压最小时器件等效发射率与电压最大时器件等效发射率的差值，本文利用 MATLAB 里的遗传算法工具求解满足约束条件下目标函数(15)的最小值，以此获得最优的器件设计，优化流程见图 3。

$$\Delta \varepsilon = \varepsilon_{\text{eff}}^{\text{low}} - \varepsilon_{\text{eff}}^{\text{high}} \quad (15)$$

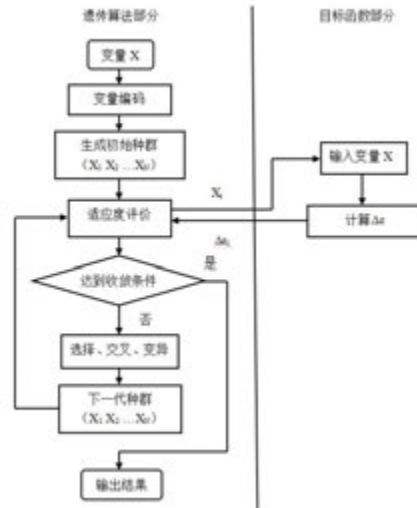


图 3 反设计流程图

反设计薄膜器件时，做如下约束：

(1) 金属-绝缘体-半导体复合层中半导体硅的厚度 t_1 范围为[0nm,100nm]; 真空层厚度 d 的范围为[1nm,100nm];

(2) 金属-绝缘体-半导体中电压最小时, 绝缘体和半导体界面上半导体的载流子浓度不小于 $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, 电压最大时, 绝缘体和半导体界面上半导体的载流子浓度不大于 $1 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ 。

其他参数选用默认值。

优化前, 半导体厚度 t_1 初始值为 10nm、真空层厚度 d 初始值为 30nm, T_H 为 300K 时式(15)得到差值-0.662。经过反设计计算, 假设 T_H 为 300K, 半导体厚度 t_1 为 1.116nm、真空层厚度 d 为 9.408nm 时, 式(15)得到差值-0.689。后文针对该设计尺寸的近场热辐射单元开展非串联式和串联式智能热控薄膜器件等效发射率调控能力详细分析。

2.2 电压对近场热辐射单元的调控

设 T_H 为 310K、 T_M 为 290K, 电压 V_C 分别为-90V、-50V、50V 和 100V 时, 复合层中 p 型硅的空穴浓度分布见图 4。图 4 中横坐标 x_{sem} 是半导体厚度方向位置, 原点是 p 型掺杂硅和 Si_3N_4 界面位置, 纵坐标是 p 型掺杂硅内空穴浓度。当电压为正时, 硅中空穴向硅和 Si_3N_4 界面方向积累, x_{sem} 越小, 空穴浓度越大。当电压为负时, 硅中电子向硅和 Si_3N_4 界面方向积累, 空穴被消耗, x_{sem} 越小, 空穴浓度越小。

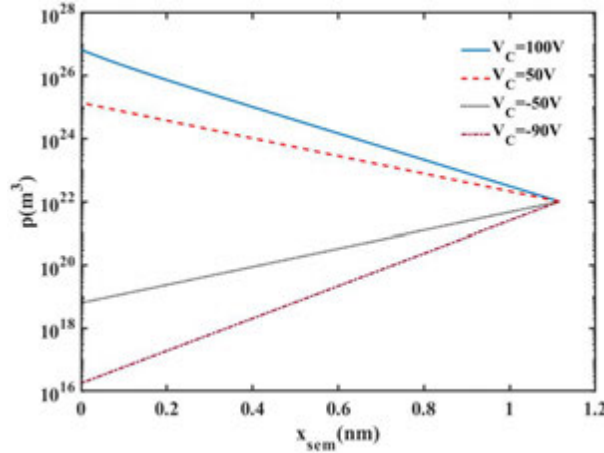


图 4 电压作用下半导体内载流子浓度分布

由于不同电压下, p 型硅中载流子浓度分布不同, 其介电函数相应变化, 从而器件内近场热辐射的热流密度改变。在有电压的情况下, p 型硅中介电函数梯度分布。不同电压控制下, 薄膜器件内近场热辐射产生的光谱热流分布见图 5。由图 5 可见, 电压为正时, 随着电压的减小, 光谱热流密度峰值红移, 同时峰值变小, 总的热流密度减小。这是因为电压为正时, 掺杂硅中载流子浓度较大, 自由载流子与电磁波强耦合, 掺杂硅与真空的界面处及绝缘层与掺杂硅的界面处都产生了表面等离子体激元(SPPs)。电压降低时, 载流子浓度降低, SPPs 在两个界面处共振红移。当电压为-90V 时, 光谱热流密度峰值降低至 $10^{-13}(\text{W/m}^2 \cdot \text{s})$ 的数量级水平, 总的热流密度很小。

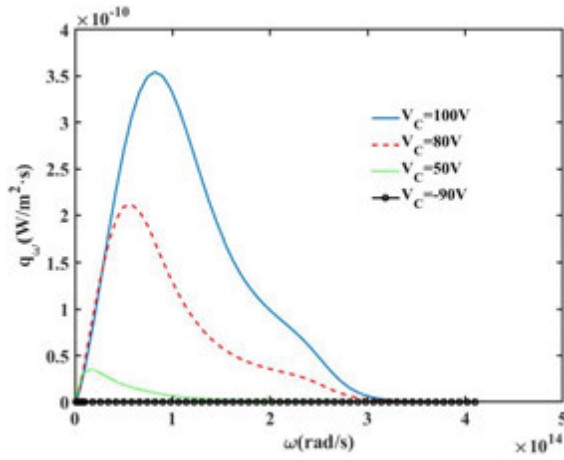


图 5 不同电压作用下的近场热辐射

2.3 非串联智能热控器件调控能力分析

为计算非串联智能热控薄膜的等效发射率，假设 T_H 、 q_{ext} 为定值， T_S 可通过反复迭代求解得到。本文只考虑极端外热流情况，即完全无外热流情况及一直正对日外热流恒定最大情况。

无外热流时不同 T_H 温度下器件等效发射率调控情况见图 6，可见此时器件的等效发射率具有较大的调控范围，且调控范围随着温度的升高而略微降低。当 T_H 为 270K 时，-90V 电压下器件等效发射率为 0.201，100V 电压下为 0.899，变化量为 0.698，当 T_H 为 330K 时，等效发射率变化量仍可达 0.679。当电压小于 -40V 及大于 +50V 时，等效发射率变化较为缓慢，总变化量较小；在 -40V 到 +50V 范围内，等效发射率变化速率较大，总变化量大于 0.59。

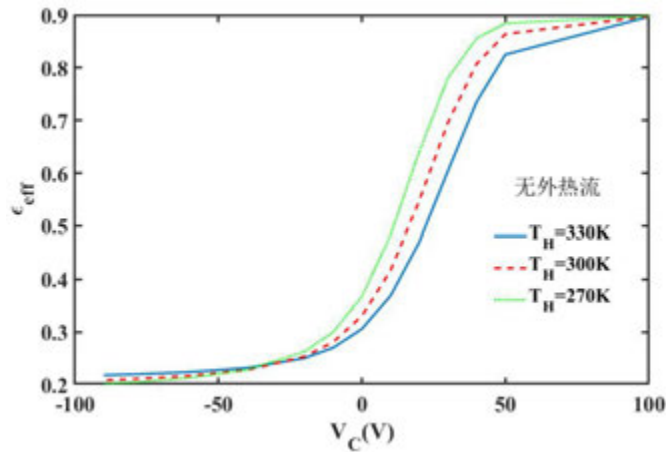


图 6 无外热流时非串联器件等效发射率调控范围

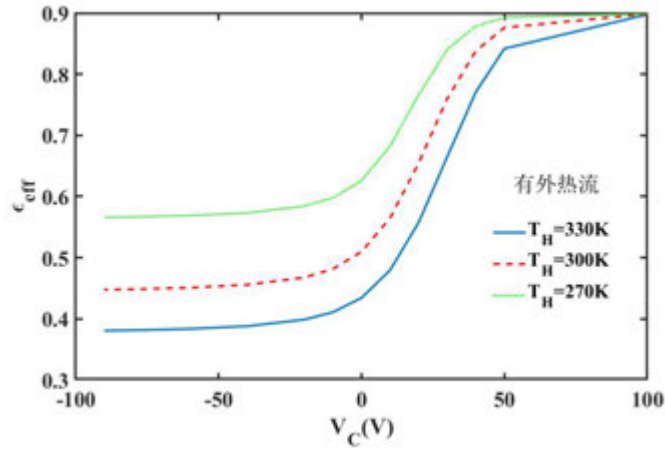


图 7 有外热流时非串联器件等效发射率调控范围

当薄膜器件所在面整轨一直正对日，且太阳常数为最大时，器件吸收的外热流恒定最大，为 141.4w/m^2 ，此时不同 T_H 温度下器件等效发射率调控情况见图 7。对比无外热流情况，虽然外热流最大时器件可达的最大等效发射率变化不大，但最小等效发射率变大，等效发射率调控范围变小。对于 p 型硅组成的薄膜器件，温度 T_H 对器件调控可达的最小等效发射率影响较大，温度 T_H 降低时，器件的最小等效发射率大幅升高，因而器件总的调控范围随着温度的降低而变小。当 T_H 为 270K 时，-90V 时器件等效发射率为 0.566，-90V 到 +100V 电压范围内等效发射率变化量大于 0.33。当 T_H 为 330K 时，-90V 时器件等效发射率为 0.381，等效发射率变化量大于 0.517。与无外热流情况相似，在 -40V 到 +50V 范围内，等效发射率变化速率较大；当电压小于 -40V 及大于 +50V 时，等效发射率变化较为缓慢，总变化量较小。

2.4 串联式智能热控器件调控能力分析

对于串联式智能热控薄膜器件，本文采用中间层温度 T_M 是两侧温度 T_H 、 T_S 平均值的电压控制策略，为求得特定等效发射率对应的调控电压，假设 T_H 、 T_S 、 q_{ext} 为定值， V_{C1} 和 V_{C2} 可通过逆计算得到。同样，只考虑极端外热流情况。

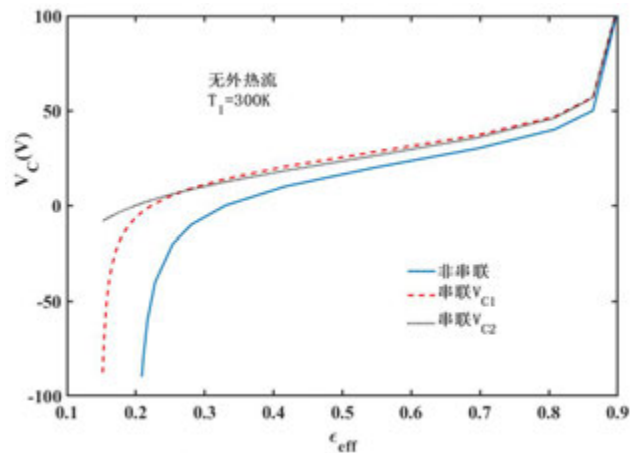


图 8 无外热流时器件等效发射率调控能力对比

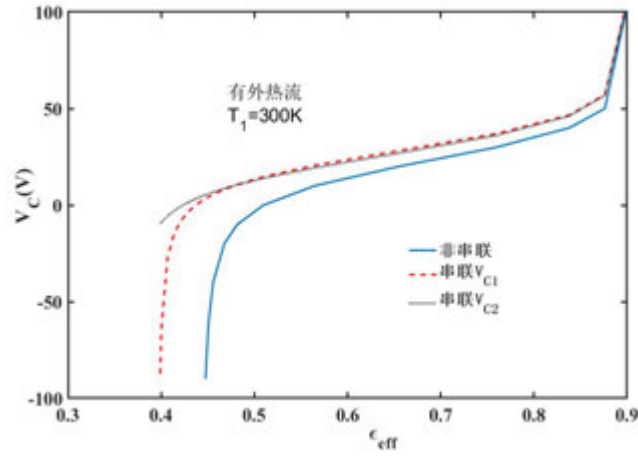


图 9 有外热流时器件等效发射率调控能力对比

图 8~图 9 显示了串联式智能热控薄膜器件和非串联器件等效发射率调控能力对比情况。根据图中所示，当串联式智能热控薄膜器件的两个调控电压均在 $-90\text{V}\sim+100\text{V}$ 范围内时，对比非串联式智能热控薄膜器件，串联式智能热控薄膜器件的最小等效发射率和最大发射率都变小了，且最小等效发射率变化值大于最大发射率变化值，即串联式的器件等效发射率调控范围大于非串联式器件。当 T_H 为 300K 范围内，无外热流时，串联式器件的最小等效发射率降低值为 0.057 ，最大等效发射率降低值为 0.002 ，等效发射率调控范围增大为 0.744 。有外热流时，串联式器件的最小等效发射率降低值为 0.049 ，最大等效发射率降低值为 0.001 ，等效发射率调控范围增大为 0.498 。

无论有无外热流，为得到相同的等效发射率，串联式智能热控薄膜器件的两个近场热辐射单元的电压比非串联器件的电压大。对于无外热流的情况，当等效发射率大于等于 0.42 时，两种形式的器件的电压差相对较小，小于 10.5V ；当等效发射率小于 0.42 时，两种形式的器件的电压差随着等效发射率的减小而迅速增大。有外热流时，串联式智能热控薄膜器件的两个近场热辐射单元的电压变化规律及其与非串联器件电压的对比关系与无外热流情况类似。当等效发射率大于等于 0.57 时，两种形式的器件的电压差相对较小，小于 10.5V ；当等效发射率小于 0.57 时，两种形式的器件的电压差随着等效发射率的减小而迅速增大。

无论有无外热流，当串联器件等效发射率大于非串联器件 -90V 对应的等效发射率时， V_{C1} 和 V_{C2} 差值很小；当串联器件等效发射率小于非串联器件 -90V 对应的等效发射率时，随着等效发射率的减小， V_{C1} 迅速减小至 -90V ， V_{C2} 减小速度相对较为缓慢。

3 结 论

本文利用遗传算法优化设计了智能热控薄膜器件的近场热辐射单元的结构，提出了一种两个近场热辐射单元串联的智能热控薄膜器件。本文采用中间层温度 T_M 是两侧温度 T_H 、 T_S 平均值的电压控制策略，相较于非串联器件，串联器件的最大、最小等效发射率降低，等效发射率调控范围增大。当 T_H 为 300K 时，串联器件无外热流时最大可调等效发射率为 0.744 ，外热流最大时最大可调等效发射率达 0.498 。为取得相同的等效发射

率, 串联器件的两个调控电压都比非串联器件大。当串联器件等效发射率大于非串联器件-90V 对应的等效发射率时, V_{C1} 和 V_{C2} 差值很小; 为取得更小的等效发射率, V_{C1} 迅速减小至-90V, V_{C2} 减小速度相对较为缓慢。

参考文献

- [1] 潘增富. 微小卫星热控关键技术研究. 航天器工程, 2007, 16(2): 6
- [2] Grob L. M., Swanson T. D. Parametric Study of Variable Emissivity Radiator Surfaces. AIP Conference Proceedings, 2000, 504(1): 809-814
- [3] Lang F., Wang H., Zhang S., Liu J., et al. Review on Variable Emissivity Materials and Devices Based on Smart Chromism. International Journal of Thermophysics, 2016, 39(1): 6
- [4] Swanson T. D., Birur G. C. NASA Thermal Control Technologies for Robotic Spacecraft. Applied Thermal Engineering, 2003, 23(9): 1055-1065
- [5] Darrin A. G., Osiander R., Champion J., et al. Variable Emissivity Through MEMS Technology. IEEE Intersociety Conference on Thermal and Thermomechanical Phenomena in Electronic Systems (ITHERM), Vol. 1, Inst. of Electrical and Electronics Engineers, New York, 2000: 264-270
- [6] Sumitaka Tachikawa, Hosei Nagano, Akira Ohnishi, et al. Advanced Passive Thermal Control Materials and Devices for Spacecraft a Review. International Journal of Thermophysics, 2022, 43(6): 1-37
- [7] J. L. Champion, R. Osiander, M. A. Garrison-Darrin, et al. MEMS louvers for thermal control. in Proc. MNT, 1999, 2: 233-241
- [8] Thanasopoulos N, Siakavellas N J. Smart patterned surfaces with programmable thermal emissivity and their design through combinatorial strategies. Sci Rep, 2017, 7: 12908
- [9] Biter W, Oh S, Hess S. Electrostatic switched radiator for space based thermal control. AIP Conference Proceedings, 2002, 608: 73-80
- [10] Demiryont, H., Moorehead, D. Electrochromic emissivity modulator for spacecraft thermal management. Solar Energy Materials and Solar Cells, 2009, 93(12): 2075-2078
- [11] Chandrasekhar P, Zay B J, McQueeney T, et al. Conducting Polymer(CP) infrared electrochromics in spacecraft thermal control and military applications. Synthetic Metals, 2003, 135-136: 23-24
- [12] 何延春, 邱家稳, 许旻, 王洁冰, 吴春华, 赵印中. 电致变色热控薄膜的制备与性能. 真空技术与表面工程——第九届真空冶金与表面工程学术会议论文集, 2009
- [13] Knuzelecky R V, Haddad E, Jamroz W, et al. Thin-film smart radiator tiles with dynamically tuneable thermal emittance[J]. SAE PAPER, 2005, 1: 2906
- [14] Sumitaka, Tachikawa, Akira, et al. Development of a Variable Emittance Radiator Based on a Perovskite Manganese Oxide[J]. Journal of Thermophysics & Heat Transfer, 2003
- [15] C. H. Wu, J. W. Qiu, M. Xu, et al. Optimization of thermal emittance tuneability of La (Sr,Ca)MnO₃ thin-film materials in 173-373 K. Key Eng. Mater. 2013, 575: 297-301
- [16] Deyu Xu, Junming Zhao, Linhua Liu. Near-field radiation assisted smart skin for spacecraft thermal control. International Journal of Thermal Sciences, 2021: 165-174

不规则几何形状介质中辐射传输的浸没边界-格子玻尔兹曼方法¹

吴思, 刘晓川, 朱克勇, 黄勇*

(北京航空航天大学航空科学与工程学院, 北京 100191)

(Tel: 18611374351, Email: huangy@buaa.edu.cn)

摘要: 发展了一种浸没边界-格子玻尔兹曼方法(IB-LBM)求解不规则几何形状介质内的辐射传输问题。采用浸没边界法中直接强迫的扩散界面方案, 将不规则边界产生的热影响, 以热密度的形式插值分布到相邻的 LB 模型的格子上, 接口函数为四点离散 δ 函数, 结合标准的 LB 模型, 求解了不同几何形状的二维均匀折射率介质内的辐射传热问题, 验证了本文的 IB-LBM 的正确性。该方法可作为复杂几何介质内的导热、对流及辐射换热耦合问题的统一计算方法。

关键词: 辐射传输, 格子玻尔兹曼模型, 浸没边界法, 不规则几何体

0 前言

辐射传热现象不仅在自然界中广泛存在, 在一些工程应用上更是不可忽略的, 特别是涉及到高温的情况, 如燃烧^[1]、火箭推进系统^[2]、核电技术^[3]、太阳能^[4]等。通常采用辐射传递方程(RTE)求解热辐射问题, 它是一个高维的微分积分方程。近几十年来, 求解辐射传递方程的数值计算方法得到了很大的发展。这些方法包括蒙特卡诺方法(MCM)^[5,6]、离散坐标法(DOM)^[7]、有限体积法(FVM)^[8]、有限元法(FEM)^[9]、无网格法^[10]、格子玻尔兹曼方法(LBM)^[11-13]等。格子玻尔兹曼方法是最近十多年才发展的一种求解辐射传热问题的介观方法, 由于它具有计算简单, 易于并行、能够处理多物理场耦合问题等优点, 目前已开发出了一些格子玻尔兹曼模型来求解各个维度的稳态和瞬态的热辐射问题, 这些模型主要集中在解决简单几何形状介质内的辐射问题, 如正方形、正方体等。然而, 工程上的介质往往具有复杂的不规则形状, 如何使 LBM 仍然能解决这些介质内的热辐射问题呢? 这需要进一步探索。

目前已经研究了不同的网格划分方法来计算这些形状不规则的介质内的热辐射, 如封闭域法(BOM)、嵌入边界法(EBM)、多块方法(MBM)及贴体网格法(BFM)^[14]。前两种方法采用笛卡尔网格, BOM 的误差最大, 计算最简单, 通过直接对不规则边界进行阶梯近似来求解, 因此边界上的数值结果误差较大。EBM 对 BOM 进行了改进, 弥补了用阶梯形状去拟合复杂边界所带来的误差。而 MBM 和 BFM 采用非笛卡尔网格, 其计算精度比 BOM 仍然有许多提升, 但非笛卡尔网格的划分方式也增加了计算难度。在实际应用中, 需要综合考虑计算成本和计算精度来获得最佳方案。

浸没边界法(IBM)近来受到了广泛关注, 它已被用于解决多相流、颗粒流、流固耦合和传热传质等问题^[14]。该方法具有网格生成简单、节省计算时间和内存的优点, 并且可以和 FVM、FEM、LBM 等方法结合使用。Peskin^[15]首次提出了 IBM 来模拟心脏瓣膜中的血液流动。这种方法通过在流动方程中添加力密度项, 来表示边界条件对流动过程

¹基金项目: 国家自然科学基金(No.52276046, 52306063)资助项目

的影响。IBM 通常采用两套网格进行计算，其中，笛卡尔网格上的点代表欧拉变量，不规则边界上的网格点代表拉格朗日变量。IBM 通过对拉格朗日变量进行插值，将不规则边界条件产生的影响以力密度的方式分布在相邻的欧拉点上^[16]。科学家们对 IBM 进行了许多的研究，特别是在流体力学方面，这些 IBM 包含多种处理方式，具体分类如下：（1）根据不同的力密度计算过程，可以将 IBM 分为反馈强迫法^[15]和直接强迫法^[17]；反馈强迫法即根据边界点的位置、速度等，通过反馈过程来计算力密度；直接强迫法即根据流动方程来确定力密度；（2）根据不同的拉格朗日网格和欧拉网格间的界面插值方式，可分为扩散界面^[18]和尖锐界面方案^[19]；扩散界面方案的边界力强迫点位于边界上，故边界力产生的影响需要经离散函数计算后“扩散”到相邻计算节点上；而尖锐界面方案的强迫点位于离边界最近的计算节点，强迫节点上的速度通过插值确定；（3）根据不同的力密度和时间的相互依赖性，又可以分为显式^[18]、半隐式^[20]、隐式^[21]等方案。由于 IBM 是独立于离散控制方程的方法，故它可以和 LBM 结合起来求解不规则几何介质内的辐射传热问题。

目前采用 IBM 来解决不规则几何的辐射问题的研究并不多，Mohammadi 等人^[14]首次结合了 IBM 和 FVM 来模拟复杂几何结构中的辐射传热，他们采用了直接强迫尖锐界面方案，求解了二维介质内的纯辐射问题和辐射导热耦合问题。Ming Liu 等人^[22]将 IBM 和体积惩罚法结合，通过在辐射和导热传递的控制方程中加入源项，模拟了不同吸收和发射情况下的辐射传热。Abaszadeh 等人^[23]结合 IBM 和 LBM 计算了二维不规则几何中的辐射换热问题，通过与 BOM、EBM、BFM 等方法的计算结果比较，验证了其浸没边界-格子玻尔兹曼方法(IB-LBM)的正确性，并且发现 IB-LBM 在满足计算精度的同时具有较低的计算成本。可惜的是，Abaszadeh 等人并未给出完整的 LB 模型，且在光学薄介质中，其模型性能较差。上述研究主要集中在二维均匀折射率介质内，对于 IBM 和 LBM 联合求解方案的研究极少，目前的 IB-LBM 方案还存在不足，需要进一步优化 IB-LB 模型，探索 IB-LBM 求解不规则几何形状内的辐射问题的更多可能性。

本文采用 IBM 中直接强迫的扩散界面方案来处理不规则边界，并给出了完整的 LB 模型，包括离散速度模型、平衡态分布函数和演化方程。第 1 节分别给出了辐射传输方程及 IB-LBM 的数学模型。第 2 节计算了二维介质内的辐射传热，分别讨论了梯形区域、含内圆的半圆区域和具有曲边下边界的四边形内的辐射传热，给出了不同光学厚度或不同散射反照率下的辐射计算结果并进行分析；通过与文献中的精确解、FVM、EBM 等计算的结果进行对比来验证模型的正确性。第 3 节对结果进行了总结与讨论。

1 数学模型

1.1 辐射传输方程

均匀折射率介质内的辐射传递方程可写为^[8]：

$$\begin{aligned} & \frac{1}{c} \partial_t I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) + \boldsymbol{\Omega} \cdot \nabla I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) + \beta I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t) \\ & = n^2 k_a I_b(\mathbf{r}, t) + \frac{k_s}{4\pi} \int_{4\pi} \Phi(\boldsymbol{\Omega}', \boldsymbol{\Omega}) I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}', t) d\boldsymbol{\Omega}' \end{aligned} \quad (1)$$

并且

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\Omega} &= \mu \mathbf{i} + \eta \mathbf{j} + \xi \mathbf{k} = \sin \theta \cos \varphi \mathbf{i} + \sin \theta \sin \varphi \mathbf{j} + \cos \theta \mathbf{k} \\ s_1 &= -\sin \varphi \mathbf{i} + \cos \varphi \mathbf{j} \end{aligned} \quad (2)$$

其中， n 表示折射率， c 表示当地声速，且满足 $c = c_0/n$ ， k_a 表示吸收系数，且 k_s 为散射系数， β 为衰减系数，且 $\beta = k_a + k_s$ ，散射相函数为 $\Phi(\boldsymbol{\Omega}', \boldsymbol{\Omega})$ ， I_b 为黑体辐射强度， Ω 表示立体角， θ 和 φ 分别为天顶角和圆周角。

边界条件如下所示：

$$I_w(\mathbf{r}, t) = \varepsilon I_b(\mathbf{r}, t) + \frac{(1-\varepsilon)}{\pi} \int_{n_w \cdot \Omega < 0} I(\mathbf{r}, \Omega, t) |n_w \cdot \Omega| d\Omega, \quad n_w \cdot \Omega > 0 \quad (3)$$

其中， ε 表示壁面发射率， n_w 为壁面法线方向。

1.2 辐射传输的格子玻尔兹曼模型

由于辐射传输的速度极快，使得辐射传输的时间步长可能小于 10^{-8} ，故需要对时间进行无量纲化处理，以免时间步长过小。令 $t^* = ct/L$ ，方程可以变为以下形式：

$$\partial_t I(\mathbf{r}, \Omega, t) + \nabla(L\Omega)I(\mathbf{r}, \Omega, t^*) = S(\mathbf{r}, \Omega, t^*) \quad (4)$$

并且

$$S(\mathbf{r}, \Omega, t^*) = L[F - \beta I(\mathbf{r}, \Omega, t^*)] \quad (5)$$

$$F = n^2 k_a I_b(\mathbf{r}, t^*) + \frac{k_s}{4\pi} \int_{4\pi} I(\mathbf{r}, \Omega', t^*) \Phi(\Omega', \Omega) d\Omega' \quad (6)$$

格子玻尔兹曼(LB)模型主要由离散速度模型、平衡态分布函数和演化方程组成。目前的离散速度模型主要是 1992 年 Qian^[24]等人提出的 DdQm 模型，即 d 维空间，m 个离散速度方向。常用的有 D1Q3，D2Q7，D2Q9，D3Q15，D3Q19 等，下面具体给出 D2Q9 的模型，这也是最常用的二维离散速度模型。

D2Q9 离散速度模型如下：

$$e_\alpha = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 1 & -1 & -1 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 1 & 1 & -1 & -1 \end{bmatrix} c \quad (7)$$

$$\varpi_0 = 4/9, \quad \varpi_{1-4} = 1/9, \quad \varpi_{5-8} = 1/36, \quad c_s = c/\sqrt{3}$$

对于均匀折射率介质而言，平衡态分布函数为^[12]：

$$f_i^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t^*) = \varpi_i I(\mathbf{r}, t^*) \left[1 + \frac{\mathbf{e}_{ai} \cdot L\Omega}{c_s^2} + \frac{((L\Omega)^2 - c_s^2 \mathbf{E}) : (\mathbf{e}_{ai} \mathbf{e}_{ai} - c_s^2 \mathbf{E})}{2c_s^4} \right] \quad (8)$$

演化方程为^[12]：

$$f_i(\mathbf{r} + \mathbf{e}_{ai} \Delta t^*, t^* + \Delta t^*) - f_i(\mathbf{r}, t^*) = -\frac{1}{\tau_d} [f_i(\mathbf{r}, t^*) - f_i^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t^*)] + \Delta t^* \left[S_i(\mathbf{r}, t^*) + G_i(\mathbf{r}, t^*) + \frac{\Delta t^*}{2} \partial_t S_i(\mathbf{r}, t^*) \right] \quad (9)$$

且满足以下式子：

$$S_i(\mathbf{r}, t) = \varpi_i S(\mathbf{r}, t) \quad (10)$$

$$G_i(\mathbf{r}, t) = (1 - 1/2\tau_d) \varpi_i \mathbf{e}_{ai} \cdot (L\Omega) S(\mathbf{r}, t) / c_s^2$$

其中， τ_d 为无量纲弛豫时间， F_i 和 G_i 分别表示源项和辅助源项。

在 LB 模型中，演化方程以离散格子速度 e_a 沿着特定的晶格方向相对于时间、空间和角度迁移，从而实现辐射的传递，具体如图 1a 中的离散速度模型图所示。上述 LB 模型通过 Chapman-Enskog^[25]分析可以恢复到宏观辐射传递方程，但还需要满足以下约束条

件：

$$\sum_i f_i(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) = \sum_i f_i^{eq}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) = I(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) \quad (11)$$

$$\sum_i \mathbf{e}_{ai} f_i^{eq}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) = I(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) L \mathbf{\Omega} \quad (12)$$

$$\sum_i \mathbf{e}_{ai} \mathbf{e}_{ai} f_i^{eq}(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) = I(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) (L \mathbf{\Omega})^2 \quad (13)$$

$$\sum_i \mathbf{e}_{ai} S_i(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) = 0 \quad \sum_i S_i(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) = S(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) \quad (14)$$

$$\sum_i \mathbf{e}_{ai} G_i(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) = (1 - 1/2\tau_d) L \mathbf{\Omega} S(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) \quad \sum_i G_i(\mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, t^*) = 0 \quad (15)$$

采用 LBM 时, 离散的时间和空间位置需满足 CFL 条件^[26]小于 1, 即 $CFL = \Delta t / \Delta x \leq 1$ 。

上游边界条件如公式所示, 下游边界条件如下:

$$I(\mathbf{r}_w, \mathbf{\Omega}, t^*) = 2I(\mathbf{r}_a, \mathbf{\Omega}, t^*) - I(\mathbf{r}_{na}, \mathbf{\Omega}, t^*) \quad (16)$$

其中, \mathbf{r}_w , \mathbf{r}_a 和 \mathbf{r}_{na} 的位置分布如图 1b 所示。

在边界上, 碰撞迁徙过程的 f_i 采用以下非平衡边界外推格式^[27]:

$$f_i(\mathbf{r}_w, \mathbf{\Omega}, t) = f_i^{eq}(\mathbf{r}_w, \mathbf{\Omega}, t) + [f_i(\mathbf{r}_a, \mathbf{\Omega}, t) - f_i^{eq}(\mathbf{r}_a, \mathbf{\Omega}, t)] \quad (17)$$

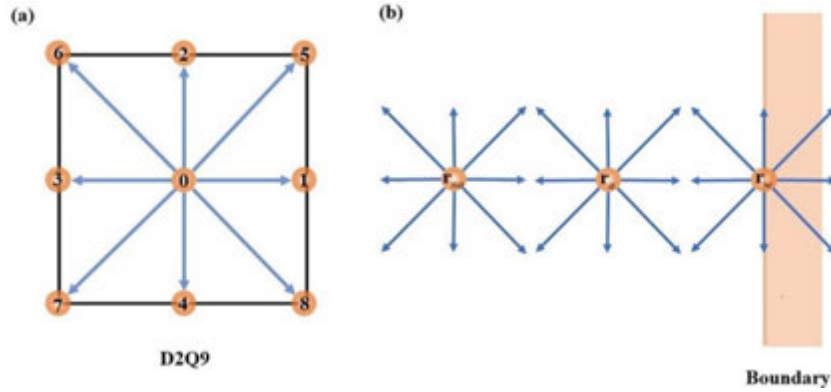


图 1 LBM 的物理模型: (a)D2Q9 格点图; (b)边界示意图

1.3 辐射传输的浸没边界-格子玻尔兹曼法

在浸没边界-格子玻尔兹曼方法中, 关键点是理解浸没边界的含义。这种方法最开始被用于计算流体力学的问题, 将流场网格上的计算节点视为“欧拉点”, 实际的不规则曲面网格上的点视为“拉格朗日点”。由于欧拉点所在的欧拉网格与拉格朗日点所在的拉格朗日网格并不相同, 两套网格间的数据传递需要选择合适的接口方案, 从而将不规则曲面边界的影响通过插值的办法分布在相邻的欧拉点上。通过这样的处理, 标准的 LB 模型始终在欧拉网格上运算。

本文引入了一个辐射密度项 Q_{rk} , 类似于流体力学的 IBM 中的力密度, 将其添加到辐射传递方程中, 以此表示浸没边界对辐射传递的影响, 即

$$S(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t^*) = L \left[F - \beta I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}, t^*) + \beta Q_{Rk} \right] \quad (18)$$

下面介绍如何求得这个辐射密度项 Q_{Rk} ，初始时，不考虑不规则边界的影响时，欧拉网格上各点的辐射强度等于黑体的辐射强度，具体如下^[23]：

$$I_k^c = \frac{\sigma T^{c4}}{\pi}, k = 1, 2, \dots, M \quad (19)$$

其中， I_k^c 为考虑不规则边界影响之前的初始欧拉网格点上 k 方向的辐射强度， T^c 为初始欧拉点的温度。拉格朗日边界上某点 k 方向的辐射强度如下：

$$I_{k-lb}^c = \sum_{ij} I_k^c D(\vec{x}_{ij} - \vec{x}_{lb}) h^2, k = 1, 2, \dots, M \quad (20)$$

其中， h 为欧拉网格间的距离。

本文采用扩散界面^[18]，界面函数为四点离散 δ 函数，具体如下：

$$D(\vec{x}_{ij} - \vec{x}_{lb}) = \frac{1}{h^2} \phi\left(\frac{\vec{x}_i - \vec{x}_{i-lb}}{h}\right) \phi\left(\frac{\vec{x}_j - \vec{x}_{j-lb}}{h}\right) \quad (21)$$

并且

$$\phi(r_L) = \begin{cases} \left(3 - 2|r_L| + \sqrt{1 + 4|r_L| - 4r_L^2}\right)/8, & 0 \leq |r_L| < 1 \\ \left(5 - 2|r_L| - \sqrt{-7 + 12|r_L| - 4r_L^2}\right)/8, & 1 \leq |r_L| < 2 \\ 0, & |r_L| \geq 2 \end{cases} \quad (22)$$

式中， \vec{x}_i 和 \vec{x}_{i-lb} 分别表示欧拉网格和拉格朗日网格上的点。

每个 k 方向在拉格朗日边界处的 Q_{Rk-lb} 值为：

$$Q_{Rk-lb} = \frac{1}{\beta} (I_k^d - I_{k-lb}^c) \quad (23)$$

式中， I_k^d 表示不规则边界上辐射强度的期望值，如果边界为黑体壁面，它可以通过公式

$$I_k^d = \frac{\sigma T_d^4}{\pi} \text{ 计算，式中 } T_d \text{ 为温度期望值。}$$

通过扩散界面函数插值可得欧拉网格点上的 Q_{Rk} 值为：

$$Q_{Rk} = \sum_{lb} Q_{Rk-lb} D(\vec{x}_{ij} - \vec{x}_{lb}) \Delta S_{lb}, k = 1, 2, \dots, M, \quad (24)$$

其中， ΔS_{lb} 为边界上拉格朗日点的距离。

采用 IB-LBM 计算不规则几何形状介质 RTE 的程序执行过程和收敛判断条件如下：

(1) 设置时间步长和总时间。用适当数量的网格划分计算域。选择分段常数近似 (PCA) 方案划分角度域。设置与 RTE 相关的参数，包括折射率、散射相位函数、壁面的发射率、衰减系数、散射反照率等。

(2) 设置问题的初始条件, 即初始化辐射强度、分布函数、源项、初始辐射密度等。

(3) 在每个时间步内循环, 直到执行完总时间, 或程序收敛跳出循环为止。具体地, 在每个时间步长的周期中, 需要对每个离散方向执行碰撞和迁移处理, 以更新辐射强度。还需加入辐射密度项 Q_{Rk} 修正辐射强度值以满足不规则几何形状的边界条件。

对于稳态问题, 入射辐射被用作收敛准则:

$$\frac{\sum_j |G(\mathbf{r}_j, t^*) - G(\mathbf{r}_j, t^* - \Delta t^*)|}{\sum_j |G(\mathbf{r}_j, t^*)|} < 10^{-6} \quad (25)$$

如果满足收敛条件, 则程序终止。

2 数值结果和讨论

2.1 梯形区域

算例 1 研究一个梯形区域内的热辐射传输, 该区域的几何示意图如图 2a 所示, 梯形的下壁面长度 $L = 1 \text{ m}$, 左侧斜边经过点 $(0, 0.5)$ 和 $(0.75, 1)$, 所有壁面均为黑体。初始时, 介质温度 $T_g = 1000 \text{ K}$, 所有壁面保持为 $T_w = 0 \text{ K}$, 吸收系数均匀分布, 无散射。

采用 MATLAB 编程进行计算, 经网格无关性检验后, 确定该算例的欧拉网格划分为 51×51 , 左侧斜边的拉格朗日网格划分为 61×1 , 要确保拉格朗日点间的距离小于欧拉网格点间的距离。立体角的计算采用 PCA 方案, 角度域被划分为 20×40 。图 2b 给出了吸收系数分别为 $k_a = 0.1 \text{ m}^{-1}$, 1 m^{-1} , 10 m^{-1} 时的下壁面无量纲辐射热流的计算结果。

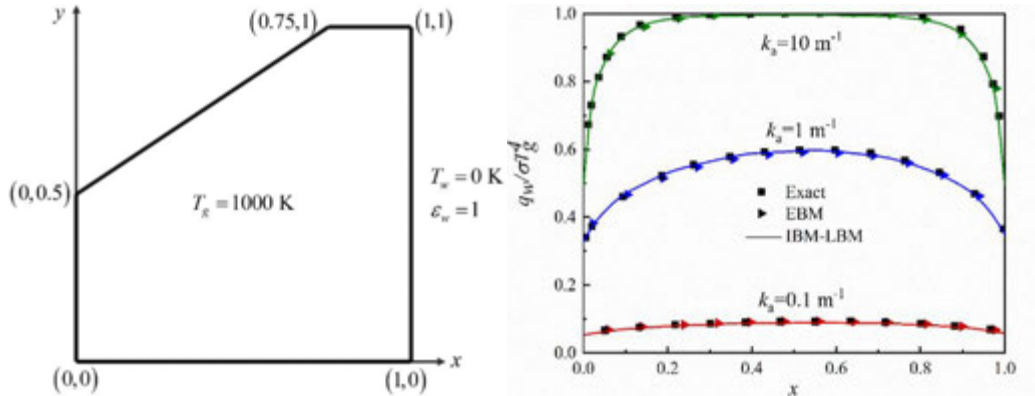


图 2 梯形区域的示意图: (a)物理模型; (b)下壁面无量纲辐射热流分布

将 IB-LBM 的计算结果分别与文献^[28]中的精确解(Exact)及 EBM 结果进行对比, 发现它们吻合良好, 说明了本文的计算方法可以有效的求解不规则几何形状介质内的辐射传输。当 $k_a = 10 \text{ m}^{-1}$ 时, 吸收系数较大, 本算例无散射, 可以知道此时光学厚度也越大, 此时厚介质几乎吸收了来自相邻介质的所有辐射, 故到达下壁面的无量纲辐射热流接近于 1; 而靠近介质两侧的位置, 由于受相邻冷壁面的影响, 可以观察到辐射热流急剧下降。当吸收系数小到 $k_a = 0.1 \text{ m}^{-1}$ 时, 介质的发射较弱, 且此时其他冷壁面的影响也减弱, 故辐射热流显著降低且热流曲线整体更平缓。

2.2 带圆孔的半圆区域

算例 2 研究了一个带圆孔的半圆区域内的辐射换热, 待求解区域的几何形状具体如图 3a 所示。区域内的介质为吸收、发射介质, 无散射。初始时各壁面温度均为 $T_w = 0 \text{ K}$,

介质温度为 $T_g = 1000 \text{ K}$ ，黑壁面。

经网格无关性检验后，确定欧拉网格为 51×101 ，拉格朗日网格划分为 160×1 ，拉格朗日点间的距离小于欧拉网格点间的距离。空间立体角的计算仍然采用 PCA 方案，角度域划分为 20×40 。将计算结果与文献^[29]内的 FVM 及 SORTe 的结果进行对比，如图 3b 所示。图 3b 分别展示了 $\tau = 0.1, 1, 10$ 这三种光学厚度下的半圆区域的下壁面的无量纲净辐射热流密度的分布情况。

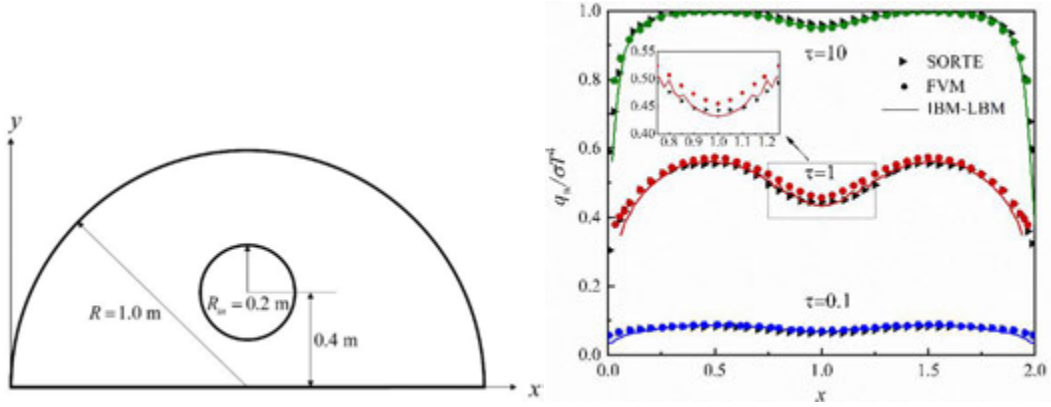


图 3 半圆形区域的示意图：(a)物理模型；(b)下壁面无量纲净辐射热流分布（高温）

当 $\tau = 10$ 时，光学厚度较大，在不考虑散射的情况下，吸收系数也越大，介质几乎吸收了来自相邻介质的所有辐射，故到达下壁面的无量纲辐射热流接近于 1；下壁面两侧的位置受相邻冷壁面的影响，可以观察到辐射热流急剧下降；且受内部圆孔冷壁面的影响，与内部圆孔接近的位置的辐射热流也较低。当 $\tau = 1$ 时，光学厚度较小，吸收系数和发射率也较小，辐射热流显著降低，且此时热流受其他冷壁面的影响也减弱。

可以发现，IB-LBM 得到的结果与文献中的结果吻合良好。当光学厚度 $\tau = 1$ 时，计算结果存在非物理振荡，这可能与计算域或角度域的离散精度有关；但总体看来，计算结果的误差并不大，这说明了本文的 IB-LBM 对这种内部存在遮挡的不规则几何形状内的辐射传输问题仍然可以较为准确的求解。

算例 3 的和算例 2 的研究对象的形状一致，仅改变边界条件。在算例 3 中，初始时，半圆形壁面温度为 300 K ，半圆区域内部的圆形壁面温度为 400 K 。计算域和角度域的划分与算例 2 一致，得到的结果与文献^[30]中 EBM 的结果进行对比。图 4 给出了半圆区域下壁面的辐射热流分布情况，可以发现计算结果与文献中的结果吻合良好。

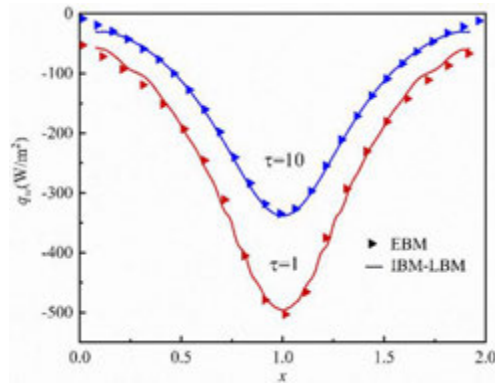


图 4 半圆形区域下壁面的无量纲净辐射热流分布（常温）

该算例中内部圆形壁面温度较高 (400 K)，外部半圆壁面和下壁面的温度较低

(300 K)，热量从高温一侧向低温一侧传输，当 $\tau=10$ 时，光学厚度较大，介质的衰减系数也较大，故到达下壁面的热流的绝对值比 $\tau=1$ 时更小。从图中还可以看出，下壁面的辐射热流的绝对值从中间向两侧不断减小，因为内部热壁面产生的热量从中间向四周辐射时，辐射热通量随着距离增加而不断被衰减，且受外部半圆区域冷壁面的影响，故下壁面两侧的辐射热流的绝对值较小。

2.3 具有曲边下边界的四边形区域

算例 4 考虑一个具有曲面下边界的四边形区域内的辐射传输来进一步验证 IB-LBM 求解不规则几何形状问题的性能，该区域的几何外形如图 5a 所示。已知该区域内充满了各向同性散射的介质，散射反照率 $\omega=1$ 。光学厚度 $\tau=1$ ，曲边的下壁面温度为 $T_w=1000$ K，其余各壁面及介质温度为 0 K。

欧拉网格为 51×76 ，拉格朗日网格划分为 81×1 ，角度域划分为 20×40 。图 5b 展示了不同散射反照率下的上壁面无量纲辐射热流分布情况，将 IB-LBM 的计算结果与 Parthasarathy 等^[31]的 MCM 及 Sakami 等^[32]的 DOM 的计算结果对比，两者的曲线基本吻合。

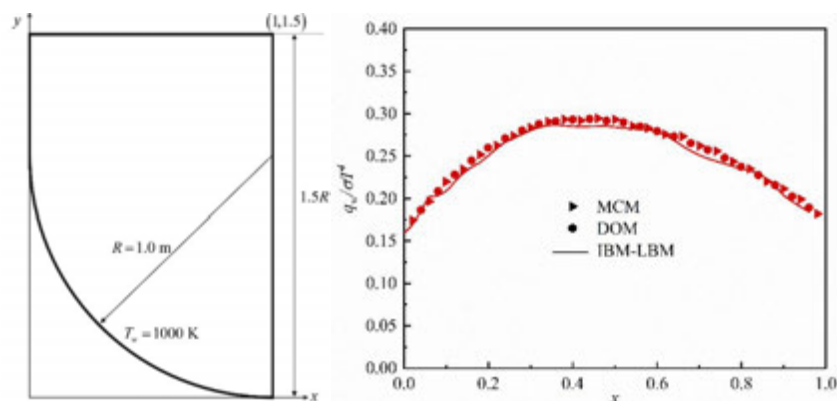


图 5 具有曲边下边界的四边形区域的示意图：(a)物理模型；(b)上壁面的无量纲净辐射热流分布

辐射热流曲线的分布呈现出中间大两边小，且峰值偏向左侧，这是因为下壁面的热流受两侧冷壁面影响而减小，且右侧冷壁面更长影响更大。计算结果仍然出现了轻微振荡，与半圆区域算例的结果类似，而梯形区域的计算结果吻合最好且无振荡，这可能与浸没边界法在处理弯曲边界时的计算域或角度域的离散精度有关。

3 结 论

本文发展了一种浸没边界—格子玻尔兹曼方法，计算了二维不规则几何形状介质内的辐射传输。给出了完整的 IB-LB 模型，选用了 IBM 中的扩散界面方案，接口函数为四点离散 δ 函数，先将不规则边界产生的热影响插值分布到相邻的标准 LB 模型中的欧拉网格点上，再将 IBM 求得的辐射密度项 Q_{Rk} 添加到 RTE 的源项中，从而将 IBM 和 LBM 结合到一起。分别讨论了梯形区域、含内圆的半圆区域和具有曲边下边界的四边形区域内的 4 个算例，通过与文献中的精确解、FVM、SORTE、EBM、MCM、DOM 计算的二维介质内的辐射传输结果进行对比，给出了不同的光学厚度及散射反照率下的辐射热流密度分布图，验证了本文的 IB-LB 模型的正确性。梯形区域中的计算结果与文献最吻合，而具有弯曲边界的算例的结果会出现一些振荡，这可能与浸没边界法在处理弯曲边界时的计算域或角度域的离散精度有关。本文对进一步推广格子玻尔兹曼方法在计算热辐射中的应用具有一定意义，且该方法还可以作为复杂几何介质内的导热、对流换热及辐射换热等耦合问题的统一计算方法。

参考文献

- [1] M.A. Rajhi, R. Ben-Mansour, M.A. Habib, et al. Evaluation of gas radiation models in CFD modeling of oxy-combustion[J]. *Energy Conversion and Management*, 2014, 81: 83-97.
- [2] J. Kim. Thermal Analysis of Thermal Protection System of Test Launch Vehicle[J]. *International Journal of Thermophysics*, 2017, 38(10): 145.
- [3] E. Knoglinger, H. Wolf, A. Kaliatka. Heat transfer in the core graphite structures of RBMK nuclear power plants[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2015, 293(11): 413-435.
- [4] M. Nakakura, M. Ohtake, K. Matsubara, et al. Development of a receiver evaluation system using 30 kWth point concentration solar simulator[J]. *Energy Procedia*, 2015, 69: 497-505.
- [5] Y. Huang, X.G. Liang, X.L. Xia. Monte Carlo simulation of radiative transfer in scattering, emitting, absorbing slab with gradient index[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2005, 92(1): 111-120.
- [6] H.L. Yi, C.H. Wang, H.P. Tan. Transient radiative transfer in a complex refracting medium by a modified Monte Carlo simulation[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2014, 79(18): 437-449.
- [7] D. Lemonnier, V. Le Dez. Discrete ordinates solution of radiative transfer across a slab with variable refractive index[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2002, 73(2): 195-204.
- [8] L.H. Liu. Finite volume method for radiation heat transfer in graded index medium[J]. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, 2006, 20(1): 59-66.
- [9] L.H. Liu. Finite element solution of radiative transfer across a slab with variable spatial refractive index[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2005, 48(11): 2260-2265.
- [10] C.A. Wang, H. Sadat, V. Le Dez. Meshless method for solving multidimensional radiative transfer in graded index medium[J]. *Applied Mathematical Modelling*, 2012, 36(11): 5309-5319.
- [11] P. Asinari, S.C. Mishra, R. Borchellini. A Lattice Boltzmann Formulation for the Analysis of Radiative Heat Transfer Problems in a Participating Medium[J]. *Numerical Heat Transfer, Part B: Fundamentals*, 2010, 57(2): 126-146.
- [12] X.C. Liu, Y. Huang, C.H. Wang, K.Y. Zhu. Solving steady and transient radiative transfer problems with strong inhomogeneity via a lattice Boltzmann method[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2020, 155(10): 1-13.
- [13] X.C. Liu, S. Wu, K.Y. Zhu, et al., Mesoscopic lattice Boltzmann model for radiative heat transfer in graded-index media[J]. *Physical Review Research*, 2022, 4(1): 1-9.
- [14] M. Mohammadi. Application of the immersed boundary method in solution of radiative heat transfer problems[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2021, 260(1): 1-16.
- [15] C.S. Peskin. Flow patterns around heart valves: a numerical method[J]. *Journal of Computational Physics*, 1972, 10(2): 252-271.
- [16] A.A. Delouei, M. Nazari, M.H. Kayhani, S. Succi. Immersed boundary-thermal lattice Boltzmann methods for non-Newtonian flows over a heated cylinder: a comparative study [J]. *Communications in Computational Physics*, 2015, 18(2): 489-515.
- [17] Z.G. Feng, E.E. Michaelides. Proteus: a direct forcing method in the simulation of particulate flows[J].

- Journal of Computational Physics, 2005, 202(1): 20-51.
- [18] M. Uhlmann. An immersed boundary method with direct forcing for the simulation of particulate flows[J]. Journal of Computational Physics, 2005, 209(2): 448-476.
 - [19] R. Ghias, R. Mittal, H. Dong. A sharp interface immersed boundary method for compressible viscous flows[J]. Journal of Computational Physics, 2007, 225(1): 528-553.
 - [20] E. Balaras. Modeling complex boundaries using an external force field on fixed Cartesian grids in large-eddy simulations[J]. Computers and Fluids, 2004, 33(3): 375-404.
 - [21] J. Wu, C. Shu. Implicit velocity correction-based immersed boundary-lattice Boltzmann method and its applications[J]. Journal of Computational Physics, 2009, 228(6): 1963-1979.
 - [22] M. Liu, Y. Hasegawa. Volume penalization method for solving coupled radiative-conductive heat transfer problems in complex geometries[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2023, 200: 123499.
 - [23] M. Abaszadeh, A. Safavinejad, H. Amiri, et al. A direct-forcing IB-LBM implementation for thermal radiation in irregular geometries[J]. Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, 2022, 147(20): 11169-11181.
 - [24] Y.H. Qian, D. D'Humières, P. Lallemand. Lattice BGK Models for Navier-Stokes Equation[J]. Europhysics Letters, 1992, 17(6): 479-484.
 - [25] S. Chapman, T.G. Cowling. The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases, 3rd edition[M]. Cambridge University Press, 1970.
 - [26] L. Rezzolla, O. Zanotti. Relativistic Hydrodynamics[M]. Oxford University Press, 2013: 68-132.
 - [27] Z.L. Guo, C.G. Zheng, B.C. Shi. Non-equilibrium extrapolation method for velocity and pressure boundary conditions in the lattice Boltzmann method[J]. China Physics, 2002, 11(4): 366-374.
 - [28] D.Y. Byun, S.W. Baek, M.Y. Kim. Investigation of radiative heat transfer in complex geometries using blocked-off, multiblock, and embedded boundary treatments[J]. Numerical Heat Transfer, Part A: Applications, 2003, 43(8): 807-825.
 - [29] J.M. Zhao, L.H. Liu. Second-Order Radiative Transfer Equation and Its Properties of Numerical Solution Using the Finite-Element Method[J]. Numerical Heat Transfer, Part B: Fundamentals, 2007, 51(4): 391-409.
 - [30] M. Zabihi, K. Lari, H. Amiri. Comparison of the blocked-off and embedded boundary methods in radiative heat transfer problems in 2D complex enclosures at radiative equilibrium[J]. Journal of Mechanical Science and Technology, 2017, 31(7): 3539-3551.
 - [31] G. Parthasarathy, H.S. Lee, J.C. Chai, et al. Monte Carlo solutions for radiative heat transfer in irregular two-dimensional geometries[J]. Journal of Heat Transfer, 1995, 117(3): 792-794.
 - [32] M. Sakami, A. Charette. Application of a modified discrete ordinates method to two-dimensional enclosures of irregular geometry[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, 2000, 64(3): 275-298.

