

综述与专论

DOI: 10.11949/0438-1157.20251378

气固系统中颗粒包覆均匀性数值模拟研究进展

兰蕊, 田宇, 刘荣正, 杨旭, 刘兵, 邵友林, 刘马林

(清华大学核能与新能源技术研究院, 北京 100084)

摘要: 颗粒包覆过程在药物制备、功能颗粒制备、核燃料颗粒制备等工业领域有着重要应用。颗粒包覆的均匀性是颗粒包覆过程优化控制的主要目的, 是一种包覆工艺成熟的主要标志。其一般包括两个主要方面, 即颗粒间包覆均匀性(inter-particle coating uniformity)和颗粒内包覆均匀性(intra-particle coating uniformity)。本文详细综述颗粒包覆均匀性的数值模拟方法, 对其发展历程和演化机理进行分析, 并给出未来发展的启示。在颗粒间均匀性数值模拟方面, 研究工作涵盖基于停留时间分布的统计模型、基于 Monte Carlo 方法描述的随机沉积模型、耦合流体力学与颗粒运动的 CFD-DEM 框架, 以及多尺度耦合等高保真模型, 这些方法旨在全面揭示包覆前体物质分布、混合特性与颗粒动力学对包覆均匀性的影响; 在颗粒内包覆均匀性数值模拟方面, 主要包括表面离散化模型、连续场模型、球谐函数模型及颗粒绑定型非均相包覆模型四类, 对比分析了其优缺点。颗粒内包覆均匀性是精细调节整体包覆质量的关键环节, 目前多是实验规律研究, 数学建模和机理研究还很不完善, 亟待深入。未来颗粒包覆均匀性数学模拟需要在精确性和复杂性之间取得平衡, 构建兼具可计算性与符合物理机制的多尺度耦合框架, 以更高效地支撑包覆工艺优化与揭示包覆机理。

关键词: 颗粒包覆; 数值模拟; 颗粒间均匀性; 颗粒内均匀性; 气固系统; 流体力学; 模型

中图分类号: TQ 018

文献标志码: A

文章编号: 0438-1157 (2026) 07-3712-18

Research progress in numerical simulation of particle coating uniformity
in gas-solid systems

LAN Rui, TIAN Yu, LIU Rongzheng, YANG Xu, LIU Bing, SHAO Youlin, LIU Malin

(Institute of Nuclear Energy and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: The particle coating process plays a significant role in various industrial applications, including drug preparation, functional particle preparation, and nuclear fuel particle preparation. The uniformity of particle coating is the primary objective in optimizing the coating process and a key indicator of the maturity of the coating technology. It generally involves two main aspects: inter-particle coating uniformity and intra-particle coating uniformity. Both aspects have been extensively studied in the literature through experimental and simulation research. This review provides a detailed overview of numerical simulation methods for particle coating uniformity, analyzes their development trajectory and underlying mechanisms, and offers insights into future development directions. In terms of inter-particle coating uniformity, four methods are developed: statistical models based on residence time distribution, random deposition models described by the Monte Carlo method, the CFD-DEM

收稿日期: 2025-12-08 修回日期: 2026-01-08

通信作者: 刘马林(1982—), 男, 博士, 教授, liumalin@tsinghua.edu.cn

第一作者: 兰蕊(2002—), 女, 硕士研究生, lanr24@mails.tsinghua.edu.cn

基金项目: 国家自然科学基金项目(22478220); 国家高层次人才计划(青年项目)(20224723061)

引用本文: 兰蕊, 田宇, 刘荣正, 杨旭, 刘兵, 邵友林, 刘马林. 气固系统中颗粒包覆均匀性数值模拟研究进展[J]. 化工学报, 2026, 77(7): 3712-3729

Citation: LAN Rui, TIAN Yu, LIU Rongzheng, YANG Xu, LIU Bing, SHAO Youlin, LIU Malin. Research progress in numerical simulation of particle coating uniformity in gas-solid systems[J]. CIESC Journal, 2026, 77(7): 3712-3729

framework coupling fluid dynamics and particle motion, and high-fidelity models involving multi-mechanism coupling. These methods aim to comprehensively reveal the effects of precursor material distribution, mixing characteristics, and particle dynamics on coating uniformity. In numerical simulations of intraparticle coating homogeneity, four main types have been identified: surface discretization models, continuous field models, spherical harmonic function models, and particle-bound heterogeneous coating models. Their advantages and disadvantages have been compared and analyzed. Intra-particle coating uniformity is a critical factor in determining overall coating quality precisely. Current research focuses on experimental studies predominantly, while mathematical modeling and mechanistic understanding remain underdeveloped. Future advancements in numerical simulations of coating uniformity should aim to balance computation precision and complexity, establishing a multi-scale coupled framework that integrates computational feasibility with physical fidelity, thereby providing more efficient support for coating process optimization and mechanism elucidation.

Keywords: particle coating; numerical simulation; inter-particle coating uniformity; intra-particle coating uniformity; gas-solid systems; fluid mechanics; model

引 言

颗粒包覆 (particle coating) 是指通过物理、化学或物理化学过程, 在固体颗粒表面沉积形成一层或多层连续、致密或多孔的功能性薄膜, 以实现表面性能调控或功能增强的技术过程^[1]。颗粒包覆通常发生于气固两相流体系中, 其本质是颗粒运动行为与包覆物质运输、沉积及固化过程之间的高度耦合。颗粒在流化、喷动或滚动状态下持续经历平移、旋转与碰撞运动, 从而不断改变其表面暴露区域与局部受力状态。与此同时, 包覆材料以液滴、蒸汽或反应前体的形式随气相输运并与颗粒表面发生接触, 经历润湿、铺展及固化等一系列动态过程, 最终形成连续或非连续的包覆层结构。包覆层可由聚合物、无机物或复合材料组成^[2], 其形成机理涉及流体动力学、传热传质、相变与界面黏附等多物理场的耦合^[3]。该过程已广泛应用于制药、化工、能源及材料工程等领域。通过包覆可有效调控颗粒的机械强度、化学稳定性、热稳定性及释放特性, 从而改善产品的流动性^[4]、分散性^[5]与贮存性能^[6]。如在制药工业领域, 包覆用于实现药物控释^[7]与气味掩蔽^[8]; 在化肥领域, 包覆可实现有效养分的缓释与环境友好^[9]; 在核燃料颗粒中, 如 TRISO (tri-structural isotropic) 型核燃料颗粒, 多层包覆结构用于约束核裂变产物并提升安全性^[10]。

根据包覆机理的不同, 颗粒包覆可分为液相包覆、气相包覆、固体粉末法包覆等。这种分类反映了不同包覆体系的包覆层制备机理。液相包覆 (如喷雾干燥、溶液沉积) 通过液态前体的沉积与干燥,

在颗粒表面形成包覆^[11]; 气相包覆 [如化学气相沉积 (chemical vapor deposition, CVD)、物理气相沉积 (physical vapor deposition, PVD)] 依靠气相反应或物理沉积生成致密薄膜^[12]; 固体粉末法包覆通常在无溶剂参与条件下, 通过机械能或热处理使得包覆材料在颗粒表面形成致密包覆层^[13]。其中, 典型的液相工艺如喷雾包覆, 因设备成熟、工艺可控而广泛应用于制药与功能颗粒制备领域^[14], 而流化床-化学气相沉积 (fluidized bed-chemical vapor deposition, FB-CVD) 技术凭借其优异的传热传质性能与良好的颗粒混合特性, 是制备高质量包覆颗粒的关键工艺之一^[15]。

包覆过程的复杂性不仅体现在复杂的气-液-固相互作用中^[16], 更体现在包覆形成过程中的结构演化与空间分布特征上。要实现理想的功能效果, 仅仅“形成包覆”还远远不够, 包覆层的均匀性往往是决定其在机械保护^[17]、扩散屏障^[18]与反应控制^[19]等方面能否发挥预期作用的关键因素。对于采用流化床工艺的包覆体系而言, 颗粒的无序流动与随机取向使得局部沉积量和包覆厚度不可避免地产生差异, 从而导致在多颗粒之间 (inter-particle) 以及单个颗粒表面 (intra-particle) 的包覆层厚度和性质的差异^[20]。这一问题在 TRISO 型颗粒的多层包覆过程中尤为突出, 直接影响反应堆裂变产物的释放^[21]与长期服役可靠性^[22]。因此, 如何实现包覆的均匀性已成为近年来在包覆工艺优化、模型建立与设备设计等研究中的核心问题。

对包覆过程及其均匀性特征的研究初期多以实验研究为主, 从宏观性能表征逐步发展至微观层

面的定量分析。如通过高速摄像^[23]、高分辨率成像^[24]以及表面光谱^[25]等手段,研究者能够动态捕捉包覆形成过程并定量化研究包覆均匀性的演化规律。然而实验往往难以全面揭示流场、颗粒运动与沉积行为间的多尺度耦合机制,从而有不少学者开始采用数值模拟的方法进行包覆均匀性研究。数值模拟可以获得反应器全面而详细的信息,逐渐成为深入解析包覆机理与预测包覆均匀性演化的重要途径,为工艺优化与实现包覆均匀性调控提供理论基础。