气溶胶抑制尾喷焰红外辐射特性研究

任亚涛, 王雨柔, 高包海, 何明键, 齐宏

(哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001)

(Tel.: 0451-86412638, Email.: gaobaohai@hit.edu.cn)

摘要: 为评估典型气溶胶颗粒红外隐身效果, 本文采取 Fluent 软件仿真模拟尾喷焰流场和反向蒙特卡洛法计算尾喷焰红外辐射传输相结合的方法, 开展了气溶胶抑制尾喷焰红外辐射特性研究。首先在 Fluent 软件中选取 SST k- ω 湍流模型和拉格朗日离散相模型, 得到含气溶胶颗粒的尾喷焰流场数据。在此基础上, 分别采用逐线计算法、Mie 理论和反向蒙特卡洛法计算尾喷焰气体光谱吸收系数、颗粒吸收散射系数和红外辐射传输, 获得了含气溶胶颗粒的尾喷焰红外辐射强度分布, 评估典型气溶胶颗粒的红外辐射抑制效果。研究表明: 3~5 μm 波段, 石墨颗粒抑制效果最佳, 在 8~14 μm 波段, MgO 的抑制效果最佳; 颗粒粒径对红外抑制效果的作用机理复杂, 但基本呈现小颗粒的抑制效果优于大颗粒的规律。

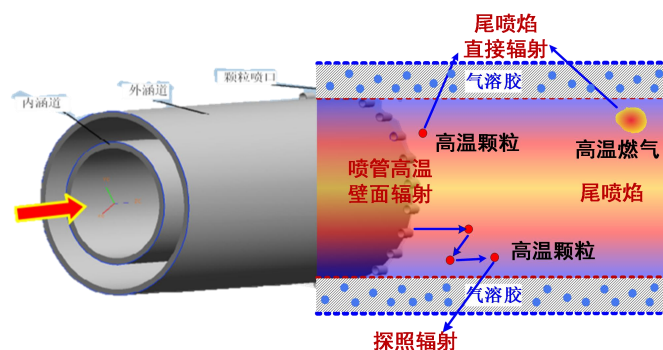
关键词: 气溶胶隐身; 尾喷焰; 红外辐射; 辐射强度

0 前言

第二次世界大战以来, 得益于红外辐射理论日渐完善与红外探测及信号处理技术不断发展, 红外成像技术在目标识别探测应用中成为新一代军事体系关键手段之一^[1]。红外制导武器有着高精度、反干扰、攻击距离远、较好的隐蔽性等工作特点, 可以利用红外成像技术, 在较远的距离上发现目标加之红外传感器精确锁定目标, 共同确保打击的准确性, 且不会受到雷达系统干扰, 在现代电子战环境下的优势显著, 此外红外制导武器可以在夜间或低照度环境下使用, 不易被敌方发现。与此同时, 随着红外制导技术与其它制导技术的不断融合形成的复合制导武器的出现, 将会使其在战场上的战斗力得到更大程度的提升, 并使其在射程和精度上得到更大的提升^[2]。据统计, 国际上, 世界上 60% 以上的国家都采用了红外线制导, 而美国空军战机在近几年的战损数据显示, 其中 44% 左右的战机都被红外线制导导弹所摧毁^[3]。数据显示, 在近几年的局地作战中, 红外线和雷达两种武器的击落率达到了 3:1 以上^[4]。

在日益恶劣的生活条件下, 各类空军的军事目标也面临着巨大的危险和挑战。为了避免被各种红外探测器发现, 增加军用武器的生存空间, 除了发展红外探测技术之外, 全球各个主要的军事强国也都在致力于发展先进的反红外探测技术, 这就是红外隐形技术的由来, 通过降低战斗机在探测波段的红外辐射强度, 帮助战斗机在战场上具有更强的“看不见”的能力。

气溶胶是一种固体微粒悬浮在大气中的多相体系，它能有效地吸收和散射入射的光波（包括红外线），使入射光波能量衰减，光学上称之为消光效应。气溶胶红外隐身技术是针对发动机排出的高温燃气及飞机发动机喷口的热部件在 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 及 $8\sim 14\ \mu\text{m}$ 波段的红外辐射而研究的一种有效的隐身方法。其作战方式为：在排气喷管周围喷洒微米级或纳米级的固体气溶胶颗粒（如石墨、二氧化硅等），在湍流流动和空气浮力的作用下而悬浮并包裹在尾焰周围形成气溶胶遮蔽层^[5]，对红外辐射进行散射和吸收，同时在尾喷管周围形成的固体颗粒层对红外辐射也有很好的屏蔽作用，大大降低透过的红外信号达到红外隐身的目的^[6]。与冷却喷嘴温度、涂层低发射率材料或安装遮蔽物等的传统抑制红



外辐射方法相比，气溶胶隐身技术是一种抑制发动机尾喷焰红外辐射的新方法。

图1 气溶胶抑制尾喷焰红外辐射示意图

在气溶胶红外隐身技术方面，国外对其研究开展较早，并且已经得到实际应用。国内的研究主要是集中在地面模型试验台^[7]搭建和仿真模拟^[8]。国内学者对粒子消光参数、粒子系散射特性做了详尽的理论分析，得到了粒子粒径、粒子形状、粒子复折射率虚实部等因素对辐射特性的影响规律^[9]，为后续实验验证打下了坚实的理论基础；仿真模拟主要是探究颗粒材料、颗粒流量、颗粒直径、喷射速度、喷射角度等影响因素对红外辐射抑制强度的关系，寻找最佳的抑制条件。

综上所述，本文主要是通过采取 Fluent 软件仿真模拟尾喷焰流场和反向蒙特卡洛法计算尾喷焰红外辐射传输相结合的方法，开展气溶胶抑制尾喷焰红外辐射效果特性研究。首先，利用 Fluent 软件能最大程度上仿真模拟得到贴近实际流动的尾喷焰流场；在此基础上，导出流场数据，分别采用逐线算法、Mie 理论和反向蒙特卡洛法计算尾喷焰气体光谱吸收系数、颗粒吸收散射系数和红外辐射传输，获得含气溶胶颗粒的尾喷焰红外辐射强度分布，同时探究石墨 C、MgO、SiO₂、Al、H₂O 五种气溶胶材料对尾喷焰红外辐射的抑制效果以及颗粒粒径对红外辐射抑制效果的影响规律。

1 含气溶胶颗粒尾喷焰流场仿真模拟

1.1 物理模型和网格划分

参考已知的某型发动机尾喷管物理模型，考虑到计算成本，将模型减小到 1/5 几何尺寸，尾喷焰是从长 0.1m，直径 0.2m 的喷管喷出。把与其同心的长方体作为外场计算域；由于周向射流具有一定的对称性，因此，本文仅将两个喷口分别设置在上部和下部，并将其用作气溶胶颗粒喷射口，喷管物理计算模型如图 2 所示。

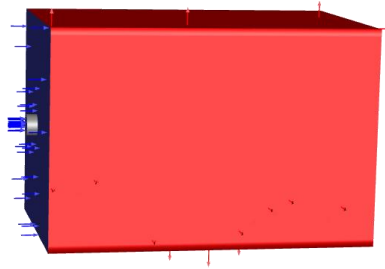


图2 喷管物理模型

外场计算域的大小，考虑到其沿着流动方向的距离应大于2个核心区长度，外场宽度（计算域半径）要确保其在计算域右侧出口区域可以完全自由地发展，且与外部边界无关。从自由射流流动特性可以看出，其核心区的长度通常是喷管直径的5倍，射流扩张角大约在 28° 左右。首先，计算模型喷口直径为0.2m，则核心区长度是1m，所以计算域长度应为3m，能满足是核心区长度的3倍的要求。划分网格时在喷管入口处加密网格，同时做了网格无关性验证，总网格数选取60万左右。图3是Fluent计算得到的尾喷焰流场周向截面的温度场，计算域y方向最大值为1m（即计算域半径）。由图3可见，射流能在y方向上自由发展，且计算域右端出口没有回流，满足计算要求。

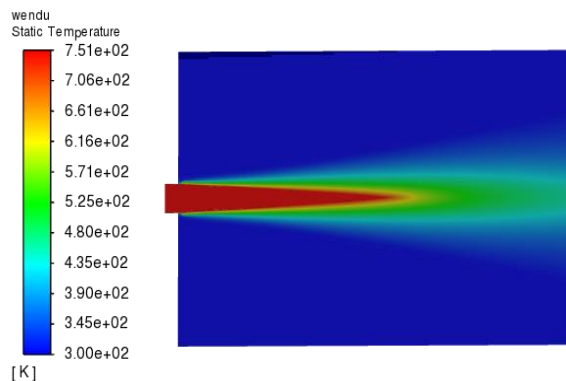


图3 尾喷焰温度场

1.2 计算模型选择

在Fluent中，k- ω 模式同时考虑了小Re数、可压缩性和剪切流等因素，使得其在计算尾流、混合层、射流等方面具有广泛的应用前景，该方法结合了k- ω 在近壁面区域的优势以及k- ϵ 在远壁面区域的优势。由于近壁面区域的混合系数为1，所以近壁面区域的k- ϵ 方程与k- ω 方程是等价的。当距离壁面较远时，其混合系数为0，因而可被转化成标准的k- ϵ 。相对于常规k- ω 模式，SST k- ω 模式加入了横截面耗散导数项，且在模型的湍流粘性设计中考虑到了湍流剪切力。SST k- ω 模型的上述特性，使其具有更加广泛的应用前景，例如可以应用到翼型计算，超音速激波计算等等。基于此，本文湍流模型拟采用SST k- ω 模型开展模拟研究。

因为本文计算域内的流体是多种气体的混合流体，所以要仔细选择组分模型。Fluent中已有5种组分模型，除了组分输运模型之外，其他四种组分模型均为包含化学反应的燃烧模型，而该本文模型仅包含多个组分在流动场内的浓度分布，与化学反应无关，故

选用组分输运模型。拉格朗日离散模型适用于<10%的颗粒荷载，而本文计算模型所涉及的固体（气溶胶）流体两相耦合流动满足这一条件，所以选择了拉格朗日离散模型。

2 含固体颗粒尾喷焰红外辐射特性计算理论和方法

2.1 气体辐射特性计算

逐线算法（Line-by-Line）在理论上是当前最为精确的，可为其他方法提供参考。然而，在应用该方法时，必须给出各谱线的具体谱线特征参量。如图 4 所示，在气体的吸收区域内，谱线与谱线会发生重叠。就相同气体而言，其在波数 η 处光谱吸收系数 κ_η 等于各个相互重叠谱线在波数 η 处的线吸收系数 $\kappa_{\eta i}$ 之和^[10]，即：

$$\kappa_\eta = \sum_i \kappa_{\eta i} = \sum_i S_i F(\eta - \eta_{0i}) \quad (1)$$

式中， $\kappa_{\eta i}$ 为第 i 条谱线在波数 η 处的吸收系数； $F(\eta - \eta_{0i})$ 为第 i 条谱线的线型函数； η_{0i} 为计算域内第 i 条谱线中心处的波数； S_i 第 i 条谱线积分强度。

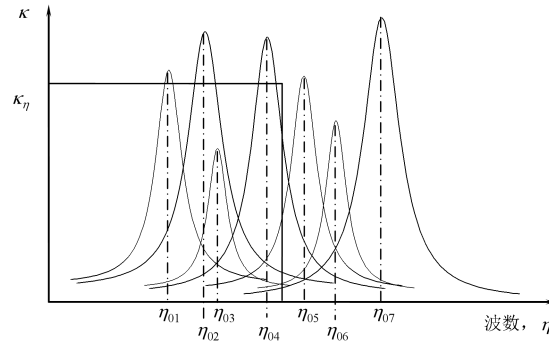


图 4 逐线计算原理图^[10]

实际应用中，必须考虑计算点两侧 10 个波数范围内吸收谱线的影响。如图 5 所示，与参考文献[11]对比，验证了本文计算程序的正确性。

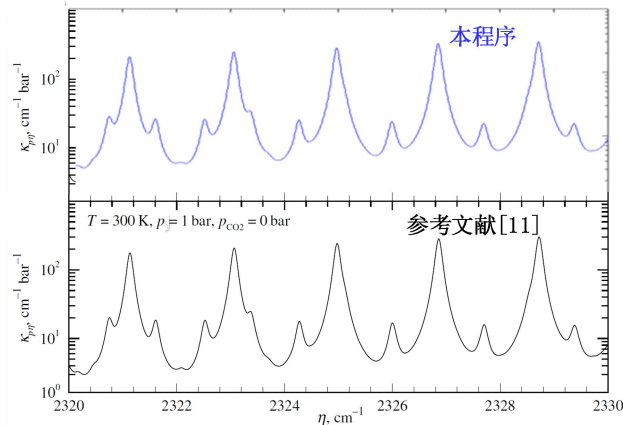


图 5 逐线计算法程序正确性验证

2.2 粒子辐射特性计算

针对单一颗粒的辐射性质，根据电磁学的观点，可将其转化为一束平面电磁波投影到一个具有一定大小和光学参数的颗粒上的麦克斯韦方程组的解，Mie 理论即是电磁学在颗粒辐射方面的一个具体运用^[12]。Mie 散射公式的实质是球形均质粒子对平面电磁波

的麦克斯韦方程组的远场解。

粒子的衰减、散射和吸收因子可以表示为^[12]

$$Q_{\text{ext}} = \frac{2}{x^2} \text{Re} \left[\sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(a_n + b_n) \right] \quad (2)$$

$$Q_{\text{sca}} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (3)$$

$$Q_{\text{abs}} = Q_{\text{ext}} - Q_{\text{sca}} \quad (4)$$

式中, Re 表示取复数实部, $x = \pi D/\lambda$ 为尺度参数, D 为粒径, λ 为波长, a_n 及 b_n 为 Mie 散射系数。

$$a_n = \frac{\psi'_n(mx)\psi_n(x) - m\psi_n(mx)\psi'_n(x)}{\psi'_n(mx)\xi_n(x) - m\psi_n(mx)\xi'_n(x)} \quad (5)$$

$$b_n = \frac{m\psi'_n(mx)\psi_n(x) - \psi_n(mx)\psi'_n(x)}{m\psi_n(mx)\xi_n(x) - \psi_n(mx)\xi'_n(x)} \quad (6)$$

式中, $m = n - ik$ 为微粒复折射率; $\xi_n = \psi_n + i\chi_n$, $\psi_n(x)$, $\chi_n(x)$ 为 Ricatti 贝塞耳函数。

由此, Mie 散射公式的最终问题是求解散射系数 a_n 、 b_n 和散射角函数 π_n 和 τ_n 。散射系数 a_n 、 b_n 都是具有复数自变量的复杂函数之比, 容易出现不稳定解。从 60 年代开始, 人们对其进行了各种改良, 并通过计算机程序进行了大量的计算, 使其计算结果的准确性得到了极大的改善, 同时也使其适用的参数更加广泛。基于 Mie 理论的求解方法能给出任何在 Mie 散射区域内的光滑球型颗粒的准确解, 是颗粒散射领域中最重要的一种求解方法。如表 1, 与参考文献[13]对比, 验证了本文 Mie 理论程序的正确性。

表 1 Mie 理论程序验证

参数	单位	ScottPrah ^[13]	本程序
波长(λ)	μm	0.6328	0.6328
尺寸参数(X)	μm	4.96459	4.96459
平均余弦相位函数(g)		0.70765	0.70765
散射效率(Q_{sca})		3.8962	3.8962
消光效率(Q_{ext})		3.8962	3.8962
反向散射效率(Q_{back})		1.9428	1.9428
散射截面(C_{sca})	μm^2	3.06	3.06
消光截面(C_{ext})	μm^2	3.06	3.06
反向散射截面(C_{back})	μm^2	1.5259	1.5259
散射系数(σ_s)	1/cm	3060	3060
降低散射系数(σ_{sc})	1/cm	894.59	894.59
总衰减系数(k_e)	1/cm	3060	3060

2.3 辐射传输计算

反向蒙特卡洛法（RMC）可以在射线追踪过程考虑到辐射传热中所有因素的影响，如发射、吸收、反射、散射等，且其不受几何形状、体积和角度离散的影响，也无需近似处理。因此，RMC 可以准确求解任意位置的定向辐射强度，并能适用于复杂形状的辐射系统，特别适用于复杂气固两相介质的辐射传输计算。通过引入辐射分布因子（RDF）的概念，将传统 RMC 方法中的概率模拟和温度迭代计算进行分解，并将辐射能量在参与性介质中的分配情况记录于 RDF 中，建立方向辐射强度与 RDF 和介质温度的联系。同时，采用获取 RDF 的无碰撞反向蒙特卡洛法（NC-RMC），大大提高非均匀网格辐射系统辐射传输计算效率^[13]。根据 RMC 方法的思想，建立了辐射能量传递路径模型，如图 6 所示。

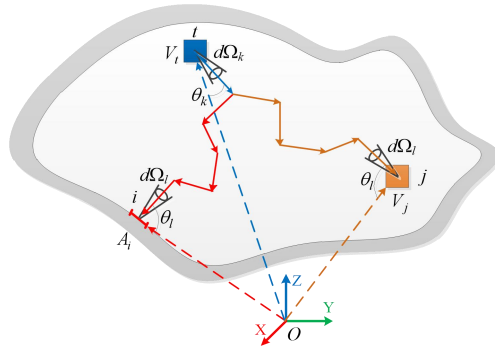


图 6 多维参与性介质中的 RMC 射线追踪模型^[13]

整个控制体被分为 N 个单元（包括 N_v 个体元和 N_s 个面元）。由表面单元 i （或体积单元 j ）发射的能量，被单元 t 沿 θ_k 方向在微元立体角 $d\Omega_k$ 内吸收的辐射能量^[13]为

$$Q_i^{t,k} = \sum_{l=1}^M Q_{i,l}^{t,k} = \pi \varepsilon_i A_i I_b(T_i) RD_i^{t,k} \quad (7)$$

$$Q_j^{t,k} = \sum_{l=1}^M Q_{j,l}^{t,k} = 4\pi \kappa_j V_j I_b(T_j) RD_j^{t,k} \quad (8)$$

式中，方向辐射分配因子 $RD_i^{t,k}$ ($RD_j^{t,k}$) 表示由表面单元 i （或体积单元 j ）发射并被由单元 t 沿角度 θ_k 在微元立体角 $d\Omega_k$ 内吸收的辐射能量分数。 M 为 4π 空间的角度划分数量。

因此，单元 t 在微元立体角 $d\Omega_k$ 沿方向 θ_k 吸收的能量可以表示^[13]为

$$Q^{t,k} = \sum_{i=1}^{N_s} \pi \varepsilon_i A_i I_b(T_i) RD_i^{t,k} + \sum_{j=1}^{N_v} 4\pi \kappa_j V_j I_b(T_j) RD_j^{t,k} \quad (9)$$

t 位置的方向辐射强度 I^{tk} 与它是表面单元还是体积单元无关，只与介质的温度分布和辐射分配因子有关。换言之，在任意位置沿任意方向上的辐射强度可由以下统一公式表达^[13]

$$I^{tk} = \sum_{n=1}^{N=N_s+N_v} RD_{t,k}^n \left(\frac{\sigma T_n^4}{\pi} \right) \quad (10)$$

3 气溶胶抑制尾喷焰红外辐射强度规律

3.1 颗粒粒径的影响规律

图 7 表示不加气溶胶和喷射不同石墨粒径工况下 $3 \sim 5 \mu\text{m}$ 波段红外辐射强度情况，喷射质量为 2 kg/s ，喷射速度为 50 m/s ，可以看出在添加石墨颗粒后，尾喷焰的红外辐射

射强度均有显著下降,但随着粒径变化,辐射强度抑制率也有所不同,并且存在一个最佳颗粒粒径,在3~5 μm 波段这个最佳颗粒粒径是1 μm 左右。颗粒粒径对尾喷焰的抑制作用主要表现在如下几个方面:

(1) 气溶胶喷射质量恒定时,颗粒粒径的变化将会直接引起粒子数密度(个/ m^3)发生变化,对于稀相气固两相流,计算单元体内的颗粒消光效果被认为是多个颗粒的叠加效果,显然颗粒数密度的变化会显著影响红外辐射抑制效果;

(2) 粒子材料和入射波长都固定时,颗粒粒径的改变也会影响粒子的消光系数,颗粒消光系数和尺度参数间存在规律的阻尼振荡趋势,故存在一个最佳粒径使消光系数取最大值,这在红外辐射传输过程中是一个关键的参数;

(3) 颗粒粒径发生变化时,会引起颗粒质量的改变,在湍流中,颗粒的运动和湍流脉动能量紧密相连,而在这个能量的对比中,颗粒质量的变化会引起其扩散过程的变化。

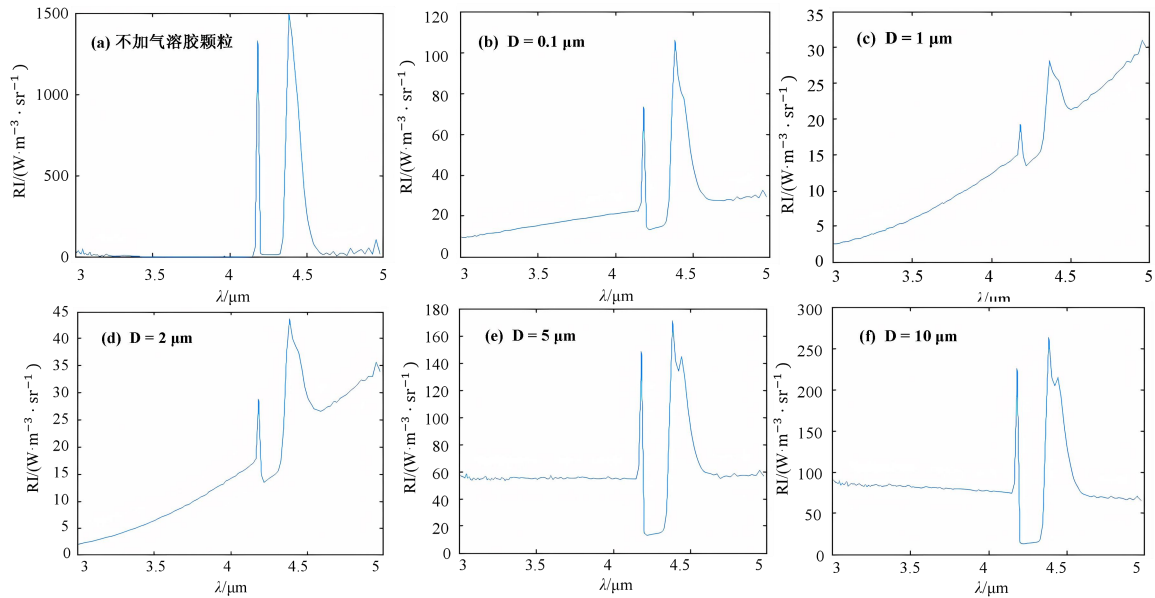


图 7-3 3~5 μm 波段不同石墨颗粒粒径下的红外辐射强度

从消光因子的观点来看,最大的消光因子在粒径1.0 μm 附近。但对于过小的粒径,粒径越小导致消光因子变小,从光学角度来说,这些变化不利于抑制红外辐射传输;但另一方面,粒径减小(质量浓度不变)又会使得颗粒数密度增大,对于稀相气固两相流,计算单元体内的颗粒消光效果被认为是多个颗粒的叠加效果,显然颗粒数密度的增加又是非常有利的。即颗粒粒径变化对红外辐射强度的影响复杂且多样。对于粒径逐渐增大过程,粒径大于1.0 μm 后,消光因子会减小,同时粒径增大也会导致流场内的颗粒数浓度下降,两种原因叠加使得红外辐射随粒径增大而增强。

3.2 颗粒材料的影响规律

颗粒材料对热喷流红外辐射特征影响主要是以下几个方面体现:

(1) 颗粒材料不同,也就是颗粒密度不同,在喷射质量和颗粒粒径不变的情况下,直接导致流场中颗粒数浓度的变化,从而影响红外辐射强度。

(2) 颗粒材料不同, 材料的复折射率也不同, 如果粒径不变, 入射波长也不变, 则复折射率的变化还直接导致衰减系数的变化, 从而影响最终的红外辐射强度。

由图 8、9 可以看出在添加气溶胶后, 尾喷焰整体辐射强度均有一定程度的减弱, 在 $3\sim 5\mu\text{m}$ 波段石墨 C 的抑制效果最好, 其次是 H_2O 和 SiO_2 , 在 $8\sim 14\mu\text{m}$ 波段 MgO 的抑制效果最好, 其次是 Al; 但需要注意的是在加入气溶胶粒子后, 由于气溶胶颗粒自身也存在强烈的光谱选择性, 会一定程度上改变尾喷焰的光谱辐射特性。

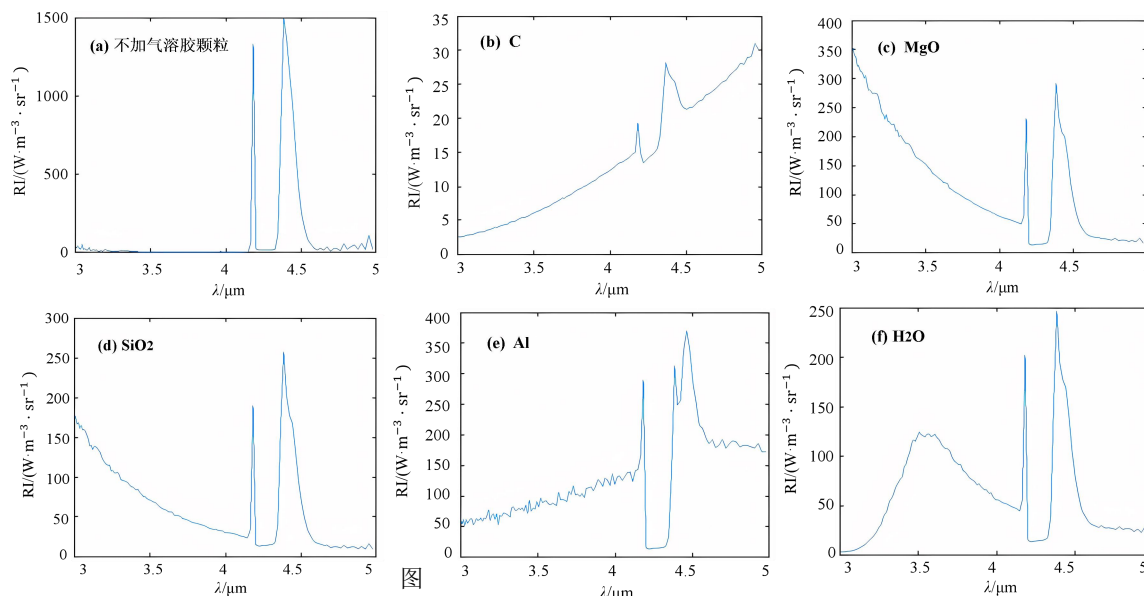


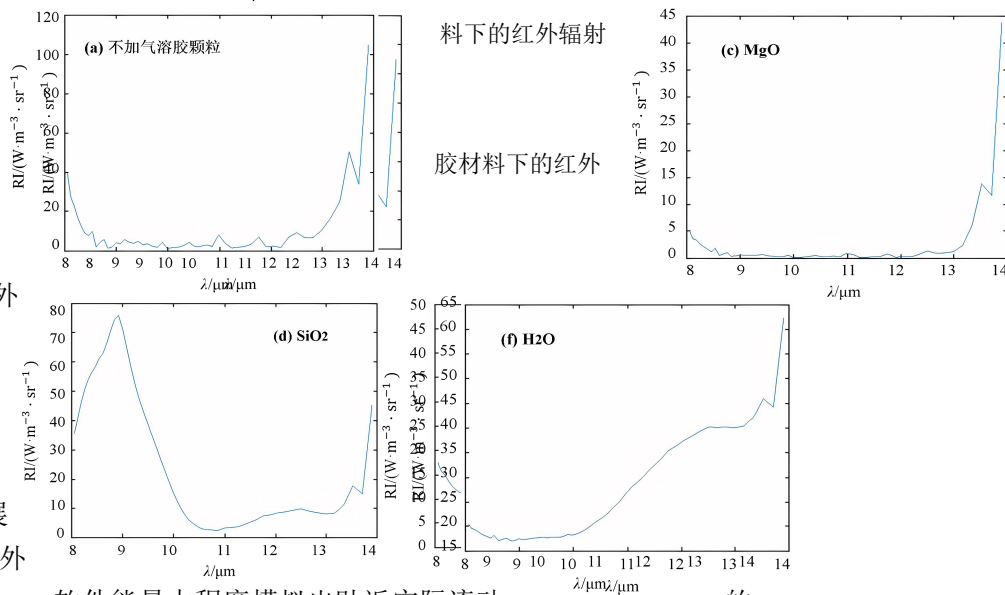
图 8 $3\sim 5\mu\text{m}$ 波段不同气溶胶材料下的红外辐射强度

图 9 $8\sim 14\mu\text{m}$ 波段不同气溶胶材料下的红外辐射强度

4 结 论

本文针对气溶胶红外隐身技术, 提出了一种 Fluent 软件仿真模拟尾喷焰流场和反向蒙特卡洛法计算尾喷焰红外辐射传输相结合的方法, 开展了气溶胶抑制尾喷焰红外

辐射特性研究。首先, Fluent 软件能最大程度模拟出贴近实际流动的尾喷焰流场, 其次, 本文所采用的获取 RDF 的无碰撞反向蒙特卡洛法 (NC-RMC), 能大大提高非均匀网格辐射系统辐射传输计算效率。结合上述两种方法的优点, 进行了尾喷焰红外辐射强度的计算, 探究了气溶胶材料、颗粒粒径对红外辐射强度的影响规律, 得到以下结论:



(1) 添加气溶胶颗粒后,尾喷焰整体辐射强度均有一定程度的减弱,在 $3\sim 5\mu\text{m}$ 波段石墨 C 的抑制效果最好,其次是 H_2O 和 SiO_2 ,在 $8\sim 14\mu\text{m}$ 波段 MgO 的抑制效果最好,其次是 Al;但需要注意的是在加入气溶胶粒子后,由于气溶胶颗粒自身存在强烈的光谱选择性,会一定程度上改变尾喷焰的光谱辐射特性。

(2) 改变粒径会影响流场中气溶胶浓度分布,同时粒子消光因子也和自身粒径相关,但总体上是小粒径有利于抑制红外辐射强度,本文以石墨为例,在 $3\sim 5\mu\text{m}$ 波段,颗粒粒径在 $1\mu\text{m}$ 左右时,抑制效果最佳。

参考文献

- [1] 任鹏飞. 飞行器红外隐身技术发展分析[J]. 飞航导弹, 2016, No.380(08): 86-90.
- [2] 刘箴, 吴馨远, 陈士超, 王卫平, 胡晓明. 典型红外精确制导武器发展分析[J]. 弹箭与制导学报, 2022, 42(01): 19-27.
- [3] Haulman D L. USAF manned aircraft combat losses1990-2002. AD-A434084.
- [4] Rao G A, Mahulika S P. Integrated review of stealth technology and its role in airpower. Aeronautical Journal, 2002.
- [5] 张彦军. 含离散颗粒热喷流颗粒分布特征数值研究及验证[D]. 南京航空航天大学, 2009.
- [6] 刘光猛, 邓海飞, 汪卫华. 气溶胶抑制红外辐射研究综述[J]. 激光与红外, 2014, 44(10): 1079-1085.
- [7] 李卉芸. 飞行状态下含离散颗粒热喷流的红外特征研究[D]. 南京航空航天大学, 2009.
- [8] 张净玉, 常海萍, 王慧元. 球形离散颗粒抑制尾喷流红外辐射传输数值模拟[J]. 航空动力学报, 2009, 24(06): 1211-1218.
- [9] 王京. 离散颗粒对热喷流红外辐射特征影响规律研究[D]. 南京航空航天大学, 2009.
- [10] 谈和平, 夏新林, 刘林华, 阮立明. 红外辐射特性与传输的数值计算-计算热辐射学. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学出版社, 2006.
- [11] Modest M F. Radiative heat transfer 4th Edition [M]. New York: Academic Press, 2021.
- [12] 余其铮. 辐射换热原理[M]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学出版社, 2000.
- [13] Prahl, Scott. Mie scattering calculator[EB/OL]. https://omlc.org/calc/mie_calc.html.
- [14] 高包海. 基于辐射分配因子的高方向分辨率辐射强度求解及应用[D]. 黑龙江: 哈尔滨工业大学, 2022.

移动石墨烯条带介导的粒子间近场辐射

郝云超, 张勇[†], 易红亮

(哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150001)

(Tel: 0451-86412674, Email: yong_zhang@hit.edu.cn)

摘要: 光机械系统中, 电磁波传播的双向对称性可以被有效地打破, 从而实现以非常规方式输运光子的新型器件。本文开展了基于移动石墨烯条带的纳米粒子间近场辐射传热研究, 采用各向同性碳化硅粒子和周期性石墨烯条带进行建模, 基于格林函数和光导率近似的方法对近场辐射传热进行分析。研究发现: 当速度足够高并超过一定阈值时, 移动的石墨烯条带能够显著改变粒子之间的近场辐射传热, 并在特定方向上实现超过 4 个数量级的热通量的增强或抑制。石墨烯条带在静止状态时沿条带方向热流双向导通, 移动时在运动方向实现热流单向导通, 为设计性能良好的随机运动速度触发的热二极管提供理论参考。

关键词: 近场辐射换热; 移动超表面; 非互易传输; 表面等离子激元

0 前言

当两物体间的尺度缩小到微纳米级时, 其辐射换热(Radiative heat transfer, RHT)会由于倏逝波的隧穿效应、表面等离子体激元(Surface plasmon polaritons, SPPs)或声子极化激元(Surface phonon polaritons, SPhPs)的激发而被显著增强, 称为近场辐射换热(Near-field radiative heat transfer, NFRHT)[1]。在近场中通过调制电磁场的振幅和相位从而实现光学非互易性一直是一个热门的话题[2]。石墨烯条带(Graphene strips, GS)作为一种人工制造的二维超薄结构, 具有极高光导率、支持双曲色散和调控倏逝波等优越特性, 为近场热辐射的精细调控提供了一个可实现的平台, 在近年来得到了广泛的研究[3]。

同时随着移动介质电动力学的发展, 理论表明: 在光机械系统中, 电磁波传播的双向对称性可以被有效地打破, 从而实现以非常规方式输运光子的新型器件[4]。在运动结构的强烈激发下, 产生很多令人兴奋的现象, 例如旋转系统光隔离[5]、波不稳定性增强[6]、量子摩擦[7]等。石墨烯的高强度特性为光机械系统的近场调控提供了条件, 然而通过有限周期结构设计的石墨烯超表面在近场中实现长距离传输的同时虽然能够表现出明显的非互易性, 但在单方向上仍然表现出双向对称性[8]。最近, 对移动阻抗表面的分析表明阻抗表面在运动时表现出单向的双曲传播特性, 这种利用机械运动诱导 SPPs 单向双曲传输的方法为 NFRHT 的调控提供了新方向[9]。

基于此背景, 课题组已经探索近场结构中移动的各向同性石墨烯材料的热整流效应, 研究发现当移动速度达到一定阈值时, 纳米粒子间的热流可以得到将近五个数量级

[†] 资助项目: 国家自然科学基金 (No. 52076056), 中央高校基本科研业务费专项资金资助 (No. HIT.OCEF. 2023020)

的增强[10]。本文的工作是对移动超薄结构在近场中可能产生的影响的进一步探索，构建各向同性碳化硅(Silicon carbide, SiC)纳米粒子与移动石墨烯条带模型，基于涨落电动力学理论，借助格林函数和光导率近似，研究移动石墨烯条带调控下的两粒子间近场辐射换热特性。需要强调的是，本研究所用到的速度均为恒定值，以排除卡西米尔摩擦效应对粒子和表面的力学影响。

1 移动石墨烯条带介导的粒子间近场辐射换热理论模型

图 1(a)展示了移动石墨烯条带调控纳米粒子间近场辐射换热示意图，系统置于真空中，石墨烯条带通过对入射电磁波的各向异性散射来调控纳米粒子间的 NFRHT。本文考虑无限大的 GS 表面沿绝对坐标系 S 下的 x 轴方向以恒定速度 v 运动，其上方距离 h 处放置两个相同的纳米粒子，粒子间的距离为 d 。粒子材质选择具有良好的光学和热导性能的各向同性碳化硅(SiC)纳米粒子，半径为 $R = 5\text{nm}$ 。其中，粒子 1 的温度为 T_1 ，作为该系统的热源，粒子 2 的温度为 T_2 ，作为系统的冷源，并满足 $T_1 = T_2 + \Delta T$ 。在该模型中，粒子 1 发射的电磁波在超表面上共振激发出具有长传输距离的表面波 SPPs，当 SPPs 传播到粒子 2 下方时，由光子隧穿产生的倏逝波被粒子 2 捕获，实现能量的传递。因此粒子间的 RHT 大致分为两部分进行，一部分是在真空中直接进行的辐射热传递，另一部分是依托超表面间接进行的热能输运。另外由于运动的超表面向系统内输入的动能转化成热能，也会参与到粒子间的热交换中，为排除石墨烯条带自身的温度的影响，表面温度取为 T_M ，并满足 $T_M = T_2$ 。在对该系统的研究中，本文发现 GS 的填充系数 f ($f = P/W$)、化学势 μ 、移动速度 v 和图 1(b)中所定义的粒子偏转角度 θ 对系统中粒子间的 NFRHT 有着显著的影响。

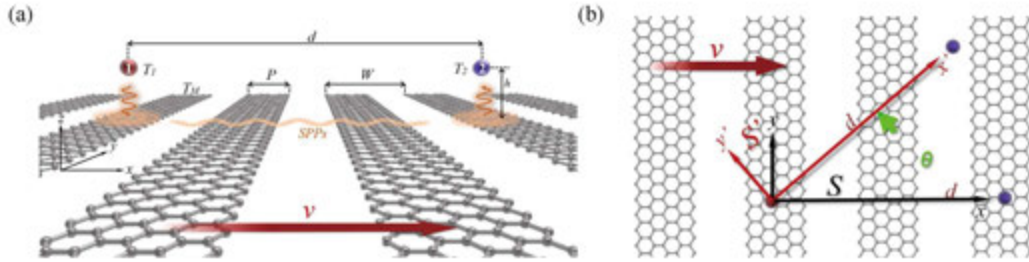


图 1 物理模型 (a) 移动石墨烯条带调控纳米粒子近场辐射换热示意图 (b) 纳米粒子偏转示意图

本文的研究对象是粒子间的换热问题，图 2(b)中，在绝对坐标系 S 下，粒子排列方向与 GS 周期方向一致，此时 $\theta = 0$ 。而当粒子发生偏转时，参考系应当相应的偏转至 S' 。在涨落耗散电动力学和散射理论的框架下，移动的 GS 使空间中的电磁场发生扭曲，直接引入速度参量会使整个场的分析变得复杂。因此考虑利用等效的边界条件结合格林函数(Green's function, GF)来描述速度变化下的电磁场，利用超表面极薄的特性，通过波导理论及洛伦兹变换得到坐标系 S 下的边界条件[9]：

$$\hat{z} \times (\mathbf{H}_2 - \mathbf{H}_1) = \underline{\underline{\tilde{\sigma}}} E_{\parallel} + \gamma \underline{\underline{\sigma}} \mu_0 (\mathbf{v} \times \mathbf{H}_z) - \epsilon_0 \gamma (E_{1z} + E_{2z}) \mathbf{v}, \quad (1)$$

式中 1,2 分别表示下表面和上表面， \parallel 表示与表面平行的量， \mathbf{v} 表示速度矢量， $\beta = v/c$ ， $\gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2}$ ， $\underline{\underline{\sigma}} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{yy} \end{pmatrix}$ 为 GS 光导率张量， $\underline{\underline{\tilde{\sigma}}} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx}\gamma & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{yy}\gamma^{-1} \end{pmatrix}$ 为运动诱导的光导率张量。

公式(1)右侧第一项表示为运动诱导下表面各向异性的传导电流，第二项表示磁电耦合，第三项表示表面电荷机械运动产生的电流。经过阻抗表面波导理论推导得到含有等

等效光导率张量 $\underline{\underline{\sigma}}^{eff}$ 的边界条件:

$$\hat{\mathbf{z}} \times (\mathbf{H}_2 - \mathbf{H}_1) = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} \gamma^{-1} - 2\varepsilon_0 k_x v / k_z & -2\varepsilon_0 k_y v / k_z \\ \sigma_{yy} \gamma \beta k_y / k_0 & \sigma_{yy} \gamma (1 - \beta k_x / k_0) \end{bmatrix} \mathbf{E}_{\parallel} = \underline{\underline{\sigma}}^{eff} \mathbf{E}_{\parallel} \quad (2)$$

若考虑到坐标系的偏转, 速度在坐标系 S' 中产生 x' 方向分量 $v \cos \theta$ 和 y' 方向分量 $-v \sin \theta$, 推导得等效光导率张量 $\underline{\underline{\sigma}}^{eff}$ 为:

$$\underline{\underline{\sigma}}^{eff} = \gamma \mathbb{Z} \left(\sigma \mathbb{Z} + v \begin{bmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ \sin \theta & -\cos \theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} -2\varepsilon_0 k_x / k_z & -2\varepsilon_0 k_y / k_z \\ -\sigma k_y / \omega & \sigma k_x / \omega \end{bmatrix} \right), \quad (3)$$

其中, $\phi = \mathbf{I} + (\gamma^{-1} - 1) \begin{pmatrix} \cos^2 \theta & \sin \theta \cos \theta \\ \sin \theta \cos \theta & \sin^2 \theta \end{pmatrix}$ 。

等效的光导率张量显然是各项异性的, 通过上述的变换, 静止粒子与移动表面的问题转变成静止粒子与各向异性表面的问题。同时, 由于纳米粒子是线性、非磁、各向同性的, 其尺寸远小于热波长 $\lambda_T = c\hbar / (k_B T)$, 因此可以使用偶极近似方法将其建模为单个电偶极子[11]。基于 GF 的粒子间辐射热流系数 H 计算式如下[12]:

$$H = \frac{2\hbar}{\pi} \int_0^{+\infty} \omega k_0^4 n'(\omega, T) \chi(\omega)^2 \text{Tr}(\mathbf{G} \mathbf{G}^\dagger) d\omega, \quad (4)$$

式中 k_0 为真空波阻抗, $n'(\omega, T)$ 为波色—爱因斯坦分布 $n(\omega, T) = (e^{\hbar\omega/k_B T} - 1)^{-1}$ 关于温度 T 的导数, $\chi(\omega) = \text{Im}[\alpha(\omega)] - k_0^3 |\alpha(\omega)|^2 / 6\pi$ 表示修正的电偶极极化率, 由于超表面的趋肤深度远大于粒子半径, 即 $\delta \gg R$, $\alpha(\omega)$ 可以表示成 Clausius-Mossotti 形式, 即 $\alpha(\omega) = 4\pi R^3 (\varepsilon(\omega) - 1) / (\varepsilon(\omega) + 2)$, 式中 $\varepsilon(\omega)$ 为纳米粒子介电函数[13]。

在式(4)中, 通过并矢格林张量 \mathbf{G} 将超表面速度引入整个系统:

$$\mathbf{G} = \mathbf{M}^{-1} \mathbf{G}, \quad (5)$$

式中 $\mathbf{M} = \mathbf{I} - k_0^4 \alpha^2 \mathbf{G} \mathbf{G}^T$ 考虑了粒子和粒子以及粒子和平板间的多次吸收和反射, \mathbf{I} 为单位矩阵, \mathbf{G} 为粒子与平板系统的 GF, 具体可以分为两部分:

$$\mathbf{G} = \mathbf{G}^0 + \mathbf{G}^{sc}. \quad (6)$$

\mathbf{G}^0 代表两纳米粒子间的直接接收的部分, 不受移动超表面的影响, 可以写成:

$$\mathbf{G}^0 = \frac{e^{ik_0 d}}{4\pi k_0^2 d^3} \begin{bmatrix} 2 - 2ik_0 d & 0 & 0 \\ 0 & k_0^2 d^2 + ik_0 d - 1 & 0 \\ 0 & 0 & k_0^2 d^2 + ik_0 d - 1 \end{bmatrix}. \quad (7)$$

\mathbf{G}^{sc} 代表两纳米粒子通过表面作用的部分, 粒子在远离表面时该项应归零, 可以写成[14]:

$$\mathbf{G}^{sc} = \frac{i}{8\pi^2} \iint \left(\sum_{\alpha, \beta=s,p} \frac{r_{\alpha\beta}}{k_z} \xi_{\alpha}^+ \otimes \xi_{\beta}^- \right) e^{ik_{\parallel}(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)} e^{ik_z(h_2 + h_1)} dk_x dk_y, \quad (8)$$

式中 $\mathbf{R}_i = \mathbf{r}_i + h_i \hat{\mathbf{z}}$ ($i=1, 2$) 表示粒子位置, k_{\parallel} 为平行于表面的波矢量, $k_0^2 = k_{\parallel}^2 + k_z^2$, 式中考虑了 s 和 p 极化波有关的贡献, $\xi_s^{\pm} = (k_y, -k_x, 0) / k_{\parallel}$, $\xi_p^{\pm} = k_z (\mp k_x, \mp k_y, k_{\parallel}^2 / k_z) / k_{\parallel} k_0$, $r_{\alpha\beta}$ 为反射矩阵 \mathbb{R} 的各分量:

$$\mathbb{R} = \begin{bmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{bmatrix} = \frac{1}{\zeta} \begin{bmatrix} 4 + 2Z^s \eta_0 \sigma'_{xx} - \zeta & -2\eta_0 \sigma'_{xy} \\ -2\eta_0 \sigma'_{yx} & 4 + 2Z^p \eta_0 \sigma'_{yy} - \zeta \end{bmatrix}, \quad (9)$$

式中 $Z^s = k_z / k_0$, $Z^p = k_0 / k_z$, $\zeta = (2Z^s + \eta_0 \sigma'_{yy})(2Z^p + \eta_0 \sigma'_{xx}) - \eta_0^2 \sigma'_{xy} \sigma'_{yx}$, $\underline{\underline{\sigma}}'$ 为波矢空间中的光导率张量:

$$\underline{\underline{\sigma}}' = \underline{\underline{\mathbf{a}}}^T \underline{\underline{\sigma}}^{eff} \underline{\underline{\mathbf{a}}}, \quad (10)$$

式中 $\underline{\underline{\mathbf{a}}} = (k_x \ -k_y; k_y \ k_x) / k_{\parallel}$, $\underline{\underline{\sigma}}^{eff}$ 即为公式(2)中的等效光导率矩阵。

至此, 已经将数学模型搭建完成, 所用材料的物性参数需要在此给出。GS 的光导率模型由有效介质模型描述[15]:

$$\underline{\underline{\sigma}} = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & 0 \\ 0 & \sigma_{yy} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} W\sigma_g\sigma_c / (P\sigma_c + (W-P)\sigma_g) & 0 \\ 0 & P\sigma_g / W \end{bmatrix}, \quad (11)$$

其中 $\sigma_c = -i\omega\epsilon_0 W / (\pi \ln\{\csc[0.5\pi(1-f)]\})$ 为使用静电方法获得的相邻石墨烯条带间近场耦合的等效光导率, 其中, 石墨烯光导率 σ_g 包括带内和带间的贡献($\sigma_g = \sigma_D + \sigma_I$):

$$\sigma_D = \frac{i}{\omega + i/\tau} \frac{2e^2 k_B T}{\pi \hbar^2} \ln \left(2 \cosh \frac{\mu}{2k_B T} \right),$$

$$\sigma_I = \frac{e^2}{4\hbar} \left[G\left(\frac{\hbar\omega}{2}\right) + i \frac{4\hbar\omega}{\pi} \int_0^\infty \frac{G(\xi) - G(\hbar\omega/2)}{(\hbar\omega)^2 - 4\xi^2} d\xi \right], \quad (12)$$

其中 $G(\xi) = \sinh(\xi / k_B T) / [\cosh(\mu / k_B T) + \cosh(\xi / k_B T)]$ 。 e 为单位电荷, μ 是石墨烯的化学势, τ 是弛豫时间固定为 10^{-13} s, ω 为角频率。

SiC 粒子的介电函数采用 Drude-Lorentz 模型进行描述:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty \frac{\omega_L^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}, \quad (13)$$

式中 $\omega_L = 1.83 \times 10^{14}$ rad/s 为纵向光学频率, $\omega_T = 1.49 \times 10^{14}$ rad/s 为横向光学频率, $\epsilon_\infty = 6.7$ 为高频介电常数, $\Gamma = 8.97 \times 10^{11}$ rad/s 为电子阻尼。根据电极化率 $\alpha(\omega)$ 表达式可以预测在 $\epsilon(\omega) + 2 = 0$ 处对应 SiC 粒子共振频率 $\omega_r = 1.756 \times 10^{14}$ rad/s。

2 结果与讨论

利用超表面调控的近场辐射具有长传输距离的特点, 并考虑到有效介质近似法的计算精度, 本文选择条带周期 W 为 20nm, 粒子间距 d 为 1 μ m 粒子以及表面的距离 h 为 60nm [16], 纳米粒子和 GS 温度满足 $T_1 = T_M = 300$ K, $T_2 = 0$ K, 排除粒子 2 的电磁发射以简化计算。

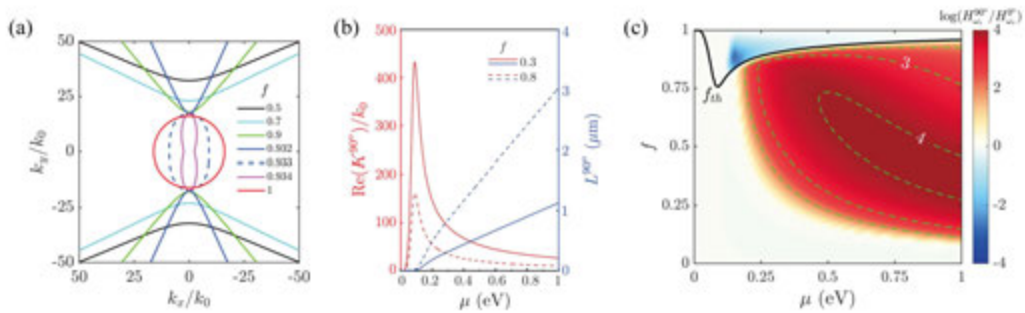


图2 表面填充率和化学势对粒子间辐射换热的影响 (a) 化学势为0.5eV 的石墨烯条带上的表面波矢空间色散曲线随填充率的变化关系 (b) GS 表面上 SPPs 沿条带方向上的波矢大小和传播长度随填充率和化学势的变化图 (c) $\theta = 90^\circ$ 和 0° 时粒子间光谱热流系数比值随化学势和填充率的分布云图, f_{th} 表示对应化学势下 GS 表面色散关系从椭圆色散到双曲色散的变化阈值

首先讨论静止状态下的 GS 对于粒子间 NFRHT 的影响, 图 2(a)给出了化学势为 0.5eV 的 GS 表面上的波矢空间色散曲线随填充率 f 的变化图, 计算公式如下[17]:

$$2k_0^2\eta_0(\sigma'_{xx} + \sigma'_{yy}) + k_0k_z(4 + \eta_0^2(\sigma'_{xx}\sigma'_{yy} - \sigma'_{xy}\sigma'_{yx})) = 2\eta_0(k_x^2 + k_y^2)\sigma'_{xx}, \quad (14)$$

其中 η_0 为真空波阻抗。

可以看出，当填充率 f 为 1 时，此时 GS 为各向同性的石墨烯表面，色散曲线呈圆形，随着填充率的减小逐渐变为椭圆形色散，并存在一个阈值 f_{th} 此时色散曲线从封闭的椭圆色散突变为不封闭的双曲色散，表现出极端各向异性。这是由于 $\text{Im}(\sigma_{xx})$ 在 f_{th} 处从正值突变为负值，禁止了 GS 上 SPPs 沿 x 轴方向的传播，可以预测此时粒子以偏转角 $\theta = 90^\circ$ 排布时的热流系数 H^{90° 会显著高于 $\theta = 0^\circ$ 排列时的光谱热流系数 H^{0° 。因此为了实现静止 GS 下的各向异性的近场辐射热调控，需要选择满足 $f < f_{th}$ 的 GS 表面。

在低温掺杂的石墨烯中，动态电导率虚部在带间跃迁阈值处呈现出对数发散，表明化学势 μ 的变化会改变石墨烯载流子密度和能带结构，对光学性质具有重要的影响。当 GS 表面填充率低于 f_{th} 时，周期方向（即 $\theta = 0^\circ$ ）上 SPPs 的传播被禁止，化学势影响可以忽略。图 2(b) 给出了 GS 表面上，条带方向（即 $\theta = 90^\circ$ ）上 SPPs 的波矢大小和传播长度随填充率和化学势的变化图。波矢大小通过 $K = (k_0^2 - (2\varepsilon_0\omega / \sigma_{xx}^{eff})^2)^{1/2}$ 计算获得，传播长度通过 $L = 1 / \text{Im}(K)$ 计算获得[18]。可以看到化学势的改变显著的影响了 SPPs 的传播，在 0.1eV 附近，SPPs 的波矢存在明显的峰值，而传播长度却趋近于零，这表明此时的 GS 上虽然激发了携带高能量的 SPPs 却不能传播。随着化学势的增加，虽然能量有所减少，但传输距离明显提升，SPPs 可以传播到粒子 2 的下方表面，并以倏逝波的形式被粒子 2 捕获，实现近场尺度下的长距离传输。而对比不同填充率下的曲线可以看到，在低于阈值 f_{th} 的情况下，低填充率可以显著提升 SPPs 的波矢大小但同时也降低了其传输距离，若 $L < d$ ，粒子 2 则几乎捕获不到 SPPs 携带的能量。因此 SPPs 在粒子间的能量传输受到其波矢大小和传输距离的相互牵制，选择合适的填充率和化学势对 GS 的近场光学效应有显著的影响。

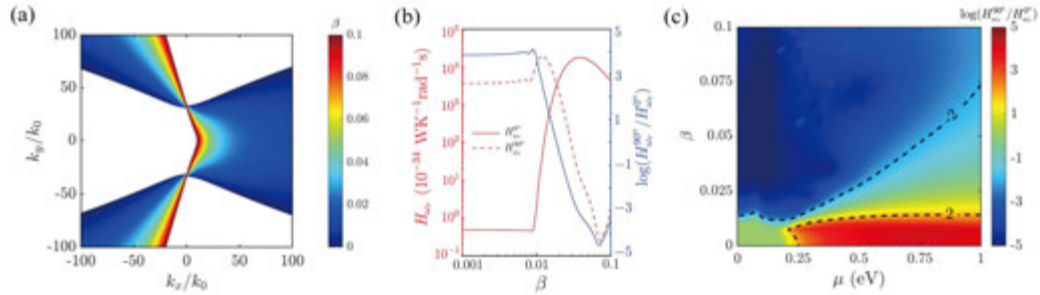


图 3 表面速度对粒子间辐射换热的影响 (a) 填充率为 0.5、化学势为 0.5eV 的石墨烯条带表面波矢空间色散曲线随速度的变化图 (b) 同条件下 $\theta = 90^\circ$ 和 $\theta = 0^\circ$ 时的光谱热流系数及其比值 (c) 填充率为 0.5 时， $\theta = 90^\circ$ 和 $\theta = 0^\circ$ 对应的光谱热流系数比对面速度及化学势的响应云图

注意到对 SiC 粒子来说，其全光谱换热系数 H 是单位频率下的光谱传热系数 H_ω 的叠加，而共振峰处的光谱传热系数主导换热，因此只讨论共振峰处的光谱传热系数即 H_{ω_r} 即可反应该系统中的热分布。图 2(c) 给出了不同化学势和填充率对 $\theta = 90^\circ$ 和 0° 时粒子间光谱热流系数比值的影响。 f_{th} 表示对应化学势下 GS 表面色散关系从椭圆色散到双曲色散的变化阈值。对图 2(b) 的分析可知，SPPs 在化学势为 0.1eV 附近 GS 上几乎不能传播，此时有 $H_{\omega_r}^{90^\circ} / H_{\omega_r}^{0^\circ} \approx 1$ 。当化学势满足 $\mu > 0.1\text{eV}$ 时，可以看到 $H_{\omega_r}^{90^\circ}$ 和 $H_{\omega_r}^{0^\circ}$ 的比值随着填充率发生明显的变化。结合图 2(b) 的分析，当填充率足够小时，SPPs 的传播长度小

于粒子间距, 此时有 $H_{\omega_r}^{90^\circ} / H_{\omega_r}^{0^\circ} \approx 1$, 随着填充率的增大, $\theta = 90^\circ$ 时粒子 2 能够捕获 SPPs 携带的能量, 而 $\theta = 0^\circ$ 时 SPPs 在粒子间的传播被禁止, 所以表现出 $H_{\omega_r}^{90^\circ} / H_{\omega_r}^{0^\circ} > 1$, 当填充率满足 $f > f_{th}$ 时, 由图 2(a) 可以看到, 此条件下的 SPPs 可以沿 GS 表面的各方向传播, 而 x 方向的波矢减小且传输距离增加, 被粒子 2 捕获, 因此在一定条件下表现出 $H_{\omega_r}^{90^\circ} / H_{\omega_r}^{0^\circ} < 1$ 。当填充率和化学势取值适当, 可以实现 $H_{\omega_r}^{90^\circ}$ 与 $H_{\omega_r}^{0^\circ}$ 之间超过四个数量级的差距, 表现出近场辐射热能的显著各向异性调控。

虽然适当填充率和化学势下的 GS 表面上 SPPs 的传播具有了显著的各向异性, 但对于某一个确定的方向来说, 仍然没有打破电磁波传输的双向对称性。图 3(a) 给出了 0.5 的填充率和 0.5eV 的化学势的 GS 表面上波矢空间色散随无量纲速度 β 的变化图, 可以看到, 随着速度的增加, 色散曲线从双向的双曲色散变为单向的双曲色散, 从而打破了电磁波传输的双向对称性。并且静止 GS 表面在正 x 方向上对 SPPs 传播的禁止随着速度的增加而消失, 获得更小的波矢和更长的传输距离。图 3(b) 给出了 $\theta = 90^\circ$ 和 0° 方向上的光谱热流系数及其比值随速度的变化关系, 可以看出, 随着速度的增加, $H_{\omega_r}^{90^\circ}$ 和 $H_{\omega_r}^{0^\circ}$ 呈现完全相反的变化趋势, 其比值也从静止时的 10^4 随着速度的增加变化到 10^{-4} 。

本研究发现化学势的取值不仅影响 GS 表面 SPPs 的传播, 同时对运动速度有着不同的光学响应。图 3(c) 给出了 $\theta = 90^\circ$ 和 0° 方向的光谱热流系数比值对表面速度和化学势的响应关系云图, 可以看到在 0.1eV 的化学势下, 小速度时 GS 表面 SPPs 传播距离较小, 表现出 $H_{\omega_r}^{90^\circ} / H_{\omega_r}^{0^\circ} \approx 1$, 当速度超过一定阈值时, 会随着速度的增加产生迅速地响应。当化学势大于 0.2eV 时, 化学势的增加, 会使光谱系数比值对速度的响应变慢, 因此选择较低化学势的 GS 表面有利于降低运动光学器件设计所需的速度阈值。而根据图 2(c) 的分析, 过低的化学势又会影响 SPPs 的传输, 因此选取合适的化学势对于 GS 表面参与的光学器件尤为重要。

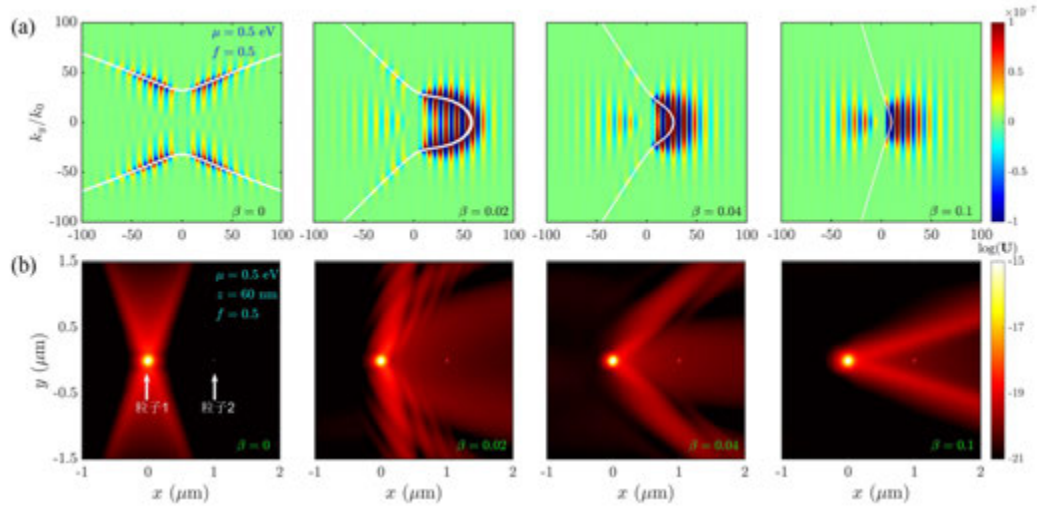


图 4 表面速度对波矢空间色散、格林函数和能量密度的影响 (a) 填充率为 0.5、化学势为 0.5eV 的石墨烯条带表面的波矢空间色散曲线及反射格林函数 G^{sc} 第一部分实部 $\text{Re}[G^{\text{sc}}(1,1)]$ 分别在速度为 0、0.02、0.04 和 0.1 时的分布云图 (b) 同条件下在 $z=60\text{nm}$ 的横截面上粒子的能量密度分布云图

为了更直观的体现 GS 表面速度对粒子间近场辐射换热的影响, 图 4(a) 给出了填充率为 0.5、化学势为 0.5eV、不同速度下 GS 表面波矢空间色散曲线及 GF 第一部分实部 $\text{Re}[G^{\text{sc}}(1,1)]$, 反映了 GF 在波矢空间中从对称色散到非对称色散的变化过程。图 4(b) 给出

了填充率为 0.5、化学势为 0.5 eV、不同速度下在 $z = 60\text{nm}$ 的横截面上粒子的能量密度分布云图，能量密度计算式为[19]：

$$\mathbf{U}(\mathbf{R}, \omega) = (2\hbar k_0^4 / \pi) \sum_i \chi_i(\omega) n(\omega, T_i) \text{Tr}[\mathbf{N}_{\mathbf{R}i} \mathbf{N}_{\mathbf{R}i}^*], \quad (15)$$

其中 $\mathbf{N}_{\mathbf{R}i} = (\mathbf{G}_{\mathbf{R}i}^0 + \mathbf{G}_{\mathbf{R}i}^{sc}) \mathbf{G}$ 。

可以看到在 GS 静止时，能量沿 y 轴方向双向传输，随着 x 轴方向速度的升高，其能量传输开始向正 x 轴方向偏移，而形成单方向的热流传输。有趣的是静止时的 GS 表面并非正 y 轴方向能量最高，而是偏离了一个小角度，这是由于 SPPs 的波矢大小与传播长度得到了最佳的匹配，使得该方向上的 SPPs 传输效果最明显。而随着速度的增加，这个最佳的传输方向开始向正 x 轴偏移，这个过程中会恰好与正 y 轴重合，从而产生图 3(b) 中 $H_{\omega_r}^{90^\circ}$ 出现的一个短暂峰值。对于正 x 轴方向，SPPs 波矢的减小伴随着传输距离的延长，当传输距离远大于粒子间距，此时传输距离的延长不会对粒子间的辐射传热做贡献，而波矢的进一步减小使得粒子所能捕获的能量降低，这解释了为何图 3(b) 中 $H_{\omega_r}^{0^\circ}$ 随速度的增长呈现出剧烈上升后缓慢下降的趋势。

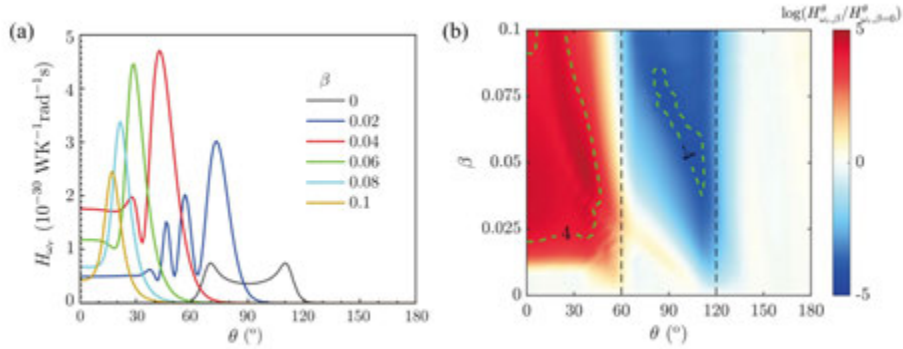


图 5 粒子偏转角对粒子间辐射换热的影响 (a) 填充率为 0.5、化学势为 0.5 eV 的石墨烯条带表面介导下粒子光谱热流系数随速度和偏转角的变化曲线 (b) 同条件下光谱热流系数随速度和偏转角的增长倍率变化云图

由图 4(b) 可以看到粒子间的近场辐射换热系数并非是在偏转角 $\theta = 90^\circ$ 时出现峰值，随着速度的提高其峰值也在不断地偏移。图 5(a) 给出了光谱热流系数随速度和偏转角度的变化关系曲线，可以看到静止的 GS 表面在 $\theta = 70^\circ$ 和 110° 方向支持最高的光谱热通量。随着速度的提升，光谱热流峰值向小偏转角方向偏移，并在 $\beta = 0.05$ 左右达到最大。随着速度的继续提高，峰值更加偏向小角度但其大小也有所降低，因此对速度和偏转角度的选取也决定了移动 GS 的光学性能。图 5(b) 给出了光谱热流系数随速度和偏转角的增长倍率变化云图，增长倍率由 $\log(H_{\omega_r, \beta}^\theta / H_{\omega_r, \beta=0}^\theta)$ 计算获得，其中 $H_{\omega_r, \beta=0}^\theta$ 表示静止 GS 表面上 θ 偏转方向上粒子的光谱热流系数，可以看出在 $0^\circ < \theta < 60^\circ$ 方向上，热流系数随速度的提高呈现显著的增强，在 $60^\circ < \theta < 120^\circ$ 方向上，热流系数随速度的提高呈现明显的抑制，在 $120^\circ < \theta < 180^\circ$ 方向上，热流系数随速度的提高无明显的变化。这种增强或抑制的效果在特定的偏转角和速度下可以达到四个数量级以上，其热整流效果是非常显著的。

4 结 论

本文探索了近场尺度下移动石墨烯条带对两个各向同性的电介质(SiC)纳米粒子间的辐射传热的调控。研究表明，移动的石墨烯条带所支持的单向双曲等离激元共振能够打破电磁波的双向传输，并显著的改变粒子之间的辐射传热。选择合适的石墨烯条带填

充率、化学势、移动速度和粒子偏转角度可以实现近场辐射传热的集中调控，在特定方向上实现超过4个数量级的热流系数的增强或抑制，进而设计性能优越的近场光学器件，石墨烯条带在静止状态时条带方向热流双向导通，移动时在运动方向实现热流单向导通，可以设计性能良好的随机运动速度触发的热二极管。

移动超表面的在近场中的独特机制无疑是具有吸引力的，这项理论将会为将来需要考虑运动表面的场景提供理论支撑。对于本文的分析，研究的假设的恒定速度平移是理想化的，对移动物体间的量子摩擦和应用已经有了很多研究，可以预测高速运动的物体间的卡西米尔效应可能会为理论的分析带来更多更复杂的现象[20]。本文部分研究的表面速度是极大的，但最近的旋转表面[21,22]、旋转粒子[23,24]等问题上为该理论的应用提供了可能性，更多降低所需速度的调控方法有待进一步的探索。

参考文献

- [1] Polder D, Van Hove M. Theory of Radiative Heat Transfer between Closely Spaced Bodies[J]. *Physical Review B*, 1971, 4(10): 3303-3314.
- [2] Fan L L, Guo Y, Papadakis G T, et al. Nonreciprocal radiative heat transfer between two planar bodies[J]. *Physical Review B*, 2020, 101(8): 085407.
- [3] Zhang Y, Antezza M, Yi H L, et al. Metasurface-mediated anisotropic radiative heat transfer between nanoparticles[J]. *Physical Review B*, 2019, 100(8): 085426.
- [4] Fang K, Luo J, Metelmann A, et al. Generalized non-reciprocity in an optomechanical circuit via synthetic magnetism and reservoir engineering[J]. *Nature Physics*, 2017, 13(5): 465-471.
- [5] Maayani S, Dahan R, Kligerman Y, et al. Flying couplers above spinning resonators generate irreversible refraction[J]. *Nature*, 2018, 558(7711): 569-572.
- [6] Silveirinha M G. Optical Instabilities and Spontaneous Light Emission by Polarizable Moving Matter[J]. *Physical Review X*, 2014, 4(3): 031013.
- [7] Antezza M, Emelianova N, Khusnutdinov N. Casimir-Lifshitz force for moving graphene[J]. *arXiv:2303.03115*.
- [8] Zhou C L, Wu X H, Zhang Y, et al. Polariton topological transition effects on radiative heat transfer[J]. *Physical Review B*, 2021, 103(15): 155404.
- [9] Mazon Y, Alu A. Nonreciprocal hyperbolic propagation over moving metasurfaces[J]. *Physical Review B*, 2019, 99(4): 045407.
- [10] Hao Y C, Zhang Y, Yi H L. Near-field radiative heat transfer of nanoparticles mediated by moving metasurfaces[J]. *Physical Review B*, 2023, 108(12): 125431.
- [11] Purcell E A, Pennypacker R. Scattering and Absorption of Light by Nonspherical Dielectric Grains[J]. *The Astrophysical Journal*, 1973, 186: 705-705.
- [12] Ben-abdallah P, Biehs S A, Joulain K. Many-Body Radiative Heat Transfer Theory[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(11): 114301.
- [13] Albaladejo S, Gomez-medina R, Froufe-perez L S, et al. Radiative corrections to the polarizability tensor of an electrically small anisotropic dielectric particle[J]. *Optics Express*, 2010, 18(4): 3556.
- [14] Ge L X, Cang Y P, Gong K, et al. Control of near-field radiative heat transfer based on anisotropic 2D materials[J]. *AIP Advances*, 2018, 8(8): 085321.
- [15] Falkovsky L A. Optical properties of graphene[J]. *Journal of Physics: Conference Series*, 2008, 129: 012004.
- [16] Liu X L, Zhang Z M. Giant enhancement of nanoscale thermal radiation based on hyperbolic graphene plasmons[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(14): 143114.
- [17] Juan Sebastian Gomez-diaz, Alu A. Flatland Optics with Hyperbolic Metasurfaces[J]. *ACS Photonics*, 2016, 3(12): 2211-2224.
- [18] Joulain K, Mulet J P, Marquier F, et al. Surface electromagnetic waves thermally excited: Radiative heat transfer, coherence properties and Casimir forces revisited in the near field[J]. *Surface Science Reports*,

2005, 57(3-4): 59-112.

- [19] Purcell E A, Pennypacker C R. Scattering and Absorption of Light by Nonspherical Dielectric Grains[J]. The Astrophysical Journal, 1973, 186: 705-705.
- [20] Arash Ashourvan, Miri M A, Ramin Golestanian. Noncontact Rack and Pinion Powered by the Lateral Casimir Force[J]. Physical Review Letters, 2007, 98(14): 140801.
- [21] Maayani S, Dahan R, Kligerman Y, et al. Flying couplers above spinning resonators generate irreversible refraction[J]. Nature, 2018, 558(7711): 569-572.
- [22] Li B, Hyang R, Xu X, et al. Nonreciprocal unconventional photon blockade in a spinning optomechanical system[J]. Photonics Research, 2019, 7(6): 630.
- [23] Toftul I, Fedorovich G, Kislov D, et al. Nonlinearity-induced optical torque[J]. arXiv:2210.04021.
- [24] Reimann R, Doderer M, Hebestreit E, et al. GHz Rotation of an Optically Trapped Nanoparticle in Vacuum[J]. Physical Review Letters, 2018, 121(3): 033602.

基于双通道光子换热的多体平板结构温度分岔效应研究

郭雪, 何明键, 高包海, 任亚涛, 齐宏
(哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001)
(Tel: 18704504608, Email: hemingjian@hit.edu.cn)

摘要: 本文研究了由两种不同材料的交替板组成的周期性多体系统中的辐射传热和稳态温度的空间分布。与之相关的温度分布呈现出交替的空间模式, 并分为两个不同的组分, 每个组分对应于两种材料中的一种。这种结构周期性之后的空间温度变化是由相同材料的物体支持的电磁模式的长程耦合进行的双通道光子热交换导致的。此外, 针对系统中温度的热弛豫进行了分析, 以验证在动力学情况下的潜在应用。结果表明, 在瞬态过程中也可以设计和利用可调谐的非单调温度变化。本文提出的控制温度分布的双通道机制可为纳米器件的潜在应用, 特别是热光子驱动的逻辑电路和热管理提供新的思路 and 方向。

关键词: 近场热辐射; 多体系统; 光子隧穿; 双通道换热

0 前言

当物体间传输距离比小于特征波长的峰值或相当时, 辐射热通量超过普朗克定律定义的极限^[1-3]。在此情况下, 物体间的热辐射能量交换被称为近场辐射传热 (Near-field radiative heat transfer, NFRHT) ^[4-7]。在过去几十年里, 随着纳米科学的发展和纳米技术的逐渐成熟, NFRHT 理论得到了实验证实^[1, 8]。近年来, 该领域学者进行了大量的研究, 并得到了新的理论结果^[9-12]和实验工作^[1, 13], 其中大多数都集中在由两个相互作用体组成的系统中的辐射传热^[14-16]。

虽然对两体平板系统的研究已经很广泛, 但直到最近几年, 对许多体系统中的 NFRHT 的研究才开始出现并逐渐扩展^[17-23]。多体平板系统中的 NFRHT 涉及发射器之间的协同效应, 导致出现三体及两体系统中未出现的异常现象。因此, 描述多体结构中的辐射热传递需要一个适当结合多体热发射的理论框架^[17]。对于具有任意数量的物体和平面几何的系统, NFRHT 可以通过基于散射理论和波动电动力学方法的类 Landauer 形式来描述^[24]。在这个框架内, 在致密多体系统中证明了从超扩散到弹道传输的转变^[25], 研究了多层石墨烯系统中的稳态温度分布, 并预测了系统边界附近的温度阶跃^[26], 结合不同的材料在多体结构中提出热障的概念^[27]。

基金项目: 国家自然科学基金 (No. 52206082)、中国博士后科学基金 (No. 2021TQ0086)

在具有均匀性质的平面多体系统中，在系统边界处受到施加的温差的影响，只要没有内部热源或散热器，在稳态下总是单调温度分布。如果通过物体的热交换仅是由于第一邻居相互作用，内部无干扰的情况下异质系统中也可以预期单调分布。在此情况下，给定物体的静态温度必须介于相邻物体的温度之间。然而，如果非均匀系统中的热交换通过其组成部分之间的长程耦合进行，即超过第一邻居，则由于性质不同于近距离物体的远距离物体之间的有效耦合，可以实现非单调温度分布。在本工作中，这种行为是通过考虑两种在不同频率下支持表面声子激元(Surface Phonon Polaritons, SPhPs)的材料来实现的，两种材料在具有有限厚度交替材料平板的周期性结构中实现非单调效应。研究表明，双通道热传输导致温度分布分裂为两个不同的组分，每个组分对应于两种材料中的一种。因此，静止温度的总体空间分布显示出交替的模式。这种现象可以用来提高在纳米尺度上调节热量和控制温度的能力，为辐射热管理提供新的可能性。

1 多体平板结构的传热模型

考虑由 N 个平板组成的多体系统，该结构垂直 z 轴位于 z_j 位置的，并假设在 x 和 y 方向上是无限延伸，如图 1 所示。假设板的厚度 δ 相等，在以下结果中取 $\delta=200$ nm。假设系统在温度为 $T_B=T_N=300$ K 的环境中被加热。静态下，内部平板均已达到各自的平衡温度 $T_{j,\text{eq}}(1 \leq j \leq N)$ ，这些内部平板的温度分布在整个系统中是均匀的。多体系统由两种不同的材料 SiC 和 hBN 交替排列组成交替排列。

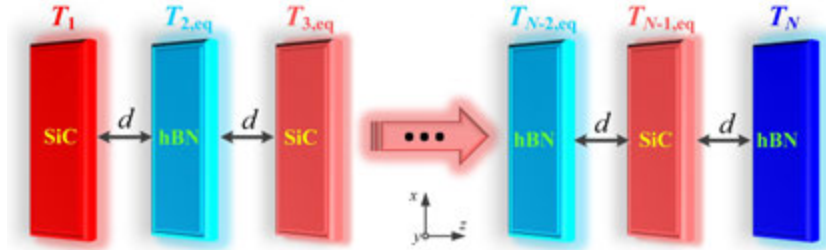


图 1 由 N 个平板组成的多体系统，以及在固定温度 $T_1=400$ K(红色)和 $T_N=300$ K(蓝色)下的两个外部板。假设该系统放置在真空中，并且相邻板之间的所有分离距离 d 是相同的。

SiC 和 hBN 在频率 ω 下的介电常数可以用 Drude-Lorentz 模型来描述，

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty \frac{\omega_L^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} \quad (1)$$

其中， ε_∞ 表示高频电容率， ω_L 表示纵向光学声子频率， ω_T 表示横向光学声子频率， Γ 为阻尼率。SiC 参数取为 $\varepsilon_\infty=6.7$ ， $\omega_L=1.83 \times 10^{14}$ rad/s， $\omega_T=1.49 \times 10^{14}$ rad/s， $\Gamma=8.97 \times 10^{11}$ rad/s，hBN 参数取为 $\varepsilon_\infty=4.9$ ， $\omega_L=3.03 \times 10^{14}$ rad/s， $\omega_T=2.57 \times 10^{14}$ rad/s， $\Gamma=1 \times 10^{12}$ rad/s。

物体 j 接收到的净辐射通量可以写成与其他物体交换的能量之和 φ_j ^[24]，

$$\varphi_j = \sum_{l \neq j} \varphi_{l,j} = \frac{1}{4\pi^2} \sum_{l \neq j} \int_0^\infty \hbar \omega n_{l,j} d\omega \int_0^\infty \kappa \xi^{l,j}(\omega, \kappa) d\kappa \quad (2)$$

其中, $l \neq j$ 从 1 到 N , \hbar 是简化的普朗克常数, $n_{lj}(\omega) = n_l(\omega) - n_j(\omega)$ 表示两个平均光子占用数 $n_{lj}(\omega) = [\exp(\hbar\omega / k_B T_{lj}) - 1]^{-1}$, k_B 是玻尔兹曼常数。 $\xi^{lj}(\omega, \kappa)$ 的计算为 p 和 s 极化的总和。 κ 是平行于界面波矢量的分量, 以及 $\xi^{lj}(\omega, \kappa)$ 描述了物体 1 和 j 之间的能量传输系数。

首先, 物体 j 的单个反射和透射系数可以写成

$$\rho_j = \frac{r_j (1 - e^{2ik_{zj}\delta_j})}{1 - r_j^2 e^{2ik_{zj}\delta_j}}, \quad \tau_j = \frac{(1 - r_j^2) e^{ik_{zj}\delta_j}}{1 - r_j^2 e^{2ik_{zj}\delta_j}} \quad (3)$$

其中, k_{zj} 是物体 j 内部波矢量的 z 分量, r_j 是物体 j 的真空—介质菲涅耳反射系数。多体散射反射和透射系数, 其中 ρ_j 和 τ_j 表示单个物体, 如下所示:

$$\begin{aligned} \rho_+^{j \rightarrow m} &= \hat{\rho}_+^{j \rightarrow m} e^{-ik_z(\delta_j + 2z_m)} \\ \rho_-^{j \rightarrow m} &= \hat{\rho}_-^{j \rightarrow m} e^{-ik_z(\delta_j - 2z_j)} \\ \tau^{j \rightarrow m} &= \hat{\tau}^{j \rightarrow m} \exp[-(m - j + 1)ik_z\delta_j] \end{aligned} \quad (4)$$

为了获得上面给出的多体散射系数, 需要对单个平板进行迭代计算, 其中 $\hat{\rho}_+^j = \hat{\rho}_-^j = \hat{\tau}^j = \tau_j$ 。并基于所获得的多体散射系数计算平板 1 和 j 之间的能量传输系数,

$$\xi^{l,j} = \hat{\xi}_{j-1}^l - \hat{\xi}_{j-1}^{l-1} - \hat{\xi}_j^l + \hat{\xi}_j^{l-1} \quad (5)$$

其中^[24],

$$\begin{aligned} \hat{\xi}_\gamma^j &= \frac{4|\tau^{j+1 \rightarrow \gamma}|^2 \text{Im}(\rho_+^{0 \rightarrow j}) \text{Im}(\rho_-^{\gamma+1 \rightarrow N})}{|1 - \rho_+^{0 \rightarrow \gamma} \rho_-^{\gamma+1 \rightarrow N}|^2 |1 - \rho_+^{0 \rightarrow j} \rho_-^{j+1 \rightarrow \gamma}|^2}, j < \gamma \\ \hat{\xi}_\gamma^\gamma &= \frac{4 \text{Im}(\rho_+^{0 \rightarrow \gamma}) \text{Im}(\rho_-^{\gamma+1 \rightarrow N})}{|1 - \rho_+^{0 \rightarrow \gamma} \rho_-^{\gamma+1 \rightarrow N}|^2} \\ \hat{\xi}_\gamma^j &= \frac{4|\tau^{\gamma+1 \rightarrow j}|^2 \text{Im}(\rho_+^{0 \rightarrow \gamma}) \text{Im}(\rho_-^{j+1 \rightarrow N})}{|1 - \rho_+^{0 \rightarrow j} \rho_-^{j+1 \rightarrow N}|^2 |1 - \rho_+^{0 \rightarrow \gamma} \rho_-^{\gamma+1 \rightarrow j}|^2}, j > \gamma \end{aligned} \quad (6)$$

2 异质材料交替分布的多体平板结构温度分岔效应

为探究温度分岔效应, 图 2 中绘制了两异质材料的多体系统的平衡温度曲线。当内部平板不再接受热流, 此时系统达到稳态, 即所有内部平板达到其自身的平衡(静止)温度 $T_{\text{eq}, j}(j=2, \dots, N-1)$ ^[28]。图中不同颜色的轮廓是相邻板之间不同分离距离的温度分布结果, 横轴表示系统中平板处于不同位置, 其中 $z_j / z_N = 0$ 表示左侧外部板, 分别用图 1 中的 1 和 N 编号。

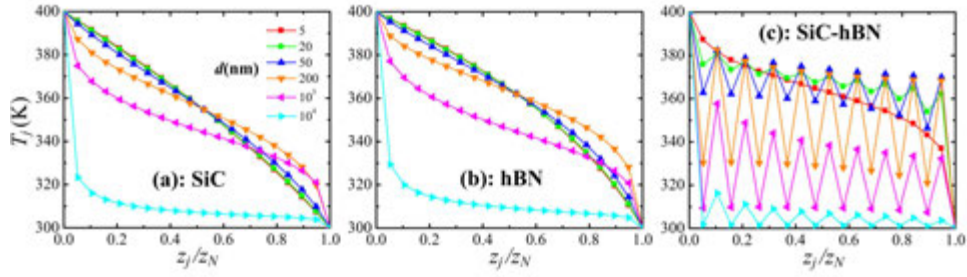


图2 由 $N=20$ 个平板组成的多体系统的平衡温度分布；(a)由 SiC 平板构成的系统；(b)由 hBN 平板构成的系统；(c)由 SiC 和 hBN 平板交替分布构成的系统，即 SiC 和 hBN 的数量均为 $N/2$

从图 2(a)和(b)的结果可以看出，对于由单一材料(SiC 或 hBN)制成的多体系统，温度分布随着分离距离的变化而单调。并且当 $d < 200$ nm 时各曲线变化几乎相同，皆随着分离距离的增加平板之间的热传递衰减。无论是 SiC 还是对于 hBN，由均一材料制成的系统在平衡温度分布上都呈现单调趋势。而图 2(c)由 SiC 和 hBN 交替分布构成的多体平板系统，在 $d=5$ nm 时温度为单调分布。由于第一相邻平板相互作用足够强，在很短时间内形成局部温度分布，并且在物体之间通常会发生热交换^[29]。图 2(c)显示当分离距离 $d > 5$ nm 时，温度分布呈现出由全局温度衰减调制的交替空间模式。随着 d 递增，温度的交替效应更加显著，此温度分布模式与 SiC 和 hBN 板交替排列紧密相关。当 $d=10$ μm ，内部 SiC 板的温度相比外部左侧 SiC 板显著减小；而 hBN 板的温度则骤减，并且与外部右侧 hBN 板温度几乎相同，接近 $T_N=300$ K(即与周围环境相同的温度)。从不同分离距离的温度分布可以看出，通过调节多体系统的密度可以获得不同幅度的温度分布。

3 双通道光子换热的机理分析

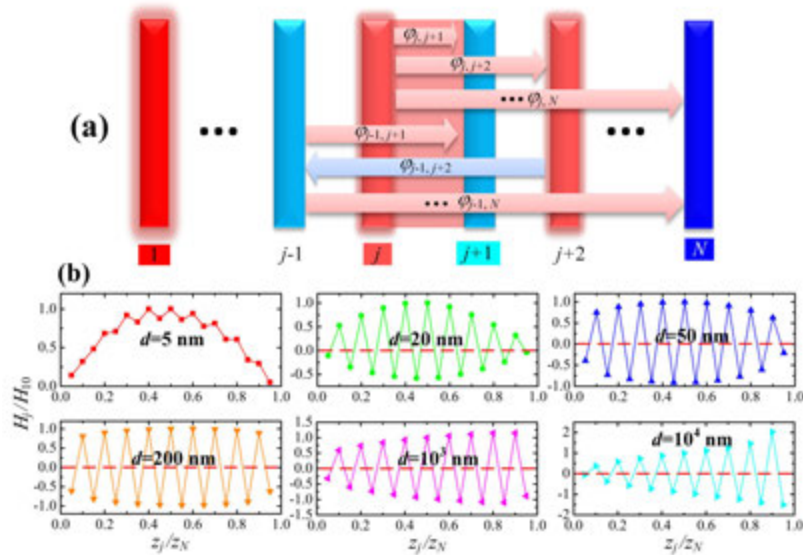


图3 (a)第 j 层和第 $j+1$ 层之间的辐射热通量 $q_{m,j}$ 示意图；(b)不同真空隙处的局部传热系数与中间位置处的局部热传递系数的比率，对于 $N=20$ 多体平板系统，中间位置位于编号为 10 和 11 的平板层之间。

为探索结构的热性能并定量评估系统内部的热传输，定义局部传热系数(Local Heat Transfer Coefficient, LHTC)，由

$$H_j = \frac{\Phi_{j,j+1}}{\Delta T_{j,j+1}} \quad (7)$$

其中， $\Phi_{j,j+1}$ 表示在第 j 层平板和第 $j+1$ 层平板间的净辐射通量， $\Delta T_{j,j+1}$ 为第 j 层平板和第 $j+1$ 层平板间温差。

净辐射通量可以写成从平板 $1-j$ 传递到 $j+1-N$ 的辐射热通量的总和，即

$$\Phi_{j,j+1} = \sum_{m=1}^j \sum_{n=j+1}^N \varphi_{m,n}, \text{ 如图 3(a)所示。} \varphi_{m,n} \text{ 表示物体 } m \text{ 和 } n \text{ 之间交换的辐射热通量，正负}$$

取决于两个物体之间的温差。在图 3(a)中，考虑到温度分布呈现出非单调的特点，箭头标记不同物体之间通过辐射传热交换的热通量，实现了交替的热传输模式。基于此，箭头的方向可以被视为不同物体之间交换的净热通量的方向。相比之下，由于左外部主体的温度高于右外部主体，净辐射通量 $\Phi_{j,j+1}$ 任何真空间隙中的总是从左到右进行(即是正的)。

LHTC, H_j 可以表示衡量多体系统中不同位置的热传输的自由度。对于 $d=5 \text{ nm}$, LHTC 比率在系统内的不同位置是正的，这与图 2(c)中单调的温度分布一致。系统两侧平板 LHTC 比值相对较小，在中间位置取得最大值，意味着中间的局部热阻小于系统两侧附近的局部热阻。然而，对于 $d>5 \text{ nm}$ ，由于温度分布的分岔，LHTC 比率表现出完全不同的变化行为。此外， $d=20 \text{ nm}$ 、 50 nm 和 200 nm 的数据呈现几乎对称的轮廓和位置，正负两侧表现出相似的趋势，即绝对值在系统两侧较低，在系统中间区域较高。而对于 $d=10^3 \text{ nm}$ 和 10^4 nm ，由于近场和远场状态下的不同传热行为以及环境浴的影响，导致对称性失真。

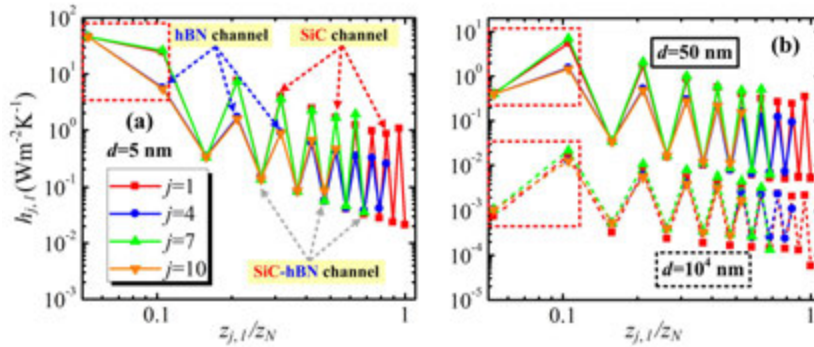


图4 平板 $j(j=1,4,7,10)$ 和平板 $l(l>j)$ 之间的传热系数,其中 $j=1$ 和 7 对应于SiC板, $j=4$ 和 10 对应于hBN板(a) $d=5 \text{ nm}$; (b) $d=50 \text{ nm}$ 和 10^4 nm

为进一步探究导致温度分布中交替模式和分岔的机理，同时避免分析中平衡温度的显式影响，定义传热系数(Heat Transfer Coefficients, HTC)s $h_{j,l}$ 如下：

$$h_{j,l} = \frac{\varphi_{j,l}}{\Delta T} = \frac{1}{4\pi^2} \int_0^\infty \hbar\omega \frac{\partial n}{\partial T} d\omega \int_0^\infty \kappa \xi(\omega, \kappa)^{j,l} d\kappa \quad (8)$$

当局部温差在 $T = 300$ K 附近趋近于零时，其中 $q_{j,l}$ 表示物体 j 和 l 之间交换的能量。横轴表示比值 $z_{j,l}/z_N$ 的值， $z_{j,l}$ 表示物体 j 和 l 之间的距离。每条曲线中从左起的第一个点表示物体 j 和其右侧相邻物体之间的 HTC，而每条曲线的最后一个点(右侧)代表物体 j 和 N 之间的 HTC。在 $d=5$ nm 的情况，如图 4(a)所示，对于三个通道，相邻物体(从左起的第一点)之间的 HTC 均大于其它位置，因此对于较短的间隔，相邻间的热传递比与远端物体的热交换更重要。图中红色的虚线方形突出显示了物体 j 和 $j+1$ 之间的 HTC 大于物体 j 和 $j+2$ 之间的 HTC。正如图 2(c)中所示，第一相邻的相互作用主导温度分布，温度由此呈现出单调行为。此外，在近场和远场两种情况下，取 $d=50$ nm 和 10^4 nm，图 4(b)显示了较大间隔的 HTC 的结果，如图中红色虚线方形标记，物体 j 和 $j+1$ 之间的 HTC 小于物体 j 和 $j+2$ 之间的 HTC。这也意味着，除在极端近场情况下，相同材料多构成的远距离物体之间的长程耦合导致热传递，比由异质材料间的第一邻居之间的热传递更为关键。从图中可以清楚地看出， $d>5$ nm 的情况下，SiC-hBN 通道的贡献相对较小，但热传导系数显示了 hBN 和 SiC 通道都在系统中起到了促进热交换的作用。在图 2(c)中，双通道光子热交换导致了图 2(c)中的温度分布分岔。

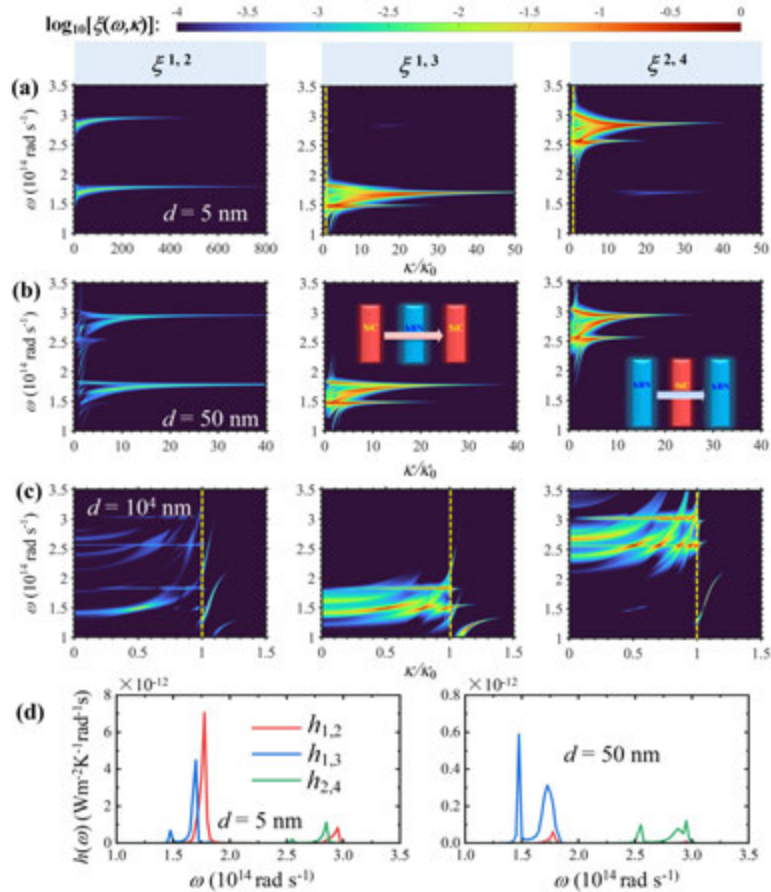


图 5 在(a) $d=5$ nm,(b) $d=50$ nm,(c) $d=10^4$ nm 处，不同平板间的能量传输系数：第一列为平板 1(SiC)和平板 2(hBN)；第二列为平板 1(SiC)和平板 3(SiC)；第三列为平板 2(hBN)和平板 4(hBN)。(d) $d=5$ nm 和 $d=50$ nm 的光谱传热系数

为全面了解 HTC 的行为和相关热交换通道，分析能量传输系数的影响。该系数描述了对结构中辐射传热有贡献的电磁模式的强度，更好地了解热能传输机制。图 5 表示频率波矢空间，其中，能量传输系数 $\xi_{1,2}$ 代表 SiC-hBN 通道，系数 $\xi_{1,3}$ 、 $\xi_{2,4}$ 则分别代表主导温度分布的分裂效应 SiC 和 hBN 通道的作用。在图 5 中的第一列、第二列和第三列中的系数 $\xi_{1,2}$ 、 $\xi_{1,3}$ 和 $\xi_{2,4}$ 分别研究了不同距离的平板间隔。首先分析图 5(a) 中 $d=5$ nm 的情况，对于 $\xi_{1,2}$ ，如图所示观察到两个共振峰，分别对应 SiC 支持的表面声子极化，即在较低频率下的共振，以及在较高频率下由 hBN 支持的共振模式。而在系数 $\xi_{1,3}$ 和 $\xi_{2,4}$ 中，只有与对应通道相关的谐振，另一通道几乎完全衰减。对于 $d=5$ nm 的多体平板系统，能量传输系数 $\xi_{1,2}$ 的波矢空间轮廓图显示在波矢较宽区域出现强信号，促进 SiC-hBN 通道中的热传递，并对应图 5(d) 光谱传热系数的峰值。该通道比单一的 SiC 的 $\xi_{1,3}$ 和 hBN 的 $\xi_{2,4}$ 通道的系数都要强，说明在异质材料交替分布的平板结构中，SiC-hBN 通道对热传递的贡献更大，进一步揭示了材料之间复杂的热交换机制。如上所述，对于 $d=5$ nm 的情况，第一相邻相互作用主导了热传递，因此表现为了单调温度分布。此外，由于表面波的耦合，薄膜的 SPhPs 共振周围的辐射传热得到增强^[30-32]。当较大间隔时，热传递情况呈现不同趋势，如图 5(b) 和 5(c) 所示，对于图 5(b) 中的 $d=50$ nm，SiC 和 hBN 通道的 SPhPs 共振比 SiC-hBN 通道中激发的共振更加强烈，后者由于 SPhPs 频率的失配产生阻尼。上述机理在图 5(d) 中的光谱传热系数图中得到了证实。对于 $d=50$ nm，由于热传递是由 SPhPs 介导，在近场中控制温度分布分岔的长程双通道热交换是通过光子隧穿实现的。而在 $d=10^4$ nm 的情况下，双通道热交换机制不同的，其透射系数如图 5(c) 所示。在这种情况下，未激发 SPhPs 发挥作用。相反，热传递通过传播波模式进行，其频率主要在每种材料的 Reststrahlen 带附近。

4 异质材料交替分布的多体平板结构的热弛豫特性

物体的温度 T 可以通过求解能量平衡方程来计算

$$\partial_t T = K \cdot T + S \quad (9)$$

其中， $K = H / (C\delta)$ 是根据传热矩阵定义的刚度矩阵 H ，且 $[H]_{l,j} = h_{l,j} (l, j = 1, \dots, N)$ ，这里，SiC 和 hBN 的单位体积热容 C 分别为 $8.15 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-3} \text{K}^{-1}$ 和 $1.846 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-3} \text{K}^{-1}$ ^[33, 34]，

$S = \frac{T_B}{C\delta} (h_{0,1} + h_{N+1,1}, \dots, h_{0,N} + h_{N+1,N})$ 表示与环境浴向每一层提供的功率相对应的源项，

其中 $T_B=300$ K 为环境温度。

假设初始时刻，系统中的所有平板都具有相同的温度 $T=300$ K，系统左侧的外部平板被加热，使其温度立即升高至 $T_1=400$ K。hBN 平板系统中的热松弛与 SiC 系统的热松弛相似，因此不再赘述。

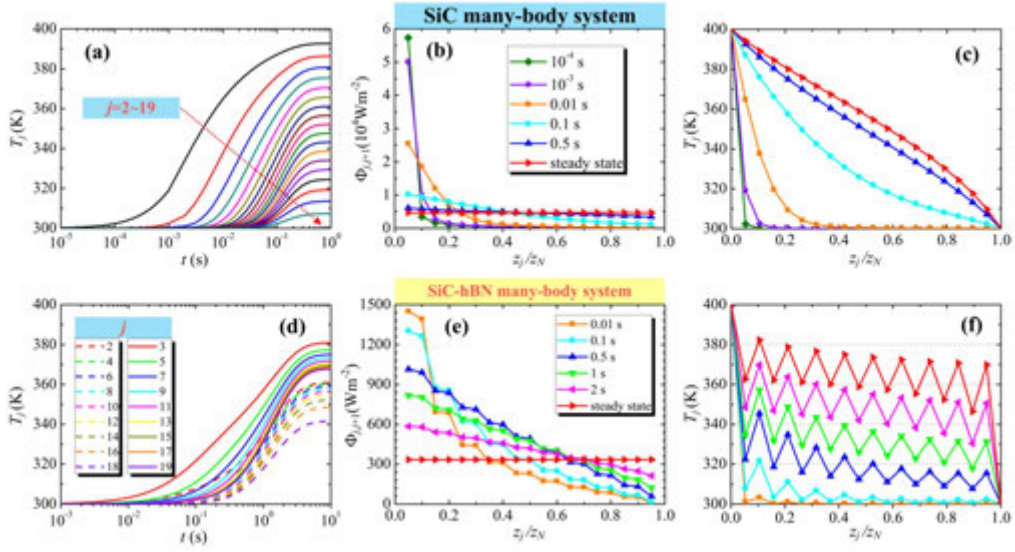


图6 SiC 多体平板系统和 SiC-hBN 多体系统的热弛豫动力学。(a)和(d)，表示不同物体随时间变化的瞬态温度， T_j , $j=2\sim 19$ 。(b)和(e)，表示设置不同时间下，平板 j 和 $j+1$ 之间传输的净辐射通量， $\Phi_{j,j+1}$ 。(c)和(f)，表示不同时刻的瞬态温度分布。

图 6(a)和(d)给出了不同物体的瞬态温度，显然 SiC-hBN 多体系统需要更长的时间才能达到稳态。为深入了解系统中从初始时刻到稳态的热传递，图 6(b)和(e)绘制了平板 j 和 $j+1$ 之间传输的净辐射通量，即 $\Phi_{j,j+1}$ 。由于第一个物体温度的骤然升高，系统左侧附近的净辐射通量开始变得更加强烈，随后逐渐减缓。与此同时，随着时间的推移，净辐射通量更加均匀地分布在其他位置。在长时间尺度上，在系统的热力学平衡时，辐射通量会达到一个稳定值，并持续下去。在图 6(e)中可以观察到，其中 $\Phi_{j,j+1}$ 分布呈现阶梯形，这意味着净热通量随着系统内部的位置而衰减。SiC-hBN 系统中热阻的存在可以证明所讨论的双通道传热机制。此外，在图 6(c)和(f)中，给出了不同时间的瞬态温度分布。从图中可以看出，温度分布的分岔从初始时刻发展到稳态，温度分布总是呈现出交替的模式。因此，分岔效应同样存在于瞬态分布中，图 6(d)中出现的缓慢热弛豫和图 6(f)的瞬态交替模式可以用来控制纳米级的热能传输。

5 结论

本文研究证明(1)在由异质材料的交替分布组成的多体系统中，存在温度分布的分岔效应，整体温度分布呈现出由两个不同成分组合产生的交替模式。(2)通过对系统中不同位置处物体之间的传热系数分析，揭示了存在两个双通道换热，产生温度分布的分岔效应的原因。双通道换热源于相同材料物体间的长距离耦合，从而允许远距离热量传输。研究表明，在极端近场中，随着物体变得更加均匀，温度分布的这两个分量会融合成单一分布，从而导致单调的行为。(3)此外，本文研究了系统的热弛豫动力学，并揭示了瞬态中温度分布的交替模式的可实现性。

参考文献

- [1] Kim K, Song B, Fernandez-Hurtado V, et al. Radiative heat transfer in the extreme near field[J]. **Nature**, 2015, 528(7582): 387-391.
- [2] Joulain K, Mulet J P, Marquier F, et al. Surface electromagnetic waves thermally excited: Radiative heat transfer, coherence properties and casimir forces revisited in the near field[J]. **Surface Science Reports**, 2005, 57(3-4): 59-112.
- [3] Liu X, Wang L, Zhang Z M. Near-field thermal radiation: Recent progress and outlook[J]. **Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering**, 2015, 19(2): 98-126.
- [4] Carlos Cuevas J, Garcia-Vidal F J. Radiative heat transfer[J]. **Acs Photonics**, 2018, 5(10): 3896-3915.
- [5] Tang G, Zhang L, Zhang Y, et al. Near-field energy transfer between graphene and magneto-optic media[J]. **Physical Review Letters**, 2021, 127(24): 247401.
- [6] Vongsoasup N, Francoeur M, Hanamura K. Performance analysis of near-field thermophotovoltaic system with 2d grating tungsten radiator[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2017, 115(326-332).
- [7] Zhu T, Zhang Z-Q, Gao Z, et al. First-principles method to study near-field radiative heat transfer[J]. **Physical Review Applied**, 2020, 14(2): 024080.
- [8] Shen S, Narayanaswamy A, Chen G. Surface phonon polaritons mediated energy transfer between nanoscale gaps[J]. **Nano Letters**, 2009, 9(8): 2909-2913.
- [9] Isobe K, Hirashima D, Hanamura K. Spectrally enhanced near-field radiation transfer using nanometer-sized pillar array structured surfaces[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2017, 115(467-473).
- [10] Dong J, Zhao J, Liu L. Long-distance near-field energy transport via propagating surface waves[J]. **Physical Review B**, 2018, 97(7): 075422.
- [11] Alkurdi A, Adessi C, Tabatabaei F, et al. Thermal transport across nanometre gaps: Phonon transmission vs. Air conduction[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2020, 158(119963).
- [12] He M-J, Qi H, Ren Y-T, et al. Magnetoplasmonic manipulation of nanoscale thermal radiation using twisted graphene gratings[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2020, 150(119305).
- [13] Fiorino A, Zhu L, Thompson D, et al. Nanogap near-field thermophotovoltaics[J]. **Nature Nanotechnology**, 2018, 13(9): 806-811.
- [14] Xu G, Sun J, Mao H, et al. Near-field radiative thermal rectification assisted by black phosphorus sheets[J]. **International Journal of Thermal Sciences**, 2020, 149(014070).
- [15] Salihoglu H, Xu X. Near-field radiative transfer by bulk hyperbolic polaritons across vacuum gap[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2021, 170(120984).
- [16] Yu Z, Li X, Lee T, et al. Near-field radiative heat transfer between weyl semimetal multilayers[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2022, 197(122666).
- [17] Ben-Abdallah P, Biehs S-A, Joulain K. Many-body radiative heat transfer theory[J]. **Physical Review Letters**, 2011, 107(11): 114301.
- [18] Messina R, Tschikin M, Biehs S-A, et al. Fluctuation-electrodynamics theory and dynamics of heat transfer in systems of multiple dipoles[J]. **Physical Review B**, 2013, 88(10): 104307.

- [19] Nikbakht M. Radiative heat transfer in anisotropic many-body systems: Tuning and enhancement[J]. **Journal of Applied Physics**, 2014, 116(9): 094307.
- [20] Latella I, Biehs S-A, Ben-Abdallah P. Smart thermal management with near-field thermal radiation invited[J]. **Optics Express**, 2021, 29(16): 24816-24833.
- [21] Iizuka H, Fan S. Significant enhancement of near-field electromagnetic heat transfer in a multilayer structure through multiple surface-states coupling[J]. **Physical Review Letters**, 2018, 120(6): 063901.
- [22] Biehs S A, Messina R, Venkataram P S, et al. Near-field radiative heat transfer in many-body systems[J]. **Reviews of Modern Physics**, 2021, 93(2): 025009.
- [23] Hu Y, Sun Y, Zheng Z, et al. Rotation-induced significant modulation of near-field radiative heat transfer between hyperbolic nanoparticles[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2022, 189(122666).
- [24] Latella I, Ben-Abdallah P, Biehs S-A, et al. Radiative heat transfer and nonequilibrium casimir-lifshitz force in many-body systems with planar geometry[J]. **Physical Review B**, 2017, 95(20): 205404.
- [25] Latella I, Biehs S-A, Messina R, et al. Ballistic near-field heat transport in dense many-body systems[J]. **Physical Review B**, 2018, 97(3): 035423.
- [26] He M-J, Qi H, Wang Y-F, et al. Near-field radiative heat transfer in multilayered graphene system considering equilibrium temperature distribution[J]. **Optics Express**, 2019, 27(16): A953-A966.
- [27] Zolghadr N, Nikbakht M. Radiative resistance at the nanoscale: Thermal barrier[J]. **Physical Review B**, 2020, 102(3): 035433.
- [28] Qu L, Zhang Y, Fang J-L, et al. Steady-state temperature distribution under near-field radiative heat transfer inside a linear chain of polaritonic nanoparticles[J]. **Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer**, 2021, 258(107404).
- [29] Latella I, Messina R, Biehs S-A, et al. Saturation of radiative heat transfer due to many-body thermalization[J]. **Scientific Reports**, 2020, 10(1): 8938.
- [30] Francoeur M, Menguc M P, Vaillon R. Near-field radiative heat transfer enhancement via surface phonon polaritons coupling in thin films[J]. **Applied Physics Letters**, 2008, 93(4): 043109.
- [31] Castillo-Lopez S G, Villarreal C, Esquivel-Sirvent R, et al. Enhancing near-field radiative heat transfer by means of superconducting thin films[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2022, 182(121922).
- [32] Zhang W B, Wang B X, Zhao C Y. Active control and enhancement of near-field heat transfer between dissimilar materials by strong coupling effects[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2022, 188(122588).
- [33] Sommers A, Wang Q, Han X, et al. Ceramics and ceramic matrix composites for heat exchangers in advanced thermal systems-a review[J]. **Applied Thermal Engineering**, 2010, 30(11-12): 1277-1291.
- [34] Singh S K, Neek-Amal M, Costamagna S, et al. Thermomechanical properties of a single hexagonal boron nitride sheet[J]. **Physical Review B**, 2013, 87(18): 184106.

二维 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 纤维掺杂粒子含量调控复合材料辐射特性研究

殷金英, 孙龙振, 宝伟芳

(1.哈尔滨理工大学 测控技术与通信工程学院, 哈尔滨 150080)

(Tel:13613679064, Email:jinying_yin@126.com)

摘要: $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 纤维材料常被用作隔热复合材料, 为优化 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料结构隔热性能, 本文建立了 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 纤维掺杂粒子的复合模型结构。采用时域有限差分方法 (FDTD) 计算了 $2.5\mu\text{m}$ - $50\mu\text{m}$ 光谱区间的散射截面、吸收截面、透射率、反射率等参数, 探讨了含量对复合介质辐射特性的影响, 及不同结构和基底对辐射隔热的效果影响。结果表明: TS 与 ST 两种复合结构辐射特性均受 SiO_2 含量调控, TS 复合结构散射截面、吸收截面随着 SiO_2 粒子体积占比增加而显著增大, ST 复合结构随着 TiO_2 粒子体积占比增加而减小, 两种 PS、PI 基体下粒子体积占比为 20% 时 ST 复合材料吸收截面大于 TS 结构值近 1 倍, 其复合材料阻隔热辐射性能优。本文研究结果为深入分析 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 纤维掺杂粒子型复合材料的辐射特性, 改善 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料的结构提供理论依据, 使其在安全热防护中更好地应用。

关键词: 时域有限差分方法; 隔热; $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 纤维; 辐射特性

0 前言

高性能复合材料是随着科学技术而发展起来的一种广泛应用的新材料, 是指采用碳纤维、玻璃纤维等纤维增强高性能树脂类材料。隔热性能是高性能复合材料研究重点, 满足多种不同方向的性能需求, 隔热材料中纤维材料按照形状结构分为隔热瓦、纤维毡、纳米纤维膜, 其中纳米纤维膜纤维直径小、材料厚度可控, 应用更加灵活^[1]。在诸多材料中, SiO_2 、 TiO_2 纤维材料以其优异的折光率和反射率成为隔热复合材料的热点, 在航天、半导体、建筑等领域应用广泛^[2-4]。

张钊^[5]通过计算建立陶瓷纤维隔热材料传热过程的相关数值模型, 发现在低温下, 传热主要以气体导热为主, 而在高温下, 辐射传热是传热的主要形式。许鲁等^[6]制备了一种 SiO_2 气凝胶混杂在芳纶非织造布上的材料, 并报道了其结构以及热阻等性能, 表明将气凝胶加入芳纶非织造布上对隔热性能和阻燃效果均有提高。Wu 等^[7]采用傅里叶变换红外光谱法测量了不同含量 TiO_2 纳米粒子的超细纤维 PVA 膜的光谱透射, 并计算消光系数和热辐射传导率, 结果表明 TiO_2 纳米粒子可提高电纺纤维材料的隔热性能。王杰等^[8]研究表明在 SiO_2 气凝胶中添加 TiO_2 作为遮光剂, 在辐射传输占主导地位的高温下显著降低了热导率。国外学者对材料的隔热辐射特性也有一些研究, Kallel 等^[9]测量了单个

基金项目: 黑龙江省高等教育教学改革研究项目“基于 CFD 流场虚拟仿真技术在热工类基础课程中教学研究”(SJGY20210385)

玻璃纤维的热辐射光谱，结果表明材料本身的光学特性对单个玻璃纤维的热辐射光谱特征或等效吸收影响较大。Zhao 等人^[10]等人结合热辐射行为的模型研究了纤维含量对氧化硅复合材料的辐射特性和热传递的影响。

从以上文献可知，目前 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料的热辐射特性研究多是通过实验测量得到，没有充分的纤维结构对其辐射特性影响分析。本文从复合介质含量及结构角度出发，建立一种以粒子与纤维形式复合的 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 纤维复合模型，以该结构为增强材料，及以聚苯乙烯（PS）以及聚酰亚胺（PI）为基体复合材料的模型，采用 FDTD 数值法数值计算，分析 $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ 复合材料含量及结构变化，以及两种基体复合材料的辐射特性，通过数值计算分析不同含量和结构对材料的辐射特性的影响，分析材料最优结构，为复合材料制作及应用提供理论依据。

1 结构模型及研究方法

建立纤维掺杂粒子型材料模型，研究材料为 SiO_2 、 TiO_2 的粒子与纤维复合结构，PI、PS 两种树脂基体的复合材料为增强材料。以长圆柱模型表示纤维，以球体模型表示粒子，以长方体模型表示基体，模型及二维平面上随机分布结构（平行于 XOY 面）示意图 1。模型建立基于假设（1）纤维及粒子是均质的；（2）纤维与粒子表面是光滑的；（3）选取的模型包含了所有微观特性；（4）基体与纤维及粒子之间没有空隙。模型纤维以及粒子的直径取为一段长度内随机分布，纤维及粒子材料分别取 SiO_2 、 TiO_2 时，分别给纳米粒子及纳米纤维模型添加 SiO_2 、 TiO_2 的复折射率^[11-12]。记 TiO_2 纳米纤维掺杂 SiO_2 纳米粒子复合材料为 TS 复合材料， SiO_2 纳米纤维掺杂 TiO_2 纳米粒子复合材料为 ST 复合材料。由赵金伟等人研究给出纳米 TiO_2 粉体粒径主要集中在 $0.1\mu\text{m}$ - $1\mu\text{m}$ 之间^[13]，华媛等人给出 SiO_2 纳米纤维/纳米粒子复合材料扫描电镜图像中粒子及纤维直径范围 $0.1\mu\text{m}$ - $1\mu\text{m}$ ^[14]，文中计算设置纤维直径范围为 $200\text{-}400\text{nm}$ ，粒子直径范围为 $200\text{-}400\text{nm}$ 。

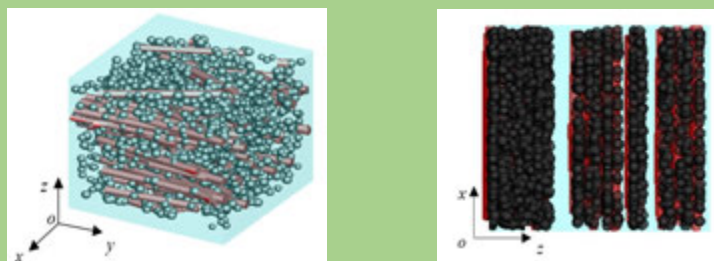


图 1 二维纳米纤维掺杂粒子复合材料模型示意图

在仿真计算中利用时域有限差分法（FDTD）求解麦克斯韦方程，在 FDTD 软件中建立计算模型如图 2，选取周期性边界条件，光源沿 z 轴反方向射入，为全场散射场光源（TFSF），计算区域为 $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ ，纤维与粒子以外的空间为介质，设置监视器，图中 A 表示吸收截面监视器，S 表示散射截面监视器，PBC 为周期性边界条件。基体、吸收监视器、光源、散射监视器之间相隔间距分别为 $2\mu\text{m}$ 、 $2\mu\text{m}$ 、 $2\mu\text{m}$ ，探测由波长范围为 $2.5\mu\text{m}$ - $50\mu\text{m}$ 光谱区间内的吸收截面 C_{abs} 、散射截面 C_{scat} ，透射率 T 及反射率 R。

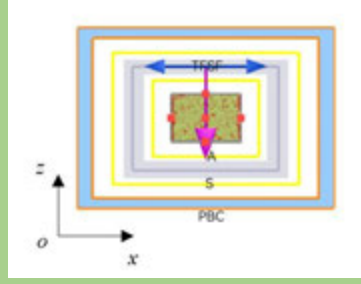
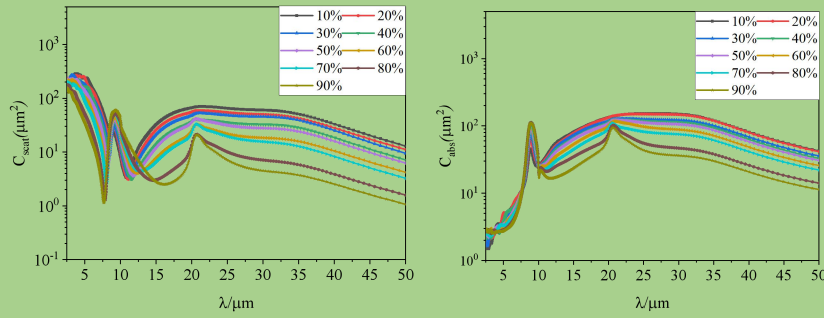


图 2 FDTD 仿真计算模型图

2 不同含量下的纤维掺杂粒子型 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料

2.1 二维随机分布的 TiO_2 纤维掺杂 SiO_2 粒子复合材料

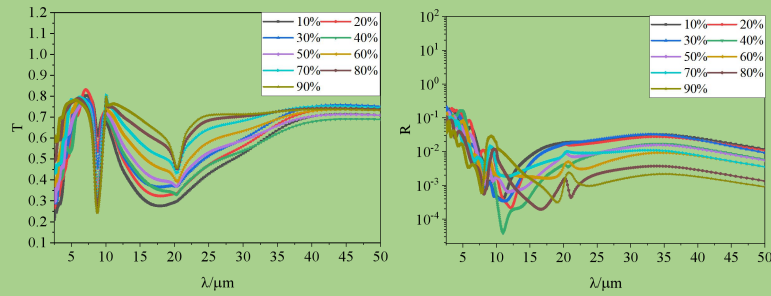
为了详细分析不同材料含量对复合结构的辐射特性影响，选取不同的 SiO_2 粒子体积占总体积中的比例 V_s ，同时纳米纤维体积与纳米粒子体积为不变值，是模块总体积的 0.1，计算 SiO_2 粒子占比为 10%、20%、30%、40%、50%、60%、70%、80%、90%， TiO_2 纤维直径为 200-400nm 时 TS 复合结构辐射特性。



a) 散射截面

b) 吸收截面

图 3 不同 SiO_2 纳米粒子体积占比时二维分布 TS 复合材料散射、吸收截面



a) 透射率

b) 反射率

图 4 不同 SiO_2 纳米粒子体积占比时二维分布 TS 复合材料透射率、反射率

图 3、4 为二维分布 TS 复合结构不同 SiO_2 纳米粒子体积占比的散射、吸收截面、透射率、反射率计算结果。由图 3 可知，不同 SiO_2 纳米粒子体积占比下二维平面随机分布 TS 复合结构的散射截面和吸收截面曲线在全波段变化趋势大致相似。在粒子体积占比为

30%，波长 2.5 μm 处，有最高的散射截面和最低的吸收截面。由图 4 可知，不同 SiO_2 纳米粒子体积占比下二维平面随机分布 TS 复合结构的反射率和透射率曲线在全波段变化趋势大致相似，反射率曲线在 25 μm 波长以后趋势平缓。在粒子体积占比为 30%，波长 2.5 μm 左右处反射率最大。在粒子体积占比为 90%，波长 8.8 μm 左右处透射率最小值。

由上述分析，二维分布 TS 复合结构的辐射特性与 SiO_2 纳米粒子体积占比变化成正比，二维分布 TS 复合结构在粒子体积占比为 90%，波长 8.8 μm 左右处，有较高的散射截面和较低的吸收截面，及较高的反射率和较低的透射率。透射率曲线各峰值的出现与 SiO_2 红外光谱各振动峰的出现以及 TiO_2 红外光谱各振动峰的出现不完全吻合^[15]，可见二维分布 TiO_2 纤维掺杂 SiO_2 粒子复合材料，辐射特性不以单一材料的辐射特性为主，是两种材料复合后形成的新的辐射特性。

表 1 二维随机分布 TS 复合材料辐射特性积分平均值

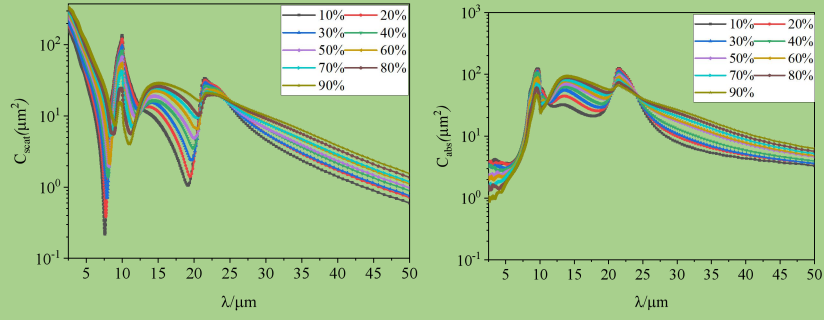
V_s	$C_{\text{scat}}(\mu\text{m})$	$C_{\text{abs}}(\mu\text{m})$	T	R
10%	13.87	20.85	0.691	0.0039
20%	15.09	22.39	0.705	0.0041
30%	15.44	23.08	0.711	0.0036
40%	16.61	24.37	0.707	0.0035
50%	17.30	26.24	0.707	0.0041
60%	19.20	26.83	0.721	0.0052
70%	20.46	27.70	0.718	0.0054
80%	21.89	29.08	0.703	0.0043
90%	24.29	30.21	0.711	0.0073

不同体积占比下散射、吸收截面，透射率、反射率在整个波段的积分平均值，计算结果如表 1 所示。由表 1 可知，二维分布 TS 复合结构辐射特性随着 SiO_2 粒子体积占比增加而增大。相比于粒子体积占比为 10%，粒子体积占比为 30%、50%、90%时散射截面、吸收截面积分平均值增加 11%、38%、75%和 10%、25%、44%，随体积占比增大透射率最大增加 4%，反射率最大增加 87%。 SiO_2 粒子体积占比增加，即其成分含量增加， SiO_2 成分本身具有吸收红外波谱的能力。

2.2 二维随机分布的 SiO_2 纤维掺杂 TiO_2 粒子复合材料

对不同 TiO_2 纳米粒子体积占比的二维分布 ST 复合结构模型进行仿真，分别计算散射、吸收截面，透射率、反射率，图 5、图 6 为计算结果。由图 5 可知，不同 TiO_2 纳米粒子体积占比下二维平面随机分布 ST 复合结构的散射截面和吸收截面曲线在全波段变化趋势大致相似，散射截面、吸收截面曲线随着粒子体积占比变化而增减，与粒子体积变化成比例，各条曲线波峰波谷在相近波长处。粒子体积占比为 90%，波长 2.5 μm 左右处，有散射截面最大值和吸收截面最小值。由图 6 可知不同 TiO_2 纳米粒子体积占比下二维分布 ST 复合结构的反射率和透射率曲线在全波段变化趋势大致相似，在 10 μm -37 μm 波段重合率较高，透射率和反射率变化与粒子体积占比成比例。在粒子体积

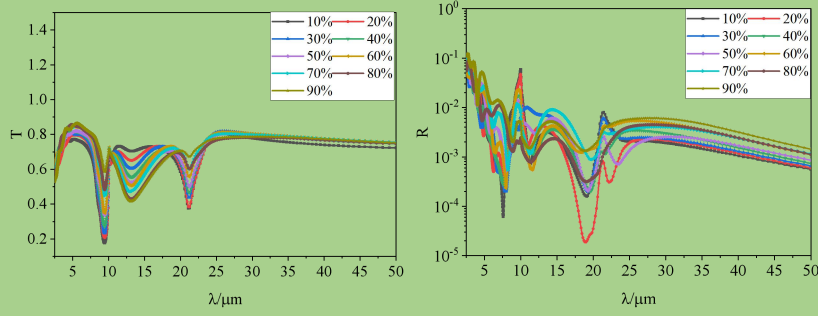
占比为 90%，波长 $2.5\mu\text{m}$ 左右处有反射率最大值。波长 $9.17\mu\text{m}$ 左右处以及波长 $22.9\mu\text{m}$ 左右处不同粒子体积占比曲线均有反射率极大值。在粒子体积占比为 10%，波长 $8\mu\text{m}$ 左右处有透射率最小值，波长 $13\mu\text{m}$ 以及 $22.9\mu\text{m}$ 左右处不同粒子体积占比曲线均有透射率极小值。



a) 散射截面

b) 吸收截面

图 5 不同 TiO_2 纳米粒子体积占比时二维分布 ST 复合材料散射、吸收截面



a) 透射率

b) 反射率

图 6 不同 TiO_2 纳米粒子体积占比时二维分布 ST 复合材料透射率、反射率

综合来看，二维分布 ST 复合结构的辐射特性与 TiO_2 纳米粒子体积占比变化成比例，二维分布 ST 复合结构在粒子体积占比为 90%，波长 $2.5\mu\text{m}$ 处，有最高的散射截面和最低的吸收截面，在粒子体积占比为 10%，波长 $8\mu\text{m}$ 左右处，有较高的反射率和较低的透射率。透射率曲线各峰值的出现与 SiO_2 红外光谱各振动峰的出现相吻合^[15]，可见在以 TiO_2 为粒子 SiO_2 为纤维的二维分布纤维掺杂粒子型复合结构，其辐射特性以 SiO_2 辐射特性为主。

不同体积占比下散射、吸收截面，透射率、反射率在整个波段的积分平均值，计算结果如表 2 所示。由表 2 可知，二维分布 ST 复合结构辐射特性随着 TiO_2 粒子体积占比增加而减小。相比于粒子体积占比为 10%，粒子体积占比为 30%、50%、90%时散射截面、吸收截面积分平均值减小 22%、43%、79%和 14%、23%、66%，随体积占比增大透射率最大增加 27%，反射率最大增加 4 倍。 TiO_2 粒子体积占比增加，即其成分含量增

加，SiO₂成分含量减小，SiO₂成分本身具有吸收红外波谱的能力。因此吸收和散射截面减小。透射率呈现缓慢增加趋势，反射率随粒子体积占比增加而增大。

表 3-1 二维随机分布 ST 复合材料辐射特性积分平均值

V_T	$C_{\text{scat}}(\mu\text{m})$	$C_{\text{abs}}(\mu\text{m})$	T	R
10%	57.18	85.64	0.536	0.025
20%	49.47	85.53	0.567	0.024
30%	44.14	73.55	0.592	0.022
40%	35.21	68.89	0.547	0.015
50%	32.24	65.39	0.582	0.0131
60%	24.84	57.08	0.618	0.0099
70%	21.89	49.26	0.652	0.0105
80%	14.07	35.80	0.669	0.0052
90%	11.47	29.12	0.681	0.0043

3 不同基体下的纤维掺杂粒子型 TiO₂/SiO₂ 复合材料辐射特性

3.1 二维随机分布聚苯乙烯纤维掺杂粒子型 TiO₂/SiO₂ 复合材料

由纤维掺杂粒子型 TiO₂/SiO₂ 复合材料的纤维直径范围选取 200nm-400nm，粒子粒径选取 200nm-400nm，粒子体积占比分别选取 20%、50%、80%，计算聚苯乙烯纤维掺杂粒子型 TiO₂/SiO₂ 复合材料的散射、吸收截面，透射率、反射率，计算结果如图 7、8 所示。

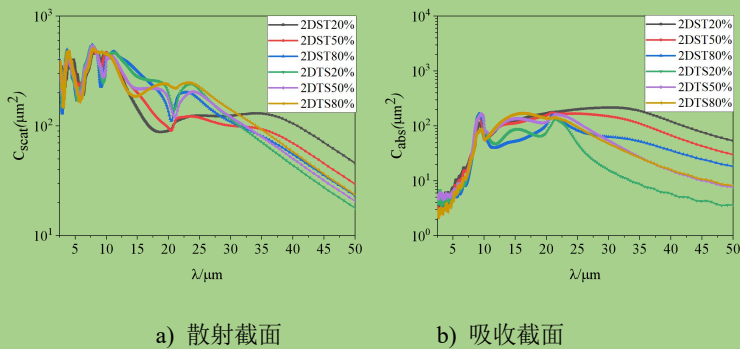


图 7 二维分布聚苯乙烯纤维掺杂粒子型 TiO₂/SiO₂ 复合材料散射、吸收截面

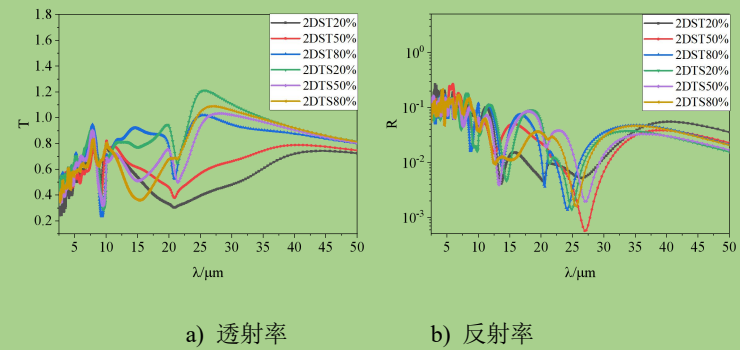


图 8 二维分布聚苯乙烯 TiO₂ 纤维掺杂 SiO₂ 粒子复合材料透射率、反射率

由图 7、8 可知，二维分布的聚苯乙烯基纤维掺杂粒子型 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料的散射截面不与粒子体积占比变化成比例，在 $7.7\mu\text{m}$ 波长处，有最大的散射截面，吸收截面整体呈先增后减再增趋势，其吸收截面在波长 $2.5\mu\text{m}$ 处有最小值。透射率曲线在 $2.5\mu\text{m}$ - $11.5\mu\text{m}$ 波段重合率较高，在波长 $9.3\mu\text{m}$ 处有最小值，反射率曲线在整个波段重合率较高，曲线振荡频率高，在波长 $6\mu\text{m}$ 处有最大值。