针对高度复杂的包覆过程,数值模拟模型的核心任务在于在可接受的计算成本内,对包覆形成的主导机制进行合理的物理抽象与模型化表征。现有建模思路从不同尺度出发,对颗粒运动、包覆物质沉积及包覆层生长过程进行不同程度的简化处理。例如,在群体尺度上,模型往往通过统计或平均化方法描述颗粒在反应器中的运动特征与停留时间分布,以间接表征包覆物质的累积过程;在单颗粒尺度上,则重点关注颗粒表面沉积行为与包覆层厚度分布的演化,将复杂的流动与沉积过程简化为几何或概率意义上的生长模型。然而,将复杂物理过程转化为可计算模型的理想化与抽象处理不可避免地引入了一系列假设与近似。一方面,为降低计算复杂度,模型中常忽略或弱化液滴动力学、局部再分布、颗粒变形及包覆层致密化等细节过程,使得模型在预测包覆均匀性时更多反映统计趋势而非瞬时物理行为;另一方面,不同尺度模型之间往往缺乏有效的信息传递机制,导致宏观流动状态与微观包覆结构之间的内在联系难以被准确刻画。因此,现有数值模拟方法在包覆均匀性研究中呈现出明显的“尺度依赖性”与“适用范围差异”:部分模型适于快速评估工艺参数对颗粒间包覆均匀性的影响,而另一些高保真模型则更侧重揭示单颗粒或颗粒内部包覆结构的形成机理,但计算代价较高。这种建模思路与局限性的并存,正是当前颗粒包覆均匀性数值模拟研究呈现多路径并行发展的根本原因,也为后续模型选择与发展方向提供了重要依据。

目前颗粒包覆过程均匀性数值模拟研究包括两个方面,即颗粒间包覆均匀性(inter-particle coating uniformity)和颗粒内包覆均匀性(intra-particle coating uniformity)。前者关注不同颗粒之间包覆质量或厚度的分布差异,通常反映有效物质分

布和宏观混合效应;后者则聚焦单个颗粒表面包覆层的空间分布与局部厚度、密度差异。针对颗粒间包覆均匀性,研究重点在于群体颗粒包覆厚度的统计差异及其演化规律,研究人员提出多种数值模拟方法,主要包括时间统计模型、基于随机沉积概率的Monte Carlo模型,以及计算流体力学-离散单元法耦合模型(computational fluid dynamics-discrete element method,CFD-DEM)等。颗粒内包覆均匀性数值模拟聚焦于单颗粒表面局部厚度的空间分布及其形成机制。目前文献中主要形成了四类建模思路:表面离散化模型(surface-discretization model)、连续场模型(continuous-field-based model)、球谐函数模型(spherical-harmonics-based models)、颗粒绑定型非均相包覆模型(particle-binding-type heterogeneous layer,PBT-HL)。

本文主要介绍颗粒包覆均匀性的数值模拟方法及研究进展。首先聚焦颗粒间包覆均匀性数值模拟,主要分为四类模拟方法描述其研究发展脉络,归纳主要建模思路;随后阐述颗粒内包覆均匀性数值模拟研究,分析文献中的代表性工作,探讨模型机理、数值方法及多物理场演化特征。在此基础上,系统比较两者的研究思路与挑战,总结现有模拟方法的适用范围与局限性,并展望颗粒包覆均匀性模拟的未来发展方向,为揭示包覆过程的多尺度协同机制及工艺优化提供参考。

1 包覆均匀性描述

1.1 颗粒间包覆均匀性

颗粒间包覆均匀性(inter-particle coating uniformity)是指在同一批次或同一包覆条件下,不同颗粒之间所得到的包覆层(如包覆层厚度、包覆层密度、包覆层覆盖率等)之间的差异或变异程度,如图1所示。理想情况下,各颗粒应获得相同(或接近)的包覆厚度,当各颗粒之间包覆差异较小时,称其具有良好的颗粒间均匀性。

1.2 颗粒内包覆均匀性

颗粒内包覆均匀性(intra-particle coating uniformity)是指在单颗粒表面不同位置上包覆层厚度、密度及各向异性度等性质的空间分布均匀程度^[27],如图2所示。它反映了同一颗粒表面局部厚度的变化幅度,描述单颗粒内包覆层的均匀性。当颗粒表面各区域包覆层厚度接近一致时,颗粒内均

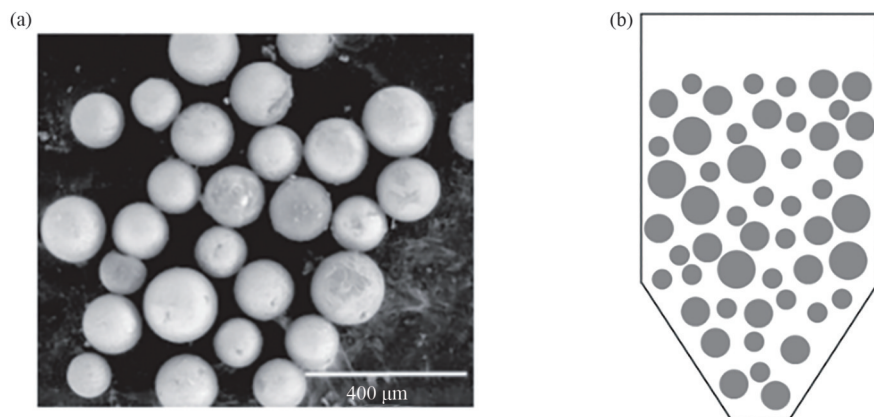


图1 颗粒间包覆非均匀性:(a) 聚合物球形颗粒的SEM图像^[26];(b) 通过颗粒尺寸分布描述非均匀性的示意图

Fig.1 Inter-particle coating non-uniformity: (a) SEM image of polymer spherical particles^[26]; (b) schematic diagram of non-uniformity characterized by particle size distribution

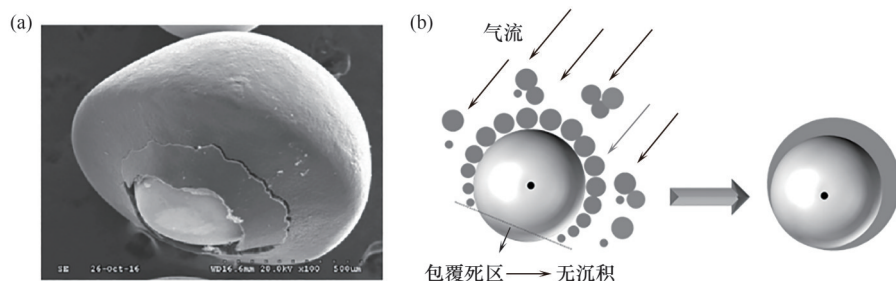


图2 颗粒内包覆非均匀性:(a) TRISO 燃料颗粒 SiC 层缺陷的 SEM 图像;(b) 通过颗粒表面局部包覆描述非均匀性的示意图

Fig.2 Intra-particle coating non-uniformity: (a) SEM image of defects in the SiC layer of a TRISO fuel particle; (b) schematic diagram of non-uniformity characterized by local coating features on the particle surface

均匀性较好;若存在明显的厚薄差异或局部裸露区,则说明包覆不均匀。

2 颗粒间包覆均匀性模拟

在颗粒间包覆均匀性数值模拟研究中,针对不同的工艺和颗粒特性,已有多种方法被提出并应用。本文将详细阐述四种主要的数值模拟方法:停留时间分布统计模型、Monte Carlo 模型、离散单元法模型以及多尺度耦合模型。图3展示了四类方法的概览。

2.1 停留时间分布统计模型

气固体系颗粒包覆过程中,获得尽可能均匀的包覆层厚度是多类工业应用中的共同目标。例如,在 TRISO 型核燃料颗粒 FB-CVD 包覆工艺研究中,包覆层厚度均匀性直接关系到堆工物理设计中的均匀化假设与安全裕度要求;而在喷雾干燥、药物包覆及化肥缓释等工艺中,包覆均匀性同样决定了产品性能的一致性与可控性。在典型的颗粒包覆过程中,颗粒轨迹差异^[28]、液滴沉积的随机性与遮蔽

效应^[29]、干燥速率不均^[30]以及液桥或固桥作用^[31],都会导致颗粒间包覆厚度差异,传统的反应器尺度宏观指标(如物质转移率、产率)无法反映颗粒尺度的不均匀性。

在喷动床、流化床及其复合形式的喷动-流化床体系中,颗粒流动结构可划分为两个区域:一是位于气体入口上方的“活跃喷动区(active coating area)”,也称有效区,该区域内颗粒迅速循环并暴露于喷雾或气相沉积介质中,是包覆层形成的主要贡献区;二是其余部分的“非活跃区(non-active coating area)”,其中颗粒主要以均匀混合与循环迁移为主,较少直接参与沉积过程。Choi 等^[32]的研究验证了这一区域划分在理解颗粒运动与包覆分布中的重要性,并将其作为包覆均匀性建模与工艺优化的基础。

颗粒在流动过程中会反复循环“活跃喷动区”,不同颗粒在该区域内经历的进入次数、单次停留时间及其累积暴露时间均存在显著差异。因此,以颗粒在“活跃喷动区”内的停留时间为统计对象的停