可以看出，ST 复合结构散射截面总体稍小于 TS 复合材料值，ST 复合结构吸收截面远大于 TS 值，两种结构透射率、反射率变化不大，即聚苯乙烯基 TiO_2 纤维掺杂 SiO_2 粒子复合材料隔热性能更优。结合图中数据，其中粒子占比为 20% ST 复合结构吸收截面高于 TS 复合结构 1 倍多，粒子占比为 20% ST 复合结构透射率变化小，在反射率和吸收截面变化不大的情况下，粒子体积占比为 20% 的聚苯乙烯基 ST 复合材料阻隔热辐射性能较好。

3.2 二维随机分布聚酰亚胺基纤维掺杂粒子型 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料

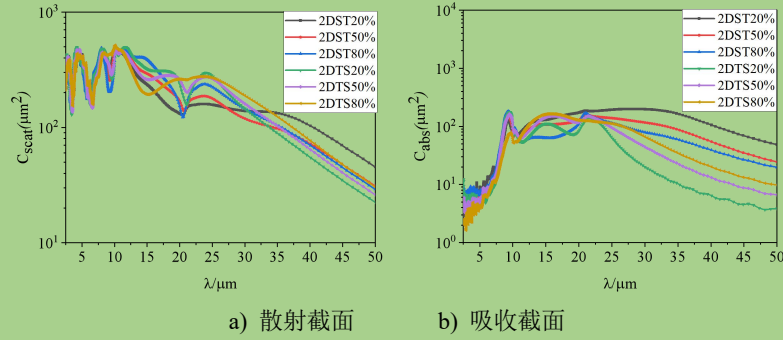


图 9 二维分布聚酰亚胺基纤维掺杂粒子型 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料散射、吸收截面

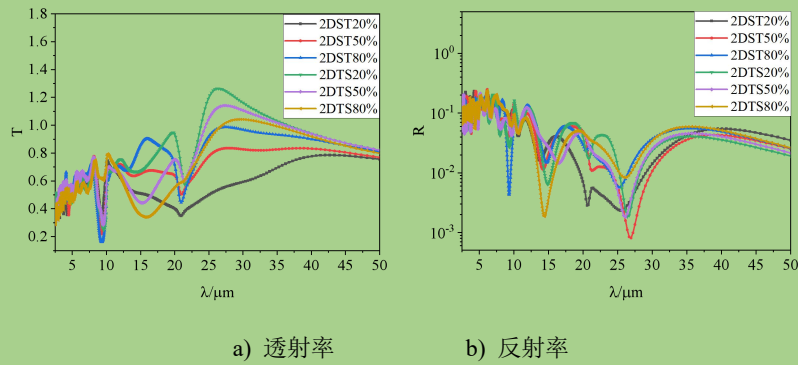


图 10 二维分布聚酰亚胺基纤维掺杂粒子型 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料透射率、反射率

由图 9、10 可知，聚酰亚胺基纤维掺杂粒子型 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料的散射截面曲线重合率较高，在 $10\mu\text{m}$ 波长处，有最大的散射截面，吸收截面在波长 $3\mu\text{m}$ 处有最小值。透射率曲线在 $2.5\mu\text{m}$ - $10.2\mu\text{m}$ 波段重合率较高，在波长 $9.3\mu\text{m}$ 处有最小值，反射率曲线在整个波段重合率较高，曲线振荡频率高，在波长 $6\mu\text{m}$ 处有最大值。

可以看出，ST 复合结构散射截面总体稍小于 TS 复合材料值，ST 复合结构吸收截面

面远大于 TS 值,两种结构透射率、反射率变化不大,即聚酰亚胺基 TiO_2 纤维掺杂 SiO_2 粒子复合材料隔热性能更优。结合图中数据,其中粒子占比为 20% ST 复合结构吸收截面高于 TS 复合结构近 90%,粒子占比为 20% ST 复合结构透射率变化小,在反射率和吸收截面变化不大的情况下,粒子体积占比为 20%的聚苯乙烯基 ST 复合材料阻隔热辐射能性能较好。

4 结 论

因 TiO_2 纤维材料优异的折光率和反射率,常被用作隔热复合材料,广泛应用于热防护系统中,能有效提高系统的本质安全。为优化 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 复合材料的结构,使其得到更好地应用,本文通过 FDTD 软件对多种结构的纤维掺杂粒子型 TiO_2 复合材料的散射截面、吸收截面、透射率、反射率等参数进行计算模拟,得出以下结论:TS 与 ST 复合结构辐射特性随波长变化的峰值规律均遵循 TiO_2 与 SiO_2 红外光谱峰值规律;由于 SiO_2 成分本身具有吸收红外波谱的能力,TS 复合结构散射截面、吸收截面随着 SiO_2 粒子体积占比增加而显著增大,ST 复合结构随着 TiO_2 粒子体积占比增加而减小;粒子体积占比为 20% 时聚苯乙烯基、聚酰亚胺基 ST 复合结构吸收截面大于 TS 值 1 倍左右,其复合材料阻隔热辐射能性能较其它结构优。本论文采用仿真模拟计算材料辐射特性,从理论上对材料的辐射特性进行探究,后续可以进行不同工况下的对比实验,从理论和实验综合考虑,可以更加明确材料的性能。两种 PS、PI 基体下的 TiO_2 纤维掺杂 SiO_2 粒子复合材料的辐射特性,

参考文献

- [1] 王荣国,王进美. 隔热材料及其织物的研究现状和发展趋势. 合成纤维, 2022, 51(03): 35-38
- [2] 于镇洲. SiO_2 气凝胶纤维复合材料制备及其在建筑节能领域应用的进展. 复合材料科学与工程, 2022(09): 124-132
- [3] 舒心,刘朝辉,丁逸栋,等. 纳米 SiO_2 气凝胶的制备及保温隔热性应用研究进展. 材料导报, 2018, 32(05): 788-795
- [4] 王雪琴,俞建勇,丁彬. 纳米纤维隔热材料在航空航天领域的应用进展. 纺织导报, 2018(S1): 68-72
- [5] 张钊. SiO_2 基纤维隔热瓦热导率及压缩性能研究[硕士论文]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2014
- [6] 许鲁,王虹,颜肇基,等. SiO_2 气凝胶混杂芳纶非织布的性能研究. 现代纺织技术, 2018, 26(01): 22-25
- [7] Wu H J, Fan J T, Qin X H, et al. Thermal radiative properties of electrospun superfine fibrous PVA films. Materials Letters, 2008, 62(6-7)
- [8] 肖沅谕,高龙飞,陈博,李松. 石英纤维/聚酰亚胺复合材料的制备与性能. 复合材料学报, 2020, 37(10): 2394-2400
- [9] Wang J., Kuhn J., X. Lu, Monolithic Silica Aerogel Insulation Doped with TiO_2 Powder and Ceramic Fibers. Journal of Non-Crystalline Solids, 1995, 186: 296-300
- [10] Zhao L, Yang S, Bikram Bhatia, et al. Modeling Silica Aerogel Optical Performance By Determining its Radiative Properties. AIP Advances, 2016, 6(2) : 1-4
- [11] Kallel H, Doumouro J, Krachmalnicoff V, et al. Thermal emission from a single glass fiber[J]. Journal

of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2019, 236(2): 1-8

[12] Thomas Siefke, Stefanie Kroker, Kristin Pfeiffer, etc. Materials Pushing the Application Limits of Wire Grid Polarizers further into the Deep Ultraviolet Spectral Range. Adv. Optical Mate, 2016(2):1-7

[13] 赵金伟,袁敏,郑建明等.离心沉降光透法测定纳米 TiO₂ 粉体粒径.分析仪器, 2011, 175(03):62-65

[14] 华媛. SiO₂ 纳米纤维/纳米粒子复合材料的制备及性能探究[硕士论文]. 上海: 东华大学, 2022

[15] 李雪艳. 二氧化钛/聚苯胺复合微粒材料的制备、结构和性能研究[硕士论文]. 天津:天津大学, 2008

球头型光学窗口表面激波层红外辐射照度唯象模型

时东文¹, 朱雨桐¹, 贺志宏¹, 牛青林², 董士奎¹

¹ 哈尔滨工业大学, 空天热物理工业和信息化部重点实验室, 哈尔滨, 150001

² 中北大学, 机电工程学院, 太原, 030051

Tel: 0451-86412108, Email: dongsk@hit.edu.cn

摘要: 本文以前视型红外制导导弹的球头型光学窗口表面为投射对象, 建立了不同飞行参数、窗口参数下的激波层辐射照度预测模型。考虑了三种主要的辐射贡献源 H_2O 、 CO_2 和 CO , 采用逐线法 (LBL) 计算气体的辐射物性, 视在光线法 (LOS) 求解辐射传输方程, 使用基于回归分析的唯象方法确定影响因素与辐射照度 ($3-5\mu m$, $8-12\mu m$) 之间的参数化关系, 发展了快速计算公式。影响因素包括飞行参数 (高度 $0.4-8.4km$ 、马赫数 $1.6-4.4Ma$) 以及窗口参数 (球头半径 $0.11-0.30m$ 、入射点极化角 $0-45^\circ$)。

关键词: 红外辐射噪声; 激波绕流场; 回归分析; 唯象理论

0 前言

传统的红外目标探测技术主要依靠目标的红外辐射信号实现探测、识别以及跟踪能力, 作为一种非接触探测技术, 红外技术已经广泛应用于军事、安防、工业等领域^[1-5]。高速飞行器在飞行过程中, 头部气体受到压缩产生紧贴壁面的激波, 高温激波绕流气体会加热目标表面, 改变其温度分布、辐射特性和谱线特征等^[6], 这对于被动红外探测系统来说是一种可利用的信息来源。然而, 装载红外探测系统的导弹在高速运动时, 绕过其表面的高温气体会给探测系统本身带来很强烈的辐射干扰^[7], 使得探测器接收到的信号发生改变, 降低探测的有效性。红外辐射噪声不仅会降低红外探测系统的灵敏度, 也会增加误报率, 使得目标的识别和追踪变得更加困难。当辐射噪声较大时, 不仅会使红外信号被淹没, 甚至会导致成像器件损坏而无法正常工作。

由于涉及到不同飞行参数、不同窗口参数等多类因素影响, 激波层的红外辐射信号规律复杂。迄今为止, 对激波层红外辐射噪声影响因素的定量研究并不充分, 此外, 研究激波层辐射问题, 计算量大, 需要分波段建立辐射照度的预测模型, 以适应不同场景下的工程设计需求。

本文的研究目的是使用基于回归分析的唯象方法发展一个有效的模型, 用于快速预测球头型光学窗口表面接收到的激波层红外辐射照度, 波段范围为 $3-5\mu m$ 和 $8-12\mu m$ 的大气窗口。

1 数值计算模型

1.1 流动控制方程

本研究的工况中, 激波层内气体分子仅处于平动和转动模式, 不考虑化学反应。具有质量、动量和能量守恒的非定常可压缩 Navier-Stokes 方程^[8]可用以下公式表示:

连续性方程为:

$$\frac{\partial \rho_s}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho_s u_j) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho_s D_s \frac{\partial y_s}{\partial x_j} \right) \quad (1)$$

式中， ρ 为密度， t 是时间， D 表示扩散系数， x_j 、 u_j 分别是第 j 个分量坐标和速度， s 代表物种 s 。

动量守恒方程为：

$$\frac{\partial \rho u_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_i u_j) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial \bar{\tau}_{ij}}{\partial x_j} \quad (2)$$

式中， p 是混合气体压力， $\bar{\tau}$ 表示粘性应力张量，可以写为：

$$\bar{\tau}_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \mu \delta_{ij} \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \quad (3)$$

式中， μ 是混合气体粘性系数， δ_{ij} 是克罗内克函数。

能量守恒方程为：

$$\frac{\partial \rho E}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_j H}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\bar{\eta} \frac{\partial T}{\partial x_j} \right) + \frac{\partial}{\partial x_j} (u_i \tau_{ij}) + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho \sum_{s=1}^{ns} D_s h_s \frac{\partial y_s}{\partial n} \right) \quad (4)$$

式中， E 和 H 分别是单位质量的总能量和总焓， $\bar{\eta}$ 是导热系数。

1.2 气体辐射物性参数

考虑 CO_2 、 H_2O 和 CO 三种大气痕量组分作为辐射贡献源，这些多原子分子由于其固有振动基态的振动跃迁引起气体的发射或吸收。高温气体辐射特性由任意波长的吸收系数决定，它反映了物种发射和吸收光子的能力，大小取决于混合气体组分的种类、浓度、压力和温度。基于逐线算法 (LBL) 求解吸收系数^[9]：

$$\kappa_{ul}(\lambda) = \frac{A_{ul} \lambda_{ul}^4}{8\pi c_o} \frac{N}{Q} g_u \exp\left(-\frac{E_l}{k_B T}\right) \times \left[1 - \exp\left(-\frac{E_u - E_l}{k_B T}\right) \right] \phi(w, \lambda - \lambda_{ul}) \quad (5)$$

式中， $\kappa_{ul}(\lambda)$ 是光谱吸收系数， λ_{ul} 是谱线中心， A_{ul} 是自发辐射跃迁的爱因斯坦系数， Q 是配分函数， g_u 是高能级简并度， $\phi(w, \lambda - \lambda_{ul})$ 是在波长范围加宽的谱线线型函数。

HITEMP^[10] 是气体分子高分辨率数据库，用于提供标准工况下 ($T=296\text{K}$, $P=1\text{atm}$) 的详细光谱参数，包括谱线位置、谱线强度、低能级能量、空气和自增宽半宽等。在本研究中，基于 HITEMP 数据库计算各气体组分的吸收系数，Voigt 线型函数^[11]用于考虑压力和温度引起的谱线增宽效应。

1.3 辐射传输计算模型

本文研究涉及到的流场不包含散射介质，即激波绕流场不含热防护系统 (TPS) 产生的烧蚀分解产物。由于不涉及颗粒散射问题，气体散射忽略不计，因此采用视在光线法 (LOS) 求解辐射传输问题。在发射和吸收同时发生的气体介质中，通过引入光学厚度 $\tau_\lambda = \kappa_{s,\lambda} L$ ，光谱辐射强度在任意方向上的变化可以用辐射传输方程 (RTE)^[12] 来描述：

$$\frac{dI_\lambda(\tau_\lambda)}{d\tau_\lambda} = -I_\lambda(\tau_\lambda) + I_{b\lambda}(\tau_\lambda) \quad (6)$$

视在光线法离散形式的表达式如下：

$$I_\lambda^i = I_\lambda^{i-1} \tau_\lambda^i + I_{b,\lambda}^i (1 - \tau_\lambda^i) \quad (7)$$

式中， I_λ^i 和 τ_λ^i 分别表示第 i 层介质的光谱辐射强度和光学厚度。

在研究激波层投射到光学窗口的辐射特性问题时，光线不能看作是平行光，而是由空间中不同方向入射到探测位置，具有方向特征。为了方便将辐射路径离散化，需要划分如图 1 所示的辐射场半球网格。按照天顶角、圆周角方向划分网格，将辐射场分别划分为 $M \times N$ 份，以微元面的中心到入射点方向作为光线方向，可以确定序号为 $[m, n]$ 的

微元束对应的天顶角和圆周角分别为：

$$\begin{aligned}\alpha_{m,n} &= \frac{\pi(m-1/2)}{2M} \\ \beta_{m,n} &= 2\pi \frac{(n-1/2)}{N}\end{aligned}\quad (8)$$

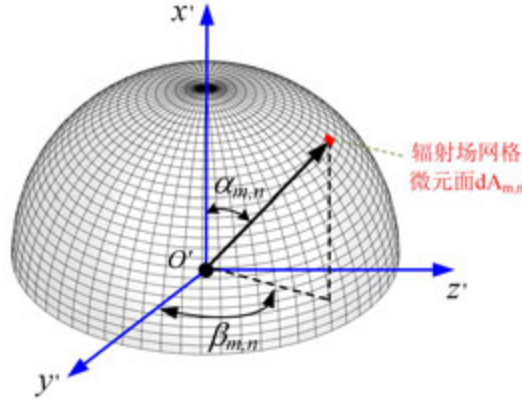


图1 辐射场网格示意图

微元束的辐射亮度值可以表示为：

$$I'_{m,n} = I_{\lambda} \cos(\alpha_{m,n}) \Delta\lambda \quad (9)$$

式中， $\Delta\lambda$ 是波长变化范围， I_{λ} 是光谱辐射强度， $I'_{m,n}$ 表示辐射亮度。

每根光线所在微元面 $A_{m,n}$ 的立体角大小与它们的位置有关：

$$d\Omega_{m,n} = \frac{dA_{m,n}}{R_f^2} = \frac{R_f \sin \alpha_{m,n} d\alpha R_f d\beta}{R_f^2} = \sin \alpha_{m,n} d\alpha d\beta \quad (10)$$

式中， $d\alpha = \pi / (2M)$ ， $d\beta = 2\pi / (2N)$ 。半球空间内，激波绕流场各方向对入射位置的总辐射照度表达式如下：

$$I'' = \sum_{m=1}^M \sum_{n=1}^N I'_{m,n} d\Omega_{m,n} \quad (11)$$

2 数值模型验证

欧洲航天局曾选取 ELECTRE 作为标准模型，通过对比测量数据和数值模拟结果，验证了不同的流场计算程序的气动热结果^[13]。ELECTRE 前部是钝锥体，球头半径为 175mm，半锥角为 4.6°，总长度为 2m，一般使用 293 秒的飞行数据来验证气动热流预估模型的可靠性。轴对称网格模型如图 2 所示，网格划分为 85×168 ，飞行状态见表 1，自然来流为空气，氧气的质量分数为 0.229，氮气的质量分数为 0.771，等温壁面 $T_w = 343K$ 。

表 1 自然来流条件

$t(s)$	$H(km)$	$U(m/s)$	$T_{\infty}(K)$	$P_{\infty}(Pa)$	Ma	$T_w(K)$
293	53.3	4230	265.0	53	13.0	343

图 3 给出了本文仿真结果与文献提供的实验测量数据及使用美国 AERHET 代码的计算结果，可以看出驻点处热流值最大，数量级达到了 10^6 ，本文仿真结果与飞行数据、文献计算结果比较一致，流动模拟结果具有可靠性。

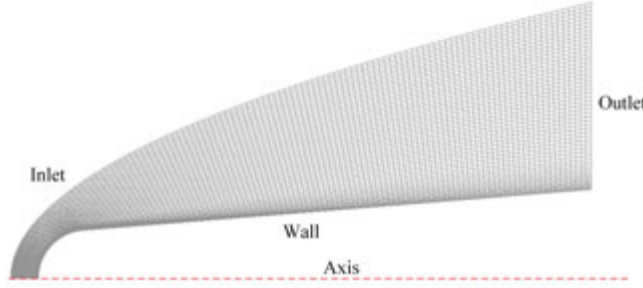


图2 ELECTRE 流体域计算网格

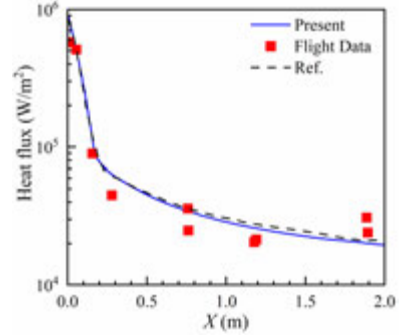


图3 壁面热流

在本研究中，使用 LBL 方法计算各组分的吸收系数，由于 LBL 方法是最准确的计算气体辐射物性参数的方法，因此本文不进行辐射模型的验证。

3 几何模型

前视型红外制导导弹能够在复杂的环境中接收来自环境和目标红外信号，根据物体形状、大小、运动状态等特征完成目标的识别工作。建立球头型光学窗口的几何模型需要考虑窗口的外形尺寸和几何特征，包括球头半径和球心位置。图 4 显示了飞行器头部光学窗口的两套坐标系，分别是基于流场的系统坐标系 $o-xyz$ （系统坐标系下的坐标称为主坐标）和基于入射点辐射场的局部坐标系 $o'-x'y'z'$ （局部坐标系下的坐标称为相对坐标），壁面入射点 o' 的主坐标可以由系统坐标系下的极化角 θ 和方位角 φ 来确定：

$$\begin{cases} x_{o'} = R \cos \theta \\ y_{o'} = R \sin \theta \cos \varphi \\ z_{o'} = R \sin \theta \sin \varphi \end{cases} \quad (12)$$

式中， R 是光学窗口的球头半径， $(x_{o'}, y_{o'}, z_{o'})$ 是入射点 o' 的主坐标。

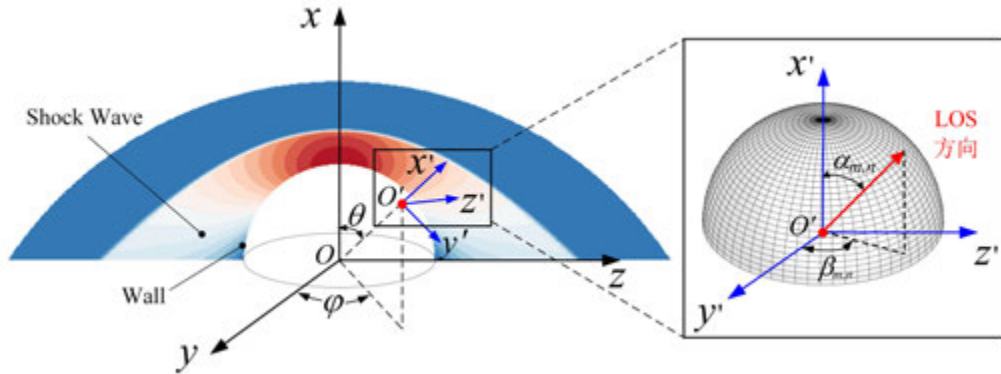


图4 球头型光窗体系坐标系示意图

4 结果与讨论

回归分析流程如图 5 所示，回归分析前要确定输入和输出的特征参数以及对应的参数空间，本文选取的输入特征分别是飞行高度、马赫数、入射位置极化角、球头半径，选取的输出特征是半球空间内 $3-5\mu\text{m}$ 和 $8-12\mu\text{m}$ 这两个波段的红外辐射照度值。首先对选定球头尺寸的飞行器驻点处的输出特征与飞行参数进行拟合，然后将入射位置修正到其它极化角，最后再对飞行器球头半径进行修正，得到两种输出特征与四种输入特征之间的因式关系。

在本文的算例中，球头型导弹在近地高度处于末端垂直飞行状态，忽略攻角。参数

空间范围如下：飞行高度 0.4-8.4km，飞行速度 1.6-4.4Ma，球头半径 0.11-0.30m，探测点极化角 0-45°，表 2 中各参数组合成了 864 组训练集算例：

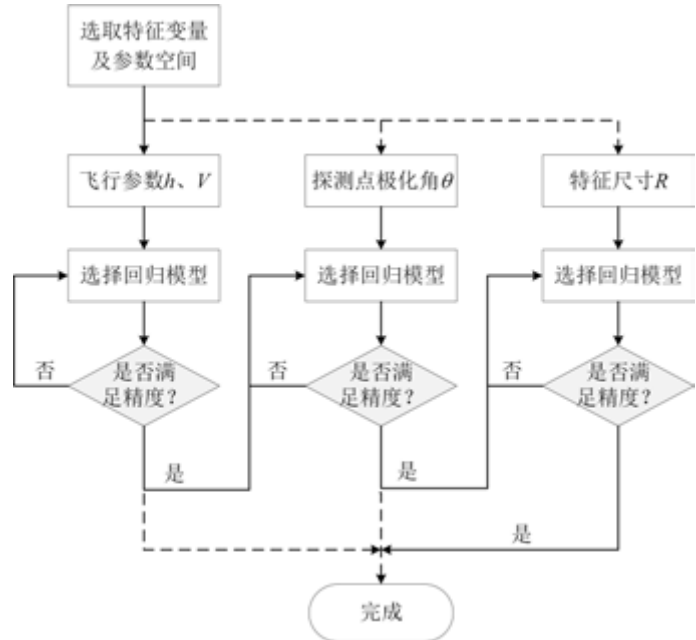


图 5 回归分析流程图

表 2 训练集参数概况

飞行参数	飞行高度 $h(\text{km})$	0.4、2.0、3.6、5.2、6.8、8.4
	飞行速度 $V(\text{Ma})$	1.6、2.0、2.4、3.2、4.0、4.4
窗口参数	球头半径 $R(\text{m})$	0.11、0.15、0.20、0.30
	探测点极化角 $\theta(^{\circ})$	0、5、15、25、35、45

4.1 辐射照度与飞行状态关系参数化

不同飞行速度会导致波后气体参数发生不同程度的变化，而不同飞行高度对应着不同的来流参数，本节的目的是建立球头半径为 0.15m 的飞行器在驻点处（ $\theta=0^{\circ}$ ）接收到的红外辐射照度与飞行状态之间的参数化模型。飞行速度用无量纲化后的马赫数表示，如表 2 所示，选取 0.4、2.0、3.6、5.2、6.8 和 8.4km 共 6 个高度点，每个高度点对应 1.6、2.0、2.4、3.2、4.0 和 4.4 共 6 个马赫数，共组合成 36 个算例。由于飞行高度 h 和马赫数 V 对辐射噪声的影响耦合在一起，变量与预测值之间的非线性关系又很强。因此首先只考虑单参数的影响，如图 6 所示，对辐射照度与高度的关系进行分析，散点为仿真值（数值模型计算值），实线为拟合的回归直线。

图 6 中每条回归直线对应一个马赫数，当高度作为自变量时，对两个波段的红外辐射照度取自然对数，可以发现其自然对数值均与飞行高度呈线性负相关，回归方程形式可以写为：

$$\ln[I(h, V, \theta=0, R=0.15)] = A(V) + B(V) \cdot h \quad (13)$$

继续对截距 A 和斜率 B 进行拟合，可以得到 A 、 B 关于 V 的表达式。红外辐射照度与飞行状态之间的经验模型为：

$$\ln[I_{3-5}(h, V, \theta=0, R=0.15)] = (-4.78649 + 4.39072V - 0.41788V^2) + (-0.49547 + 0.13432V - 0.01494V^2)h \quad (14)$$

$$\ln[I_{8-12}(h, V, \theta=0, R=0.15)] = (-8.4794 + 4.57712V - 0.36073V^2) + (-0.7159 + 0.04356V - 0.00359V^2)h \quad (15)$$

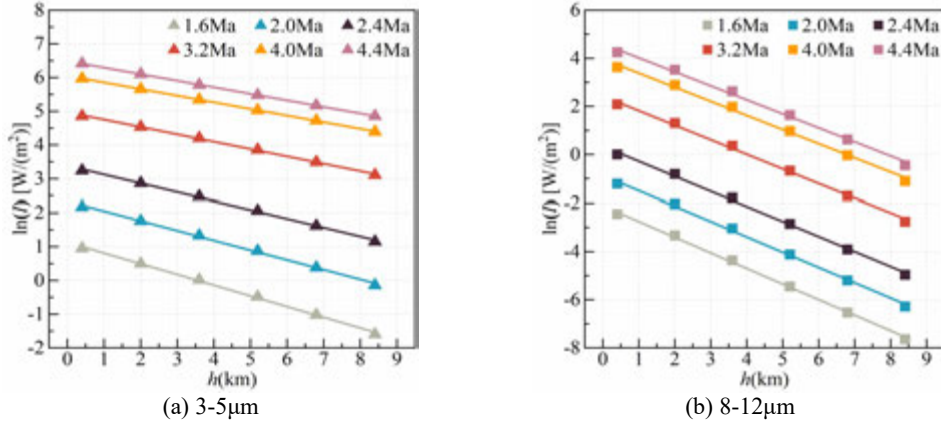


图6 辐射照度与飞行高度关系

4.2 辐射照度与探测位置关系参数化

由于研究对象为回转体，忽略攻角，因此流场是轴对称的。入射点方位角的改变不会影响窗口表面接收到的辐射信号，沿着飞行器球头壁面，随着极化角增大，流场参数发生变化，辐射照度也会随之改变。在式(14)的基础上，继续对入射位置极化角进行修正，此时存在三个参数。为了降低维度，简化建模过程，首先对球头半径为0.15m的飞行器在各极化角下仿真计算的红外辐射照度值进行预处理，目的是通过极化角 θ 建立各工况下驻点（ $\theta=0^\circ$ ）处与同一飞行状态下其他入射位置（ θ 不同）处的辐射照度关系，而驻点处的辐射照度可以由公式(14)获得。

将驻点处的辐射照度减去对应飞行状态下各极化角处的辐射照度，得到预处理后的 I^* ：

$$I^* = I(h, V, \theta=0, R=0.15) - I(h, V, \theta, R=0.15) \quad (16)$$

图7是3-5 μm 波段的预处理辐射照度随极化角的变化曲线，图(a)~(f)分别对应飞行高度为0.4、2.0、3.6、5.2、6.8和8.4km的情况，同一飞行工况选择了 0° 、 5° 、 15° 、 25° 、 35° 以及 45° 这6个观测位置，散点是仿真值，实线代表回归曲线。

I^* 是关于 θ 的二阶多项式，为了简化参数，将常数项设为0，得到的回归模型为：

$$I_{3-5}^* = C(h, V) \cdot \theta + D(h, V) \cdot \theta^2 \quad (17)$$

式中，系数C、D与飞行高度和速度有关。继续对C、D进行回归，可以得到：

$$\ln(C) = (-14.49449 + 9.44128V - 2.16493V^2 + 0.18617V^3) + (-0.36110 + 0.00617V + 0.04077V^2 - 0.00780V^3)h \quad (18)$$

$$\ln(D) = (-14.66615 + 5.44145V - 0.72964V^2 + 0.02940V^3) + (-0.56829 + 0.18263V - 0.02844V^2 + 0.00164V^3)h \quad (19)$$

8-12 μm 波段的处理方法同3-5 μm 波段类似，回归方程形式相同：

$$I_{8-12}^* = E(h, V) \cdot \theta + F(h, V) \cdot \theta^2 \quad (20)$$

$$\ln(E)=(-15.76229+6.51022V-0.82321V^2+0.03201V^3) \quad (21)$$

$$+(-0.91725+0.28496V+0.08316V^2-0.00828V^3)h$$

$$\ln(F)=(-18.18179+5.17385V-0.54187V^2+0.01921V^3) \quad (22)$$

$$+(-0.33829-0.3544V+0.12598V^2-0.01324V^3)h$$

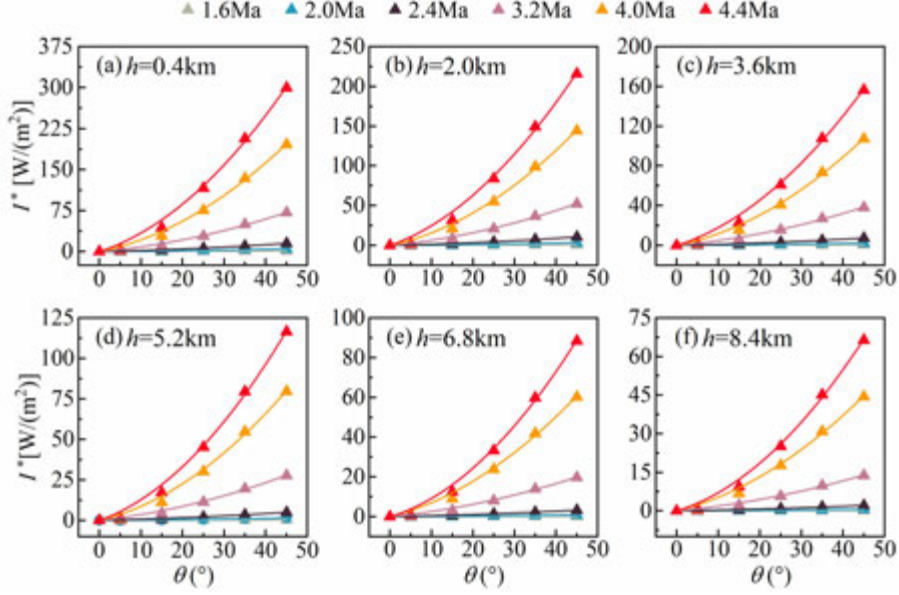


图7 3-5 μm 波段预处理辐射照度与极化角关系

4.3 辐射照度与特征尺寸关系参数化

球头型飞行器的特征尺寸为头部半径 R ，为了研究红外辐射照度与飞行器特征尺寸的定量关系，接着对球头半径进行修正。为了在式、-的基础上，获得其他半径下的辐射照度，首先将各半径下的辐射照度除以半径为 0.15m 时对应工况、对应极化角下的辐射照度值，获得比值 ω 。通过建立 ω 与飞行工况、极化角和半径的关系，即可获得给定半径范围内任意特征尺寸飞行器接收到的红外辐射信号， ω 定义为：

$$\omega = I(h, V, \theta, R) / I(h, V, \theta, R = 0.15) \quad (23)$$

选择了 0.11、0.15、0.20 和 0.30m 这 4 种球头半径，以 0.4km、4.0Ma、2.0km、3.2Ma 以及 8.4km、2.4Ma 飞行工况为例，图 8 展示了 3-5 μm 波段 ω 值随 R 的变化情况，图中每种工况对应表 2 中的 6 个极化角，散点代表仿真值，直线代表回归直线，从图中可以看出其他条件相同时， ω 值与 R 呈线性正相关关系：

$$\omega = M(h, V, \theta) + N(h, V, \theta) \cdot R \quad (24)$$

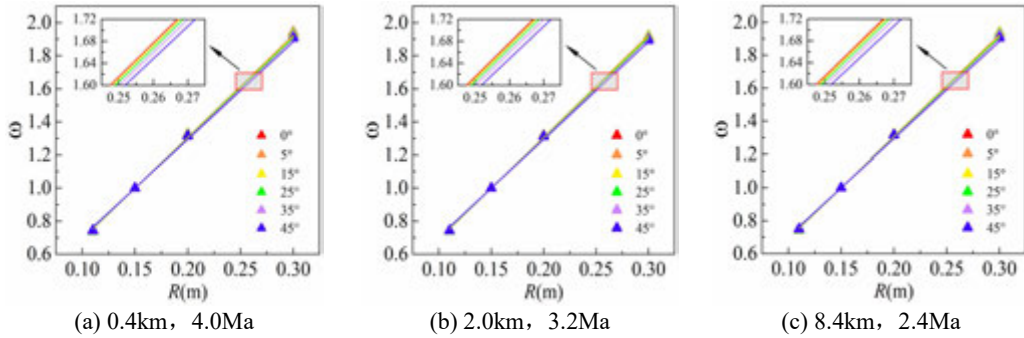


图8 3-5 μm 波段 ω 与球头半径关系

通过拟合结果得到，不同飞行工况条件下，相同极化角对应直线的斜率 N 和截距 M 相同；相同飞行工况下，不同角度对应的 N 和 M 不同，这说明 ω 的值只与极化角和半径有关，而与飞行状态无关，因此可以忽略高度和马赫数对 ω 的影响，式改写为：

$$\omega_{3-5} = M(\theta) + N(\theta) \cdot R \quad (25)$$

系数 M 、 N 与极化角的关系如下：

$$M = 0.07062 + 6.69799 \times 10^{-5} \theta + 1.6123 \times 10^{-5} \theta^2 \quad (26)$$

$$N = 6.18676 - 4.88621 \times 10^{-4} \theta - 1.04335 \times 10^{-4} \theta^2 \quad (27)$$

8-12 μm 波段的处理方法同 3-5 μm 波段类似，回归方程形式相同：

$$\omega_{8-12} = G(\theta) + K(\theta) \cdot R \quad (28)$$

$$G = -0.0124 + 2.03071 \times 10^{-4} \theta + 6.5276 \times 10^{-6} \theta^2 \quad (29)$$

$$K = 6.77177 - 0.00143 \theta - 3.61758 \times 10^{-5} \theta^2 \quad (30)$$

4.4 全链路辐射照度预测结果验证

前文已经给出了预测模型中各部分输入特征与输出特征的回归关系式，接下来考虑四种输入参数，对预测模型的可靠性和准确性进行验证。选择半径为 0.13m 和 0.25m 的球头型飞行器，随机生成 10 组设计工况，共构成 20 个测试集样本，同时各输入参数满足模型参数空间的取值范围，表 3 给出了测试集样本的基本信息。

表 3 测试集工况

工况序号	飞行速度(Ma)	飞行高度(km)	极化角($^{\circ}$)
1	4.26708	4.71448	14.32552
2	2.43496	6.54446	26.86873
3	2.04354	2.26472	13.40078
4	2.61163	5.09889	5.62565
5	3.67656	4.07179	17.47601
6	3.57652	7.28785	36.79595
7	3.56250	5.68669	44.15291
8	1.61743	3.23103	38.78954
9	2.64817	3.17749	3.77194
10	4.12419	2.42974	15.19704

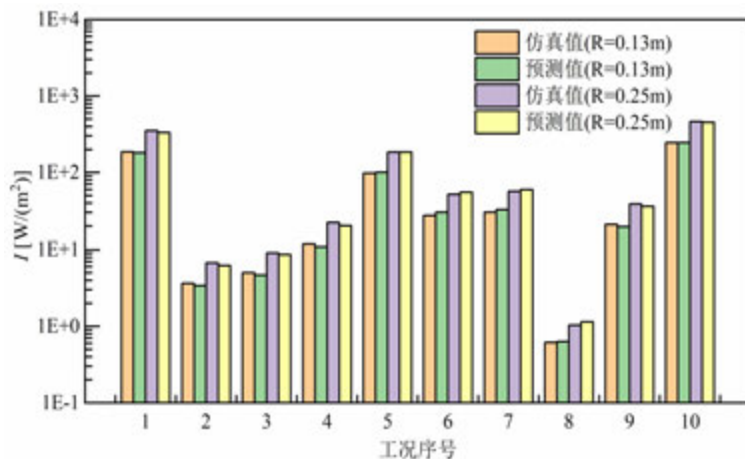
图 9 和图 10 分别展示了测试集样本预测值与仿真值的对比情况以及预测值的相对偏差。 $R=0.13\text{m}$ 的飞行器，3-5 μm 波段相对偏差最大为 10.56%，平均值 5.56%，8-12 μm 波段相对偏差最大为 14.45%，平均值为 9.61%； $R=0.25\text{m}$ 的飞行器，3-5 μm 波段相对偏差最大为 10.49%，平均值为 5.86%，8-12 μm 波段相对偏差最大为 14.89%，平均值为 9.19%。两种球头尺寸的飞行器同一波段的模拟精度接近，同一尺寸下 3-5 μm 的总体预测效果要好于 8-12 μm ，模型预测精度均在 85% 以上。

5 结论

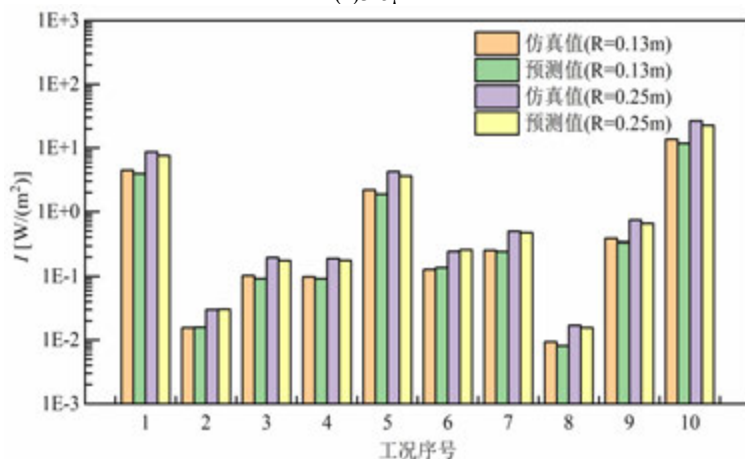
本文以近地高度前视型红外制导弹激波绕流场为研究对象，结合激波绕流场辐射噪声仿真结果，以飞行高度 (0.4-8.4km)、马赫数 (1.6-4.4Ma)、探测位置极化角 (0-45 $^{\circ}$)、球头半径 (0.11-0.30m) 作为输入参数，将半球空间内光学窗口表面接收到的 3-5 μm 和 8-12 μm 波段的红外辐射照度值作为输出对象，构建了基于回归分析方法的唯象模型，并对预测结果进行了分析。本文结论如下：

- (1) 激波层辐射照度与影响因素之间非线性关系较强，不同特征参数对预测变量的作用耦合在一起，变量分离前要观察参数之间的关系决定使用哪种回归模型，本文回归模型预测测试集精度均在 85% 以上；

- (2) 弓形激波投射到窗口的辐射照度的自然对数值与飞行高度呈线性负相关；
- (3) 驻点处接收的辐射照度减去对应飞行状态下各极化角处的辐射照度的值是关于 θ 的二阶多项式；
- (4) 各半径下的辐射照度与半径为 0.15m 时对应工况、对应极化角下的辐射照度的比值只和极化角以及球头半径有关，而与飞行状态无关。



(a)3-5 μm



(b)8-12 μm

图 9 测试集预测结果

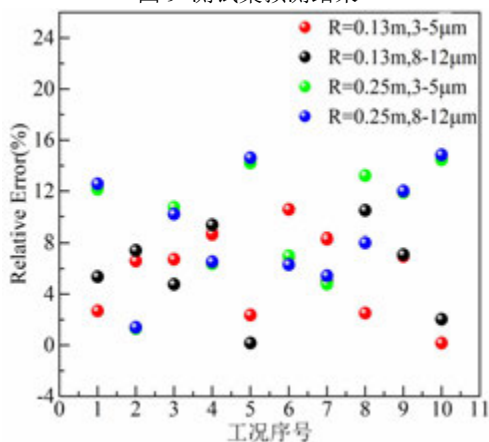


图 10 预测值相对偏差

参考文献

- [1] Nasrabadi N M. Hyperspectral target detection: An overview of current and future challenges[J]. IEEE Signal Processing Magazine, 2013, 31(1): 34-44.
- [2] 牛青林, 杨霄, 陈彪, 等. 高速滑翔目标点源红外辐射特征模拟及可探测性分析[J]. 红外与激光工程, 2018, 47(11): 1104001.
NIU Qing-Lin, YANG Xiao, CHEN Biao et al. Infrared Radiation Characteristics and Detectability Analysis of Point Source Based on High-speed Sliding[J]. Infrared and Laser Engineering, 2018, 47(11): 1104001.
- [3] Zunyang L, Qing Y, Xiuhe L, et al. Choice and detectability of See-To-Ground waveband of infrared warning satellite[J]. Infrared and Laser Engineering, 2018, 47(2): 204003.
- [4] Smith M I, Heather J P, Ralph J F, et al. Target tracking for missile warning applications[J]. Signal and Data Processing of Small Targets, 2004, 5428: 282-293.
- [5] Corsi C. Infrared: a key technology for security systems Springer, 2013: 37-42.
- [6] Mahulikar S P, Sonawane H R, Rao G A. Infrared signature studies of aerospace vehicles[J]. Progress in aerospace sciences, 2007, 43(7-8): 218-245.
- [7] Levin D A, Candler G V, Limbaugh C C. Multispectral shock-layer radiance from a hypersonic slender body[J]. Journal of Thermophysics and Heat Transfer, 2000, 14(2): 237-243.
- [8] Thrane L, Bras A, Bakker P, et al. Computational fluid dynamics[J]. Simulation of Fresh Concrete Flow: State-of-the Art Report of the RILEM Technical Committee 222-SCF, 2014:25-63.
- [9] Lemal A, Takayanagi H, Nomura S, et al. Simulations of carbon-dioxide equilibrium infrared radiation measurements[J]. Journal of Thermophysics and Heat Transfer, 2018, 32(1): 184-195.
- [10] Hargreaves R J, Gordon I E, Rey M, et al. An accurate, extensive, and practical line list of methane for the HITEMP database[J]. The Astrophysical Journal Supplement Series, 2020, 247(2): 55.
- [11] Olivero J J, Longbothum R L. Empirical fits to the Voigt line width: A brief review[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 1977, 17(2): 233-236.
- [12] Sparrow E M. Radiation heat transfer[M]. Routledge, 2018.
- [13] Muylaert J, Walpot L, Haeuser J, et al. Standard model testing in the European High Enthalpy Facility F4 and extrapolation to flight[C]//28th Joint Propulsion Conference and Exhibit. 1992: 3905.

基于碳量子点纳米溶液的直接吸收式太阳能集热系统的性能分析

彭超华, 刘宇欣, 张立志

(华南理工大学 化学与化工学院 传热强化与过程节能教育部重点实验室, 广州 510000)

(Tel:13544338066, Email: Lzzhang@scut.edu.cn)

摘要: 为了提高直接吸收式太阳能集热器(DASC)的性能, 提出了一种基于碳量子点(CQDs)纳米流体的直接吸收式太阳能集热储热系统。设计了一个实验平台来评估新型系统的性能。建立并验证了系统完整的数学模型。研究了运行参数对系统性能的影响。研究发现, 系统的太阳能集热效率与纳米流体的流速和储热水箱体积的变化呈正相关。当纳米流体的浓度约为 70 ppm 时, 系统具有最高的集热效率。本文提出的新型系统在太阳能集热领域中具有很好的应用潜力。

关键词: DASC, 数学模型, 实验系统, 太阳能集热, 系统分析

0 前言

取之不尽, 用之不竭的太阳能为当今社会的能源危机提供了一个潜在的可持续的解决方案, 太阳能光热系统是最常见和最有效的太阳能收集方式之一。工程上常用太阳能集热器通常基于黑色或具有光谱选择性吸收的表面而设计, 其表面通过吸收太阳辐射产生热, 然后通过热传导和热对流, 将热量传递到工作流体。然而, 这些集热器在将太阳辐射转化为内能的过程中, 集热器的界面热阻和环境热损失是不可避免的, 这也大大降低了集热器的工作效率^[1]。上世纪 70 年代 Minardi 和 Chuang 提出了直接吸收式太阳能集热器^[2], 它可以通过使用传热流体(HTF)直接吸收太阳能。常用的 HTF 有水、乙二醇(EG)和甘油等。需要注意的是, 上述这些材料在太阳光谱上是弱吸收剂, 因此往往需要向其中添加一些纳米颗粒对其热物性和光学性质进行改性。常见的添加材料包括 ZnO、Fe₃O₄、Cu、NiC 和氧化石墨烯(GO)等^[3]以此形成纳米流体。

所谓纳米流体是指纳米颗粒(1-100nm)能稳定存在的悬浮液^[4]。由于向 HFT 中添加了纳米颗粒, 使得纳米流体具有了一些特殊的光学性质以及良好的热物理性质。特别是纳米流体优异的光吸收性使得其光热转换效率大大高于基液^[5-9]。

碳量子点(CQDs)($<10\text{nm}$)是一种新型的零维碳纳米材料, 通常由无定形结晶材料^[10]组成。CQDs 具有以下优异特性: 良好的水溶性, 低毒性和易于合成^[11]。此外, CQDs 溶液在可见光和近红外光范围内具有较好的吸收效率, 它能显著增强纳米流体对太阳能吸收的能力^[12]。

然而, 目前很少有关于碳量子点纳米流体光热转换特性的研究, 并且关于 DASC 的

主要研究仍然集中在集热器的性能上。事实上，当 DASC 用于未来实际工业应用时，它必须要适配相关的储能系统，以提高系统对太阳能的收集能力。换言之，完整的 DASC 集热系统必然是一个循环集热储热系统，对该类型的系统进行性能分析和研究，可以为未来的系统优化奠定基础。

本研究采用两步法制备了稳定的 CQDs/EG 纳米流体。对纳米流体的形貌和光学性质进行了表征和测量。建立了基于 DASC 的循环集热储热系统，并建立了描述该系统的数学模型。通过 MATLAB 和 COMSOL 的协同仿真，对整个系统进行了性能模拟。研究了运行参数对系统性能的影响，为今后的工程实践提供了实验和理论依据。

1 实验与材料

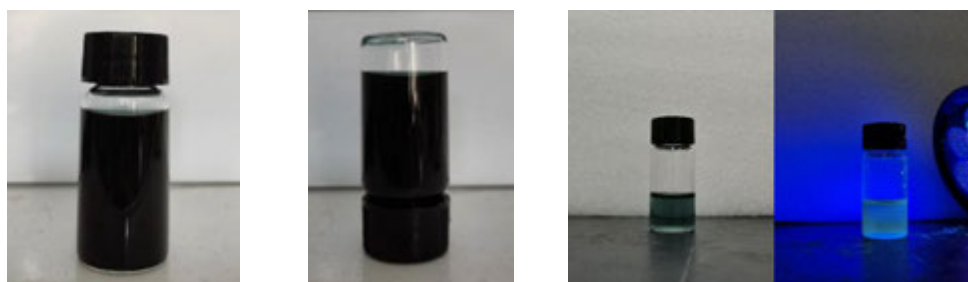
1.1 纳米材料制备

实验中主要使用的化学药品主要有购自上海润捷化学有限公司的柠檬酸，购自福晨化学试剂有限公司的尿素和购自上海凌峰化学试剂有限公司的二甲基亚砜。实验中还使用了购自天津富宇精细化工有限公司的乙醇和乙二醇。

制备碳点 (CQDs) 的步骤如下：将 2 g 柠檬酸和 6 g 尿素溶解在 30 mL 二甲基亚砜中，在 160 °C 的高压釜中反应 4 小时，并冷却至室温。随后将得到的黑色溶液用乙醇离心洗涤数次，收集沉淀物 CEM，冻干并磨成粉末，获得碳点粉末。

1.2 纳米溶液制备

实验中配置纳米溶液的基液为乙二醇。本实验使用的是 CQDs 为 200ppm 的纳米溶液，采用“两步法”制备纳米流体：将定量样品纳米颗粒分散在一定体积的基液中，通过超声震荡处理 0.5 小时，使纳米颗粒在基液中均匀分散，便获得 CQDs/EG 纳米流体。图 1(a)、(b)、(c) 分别为配置好的纳米溶液、室温下静置一周的纳米溶液以及低浓度下碳点溶液在紫外光下发出荧光效应的图片。



(a) 配置的 CQDs/EG 纳米溶液 (b) 静置一周的溶液 (c) CQDs 溶液的荧光效应

图 1 制备的碳量子点纳米溶液以及碳量子点纳米溶液的荧光效应

2 表征与测试

2.1 纳米溶液形貌与光学性质测试

本研究使用透射电子显微镜(日本电子，JEM-2100)来观察 CQDs 纳米颗粒的形态。使用紫外分光光度计(Perkin Elemer, Lambda-950)测试样品纳米流体的透射率，通过比尔朗伯定律，可将纳米流体的透射率换算为消光系数。图 2(a)和(b)分别展示了 CQDs 的 TEM 测试结果和 CQDs/EG 纳米溶液消光系数的测试结果。

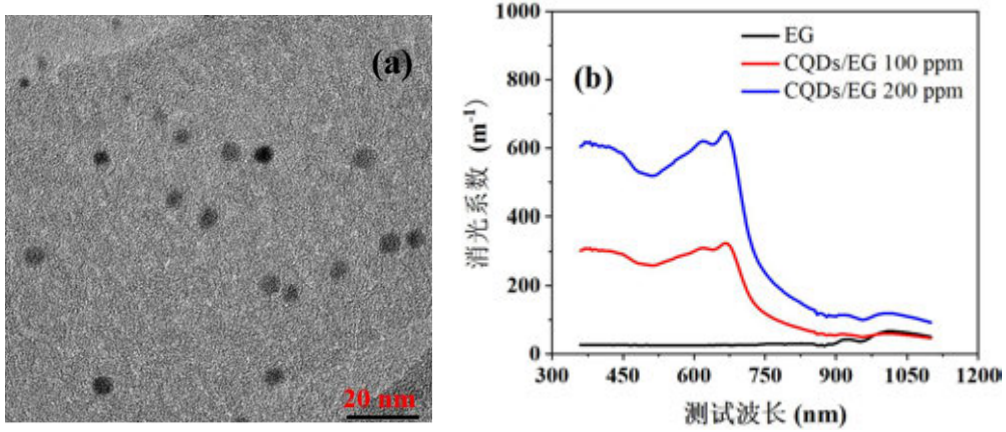


图2 CQDs/EG 的光学性质测试结果：(a) TEM 测试结果；(b) 纳米溶液消光系数测试结果

2.2 纳米溶液热物理性质

研究纳米溶液的集热特性需要知晓它的热物理性质包括导热系数、运动粘度、定压比热容和密度。纳米流体的密度可以根据混合物理原理来确定：

$$\rho_{nf} = (1 - f_v)\rho_{bf} + f_v\rho_{np} \quad (1)$$

式中， ρ_{nf} 是纳米流体的有效密度(kg/m^3)， f_v 是纳米流体中纳米颗粒的体积浓度， ρ_{bf} 和 ρ_{np} 分别是基础流体和纳米颗粒的密度(kg/m^3)。

根据纳米颗粒与基础流体之间热平衡，可以计算纳米流体的有效比热：

$$c_{p,nf}\rho_{nf} = (1 - f_v)c_{p,bf}\rho_{bf} + f_vc_{p,np}\rho_{np} \quad (2)$$

式中， $c_{p,nf}$ 是纳米流体的有效比热(J/kg/K)， $c_{p,bf}$ 和 $c_{p,np}$ 分别是基础流体和纳米颗粒的比热(kg/m^3)。

Chen 等人提出了计算纳米流体有效导热系数的理论模型，计算公式如下^[13]：

$$\frac{k_{nf}-k_{bf}}{k_{bf}} = 1.458\left(\frac{T-273.15}{60}\right)^{3.5} f_v^{0.26} + 1.7 \times 10^{-3} \quad (3)$$

式中， k_{nf} 是纳米流体的有效导热系数(J/m/K)， k_{bf} 是基础流体的导热系数(J/m/K)。

Batchelor 给出了计算纳米流体有效粘度的公式^[14]：

$$\mu_{nf} = (1 + 2.5f_v + 6.2f_v^2)\mu_{bf} \quad (4)$$

式中， μ_{nf} 是纳米流体的粘度($\text{Pa}\cdot\text{s}$)， μ_{bf} 是基础流体的粘度($\text{Pa}\cdot\text{s}$)。表 1 列出了相应材料的物理特性。

表 1 研究材料在 300 K 下的热物理性能

	EG	CQDs
密度(kg/m^3)	1109.5	1190
比热(J/kg/K)	2425	20.1

导热系数 (W/m/K)	0.28	-
粘度 (Pa·s)	0.0106	-

2.3 循环集热储热实验测试

如图 3 所示, 本研究使用自行搭建的太阳能集热系统对纳米流体的光热性能进行测试。实验中通过搅拌器使水箱中的水温更加均匀。为了获得稳定的辐照度, 使用太阳模拟器(中科微能, CEM-sol8100)代替外界的太阳。DASC 的尺寸如图 4 所示, 其中 H 是纳米流体的高度, L 是 DASC 的有效集热长度和宽度。本实验中 $L=10\text{cm}$, $H=2\text{cm}$ 。集热器的顶部玻璃盖由低反射率硼硅酸盐玻璃制成。DASC 的底面和侧壁由聚丙烯制成。为了减少热损失, 使用泡沫塑料对 DASC 的外表面和底表面进行隔热。温度传感器的型号为 PT100, 精度为 $\pm 0.5\%$ 。在实验中, 储热水箱的容量为 2 L。太阳能模拟器的功率调节范围为 $600\text{--}1200\text{ W/m}^2$ 。表 2 列出了实验装置的主要参数。

集热储热实验在恒温恒湿的实验室中进行, 室内环境温度约为 25°C , 环境压力为 101.2kPa , 相对湿度为 70%。在实验之前, 将蠕动泵运行一段时间, 以确保系统所有组件达到稳定状态。然后, 打开太阳能模拟器, 使用 DASC 进行集热。当实验设备运行一段时间后, 系统将处于稳态。然后收集实验数据, 通过串口将其传输到控制计算机中。

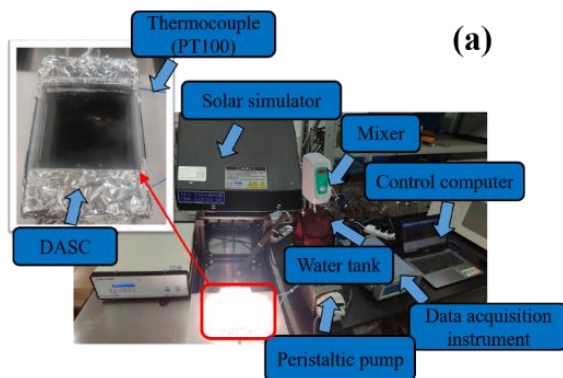


图 3 太阳能集热系统

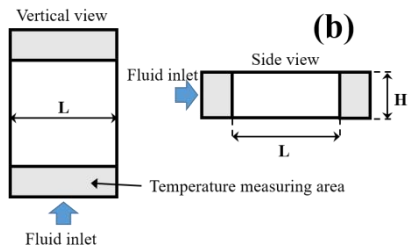


图 4 DASC 的几何尺寸

表 1 实验设备主要参数

设备	参数	单位	数值
DASC	总长	cm	16
	总宽	cm	10
	集热长度	cm	10
	集热宽度	cm	10
	容量	L	2

盘管换热器	换热面积	m ²	0.11
太阳能模拟器	功率调节范围	W/m ²	600-1200
温度传感器	测量精度	%	±0.5
蠕动泵	调节范围	mL/min	2-100

3 循环集热储热系统的数值模型

3.1 DASC 的流动和传热建模

DASC 通常由一个玻璃盖和一个流道组成。为了便于数学模型的建立，纳米流体在 DASC 中的流动可以简化为二维平行板流道中的非等温流动，如图 5 所示。

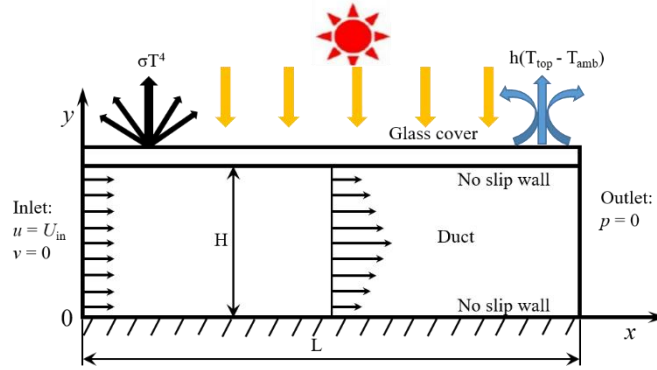


Fig.5 DASC计算模型示意图

假设集热器中的纳米流体为稳态不可压缩且充分发展的层流，纳米流体的流动模型可以通过 Navier-Stokes (N-S) 方程的连续性和动量方程来表示：

连续性方程：

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad (5)$$

x 方向动量方程：

$$u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} = -\frac{1}{\rho_{nf}} \frac{\partial p}{\partial x} + \nu_{nf} \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right) \quad (6)$$

y 方向动量方程：

$$u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} = -\frac{1}{\rho_{nf}} \frac{\partial p}{\partial y} + \nu_{nf} \left(\frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right) \quad (7)$$

DASC 的传热模型可以通过 N-S 方程的能量方程来表示。根据能量守恒，需要考虑入射辐射的影响。因此能量方程可以写成：

$$c_{p,nf} \rho_{nf} \left(u \frac{\partial T}{\partial x} + v \frac{\partial T}{\partial y} \right) = -\frac{\partial q_r}{\partial y} + k_{nf} \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \right) \quad (8)$$

对于玻璃盖，由于其光学深度相对较小，可以忽略吸收入射辐射的影响。玻璃盖的热平衡方程可以表示为：

$$k_g \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \right) = 0 \quad (9)$$

式中， u 和 v 是纳米流体的速度分量(m/s), p 是纳米流体的压力(Pa), q_r 是辐射热通量(W/m²). T 是温度(K)。上述流体流动模型的边界条件如下：

流道进口：

$$u = U_{in}, \quad v = 0 \quad (10)$$

流道出口：

$$\frac{dp}{dx} = 0, \quad \frac{dp}{dy} = 0 \quad (11)$$

流道其他壁面：

$$u = v = 0 \quad (12)$$

模型中只考虑玻璃盖上表面的对流热损失和辐射热损失，流道的底部是绝热的。因此，传热模型的边界条件可以表述如下：

流道进口：

$$T = T_{in} \quad (13)$$

玻璃盖的上表面：

$$k_g \left. \frac{\partial T}{\partial y} \right|_{y=\text{glass,upper}} = h(T|_{y=\text{glass,upper}} - T_{amb}) + \varepsilon \sigma (T|_{y=\text{glass,upper}}^4 - T_{amb}^4) \quad (14)$$

流道底部：

$$\left. \frac{\partial T}{\partial y} \right|_{y=\text{duct,bottom}} = 0 \quad (15)$$

式中， T_{amb} 是环境温度(K), h 是DASC和环境之间的对流热损失系数(W/m²/K), ε 是DASC玻璃盖上表面的发射率。对于本研究测试的DASC, h 的取值范围为17-18.5W/m²/K并且 ε 的取值为0.3。

3.2 纳米流体的辐射传递建模

式(8)中的辐射热通量可以通过辐射传递(RTE)方程求得：

$$\Omega \cdot \nabla I(\Omega) = \kappa_{nf} I_b(T) - \beta_{nf} I(\Omega) + \frac{\sigma_{s_{nf}}}{4\pi} \int_0^{4\pi} I(\Omega') \phi(\Omega', \Omega) d\Omega' \quad (16)$$

式中， $I(\Omega)$ 是在给定位置沿 Ω 方向的辐射强度(W/(m²·sr))。 κ_{nf} , β_{nf} 和 $\sigma_{s_{nf}}$ 分别是纳米流体的吸收、散射和消光系数(m⁻¹), $\phi(\Omega', \Omega)$ 是散射相位函数。 $I_b(T)$ 是黑体辐射强度(W/(m² · sr))。对于各项同性的纳米流体，散射相位函数一般取为1。对于 RTE 方程，其边界条件如下：