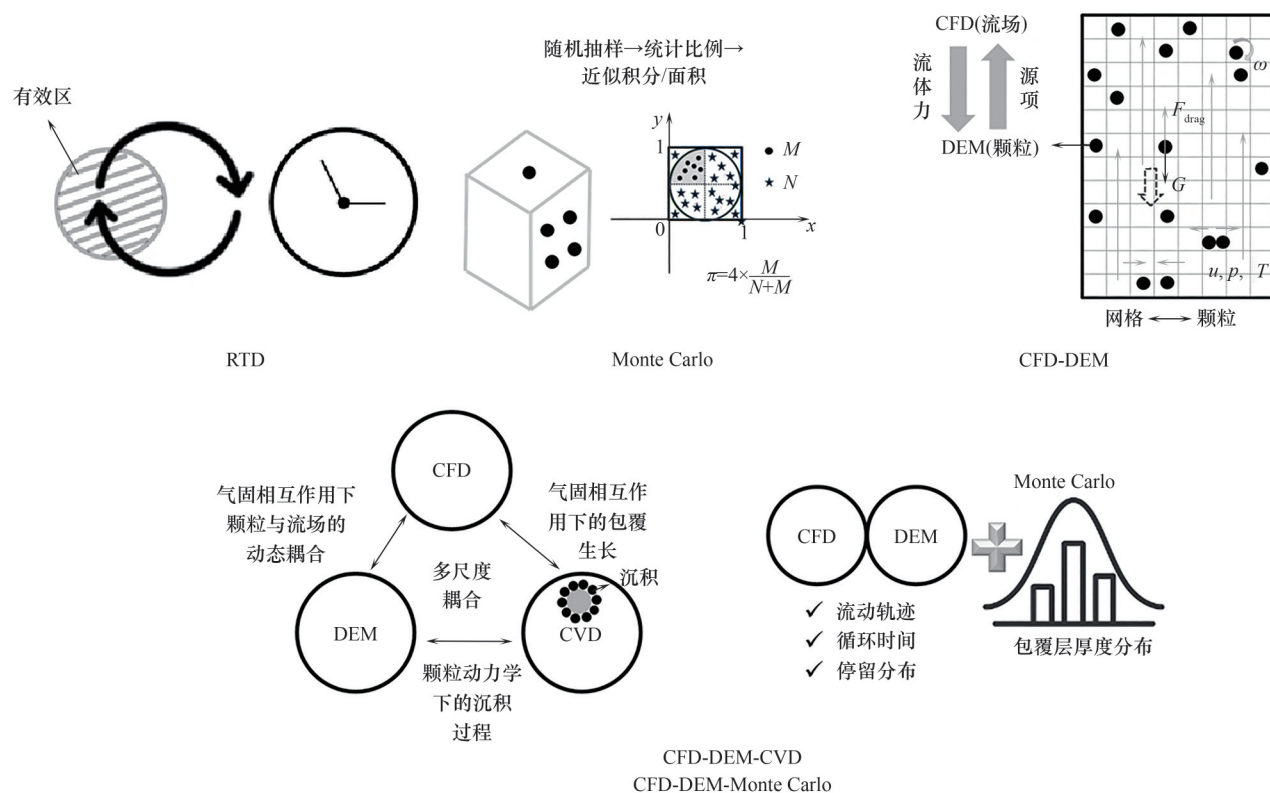


图3 四种颗粒间包覆均匀性数值模拟方法示意图

Fig.3 Schematic diagram of four numerical methods for inter-particle coating uniformity

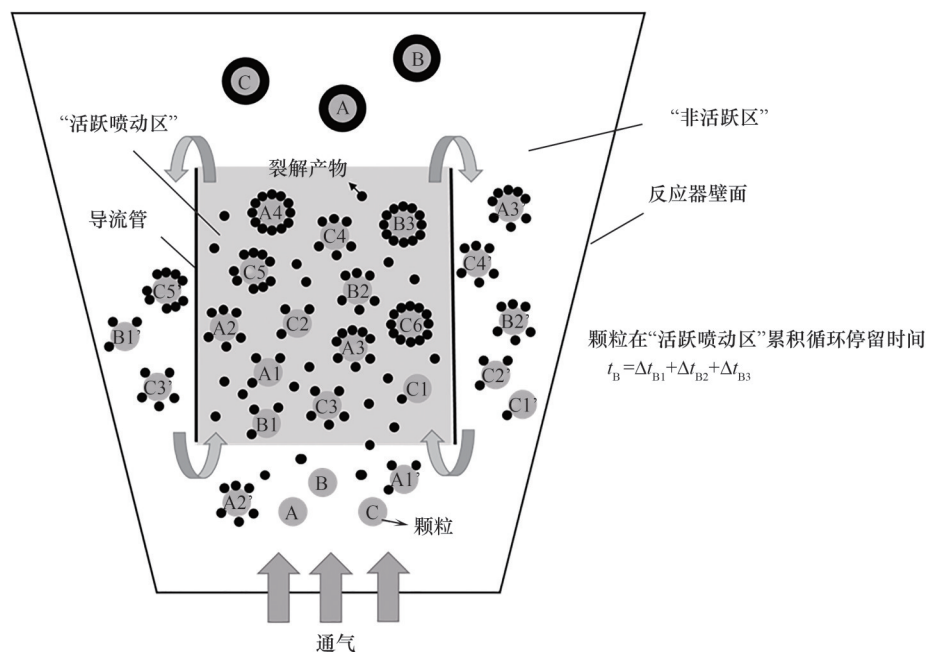


图4 不同颗粒在“活跃喷动区”累积循环停留时间示意图

Fig.4 Schematic diagram of the cumulative cyclic residence time of different particles within the “active spout zone”

留时间分布模型被引入,用于刻画颗粒在有效包覆区内的暴露经历差异。如图4所示,不同颗粒在“活跃喷动区”内由于流动轨迹与循环路径的差异,经历了不同的累积停留时间;而停留时间分布(RTD)

正是基于大量颗粒在活跃区内多次进入所形成的累积停留时间进行统计得到的,其本质为群体尺度的概率分布描述。

在包覆过程中,气相前体在高反应活性区域即

“活跃喷动区”的反应速率与颗粒在该区域内的暴露时间密切相关。已有研究指出^[33],颗粒在反应区停留时间的长短会直接影响单位周期内的沉积量,从而影响包覆层厚度及其均匀性。

Li 等^[34-35]通过正电子粒子发散跟踪实验(positron emission particle tracking, PEPT)验证了停留时间分布的预测可靠性,并提出将停留时间分布转换为膜厚增量的半经验模型,该模型将颗粒在“活跃喷动区”的停留时间分布量化为可直接用于预测包覆均匀性的指标。

Cheng 等^[29]在 Wurster 流化床包覆过程中,通过少量实验观察颗粒在喷雾区的包覆分布,并监测颗粒循环时间。结果显示,颗粒在喷雾区每次通过时接收到的包覆量差异是造成批次内颗粒间包覆变异的主要因素,而颗粒通过喷雾区次数的差异影响较小。基于这些发现,建立了两个数学模型来解释颗粒间包覆差异:第一个模型将颗粒通过喷雾区的行为简化为“接收包覆”或“不接收包覆”,即采用 Bernoulli 分布^[36]描述颗粒每次接收包覆的概率;第二个模型基于几何遮蔽效应,认为靠近喷雾源的颗粒会接收到更多包覆,同时对远离喷雾源的颗粒产生遮蔽作用,从而导致颗粒间包覆分布不均匀。

Böhling 等^[37]将上述方法进一步拓展至工业级 Wurster 流化床喷涂装置,重点考察颗粒在“活跃喷动区”(即 Wurster 管内喷动区)的停留时间分布及循环行为,在保持原始粒径分布(particle size distribution, PSD)不变的前提下,实现了对工业级系统的有效建模。他们分析了入口流化气速、雾化气速、颗粒粒径分布及 Wurster 间隙高度对“活跃喷动区”内颗粒的停留时间分布和颗粒循环时间(cycle time, CT)的影响。结果表明,流化气速和 Wurster 间隙高度对整体循环动力学起主要调控作用,而雾化

气速对颗粒宏观流场结构的影响有限。此外,尽管大颗粒在“活跃喷动区”的单次停留时间略短,但其循环周期更长,导致不同粒径颗粒在整体停留时间分布上的差异不足 11%,显示出工业装置在包覆均匀性上有一定鲁棒性。研究指出,优化“活跃喷动区”的时间分布,有助于提高颗粒的包覆均匀性。

RTD 模型被广泛应用于描述颗粒在“活跃喷动区”内的停留行为,成为早期研究颗粒间包覆均匀性的重要统计工具,为工艺评估提供了一种计算成本低、易于实现的分析手段。然而,RTD 模型仅刻画颗粒在包覆区的暴露频次和时间,并不能直接得出涂层厚度信息;涂层厚度需要在停留时间分布的基础上结合经验或半经验沉积公式计算,它本质上并未包含化学反应、传质或热场效应,难以解释化学气相沉积高温工况下的真实沉积均匀性差异,在预测颗粒间包覆均匀性差异时存在内在局限。

2.2 Monte Carlo 模型

Monte Carlo 模型通过多参数随机抽样定量描述颗粒尺寸、沉积速率及反应动力学等不确定性,扩展了包覆均匀性数值模拟研究的视角,从平均统计推向颗粒尺度建模。该模型可以预测包覆厚度分布的演化及其对包覆工艺优化和可靠性的影响,核心是准确地反映大量颗粒在包覆过程中的无定向随机性。Monte Carlo 模型所需的喷雾或前驱体沉积事件概率、进入位置与停留时间等随机输入由实验统计、文献数据或其他外部来源给定;随后对这些输入进行随机抽样,并在循环过程中更新颗粒的包覆状态,从而获得包覆厚度分布及其均匀性评价结果,见图 5。

Rieck 等^[38]采用 Monte Carlo 模型模拟喷雾流化床中颗粒包覆过程的生长与均匀性演化。该模型将包覆过程中的核心动力学划分为两阶段:第一阶

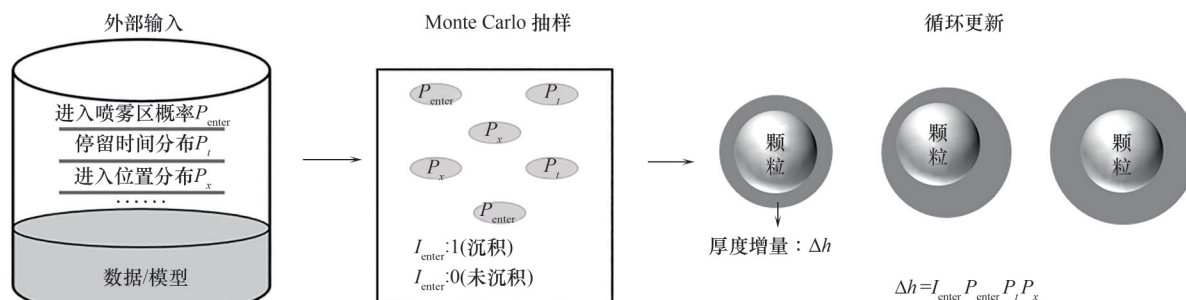


图5 包覆过程的 Monte Carlo 模型中的“外部输入—抽样—循环更新”框架示意图

Fig.5 Schematic diagram of the “external input—sampling—iterative update” framework of the Monte Carlo model for the coating process