玻璃盖上壁面：

$$I_{upper} = \frac{\eta_g I_0}{\pi} \quad (17)$$

$$I_0 = \int_0^\infty I_{\text{solar}}(\lambda) d\lambda \quad (18)$$

流道底部及流道进出口均为漫反射的灰体壁面。上式中, η_g 是玻璃盖的透射率, $I_{\text{solar}}(\lambda)$ 是太阳模拟器的光谱辐射力($\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \mu\text{m})$)。

3.3 储热水箱的能量平衡建模

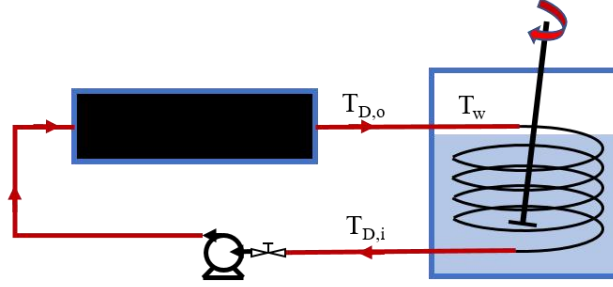


图 6 全混储热水箱模型示意图

DASC 收集的太阳能通过盘管换热器传递到储热水箱中。在实验中, 热交换器总是浸入水中。由于搅拌器的存在, 水箱可以被认为是一个全混的储热水箱, 如图 6 所示。储热水箱内的换热过程可以表示为:

$$\dot{m}_D c_{pD} (T_{D,o} - T_{D,i}) = U_{\text{coil}} A_{\text{coil}} \frac{(\Delta T_2 - \Delta T_1)}{\ln(\Delta T_2 / \Delta T_1)} \quad (19)$$

$$\Delta T_2 = T_{D,o} - T_w, \Delta T_1 = T_{D,i} - T_w \quad (20)$$

式中, $T_{D,o}$ 和 $T_{D,i}$ 是 DASC 的出口和进口温度(K)。 U_{coil} 是盘管式换热器的换热系数($\text{W}/\text{m}^2/\text{K}$), A_{coil} 是换热器的换热面积(m^2), \dot{m}_D 是 DASC 中纳米流体的质量流量(kg/s), T_w 是水箱的水温(K)。

由于系统与环境之间还有热交换过程, 因此必须考虑系统在储能过程中的热损失。假设系统的环境热损失系数是恒定的, 则无补供水水箱的能量平衡方程可以表示为:

$$\rho_w c_{p_w} V_{\text{tank}} \frac{dT_w}{dt} = q_{\text{solar}} - q_{\text{loss}} \quad (21)$$

$$q_{\text{solar}} = \dot{m}_D c_{pD} (T_{D,o} - T_{D,i}) \quad (22)$$

$$q_{\text{loss}} = U_s A_s (T_w - T_{\text{amb}}) \quad (23)$$

式中, ρ_w 是水的密度(kg/m^3), c_{p_w} 和 V_{tank} 分别是水的比热($\text{J}/\text{kg}/\text{K}$)和水箱中水的体积(L)。 q_{solar} 是 DASC 收集的太阳能(W), q_{loss} 是系统逸失到环境中的热量(W)。 U_s 和 A_s 是系统的热损失系数($\text{W}/\text{m}^2/\text{K}$)和热损失面积(m^2)。

3.4 系统性能指标

为了评估系统的性能, 分别定义系统瞬时太阳能集热效率(η_{si})和系统平均太阳能集热率(η_{sm}), 计算公式如下:

$$\eta_{\text{si}} = \frac{\rho_w c_{p_w} V_{\text{tank}} dT_w}{I_0 A_D dt} \quad (24)$$

$$\eta_{sm} = \frac{\rho_w c_{pw} V_{\text{tank}} \Delta T_w}{I_0 A_D t_{\text{total}}} \quad (25)$$

式中， dT_w 是温度刷新时间范围内(dt, s)水箱里的水的温差(K)。 ΔT_w 是整个测试时间范围内(t_{total}, s)水箱中水的总温差(K)。 A_D 是DASC的集热面积(m^2)。

3.5 计算方法

系统仿真的计算流程图如图 7 所示, 本文通过使用 MATLAB 和 COMSOL 的联合仿真实现各物理场的耦合和求解, 求解的详细步骤如下:

- (1) 输入初始参数($i = 0$): 纳米流体的光学性质; 纳米颗粒和基础流体的热物理性质; 纳米流体的质量流量(\dot{m}_D); 水箱初始温度(T_w^0)。 Δt 为系统仿真的时间步长。
- (2) 求解纳米流体的热物理性质, 获得纳米流体的密度、比热、导热系数和粘度。
- (3) 假设盘管热交换器出口的水温与水箱中的水的初始温差为 ΔT 。
- (4) 设置DASC纳米流体的进口温度($T_{i(\text{gue})}^i$)为 $T_w^i + \Delta T$ 。
- (5) 根据输入的初始参数, 求解DASC的流动和传热模型, 获得到DASC纳米流体的出口温度(T_o^i)。
- (6) 求解水箱内的盘管式换热器的数学模型, 获得其出口温度($T_{i(\text{cal})}^i$), 这也是DASC的入口温度。
- (7) 计算新的换热器出口与水箱的温差($\Delta T' = T_{i(\text{cal})}^i - T_w^i$)。如果 ΔT 和 $\Delta T'$ 之间的偏差小于 10^{-3} , 则将当前水箱中的水温设置为 T_w^i 。如果不是, 则设置 $\Delta T = (\Delta T + \Delta T')/2$ 并继续求解水箱内盘管式换热器的换热模型。
- (8) 求解水箱的能量平衡方程, 计算温度($T_{w(\text{cal})}^i$)。
- (9) 如果 $i\Delta t = t_{\text{end}}$, 退出当前计算程序。否则, 进入下一个仿真步长($i = i+1$) 并返回步骤(4) 直至 $i\Delta t = t_{\text{end}}$ 。
- (10) 计算系统的太阳能集热效率。

本程序中, DASC的流动传热模型是基于RTE方程和N-S方程建立的, 本文使用COMSOL有限元软件对程序进行求解。在程序中, 通过结合相应的边界条件, 分别使用离散坐标法和有限元法求解RTE方程和N-S方程。通过COMSOL内置的非结构化网格算法实现模型计算域的离散化。在系统模拟过程中, 使用MATLAB脚本从COMSOL中调用的DASC计算结果, 从而完成整个系统不同组件之间的耦合和求解。

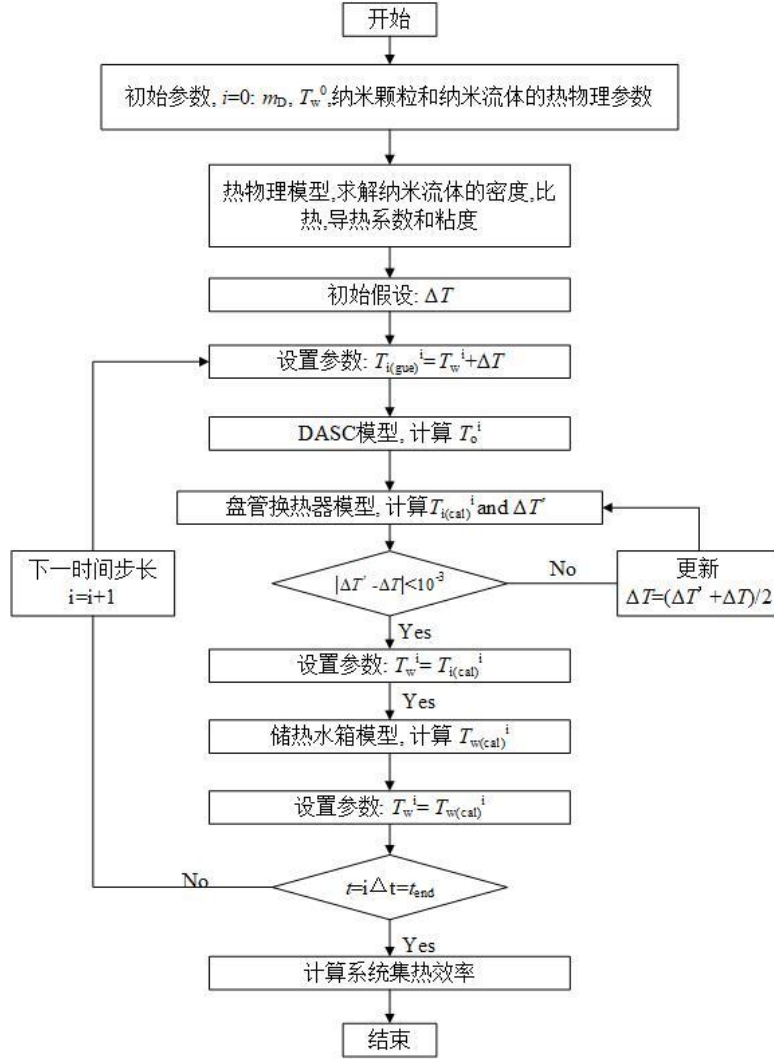


图7 计算流程示意图

4 结果与讨论

4.1 模型验证

为了充分验证系统的数学模型，基于所搭建的实验系统，使用体积分数为 200 ppm 的 CQDs/EG 纳米溶液进行光热转换实验。实验中，纳米流体的体积流量分别设置为 15 mL/min 和 25 mL/min。太阳模拟器的入射功率设置为 1000 W/m²。图 8(a)-(d)展示了不同工况下相应的实验和模拟结果。研究发现，本文的数值结果与实验结果之间的最大相对偏差在 3.2% 以内。这表明本文建立的数学模型在误差范围内是准确可靠的。

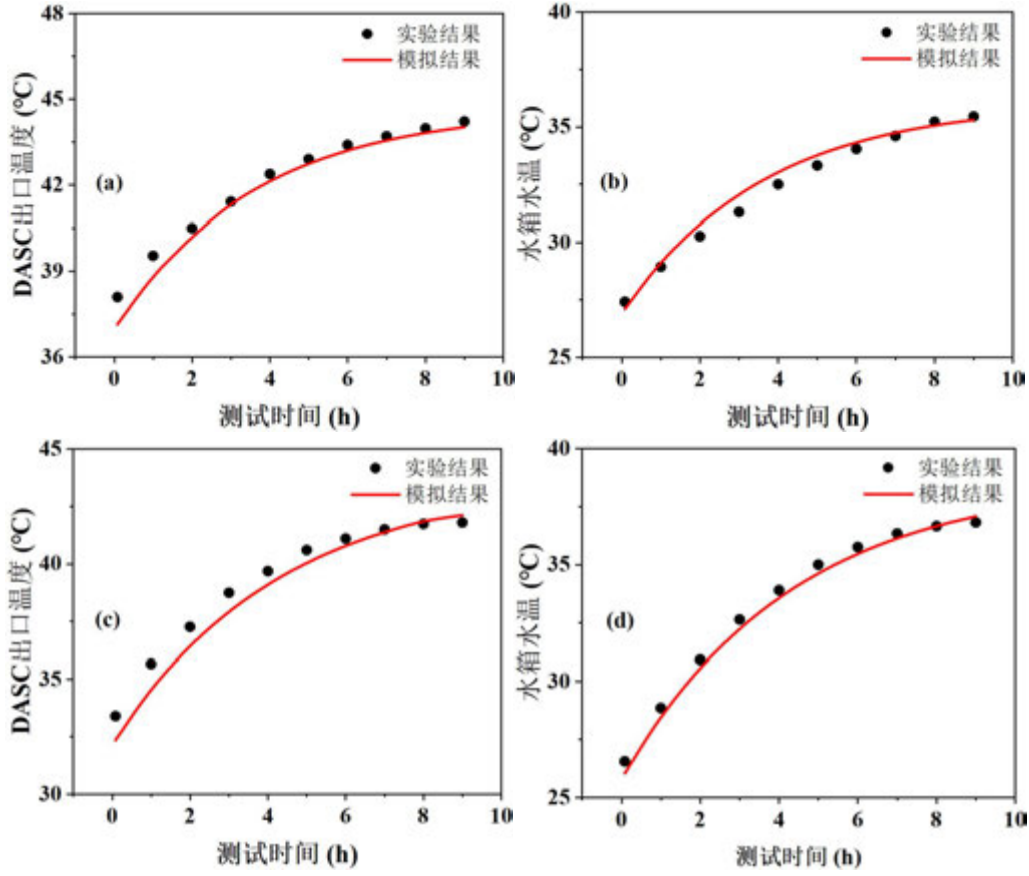


图 8 实验结果与模拟结果对比: (a) 15 mL/min, DASC 出口温度; (b) 15 mL/min, 水箱水温; (c) 25 mL/min, DASC 出口温度; (d) 25 mL/min, 水箱水温

4.2 纳米流体的流速对系统性能的影响

为了探究不同纳米流体流速对系统性能的影响, 将在纳米流体不同流速的工况下对系统进行模拟, 其他参数保持不变。从图 9(a)中可以看出, 流量越小, DASC 的出口温度越大。但也发现, 在小流量的工况下, 水箱中的水温并不是很高。相反, 在图 9(b)中, 发现水箱中的水温随着流速的增加而增加。这是纳米流体流速的提高使得水箱中盘管换热器的换热效率得到了提升。因此, 系统的总集热效率也得到了增加。

从图 10(a)中可以观察到系统的瞬时效率 η_{si} 在初始时随纳米流体流速的增加而增加。例如, 当流速为 15 mL/min 时, 系统的初始瞬时效率 η_{si} 约为 63%。当流速增加到 35 mL/min 时, η_{si} 可以达到 69%左右。然而, 随着系统的运行, 系统的 η_{si} 将急剧下降。系统运行 9 小时后, 不同流量下的 η_{si} 曲线几乎都会衰减到 10%左右, 这意味着系统的集热能力在周围环境的影响下将达到饱和。图 10(b)显示了系统平均太阳能集热效率的变化趋势。可以看出, 纳米流体流速的增加有利于提高系统的平均集热效率。然而, η_{sm} 的增加梯度随着流速的增加而减小, 这表明当纳米流体的流速增加到一定值时, 系统会达到最大的 η_{sm} 。

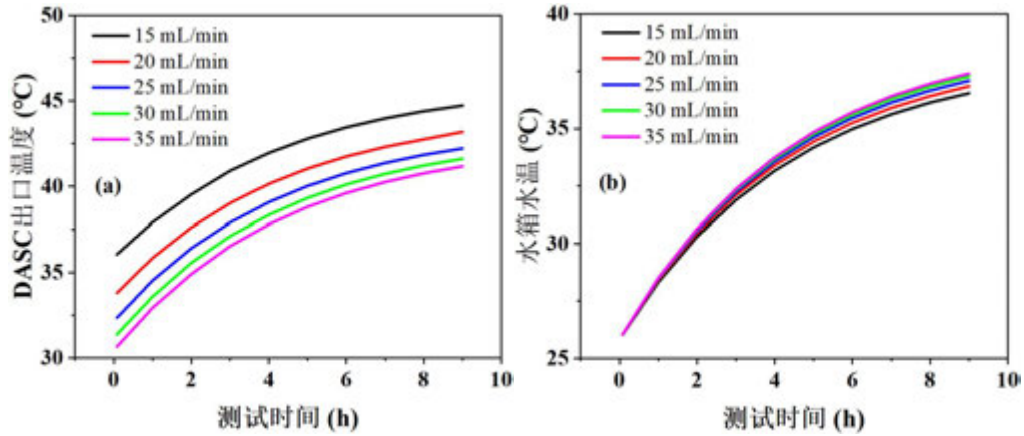


图9 不同流量下系统温度的计算结果: (a) DASC 的出口温度; (b) 储热水箱中的水温

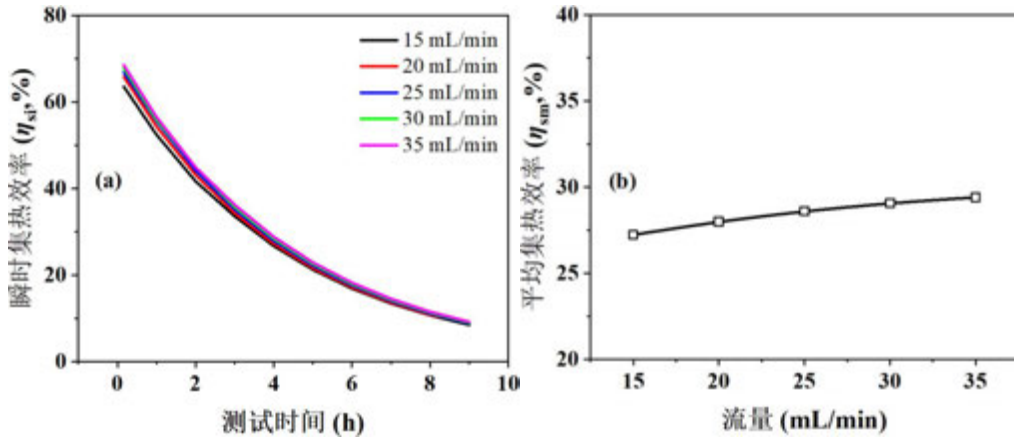


图10 不同流量下系统集热效率的计算结果: (a) 瞬时集热效率; (b) 平均集热效率

4.3 纳米流体的浓度对系统性能的影响

纳米流体的光谱吸收性能主要取决于其浓度。因此,有必要定量研究纳米流体浓度对系统性能的影响。在本节模拟中,纳米流体的流速设置为 25 mL/min。太阳能模拟器的入射功率设置为 1000W/m²,水箱体积为 2 L。

从图 11 中可以发现,在添加纳米颗粒后,系统的性能比之基液得到了很大的提高。当体积分数为 50ppm 时,出口温度和水箱中的水温都最高。同样,从图 12 可知,当体积分数为 50ppm 时,系统的瞬时和平均效率可以达到最大值。随着纳米流体的浓度进一步提高,其集热效率反而在下降。这是因为 DASC 中的传热是一种复合型传热,其中既存在辐射换热,又存在对流换热。当纳米流体的浓度不是很高时,入射辐射几乎能对整个流道进行辐射加热,同时流体的流动促使流道的上下层发生对流换热。随着纳米流体浓度的提高,其消光系数也在不断变大,这就使得入射辐射在流道中的穿透距离变小,其辐射加热的范围也在变小,这意味着流道内的辐射换热作用在减弱。另一方面,纳米流体的消光系数的增大使得纳米流体仅需很少的一层即可对入射辐射进行完全吸收,此时纳米流体的表面产生数值较大的热源,而热源越大,其表面的对流热损失越大。

此外,当纳米流体的体积分数增加时,纳米流体内部的再发射和散射作用变得更加

明显,同时,纳米流体的摩擦系数也会增加,这都将导致系统集热效率降低。总体而言,只有在一定范围内提高纳米流体的浓度才能提高系统的集热效率。就本研究设计的系统而言,最佳浓度约为 70 ppm。

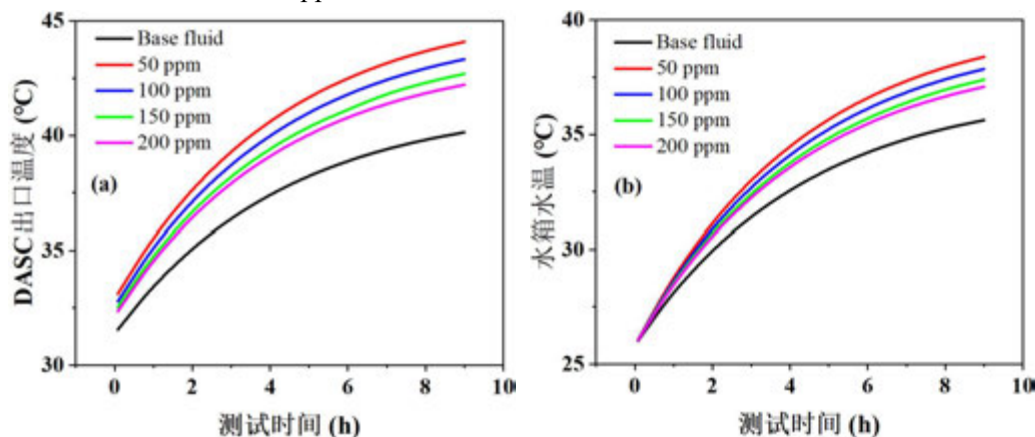


图 11 不同浓度下系统温度的计算结果: (a) DASC 的出口温度; (b) 储热水箱中的水温

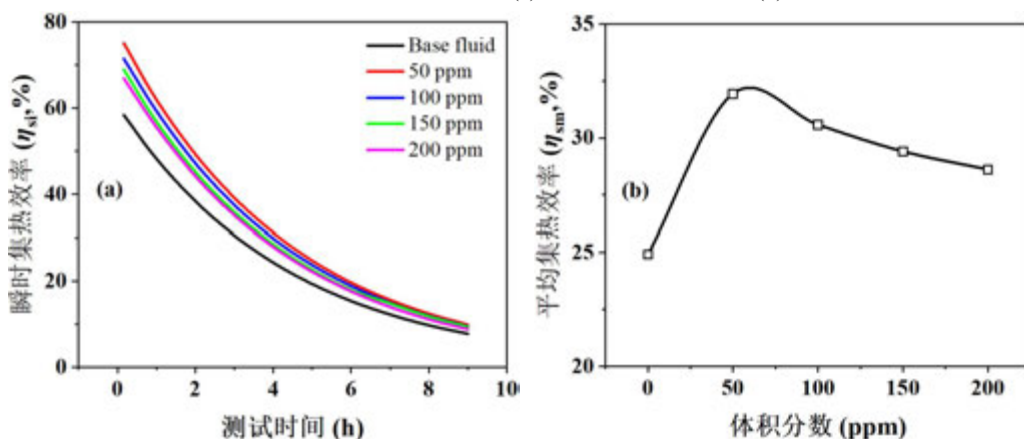


图 12 不同浓度下系统集热效率的计算结果: (a) 瞬时集热效率; (b) 平均集热效率

4.4 储热水箱的体积对系统性能的影响

储热水箱的体积对系统的集热效率有很大影响。本节对储热水箱的体积对系统性能的影响进行了模拟。图 13 为应用不同水箱后系统温度的计算结果,图 14 为系统集热效率的计算结果。

从图 13 中可以看出,水箱体积越大,水箱中的水温也越低。这是因为系统的储热能力增加了。然而,值得注意的是,随着水箱体积的增加,系统的太阳能集热效率也会增加。例如,当水量为 1 L 时,水箱中的水温将在大约 5 小时后达到平衡。当水箱变大后,系统可以在更长的时间内保持相对较高的效率。

从图 14 中可以发现,当水箱体积为 5 L 时,系统的平均集热效率可达 50%左右。其原因是,在相同运行时间内,大水箱的温升会小于小水箱,因此,大水箱的系统的环境热损失也将大大减少。然而,从能源应用的角度来看,有必要为系统选择合适大小的水箱,以确保水箱中的水温处于较高水平。

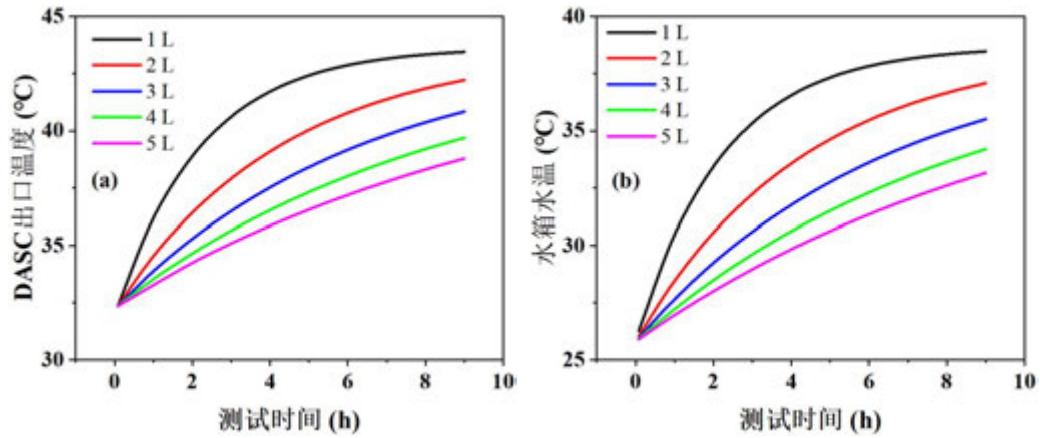


图 13 不同水箱体积下系统温度的计算结果：(a) DASC 的出口温度；(b) 储热水箱中的水温

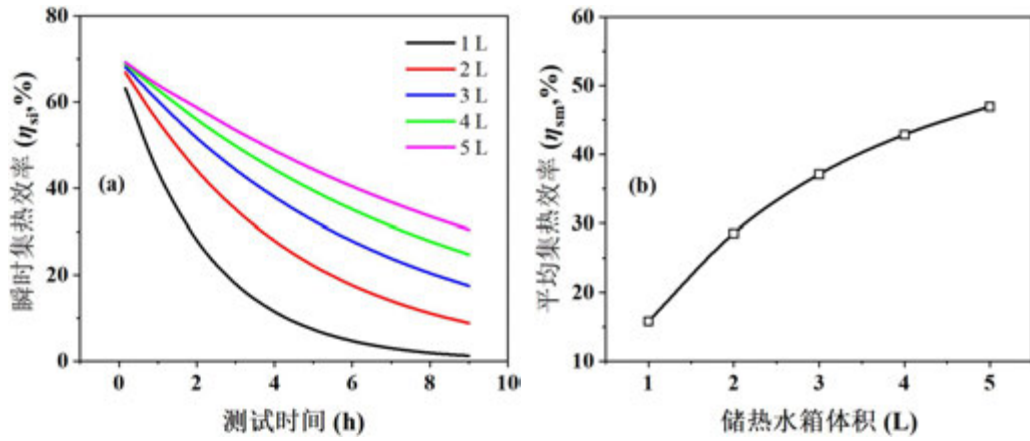


图 14 不同水箱体积下系统温度的计算结果：(a) 瞬时集热效率；(b) 平均集热效率

5 结论

本文设计并构建了基于 CQDs/EG 纳米流体的新型集热储热系统。建立了完整系统的数学模型，通过开展光热转换实验对数学模型进行了验证。研究了操作参数，包括纳米流体流速、纳米流体浓度、储热水箱体积对系统性能的影响，得到以下结论：

- (1) 基于本文建立的数学模型的数值计算结果与实验结果之间的最大相对偏差在 3.2% 以内，这表明本文建立的描述系统运行的数学模型是准确可靠的。
- (2) 本文提出的新型系统的太阳能集热效率与纳米流体流速和储热水箱的体积变化呈正相关。通过调整这两个参数，可以使系统的性能可以达到较高的水平。
- (3) 只有在一定范围内增加纳米流体的浓度，才能使系统的太阳能集热效率保持在最大值。对于本研究中系统，其最佳体积分数约为 70 ppm。

参考文献

- [1] Tahereh B. Gorji, A.A Ranjbar. A numerical and experimental investigation on the performance of a low-flux direct absorption solar collector (DASC) using graphite, magnetite and silver nanofluids. Solar Energy, 2016,135:493-505.
- [2] M.J.S.E. Chuang, Performance of a “black” liquid flat-plate solar collector, 1975.

- [3] M. Chen, Y. He, J. Zhu, D. Wen, Investigating the collector efficiency of silver nanofluids based direct absorption solar collectors, *Applied Energy*. 2016,181: 65-74.
- [4] S. Cho, S. Choi, Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles, developments and applications of non-Newtonian flows, 1995.
- [5] T. Ambreen, M.-H. Kim, Influence of particle size on the effective thermal conductivity of nanofluids: a critical review, *Applied Energy*, 2020,264: 114684.
- [6] Z. Wang, X. Quan, Z. Zhang, C. Ping, Optical absorption of carbon-gold core-shell nanoparticles 2017,205.
- [7] B.W. Xie, J. Dong, J.M. Zhao, L.H. Liu, Radiative properties of hedgehog-like ZnOAu composite particles with applications to photocatalysis 2018,217: 1-12.
- [8] E. Bellos, Z. Said, C. Tzivanidis, The use of nanofluids in solar concentrating technologies: a comprehensive review, *J. Clean. Prod.* 2018,196: 84-99.
- [9] S. Kumar, V. Sharma, M.R. Samantaray, N.J.R.E. Chander, Experimental investigation of a direct absorption solar collector using ultra stable gold plasmonic nanofluid under real outdoor conditions 2020,162.
- [10] S.Y. Lim, W. Shen, Z.J.C.S.R. Gao, Carbon quantum dots and their applications 2015,44: 362-381.
- [11] P. Zuo, X. Lu, Z. Sun, Y. Guo, H. He, A review on syntheses, properties, characterization and bioanalytical applications of fluorescent carbon dots, *Microchim. Acta* 2016,183: 519-542.
- [12] P. Mirtchev, E.J. Henderson, N. Soheilnia, C.M. Yip, G.A. Ozin, Solution phase synthesis of carbon quantum dots as sensitizers for nanocrystalline TiO₂ solar cells, *J. Mater. Chem.* 2012, 22: 1265-1269.
- [13] Chen M, Zou C, Tang W, Huang Y, Sun H. Experimental and modeling studies of N-doped carbon quantum dot nanofluids for heat transfer systems. *Diamond and Related Materials*. 2022, 129:109394.
- [14] Batchelor G. The effect of Brownian motion on the bulk stress in a suspension of spherical particles. *Journal of Fluid Mechanics*. 2006, 83:97-117.

基于多波段融合机制的相关 k 分布人工智能预测模型

汪迁文, 吴嘉雯, 张彪*, 许传龙, 李健

(东南大学大型发电装备安全运行与智能测控国家工程研究中心, 南京市 210096)

(Tel: 18052026832, Email: zhangbiao@seu.edu.cn)

摘要: 提出了一种多波段融合神经网络模型用于分波段式地预测 CO , CO_2 和水蒸气混合气的气体辐射特性。该模型可以将目标波段拆分成若干个连续的子波段, 将在每个子波段上训练得到的单张网络融合成一个紧凑的大模型, 从而实现所有子波段上混合气的吸收系数相关 k 分布的灵活快速预测。结果表明, 此模型在测试集上的最大对称平均绝对百分误差 (Symmetric Mean Absolute Percentage Error, SMAPE) 小于 1.83%, 在 40 个连续且步为 $0.1 \mu\text{m}$ 的子波长段上的预测用时约为 1.3 秒。

关键词: 神经网络, 辐射换热, 气体辐射特性, 辐射传递模型。

0 前言

辐射换热在高温燃烧系统中扮演着至关重要的角色, 辐射热流量的大小会直接影响燃烧系统的性能 (包括燃烧热效率和污染物排放)。也因此, 准确地预测燃烧设备的辐射传热对增强其燃烧热效率以及降低污染排放方法的研究而言具有重要的指导意义^[1]。辐射换热计算过程直接依赖于参与介质辐射物性参数的快速精确计算, 然而精确计算参与介质的辐射物性是一个计算量极大的工作。特别是对于气体介质而言, 动辄以数十万甚至数百万条计的过渡线特征使得气体辐射对波长具有强烈的选择性^[2], 从而导致精确并且快速地计算气体的辐射物性成为当今面临的主要挑战之一^[3]。目前为止, 逐线法 (Line-by-Line method, LBL)^[4]依然是计算气体辐射特性最为准确的一种方法, 但是 LBL 巨大的计算负担导致其只能作为一种建立或验证其他模型的基准^[5]。尽管近年来计算机算力有着巨大的提升, 但是仍不足以使其被应用到大尺度或三维的数值模型计算中去^[6]。

为此, 众多光谱模型被提出用于加速气体辐射的计算, 这些模型主要可以分为带模型和全局模型^[7]。典型的带模型有 Malkmus 窄带模型^[8], 窄带 k 分布^[9]和窄带相关 k 分布模型^[10]等。典型全局模型有灰气加权和模型 (Weighted-Sum-of-Gray-Gases model, WSGG)^[11], 吸收分布函数法 (Absorption Distribution Function method, ADF)^[12]以及全光谱相关 k 分布模型 (Full Spectral Correlated k -Distribution, FSCK)^[13]等。其中应用最为广泛的是 WSGG 及其衍生模型, 此类模型由于其出色的计算效率和计算准确性^[14], 经常被运用于计算流体力学仿真之中。但是, WSGG 在计算非均质介质的辐射特性时可能出现较大的

误差^[15]。相比于 WSGG, FSCK 更适用于非均质介质辐射特性的计算。并且, FSCK 通过高精度高斯求积的方式, 大幅度地减少了辐射传热方程求解的计算量。但是, FSCK 的缺点在于其需要通过预计算气体吸收系数相关 k 分布表格来实现辐射强度的快速计算, 而加载一张计算范围较广的表格则需要花费极大的内存资源和时间。此外, FSCK 的另外一个缺点在于, 其无法根据研究需求变化对研究波长范围进行灵活选择。一旦预计算好某波段的吸收系数相关 k 分布表格, 则只能计算该波长段上的气体辐射强度, 而当目标研究波长范围变化时则需要重新计算一张新的表格。

针对上述 FSCK 的局限性, 本研究旨在提出一种基于多波段融合神经网络的宽带相关 k 分布模型。此模型可以将目标研究波段拆分成连续的多个子波段, 并对每个子波段上的气体光谱辐射物性进行训练, 并且允许根据研究需求灵活地对子波段网络进行选择融合。借助 GPU 加速运算, 融合后的紧凑网络模型可以快速计算出所有相应子波段下的吸收系数的相关 k 分布, 从而便于后续所有子波段上的光谱辐射强度求解。

1 相关理论

1.1 全光谱相关 k 分布模型 (Full Spectral Correlated k -Distribution, FSCK)

考虑吸收, 发射以及散射的辐射传递方程 (Radiative Transfer Equation, RTE) 可以写作如下形式^[16]:

$$\frac{dI_\eta}{ds} = k_\eta u(\phi) I_{b\eta} - (k_\eta u(\phi) + \sigma_s) I_\eta + \frac{\sigma_s}{4\pi} \int_{4\pi} I_\eta(\hat{s}') \Phi_\eta(\hat{s}, \hat{s}') d\Omega' \quad (1)$$

其中 I_η 为波数为 η 时沿着路径 s 上的光谱辐射强度, $I_{b\eta}$ 为 Planck 函数, κ_η 为对应波数的光谱吸收系数, ϕ 代表了不同的工况 (包括压力 P , 温度 T 和摩尔分数 x), $\sigma_{s\eta}$ 为散射系数, Φ_η 为散射项函数, \hat{s}, \hat{s}' 为两个不同方向上的单位方向向量。

通过引入 Planck 函数加权的吸收系数的概率密度函数 $f(T, k)$, 其表达式如下:

$$f(T, k) = \frac{1}{I_b} \int_0^\infty I_{b\eta}(T) \delta(k - k_\eta) d\eta \quad (2)$$

其中 $\delta(k - k_\eta)$ 为 Dirac-delta 函数。并在式 (3) 两侧同乘 $\delta(k - k_\eta)/f(T_{ref}, k)$, T_{ref} 为参考温度, RTE 可变为如下形式:

$$\frac{dI_g}{ds} = ku(\phi) a I_b - (ku(\phi) + \sigma_s) I_g + \frac{\sigma_s}{4\pi} \int_{4\pi} I_\eta(\hat{s}') \Phi_\eta(\hat{s}, \hat{s}') d\Omega' \quad (3)$$

其中

$$I_g = \frac{\int_0^\infty I_\eta \delta(k - k_\eta) d\eta}{f(T_{ref}, k)} \quad (4)$$

$$a = \frac{\int_0^\infty I_{b\eta} \delta(k - k_\eta) d\eta}{I_b f(T_{ref}, k)} = \frac{f(T, k)}{f(T_{ref}, k)} \quad (5)$$

需要指出的是 $g(T, k)$ 为 $f(T, k)$ 的概率分布函数, 如图所示, $g(T, k) = \int_0^k f(T, k) dk$ 。所以总光谱辐射强度 I 可以通过式 (6) 得到, 其中 w_i 为第 i 个高斯积分位点对应的权重系数。

$$I = \int_0^{\infty} I_k dk = \int_0^1 I_g dg = \sum_{i=1}^n w_i I_{gi} \#(6)$$

1.2 Jensen-Shannon 散度理论

本研究使用 Jensen-Shannon (JS)散度来在保证数量集足够大的前提下，减小数据的冗余性。JS 散度是衡量数据之间差异性的指标，可以看作数据分布的距离，当两组数据完全相同时其值为 0，差异越大其数值越接近于 1。JS 散度公式可以写作：

$$JS(P_1|P_2) = \frac{1}{2}KL\left(P_1 \mid \frac{P_1 + P_2}{2}\right) + \frac{1}{2}KL\left(P_2 \mid \frac{P_1 + P_2}{2}\right) = \frac{D_{KL}(P|Q) + D_{KL}(Q|P)}{2} \#(7)$$

其中 P 和 Q 为两组不同的数据分布， D_{KL} 为 KL 散度，其可以表示成：

$$D_{KL}(P|Q) = -\sum_{x \in X} P(x) \log \frac{1}{P(x)} + \sum_{x \in X} P(x) \log \frac{1}{Q(x)} = \sum_{x \in X} P(x) \log \frac{P(x)}{Q(x)} \#(8)$$

在此基础上可以得到归一化后的 JS 散度 JS_n^i 即 $JS_n^i = (JS_{max} - JS^i)/(JS_{max} - JS_{min})$ 。其中 JS_{max} 以及 JS_{min} 分别为第 i 个数据集对应最大和最小 JS 散度。

2 模型建立

2.1 数据集建立

气体分子的谱线数据来自于高温分子光谱数据库 HITEMP-2010^[17]，得到混合气体在不同热力学状态下的气体吸收系数后，使用 FSCK 方法后可以得到不同波数、温度、压力以及摩尔分数下的气体吸收系数相关 k 分布数据集。但是建立数据集之初的一个首要问题是如何选择特征的划分间隔，以此保证在训练集数量足够大的条件下使数据集具有较低的冗余性。为此，本研究借助 JS 散度理论计算了并分析了特征变量温度 T 、压力 P 和水蒸气的摩尔分数 x_{H_2O} 的步长划分对整体数据集的影响，结果如图 1 所示。

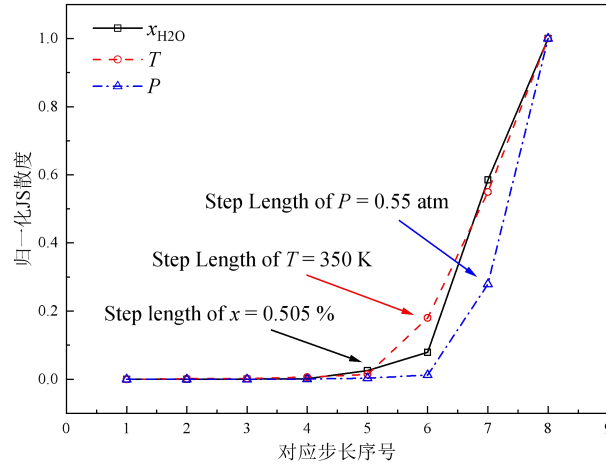


图 1 不同步长数据集对应的归一化散度

Figure 1 Normalized JS divergence of datasets with different step length

需要补充的是图 1 中起始 P 、 x_{H_2O} 、 T 的起始值分别为 0.5 atm、0%、300 K。从图中可以发现，三个特征的归一化 JS 散度在小步长时基本为零，当步长逐渐加大时，JS 散度也随之增大，JS 折线坡度逐渐增大，这也意味数据之间的区分度也愈大。为此我们选择归一化 JS 散度折线第一个坡出现时的步长作为整个数据集的划分依据，这样能够在确保数据集足够大的同时，减小数据之间的冗余度，以确保得到最佳的训练效果。因此在本研究中 d_P 、 d_x 和 d_T 分别取 0.05 atm、0.05% 和 50 K。

2.2 模型结构和超参数选择

如上文所述，本研究将温度、压力以及不同气体组分的摩尔分数作为特征，同时引入 n 点数值积分对应的积分点数值作为特征，因此单个波段内的神经网络输入层的单元数量为 6。将每个高斯积分位点对应的吸收系数 k 作为标签，因此输出层单元数为 1。为了可以同时计算多个不同波段的气体辐射强度，特别是气体辐射吸收光带所处的波段，本研究提出了一种多波段网络融合模型，如图 2 所示。融合模型将整个大波长段分为 n 个小波长段，按照每个波长段的序号进行融合模型的批次训练。在融合模型批次训练过程中，其只关注该批次对应子波段上的网络结构，除该子波段对应网络外的其余参数全部冻结。

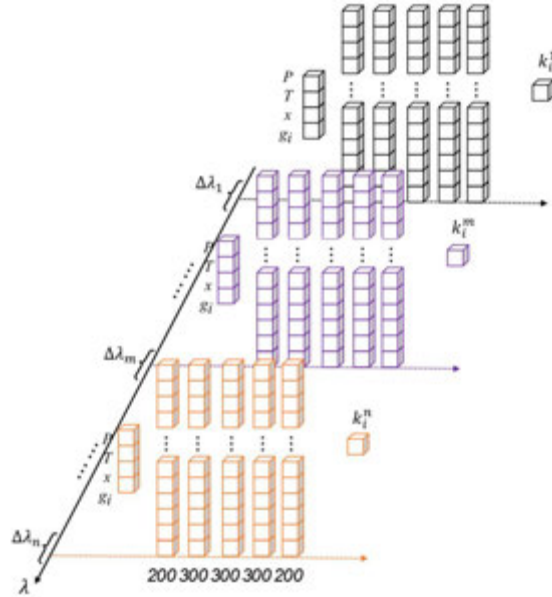


图 2 多波段融合神经网络结构

Figure 2 Multi band fusion neural network structure

融合模型的数学表达式为 $\mathbf{h}_{l+1}'' = f(\mathbf{h}_l'' \cdot \mathbf{W}_{l+1}'' + \mathbf{b}_l'')$ 。其中 \mathbf{W}_{l+1}'' 和 \mathbf{b}_l'' 分别为融合模型的第 $l+1$ 隐藏层的权重张量和偏置张量，需要指出的是 $\mathbf{h}_0'' = \mathbf{x} = [P, T, x, g_i]$ (g_i 为第 i 个高斯积分点的值)，即融合网络共用同一个输入向量 $\mathbf{x} = [P, T, x, g_i]$ 。另外，融合模型的第 7 隐藏层 $\mathbf{h}_7'' = \mathbf{y}'' = \mathbf{k}_i$ ，其中 $\mathbf{k}_i = [k_i^1, k_i^2, \dots, k_i^m, \dots, k_i^n]$ 为第 i 个高斯积分点 n 个子波段对应的 k 值组成的向量。此外需要说明的是，本模型中所用的损失函数为 RMSprop，其因为

收敛速度快、处理稀疏梯度优秀、不需要手动调节学习率和鲁棒性强等优点常被用于回归预测模型之中^[18]。模型初始学习率设置为 0.001，采用自适应学习率算法以及早停方法。自适应学习率算法可以让模型在训练过程中更快地收敛到最优解，同时也可以避免学习率设置不当导致的梯度消失或梯度爆炸等问题，而早停则可以避免模型过拟合，提高模型的泛化能力。本研究中整个数据集大小为 829400，其中 80%为训练集，20%划分为验证集。模型训练和预测过程均使用 GPU 进行加速，所用设备 CPU 为 Intel(R) Core(TM) i9-9900K 和 GPU 为 NVIDIA GeForce RTX 2080 SUPER。

3 结果和讨论

3.1 模型训练

图 3 展示了多波段融合神经网络模型在 4 个不同子波长段上的训练情况，其中 λ 代表的是波长段的起始波长。图中实线代表的是融合模型在验证集上的平均绝对误差（Mean Absolute Error, MAE）随迭代次数的变化情况，而点划线则代表了训练过程中的均方误差（Mean Squared Error, MSE）的变化情况。从图中可以看出，模型收敛时，其在训练集和验证集上的评估曲线基本重合，这说明模型并未出现过拟合现象。还有一点值得注意的是，在不同波长段，训练过程中的平均 MAE 和 MSE 有着较大的差别。在 4.1~4.2 和 4.2~4.3 μm 波长段内，训练起始时的 MAE 分别在 140 和 330 左右，而在之后的两个波长段内其起始值减小到 20 和 0.8 左右。这可归因于前两个波段气体的平均吸收系数较大而在两个波长段平均吸收系数较小。

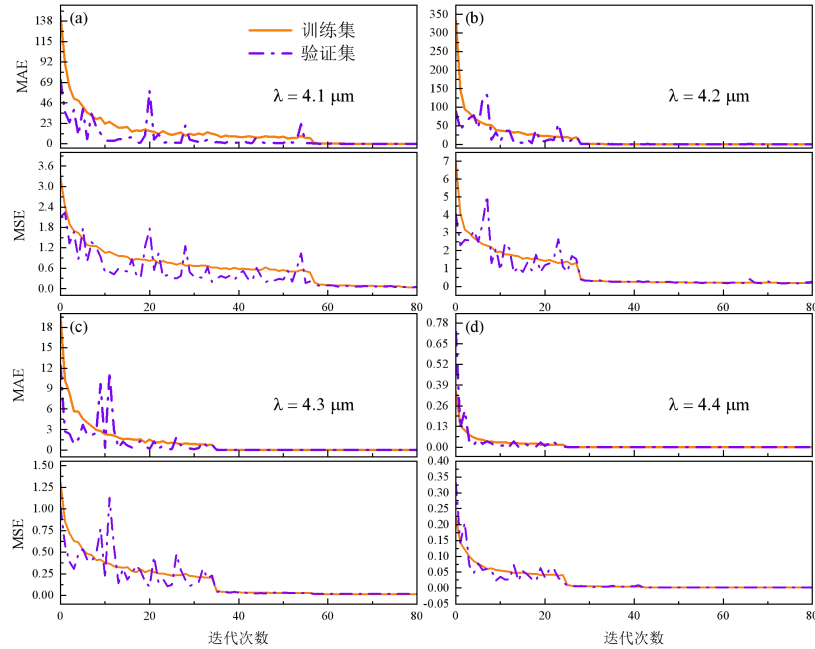


图 3 多波段融合神经网络的训练情况

Figure 3 Training performance of multi band fusion neural network

3.2 模型评估

图 4 则更为直观地对比了融合模型在验证集上的预测结果与实际结果。图(a)~(f) 分别是 $4.0\sim 4.6\text{ }\mu\text{m}$ 这 6 个连续且间隔为 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 的子波长段内标签 k 值与融合模型预测所得的 k 值之间的对比情况，图中的直线 $y=x$ 代表了预测值完全等于实际值的理想情况。从图中可以看出，基本上所有的数据点（分别以标签值和预测值为横和纵坐标）都落在对角线上，表明了预测结果与真实结果之间的高重合度。这也更为直观的体现了融合模型出色的预测能力。

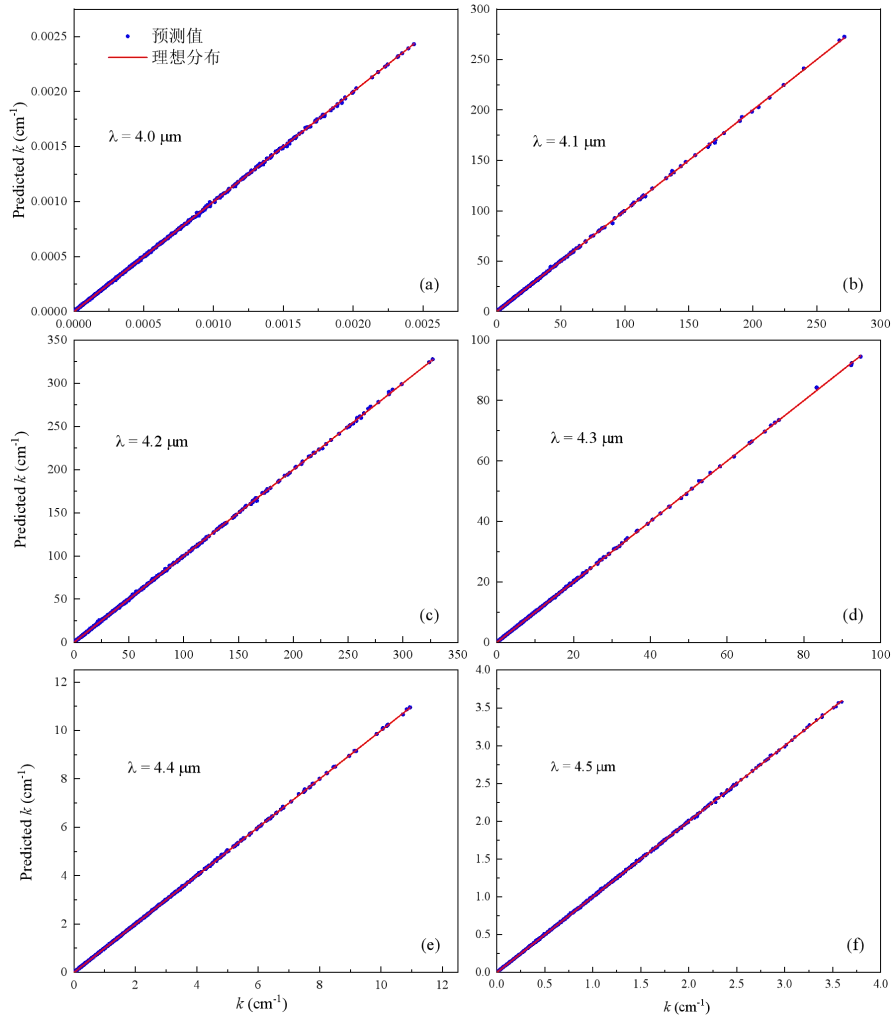


图 4 多波段融合神经网络的预测结果与标签值对比

Figure 4 Comparison of prediction results and labels of multi band fusion neural network

在此基础上，本研究使用 FSKK 分别计算了工况分别为 $P = 0.5\text{ atm}$ 、 $T = 1600\text{ K}$ 、 $P = 0.5\text{ atm}$ 、 $T = 2000\text{ K}$ 以及 $P = 1.5\text{ atm}$ 、 $T = 1600\text{ K}$ 的 k 分布情况，并将其作为基准值，需要补充的是三组工况下混合气体组分浓度相同， CO 、 CO_2 以及水蒸气的摩尔分数分别

为 25%，50%和 20%。这三组工况在 4.0~4.6 μm 这 6 个不同子波长段上的 k 分布情况如图 5 所示。

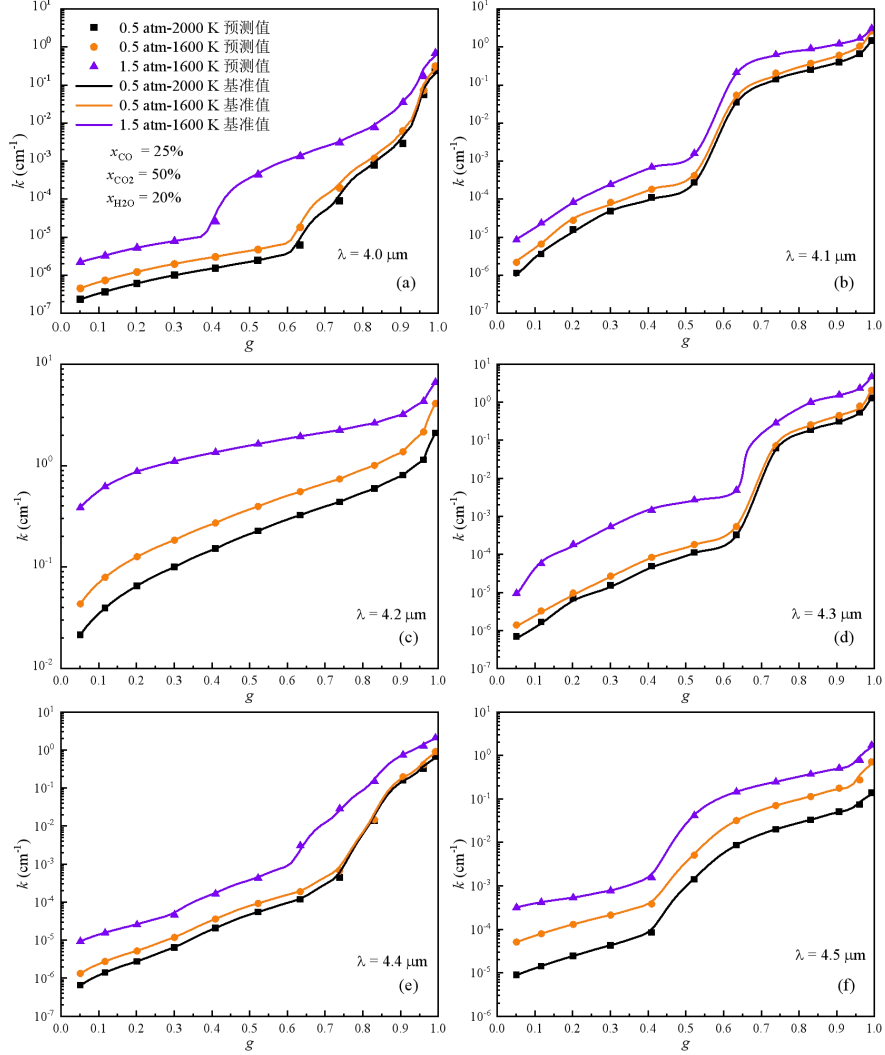


图 5 多波段融合神经网络的预测结果与基准值的对比情况

Figure 5 Comparison of prediction results and benchmark of multi band fusion neural network

为了清楚的展示多波段融合神经网络在不同波长下的预测表现，图 5 (a) ~ (f) 分别呈现了 4.0~4.6 μm 区间内连续 6 个子波段上多波段融合神经网络的预测结果与基准值的对比情况。其中散点为融合网络的预测结果，曲线则为基准值。从图中可以看出，预测值基本与基准值重合，说明了此模型在不同子波长长短内均有不错的预测精度。也证明了多波段网络融合方法能够避免由于不同波段区间气体吸收系数尺度相差过大对网络整体预测精度所带来的负面影响。

为了评价多波段网络融合模型的计算速度，本研究对比了其他几种典型模型的计算

效率，如表 1 所示。需要指出的是，虽然有些模型并未对气体吸收系数 k 分布进行直接计算，但是其工作中包含着气体吸收系数计算这一部分内容，而这是计算 k 分布的一个前提，因此这些模型的计算效率对多波段网络融合模型的计算效率评价而言具有一定的参考价值。从表中可以看出多波段网络融合模型表现出了出色的计算效率，计算 1818~6667 (cm^{-1}) 波数，即 1.5~5.5 μm ，范围内 40 个子波段 CO , CO_2 和水蒸气的混合气的 k 分布用时仅需 1.33 s 远快于 LBL 方法（即使是经过 GPU 加速的 LBL 方法）。尽管多波段网络融合模型计算速度略低于参考文献^[19]中基于机器学习的 FSCK 模型，但是与其相比，多波段网络融合模型可以更为灵活地获取多个子波长段上的气体吸收系数 k 分布数据，这意味着可以高效且灵活地计算混合气体在感兴趣波段的光谱辐射特性。另一方面较小的波长范围内的数据具有更高的信噪比，可以进一步提升光谱辐射计算的准确性。

Table 1 Comparison of speed between different computational models

表 1 不同计算模型的速度对比

计算目标	计算模型	计算耗时(s)
1818–6667 (cm^{-1}) 波段 CO , CO_2 和水蒸气混合气的气体吸收系数相关 k 分布	本研究模型	1.33
全光谱 CO , CO_2 和水蒸气混合气的气体吸收系数相关 k 分布	基于机器学习的 FSCK ^[19]	0.17~1.44
150–12,500 (cm^{-1}) 波段 CO_2 的气体吸收系数	GPU 加速后的 LBL ^[6]	11.8
2250–2350 (cm^{-1}) 波段内的 CO_2 气体窄带透射率	LBL ^[20]	5.7
2250–2350 (cm^{-1}) 波段内的 CO_2 气体窄带透射率	BPNN4 ^[20]	0.0267

由于各个波长段的平均气体吸收系数变化较大，本研究引入对称平均绝对百分误差 (Symmetric Mean Absolute Percentage Error, SMAPE) 来对整个融合模型的表现进行评估，SMAPE 的计算公式可以写作：

$$\text{SMAPE} = \frac{100\%}{n} \sum_{i=1}^n \frac{|y'_i - y_i|}{(|y'_i| + |y_i|)/2} \quad \#(9)$$

其中 y_i 为标签值， y'_i 代表预测值。整个融合模型在整个验证集上的最大 SMAPE 为 1.83%，这表明预测值和真实值的最大平均相对误差在 1.83% 以内，可以满足大多应用场景的计算需求。

4 结 论

本研究提出了一种多波段融合神经网络模型用于气体辐射物性的预测。不同于其他全光谱模型,该模型的特点在于它将一个长波段拆分成若干个子波段,从而可以对每个子波段的光谱相关 k 分布进行计算。这一特点的优势在于,研究者可以根据研究需求挑选他们感兴趣的目标波段,进而可以根据特定的光学性质和气体特征,选择最相关的波段进行研究,从而更好地理解气体的辐射行为。同时,小波段往往具有更高的信噪比进而可以提升辐射传递模型的计算精度和分辨率。为了降低拆分波段对模型的整体计算速度造成的负面影响,本研究提出了网络融合机制,即将所有子波段上的单张神经网络融合成一个紧凑的大模型,进而利用 GPU 矩阵运算来对所有子波长下的相关 k 分布计算进行加速。整个融合模型对 CO, CO₂ 和水蒸气的混合气在 1.5~5.5 μm 波长范围内 40 个子波段的相关 k 分布预测的最大 SMAPE 为 1.83%, 计算速度为 1.33 s, 快于 LBL 方法同时接近典型的基于机器学习的 FSCK 模型。

参考文献

- [1] Modest M F, Haworth D C. Radiative heat transfer in turbulent combustion systems: theory and applications[M]. Springer, 2016.
- [2] 杨世铭, 陶文铨. 传热学[M]. 高等教育出版社, 2006.
Yang Shi-Ming, Tao Wen-Quan. Heat Transfer[M]. Higher Education Press, 2006.
- [3] 董士奎, 余其铮, 刘林华, 等. 一种新的CO₂高温辐射特性窄谱带模型参数计算方法[J]. 工程热物理学报, 2001(S1): 177–180.
Dong Shi-Kui, Yu Qi-Zheng, Liu Lin-Hua, et. al. A new method of calculating high temperature radiative property parameters of narrow-band model for CO₂. Journal of Engineering Thermophysics, 2001(S1):177-180.
- [4] Sparks L. Efficient line-by-line calculation of absorption coefficients to high numerical accuracy[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 1997, 57(5): 631–650.
- [5] 尹雪梅, 王磊, 张雪龄, 等. 宽带 k 分布模型计算液体火箭尾焰辐射信号[J]. 激光与红外, 2020(011): 50.
Yin Xue-Mei, Wang Lei, Zhang Xue-Ling, et. al. Wide band k -distribution model for calculating radiation signal of liquid rocket exhaust plume[J]. Laser and Infrared, 2020(011):50.
- [6] Zeng X, Liang C, Duan L, et al. A GPU-based line-by-line method for thermal radiation transfer of H₂O, CO₂, and H₂O/CO₂ mixture[J]. Applied Thermal Engineering, 2020, 167(December 2019): 114799.
- [7] 谈和平, 夏新林, 刘林华, 等. 红外辐射特性与传输的数值计算:计算热辐射学[M]. 哈尔滨工业大学出版社, 2006.

- Tan He-Ping, Xia Xin-Lin, Liu Lin-Hua, et. al. Numerical Calculation of Infrared Radiation Characteristics and Transmission: Computational Thermal Radiology[M]. Harbin Institute of Technology Press, 2006.
- [8] Malkmus W. Random Lorentz band model with exponential-tailed S-1 line-intensity distribution function[J]. JOSA, 1967, 57(3): 323–329.
- [9] Jo S M, Kim J W, Kwon O J. A narrow-band k-distribution model with single mixture gas assumption for radiative flows[J]. Infrared Physics & Technology, 2018, 91: 27–36.
- [10] Lacis A A, Oinas V. A description of the correlated k distribution method for modeling nongray gaseous absorption, thermal emission, and multiple scattering in vertically inhomogeneous atmospheres[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1991, 96(D5): 9027–9063.
- [11] Smith T F, Shen Z F, Friedman J N. Evaluation of coefficients for the weighted sum of gray gases model[J]. ASME Journal of Heat and Mass Transfer, 1982, 104(4): 602–608.
- [12] Pierrot L, Rivière P, Soufiani A, et al. A fictitious-gas-based absorption distribution function global model for radiative transfer in hot gases[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 1999, 62(5): 609–624.
- [13] Modest M F, Zhang H. The full-spectrum correlated-k distribution for thermal radiation from molecular gas-particulate mixtures[J]. Journal of Heat Transfer, 2002, 124(1): 30–38.
- [14] 楚化强, 冯艳, 曹文健, 等. 灰气体加权和辐射模型综合评估及分析[J]. 物理学报, 2017, 66(9): 10.
- Chu Hua-Qiang, Feng Yan, Cao Wen-Jian, et. al. Comprehensive evaluation and analysis of the weighted-sum-of-gray-gases radiation model[J]. ACTA PHYSICA SINICA, 2017, 66(9): 10.
- [15] Modest M F. The treatment of nongray properties in radiative heat transfer: From past to present[J]. Journal of Heat Transfer, 2013, 135(6): 061801.
- [16] Modest M F, Mazumder S. Radiative heat transfer[M]. New York: Academic press, 2021.
- [17] Rothman L S, Gordon I E, Barber R J, et al. HITEMP, the high-temperature molecular spectroscopic database[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2010, 111(15): 2139–2150.
- [18] Bera S, Shrivastava V K. Analysis of various optimizers on deep convolutional neural network model in the application of hyperspectral remote sensing image classification[J]. International Journal of Remote Sensing, 2020, 41(7): 2664–2683.
- [19] Zhou Y, Wang C, Ren T. A machine learning based efficient and compact full-spectrum correlated k-distribution model[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2020, 254: 107199.
- [20] Cui J, Zhang J, Dong C, et al. An ultrafast and high accuracy calculation method for gas radiation characteristics using artificial neural network[J]. Infrared Physics and Technology, 2020, 108(October 2019): 103347.

多粒子效应耦合柱面波导强化辐射传热

王建友, 张勇^{*}

(哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150001)

(Tel: 0451-86412674, Email: yong_zhang@hit.edu.cn)

摘要: 辐射传递对能量转换、信号处理等方面都具有十分重要的意义。本文研究了多粒子相互作用与柱面波导的耦合特性, 探索了两端粒子间距与粒子半径之比 L/R 对辐射热运输的影响。当 $L/R < 70$ 时, 纳米粒子与圆柱体间的耦合增强了辐射热导率 h , 多粒子效应占据主导地位; 对于 $L/R > 70$, 柱面波效应扮演了关键角色。当 $L < 0.3$ 或 $L > 0.7 \mu\text{m}$ 时, 与真空中两孤立粒子相比, 耦合效应能够提高“7+1”型系统的 h 。本文为微/纳尺度辐射传热的研究提供了理论基础。

关键词: 多体系统; 辐射换热; 多粒子效应; 柱面波导

0 前言

作为一种非接触式的热量传递方式, 辐射换热 (Radiative heat transfer, RHT) 能够依靠电磁辐射实现冷热物体间的能量输运[1-3]。当两物体的间距小于热发射主要波长时, 倏逝波耦合控制的光子隧穿效应促使热量传递显著增强, 比 Stefan-Boltzmann 预测的黑体辐射极限高几个数量级。由于高效、超快的能量传递特点, 近场辐射传热 (Near-Field radiative heat transfer, NFRHT) 在许多应用中受到广泛关注, 例如近场扫描热显微镜、能量管理[4, 5]、热整流器[6, 7]、近场热光伏[8-10]等。因此, 继续完善近场输运理论、探索潜在的应用前景对微/纳尺度辐射传递及纳米光子学等领域具有十分重要的意义。

由于倏逝电磁波在垂直表面方向上呈现指数衰减的特性, 近场辐射输运过程通常发生在亚波长范围内[11]。一般情况下, 随着间距的增加, 两物体间的倏逝波耦合效应逐渐减弱, 辐射热输运也急剧降低。因此, 物体间的距离对近场能量传递有着不可忽略的影响。需要考虑的问题是, 近场辐射增强现象是否能够摆脱小间距这一条件的限制, 在更大间距范围内发生? 从而提高远距离物体间的能量传递过程。相关文献发现, 平板基底能够为能量传递引入额外的通道, 促使粒子间的辐射热输运在较远距离下提高几个数量级[12]。最近, 有学者报道了一种以表面波形式传输热电磁能的完美导电圆柱体, 这为任意形状物体间近场能量的远距离传递提供了新载体[13]。此外, 基于多体辐射换热理论 (Many-body radiative heat transfer theory) [14, 15], 一些学者探究了集聚发射特性对纳米粒子间光谱能量密度以及辐射热输运机制的影响[16, 17]。研究表明, 多体相互作用机制能极大增强介观尺度复杂系统的光子热输运。受近场效应远距离传递和多体辐射换热理论的启发, 本工作构建了一种由纳米粒子和完美导电圆柱体组成的多体系统, 探究多粒子相互作用和柱面波导之间的耦合效应对粒子间辐射热输运的影响。

^{*} 基金项目: 国家自然科学基金 (No. 52076056), 中央高校基本科研业务费专项资金资助 (HIT.OCEF. 2023020)

1 理论模型

本研究建立的结构模型如图 1 所示, 由一个半径 $R_c = 10^{-9} \text{ m}$ 的导电圆柱体和 N 个半径 $R = 5 \times 10^{-9} \text{ m}$ 的纳米粒子构成。粒子均匀分布在圆柱体的正上方, 与柱体顶端的距离为 $h_0 = 10^{-7} \text{ m}$ 。相邻粒子的间距为 d , 两端粒子 (粒子 1 和 N) 的间距为 L 。假设纳米粒子为各向同性、线性和非磁性的, 几何尺寸远小于热辐射波长, 满足偶极子模型。此外, 本研究认为粒子之间以及粒子与圆柱之间的距离都足够大, 因此可以忽略更高的多极。由于磁偶极的贡献远小于电偶极, 所以本文不再考虑磁偶极产生的贡献。

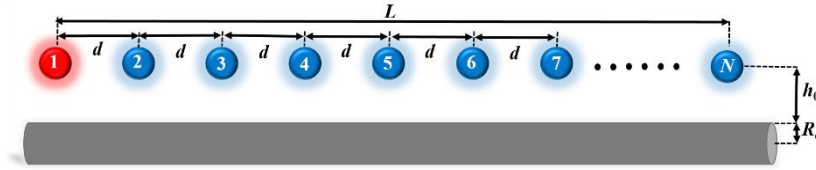


图 1 纳米粒子与导电圆柱体组成的系统结构示意图

纳米粒子 $P_i (i = 1, 2, \dots, N)$ 、圆柱和周围环境的温度分别设定为 T_i 、 T_c 和 T_{env} 。假设整个系统除了 P_1 的温度为 $T + \Delta T$, 其它温度均为 $T = 300 \text{ K}$, 即 $T_1 = T + \Delta T$, $T_N = T_c = T_{\text{env}} = T (N = 2, 3, \dots, N)$ 。为探究多粒子与柱体之间的耦合效应, 本次仅考虑粒子 1 与粒子 N 之间的能量交换。当温差 ΔT 趋于零时, 可以得到粒子间的辐射热导率 h 。相同条件下, 采用格林函数 (GF) 对粒子 i 和 j 的 h 进行描述[18, 19], 表达式为:

$$h_{ij} = 3 \int_0^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \hbar \omega n'(\omega, T) T_{ij}(\omega), \quad (1)$$

式中, $n'(\omega, T)$ 表示玻色-爱因斯坦 (Bose-Einstein) 分布 $n(\omega, T) = [\exp(\hbar \omega / k_B T) - 1]^{-1}$ 关于温度 T 的导数, \hbar 是约化的普朗克常数, k_B 是玻尔兹曼常数。透射系数 $T_{ij}(\omega)$ 为:

$$T_{ij}(\omega) = 4 / 3 k_0^4 \text{Im}(\alpha_i) \text{Im}(\alpha_j) \text{Tr}[\mathbf{G}^{ij} \mathbf{G}^{ij*}], \quad (2)$$

式中, $k_0 = \omega/c$ 为真空波矢, $\alpha(\omega) = 4\pi R^3 [(\epsilon(\omega) - 1)/(\epsilon(\omega) + 2)]$ 是纳米粒子与频率相关的电极化率, $\epsilon(\omega)$ 是纳米粒子的介电常数。

当圆柱体存在时, 系统中任意两个纳米粒子间的格林函数 G^{ij} 推导如下。在真空环境中, 粒子 j 电偶极矩的波动部分 $\mathbf{p}_j^{\text{fluc}}$ 在粒子 i 处产生的电场傅里叶分量表示为[14]:

$$\mathbf{E}_{ij} = \omega^2 \mu_0 \mathbf{G}^{ij} \mathbf{p}_j^{\text{fluc}}, \quad (3)$$

式中, μ_0 为真空磁导率。当多粒子和圆柱体同时存在时, 电场 \mathbf{E}_{ij} 表达式如下:

$$\mathbf{E}_{ij} = \omega^2 \mu_0 (\mathbf{G}_0^{ij} + \mathbf{G}_T^{ij}) \mathbf{p}_{j \neq i}^{\text{fluc}} + \frac{\omega^2}{c^2} \sum_{k \neq i} (\mathbf{G}_0^{ik} + \mathbf{G}_T^{ik}) \alpha_k \mathbf{E}_{kj}, \quad (4)$$

主要由两部分构成, 分别为真空贡献 \mathbf{G}_0^{ij} 和散射贡献 \mathbf{G}_T^{ij} 。将方程 (3) 代入方程 (4) 可得到并矢格林函数的张量形式[20]:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{G}^{11} & \mathbf{G}^{12} & \dots & \mathbf{G}^{1N} \\ \mathbf{G}^{21} & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \mathbf{G}^{(N-1)N} \\ \mathbf{G}^{N1} & \dots & \mathbf{G}^{N(N-1)} & \mathbf{G}^{NN} \end{bmatrix} = [\mathbf{I} - \mathbf{A}]^{-1} \begin{bmatrix} 0 & \mathbf{G}^{12} & \dots & \mathbf{G}^{1N} \\ \mathbf{G}^{21} & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \mathbf{G}^{(N-1)N} \\ \mathbf{G}^{N1} & \dots & \mathbf{G}^{N(N-1)} & 0 \end{bmatrix}, \quad (5)$$

式中，矩阵 \mathbf{A} 的表达式如下：

$$\mathbf{A} = \frac{\omega^2}{c^2} \begin{bmatrix} 0 & \mathbf{G}^{12} \alpha_2 & \cdots & \mathbf{G}^{1N} \alpha_N \\ \mathbf{G}^{21} \alpha_1 & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \mathbf{G}^{(N-1)N} \alpha_N \\ \mathbf{G}^{N1} \alpha_1 & \cdots & \mathbf{G}^{N(N-1)} \alpha_{N-1} & 0 \end{bmatrix}, \quad (6)$$

式中， $\mathbf{G}^{ij} = \mathbf{G}_0^{ij} + \mathbf{G}_T^{ij}$ 。自由空间的格林函数 \mathbf{G}_0^{ij} 可表示为：

$$\mathbf{G}_0^{ij} = \frac{\exp(ikr_{ij})}{4\pi r_{ij}} \times \left[\left(1 + \frac{ikr_{ij}}{k^2 r_{ij}^2}\right) \mathbf{I} + \frac{3 - 3ikr_{ij} - k^2 r_{ij}^2}{k^2 r_{ij}^2} \hat{\mathbf{r}}_{ij} \otimes \hat{\mathbf{r}}_{ij} \right], \quad (7)$$

式中， $\hat{\mathbf{r}}_{ij} = \mathbf{r}_{ij} / r_{ij}$ 为单位向量， \mathbf{r}_{ij} 是连接粒子 i 和 j 的矢量， $r_{ij} = |\mathbf{r}_{ij}|$ 。另外，圆柱存在下的散射贡献可由散射格林函数 \mathbf{G}_T^{ij} 进行描述[21]：

$$\mathbf{G}_T = \frac{i}{8\pi} \sum_{P, P'} \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n \int_{-\infty}^{\infty} dk_z \mathbf{P}_{n, k_z}^{\text{out}}(\mathbf{r}) \otimes \mathbf{P}_{-n, -k_z}^{\text{out}}(\mathbf{r}') T_{n, k_z}^{PP'}, \quad (8)$$

式中， k_z 是自由空间中波矢的 z 分量， n 表示多极； $P, P' = \{M, N\}$ ，表示极化（ M 代表磁极化， N 代表电极化），符号 \otimes 表示并矢乘积。散射算子 T 对应的散射矩阵 $T_{n, k_z}^{PP'}$ ，与圆柱体的半径和材料有关，对于完美的导电圆柱，表达式可简化为[13]：

$$T_{n, k_z}^{MM} = -\frac{J'_n(qR)}{H'_n(qR)}, T_{n, k_z}^{NN} = -\frac{J_n(qR)}{H_n(qR)}, T_{n, k_z}^{MN} = T_{n, k_z}^{NM} = 0, \quad (9)$$

式中， J_n 和 H_n 分别表示贝塞尔函数（Bessel function）和第一类 n 阶的汉克尔函数（Hankel function）。散射格林函数的矩阵形式为：

$$\mathbf{G}_T = \begin{bmatrix} G_{T11} & 0 & G_{T13} \\ 0 & G_{T22} & 0 \\ -G_{T13} & 0 & G_{T33} \end{bmatrix}, \quad (10)$$

式中，

$$G_{T11} = -\frac{i}{4\pi} \int_0^\infty dk_z \frac{k_z^2}{k^2} \frac{H_1^2(qr) J_0(qR)}{H_0(qR)} \cos(k_z d) - \frac{i}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \int_0^\infty dk_z \left[\frac{n^2}{(qr)^2} \frac{H_n^2(qr) J'_n(qR)}{H'_n(qR)} + \frac{k_z^2}{k^2} \frac{[H'_n(qr)]^2 J_n(qR)}{H_n(qR)} \right] \cos(k_z d), \quad (11a)$$

$$G_{T22} = -\frac{i}{4\pi} \int_0^\infty dk_z \frac{H_1^2(qr) J_1(qR)}{H_1(qR)} \cos(k_z d) - \frac{i}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \int_0^\infty dk_z \left[\frac{[H'_n(qr)]^2 J'_n(qR)}{H'_n(qR)} + \frac{n^2 k_z^2}{k^2 (qr)^2} \frac{H_n^2(qr) J_n(qR)}{H_n(qR)} \right] \cos(k_z d), \quad (11b)$$

$$G_{T33} = -\frac{i}{4\pi} \int_0^\infty dk_z \frac{q^2}{k^2} \frac{H_0^2(qr) J_0(qR)}{H_0(qR)} \cos(k_z d) - \frac{i}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \int_0^\infty dk_z \frac{q^2}{k^2} \frac{H_n^2(qr) J_n(qR)}{H_n(qR)} \cos(k_z d), \quad (11c)$$

$$G_{T13} = \frac{i}{4\pi} \int_0^\infty dk_z \frac{qk_z}{k^2} \frac{H_0(qr)H_1(qr)J_0(qR)}{H_0(qR)} \sin(k_z d) - \frac{i}{2\pi} \sum_{n=1}^\infty \int_0^\infty dk_z \frac{qk_z}{k^2} \frac{H_n(qr)H'_n(qr)J_n(qR)}{H_n(qR)} \sin(k_z d) \quad (11d)$$

2 结果与讨论

基于上节数学物理模型的介绍，本节致力于探究多粒子和圆柱体的耦合效应对粒子间辐射热输运的影响。纳米颗粒的材料均为碳化硅（SiC），它支持表面声子极化激元（SPhPs）的传递，采用德鲁德-洛伦兹（Drude-Lorentz）模型对介电函数进行描述[22]：

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty \frac{\omega_L^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}, \quad (12)$$

式中， $\varepsilon_\infty = 6.7$ ， $\omega_L = 1.83 \times 10^{14} \text{ rad s}^{-1}$ ， $\omega_T = 1.49 \times 10^{14} \text{ rad s}^{-1}$ ， $\Gamma = 8.97 \times 10^{11} \text{ rad s}^{-1}$ 。图 2（a）展示了 SiC 介电函数的实部和虚部关于光谱频率的函数。在 $\varepsilon(\omega)+2=0$ 条件下，电极化率预测的粒子共振频率为 $\omega_{np} = 1.756 \times 10^{14} \text{ rad s}^{-1}$ ，如图 2（b）所示。粒子电极化率在共振频率处产生一个较明显的峰值，这在粒子间辐射热输运中占主要贡献。为合理地简化整体计算过程，本研究通过计算粒子共振频率 ω_{np} 处的光谱热导率 $h(\omega_{np})$ ，探究多粒子和柱面波导的耦合对纳米粒子间辐射传热的影响。

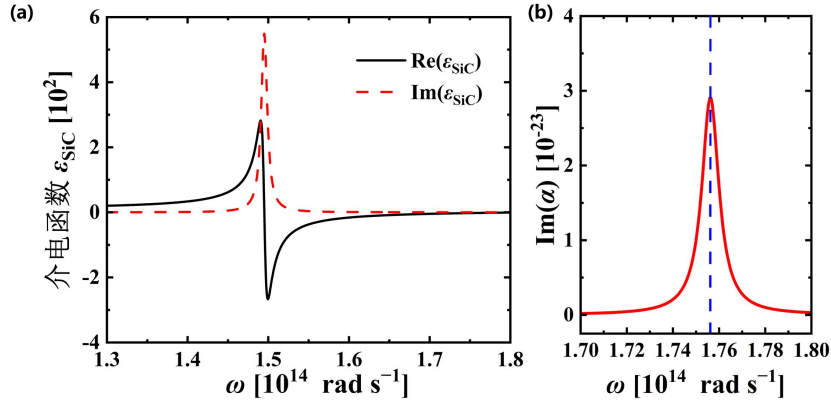


图 2 SiC 纳米粒子光学参数：（a）介电函数；（b）电极化率的虚部

为便于探究上述耦合特性，本研究计算了不同工况下两端纳米粒子（粒子 1 和 N ）在 ω_{np} 处的光谱热导率 $h(\omega_{np})$ 。首先考虑的方案是固定 L/R 的值，然后增加粒子的数目 N 。图 3（a）展示了不同 L/R 下， N 对 $h/h_{0,N=2}$ 的影响。当 $L/R = 10 \sim 20$ 时，随着 N 的增加， $h/h_{0,N=2}$ 急剧上升。当 $L/R = 20 \sim 67$ 时， $h/h_{0,N=2}$ 刚开始维持不变，然后逐渐下降，当 d 接近 $3R$ 时迅速上升。“ $3R$ ”是本研究设计的最小粒子间距，在该间距下纳米粒子满足辐射偶极子模型[11]。上述现象表明，随着 N 的增加，多粒子相互作用与圆柱体的耦合效应被削弱。当相邻粒子间距 d 接近 $3R$ 时，多粒子之间的相互作用增强，耦合效应随之增强，辐射热导率也逐渐提高。当 L/R 继续从 67 增加到 200 时， $h/h_{0,N=2}$ 先维持不变，然后逐渐下降。此时，无论相邻粒子之间的距离 d 多接近 $3R$ ，辐射热导率未呈现上升的趋势。此外，通过对比“ W ”和“ I ”，当 $L/R = 10 \sim 67$ 时，这两个系统的 $h/h_{0,N=2}$ 在数值上基本相同。而对于 $L/R = 67 \sim 200$ ，圆柱体存在时产生的 $h/h_{0,N=2}$ 比相同条件下自由

空间中的 $h/h_{0,N=2}$ 更高，该现象表明在较大 L 下，导电圆柱体能够以表面波的形式输运能量，这为两端纳米粒子的辐射传递做出了重要贡献。

从图 3 (a) 中发现，对于 $L/R < 67$ ，归一化的 $h/h_{0,N=2}$ 在粒子间距 d 接近 $3R$ 时达到最大值。因此，下面考虑的方案是固定 $d = 3R$ ，通过添加粒子数 N 来增加 L/R ，如图 3 (b) 所示。结果发现，当 $L/R < 70$ 时， $h_{N=n}$ 单调下降，并且在数值上明显高于 $h_{N=2}$ 。 $h/h_{0,N=2}$ 的峰值出现在 $L/R = 24$ 处，大约为 154。但当 $L/R > 70$ 时，随着 L 的增加，耦合特性有所减弱，导致 $h_{N=n}$ 反而低于 $h_{N=2}$ 。此现象表明，当 $L/R < 70$ 时，多体相互作用增强了纳米粒子间局域表面声子激元的耦合，促使两端粒子间的辐射热输运也随之增加；但是，当 $L/R > 70$ 时，随着 L 的增加，近场效应被抑制，中间纳米粒子的存在反而削弱了多粒子与圆柱体的耦合效应，导致 $h_{N=n}$ 低于 $h_{N=2}$ 。

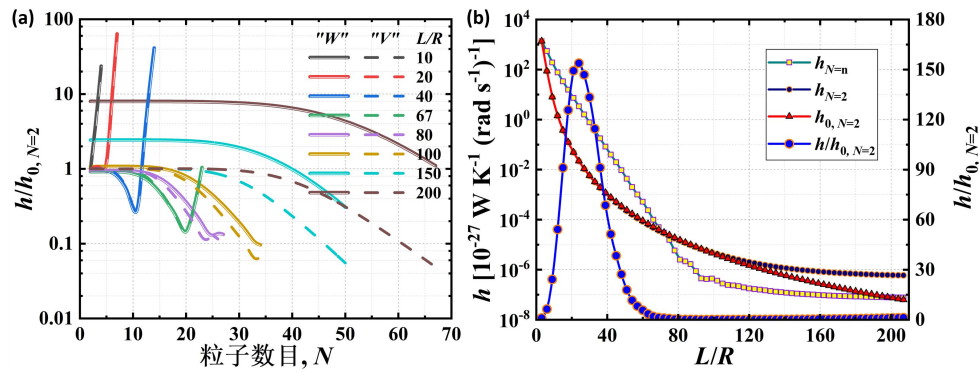


图 3 多粒子与圆柱体系统结果：(a) 不同 L/R 下纳米粒子数 N 对归一化 $h/h_{0,N=2}$ 的影响；(b) 当 $d = 3R$ 时， h 关于 L/R 的函数关系。图中“W”表示圆柱存在时的系统，“V”表示真空系统； $h_{0,N=2}$ 表示真空中两个粒子的热导率，而 $h_{N=n}$ 表示真空中粒子数 $N = n$ 时的热导率。

根据上述结论，对于固定 $d = 3R$ ，当 $L/R > 70$ 时，多粒子和圆柱体之间的耦合效应会被中间粒子削弱，导致相同条件下多粒子系统产生的热导率 h 低于两个粒子系统。本文继续将粒子分成发射器和接收器两部分，纳米粒子总数目固定为 $N = 8$ ，继续探究发射器（或接收器）中粒子数对热导率 h 的影响。该设置的原因是， $h/h_{0,N=2}$ 在 $N = 8$ 时达到最大值。图 4 (a) 所示的“7+1”型系统意味着发射器内有 7 个纳米粒子，接收器有 1 个粒子。图 4 (b) 显示了不同系统的热导率 h 。与其它类型的系统相比，“7+1”型（或“1+7”型）系统具有更好的辐射传递性能。这表明在较大的 L 下，发射器（或接收器）内纳米粒子数越多，两端粒子间产生的热导率 h 越大；即，粒子分布越集中，多粒子相互作用和柱面波导的耦合特性越显著。

为进一步测试图 4 (a) 中系统的性能，本研究选择“7+1”型系统作为 $N = 8$ 的情况，并与两粒子系统对比，如图 3 (c) 所示。当 $L < 0.35 \mu\text{m}$ 时，相较于两粒子系统， $h_{N=8}$ 明显增强。但是当 $L > 0.35 \mu\text{m}$ 时， $h_{N=8}$ 在数值上略微低于 $h_{N=2}$ 。这是由于随着 L 的增加，多粒子效应产生的贡献被削弱；耦合效应产生的贡献反而低于单一的柱面波导效应。此外，从图 4 (c) 的插图可以看出，当 $L < 0.3$ 或 $L > 0.7 \mu\text{m}$ 时，与真空中的双粒子系统相比，改进系统的辐射热输运明显提高。这表明当 L 处于该范围内时，多粒子相互作用与导电圆柱体的耦合效应能增强粒子辐射热输运。

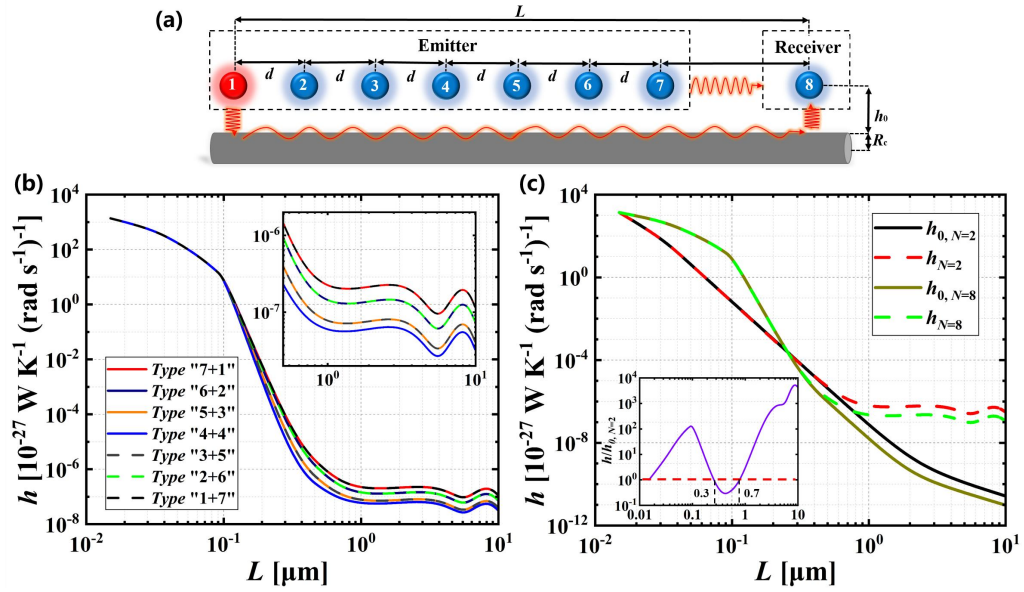


图4 改进系统结构及结果：（a）模型示意图；（b）不同系统类型下 L 对辐射热导率 h 的影响；（c）存在或不存在圆柱体时多粒子和两粒子系统的对比。

3 结论

本研究基于多体系统辐射换热与散射电磁波理论，探讨了多粒子相互作用与导电圆柱体的耦合效应对纳米粒子辐射换热的影响。结果表明，当 $L/R < 70$ 时，纳米粒子局域表面声子激元的相互作用耦合柱面波导能增强两端粒子间的辐射热输运；而对于 $L/R > 70$ 时，随着 N 的增加，多粒子效应逐渐被削弱，导致辐射热导率 h 降低。研究发现，当 $L/R < 70$ 时，多粒子相互作用对辐射热导率 h 的影响较为显著；而当 $L/R > 70$ 时，以表面波形式输运能量的柱面波导效应占主要贡献。此外，对于相同的 d 和 N ，粒子分布越集中，多粒子与圆柱体之间的耦合越显著。对比“7+1”型和两粒子系统后发现，当 $L < 0.35 \mu\text{m}$ 时， $h_{N=8}$ 明显增强；而当 $L > 0.35 \mu\text{m}$ 时，多粒子效应减弱，耦合效应产生的贡献反而低于单一柱面波导效应。当 $L < 0.3$ 或 $L > 0.7 \mu\text{m}$ 时，与自由真空中两个孤立粒子相比，改进系统粒子间的辐射换热显著提高，这证明了在该范围内多粒子与圆柱体的耦合特性较强。本工作为纳/微尺度辐射换热的研究提供了一种有效的理论方法。

参考文献

- [1] A.I. Volokitin, B.N.J. Persson, Near-field radiative heat transfer and noncontact friction, *Reviews of Modern Physics*, 2007, 79(4): 1291-1329.
- [2] Z.M. Zhang, *Nano/Microscale Heat Transfer*, Switzerland: Springer. 2020.
- [3] M. Pascale, M. Giteau, G.T. Papadakis, Perspective on near-field radiative heat transfer, *Applied Physics Letters*, 2023, 122(10): 100501.
- [4] J. Song, Q. Cheng, Z. Luo, X. Zhou, Z. Zhang, Modulation and splitting of three-body radiative heat flux via graphene/SiC core-shell nanoparticles, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2019, 140: 80-87.

- [5] J. Song, L. Lu, B. Li, B. Zhang, R. Hu, X. Zhou, Q. Cheng, Thermal routing via near-field radiative heat transfer, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2020, 150: 119346.
- [6] Y. Zhang, Q. Lv, H. Wang, S. Zhao, Q. Xiong, R. Lv, XingZhang, Simultaneous electrical and thermal rectification in a monolayer lateral heterojunction, *Science*, 2022, 378: 169-175.
- [7] Y. Hu, H. Liu, B. Yang, K. Shi, M. Antezza, X. Wu, Y. Sun, High-rectification near-field radiative thermal diode using Weyl semimetals, *Physical Review Materials*, 2023, 7(3): 035201.
- [8] R. Mittapally, B. Lee, L. Zhu, A. Reihani, J.W. Lim, D. Fan, S.R. Forrest, P. Reddy, E. Meyhofer, Near-field thermophotovoltaics for efficient heat to electricity conversion at high power density, *Nature Communications*, 2021, 12(1): 4364.
- [9] J. Legendre, P.O. Chapuis, Overcoming non-radiative losses with AlGaAs PIN junctions for near-field thermophotonic energy harvesting, *Applied Physics Letters*, 2022, 121(19): 193902.
- [10] B. Li, B. Zhang, J. Song, R. Hu, H. Ertürk, Z. Luo, Q. Cheng, Performance analysis of near-field tandem thermophotovoltaic systems based on radiative absorption distribution, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 2022, 139: 106488.
- [11] J. Dong, J. Zhao, L. Liu, Long-distance near-field energy transport via propagating surface waves, *Physical Review B*, 2018, 97(7): 125411.
- [12] A. Ott, R. Messina, P. Ben-Abdallah, S.-A. Biehs, Radiative thermal diode driven by nonreciprocal surface waves, *Applied Physics Letters*, 2019, 114(16): 163105.
- [13] K. Asheichyk, M. Kruger, Radiative Heat Transfer with a Cylindrical Waveguide Decays Logarithmically Slow, *Physical Review Letters*, 2022, 129(17): 170605.
- [14] P. Ben-Abdallah, S.A. Biehs, K. Joulain, Many-body radiative heat transfer theory, *Physical Review Letters*, 2011, 107(11): 114301.
- [15] S.A. Biehs, R. Messina, P.S. Venkataram, A.W. Rodriguez, J.C. Cuevas, P. Ben-Abdallah, Near-field radiative heat transfer in many-body systems, *Reviews of Modern Physics*, 2021, 93(2): 025009.
- [16] E. Tervo, Z. Zhang, B. Cola, Collective near-field thermal emission from polaritonic nanoparticle arrays, *Physical Review Materials*, 2017, 1(1): 015201.
- [17] E. Tervo, M. Francoeur, B. Cola, Z. Zhang, Thermal radiation in systems of many dipoles, *Physical Review B*, 2019, 100(20): 205422.
- [18] R. Messina, S.-A. Biehs, P. Ben-Abdallah, Surface-mode-assisted amplification of radiative heat transfer between nanoparticles, *Physical Review B*, 2018, 97(16): 165437.
- [19] Y. Zhang, H.-L. Yi, H.-P. Tan, M. Antezza, Giant resonant radiative heat transfer between nanoparticles, *Physical Review B*, 2019, 100(13): 134305.
- [20] B.X. Wang, C.Y. Zhao, Radiative heat transfer mediated by topological phonon polaritons in a family of quasiperiodic nanoparticle chains, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2023, 210: 124163.
- [21] V.A. Golyk, M. Kruger, M. Kardar, Heat radiation from long cylindrical objects, *Physical Review E*, 2012, 85(4): 046603.
- [22] J.-L. Fang, L. Qu, Y. Zhang, H.-L. Yi, Resonant radiative heat transfer and many-body effects between nanoparticles and a multilayered slab, *Physical Review B*, 2020, 102(24): 245418.

垂直排列碳纳米管阵列的辐射特性研究

李怀佐, 蔡潇毅, 马挺, 王秋旺*

热流科学与工程教育部重点实验室, 西安交通大学能源与动力工程学院, 西安 710049

Tel: +86-29-82665539, Email: wangqw@mail.xjtu.edu.cn

摘要: 本文利用时域有限差分方法研究了碳纳米管长度和体积填充率对垂直排列碳纳米管阵列辐射特性的影响, 结果显示: 长度超过 $5\text{ }\mu\text{m}$ 后, 增加长度对吸收率几乎没有影响; 存在某一体积填充率使得吸收率最大, 其值约为 0.5。研究了三种衬底对吸收率的影响, 发现衬底能使装置的吸收率增大, 存在一个最佳的衬底厚度使得吸收率最大, 其中石墨衬底能将阵列吸收率从 0.82 提高到 0.98。最后, 研究了入射角度对吸收率的影响, 发现入射角度在 $40^\circ\sim 50^\circ$ 之间吸收率最大。

关键词: 垂直排列碳纳米管阵列; 吸收率; 衬底; 时域有限差分方法

0 引言

自 1991 年碳纳米管被发现以来, 因其具有优良的机械^[1]、光学^[2]和热学性能^[3]而备受学者关注。目前, 碳纳米管可以通过控制不同的生长条件在基底上生长, 主要的表现形式分为垂直排列阵列、长纤维或海绵状块状物, 其中垂直排列碳纳米管 (Vertically Aligned Carbon Nanotubes, VACNTs) 阵列作为碳纳米管实际应用的一种形式, 是自然界最黑的材料之一^[4]。它具有极低的反射率, 在很宽的波长范围内具有极其平坦的光谱响应^[5,6]。碳纳米管在紫外到红外区域具有特殊的光学性质, 因而被广泛应用于微纳制造测热计^[7]、红外辐射计^[8]、光热电探测器^[9]、微通道冷却器^[10]等器件设计。

VACNTs 阵列几乎是理想的吸收材料, 在可见光到红外波段的辐射特性被广泛研究。Bao 等人^[11]对多壁碳纳米管垂直阵列体积分数、厚度和入射角度对辐射特性的影响进行了深入的研究, 发现低体积分数和大厚度阵列更利于实现阵列的低反射率和高吸收率。Tahmid 等人^[12]利用时域有限差分方法对悬浮的垂直排列单壁碳纳米管阵列和多壁碳纳米管阵列的辐射特性进行了广泛的研究, 分析了密度、长度等结构参数对吸收率和反射率的影响, 对阵列进行了最优化设计, 实现了 99.883% 的吸光度。Etemadi 和 Mobini^[13]设计了一种基于多壁碳纳米管阵列的色散带结构的全红外吸收体, 采用二维时域有限差分方法研究了嵌入多壁碳纳米管色散介电函数的多极 Drude-Lorentz 模型的方形晶格光子晶体的吸收特性, 实现了方阵的吸收光谱峰的可协调特性。Wang 等人^[14]采用低温等离子体增强化学气相沉积工艺制备了不同高度和密度的 VACNTs 阵列, 并用傅里叶变换红外光谱法测量了所得样品的吸收系数, 且进一步采用有效介质理论计算了不同填充系数和排列系数下 VACNTs 薄膜的吸收系数, 测量和计算的吸收系数一致表明填充系数越大, 吸收系数越高。Sun 等人^[15]在实验和数值模拟两个层面对多壁碳纳米管涂层的辐射散热性能进行了研究, 发现多壁碳纳米管涂层的最大平均发射率和辐射功率分别为 0.970 和 $491.6\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ 。前人在 VACNTs 阵列辐射特性的数值模拟研究上已经进行了十分深入的探究, 分析了各种结构参

基金项目: 国家自然科学基金创新研究群体项目 (No. 51721204)

数对辐射特性的影响。然而，实际的碳纳米管生长于衬底之上以保持结构的稳定性，大多数数值模拟研究往往忽略了 VACNTs 阵列底部衬底的影响。本文在研究 VACNTs 阵列辐射性能的基础上，进一步研究衬底对 VACNTs 阵列辐射特性的影响规律。

本文采用时域有限差分方法对 VACNTs 阵列的辐射特性进行研究，首先探究了阵列结构参数对其反射率、吸收率的影响规律，然后研究了衬底对 VACNTs 阵列辐射特性的影响，分析了不同衬底材料对阵列吸收能力的增强机制。最后，对阵列吸收能力的角度敏感性进行了研究。本研究将促进 VACNTs 阵列在能量收集和光吸收装置与系统的进一步应用。

1 模型与方法

1.1 模型

VACNTs 阵列模型如图 1 (a) 所示，碳纳米管沿着 z 轴方向整齐均匀地排列在 x - y 平面，阵列包含了 4×4 根碳纳米管，碳纳米管半径和长度分别为 r 和 L ，相邻两个碳纳米管中心之间的距离为阵列间距 a 。多壁碳纳米管可以看成是由多层石墨通过卷曲得到，其介电性质与石墨十分接近^[16]。在建立碳纳米管模型时，将其当作实心圆柱体^[17]，以减小数值模拟时网格划分的难度。

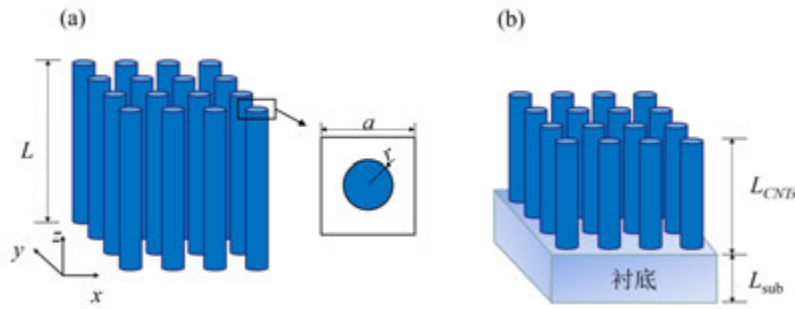


图 1 (a) 悬浮的 VACNTs 阵列模型；(b) 带衬底的阵列装置

实际生长 VACNTs 阵列时，为了保证阵列结构的稳定性，一般碳纳米管生长于一个基底之上。图 1(b)为带衬底的碳纳米管阵列，碳纳米管排列整齐均匀，阵列底部为衬底。对于整齐均匀排列的 VACNTs 阵列而言，可以定义一个体积填充率 f 来表示碳纳米管在阵列中的空间占有比值，定义式为：

$$f = \frac{\pi r^2}{a^2} \quad (1)$$

碳纳米管是一种单轴各项异性材料，其介电常数张量参考文献^[18]。模拟计算采用时域有限差分 (Finite-Difference Time-Domain, FDTD) 方法，整个模拟区域是一个三维空间，碳纳米管阵列在 x 和 y 方向上均采用周期性边界条件(Periodic Boundary)， z 方向采用完美匹配层(Perfectly Matched Layer, PML)。模拟空间 x - z 平面投影示意图如图 2 所示，在 VACNTs 阵列上方放置了一个平面波光源，光源的波长为 400-850 nm，光源的光照射碳纳米管装置，一部分的光在界面反射，一部分的光透射过结构，剩余部分则被装置吸收。为了监测反射与透射光的能量，在光源顶部和阵列下方各放置一个监视器(Monitor)，计算装置的反射率和透射率以及监测电磁场的变化。对于带衬底的 VACNTs 阵列，还在衬底和 VACNTs 交界

处放置了一个监视器，该处的参数与结果用下标 i 表示。

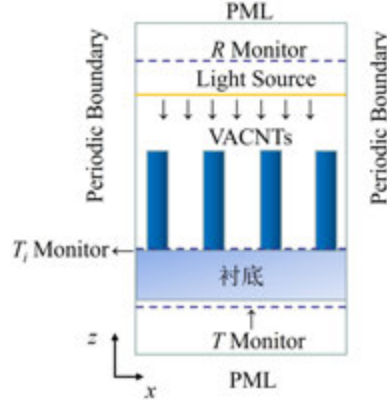


图2 模拟区域的横截面示意图

1.2 FDTD 方法

本文采用 FDTD 方法研究碳纳米管辐射特性，该方法基于对宏观电磁现象的麦克斯韦方程的数值离散进行求解，是一种获得可靠结果的精细方法^[19]。通过对麦克斯韦方程组进行时间和空间的离散求解模拟波在时域的递推的传播过程，从而得出场的分布。场中的能量分布用坡印廷矢量 \mathbf{S} 来描述：

$$\mathbf{S} = \frac{1}{2} \text{Re}[\mathbf{E} \times \bar{\mathbf{H}}] \quad (1)$$

其中 \mathbf{E} 是电场， \mathbf{H} 是磁场， $\bar{\mathbf{H}}$ 是 \mathbf{H} 的共轭复数。任意平面的平均能量功率通过对坡印廷矢量 \mathbf{S} 进行积分得到：

$$P = \int_{\phi} \mathbf{S} \cdot \mathbf{n} d\phi \quad (2)$$

其中 ϕ 是用于测量功率通量的表面面积， \mathbf{n} 为该表面的法向量。根据能量守恒计算装置吸收能量的大小，通过将能量归一化可以得到反射率、透射率，吸收率 A 计算式为：

$$A = 1 - R - T \quad (3)$$

其中 R 为反射率， T 为透射率。

2 悬浮 VACNTs 阵列的辐射特性

2.1 计算方法以及网格无关性的验证

虽然 FDTD 方法已经被广泛应用于计算碳纳米管的辐射特性，本文仍对方法计算的准确性进行了验证。计算了在文献^[11,12]描述到的相同 VACNTs 阵列结构参数条件的算例，结果如图 3(a)所示。将得到的计算结果分别与 Bao 等人和 Tahmid 等人的结果进行比较，发现与两篇文献的计算结果相符合，这验证了本文使用的 FDTD 计算方法的正确性与可靠性。FDTD 模拟对结构的网格划分要求比较高，因此对计算结果的网格无关性进行了验证。对 8 种网格精度的算例进行了计算，精度标度越高表示网格划分越精细。从图 3(b)中可以看到，反射率和透射率在网格精度为 5 之时皆收敛，说明此网格精度之上的计算结果与结构的网格划分已经无关，本文的网格划分精度满足计算结果与网格无关的要求。

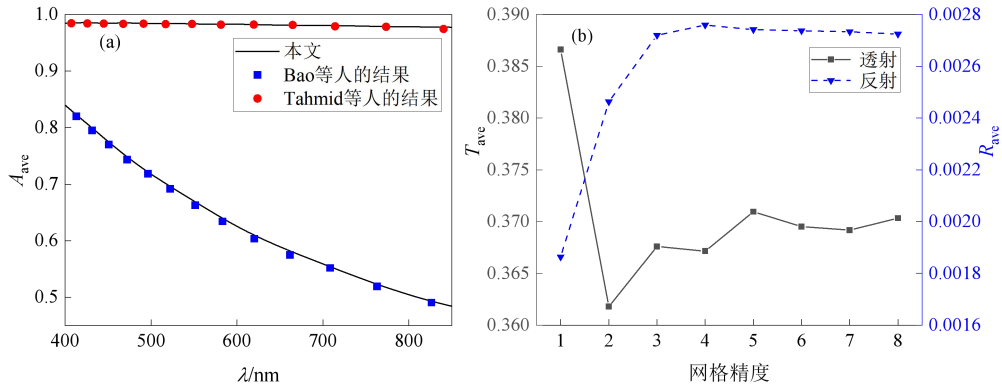


图 3 (a) VACNTs 吸收率光谱与文献^[11,12]的结果对比; (b) 网格无关性验证

2.2 长度对辐射特性的影响

碳纳米管的长度决定了光透射过阵列路径的长短，越厚的碳纳米管阵列光越难穿过。为了探究碳纳米管长度对悬浮 VACNTs 阵列辐射特性的影响，计算了 1-8 μm 间 7 个不同厚度阵列的辐射系数，保持碳纳米管的半径 $r=10\text{ nm}$ 和阵列间距 $a=40\text{ nm}$ 不变。由于 Fabry-Perot 共振，阵列较薄时，反射率随着波长而振荡，振幅也随着波长的增大而增大，如图 4 所示。振荡的波数和振幅处的波长与阵列的厚度、折射率相关^[20]，波数随着阵列厚度的增加而增加， $L=1\text{ }\mu\text{m}$ 时有 3 个波峰， $L=1.5\text{ }\mu\text{m}$ 时有 4 个波峰， $L=2\text{ }\mu\text{m}$ 时增加到 6 个波峰。反射率振荡的幅值还随着厚度的增加而减小，因为 Fabry-Perot 效应会随着阵列厚度的增大而逐渐消失，当阵列厚度大于 $4\text{ }\mu\text{m}$ 时，反射率不再随着波长振荡。

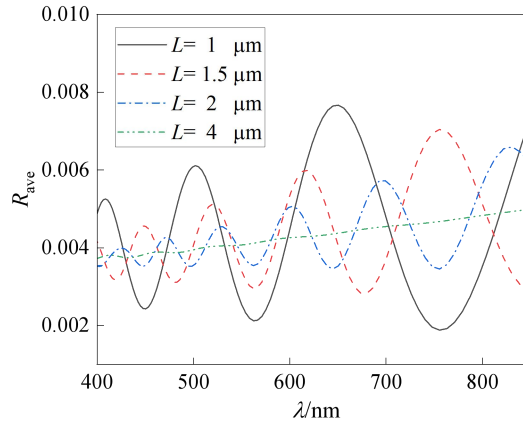


图 4 不同厚度 VACNTs 阵列的反射率光谱

不同厚度的悬浮 VACNTs 阵列的吸收率光谱如图 5(a)所示，在 400-850 nm 波段内，短波处碳纳米管阵列的吸收能力强，吸收率随着波长增加而递减。随着厚度的增加，阵列的吸收能力增强，吸收率光谱曲线渐向 1 靠近。为了对某波段内的吸收率大小进行描述，定义了一个用波长进行积分的平均吸收率：

$$A_{ave} = \frac{1}{\lambda_{max} - \lambda_{min}} \int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} A(\lambda) d\lambda \quad (4)$$

其中 λ_{min} 和 λ_{max} 为计算总波长的起始波长和终端波长。如图 5(b)所示，当 L 从 $1\text{ }\mu\text{m}$ 变化到 $4\text{ }\mu\text{m}$ 时，吸收率从 0.670 增加到 0.980，此时厚度对吸收率的影响较大，通过改变 L 能

够大幅增加吸收率。当 $L > 5 \mu\text{m}$ 后，阵列几乎不透光，增大 L 对吸收率几乎没有影响，即阵列的吸收率随长度 L 达到收敛。

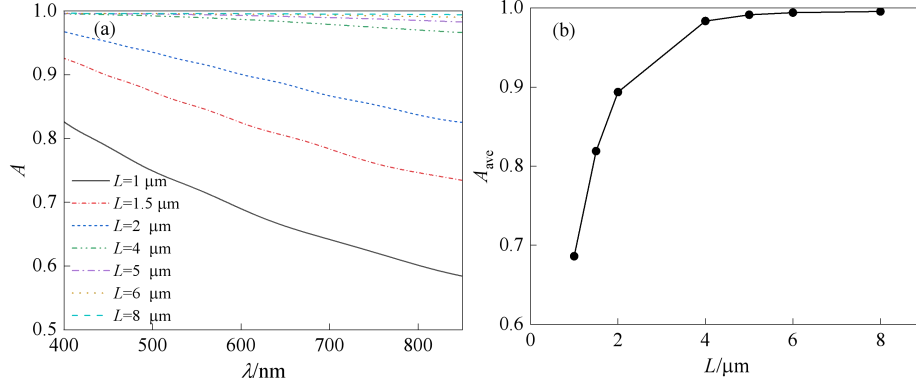
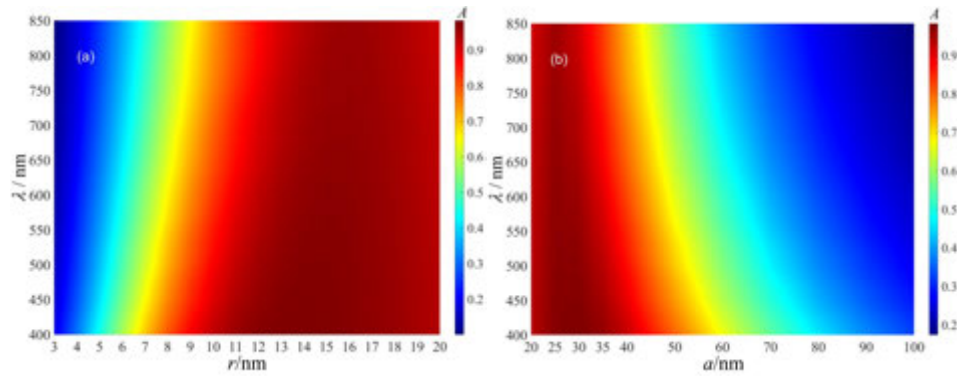


图 5 (a) 7 种厚度的碳纳米管阵列的吸收率光谱曲线: (b) 平均吸收率随厚度的变化曲线

2.3 体积填充率对辐射特性的影响

碳纳米管半径 r 和阵列间距 a 影响着碳纳米管在悬浮 VACNTs 阵列中的体积填充率 f ，不同的体积填充率对应着不同的反射、透射和吸收能力。使用单一变量控制的方法，通过固定 r ($r=10 \text{ nm}$) 和 a ($a=40 \text{ nm}$) 中的一个，变化另一个变量达到变化 f 的目的。阵列吸收光谱随 r 和 a 变化的云图分别如图 6(a) 和 (c) 所示，阵列吸收能力和 r 或 a 之间并不是简单的单调变化关系。当 r 逐渐增大或者 a 逐渐减小时，光在阵列中的反射区域增加，透射通道减少，阵列反射能力与透射能力的协调作用使得存在某个结构参数使得阵列的吸收能力最强。如图 6(b) 和 (d) 所示，一定厚度的碳纳米管阵列存在一个最佳的碳纳米管半径或阵列间距使得其吸收率最大，当 $r=15 \text{ nm}$ 的阵列吸收率 (0.968) 最大，对应的体积填充率 $f=0.44$ ； $a=25 \text{ nm}$ 时阵列的吸收率 (0.967) 最大，对应 $f=0.50$ 。因此，一定厚度的 VACNTs 阵列存在一个最佳的碳纳米管密度使得阵列的辐射性能最佳，这为实际的 VACNTs 阵列制备提供了一定的理论指导。



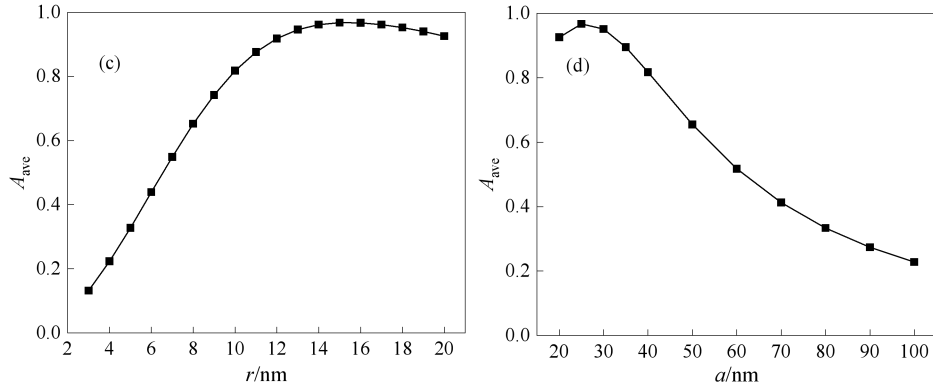


图6 吸收率光谱随(a) 碳纳米管半径 r 和(b) 阵列间距 a 变化的云图; 平均吸收率随(c) 碳纳米管半径 r 和(d) 阵列间距 a 变化的曲线

3 带衬底 VACNTs 阵列的辐射特性

3.1 衬底属性对辐射特性的影响

在实际生产 VACNTs 阵列时, 碳纳米管生长于基板之上, 基板作为衬底保证了碳纳米管生长时的稳定性。本文将进一步探究衬底对阵列辐射特性的影响, 分析不同材料的衬底对阵列吸收能力的增强效果和物理机制。本文研究的衬底为 Ag、石墨和 Si, 其介电常数来自文献^[21,22]。示意图如图 1(b)所示, $L_{\text{CNTs}} = 1 \mu\text{m}$, $r = 10 \text{ nm}$, $a = 40 \text{ nm}$, $L_{\text{sub}} = 0.5 \mu\text{m}$, 其中碳纳米管和衬底界面处的参数用下标 i 表示, T_i 表示界面 i 处测到的透射率。

如图 7 所示, 悬浮带衬底 VACNTs 阵列的反射率小于带衬底阵列, 衬底的存在增强了装置的反射能力。不同衬底对反射能力的影响程度不同, 其中 Ag 衬底装置的反射率最大, 这是由 Ag 的金属材料属性造成。关于折射率对反射率的影响机制, 这里用菲涅尔反射定律进行定性的说明。在垂直入射条件下, 两种非磁性介质交界处的反射率 R_i 可以表示为^[23]:

$$R_i = \left(\frac{n_{\text{CNTs}} - n_{\text{sub}}}{n_{\text{CNTs}} + n_{\text{sub}}} \right)^2 \quad (11)$$

其中 n_{CNTs} 为 VACNTs 阵列的折射率, n_{sub} 为衬底的折射率。由上式可知, R_i 随着 n_{sub} 单调递减, 而相比于 Si 和石墨, Ag 的折射率最小, 因此在 Ag 的上表面处大量的光线被反射。

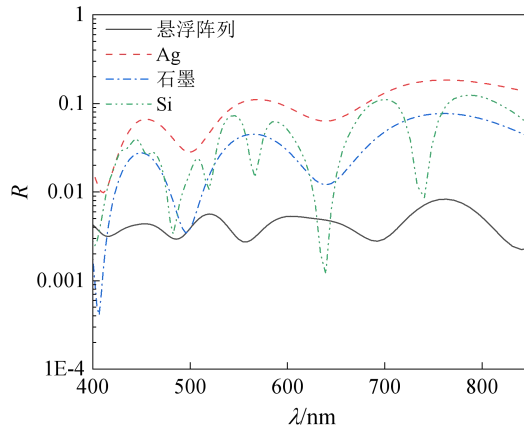


图7 悬浮阵列与带 Ag、石墨和 Si 衬底装置的反射率光谱

悬浮 VACNTs 阵列与带 Ag、石墨、Si 衬底阵列装置的吸收光谱如图 8 所示, 不同衬

底对装置吸收率的增强幅度不同。与悬浮 VACNTs 阵列相比, Si 衬底大多数波段内实现了吸收能力的增强, Ag 和石墨衬底则对全波段的吸收率都有很好的增强效果,尤其是石墨衬底,在长波处的增强效果更为明显。

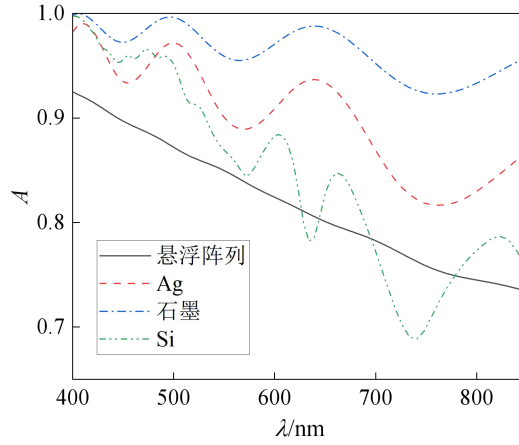


图8 悬浮阵列与带 Ag、石墨和 Si 衬底装置的吸收率光谱

3.2 厚度比的影响

基于 VACNTs 阵列的高吸收率,本节将进一步探究衬底厚度对整个装置吸收率的增益效果,整个过程保持装置的总厚度 $L_{\text{CNTs}} + L_{\text{sub}}$ 不变,其它结构参数与上节同。定义一个长度比值参数 $\gamma = L_{\text{CNTs}} / L_{\text{sub}}$,表示 VACNTs 与衬底厚度的比值。以 Ag 衬底为例,当 $\gamma \rightarrow 0$ 时,整个装置为 Ag 薄膜,Ag 薄膜的吸收率远小于 1;当 $\gamma \rightarrow \infty$ 时,装置为悬浮 VACNTs 阵列,其吸收率小于带 Ag 衬底阵列。 γ 在 0 和无穷大两个极端的情况下,装置的吸收率都小于某个 γ 下装置的吸收率,这暗示着可能会存在一个 γ 值使得装置的吸收率最大,该 γ 值用 γ_m 表示。不同衬底装置的吸收率随着 γ 变化的曲线如图 9 所示,悬浮阵列吸收率为 0.82, Si 衬底装置的最大吸收率为 0.89,对应 $\gamma_m = 10$ 。石墨衬底装置的最大吸收率为 0.98,对应 $\gamma_m = 5$ 。在 $\gamma = 1 \sim 14$ 范围内,没有找到 Ag 衬底装置对应 γ_m ,因为极薄厚度的 Ag 衬底便可实现吸收能力的增强极限。基于 VACNTs 阵列本身的高吸收率,在 $\gamma \geq 2$ 时,三种衬底的存在都能够使得整个装置的吸收能力得到增强,其中石墨对装置吸收能力的增益效果最强。

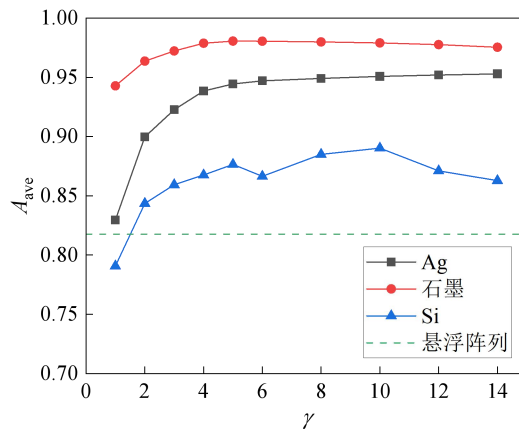


图9 Ag、石墨和 Si 衬底装置的吸收率随 γ 的变化曲线

3.3 角度敏感性

将光的入射角度定义为入射光线与入射界面法线之间的夹角,用 θ 表示,如图 10 所示。以上各小节入射光均为法向入射,即 $\theta = 0$ 。VACNTs 阵列对不同入射角度的光的吸收和反射能力不同,, 本节将探究不同入射角度下 VACNTs 阵列的辐射特性。

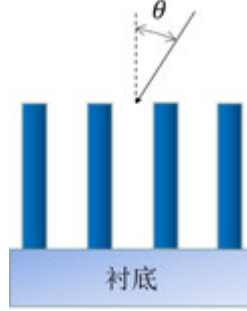


图 10 入射光角度为 θ 的装置模型图

不同角度下悬浮和带衬底 VACNTs 阵列的反射率和吸收率变化曲线如图 11 所示。四种结构的反射率都随着入射光角度的增加先减小而后增加,其变化趋势皆相同,悬浮阵列在 $\theta = 30^\circ$ 左右反射率最小,其它三者反射率最小对应的角度为 $\theta = 40^\circ$ 。在入射角度较小时,略微倾斜的光能够增加光线在碳纳米管间的折射与吸收的概率,减少光的反射,这也暗示了碳纳米管一定程度的倾斜错位能够使得阵列的反射率降低。悬浮和 Si 衬底阵列吸收率在 $\theta = 40^\circ$ 时最大,Ag 和石墨衬底 VACNTs 阵列入射光的最佳角度则在 50° 左右。Si 衬底阵列在 $\theta < 20^\circ$ 时能够略微增大装置的吸收率,当 $\theta > 20^\circ$ 时, Si 衬底阵列的吸收率均小于悬浮阵列。在 $\theta < 60^\circ$ 下, Ag 和石墨衬底对装置的吸收率均有增益效果,其它角度下两者的吸收率和悬浮阵列的吸收率基本相等。值得一提的是,在 $\theta < 50^\circ$ 下,三种衬底都能够减小装置吸收率的角度依赖性。

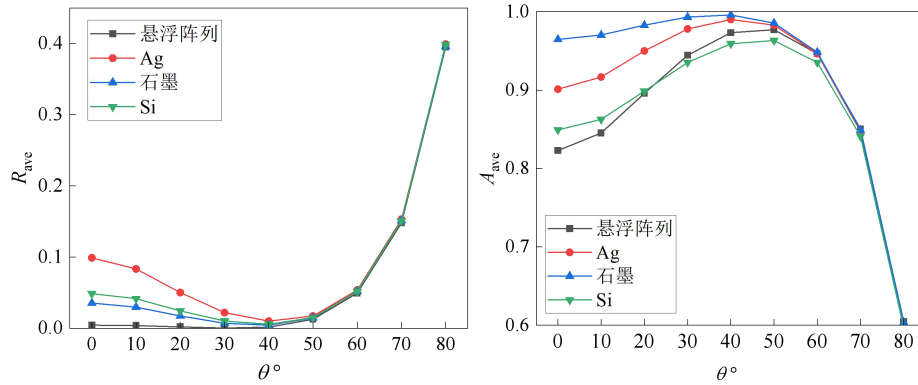


图 11 反射率和吸收率随入射角度 θ 的变化曲线

4 结论

本文利用时域有限差分方法研究了结构参数对悬浮 VACNTs 阵列的辐射特性,揭示了阵列厚度和碳纳米管体积填充率对吸收率的影响规律。阵列厚度对吸收率的影响有限,在小厚度阵列的情况下,增加阵列的厚度能够使吸收率增大。随后研究了碳纳米管半径 r 和

阵列间距 a 对吸收率的影响, 发现皆存在一个 r 与 a 使得吸收率最大, 其对应的体积填充率分别为 0.44 和 0.50, 吸收率分别为 0.968 和 0.967。基于悬浮 VACNTs 阵列本身高吸收率的特性, 研究了 Ag、石墨和 Si 三种衬底对碳纳米管装置吸收率的影响, 结果表明衬底的存在能够增加装置的吸收率, 其中石墨衬底对吸收率的增幅效果最大。衬底的厚度影响着装置的吸收率, 计算了不同长度比值 γ 下的吸收率, 发现了石墨和 Si 衬底使得装置吸收率最大对应的 γ 值, 分别为 5 和 10。最后, 研究了入射角度 θ 对辐射特性的影响, 当 $\theta < 40^\circ$ 时, 带衬底装置的反射率随着角度增加而降低, 这表明了小角度倾斜的入射光或者碳纳米管略微的排列错位能够降低反射率。悬浮和带衬底 VACNTs 阵列皆存在一个最佳的光的入射角度使得吸收率最高, 范围在 40° 到 50° 之间。本文的研究结果将对光伏电池等能量收集系统以及光热转换器件的设计提供一定的理论指导。

- [1] B. Peng, M. Locascio, P. Zapol, et al. Measurements of near-ultimate strength for multiwalled carbon nanotubes and irradiation-induced crosslinking improvements [J]. *Nature Nanotechnology*, 2008, 3(10): 626-631.
- [2] A. Zubair, X. Wang, F. Mirri, et al. Carbon nanotube woven textile photodetector [J]. *Physical Review Materials*, 2018, 2(1): 015201.
- [3] H.S. Kim, J. Jang, J. Yu, et al. Thermal conductivity of polymer composites based on the length of multi-walled carbon nanotubes [J]. *Composites Part B: Engineering*, 2015, 79 : 505–512.
- [4] K. Mizuno, J. Ishii, H. Kishida, et al. A black body absorber from vertically aligned single-walled carbon nanotubes [J]. *Pans*, 2009, 106(15): 6044–6047.
- [5] A. Pander, K. Ishimoto, A. Hatta, et al. Significant decrease in the reflectance of thin CNT forest films tuned by the Taguchi method [J]. *Vacuum*, 2018, 154: 285–295.
- [6] W.H. Swartz, S.J. Papadakis, D.M. Deglau, et al. Carbon nanotube-based radiometers demonstrated on the RAVAN CubeSat mission [C]//Micro-and Nanotechnology Sensors, Systems, and Applications XI. SPIE, 2019, 10982: 47-53.
- [7] N.A. Tomlin, C.S. Yung, Z. Castleman, et al. Overview of microfabricated bolometers with vertically aligned carbon nanotube absorbers [J]. *AIP Advances*, 2020, 10(5): 055010.
- [8] H. Oikawa, Y. Shimizu, Y. Yamada, et al. A compact high-emissivity variable temperature blackbody furnace with carbon-nanotube coated bottom [C]//2017 56th Annual Conference of the Society of Instrument and Control Engineers of Japan (SICE). IEEE, 2017: 420-423.
- [9] 杨露寒, 张家振, 徐煌, 等. 碳纳米管薄膜制备及其光电探测应用进展[J]. *红外与毫米波学报*, 2021, 40(4): 439-458.
L.H. Yang, J.Z. Zhang, H. Xu, et al. Progress in the preparation of carbon nanotube films and their application in photoelectric detection [J]. *Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 2021, 40(4): 439-458.
- [10] Z.M. Mo, J. Anderson, J. Liu. Integrating nanocarbon tubes with microchannel cooler [C]//Proceedings of the Sixth IEEE CPMT Conference on High Density Microsystem Design and Packaging and Component Failure Analysis (HDP'04). IEEE, 2004: 373-376.