段是随机发生的“液滴沉积”核心事件,通过 Monte Carlo 抽样确定液滴在颗粒表面的沉积位置;第二阶段则是基于热-质传递模型描述干燥与固化微观过程。通过逐步重复“液滴沉积—干燥—包覆层厚增长”事件,直至所设模拟时间,构建颗粒表面包覆层的局部结构与整体厚度分布。在研究中,每个 Monte Carlo 事件对应一次必然发生的液滴沉积,而液滴的沉积位置是通过均匀或加权概率分布随机抽样确定的:若假设液滴在颗粒表面的沉积分布各向一致,则采用均匀分布随机选取沉积位置;若考虑喷雾方向、颗粒运动等因素导致特定区域更易接收液滴,则通过加权概率分布偏向性地抽样沉积位置。结果表明,该方法能有效捕捉颗粒群体中包覆层厚度的空间分布特征,揭示包覆厚度变化主要源于液滴尺寸波动及颗粒间有效表面积差异。

Pandey 等^[39]采用 Monte Carlo 模型模拟颗粒片剂包衣过程中包覆质量的群体变异性。模型以实验获得的颗粒质心位置、循环时间、在喷雾区投影表面积及二维速度分布作为输入,通过 Monte Carlo 随机抽样生成每个片剂的运动状态。具体而言,每次循环首先从实验分布中随机选择颗粒的初始质心位置,并从速度分布中抽取一个速度以计算颗粒下一步的位置,颗粒投影面积也通过随机抽样获得。随后,将喷雾区的通量分布、喷雾面积及喷雾形状映射至颗粒当前位置,根据公式计算颗粒在本次通过喷雾区的沉积量。沉积过程为确定性计算,保证每次经过喷雾区均发生沉积。对所有颗粒重复该过程并累积模拟整个包覆时间,可获得单颗粒及群体尺度的包覆层质量增重分布,进而计算包覆层增重不均匀性参数,用于评估不同操作参数和喷雾条件对包覆层均匀性的影响。

KuShaari 等^[40]利用实测流场结合 Monte Carlo 模拟预测 Wurster 流化床中颗粒片剂包覆过程。将颗粒运动行为与沉积过程区分为两类事件:首先,基于实验测得的循环时间、喷雾区停留时间及空间位置分布,对每颗颗粒是否进入喷雾区进行蒙特卡洛随机抽样(称为第一层事件,是否进入喷雾区的概率由实验概率决定),若抽中则视为颗粒进入喷雾区。随后,对于已进入喷雾区的颗粒,再根据实验概率分布随机抽取其在喷雾区的具体位置及停留时间(称为第二层事件,沉积概率为1)。需要注意的是,这里的实验概率用于 Monte Carlo 抽样以决定颗粒在某次循环的状态,例如某位置出现的概率为

0.2,则每次循环以0.2的概率将颗粒置于该位置;一旦位置和停留时间确定,本次沉积量则通过喷雾通量与局部遮蔽效应计算。通过对单颗粒进行多次循环模拟并对大量颗粒重复该过程,模型能够累积得到单颗粒及群体尺度的涂层质量分布与均匀性,从而定量评估不同操作参数和喷雾条件对包覆质量的影响。模拟中采用三维离散化策略描述喷雾分布与颗粒遮蔽效应,并与解析模型^[29]进行对比验证。

与时间停留分布统计模型相比, Monte Carlo 方法不依赖连续假设,本身不生成概率分布,而是利用实验概率分布进行随机抽样。其随机性主要体现在颗粒的运动状态上,包括每次循环中颗粒是否进入喷雾区、进入的位置以及停留时间等参数。这些随机变量可通过实验概率分布进行抽样,从而反映颗粒在喷雾包覆区的包覆行为的不确定性。

2.3 离散单元法模型

随着计算能力的提升,离散单元法模型成为研究多颗粒体系包覆均匀性的重要工具。该方法通过计算颗粒间的接触、碰撞与循环轨迹,能够直接获得颗粒在流化床或滚筒包衣机中的分布特征和停留时间差异,从而揭示群体包覆不均匀的动力学来源。

Yang 等^[41]基于离散元法建立了一种用于模拟静电干粉包衣过程的数值模型,以预测颗粒片剂间的包覆均匀性演变。该模型不仅能够高效处理数百万级包覆颗粒,实时预测单颗片剂的包覆增重并与实验结果高度一致,还可系统评估包覆颗粒粒径、带电强度、滚筒转速及粉体投料时间等操作参数对颗粒间包覆均匀性的影响,模拟结果表明通过优化这些参数可显著提升包覆均匀性。其中,较小的包覆颗粒、适度的带电强度、高的滚筒转速及合理的粉体投料策略均有助于改善颗粒群体的包衣均匀性。

Ketterhagen^[42]基于离散元法构建并验证了颗粒片剂包衣过程的数值模型,其准确性通过机器视觉系统获取的实验数据得到了证实。研究探索了颗粒片剂形状、滚筒转速和装载量等因素对颗粒间包覆均匀性的影响。Pasha 等^[43]基于离散元法模拟了玉米种子在旋转滚筒包衣设备中的包覆过程。研究采用 X 射线显微断层扫描(X-ray microtomography)获取玉米种子的真实形状,并通过多球聚合法在 DEM 中进行准确建模。包覆模拟遵

循质量守恒原则:液滴粒子一旦接触种子表面即被删除,并将其质量累积到该种子的包覆量中。通过统计种子间包覆质量分布及其变异系数,定量评估了颗粒间包覆均匀性。

DEM模拟方法能够在颗粒动力学层面揭示包覆不均的形成机制,例如颗粒循环轨迹、停留时间分布及受力状态,从而为理解颗粒间包覆层厚度差异提供直接的微观证据。然而,由于实际包衣过程常伴随气固相互作用、液滴沉积、干燥固化等多物理场耦合现象,仅依靠DEM难以全面捕捉包覆演化的全过程。然而,DEM为与流体动力学、喷雾动力学、Monte Carlo或反应传质模型等多种方法的耦合奠定了基础,有助于构建更加完整的模拟方法,实现包覆均匀性机理的深入解析。

2.4 多尺度模型

为突破单一Monte Carlo或DEM模型难以同时解析流场与颗粒动力学的局限,研究者提出了多尺度耦合框架。其核心思路是利用CFD-DEM捕捉颗粒运动学,再结合Monte Carlo概率模型描述局部沉积事件,并可引入CVD、传热传质或反应动力学等子模型描述包覆生长机制,从而实现跨尺度耦合包覆过程数值模拟。

研究人员采用CFD-DEM与Monte Carlo耦合方法定量研究Wurster包衣过程中微球的颗粒内与颗粒间包覆均匀性。Madlmeir等^[44]通过CFD-DEM模拟不同粒径颗粒的循环特性,并利用Monte Carlo对每个颗粒在整个工艺周期内的循环次数、喷雾暴露概率及单循环增重进行随机抽样,重建颗粒群体包覆厚度分布。结果表明,该方法可快速预测Wurster包覆系统的颗粒间均匀性及其关键影响因素。

Norouzi等^[45]采用离散液滴模型(discrete droplet model, DDM)追踪液滴,提出CFD-DEM-DDM耦合模型,揭示气流模式与液滴尺寸是影响沉积率与颗粒间不均匀性的关键因素。为进一步提升模型的物理真实性与适用范围,研究人员开始关注沉积事件层面的化学反应与多相传递过程。Farivar等^[46]将DDM完整嵌入CFD-DEM,实现气-固-液三相耦合,揭示喷雾区几何对厚度变异的敏感性,并在RTD主峰位置和宽度上与实验^[47]保持一致。

Song等^[48]引入液桥黏附力、干燥与颗粒属性演化模型,发现黏附降低循环效率并恶化均匀性,而升温干燥或降低注液速率可改善分布,且球形颗粒均匀性优于双凸片剂。Deng等^[49]结合液桥力与包

覆生长模型,阐明喷滴尺寸、气速和液体黏度的作用机制,发现小滴径与高气速促进均匀沉积。Guo等^[28]通过实验与CFD-DEM结合,揭示了Wurster流化床循环口和喷嘴高度对循环时间分布与包覆均匀性的决定性作用,并建立了“几何-循环-均匀性”的因果关系。邓爱明等^[16]基于CFD-DEM耦合模拟方法,结合液桥力模型和颗粒生长模型,系统分析了喷雾流化床内导流板结构对颗粒流动行为及其生长均匀性的影响。

在TRISO包覆层领域,FB-CVD涉及高温前驱体热解、包覆产物传递与沉积动力学^[50]。本课题组^[51]建立CFD-DEM-CVD多物理场耦合框架,将气相流动、颗粒运动、化学反应与沉积过程统一建模,揭示床温和进气速度对沉积速率和效率的显著作用,该模型为多物理场颗粒包覆过程中多颗粒均匀性模型的发展奠定了基础。本课题组^[52]基于多尺度建模思路,继续构建了耦合CFD、DEM与PBM的流化床化学气相沉积模拟模型,用以揭示TRISO颗粒包覆过程中的流动、传质及包覆非均匀性。模型中气相采用CFD描述流场与反应物浓度分布,固相颗粒通过DEM表征受力、碰撞与循环运动行为,而纳米颗粒的成核与生长过程则由群体平衡模型(population balance model, PBM)描述。该CFD-DEM-PBM多尺度模型在求解过程中确保了质量、动量与能量的守恒,并在沉积子模型中同时考虑了气相均相沉积与纳米颗粒异相沉积两种机理。模拟所得纳米颗粒粒径分布与实验观察结果定性一致,该模型能够较为准确地反映包覆层厚度的空间分布与演化趋势。