- [11] H. Bao, X.L. Ruan, T.S. Fisher. Optical properties of ordered vertical arrays of multi-walled carbon nanotubes from FDTD simulations. *Optics Express*, 2010, 18(6): 6347–6359.
- [12] M.I. Tahmid, M.A.Z. Mamun, A. Zubair. Near-perfect absorber consisted of a vertical array of single-wall carbon nanotubes and engineered multi-wall carbon nanotubes [J]. *Optical Materials Express*, 2021, 11(4): 1267-1281.
- [13] B. Etemadi, A. Mobin. Optical absorption engineering in dispersive band structure of MWCNTs array: design and optimization of total absorber for NIR to MIR regime [J]. *Optoelectronics Letters*, 2022, 18(5): 0513-0518.
- [14] Q. Wang, Y. Zheng, C.J. Zhou, et al. Low-temperature grown vertically aligned carbon nanotube array for an optimal infrared bolometer [J]. *Nanotechnology*, 2021, 32(50): 505719.
- [15] K.W. Sun, Y.M. Xie, X. Fang, et al. An experimental study of spectral radiative properties of multi-walled carbon nanotube coating for heat dissipation [J]. *Case Studies in Thermal Engineering*, 2023, 41: 102660.
- [16] R.Z. Zhang, X.L. Liu, Z.M. Zhang. Modeling the optical and radiative properties of vertically aligned carbon nanotubes in the infrared region [J]. *Journal of Heat Transfer*, 2015, 137(9): 091009.
- [17] X.J. Wang, J.D. Flicker, B.J. Lee, et al. Visible and near-infrared radiative properties of vertically aligned multi-walled carbon nanotubes [J]. *Nanotechnology*, 2009, 20(21): 215704.
- [18] L.G. Johnson, G. Dresselhaus. Optical properties of graphite [J]. *Physics Review B*, 1973, 7: 2275.
- [19] K. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media [J]. *IEEE Transactions on antennas and propagation*, 1966, 14(3): 302-307.
- [20] H. Bao, B. Duvvuri, M. Lou, et al. Effects of randomness and inclination on the optical properties of multi-walled carbon nanotube arrays [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2014, 132: 22–27.
- [21] A.B. Djurišić, E.H. Li. Optical properties of graphite[J]. *Journal of Applied Physics*, 1999, 85(10): 7404–7410.
- [22] E.D. Palic. *Handbook of optical constants of solids* [M]. Academic Press, 1985: 547-569.
- [23] Z.M. Zhang. *Nano/Microscale Heat Transfer* [M]. McGraw-Hill: New York, 2007:306-311.

偏振光在气溶胶介质中的传输特性研究

聂鑫*, 毛前军

(武汉科技大学城市建设学院, 武汉 430065)

(湖北省工业安全工程技术研究中心, 武汉 430081)

(Tel:17386183202, Email:niexin202302@163.com)

摘要: 采用蒙特卡洛光线追踪法模拟了不同气溶胶介质中的矢量辐射传输, 分析了多因素影响下的偏振传输特性。结果表明, 偏振度随气溶胶光学厚度(AOD)、天顶角和地表反照率的增加而减小, 随波长的增加而增大, 但对地表反照率的敏感性较低, 且沙尘气溶胶退偏振性能最好, 烟雾气溶胶最差。同时, 相同条件下圆偏振光比线偏振光的偏振度更高, 保偏性能更好。计算了散射角在 70° - 90° 的平均偏振反射率, 发现除烟雾气溶胶外, 偏振反射率随 AOD 和波长的增加而减小。

关键词: 气溶胶, 偏振度, 偏振反射率, 蒙特卡洛光线追踪。

0 前言

大气气溶胶作为大气的重要组成部分, 能够通过吸收和散射太阳辐射直接影响大气辐射平衡, 也能够作为云凝结核改变云的生命周期和微物理性质, 从而起到间接的辐射作用。此外, 气溶胶在交通安全和人类健康等领域也发挥了重要的作用^[1,2]。大气气溶胶的遥感与监测已逐渐成为当前大气辐射和环境领域研究的热门课题。

光线被气溶胶等大气介质散射时, 偏振态会发生变化, 这种变化受到入射光和介质散射特性的共同影响。通过对偏振光散射特性的分析, 可以有效提高气溶胶遥感的准确性, 科研工作者们为此进行了大量研究。对海雾和海洋气溶胶偏振特性的研究显示了海洋环境和入射光对散射光偏振特性的显著影响^[3-5]。在具有强消光特征烟雾气溶胶的偏振传输特性研究中还发现了偏振光作为信息载体的独特优势^[6-9]。非球形气溶胶的矢量辐射传输模拟表明, 将非球形粒子等效为球形会造成模拟的偏差^[10], 同时, 沙尘气溶胶在不同偏振光中具有不同的退偏振效果, 圆偏振光的保偏性能更好^[11]。此外, 一些研究也分析了环境湿度和地表反射类型等环境因素对气溶胶偏振特性的影响^[12,13]。

截止目前, 对气溶胶偏振特性的研究多局限在单一气溶胶种类或影响因素, 少见多因素影响下不同类型气溶胶偏振传输特性的相关报道, 因此需要对其展开进一步的研究, 明确气溶胶偏振特性对多因素和多类型气溶胶的敏感性。本文根据蒙特卡洛光线追踪(MCRT)法对多因素影响下不同类型气溶胶的矢量辐射传输进行了模拟, 讨论了多因素下的偏振度变化规律, 还分析了不同类型气溶胶在侧向散射的偏振反射率差异。本文的研究拟为复杂因素影响下环境气溶胶的监测和识别提供一定的理论基础。

1 数据和方法

基金项目: 国家自然科学基金(No.52376072)

1.1 气溶胶模型

大气气溶胶可以根据气溶胶光学厚度(AOD)或 Angstrom 波长指数(AE)等气溶胶参数进行分类, 一般包括海洋、沙漠沙尘、大陆(乡村)、子大陆、城市(工业)和生物质燃烧(烟雾)气溶胶等类型^[14], 如图 1(a)所示。在本文的研究中, 使用了海洋、沙尘、乡村、城市和烟雾等 5 种类型的气溶胶, 并采用双对数正态分布来描述气溶胶的粒度分布:

$$\frac{dN}{d \log r} = \sum_{i=1}^2 \frac{n_i}{\sqrt{2\pi \log \sigma_i}} \exp\left(-\frac{[\log(r/R_i)]^2}{2(\log \sigma_i)^2}\right) \quad (1)$$

式中: N 为粒径大于 r 的粒子数浓度, n 为总粒子数浓度, σ 是分布的标准差, R 表示粒子的平均半径。本文使用的气溶胶粒度分布参数和不同波长 λ (0.49 μm , 0.67 μm 和 0.865 μm 是高分五号等遥感卫星的主要波段, 结果有助于卫星遥感的优化和改进)下的复折射率如表 1 所示^[8], 并根据表中参数结合 Mie 理论计算了气溶胶的光学性质。但考虑到沙尘气溶胶的非球形特征, 本文将沙尘气溶胶假定为平均横纵比 1.4 的回转椭球体, 并使用 T 矩阵算法和 Spheroid-Package 软件包计算了沙尘气溶胶的光学性质^[15]。

表 1 不同类型气溶胶的粒度分布参数和不同波长下的复折射率

气溶胶	细(粗)模态		$n_r \pm ki$		
	$R(\mu\text{m})$	σ	$\lambda=0.49\mu\text{m}$	$\lambda=0.67\mu\text{m}$	$\lambda=0.865\mu\text{m}$
海洋	0.3	2.51	1.382±6.41E-9	1.376±5.04E-3	1.372±1.09E-6
沙尘	0.5	2.98	1.53±0.008	1.53±0.008	1.52±0.008
城市	0.18(3.25)	1.68(1.92)	1.46±0.014	1.48±0.01	1.5±0.011
乡村	0.15(2.74)	1.72(2.12)	1.58±0.008	1.6±0.007	1.62±0.01
烟雾	0.074	1.68	1.55±0.0195	1.55±0.0185	1.55±0.0175

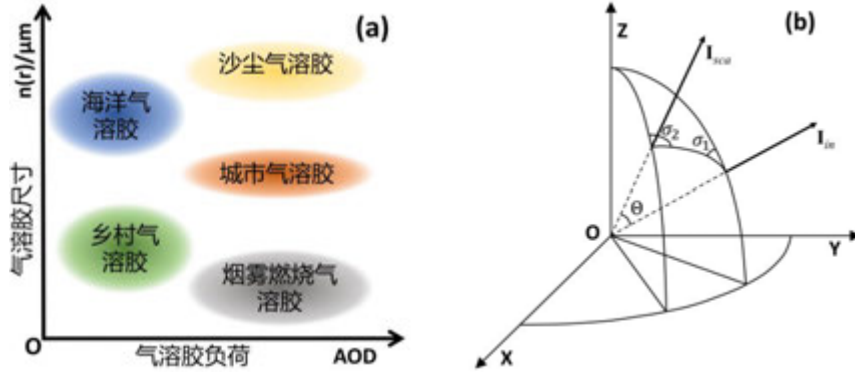


图 1 (a)基于尺寸和负荷划分的 5 种气溶胶类型, (b)偏振光的散射过程

1.2 偏振光的粒子散射

偏振光一般通过包括 4 个参数(I, Q, U, V)的 Stokes 矢量 \mathbf{I} 进行描述^[16]:

$$\mathbf{I} = \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon}{\mu}} \begin{pmatrix} \langle E_l E_l^* + E_r E_r^* \rangle \\ \langle E_l E_l^* - E_r E_r^* \rangle \\ \langle -E_l E_r^* - E_r E_l^* \rangle \\ i \langle E_l E_r^* - E_r E_l^* \rangle \end{pmatrix} \quad (2)$$

式中：\$I\$ 表示辐射强度，\$Q\$ 表示 \$0^\circ\$ 线偏振，\$U\$ 表示 \$45^\circ\$ 线偏振，\$V\$ 表示圆偏振，\$E_l\$ 和 \$E_r\$ 分别是平行和垂直于参考平面的电场矢量分量，\$\langle \bullet \rangle\$ 表示当前位置的统计平均值，\$\epsilon\$ 和 \$\mu\$ 分别表示介电常数和磁导率。根据 Stokes 矢量可以进一步得到偏振光的偏振度：

$$P = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2 + V^2}}{I} \quad (3)$$

式中：若将 \$V\$、\$Q\$ 或 \$U\$ 分别去掉，则分别为线偏振度或圆偏振度。同时，根据入射辐射强度、天顶角和 Stokes 矢量，能够定义偏振反射率如下[8]：

$$R_p = \frac{\pi \sqrt{Q^2 + U^2}}{E_{in} \cos \theta} \quad (4)$$

式中：\$E_{in}\$ 为入射辐射强度或太阳辐照度，\$\theta\$ 为入射光天顶角或太阳天顶角，\$Q^2 + U^2\$ 表示偏振辐射强度。当发生偏振散射时，气溶胶粒子的散射特征需通过散射相矩阵来描述[16]：

$$\mathbf{P}(\theta) = \begin{pmatrix} P_{11}(\theta) & P_{12}(\theta) & 0 & 0 \\ P_{12}(\theta) & P_{22}(\theta) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{33}(\theta) & P_{34}(\theta) \\ 0 & 0 & -P_{34}(\theta) & P_{44}(\theta) \end{pmatrix} \quad (5)$$

式中：\$\theta\$ 为散射角，当散射介质为球形时，\$P_{11}=P_{22}\$，\$P_{33}=P_{44}\$，当散射介质为非球形时，\$P_{22}\$ 是决定介质退偏振能力的重要影响因子。随后，根据散射相矩阵和入射光偏振态能够进一步得到散射角 \$\theta\$ 和旋转角 \$\phi\$：

$$\rho_\theta(0 \leq \theta \leq \theta) = \int_0^\theta P_{11}(\theta) \sin \theta d\theta \quad (6)$$

$$\rho_\phi(0 \leq \phi \leq \phi) = \phi + \frac{P_{11}(\theta) Q_{in} \sin 2\phi + U_{in}(1 - \cos 2\phi)}{P_{22}(\theta) 2I_{in}} \quad (7)$$

式中：\$I_{in}\$，\$Q_{in}\$ 和 \$U_{in}\$ 分别为入射光的 Stokes 矢量元素。此外，由于散射后偏振光的定义坐标系发生变化，需要通过变换矩阵将 Stokes 矢量从入射坐标系转换到散射坐标系[17]：

$$\mathbf{I}_{sca} = \mathbf{L}(\pi - \sigma_2) \mathbf{P}(\theta) \mathbf{L}(-\sigma_1) \mathbf{I}_{in} \quad (8)$$

式中：\$\sigma_1\$ 和 \$\sigma_2\$ 分别为散射平面与入射参考系平面和散射参考系平面的夹角，如图 1(b) 所示，\$\mathbf{L}\$ 表示旋转矩阵：

$$\sigma_1 = -\arccos((n_{inc} \times n_z) \cdot (n_{inc} \times n_{sca})) \quad (9)$$

$$\sigma_2 = \pi - \arccos((n_{sca} \times n_z) \cdot (n_{sca} \times n_{inc})) \quad (10)$$

$$\mathbf{L}(\sigma) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(2\sigma) & -\sin(2\sigma) & 0 \\ 0 & \sin(2\sigma) & \cos(2\sigma) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (11)$$

因此，经过多次散射后的 Stokes 矢量如下所示：

$$\mathbf{I}_n = \sum_{i=1}^{n-1} \mathbf{L}(\pi - \sigma_2) \mathbf{P}(\theta) \mathbf{L}(-\sigma_1) \cdot \mathbf{I}_{n-1} \quad (12)$$

式中：\$\mathbf{I}_n\$ 和 \$\mathbf{I}_{n-1}\$ 分别为 \$n\$ 次散射后和散射前的 Stokes 矢量。

1.3 蒙特卡洛光线追踪法

具有三维稳态特征的矢量辐射传输方程可表示如下[16]：

$$\boldsymbol{\Omega} \cdot \nabla \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}) + \kappa(\mathbf{r}) \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}) = \mathbf{J}_{emi}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}) + \int_{4\pi} \mathbf{Z}(\boldsymbol{\Omega}', \boldsymbol{\Omega}) \mathbf{I}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}') d\boldsymbol{\Omega}' \quad (13)$$

式中： Ω 为散射方向矢量， \mathbf{I} 为偏振光矢量， \mathbf{r} 为空间位置矢量， κ 表示消光系数， \mathbf{J}_{emi} 表示热辐射， \mathbf{Z} 表示散射相矩阵， Ω' 为入射辐射的方向矢量，源项在 4π 空间内积分。为了求解矢量辐射传输方程，本文采用了早期研究中自主开发的 MCRT 方法，模型图如图 2 所示(模型的大气物理参数等设置可详见参考文献^[16])。MCRT 方法基于离散化理论和随机变量，使用大量光子模拟辐射传输中包括散射、吸收和折射在内的各种光学行为。首先，光子在天顶发射后，根据朗伯比尔定律计算光程^[18]：

$$L = -\ln(I_{\lambda,L}/I_{\lambda,0})/\kappa_{\text{ext},\lambda} = -\ln(\xi_L)/\kappa_{\text{ext},\lambda} \quad (14)$$

式中： L 表示随机传输光程， $\kappa_{\text{ext},\lambda}$ 为总光谱消光系数， $I_{\lambda,0}$ 和 $I_{\lambda,S}$ 表示移动前后的辐射强度。当光子移动后，光子坐标的更新如下：

$$\mathbf{r}_n = \mathbf{r}_{n-1} + L \cdot \mathbf{n} \quad (15)$$

式中： \mathbf{r}_n 和 \mathbf{r}_{n-1} 为第 n 次和 $n-1$ 次移动后的空间位置矢量， \mathbf{n} 表示方向单位矢量。此外，辐射与大气分子相互作用时的散射和吸收，在通过模型边界时的反射和折射，可以详见文献^[16]。根据本文的研究内容，光子被初始化为自然光($I_0 = (1, 0, 0, 0)^T$)、线偏振光($I_0 = (1, \pm 1, 0, 0)^T, (1, 0, 1, 0)^T$)或圆偏振光($I_0 = (1, 0, 0, \pm 1)^T$)，并将其初始权重设置为 1，这一权重将在发生散射和吸收等光学行为时改变，以代表光子能量随之发生的变化，初始方向则根据给定的天顶角和方位角计算。

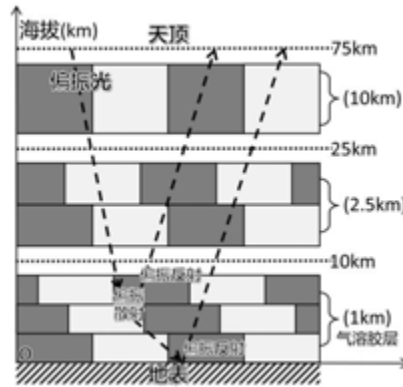


图 2 基于 MCRT 方法的矢量辐射传输模型

2 偏振度的变化

2.1 光学厚度和地表反照率

首先模拟了不同类型气溶胶在不同影响因素下的偏振度变化，结果如图 3 所示。模拟采用了 0° 线偏振光，默认的太阳天顶角、偏振光波长、AOD 和地表反照率分别为 30° 、 $0.67\mu\text{m}$ 、1 和 0.2。结果表明，随 AOD 的增加，所有类型气溶胶的偏振度均减小，但减小幅度下降，这是因为随 AOD 增加，偏振光被气溶胶粒子散射的平均次数增加，导致退偏振增强，但多次散射次数的增加并不与 AOD 成正比，这使得偏振度随 AOD 增加的下速度减小。不同类型气溶胶对偏振度的影响不同，受沙尘气溶胶影响的偏振度减小最快，而烟雾最慢。这是因为气溶胶对偏振光的影响主要受到自身大小、形状和复折射率的影响，尺寸更大且不规则的沙尘气溶胶退偏振效果最好，而尺寸最小且吸收较强的烟雾气溶胶退偏振效果最差。此外，偏振度随地表反照率的增加而减小，但减小的幅度并不大，且在各种类型气溶胶中几乎一致。这是因为随着地表反照率增加，有更多的偏

振光从地表被反射回气溶胶介质中并经历二次散射，从而使得偏振光进一步退偏振，但这一过程仅与地表反照率成正比而与气溶胶类型无关。同时，在 Mie 散射区的气溶胶粒子以前向散射为主，因此经历二次散射的偏振光更多的被散射回天顶^[19]，且受到气溶胶吸收的影响，地表反照率的作用被削弱了。

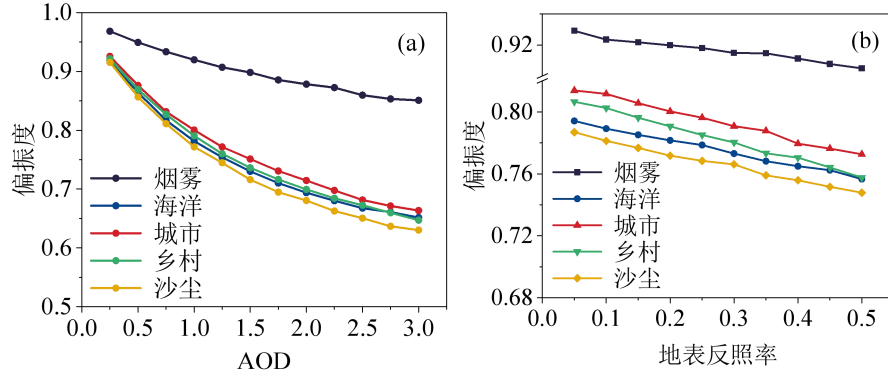


图3 不同类型气溶胶的偏振度随 AOD 和地表反照率的变化

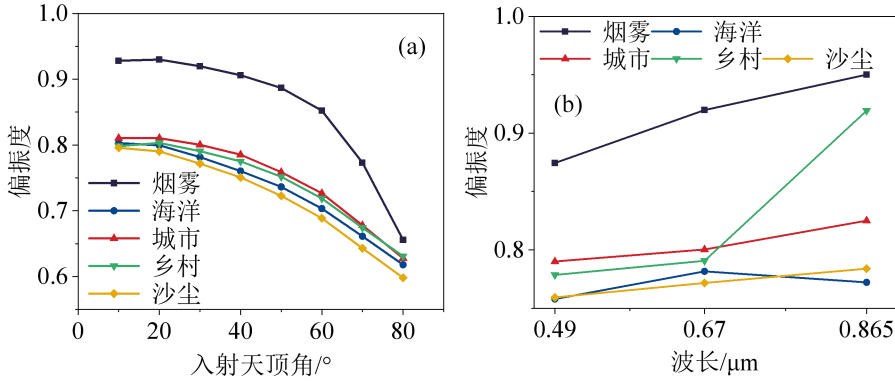


图4 不同类型气溶胶的偏振度随偏振光入射天顶角和波长的变化

2.2 入射光天顶角和波长

具有不同天顶角和波长的偏振光在气溶胶介质中的传输模拟结果如图4所示。结果表明，随天顶角增加，所有类型气溶胶的偏振度均减小，并且减小趋势逐渐增大。同时，烟雾气溶胶相比其他类型气溶胶受天顶角的影响更大，随天顶角增加，烟雾气溶胶的偏振度迅速减小。这是因为天顶角除了影响辐射传输时的相对光学厚度外，还会影响不同散射角度的偏振光在地表散射或天顶散射中的占比^[19]。而相比其他气溶胶，烟雾气溶胶的侧向散射明显更强，受天顶角增加的影响，侧向散射在地表散射中的占比增加，偏振度减小的也更快。除海洋气溶胶外，其他类型气溶胶的偏振度均随波长的增加而增大，这是因为波长的增加导致气溶胶粒子的尺度参数减小，从而削弱了气溶胶的退偏效果。而海洋气溶胶的相反变化是因为波长除了影响气溶胶粒子的尺度参数外，还会影响复折射率，海洋气溶胶的复折射率虚部随波长的相对变化较大，而其他种类气溶胶的变化则较小。乡村气溶胶的偏振度在波长为 $0.865\mu\text{m}$ 处的增长也是因为复折射率虚部随波长的变化所致，相比之下，复折射率实部的影响不大。综上分析，在以上影响因素中，波长的变化会改变气溶胶的复折射率，而其他因素则不会改变气溶胶的性质，这使得波长的

影响更为复杂，但不同波长下偏振度随 AOD 等参数的变化规律应基本一致，这是因为复折射率随波长的变化远小于气溶胶类型间的差异。

2.3 入射光偏振态

表 2 列出了不同类型气溶胶在不同偏振光下的偏振度，模拟参数与 2.1 节相同。结果表明，圆偏振光的偏振度要明显高于线偏振光，说明圆偏振光具有更好的保偏性能。这是因为圆偏振光的记忆效应造成的旋转对称所致，这种特性使得圆偏振光需要经历更多次的散射才能使偏振方向均匀化^[7,20]，这表明在高光学厚度的介质中，圆偏振光具有更好的携带信息的能力。然而，不同偏振态的线偏振光或圆偏振光的偏振度却并没有明显差异，这是因为这些偏振光仅仅坐标系不同的同种偏振光。

表 2 具有不同偏振态的入射光的偏振度变化

气溶胶	$(1, 1, 0, 0)^T$	$(1, 0, 1, 0)^T$	$(1, -1, 0, 0)^T$	$(1, 0, 0, 1)^T$	$(1, 0, 0, -1)^T$
烟雾	0.920	0.918	0.919	0.934	0.934
海洋	0.782	0.783	0.785	0.955	0.955
城市	0.801	0.802	0.804	0.951	0.951
乡村	0.791	0.792	0.794	0.937	0.937
沙尘	0.772	0.772	0.772	0.951	0.951

3 偏振反射率的变化

模拟了在入射光为自然光的情况下，气溶胶的偏振反射率随 AOD 和波长的变化，结果如图 5 所示。考虑到相当多的研究揭示了偏振反射率对侧向散射的敏感性，因此列出了散射角在 70° - 90° 的偏振反射率平均结果^[8,9]。结果表明，随 AOD 增加，不同类型气溶胶的偏振反射率变化不同，烟雾气溶胶的偏振反射率随 AOD 的增加而增大，但其他类型气溶胶则有所减小。根据前文分析，烟雾气溶胶具有更小的尺寸和更差的退偏振性能，随 AOD 的增加，侧向辐射强度增加，但偏振度的减小有限，最终导致其偏振反射率随 AOD 的增加而增大。但对于其他类型气溶胶来说，偏振度减小比侧向辐射强度的增加更显著，最终导致了偏振反射率减小。此外，偏振反射率随波长的增加而显著减小，这可能是因为自然光的散射起偏受尺度参数更小气溶胶的影响更弱所致，因此除烟雾气溶胶外的其他种类气溶胶尺度参数受波长影响较大，使得偏振反射率随波长的减小更显著。而烟雾气溶胶的反向增加可能是因为烟雾粒子在长波辐射下更接近瑞利散射。

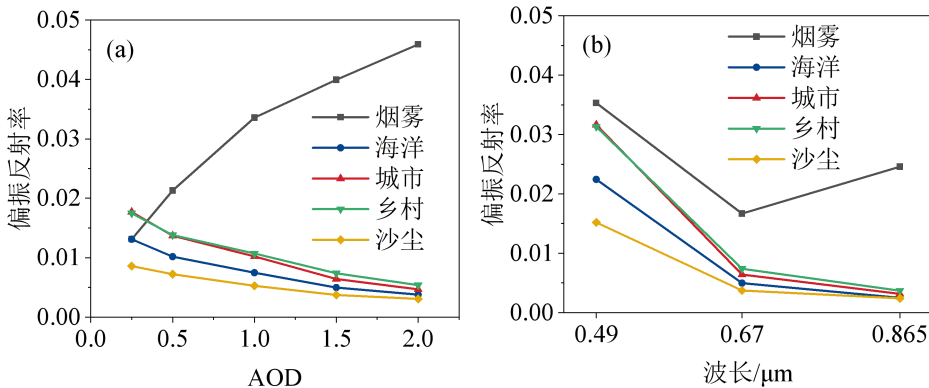


图 5 不同类型气溶胶的偏振反射率随 AOD 和波长的变化

需要额外说明的是,研究考虑了 AOD、地表反照率、入射光天顶角和波长等因素的影响,但还未对气溶胶形状和含水量等对偏振光传输特性的作用展开讨论。气溶胶形状偏离球形时,小尺度参数气溶胶粒子的消光效率、单次散射反照率 and 不对称因子均会有所减小,而大尺度参数气溶胶粒子则刚好相反。同时,气溶胶粒子的非球形也使得其侧向散射增强而前向和后向散射减弱,且相矩阵元素 P_{22} 小于 0,这些变化最终使得非球形气溶胶粒子的退偏振能力增强,但其退偏振能力变化在大尺度和小尺度粒子中可能有所不同。此外,气溶胶含水量的增加使得其尺寸增大且复折射率的实部和虚部均减小,这种变化近似于减小了偏振光的波长,可能会使得偏振反射率增加而偏振度减小。以上相关讨论将在未来的工作中加以研究和分析。

4 结 论

为了明确不同类型气溶胶和影响因素对偏振光传输特性的作用,采用 MCRT 方法求解了含气溶胶介质的矢量辐射传输模型,分析了偏振度和偏振反射率在不同模拟条件下的变化规律,得到的主要结论如下:(1)偏振度随 AOD、地表反照率和入射光天顶角的增加而减小,但偏振度随 AOD 的变化受烟雾气溶胶的影响较小,受其他种类气溶胶的影响较大,然而偏振度随天顶角的变化受烟雾气溶胶的影响最大。此外,偏振度随地表反照率的变化对所有种类气溶胶均不敏感;(2)偏振度随波长的变化在不同种类气溶胶中的差异较大,在烟雾、城市和沙尘气溶胶中呈现近似的线性变化,在乡村气溶胶中随波长迅速增大,但在海洋气溶胶中先减小而后增大,这种差异源自于气溶胶复折射率随波长变化的不同;(3)具有不同偏振态偏振光的传输特性不同,相同传输条件下圆偏振光比线偏振光的偏振度更高,具有更好的保偏性能;(4)散射角在 70° - 90° 的平均偏振反射率表明,除烟雾气溶胶外,偏振反射率随 AOD 和波长的增加而减小,但烟雾气溶胶的偏振反射率随 AOD 的增加而增大,随波长增加先减小而后增大,这源自于烟雾气溶胶的高吸收和小尺寸特征。明确多因素影响下不同类型气溶胶的偏振特性有助于提高气溶胶的遥感和反演精度。

参考文献

- [1] Hans-Otto Pörtner, Debra C. Roberts, Melinda M.B. Tignor, et al. Climate change 2022: Impacts, adaptation and vulnerability. Geneva, Switzerland: IPCC, 2022
- [2] 游燕, 白志鹏. 大气颗粒物暴露与健康效应研究进展.生态毒理学报, 2012, 7(2): 123--132
You Yan, Bai Zhipeng. Research Advances in Exposure to Ambient Particulate Matter and Health Effects. Asian Journal of Ecotoxicology, 2012, 7(2): 123—132
- [3] 杨斌, 颜昌翔. 海洋气溶胶多光谱偏振特性研究.光谱学与光谱分析, 2016, 36(9): 2736--2741
Yang Bin, Yan Changxiang. Multi-Spectral Polarized Properties of Ocean Aerosol. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2016, 36(9): 2736—2741
- [4] 孙贤明, 王海华, 申晋, 等. 海洋背景下气溶胶的偏振光散射特性研究.激光与光电子学进展, 2016, 53(4): 10--17
Sun Xianming, Wang Haihua, Shen Jin, et al. Study on Polarized Light Scattering by Aerosol over Ocean.

- Laser & Optoelectronics Progress, 2016, 53(4): 10—17
- [5] Fu Qiang, Luo Kaiming, Song Yu, et al. Study of Sea Fog Environment Polarization Transmission Characteristics. Applied Sciences, 2022, 12(17): 8892
- [6] 宣建楠, 隋成华, 鄢波. 气溶胶浓度对偏振光传输特性的影响. 光学仪器, 2015(4): 348--352
Xuan Jiannan, Sui Chenghua, Yan Bo. The influence of aerosol concentration on the transmission characteristics of polarized light. Optical Instruments, 2015, (4): 348—352
- [7] 张肃, 战俊彤, 白思克, 等. 烟雾浓度对偏振光传输特性的影响. 光学学报, 2016, 36(7): 303--310
Zhang Su, Zhan Juntong, Bai Sike, et al. Influence of Smoke Concentration on Transmission Characteristics of Polarized Light. Acta Optica Sinica, 2016, 36(7): 303—310
- [8] Xu Feifei, Ma Jinji, Wu Shichao, et al. Identification of smoke and polluted clouds based on polarized satellite images. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2019, 224: 343—354
- [9] 吴时超, 麻金继, 章群英, 等. 基于粒子偏振特性的雾霾区分算法研究. 大气与环境光学学报, 2019, 14(3): 221--227
Wu Shichao, Ma Jinji, Zhang Qunying, et al. Research on Haze and Fog Distinguishing Algorithm Based on Particle Polarization Characteristics. Journal of Atmospheric and Environmental Optics, 2019, 14(3): 221—227
- [10] 魏佩瑜, 孙贤明, 王海华, 等. 非球形生物气溶胶对偏振光的多次散射特性研究. 光散射学报, 2013, 25(2): 121--126
Wei Peiyu, Sun Xianming, Wang Haihua, et al. Nonspherical Model for Biological Aerosol and Its Application to the Research of Unpolarized Light Multiple Scattering. The Journal of Light Scattering, 2013, 25(2): 121—126
- [11] 胡帅, 高太长, 李浩, 等. 非球形气溶胶对近红外偏振辐射传输的影响及等效球形误差分析. 红外与毫米波学报, 2017, 36(2): 235--245
Hu Shuai, Gao Taichang, Li Hao, et al. Analysis on the impact of non-spherical aerosol on polarized radiative transfer in near-infrared band and its equivalent-sphere errors. Journal of Infrared and Millimeter Waves, 2017, 36(2): 235—245
- [12] 张肃, 付强, 段锦, 等. 湿度对偏振光传输特性影响的研究. 红外与激光工程, 2016, 45(5): 1--7
Zhang Su, Fu Qiang, Duan Jin, et al. Research of influence of humidity on transmission characteristics of polarized light. Infrared and Laser Engineering, 2016, 45(5): 1—7
- [13] 马愈昭, 高晨, 程飞帆, 等. 考虑地表反射类型的气溶胶散射偏振特性. 光子学报, 2020, 49(2): 50--58
Ma Yuzhao, Gao Chen, Cheng Feifan, et al. Aerosols Scattering Polarization Characteristics Based on Different Surface Reflection Type. Acta Photonica Sinica, 2020, 49(2): 50—58
- [14] Mao Qianjun, Huang Chunlin, Chen Qixiang, et al. Satellite-based identification of aerosol particle species using a 2D-space aerosol classification model. Atmospheric Environment, 2019, 219: 1—8
- [15] Oleg Dubovik, Alexander Sinyuk, Tatyana Lapyonok, et al. Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2006, 111(D11)

- [16] Mao Qianjun, Nie Xin. Polarization performance of a polydisperse aerosol atmosphere based on vector radiative transfer model. *Atmospheric Environment*, 2022: 119079
- [17] 聂鑫, 毛前军. 平流层硫酸盐气溶胶辐射效应的模拟研究. *环境科学学报*, 2022, 42(11): 372--382
Nie Xin, Mao Qianjun. Simulation study on radiative effects of stratospheric sulfate aerosols. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2022, 42(11): 372—382
- [18] 张传新. 目标光学探测中传输介质及背景源干扰特性研究: [博士学位论文]. 黑龙江: 哈尔滨工业大学, 2019
Zhang Chuanxin. Interference Characteristics of Transmission Medium and Background Sources in Optical Detection of Targets: [Ph.D. Thesis]. Heilongjiang: Harbin Institute of Technology, 2019
- [19] Nie Xin, Mao Qianjun. Study on shortwave radiative transfer characteristics in polydisperse aerosols in a clear sky. *Infrared Physics & Technology*, 2021, 118: 103903
- [20] 王鹏程, 张肃, 申成彪, 等. 偏振光在椭球细粒子中多次散射传输特性. *中国光学*, 2023, 16(2): 348--357
Wang Pengcheng, Zhang Su, Shen Chengbiao, et al. Multiple scattering transmission characteristic of polarized light in ellipsoidal fine particles. *Chinese Journal of Optics*, 2023, 16(2): 348—357

基于复折射率尺度效应的比色测温法精准度优化研究

杜新雨¹, 张俊友¹, 李诗媛¹, 齐宏²

(1. 北京科技大学能源与环境工程学院, 北京 100083;

2. 哈尔滨工业大学能源科学与工程学院, 哈尔滨 150001)

(Tel: 16601261025, Email: zhangjunyou@ustb.edu.cn)

摘要：火焰温度在炭黑颗粒的形成中起关键作用，非侵入式的比色测温法是获取火焰温度信息的重要途径。然而，传统比色测温法忽视复折射率尺度效应，应用于初生态的纳米炭黑会导致严重的测量误差。为此，通过构建复折射率与粒径的关联式，量化了尺度效应对纳米炭黑复折射率的影响，从而发展了新型比色测温法。实验结果表明该新型方法显著优化了火焰环境中纳米炭黑温度测量的精准度，与传统比色测温法相比，测温结果的相对误差从 50% 降低到 10% 以内。

关键词：复折射率，尺度效应，炭黑，比色测温法

0. 前言

炭黑颗粒作为常见的碳氢燃料燃烧产物，通常以分形团聚形态存在（如图 1 所示）^[1]。大量的炭黑排放会危害人体健康，引发呼吸道感染、肺癌等疾病^[2]。同时，炭黑也会影响大气层的辐射传输，是全球第二大（仅次于 CO₂）温室效应因素^[2]。因此，研究炭黑的生成机理，抑制炭黑的生成至关重要。如图 1 所示，火焰环境中炭黑形成主要包括四个阶段：炭黑的均匀成核^[3-5]、颗粒凝结、颗粒表面反应^[6,7]和颗粒团聚^[8]，火焰温度在炭黑形成的四个阶段中都起着关键作用。Zhou 等^[9]基于层流预混燃烧器研究不同温度下炭黑颗粒的生长情况，指出炭黑颗粒在 1630 K~1869 K 和 1630 K~1724 K 两段相近温度区间的生长机理存在本质区别。因此，准确获取炭黑形成过程中的火焰温度信息是解析炭黑形成机理的基础。

比色测温法因其非侵入式和高时空分辨率的测量优势，被广泛用于火焰温度场的原位诊断^[10]。该方法通过物理模型将炭黑颗粒的高温热辐射信号转换为火焰温度场信息，炭黑颗粒的复折射率 m 是最关键的模型参数^[11]，该参数的准确赋值将直接决定火焰温度测量的精准度。传统的比色测温法多用于亚微米/微米级炭黑颗粒，此类炭黑颗粒已充分成长，物理与化学性质稳定，复折射率基本不随粒径增长发生变化，因此复折射率通常采用固定的

经典数值或经验公式。近年来，随着炭黑生成机理研究向着更小物理尺度发展^[12]，纳米炭黑渐渐成为学者关注的重点。成熟炭黑的生成需要经历气相前驱体、初生态纳米炭黑等阶段。其中初生态纳米炭黑（通常粒径小于 23 nm）的生成标志着气体前驱物分子向凝聚态（液态或固态）颗粒的转变，是调控炭黑颗粒生成的关键阶段，对于炭黑排放的源头治理具有重要意义。因此，将发展于亚微米/微米级炭黑颗粒的比色测温法推广于纳米炭黑颗粒具有重要的科学和工程价值。然而，这受到纳米炭黑复折射率尺度效应^[13]的限制，即复折射率的经典数值和经验公式不适用于纳米炭黑复折射率的赋值，否则将导致火焰温度测量结果的显著误差。

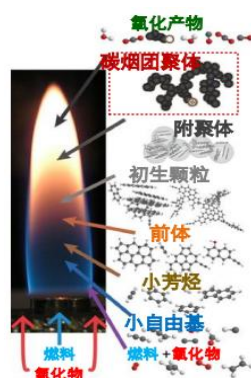


图 1 火焰中炭黑不同发展阶段的形态示意图^[1]

Fig 1 Schematic representation of soot formation and evolution in a flame^[1]

纳米炭黑复折射率的尺度效应近年来受到学者广泛关注。Kelesidis 等^[14]指出传统光学模型计算炭黑数据存在较大偏差，这与未成熟炭黑内有机碳的光散射导致的光学特性变化有关。同时提供了有机碳比例与炭黑成熟情况间关系以及质量吸收截面与波长间关系，并列出有机碳与复折射率之间的关系式，用于激光诱导炽光法和衰光法的优化。Escudero 等^[15]基于层流共流乙烯扩散火焰中烟灰的成熟系数 β 和吸收函数 E 对自动补偿激光诱导炽光技术(AC-LII)进行优化并应用于实际测量过程。校正后的 AC-LII 炭黑体积分数分布结果在实验误差范围内与多波长视距衰减和发射测量结果吻合良好。Corbin 等^[16]通过测量四种不同来源的炭黑质量吸收截面与炭黑质量间关系指出炭黑质量吸收截面与炭黑尺寸相关。这表明炭黑的光学特性受炭黑粒径的影响。因此可以采用粒径来完成光学模型的优化。同时，炭黑粒径具有测量方便的特点，可以在不增加实验负担的情况下实现模型优化。Michelsen^[17]给出炭黑的密度、比热和温度与碳氢比间关系。为便于估计粒子的光学特性，将密度和粒径建立联系，构建粒径与碳氢比间关系。Kelesidis 等^[18]则通过将离散电子模型（DEM）与离散偶极子近似（DDA）耦合，研究炭黑表面生长和聚集过程中炭黑成熟情况对其光吸收的影响。对 532 nm 及 1064 nm 的炭黑光学带隙与复折射率线性插值，提供了计算不同成熟情况炭黑复折射率的思路。然而，目前基于复折射率尺度效应的比色测温法优化研究还存在空缺。

因此，本文为量化复折射率尺度效应的影响，以光学带隙为中间桥梁，在 200 nm-1400

nm 的波长范围内构建炭黑粒径与复折射率间的关联式，从而发展新型的比色测温法，优化纳米炭黑测温的精准度。其中，采用极化率法计算任意波长下初生炭黑的复折射率。成熟炭黑的复折射率则分为两种思路：一种采用经验公式；另一种采用实验测量值。对于后者而言，实验测量值仅限于常用的激光器波长（如 532 nm），而对于不常用的波长，比色测温法直接从成熟炭黑和初生炭黑的质量吸收截面（MAC）中计算吸收函数。因此根据成熟炭黑复折射率取值方法形成了两种优化方式：基于经验公式的模型优化方式和基于实验值的模型优化方式。最后，使用一维滞止火焰（炭黑粒径为 4-23 nm）的实验数据^[19]评估两种优化方式对比色测温法精准度的影响。

1. 比色测温法的基本原理

比色测温法是基于可见光测温技术提出的辐射测温法，简化测量装置如图 2 所示。实际测量过程中，火焰作为辐射源发出辐射信号，透过滤波器（根据测量波长选取的滤波片）到达增强型电荷耦合器件（ICCD）相机，即可获得辐射信号强度。将辐射信号强度代入比色测温法光学模型中，即可求得所测温度。

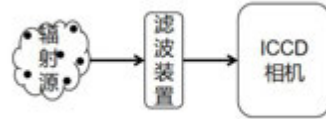


图 2 比色测温法实验装置简化图

Fig 2 Simplified diagram of the colorimetric thermometry experimental device

炭黑生长的过程中与周围燃烧场进行热量交换，两者温度近似，炭黑发出的辐射强度与自身温度密切相关^[20]。炭黑的辐射强度符合普朗克定律，其黑体辐射时表达式^[21]为：

$$I = \frac{2\pi^2 D^2 h c^2}{\lambda_s^5 [\exp(\frac{hc}{\lambda_s k_B T}) - 1]} \quad (1)$$

其中， I 为辐射强度， D 为炭黑粒径， h 为普朗克常数，值为 $6.62 \times 10^{-34} \text{ J}\cdot\text{s}$ ， c 为光速，值为 $3 \times 10^8 \text{ m/s}$ ， λ_s 为测量辐射强度时选取的波长， k_B 为玻尔兹曼常数，取值为 $1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ ， T 为炭黑温度。实际燃烧生成的炭黑不满足黑体辐射，计算辐射强度时还需加上单色辐射系数 ϵ_{λ_s} ，表达式^[21]如下

$$\epsilon_{\lambda_s} = \frac{4\pi D E(m)}{\lambda_s} \quad (2)$$

$$I = \epsilon_{\lambda_s} \frac{2\pi^2 D^2 h c^2}{\lambda_s^5 [\exp(\frac{hc}{\lambda_s k_B T}) - 1]} \quad (3)$$

其中， $E(m)$ 为给定测量波长下的炭黑吸收函数， m 为给定波长下炭黑的复折射率， m 由

折射率 n 和吸收系数 k 组成，表达式为 $m=n-ik$ ^[22]。将 (2) 代入 (3) 整理后得

$$I = \frac{8\pi^3 D^3 hc^2 \epsilon(m)}{\lambda_s^6 [\exp(\frac{hc}{\lambda_s k_B T}) - 1]} \quad (4)$$

实际测量过程中，首先需要测得两个波长下的辐射强度，带入式 (4) 中，得到两个测量波长下的辐射强度与温度间关系。之后将两式作比，整理得到所测温度：

$$T = \frac{hc(\lambda_{s1} - \lambda_{s2})}{\lambda_{s1} \lambda_{s2} k_B (\ln \frac{I_1}{I_2} - \ln \frac{\epsilon_{\lambda_{s1}}}{\epsilon_{\lambda_{s2}}} - 5 \ln \frac{\lambda_{s2}}{\lambda_{s1}})} \quad (5)$$

2. 比色测温法的模型优化

2.1. 复折射率的尺度效应

复折射率反应炭黑的光学性质，由实部折射率 n 和虚部吸收系数 k 组成。复折射率受尺度效应的影响，与炭黑粒径的变化有关^[11]，如图 3 所示。图中同一波长下不同粒径的炭黑复折射率实部和虚部均不相同，虚部间差异尤为明显，并且随着测量波长的增大，差异不断增加。因此，比色测温法计算过程中复折射率若仍选取定值，将产生较大误差。

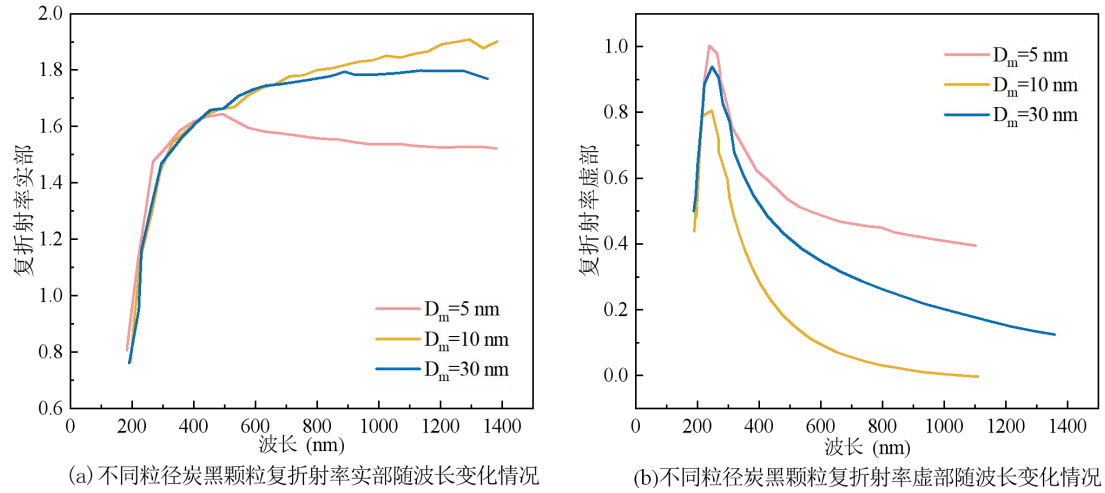


图 3 粒径为 5 nm、10 nm 和 30 nm 的炭黑复折射率实部虚部随波长变化情况^[11]

Fig 3 The variation of the real and imaginary parts of the complex refractive index of soot with particle sizes of 5 mm, 10 nm and 30 nm with wavelength^[11]

2.2. 基于复折射率尺度效应的模型优化路径

炭黑粒径与复折射率间并无直接物理关系，需以光学带隙作为桥梁构建两者间关系。并且炭黑粒径的测量实验比光学带隙的测量实验更简易，可以简化实验。基于上述思路的比色

测温法的优化路线如图 4 所示。

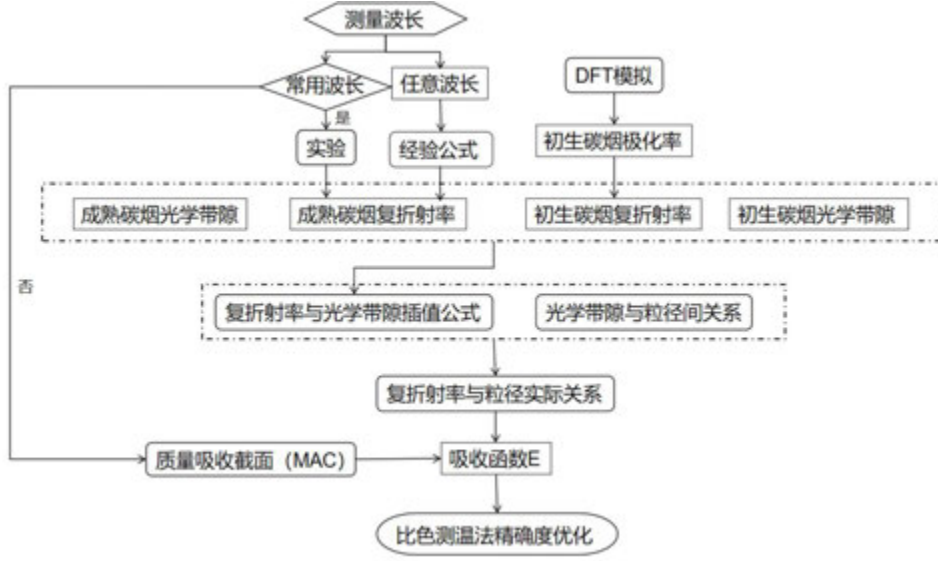


图 4 比色测温法优化路线

Fig 4 Optimization route of colorimetric temperature measurement method

具体优化路线主要分为两步：

(A) 光学带隙与炭黑粒径间关系：炭黑光学带隙是一个经实验测量较为完备的体系，初生炭黑的光学带隙一般为 0.6 eV，成熟炭黑的光学带隙一般为 0.25 eV，处于发展阶段的炭黑光学带隙值在两者之间^[14]。其与炭黑粒径存在下式^[23]所示关系

$$E_g = E_{g, mature} + \frac{h^2}{8\pi D_m^2} \left(\frac{1}{m_e^*} - \frac{1}{m_h^*} \right) - \frac{1.8e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r D_m} \quad (6)$$

其中， E_g 为光学带隙， $E_{g, mature}$ 为成熟炭黑的光学带隙， m_e^* 为有效电子质量，值为电子质量的 0.052 倍， m_h^* 为空穴电子质量，值为电子质量的 0.038 倍， ϵ_0 为真空介电常数，值为 $8.854187817 \times 10^{-12}$ F/m， ϵ_r 为相对介电常数，值取 2.97^[23]， e 为电子点荷，值为 1.6×10^{-19} C， D_m 为炭黑的电迁移率直径，与炭黑粒径 D 关系如式 (7) 所示， N 为炭黑数密度。

$$D_m = N^{\frac{1}{2.22}} D \quad (7)$$

(B) 光学带隙与复折射率关系：Kelesidis 等^[18]计算了 532 nm 和 1064 nm 的炭黑复折射率和光学带隙线性插值，经证明与克拉莫-克朗尼克关系的半经验模型一致。这表明某波长下炭黑复折射率与光学带隙间关系可通过线性插值表示。炭黑的光学带隙已知，构建这种关系需要获取在某波长下初生炭黑的复折射率和成熟炭黑的复折射率。

(a) 成熟炭黑复折射率求值：对于常用波长，成熟炭黑复折射率已有实验测出，可以直接使用。但经验公式^[22]更加简便，如式 (8) 和 (9)，可以直接计算任意波长的成熟炭黑复折射率。

$$n = 1.811 + 0.1263 \ln \lambda + 0.027 \ln^2 \lambda + 0.0417 \ln^3 \lambda \quad (8)$$

$$k = 0.5812 + 0.1212 \ln \lambda + 0.2309 \ln^2 \lambda - 0.01 \ln^3 \lambda \quad (9)$$

此外，若测量波长为不常用波长，可采用质量吸收截面计算模型中吸收函数 E 达到对模型优化的效果。图 5 为 Kelesidis 等^[14]经实验测量得到的质量吸收截面与波长间关系曲线，四条曲线表示不同成熟情况的炭黑 MAC 与波长间的对应关系。首先用式（6）计算光学带隙，通过光学带隙选取图 5 中曲线，再根据波长选取得到对应的 MAC 值。最后通过下式直接计算吸收函数 E ，实现对模型的优化。式中 ρ 为炭黑的密度。

$$E = \frac{MAC \cdot \lambda \cdot \rho}{6\pi} \quad (10)$$

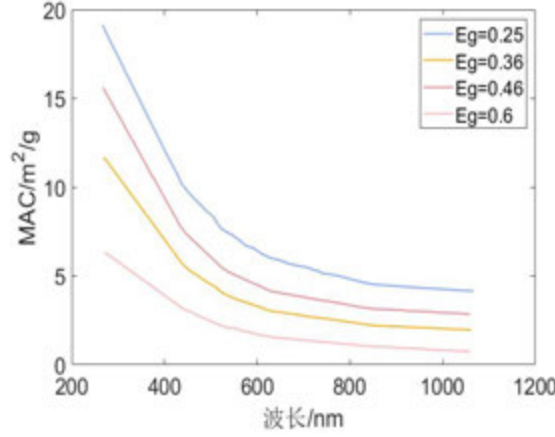


图 5 质量吸收截面在不同光学带隙下随波长变化情况^[14]

Fig 5 MAC changes with wavelength under different optical bandgaps

（b）初生炭黑复折射率求值：初生炭黑的复折射率较难测量，需要通过极化率与复折射率间关系^[24]求取。两者关系表达式如下

$$\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} = \frac{\alpha}{3\epsilon_0 V_p} \quad (11)$$

式中 α 为极化率， V_p 为颗粒体积，按球体体积公式计算。

对于极化率，Moulin 等^[25]构建了两种初生炭黑模型，通过原子点偶极相互作用的方法（PDI）模拟得到了炭黑极化率。其中，基于四壳层 C540@C960@C1500@C2160 富勒烯结构构建的模型模拟得到的极化率更符合实际。本文根据常用测量波长范围（200-1400 nm）及能量与波长间关系，选取该结构极化率曲线 0-5 eV 部分，拟合计算得到初生炭黑极化率曲线。同时为保证能量与波长对应的正确性，将文献^[18]中 532 nm 和 1064 nm 波长对应的初生炭黑复折射率通过公式反推得到极化率与原值比较，如图 6 所示。532 nm 和 1064 nm 对应极化率与原值吻合良好。根据波长选取对应极化率代入式（11）即可计算该波长下的初生炭黑复折射率。

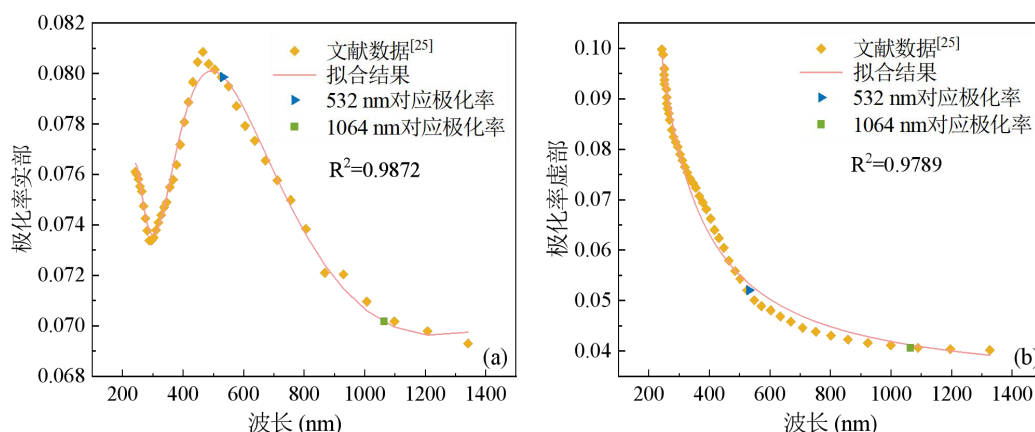


图 6 初生炭黑的极化率与波长关系曲线^[25] ((a): 极化率实部; (b): 极化率虚部)

Fig 6 The relationship curve between polarizability and wavelength of primary soot^[25]((a): Polarization rate real part; (b): polarization rate imaginary part)

(c) 关系建立: 将 200 nm-1400 nm 范围内某波长下初生炭黑与成熟炭黑的复折射率和光学带隙进行线性插值, 得到该波长下复折射率与光学带隙的对应关系。结合光学带隙与粒径间关系, 即可得到任意成熟情况的炭黑在该波长下的复折射率。这样就构建出两种优化方式: 基于经验公式的模型优化方式和基于实验值的模型优化方式。本文将对这两种方式的优化效果进行比较计算。

3. 结果分析

3.1. 基于经验公式的模型优化方式的优化效果

将一维滞止火焰在 HAB=5 mm、7 mm 和 10 mm 处火焰自发辐射信号、炭黑电迁移率直径等数据^[19]用于比色测温法模型优化效果计算。提取炭黑电迁移率直径数据进行拟合, 拟合结果如图 7 所示, 拟合优度大于 0.95。拟合公式如式 (12) 所示。

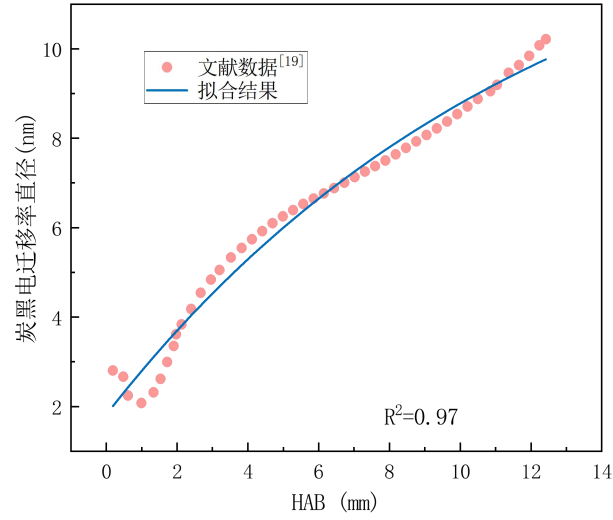


图 7 炭黑电迁移率直径拟合结果

Fig 7 Fitting results of soot electromigration diameter

$$D_m = -12.48 \exp(-0.08153HAB) + 14.3 \quad (12)$$

炭黑粒径由下式^[19]所示关系求得。

$$D = D_m \tanh(1.4566 + 0.010892D_m)(1.0721 - \frac{0.4925}{D_m}) \quad (13)$$

HAB=5 mm、7 mm 和 10 mm 处的温度数值分别为 1673 K、1620 K 和 1566 K。辐射强度如图 8 所示，计算采用的辐射强度为火焰自发辐射强度。

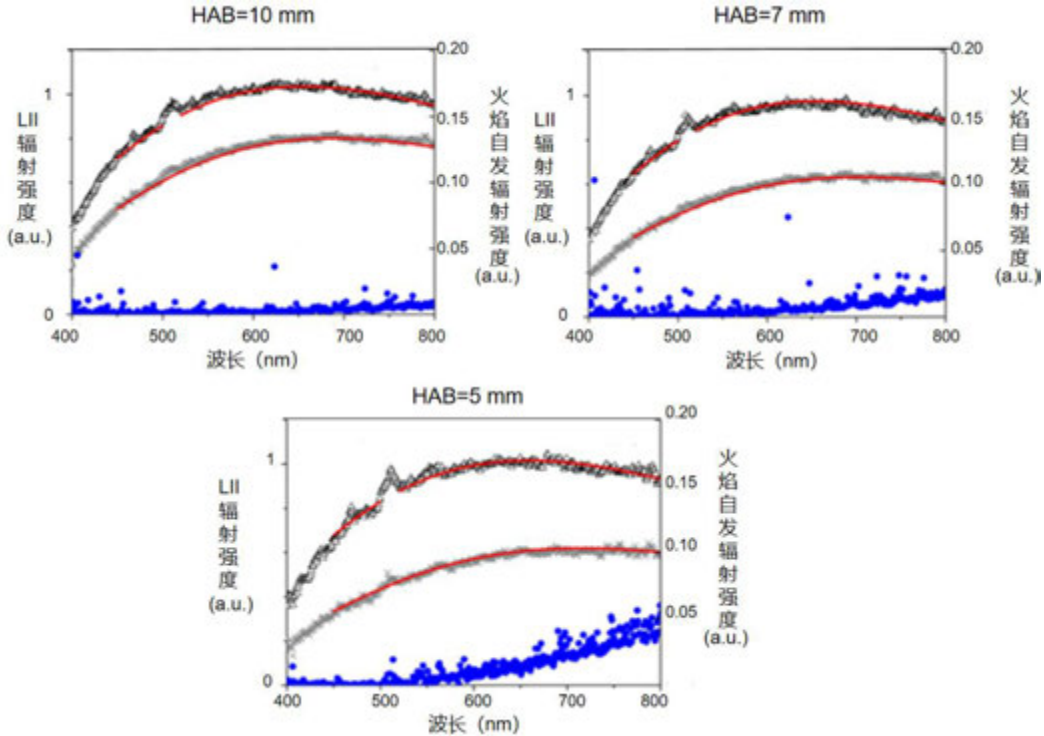


图 8 不同测量波长的辐射强度^[19]

Fig 8 Radiant intensity of different measuring wavelengths^[19]