耦合传统群体平衡模型^[53]及其衍生方法,发展了不同的多尺度耦合包覆模型。Kumar等^[54]提出的离散单元法-分区群体平衡耦合模型,更多侧重颗粒群体统计特性,通过分区方法结合DEM模拟获得颗粒循环时间及包覆质量变异系数,描述颗粒间包覆均匀性演化。研究表明,颗粒粒径分布、包覆增长规律及不同功能区(喷雾区、活跃区与惰性区)之间的交换时间尺度是决定群体均匀性和包覆速率的关键因素。Chen等^[55]将CFD-DEM与化学反应流模型耦合,构建了从前体分解到沉积的数值模型,能够模拟乙炔裂解、碳沉积、氢气抑制及颗粒表面吸附/解吸等关键过程,并结合颗粒运动预测包覆生长和流化床内的颗粒分布,进一步增强了模型准确性。多尺度全耦合虽计算代价高,却为TRISO层间

微结构与长期可靠性分析提供了机理基础^[56]。

3 颗粒内包覆均匀性数值模拟

目前多数研究聚焦于颗粒间包覆均匀性,即通过比较每个颗粒包覆质量的变异系数来表征系统均匀性。事实上,包覆层厚度在单颗粒内的分布仍受液滴沉积、表面流动与干燥速率等多种机制影响,表现出显著的空间非均匀性。这种颗粒内非均匀性影响涂层的机械稳定性、溶出行为与功能释放。

针对单颗粒均匀性的研究,主要通过解析表面局部厚度分布 $h(\theta, \phi)$ 进行。然而,除厚度之外,包覆层还可能存在密度、成分等空间分布特征,也同样值得关注。由于现有模型尚难以捕捉到如此精细的尺度,因此多数工作仍以厚度均匀性为主要研究对象^[27]。颗粒内包覆均匀性是精细调节整体包覆质量的关键环节,逐渐为一些高附加值包覆层制备过程所重视。文献中针对颗粒内包覆均匀性数值模拟也发展了一系列模拟方法,包括表面离散化模型、连续场模型、球谐函数模型、颗粒绑定型非均匀包覆模型等。

3.1 表面离散化模型

表面离散化模型最为直观,其核心思想是将颗粒表面划分为有限个面元,并在离散单元上统计局部包覆厚度或沉积质量,从而实现包覆分布的空间分辨描述。

Freireich等^[57]提出基于表面离散化模型,将颗粒表面均匀划分为 M 个等面积面元,每次喷雾事件

随机选取 m 个面元接受涂覆,其相对受涂面积分数为 $f = m/M$,如图6所示。在理想假设下,若喷雾事件相互独立且各面元被选取的概率相同,则第 i 个面元的受涂概率为 p_i 。喷涂过程中,每个被选中的面元厚度增量为 h_i ,经过 N 次喷雾事件后可得到平均厚度 $E[\bar{h}]$ 及方差 $E[(\Delta h)^2]$ 。基于此,单颗粒内部包覆厚度变异系数(coefficient of variation, $\text{CoV}_{\text{intra}}$)可表示为:

$$\text{CoV}_{\text{intra}} = \sqrt{\frac{E[(\Delta h)^2]}{[E(\bar{h})]^2}} = \sqrt{\frac{1}{N} \left[\frac{M}{m} + (N-1) \frac{M}{m^2} \sum_{i=1}^M p_i^2 \right]} - 1 \quad (1)$$

式中, $E[\bar{h}]$ 表示平均厚度; $E[(\Delta h)^2]$ 表示厚度方差。 $E[\bar{h}]$ 与 $E[(\Delta h)^2]$ 的比值反映了局部厚度相对于平均值的离散程度,体现出包覆逐步趋向均匀的统计特征。框架揭示了在完全随机取向向下,包覆厚度方差随喷涂次数 N 按 $N^{-1/2}$ 收敛的统计规律。

Jiang等^[20]将CFD-DEM的流体动力学结果与Monte Carlo沉积过程相结合,在颗粒表面采用质心Voronoi划分(centroidal Voronoi tessellation, CVT)实现自适应离散,每个沉积事件随机选择颗粒与面元,并考虑液滴的冲击能量、溅落、铺展与干燥等过程,如图7所示。该方法考虑了喷雾通量和颗粒姿态的非均匀性,得到单颗粒内部波动(26%~27%)显著高于颗粒间差异(<10%)的结果,强调了颗粒内包覆均匀性是决定整体包覆性能的主导瓶颈。

Liu等^[58]在DEM-DDM框架上引入带状网格法(strip mesh)与三角网格法(triangular mesh)两种表面离散网格化方案,实现了从球形到复杂片剂几何

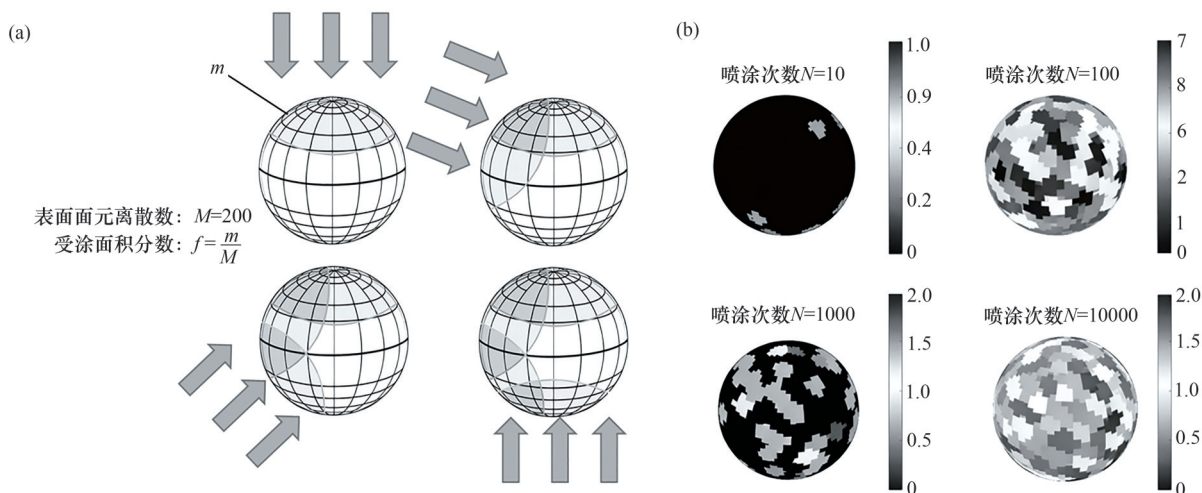
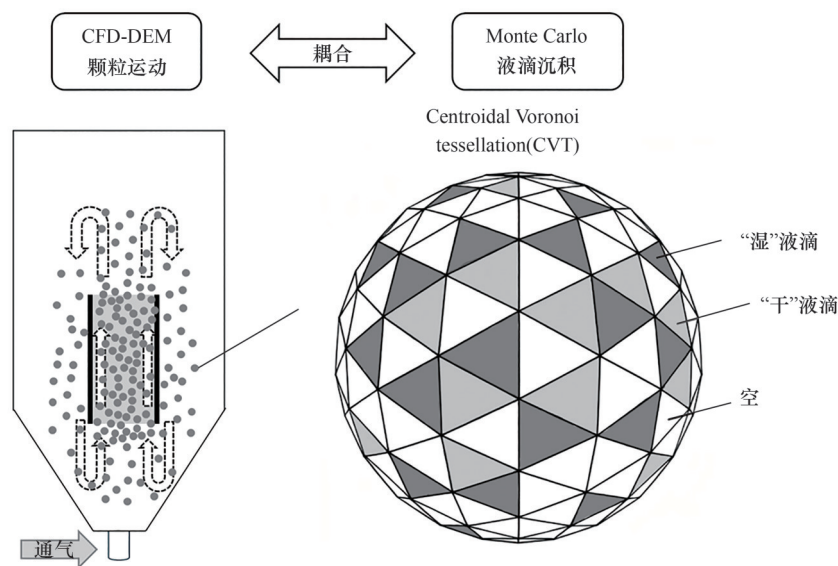


图6 (a) 单次随机喷涂下的表面沉积分布^[57]; (b) 喷涂次数 $N = 10, 100, 1000, 10000$ 时包覆均匀性的演化

Fig.6 (a) Surface deposition distribution under a single random spraying event^[57]; (b) Evolution of coating uniformity at spraying numbers of $N = 10, 100, 1000, \text{ and } 10000$

图7 CFD-DEM-Monte Carlo耦合框架下单颗粒沉积示意图^[20]Fig.7 Schematic diagram of single-particle deposition within the CFD-DEM-Monte Carlo coupling framework^[20]

形状的推广,如图8所示。通过射线-网格映射计算局部沉积分布,系统揭示了片剂曲率、双凸度及优先取向对包覆厚度分布的影响。该模型的创新在于将表面离散化思想拓展到复杂几何场景,量化了几何形状对单颗粒内包覆不均匀性的贡献。

“球面等面积离散→自适应离散与多物理沉积→复杂几何网格化”构成了表面离散化模型的发展主线,其共同思想是将单颗粒表面离散为有限个面元(或网格单元),把每次喷雾/沉积事件映射为对部分面元的增厚更新,并据此在颗粒尺度统计厚度分布及其收敛行为。与此同时,表面离散化模型的局限也较为集中:模型对面元划分方式与分辨率高度敏感,网格加密虽能提升空间分辨,但计算代价显著上升;沉积事件的选取概率与单次增厚规则多依赖经验或外部标定,参数的可辨识性与可迁移性不足;对遮挡、再分布、润湿/液膜迁移、碰撞诱发二次沉积等强耦合过程往往只能简化处理,难以自洽地反映真实动力学。总体而言,表面离散化方法为刻画颗粒内厚度分布提供了直观且可量化的框架,适合用于分析局部不均匀性的来源;但其预测的可靠性在很大程度上仍取决于输入概率分布的可信度、沉积模型参数化的合理性,以及网格分辨率与计算代价之间的平衡。

3.2 连续场模型

Suzzi等^[59]提出的连续场模型将颗粒的包覆视为连续介质,描述其局部厚度或浓度随时间与空间的演化。模型基于CFD-DDM-PDE框架,首先用计

算流体力学求解气相或喷雾载体气流中的速度、压力、温度等流场分布;其次用离散相模型(discrete droplet model, DDM)追踪喷雾液滴在流场中的轨迹、沉积及撞击颗粒表面的质量或动量通量;最后在颗粒表面(或颗粒-基体界面)建立偏微分方程(PDE)来描述包覆厚度场 $h(s,t)$ 或浓度场 $c(s,t)$ 的演化。

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \frac{S_{\text{dep}}(s,t)}{\rho_c} + \nabla_s \cdot (D_s \nabla_s h) \quad (2)$$

式中, S_{dep} 表示液滴沉积在位置 s 处的源项; ρ_c 为包覆密度; D_s 为沿表面的再分布(扩散/流平)系数。该模型结构清晰地反映了喷雾沉积(由DDM提供通量源项)与包覆在颗粒表面的平滑化或再分布(由PDE控制)两者之间的耦合与动态平衡关系。

CFD-DDM-PDE连续场模型不再依赖表面离散化,而以包覆层厚度的连续分布为建模核心,如图9所示。该模型的创新在于实现了包覆不均匀性的“生成-平衡-演化”一体化物理描述,并能定量分析液滴粒径、入射速度、蒸发速率等参数对均匀化速率的影响。

3.3 球谐函数模型

Hilton等^[60]提出了一个能够定量解析单颗粒内包覆均匀性的CFD-DEM耦合模型,如图10所示,其核心创新是将液滴在球面上的沉积分布表征为高斯函数:

$$g(\theta) = \exp(-\theta^2/\beta) \quad (3)$$

并进一步累积得到颗粒表面离散厚度分布函

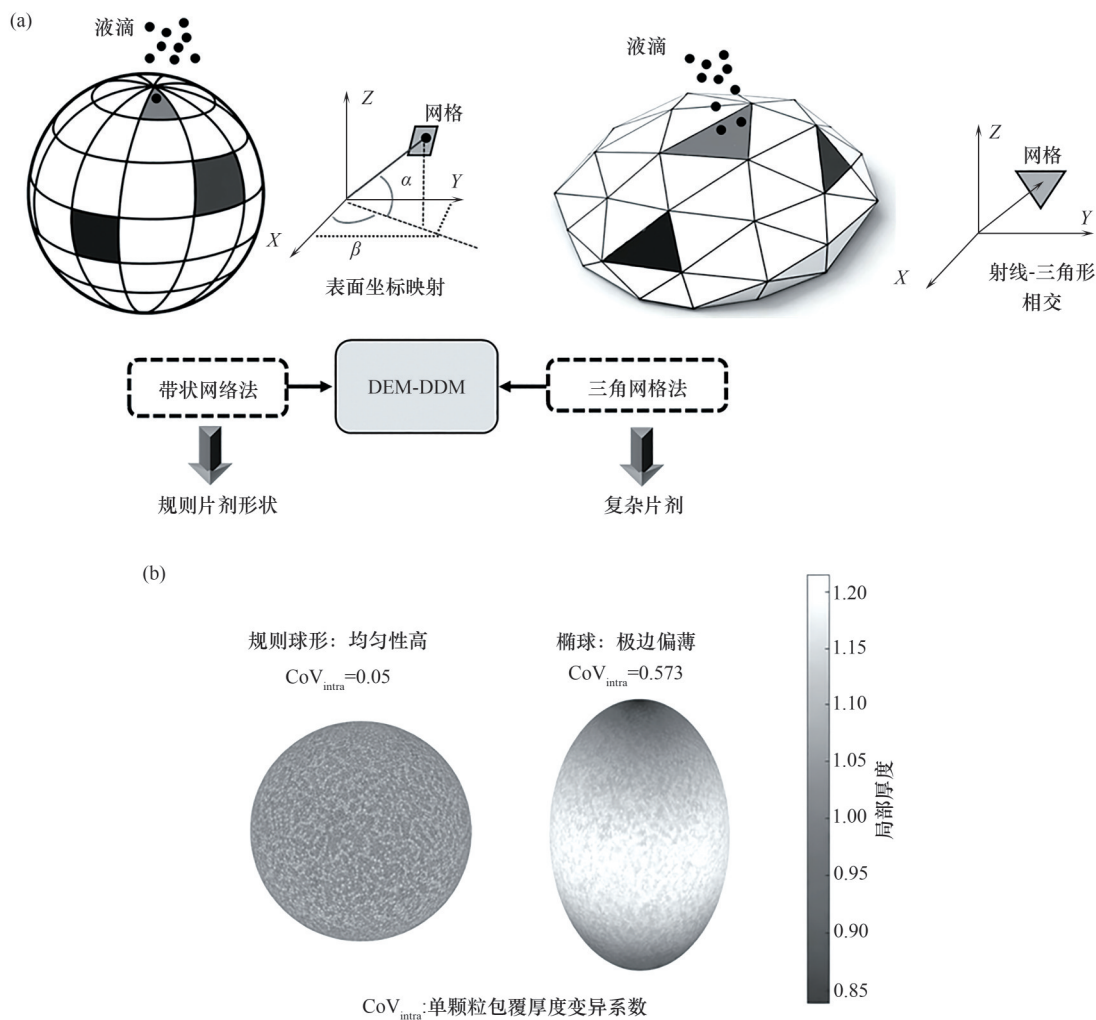


图8 DEM-DDM耦合框架示意图^[58]: (a) 颗粒表面离散化方式; (b) 不同颗粒形状下局部包覆厚度分布差异

Fig.8 Schematic diagram of the DEM-DDM coupled framework^[58]: (a) discretization scheme of the particle surface; (b) differences in local coating thickness distributions for particles with different shapes

数 $h(\theta, \phi)$, 随后利用球面谐波展开该分布函数, 从而获得不同角度模态的展开系数 a_{lm} 。其中, 模态是指球面上涂层分布的不同空间模式, 每个模式对应一个球面谐波中的特定频率。模态反映了涂层在不同尺度上的变化, 较低阶模态(低 l 和 m)表示较为平滑或大范围的涂层变化, 而较高阶模态(高 l 和 m)则代表涂层的局部不均匀性。展开系数 a_{lm} 反映了该频率在包覆颗粒涂层分布中的强度。进一步, 基于展开系数可计算角功率谱:

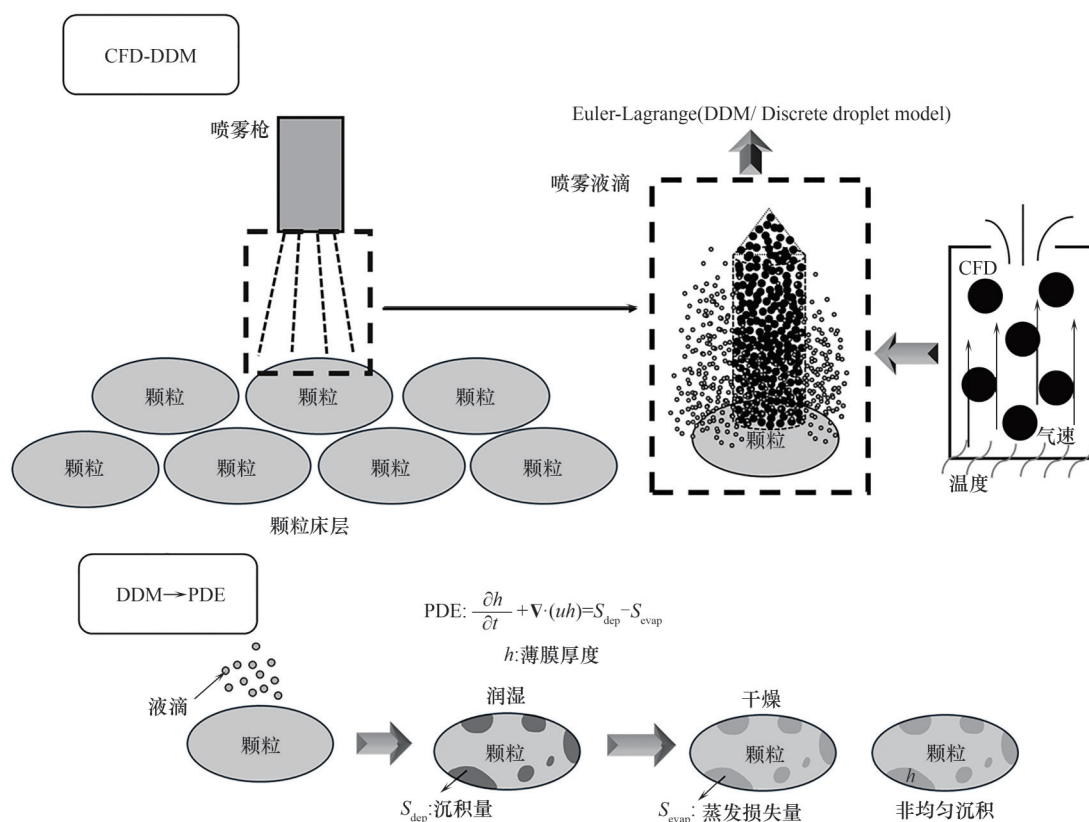
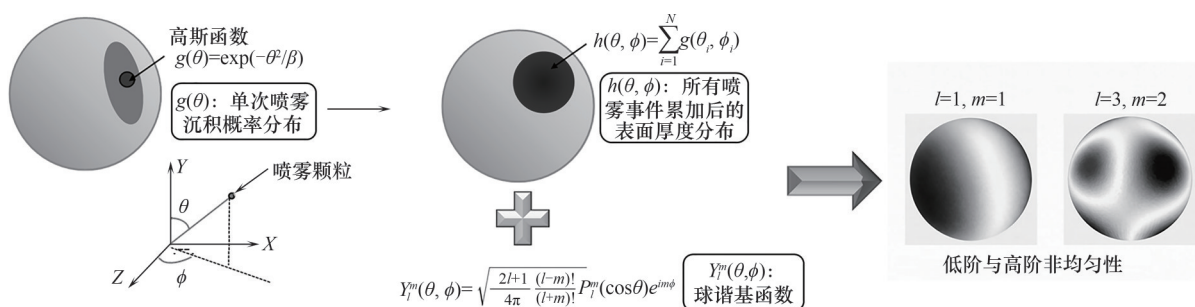
$$C_l = \frac{1}{2l+1} \sum_{m=-l}^l |a_{lm}|^2 \quad (4)$$