成熟炭黑复折射率采用式 (8) 和式 (9) 计算得到，与粒径和辐射强度代入式 (5) 求

得优化前比色测温法结果。通过 2.2 所述技术路线求得基于经验公式优化的比色测温法结果。选取波长为 450 nm、532 nm、750 nm 和 800 nm 进行组合计算，将结果与 LIF 实验测量值^[19]进行比较，得到图 9 所示结果。图中四种组合下的优化结果和未优化结果与实验结果均存在较大差异，优化结果与实验结果间差异较小。因此，该方法的优化效果不佳，同时说明采用传统比色测温法测量小粒径炭黑火焰数据时误差极大，进一步说明比色测温法亟需进行优化。此外，HAB=5 mm 处数值与其余位置的规律不同，更加贴近 LIF 数据，这是由于该位置的信号受到的气体辐射的影响产生偏差。

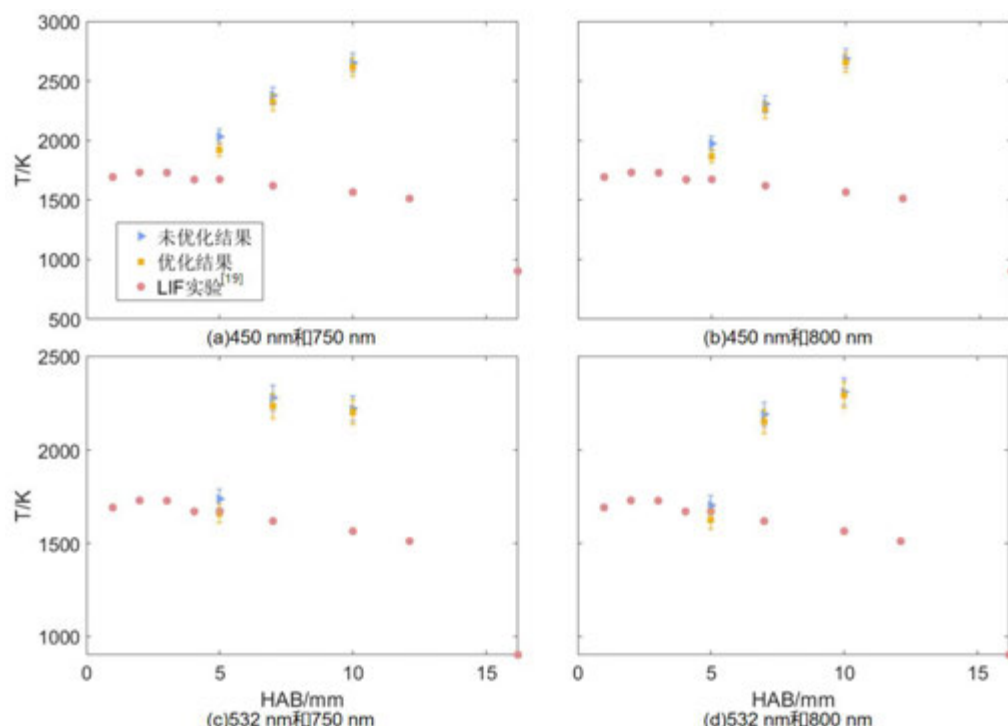


图 9 不同波长组合的模型优化效果比较

Fig 9 Comparison of Optimization Effects of Models with Different Wavelength Combinations

为了更好地分析优化后的效果，选取图 9（a）中数据绘制优化前后结果与实验值间的相对误差图，如图 10 所示。图中优化后的结果与未优化结果相比，误差降低了 5% 左右，优化效果较差。同时，图中也反映出小粒径炭黑火焰采用传统比色测温法计算得到的结果与实际差异较大，相对误差最高可达 70%。除了复折射率尺度效应的影响外，推测经验公式受当时实验条件影响不能精准取值，使得计算出成熟炭黑复折射率与现代实验测量略有偏差导致最终的测量误差。这对模型优化效果也产生了影响。

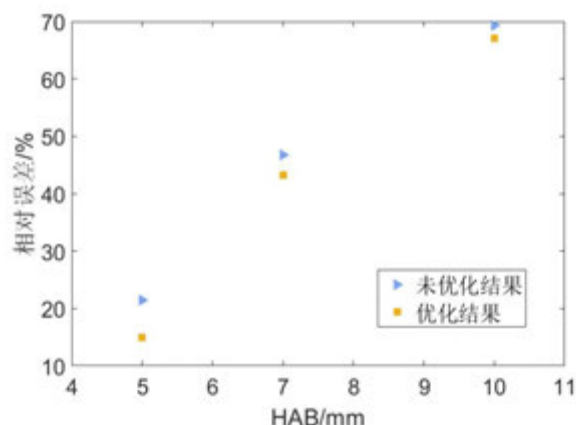


图 10 基于经验公式模型优化方法优化前后相对误差比较

Fig 10 Comparison of relative errors before and after optimization based on empirical formula model optimization method

3.2. 基于实验值的模型优化方式的优化效果

由于比色测温法测量时使用的波长都较大, 存在不常用波长。本方法将实验测量得到的常用波长成熟炭黑复折射率与质量吸收截面计算得到的不常用波长吸收函数相结合, 研究该优化方式的效果。为保证常用波长计算结果的准确性, 首先将计算得到的波长为 532 nm 和 1064 nm 对应的复折射率与光学带隙插值公式与文献^[18]中的插值公式结果进行对比, 如图 11 所示。两个波长下插值公式的计算结果与文献结果相差均不足 1%, 吻合性良好。

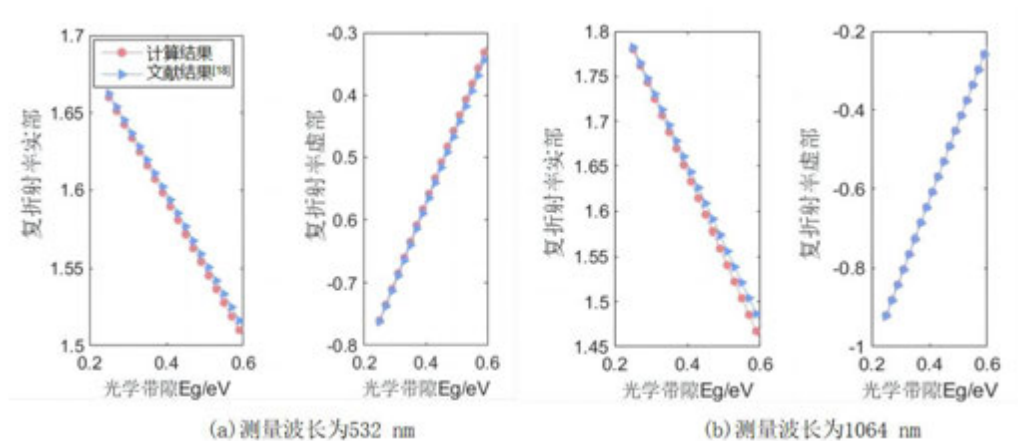


图 11 复折射率与光学带隙插值公式验证

Fig 11 Verification of Complex Refractive Index and Optical Band Gap Interpolation Formula

采用炭黑粒径为 4-23 nm 的一维滞止火焰的自发辐射信号、炭黑电迁移率直径等数据^[19]计算模型优化效果。数据处理方式与 3.1 相同。未优化的比色测温法中常用波长成熟炭黑复折射率采用实验测量值进行计算, 不常用波长成熟炭黑采用质量吸收截面计算吸收函数。通过 2.2 所述技术路线求得基于实验值优化的比色测温法结果。选取波长 532 nm 和 750 nm 进行计算。结果如图 12 所示, 未优化结果距离实验测量值较远, 而优化结果更接近实验测量

值。HAB=5 mm 处值依旧受气体辐射噪声的影响，距离测量值较近。

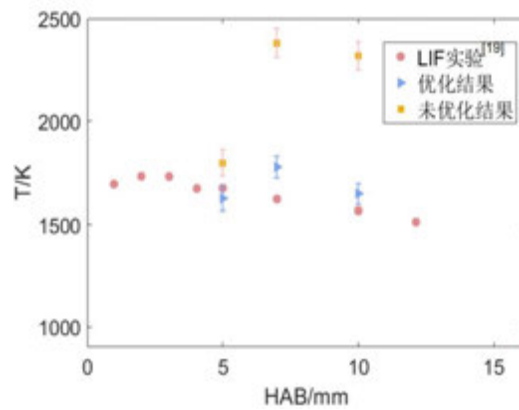


图 12 基于实验值模型选取波长 532 nm 和 750 nm 优化效果比较

Fig 12 Comparison of optimization effects based on experimental value model selecting wavelengths of 532 nm and 750 nm

为更好地分析优化后的效果，计算优化前后结果与 LIF 实验测量值^[19]的相对误差并做图进行比较，如图 13 所示。图中未优化结果与实验值的相对误差最高可达 50%，而优化后结果与实验值的相对误差最大不到 10%，降低了 40%的误差，优化效果良好。这是由于该火焰初生炭黑较多，导致炭黑复折射率与成熟炭黑复折射率差异较大，优化后炭黑复折射率更接近炭黑复折射率实际值，使得结果更加精确。复折射率与成熟炭黑复折射率差异如图 14 所示，复折射率实部和虚部与成熟炭黑复折射率差异均较大，虚部差异最为明显。因此选取成熟炭黑复折射率计算将导致较大误差，比色测温法模型亟需进行优化，以保证能准确研究火焰温度与炭黑生成间的关系，抑制炭黑生成。

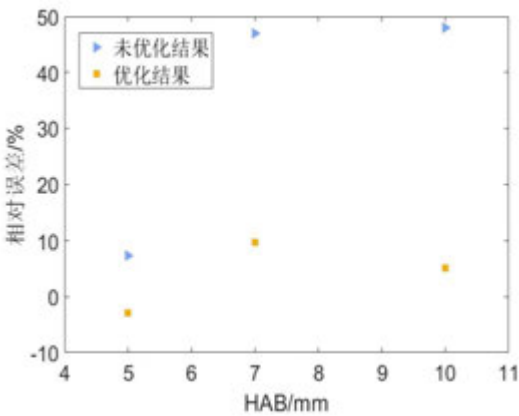


图 13 基于实验值模型优化方法优化前后相对误差比较

Fig 13 Comparison of relative errors before and after optimization based on experimental value model optimization method

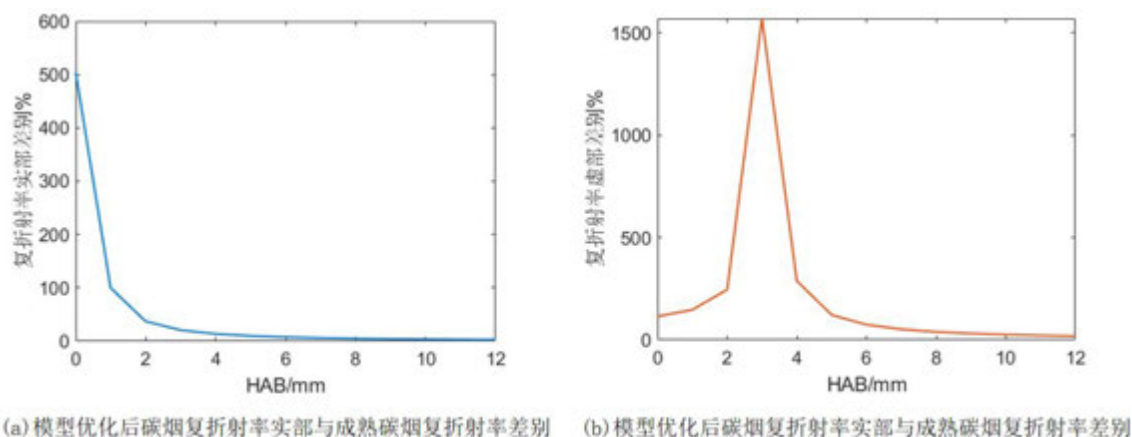


图 14 小粒径火焰炭黑复折射率实虚部修正前后差别

Fig 14 Differences in the real and imaginary parts of the complex refractive index of small particle flame soot before and after correction

4. 结论

本文将炭黑粒径作为炭黑成熟情况的实际标度,以光学带隙作为中间桥梁构建炭黑粒径与复折射率间关系,建立波长范围为 200 nm-1400 nm 的粒径与复折射率间关系式。分别比较研究基于经验公式的模型优化方法以及基于实验值的模型优化方法的优化效果。研究发现与传统比色测温法相比,采用经验公式优化模型将结果的相对误差降低了 5%左右,采用实验值优化模型测温结果的相对误差从 50%降低到 10%以内。并且两种方式的传统比色测温法结果与实验值的相对误差均在 20%到 50%区间内。这表明第二种方法优化效果良好且比色测温法基于复折射率的尺度效应进行优化十分必要。

同时,本文提供的复折射率计算方法具有降低实验次数、提高测量精度的优点,为其他光学诊断技术的光学模型优化提供了思路。

参考文献

- [1] Michelsen H A. Probing soot formation, chemical and physical evolution, and oxidation:A review of in situ diagnostic techniques and needs [J]. Proceedings of the Combustion Institute. 2017, 36(1): 717-735.
- [2] Raman V, Fox R O. Modeling of fine-particle formation in turbulent flames[J]. Annual Review of Fluid Mechanics, 2016, 48: 159-190.
- [3] Mansurov Z A. Formation of PAH and soot in rich hydrocarbon flames[J]. Combust. Explo. Shock Waves, 2005, 41(6): 727.
- [4] Homann K H, Wagner H G. Some new aspects of the mechanism of carbon formation in premixed flames[C]. Symposium (International) on Combustion. Elsevier, 1967, 11(1): 371-379.
- [5] Stein S E, Fahr A. High-temperature stabilities of hydrocarbons[J]. The Journal of Physical Chemistry, 1985, 89(17): 3714-3725.
- [6] Richter H, Howard J B. Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their growth to soot—a review of chemical reaction pathways[J]. Progress in Energy and Combustion science, 2000, 26(4-6): 565-608.

- [7] Howard J B. Carbon addition and oxidation reactions in heterogeneous combustion and soot formation[C]. Symposium (International) on Combustion. Elsevier, 1991, 23(1): 1107-1127.
- [8] Frenklach M. Reaction mechanism of soot formation in flames[J]. Physical chemistry chemical Physics, 2002, 4(11): 2028-2037.
- [9] Zhou Y, Wang M, He Q, et al. Experimental investigation on the size-dependent maturity of soot particles in laminar premixed ethylene burner-stabilized stagnation flames[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2022.
- [10] 万倪. 基于光谱法与比色测温技术的火焰温度与碳黑浓度分布检测与数值模拟[D].华北电力大学(北京),2022.
Wan Ni Detection and numerical simulation of flame temperature and carbon black concentration distribution based on spectral method and colorimetric temperature measurement technology [D]. North China Electric Power University (Beijing), 2022
- [11] Wan K, Shi X, Wang H. Quantum confinement and size resolved modeling of electronic and optical properties of small soot particles[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2021, 38(1): 1517-1524.
- [12] Wang H. Formation of nascent soot and other condensed-phase materials in flames[J]. Proceedings of the Combustion institute, 2011, 33(1): 41-67.
- [13] 殷金英. 粒子光学常数的尺寸效应[D]. 哈尔滨工业大学, 2006.
Yin Jinying. Size effect of particle optical constant[D]. Harbin Institute of Technology, 2006.
- [14] Kelesidis G A, Bruun C A, Pratsinis S E. The impact of organic carbon on soot light absorption[J]. Carbon, 2021, 172: 742-749.
- [15] Escudero. F, Cruz. Juan, Verdugo. Ignacio, et al. Effect of maturity on soot volume fraction measurements using the AC-LII technique in a laminar coflow ethylene diffusion flame[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2022, 14:28.
- [16] Corbin J C, Johnson T J, Liu F, et al. Size-dependent mass absorption cross-section of soot particles from various sources[J]. Carbon, 2022, 192: 438-451.
- [17] Michelsen H A. Effects of maturity and temperature on soot density and specific heat[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2021, 38(1): 1197-1205.
- [18] Kelesidis G A, Pratsinis S E. Soot light absorption and refractive index during agglomeration and surface growth[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2019, 37(1): 1177-1184.
- [19] Betrancourt C, Aubagnac-Karkar D, Mercier X, et al. Experimental and numerical investigation of the transition from non sooting to sooting premixed n-butane flames, encompassing the nucleation flame conditions[J]. Combustion and Flame, 2022, 243: 112172.
- [20] 曾志斌. 基于火焰图像求取温度场的双色法测温系统设计[D]. 华中科技大学, 2013.
ZENG Zhibin. Design of two-color temperature measurement system based on temperature field obtained by flame image[D]. Huazhong University of Science and Technology, 2013.
- [21] Michelsen H A, Liu F, Kock B F, et al. Modeling laser-induced incandescence of soot: a summary and comparison of LII models[J]. Applied physics B, 2007, 87: 503-521.
- [22] Chang H, Charalampopoulos T T. Determination of the wavelength dependence of refractive indices of flame soot[J]. Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical and Physical Sciences, 1990, 430(1880): 577-591.
- [23] Liu C, Wan K, Singh A V, et al. Ionization energy of flame-synthesized carbon nanoparticles[C]. 10th US National combustion meeting of the eastern states section of the combustion institute. 2017: 23-26.
- [24] Zangmeister, Christopher, D, et al. Packing density of rigid aggregates is independent of scale.[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2014.
- [25] Moulin F, Devel M, Picaud S. Optical properties of soot nanoparticles[J]. Journal of Quantitative

Spectroscopy and Radiative Transfer, 2008, 109(10): 1791–1801.

基于石墨烯-碳化硅光栅错位异质结的近场 辐射换热研究[—]

[—] 基金项目：国家自然科学基金（No. U22A20210）

崔贵成，周承隆，张勇，易红亮

(哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院，黑龙江 哈尔滨 150001)

(Tel: 0451-86412674, Email: yihongliang@hit.edu.cn)

摘要：由于倏逝波的贡献，近场辐射换热可以超过相同温度下黑体辐射的几个数量级。其中一维光栅为代表的微纳米表面在近场辐射换热领域具有相当的应用潜力。本文研究了由碳化硅光栅和石墨烯构成的错位双层异质结之间的近场辐射传热。利用严格耦合波分析法分析了异质结的近场辐射性能，结果表明：当碳化硅光栅被石墨烯覆盖时，由于石墨烯激发了表面等离激元，异质结之间的近场辐射热流得到有效增强；双层异质结比单层异质结具有更好的性能，尤其当上层光栅与下层光栅发生错位时，下层石墨烯的表面等离激元得以激发，有效弥补了光谱特性的缺陷；不同层次石墨烯费米能级的改变可以有效调控辐射热流，这一调控手段与错位光栅相结合为精准控制近场辐射带来了多样性。

关键词：近场辐射传热；错位双层异质结；表面等离激元；石墨烯调控

0 前言

辐射换热作为经典的换热方式，通常由普朗克定律来描述。然而，近年来近场辐射传热(NFRHT)的提出，打破了传统的黑体辐射极限。当热源与热沉的间距接近或小于辐射特征波长时，倏逝波的隧穿为传热提供了额外的辐射通道，目标之间的辐射热通量将会超过两个黑体在相同温度下几个数量级^[1,2]。这种特性在近场热光伏、近场辐射热整流器、近场热存储器、局部加热或冷却技术等方面有着广泛应用^[3-5]。

为了更好地实现近场辐射的应用，人们不断地探索改善 NFRHT 的方法。当前，不同材料在近场辐射中表现出的优异特性得到了大量关注。例如掺杂硅表面^[6,9]，SiC 等极性材料^[7,8]，以及金属^[10,11]。此外，具有光学各向异性的双曲材料如 hBN 和 MoO₃，由于其独特的双曲模式，在近场辐射中同样能够产生巨大热流^[12,13]。此外，提升 NFRHT 的另一种有效途径是利用微结构表面代替传统的光滑平板结构。例如纳米多层、纳米线、纳米孔、光栅为代表的微纳米表面结构是实现大热流的突出模型^[14-16]。然而单一材料的光栅结构在强化 NFRHT 中具有相当大的局限性，而二维材料和光栅的组合似乎是进一步增强热流的一种潜在方法^[17,18]。其中以石墨烯为代表的二维材料覆盖在光栅上时，由石墨烯激发的表面等离激元(SPPs)可以与表面声子激元(SPhPs)或磁极化(MPs)耦合，可以支持更大横向波矢的光子跃迁^[19,33]。同时，当此类异质结扩展为双层甚至多层时，多种表面态的耦合也会促使巨大的传热增强。

此前关于碳化硅光栅的研究已经表明，在频率 $1.5-1.8 \times 10^{14}$ rad/s 区间能够激发 SPhPs，具有窄带的特性^[20]。因此，为了拓宽辐射光谱，本文提出了一种由石墨烯和碳化硅光栅组成的异质结构，并基于涨落电动力学结合严格耦合波分析法研究了该模型的近场辐射问题。通过对比异质结与纯光栅的性能，本文确定了石墨烯能够有效增强低频段的近场辐射。此外，本文还提出了错位双层异质结的模型来弥补光谱特性缺陷，即双层结构中的上、下层光栅位置发生相对错位时，石墨烯 SPPs 会对光子传递系数的分布产生影响。因此，错位结构对 NFRHT 增强的作用机理是本文讨论的重点。最后，本文还讨论了费米能级的变化对近场辐射的影响，总结了石墨烯动态调控辐射换热的基本规律。

1 理论计算模型

本文考虑了两个平行的石墨烯-碳化硅光栅异质结 G/SiC 的近场辐射传热问题，如图 1 所示。光栅周期、深度和脊宽度分别表示为 $L_x = 200$ nm，和 $w = h = 40$ nm，因此光栅填充比为 $f = w/L_x = 0.2$ 。此外，发射端和接收端被间距为 $d = 100$ nm 的真空分离。基于单层异质

结 1-G/SiC，本文还提出了双层异质结 2-G/SiC 和错位双层异质结如图 1(b-c)所示。其中针对 SiC 的介电常数可由 Lorentz 模型描述^[21]：

$$\varepsilon_{\text{SiC}}(\omega) = \varepsilon_{\infty} \frac{(\omega^2 - \omega_{LO}^2 + i\Gamma\omega)}{(\omega^2 - \omega_{TO}^2 + i\Gamma\omega)} \quad (1)$$

其中， $\varepsilon_{\infty} = 6.7$ 是高频介电常数， $\omega_{LO} = 1.827 \times 10^{14} \text{ rad}\cdot\text{s}^{-1}$ ， $\omega_{TO} = 1.495 \times 10^{14} \text{ rad}\cdot\text{s}^{-1}$ ，分别是横向和纵向光学声子频率， $\Gamma = 0.9 \times 10^{12} \text{ rad}\cdot\text{s}^{-1}$ 是阻尼因子。在本文，石墨烯可以被看作一个厚度仅有 0.34 nm 的薄层，其介电函数可以表示为^[22,23]：

$$\varepsilon_{\text{graphene}}(\omega) = 1 + \frac{i\sigma}{\omega t_g \varepsilon_0} \quad (2)$$

其中， ω 和 ε_0 分别是角频率和真空介电常数， σ 是石墨烯的电导率分为带内贡献和带间贡献^[24,25]。为了获得精确结果，本文利用散射矩阵理论来对一维周期光栅结构的近场辐射热流进行计算，并表示为^[26,27]：

$$Q_{\text{exact}} = \frac{1}{8\pi^3} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\pi/L_x}^{+\pi/L_x} \int_0^{+\infty} [\Theta(T_1, \omega) - \Theta(T_2, \omega)] \cdot \xi(\omega, k_x, k_y) d\omega dk_x dk_y \quad (3)$$

其中 $\Theta(T, \omega)$ 是普朗克谐振子， k_x 和 k_y 分别是 x 和 y 方向的波矢。值得注意的是，由于光栅结构种 k_x 被限制在第一布里渊区，所以其范围为 $-\pi/L_x < k_x < +\pi/L_x$ 。 $\xi(\omega, k_x, k_y)$ 是光子传递系数，通常被表示为^[28,29]：

$$\xi(\omega, k_x, k_y) = \text{Tr}(\mathbf{D} \mathbf{W}_1 \mathbf{D}^\dagger \mathbf{W}_2) \quad (4)$$

$$\mathbf{D} = (\mathbf{I} - \mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2)^{-1} \quad (5)$$

$$\mathbf{W}_1 = \sum_{-1}^{pw} -\mathbf{S}_1 \sum_{-1}^{pw} \mathbf{S}_1^\dagger + \mathbf{S}_1 \sum_{-1}^{ew} - \sum_{-1}^{ew} \mathbf{S}_1^\dagger \quad (6)$$

$$\mathbf{W}_2 = \sum_1^{pw} -\mathbf{S}_2^\dagger \sum_1^{pw} \mathbf{S}_2 + \mathbf{S}_2^\dagger \sum_1^{ew} - \sum_1^{ew} \mathbf{S}_2 \quad (7)$$

其中， Tr 表示矩阵的迹， $\mathbf{S}_1 = \mathbf{R}_1$ 和 $\mathbf{S}_2 = e^{ik_{z0}d} \mathbf{R}_1 e^{ik_{z0}d}$ ，这里 \mathbf{R}_1 和 \mathbf{R}_2 分别是由 RCWA 获得的发射端和吸收端的反射系数矩阵，且均为 $2(2N+1)$ 阶矩阵， N 为截断的衍射阶次^[30,31]。算符 $\sum_{l(-1)}^{pw(ew)} = 0.5k_{z0}^{l(-1)} \prod^{pw(ew)}$ 能够将传播波和倏逝波分开， k_{z0} 是真空中波矢的垂直分量， $\prod^{pw(ew)}$ 则可以表示为：

$$\prod_{\alpha\alpha'}^{pw} = \delta_{\alpha\alpha'} \left[1 + \text{sgn}(k_0^2 - k_{x,y}^2) \right] \quad (8a)$$

$$\prod_{\alpha\alpha'}^{ew} = \delta_{\alpha\alpha'} \left[1 - \text{sgn}(k_0^2 - k_{x,y}^2) \right] \quad (8b)$$

其中 $\delta_{\alpha\alpha}$ 是克罗内克算符， $\mathbf{k}_{x,y} = [k_x + (2\pi n / L_x)] \hat{x} + k_y \hat{y}$ 是面内横向波矢，这里 n 的范围在 $-N$ 到 N 之间，代表着第一布里渊区的范围，所以为了确保计算结果的准确性，本文将 N 设置为 101 作为截止阶次。

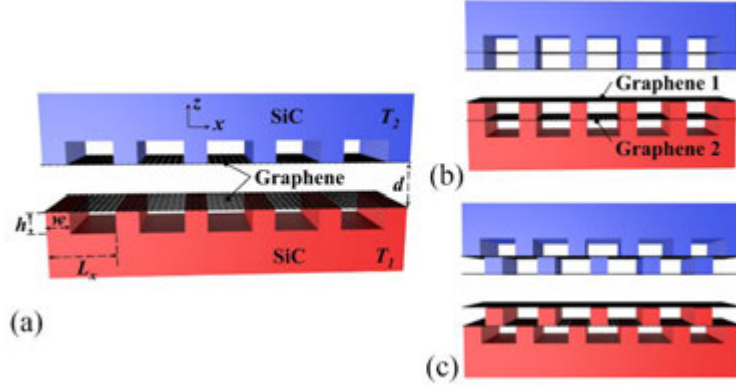


图 1 (a) 单层异质结 1-G/SiC; (b) 双层异质结 2-G/SiC; (c) 双层错位异质结

2 计算结果及分析

2.1 双层异质结在近场辐射中的优越性

为了便于讨论, 本文将第 1 节中设定的参数为默认值, 并且光栅的尺寸大小并不是本文研究的重点。值得注意的是, 根据维恩位移定律, 本文所设定温度的特征频率约为 1.1×10^{14} rad/s, 特征波长约为 $9.7 \mu\text{m}$ 。在验证错位双层异质结构的性能之前, 有必要对原始结构的 NFRHT 性能进行讨论, 以确保后续研究的可行性。

单层 SiC 光栅变化为双层异质结的过程本质上是石墨烯和光栅的交替堆叠, 因此本文应该考虑每层材料堆叠后的性能差异。为了便于说明, 图例中使用 1 和 2 分别表示单层和双层, 而石墨烯用 G 表示。值得注意的是, 2-G₂/SiC 表示只有 G2 存在于双层异质结中, 而 2-G/SiC 表示 G1 和 G2 同时存在。因此, 1-SiC、1-G/SiC、2-G₂/SiC 和 2-G/SiC 的光谱热通量和总热通量如图 2 所示。

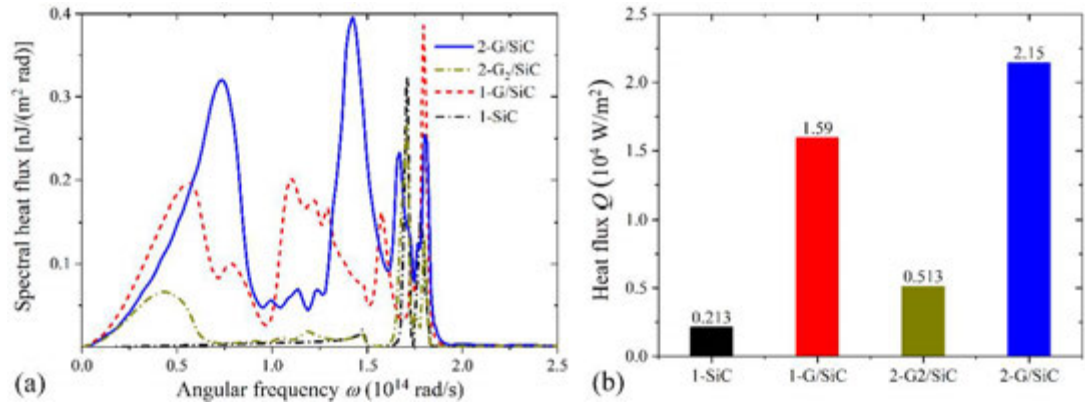


图 2 (a) 1-SiC, 1-G/SiC, 2-G₂/SiC, 2-G/SiC 的光谱热通量; (b) 1-SiC, 1-G/SiC, 2-G₂/SiC, 2-G/SiC 的总辐射热流

在图 2(a)中, 1-SiC 结构仅在 $1.5-1.8 \times 10^{14}$ rad/s 的窄频段表现出较高的光谱热通量, 并在 1.79×10^{14} rad/s 达到了极大值。这是因为 SiC 光栅激发的 SPhPs 只能在其本征声子频段响应。相比之下, 1-G/SiC 异质结则表现出辐射换热的大幅增强, 其增强范围在 $0.1-1.5 \times 10^{14}$ rad/s 之间, 特别是在 0.75×10^{14} rad/s 频率附近光谱热通量达到了 $0.2 \text{ nJ}/(\text{m}^2 \cdot \text{rad})$, 这表明石墨烯的引入会极大地影响辐射光谱。然而, 随着 SiC 光栅继续堆叠在 1-G/SiC 之上形成 2-G₂/SiC 后, 光谱热通量反而被显著抑制, 特别是先前在 0.4×10^{14} rad/s 峰值频率处, 光谱热通量仅仅达到了 $0.06 \text{ nJ}/(\text{m}^2 \cdot \text{rad})$ 。在其他频段其性能表现与 1-SiC 相同。这说明叠加的

SiC 光栅覆盖在石墨烯表面会抑制 SPPs 的激发, 使得 NFRHT 被严重削弱。所以只有再次覆盖石墨烯形成 2-G/SiC 异质结之后, 才会恢复较强的性能。这使得在双层异质结在 0.75×10^{14} rad/s 和 1.4×10^{14} rad/s 两个频率处出现了热通量极大值, 分别为 0.35 nJ/(m²·rad)和 0.42 nJ/(m²·rad)。同时, 光谱热通量曲线在 0.9 - 1.3×10^{14} rad/s 之间有一个明显的波谷, 其特性与 1-G/SiC 结构相反, 这里出现了光谱特性的缺陷。

根据公式(3), 总热通量可以通过对光谱热通量进行积分得到, 如图 2(b)所示。1-SiC 的总热通量为 0.213×10^4 W/m², 其他三种结构的总热通量分别为 1.59×10^4 W/m², 0.513×10^4 W/m², 和 2.15×10^4 W/m²。显然, 与 1-SiC 相比, 1-G/SiC 的辐射热流有着明显的增强, 表明引入石墨烯是强化单一光栅性能的有效途径。另一方面, 2-G2/SiC 的热通量则显著降低, 只有同时加入光栅和石墨烯构成完美双层异质结才能具备良好的性能。为了探究双层异质结性能突出的原因, 本文得到了光子传递系数关于横向波矢 k_x 和角频率 ω 的等值线图, 如图 3 所示。

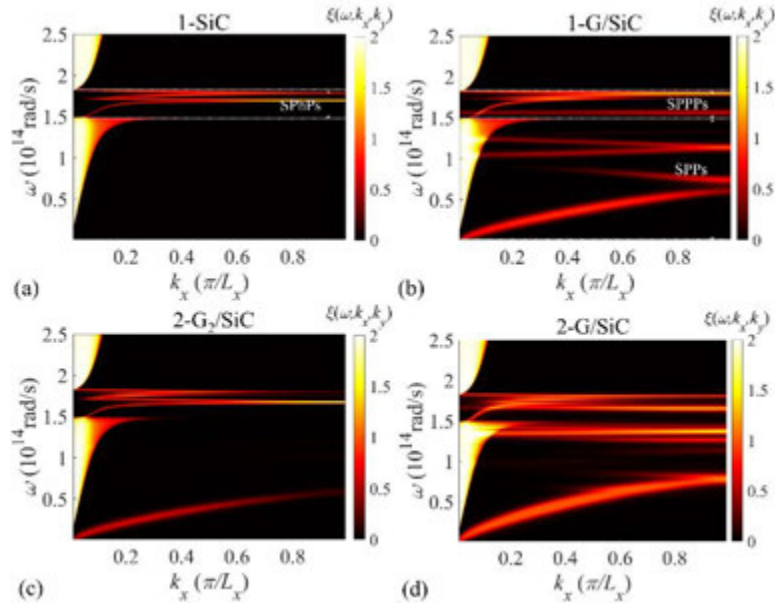


图 3 光子传递系数等值线图: (a) 1-SiC; (b) 1-G/SiC; (c) 2-G₁/SiC; (d) 2-G₂/SiC

图 3(a)和(b)比较了 1-SiC 和 1-G/SiC 的能量传输系数分布。在 0.1 - 1.5×10^{14} rad/s 和 1.8 - 2.5×10^{14} rad/s 两个频率范围内, 低波矢空间出现明亮的光锥, 表示传播波的传输系数达到了最大, 这是同时包含了 s 波和 p 波的贡献。图 3(a)中, 纯 SiC 光栅只能在本征声子频段内激发表面声子激元, 所以光子传递系数在 1.5 - 1.8×10^{14} rad/s 区间具有较大的横向波矢延申。然而图 3(b)中 0.1 - 1.8×10^{14} rad/s 的频段内, 光子传递系数在大波矢空间出现多条明细的亮带, 这是石墨烯激发的表面等离激元使得更低频率的光子得以隧穿, 并主导了近场辐射中大部分传热。并且亮带在波矢最大处对应的频率正好与光谱热通量峰值频率重合, 表明了光子传递系数可以很好地预测热通量曲线。此外, SPPs 还可以与 SPhPs 杂化形成表面等离-声子激元 (SPPPs), 进一步影响声子带内的光子传递分布^[12]。另一方面, 2-G₂/SiC 的光子传递系数分布与 1-SiC 相似, 唯一的区别是 G₂ 诱导的 SPPs 亮带位于 0.1 - 0.6×10^{14} rad/s 频段内。而在图 3(d)中, 石墨烯介导 SPPs 的亮带变宽, 可以有效解释 2-G/SiC 的光谱热通量峰值几乎是 1-G/SiC 峰值的两倍。

2.2 错位双层异质结性能增强及其物理机制

如 2.1 节所述，本文已经确认双层异质结在 NFRHT 上的性能优于单层异质结。特别是石墨烯激发的 SPPs 对低频段光谱热通量的增加起到主导作用。然而，双层异质结的光子传递系数在 $0.9\text{-}1.3 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ 分布不足导致明显的热通量衰减，使得结构的光谱特性出现了固有缺陷。因此，本文提出了错位双层异质结的概念来提高 NFRHT 的性能^[32]。如图 4(a)所示，上层光栅相对于下层光栅产生了位置上的相对偏移，错位程度被设定为 δ ，而根据光栅结构的对称性， δ 的最大值为半个周期。图 4(b)表示 δ 分别从 $0L_x$ 增加到 $0.5L_x$ 时的光谱热通量曲线。显然，热通量在 $0.75\text{-}1.3 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ 频段内随着 δ 的增加而增加，峰值能够达到 $0.37 \text{ nJ}/(\text{m}^2 \cdot \text{rad})$ 附近，并伴随着谐振峰向低频方向移动。在 $1.4\text{-}1.55 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ 的频段内，热通量峰值却随 δ 的增加而逐渐减小，谐振峰向高频轻微偏移。因此，当上下光栅发生错位时， δ 会对热通量产生明显影响。特别是特征频率附近的辐射热流缺陷得到了有效的弥补。为了探索错位双层异质结之间存在性能差异的原因，本文计算了不同 δ 下的光子传递系数分布如图 5 所示。

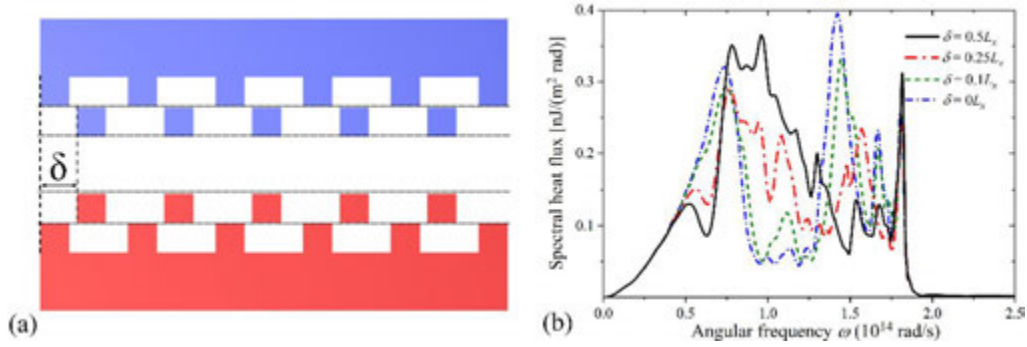


图 4 (a) 错位双层异质结示意图；(b) 不同错位量 δ 条件下异质结的光谱热通量

不同 δ 下双层异质结计算得到的光子传递系数分布有明显区别。当 $\delta = 0.1L_x$ 时， ξ 并没有预期中的出现更多的光子隧穿。这是因为此时上层光栅并没有完全偏离底层光栅，光栅之间仍然存在重叠的部分。然而当 $\delta = 0.25L_x$ 时， ξ 在 $0.75\text{-}1.5 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ 频率范围内延伸出更多的亮带。这些亮带稀疏地分布在中频范围内，且数值小于 1。当 $\delta = 0.5L_x$ 时，这些亮带分支逐渐合并， ξ 在 $1.1 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ 附近达到最大值，意味着错位异质结在连续频谱中发生了更多的光子隧穿。错位不仅影响石墨烯 SPPs 的光谱响应，还影响由 SPPs 支持的光子隧穿。比较四张等高线图可以看出，在对应 SiC 本征声子频率处，光子传递系数能够扩展到在最大横向波矢。然而在 $1.65 \times 10^{14} \text{ rad/s}$ 频率附近的亮带却是随着 δ 的增大而向低频处移动。因此，错位量 δ 对 SPPs 和 SPPs 的光子分支具有修饰作用，使得辐射光谱得以连续，弥补了双层异质结中光谱特性的缺陷^[34]。

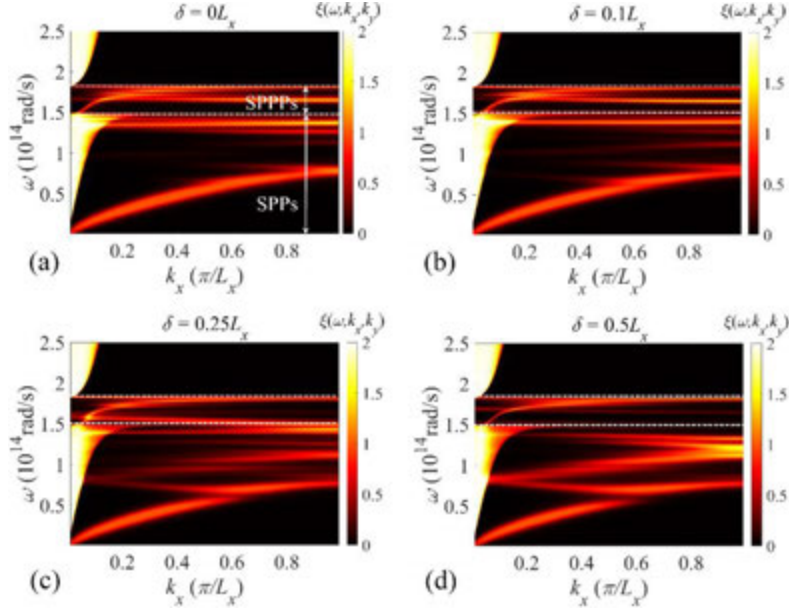


图 5 不同错位量 δ 下双层异质结的光子传递系数: (a) $\delta = 0L_x$; (b) $\delta = 0.1L_x$; (c) $\delta = 0.25L_x$; (d) $\delta = 0.5L_x$

为了进一步证明和理解其中的物理机制, 本文利用时域有限差分法(FDTD)对非错位异质结和错位异质结的电磁场分布进行了计算, 如图 6、7 所示。这里边界条件被设置为完全匹配层(PML)。由于 p 极化波的主要贡献, 布置在发射体的电偶极子光源在 xz 平面振荡。本文设置电偶极子光源位于光栅表面以下 2nm 处, 同时相邻光源之间间距也为 2nm。图 6(a-b) 比较了非错位异质结与错位异质结分别在 $\omega = 1.0 \times 10^{14}$ rad/s 频率下电场密度分布。图(a)中电场的增强主要集中在上层光栅和 G1 界面处, 而图(b)的电场则集中在 G2 与光栅的交界面处。这是因为由石墨烯介导的 SPPs 是一种分布在石墨烯与介质交界面的表面模式, 非错位异质结中的 SPPs 只能在 G1 表面传播, 当光栅发生错位时, G2 与上下两层光栅的交界面则暴露在真空中, 提供了传播 SPPs 的有利条件。根据石墨烯的场局域性强的特点, 在 G2 的界面就会出现电场连续的现象。图 7 则是两种结构在 $\omega = 1.79 \times 10^{14}$ rad/s 下磁场密度分布。图(a)中的磁场主要限制在下层光栅表面, 而图(b)中的磁场则同时分布在上层和下层光栅表面。这说明在本征声子频率的激发下, 磁场沿着真空与 SiC 光栅界面传输, 这正是 SPPs 的典型分布特征。错位异质结中上层光栅的贡献使得近场辐射热流进一步提高。

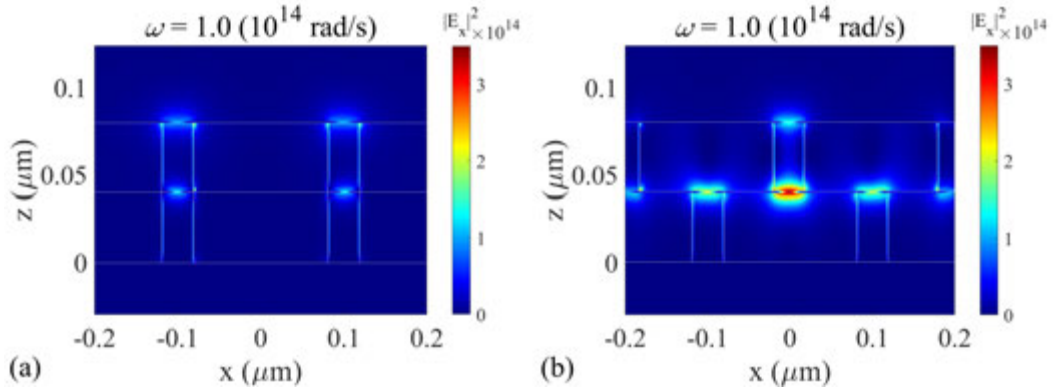


图 6 在频率 $\omega = 1.0 \times 10^{14}$ rad/s 下的电场分布: (a) 非错位异质结; (b) 错位异质结

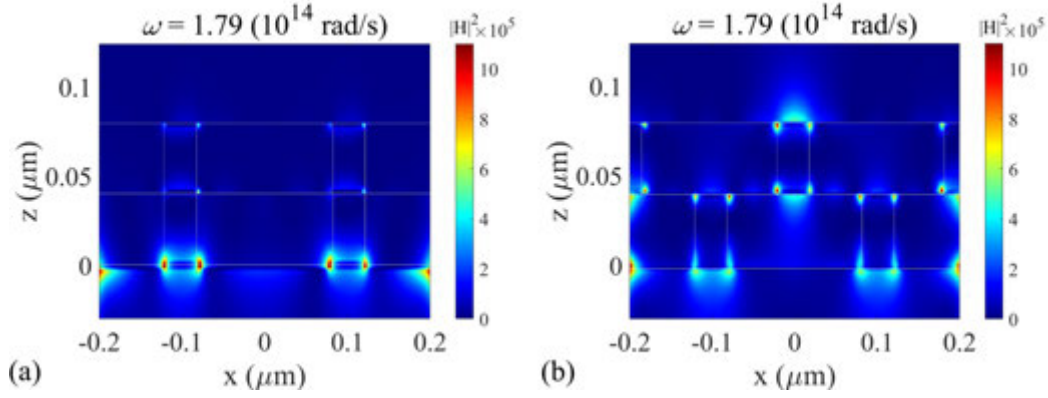


图 7 在频率 $\omega = 1.79 \times 10^{14}$ rad/s 下的磁场分布: (a) 非错位异质结; (b) 错位异质结

为了进一步讨论错位异质结之间存在的性能差异,图 8 计算了总热通量随真空间距变化的曲线。当 d 从 50 nm 逐渐增加到 1 μm 过程中,全部的热通量呈现指数型的下降。在单层结构中,1-G/SiC 比 1-SiC 具有更大的热流量,这在前文已经得到证实。而双层异质结的曲线则由实线表示。当 δ 从 $0L_x$ 增大到 $0.5L_x$ 的过程中,双层异质结的热通量也在逐渐增大。尤其是在真空间距小于 0.3 μm 条件下,热通量的增强效果显著;当间距大于 0.3 μm 后,双层异质结的总热通量与 1-SiC 相当,错位量 δ 产生的影响明显减弱。根据等效介质理论,在光栅周期远小于近场间距情况下,光栅结构可以近似成均匀的各向异性单轴薄膜^[35]。而错位异质结中仅仅是使上下两层光栅发生位置上的相对偏移,光栅的占空比却并没有改变,也就意味着当上下两层近似成薄膜时,两者的介电常数没有差异。因此,由 EMT 计算得到的结果与非错位双层异质结的结果相接近,无法体现 δ 这一特性变化产生的差异。

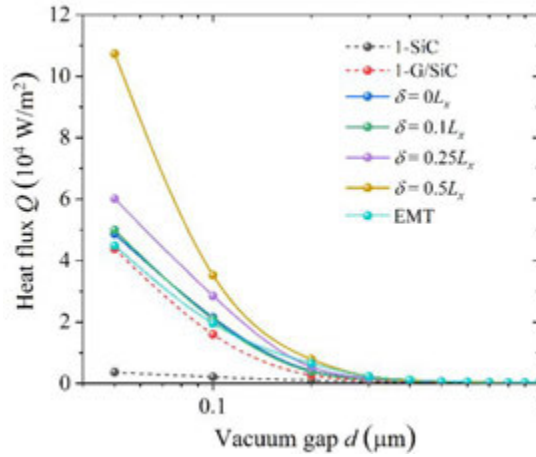


图 8 不同结构异质结的近场辐射总热通量随间距的变化

2.3 石墨烯对近场辐射换热的动态调控

由于石墨烯可以通过改变其费米能级来实现光学性质的调控,这使得双层异质结动态调控 NFRHT 具有了可能性。图 9 绘制了错位双层异质结的总热通量 Q 关于 μ_1 、 μ_2 的分布云图。从图中可以看到,当 μ_1 从 0.1eV 增大到 0.2eV 时,辐射热流量达到峰值,而随着 μ_1 的进一步增大,热流逐渐降低。然而当只增加 μ_2 时,热流量则是单调递减,从整体上看,增大费米能级会对能量传输起到抑制作用。值得注意的是,由 μ_2 引起的热流下降相比 μ_1 具有更慢的降低速度。这是因为 μ_1 在近场辐射换热中,对热流的传输起主导作用,而 μ_2 则是弥补辐射热流中的不足,对光谱特性起到修饰作用。

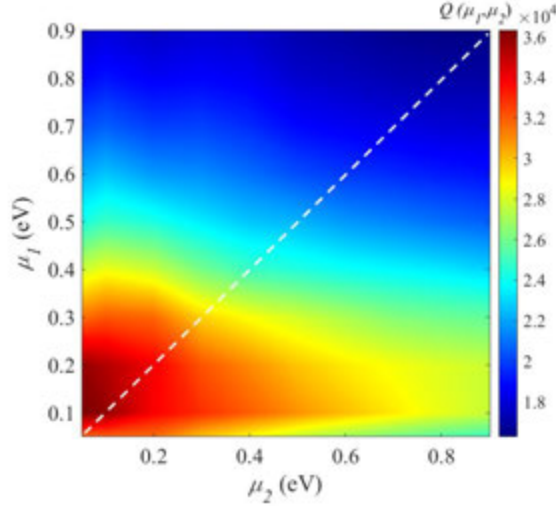


图9 总辐射热通量随费米能级 μ_1 和 μ_2 的变化

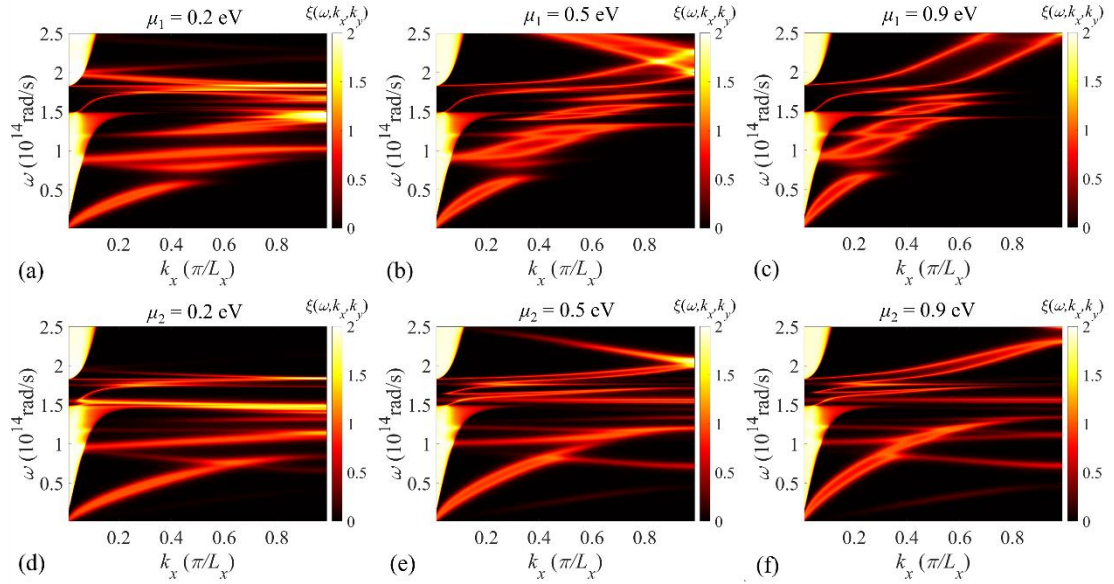


图10 光子传递系数随费米能级的变化: (a) $\mu_1 = 0.2\text{eV}$; (b) $\mu_1 = 0.5\text{eV}$; (c) $\mu_1 = 0.9\text{eV}$; (d) $\mu_2 = 0.2\text{eV}$; (e) $\mu_2 = 0.5\text{eV}$; (f) $\mu_2 = 0.9\text{eV}$;

为了进一步解释不同费米能级下石墨烯对 NFRHT 的影响, 本文计算了 ξ 的分布如图 10 所示。图(a-c)显示: 当 μ_1 从 0.2eV 增大到 0.9eV 时, 在中低频率范围内, 由 G1 产生的 SPPs 亮带逐渐从大波矢模式退化至小波矢模式, 并且 ξ 的数值也发生相应的降低。另外在 SiC 本征声子的频段内, μ_1 的变化破坏了 SPPs 的耦合模式, 使得 SPPs 向更高频的方向延申。因此, μ_1 的增大将深刻影响 ξ 的分布, 这预测了图 9 中辐射热流的降低。而图(d-f)显示与 G1 不同的是, μ_2 在增大的过程中对中低频率范围的 ξ 影响较明显, 尤其是光谱特性缺陷的频段, 由 SPPs 主导的亮带分支随着 μ_2 的增大发生合并, 同样抑制了 ξ 向大波矢方向的延申。这一现象很好地吻合了热流变化的规律。

3 结论

本文从理论上研究了 SiC 光栅和石墨烯构成的异质结之间的近场辐射换热问题。首先对比了单层异质结和双层异质结的性能差异, 探索了石墨烯的强化作用; 其次提出了错位双层

异质结的模型,计算了不同错位量条件下异质结的光谱辐射热通量,以及电磁场分布,分析了错位因素影响近场辐射的物理机制;最后研究了石墨烯对近场辐射的调控作用。结果表明:

当 SiC 光栅被石墨烯覆盖后,形成的异质结相比于纯 SiC 光栅光谱热通量得到了明显的拓宽,尤其是在低于 SiC 声子频段的范围。这是因为石墨烯激发的 SPPs 可以为中低频率范围内的光子提供隧穿通道,加强了近场范围内光子的高效传递,使辐射热通量显著增强。然而仍然存在光谱热流不足的范围,产生了光谱特性缺陷。

而在双层异质结中,当上层光栅与下层光栅发生位置上的相对偏移时,即错位双层异质结,辐射热通量在光谱热流不足的频段得到了进一步增强,这是由于错位这一因素满足了下层石墨烯激发 SPPs 的条件,使更多不同能量的光子得以传递,有效弥补了非错位结构的光谱特性缺陷。且石墨烯激发的 SPPs 不仅能在中低频段强化近场辐射换热,还能够在 SiC 的声子频段与 SPhPs 杂化形成 SPPPs,这主导了高频范围的热通量。

根据石墨烯光学特性的可调性,当不同层石墨烯的费米能级单独改变时光谱热通量的变化存在一定的规律:增大费米能级时,异质结的热通量呈现降低的趋势,上层石墨烯对辐射光谱的调控起主导作用,而下层石墨烯则起到修饰作用。

因此,在光栅异质结中引入错位模型可以对辐射光谱进行弥补,并结合石墨烯动态调控的特性使得精准调控近场辐射换热成为可能。

4 参考文献

- [1] Polder, D., & Van Hove, M. Theory of Radiative Heat Transfer between Closely Spaced Bodies[J]. Physical Review B, 1971, 4(10), 3303–3314.
- [2] 陈勇. 微结构形貌对近场热辐射的作用机制[D].南京理工大学,2020.
- [3] Lim, M., Lee, S. S., & Lee, B. J. Effects of multilayered graphene on the performance of near-field thermophotovoltaic system at longer vacuum gap distances[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2017, 197, 84–94.
- [4] Watjen, J. I., Liu, X. L., Zhao, B., & Zhang, Z. M. A Computational Simulation of Using Tungsten Gratings in Near-Field Thermophotovoltaic Devices[J]. Journal of Heat Transfer, 2017, 139(5).
- [5] Jones, A. C., O'Callahan, B. T., Yang, H. U., & Raschke, M. B. The thermal near-field: Coherence, spectroscopy, heat-transfer, and optical forces[J]. Progress in Surface Science, 2013, 88(4), 349–392.
- [6] Rousseau, E., Laroche, M., & Greffet, J.-J. Radiative heat transfer at nanoscale mediated by surface plasmons for highly doped silicon[J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(23), 231913.
- [7] 徐德宇,赵军明,刘林华. 石墨烯/AZO/SiC 复合结构的近场辐射换热特性[J].工程热物理学报,2020,41(03):715-721.
- [8] Dyakov, S. A., Dai, J., Yan, M., & Qiu, M. Thermal radiation dynamics in two parallel plates: The role of near field[J]. Physical Review B, 2014, 90(4).
- [9] Wang, L. P., & Zhang, Z. M. Resonance transmission or absorption in deep gratings explained by magnetic polaritons[J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(11), 111904.
- [10] Chapuis, P.-O., Volz, S., Henkel, C., Joulain, K., & Greffet, J.-J. Effects of spatial dispersion in near-field radiative heat transfer between two parallel metallic surfaces[J]. Physical Review B, 2008, 77(3).
- [11] Guérout, R., Lussange, J., Rosa, F. S. S., Hugonin, J.-P., Dalvit, D. A. R., Greffet, J.-J., Lambrecht, A., & Reynaud, S. Enhanced radiative heat transfer between nanostructured gold plates[J]. Physical Review B, 2012, 85(18).
- [12] Zhao, B., Guizal, B., Zhang, Z. M., Fan, S., & Antezza, M. Near-field heat transfer between graphene/hBN multilayers[J]. Physical Review B, 2017, 95(24).
- [13] Wu, X., Fu, C., & Zhang, Z. M. Near-Field Radiative Heat Transfer Between Two α -MoO₃ Biaxial Crystals[J]. Journal of Heat Transfer, 2020, 142(7).
- [14] Dai, J., Ding, F., Bozhevolnyi, S. I., & Yan, M. Ultrabroadband super-Planckian radiative heat transfer with artificial continuum cavity states in patterned hyperbolic metamaterials[J]. Physical Review B, 2017, 95(24).
- [15] Biehs, S.-A., Tschikin, M., & Ben-Abdallah, P. Hyperbolic Metamaterials as an Analog of a Blackbody in the Near Field[J]. Physical Review Letters, 2012, 109(10).
- [16] Basu, S., Yang, Y., & Wang, L. Near-field radiative heat transfer between metamaterials coated with silicon carbide thin films[J]. Applied Physics Letters, 2015, 106(3), 033106.
- [17] Zheng, Z., Wang, A., & Xuan, Y. Spectral tuning of near-field radiative heat transfer by graphene-covered metasurfaces[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2018, 208, 86–95.
- [18] Xu, G., Sun, J., Mao, H., & Pan, T. Near-field radiative thermal rectification assisted by black phosphorus sheets[J]. International Journal of Thermal Sciences, 2020, 149, 106179.

- [19] Shi, K. Z., Bao, F. L., He, N., & He, S. L. Near-field heat transfer between graphene-Si grating heterostructures with multiple magnetic-polaritons coupling[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2019, 134, 1119–1126.
- [20] Yang, Y., Sabbaghi, P., & Wang, L. Effect of magnetic polaritons in SiC deep gratings on near-field radiative transfer[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2017, 108, 851–859.
- [21] Heavens, O. S. Handbook of Optical Constants of Solids II. *Journal of Modern Optics*, 1992, 39(1), 189–189.
- [22] Wang, A., Zheng, Z., & Xuan, Y. Near-field radiative thermal control with graphene covered on different materials[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2016, 180, 117–125.
- [23] 何明键. 基于石墨烯电磁调控的近场热辐射研究[D]. 哈尔滨工业大学, 2021.
- [24] Zare, S., Zeinali Tajani, B., & Edalatpour, S. Effect of nonlocal electrical conductivity on near-field radiative heat transfer between graphene sheets[J]. *Physical Review B*, 2022, 105(12).
- [25] Guérout, R., Lussange, J., Rosa, F. S. S., Hugonin, J.-P. ., Dalvit, D. A. R., Greffet, J.-J. ., ... Reynaud, S. Enhanced radiative heat transfer between nanostructured gold plates[J]. *Physical Review B*, 2012, 85(18).
- [26] Bimonte, G. Scattering approach to Casimir forces and radiative heat transfer for nanostructured surfaces out of thermal equilibrium[J]. *Physical Review A*, 2009, 80(4).
- [27] Liu, X. L., & Zhang, Z. M. Graphene-assisted near-field radiative heat transfer between corrugated polar materials[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(25), 251911.
- [28] Liu, X., Zhao, B., & Zhang, Z. M. Enhanced near-field thermal radiation and reduced Casimir stiction between doped-Si gratings[J]. *Physical Review A*, 2015, 91(6).
- [29] Fernández-Hurtado, V., García-Vidal, F. J., Fan, S., & Cuevas, J. C. Enhancing Near-Field Radiative Heat Transfer with Si-based Metasurfaces[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 118(20).
- [30] Messina, R., Noto, A., Guizal, B., & Antezza, M. Radiative heat transfer between metallic gratings using Fourier modal method with adaptive spatial resolution[J]. *Physical Review B*, 2017, 95(12).
- [31] Noto, A., Messina, R., Guizal, B., & Antezza, M. Casimir-Lifshitz force out of thermal equilibrium between dielectric gratings[J]. *Physical Review A*, 2014, 90(2).
- [32] Didari, A., & Mengüç, M. P. Near-field thermal radiation transfer by mesoporous metamaterials[J]. *Optics Express*, 2015, 23(19), A1253.
- [33] Messina, R., & Ben-Abdallah, P. Graphene-based photovoltaic cells for near-field thermal energy conversion[J]. *Scientific Reports*, 2013, 3(1).
- [34] Zhang, Y., Wang, C.-H., Yi, H.-L., & Tan, H.-P. Multiple surface plasmon polaritons mediated near-field radiative heat transfer between graphene/vacuum multilayers[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2018, 221, 138–146.
- [35] Liu, X. L., Zhang, R. Z., & Zhang, Z. M. Near-field radiative heat transfer with doped-silicon nanostructured metamaterials[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2014, 73, 389–398.