用于量化不同球谐阶数在整体涂层分布中的能量贡献, 如图10所示。该方法动态耦合了气流、颗粒运动与单个喷雾液滴的相互作用, 其创新之处在于将离散表面数据转化为连续模式信息, 实现对

包覆颗粒涂层分布的空间模态分解, 从而可定量表征颗粒包覆的均匀性演化特征。

3.4 颗粒绑定型非均相包覆模型

针对传统模型难以捕捉单颗粒内部包覆厚度非均匀性分布的问题, Jiang等^[61]基于CFD-DEM-CVD多物理场耦合框架提出颗粒绑定型非均相包覆模型, 描述单颗粒包覆过程中的局部厚度差异与生长非均匀性, 如图11所示。该方法将目标包覆颗粒P视作由核芯颗粒A与包覆层颗粒B组合而成的复合颗粒团簇, 通过二者的几何关系反映包覆生长特征。当两颗粒中心同心时, 随着包覆层颗粒B的直径增大, 系统质心保持不变, 对应于包覆层的均匀生长; 相反, 当A与B的中心存在偏移时, 包覆层的生长将导致复合体系质心沿中心连线方向偏移, 体现出包覆层的非均匀性演化。

图9 单颗粒包覆CFD-DDM-PDE耦合示意图^[59]Fig.9 Schematic diagram of single-particle coating within the CFD-DDM-PDE coupling framework^[59]图10 基于球谐展开的单颗粒包覆厚度分布定量分析示意图^[60]Fig.10 Schematic diagram of the quantitative analysis of single-particle coating thickness distribution using spherical harmonic expansion^[60]

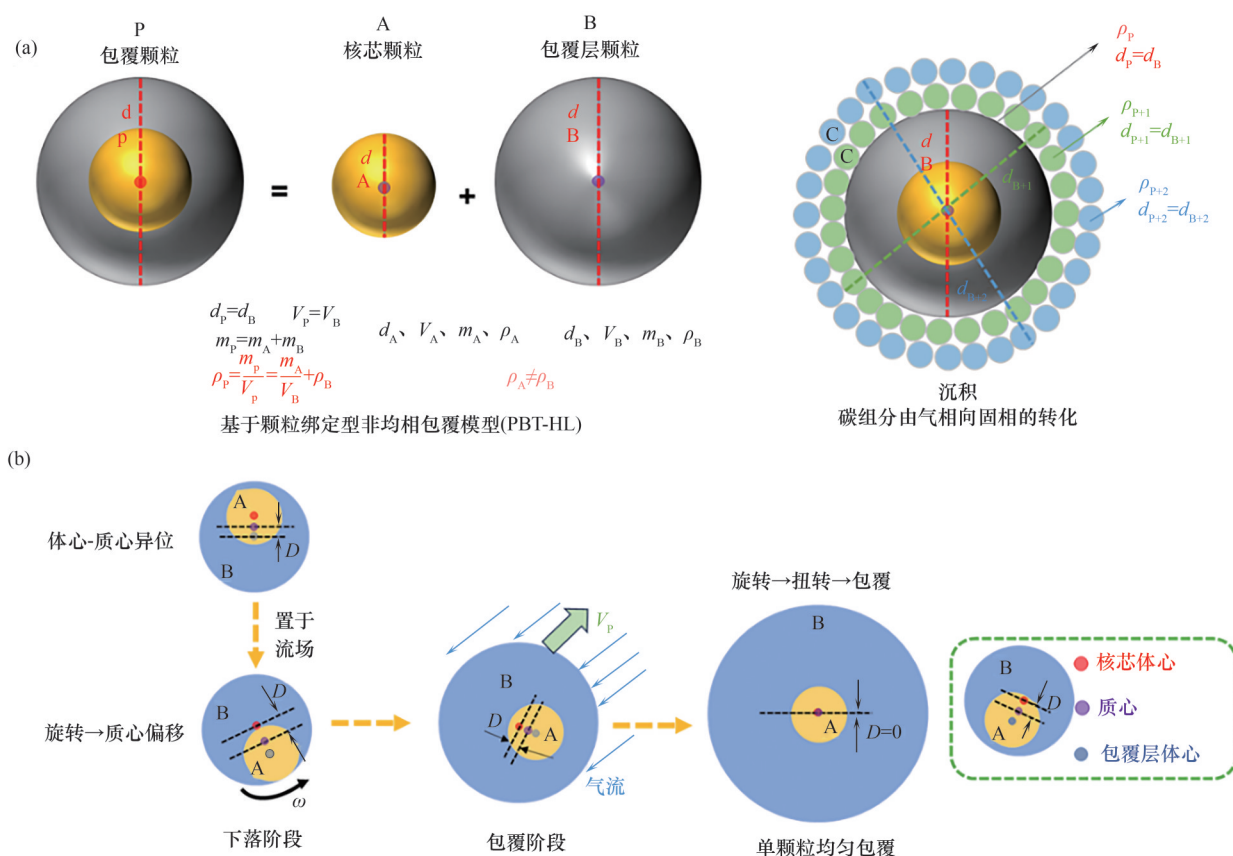
为定量描述该效应,定义质心偏移量 δ_d 来表征复合颗粒的偏心程度,其变化与局部沉积速率、气固相对速度以及反应物浓度等因素相关。假设偏移速率主要由气固相对速度驱动,则可写为:

$$\frac{d\delta_d}{dt} = k_{mc}(u_g - v_p) \quad (5)$$

式中, k_{mc} 为传质系数; u_g 与 v_p 分别为气体与颗粒速度。模拟结果表明,颗粒在旋转与沉积的共同作用下,其核芯颗粒逐渐向受风面转动并趋近几何中心,从而解释了流化床化学气相沉积过程中的包

覆层“自均匀化”特征。该模型为后续建立偏心颗粒CFD-DEM耦合模型和量化单颗粒包覆厚度各向异性提供了新的思路。

以上四类方法各有侧重,表面离散化强调空间分辨和局部波动,连续场模型关注整体演化趋势,颗粒绑定模型揭示非均匀包覆自均匀化的微观物理机制,而球谐函数侧重对包覆分布的谱分析与主导模态识别,实现从几何不均匀性到统计谱域的统一表征。此外值得指出的是,界面追踪型CFD可对颗粒进行高保真模拟,在单颗粒尺度上已被用于解

图11 PBT-HL模型及复合颗粒“自均匀化”^[61]: (a) PBT-HL模型; (b) 单颗粒包覆均匀性演变Fig.11 PBT-HL model and “self-uniformization” behavior of composite particles^[61]: (a) PBT-HL model; (b) evolution of single-particle coating uniformity

析液滴撞击、润湿、流平与蒸发过程,从而直接预测局部包覆层厚度与形貌^[62]。然而,由于求解整套气-液-固三相的界面动力学计算量巨大,这类方法很少被用于大规模颗粒群体的包覆均匀性统计研究。因此目前的主流策略是将界面追踪模拟得到的微观规律参数化,并嵌入CFD-DEM / Monte Carlo框架以进行多尺度耦合模拟。

4 包覆均匀性模拟模型比较分析

4.1 颗粒间包覆均匀性数值模拟方法

上述各模型针对颗粒间包覆均匀性展开了数值模拟,这些模型在精度、计算效率以及适用范围等方面各具特色,为理解和优化颗粒包覆过程提供了多样的理论框架。其中时间统计模型主要基于颗粒循环特性,通过分析循环时间分布或停留时间分布,定量描述颗粒在喷雾区的暴露频次和时间,有效捕捉颗粒群体在喷雾或沉积过程中所受包覆累积的非均匀性,从而为预测包覆厚度变异和均匀

性评价提供理论依据。其优点是参数化清晰、计算量小、易于与工艺参数(如风速、喷嘴布局、进料速率)直接关联,适合工艺放大。对于涂覆或沉积过程中的颗粒间遮挡、碰撞造成的局部非均匀性,以及单颗粒内部厚度分布的形成机理,往往需要借助CFD或CFD-DEM等颗粒尺度分辨模型^[63],通过直接求解颗粒轨迹与局部固相体积分数分布,以描述颗粒的密集程度、暴露程度及沉积通量差异。

Monte Carlo模型随机模拟侧重于通过对包覆过程中的微观事件进行统计抽样,以捕捉颗粒局部沉积、增重或暴露行为的随机性与空间分布特征。该方法可基于颗粒运动场、停留时间分布或实验测得的流场数据,随机生成液滴沉积、路径暴露或质量增长等事件序列,从而预测单颗粒尺度的厚度分布或颗粒群体的包覆变异性^[64]。其优点是计算高效、模型架构灵活、易于与实验或外部数据耦合,可快速揭示包覆均匀性演化规律。其局限性在于通常不直接模拟液滴动力学(如变形、液膜流动与干燥),故其预测精度依赖于输入信息的充分性及沉

积过程的物理合理性,在缺乏合适的物理参数时,难以完全捕捉沉积过程的细节。

离散元模型可高精度描述颗粒群的微观动力学行为^[65]。该方法以单颗粒为基本单元,逐步跟踪其位置、速度、旋转及角速度等时序演化,更准确且直观地描述颗粒动力学,深入揭示颗粒在包覆过程中的循环、混合、黏附、脱附与成膜特征。其本身仅聚焦于颗粒运动学,难以自主捕捉物质传输、化学反应或膜层生长等包覆机理,需额外借助反应或沉积模型才能完整刻画包覆颗粒涂层的形成过程。DEM具备良好的可扩展性,可与CFD、PBM、CVD或Monte Carlo等模型多尺度耦合,构建高保真包覆模拟框架。DEM沉积由动力学条件(运动、碰撞、接触面积)决定,而Monte Carlo模型通过概率抽样直接控制沉积是否发生以及对应的沉积量,沉积概率是对动力学过程的补充和修订。前者适合表征群体尺度的平均沉积趋势,后者适合解析运动与形貌等微观因素对沉积效率的影响,两者在沉积概率表达上分别体现出“抽象统计事件驱动”与“物理接触约束+统计修正”的本质差别。

多尺度耦合模型通过将流体动力学、颗粒力学与化学反应、沉积或膜层生长等过程纳入统一计算框架,能够再现颗粒包覆过程中的多尺度与多物理场耦合效应,弥补了DEM对复杂包覆机理刻画能力的不足。如基于DEM的框架可嵌入液滴黏附、弹回、飞溅及液膜生长/干燥等子模型^[66],与计算流体力学耦合形成的CFD-DEM模型进一步揭示气固两相流动、颗粒循环与液滴输运之间的耦合作用,可定量表征颗粒在喷雾区的停留时间^[67]、局部沉积概率^[68]与碰撞历史^[69],从而为包覆厚度分布及颗粒间均匀性演化提供高保真的数值预测手段。然而,由于该类模型计算量大^[70]、参数依赖性强^[71],其在大规模体系及多物理场耦合中的应用仍存在一定

挑战^[72]。

四类方法的优缺点总结如表1所示。时间统计模型适于工艺优化与尺度放大, Monte Carlo模型引入空间分辨以揭示沉积分布特征,离散元模型适于颗粒尺度的机理解析,而多尺度耦合模型适用于深入探索复杂工艺条件下的包覆形成机理与空间分布规律,但计算量最大。颗粒包覆均匀性的数值模拟正逐步从经验与统计模型向基于物理机制的多尺度耦合模拟发展,实现了从宏观厚度分布预测到微观沉积过程解析的跨尺度拓展。该类研究不仅促进了对包覆均匀性形成机理的理解,也为均匀性提升的工艺优化与实验设计提供了理论依据。

4.2 颗粒内包覆均匀性数值模拟方法

针对单颗粒的包覆厚度分布及演化特征,文献中的四类模型在颗粒表面表示方式与物理建模层级上存在根本差异,但在发展脉络上又呈现出由几何层面的表征逐步迈向基于物理过程的连续化和多尺度建模框架的趋势。其中表面离散化模型^[73]将颗粒表面划分为有限个等面元,并在离散单元上统计局部包覆厚度或沉积质量,从而实现包覆颗粒涂层分布的空间分辨描述,这种方法能直接描述单颗粒包覆局部非均匀性,为统计分析提供高分辨数据,但计算代价高昂,一般适用于单颗粒或少量颗粒的精细模拟。

连续场模型^[60]以沉积在颗粒表面的包覆层厚度连续分布为核心,通过CFD-DDM-PDE框架实现动量、热量和质量传递的耦合,从液膜沉积到膜层均匀化的全过程模拟。相比表面离散化模型,连续场模型可避免离散单元带来的分辨率限制,同时真实描述液膜在颗粒表面的流动、扩散与均匀化过程。然而,该类模型计算量大,高分辨率模拟耗时显著,且待沉积液滴的微观动力学效应如变形和回弹通常被简化,一般适用于单颗粒尺度的液膜沉积或气

表1 颗粒间包覆均匀性数值模拟方法对比

Table 1 Comparative study of numerical methods for inter-particle coating uniformity

模型类型	主要思路	主要优势	主要局限
时间分布模型	基于颗粒群体的停留时间分布或循环频率等宏观统计量预测包覆颗粒均匀性	模型简洁,计算高效;宏观均匀性趋势预测	无法直接量化涂层增量、忽略局部沉积
Monte Carlo模型	以概率方式模拟液滴沉积与膜厚随机增长过程	高效预测群体涂层分布,可捕捉不确定性对包覆均匀性差异的影响	依赖实验或物理模型概率分布
离散元模型	追踪单颗粒运动状态,描述群体尺度包覆均匀性	物理真实性、良好可扩展性	计算量大,仅刻画颗粒动力学
多尺度耦合模型	从机理层面解析颗粒包覆演化的动态行为与均匀性调控机制	能够完整捕捉“气流-液滴-颗粒-沉积-均匀性”全过程	建模复杂、参数多;大规模应用受限

相沉积过程,能够分析颗粒表面的包覆均匀性。

球谐函数模型^[61]通过数值模拟获得颗粒表面的离散厚度分布数据,并引入球谐函数展开,将其表面沉积厚度投影到一系列具有明确空间尺度的球面基函数上,把厚度分布分解成“大块厚薄差异”和“小范围局部波动”等不同等级的成分,即以球谐谱系数表征包覆厚度在不同尺度上的不均匀性。通过分析角功率谱,可有效区分低阶模式对应的大尺度不均匀性(如整体偏析或极区富集)与高阶模式对应的局部波动性(如表面遮蔽或随机沉积区域),从而为表面均匀性提供一种多尺度、连续化的定量判据。该类模型的优势在于能够将离散的表面厚度数据转化为连续的空间模式信息,避免了传统统计指标(如方差或标准差)无法区分不同空间尺度下不均匀性的局限。球谐展开依赖于高质量的表面离散数据和精确的颗粒几何重构,一般适用于定量描述球形或近球形颗粒表面包覆的空间均匀性,对非球形度和局部缺陷的颗粒受到一定限制。

颗粒绑定型非均相包覆模型将核燃料颗粒的包覆层与核芯颗粒视作两个质量和密度不同但绑定的子单元,通过引入“非同心的绑定构型”,提出了单颗粒内部膜层各向异性与质心偏移的定量描述。模型关注流场驱动和旋转作用下包覆层厚度自均匀化及厚度演化的动力学行为,适用于研究单颗粒内非均匀性,用两个颗粒的绑定实现了颗粒包覆层厚度各向异性度的演变,是一种合理的近似,兼顾了计算速度和精确度两方面。

以上四类模型在离散化尺度、物理耦合与计算复杂度上各具优势,共同构成了单颗粒包覆均匀性研究的主要理论框架,其主要优缺点对比总结如表2所示,为理解不同体系下的局部成膜机理与厚度不均匀性提供了重要支撑。

5 总结与展望

颗粒包覆均匀性的数值模拟方法已从群体统计走向颗粒分辨的多层次体系:时间统计模型以停留时间分布表征混合与接触,效率高但需结合生长/动力学模型才能推算厚度分布;Monte Carlo 以外部给定分布驱动随机沉积事件,可描述厚度分布的统计演化,但对流场与颗粒动力学约束不足,物理可解释性受限;DEM 及其与CFD、PBM 的耦合能显式解析沉积-碰撞-流场耦合机理,物理真实性更高且已成主流,但计算代价与参数敏感性较高,亟需在精度与效率之间权衡。

在颗粒内均匀性的数值模拟方法方面,表面离散化模型提供厚度的空间分辨与事件累积统计,可解析几何与取向导致的局部非均匀性;连续场模型以PDE方程描述厚度或浓度的时空演化,能够描述表面沉积过程与表面再分布/流平等效应;球谐函数模型将厚度分布展开为球面基函数形式,使非均匀性分析可转化为模式分解问题;绑定型非均相模型引入物理驱动的结构演化机制,实现了从“几何均匀”向“物理均匀”的演化描述,为单颗粒包覆均匀性研究提供了新方向。

未来研究将进一步强化多尺度耦合,并通过关键参数的模型化确定与实验校准提升模型自洽性与可迁移性。颗粒间均匀性关注群体差异,颗粒内均匀性聚焦局部厚度分布,二者互补构成宏观与微观框架;总体需在精度与效率之间权衡,以有限成本捕捉包覆过程主要特征并实现多尺度预测。进一步而言,领域的发展趋势在于数值模拟与颗粒包覆均匀性及壳层结构测量手段的深度融合:以实验测量反向约束模型构建,并利用模型结果指导测量解析,实现“模拟-表征-机理”之间的协同迭代。主要结论如下。

表2 颗粒内包覆均匀性数值模拟方法对比

Table 2 Comparative study of numerical methods for intra-particle coating uniformity

模型类别	主要思路	主要优势	主要局限
表面离散化模型	颗粒表面划分面元,模拟局部沉积	易量化局部厚度,反映随机性	面元多计算量大,存在高效性与可控性之间的矛盾
连续场模型	包覆视为连续介质,偏微分方程描述沉积演化	捕捉连续物理过程,高保真	难处理复杂几何,沉积机理简化
球谐函数模型	颗粒表面厚度分布投影到球谐函数基上,角功率谱表征多尺度空间不均匀性	离散表面数据的连续谱域解析	计算代价高昂,仅适用于球形或近球形
颗粒绑定非均相包覆模型	包覆颗粒密度动态变化	定量化描述单颗粒包覆层厚度的各向异性	结构简化假设、动力学耦合不足

(1)模型精度与效率的平衡:现有数值模型在计算精度与复杂性之间仍存在矛盾,未来研究亟需在先进测量数据(如壳层厚度分布、结构非均质性)的支撑下,识别并保留主导包覆均匀性的关键物理机制,发展由实验数据校准和验证的模型,合理平衡模型精度与复杂性以兼顾预测可靠性与计算效率。

(2)真实物理机制的建模:未来研究可在模型中引入旋转、碰撞、液滴动力学与局部再分布等真实物理机制,构建由几何随机沉积向物理主导演化的包覆过程描述框架,以提升模拟结果对实际包覆行为的物理可解释性与普适性。

(3)宏观-微观协同建模:加强群体尺度与单颗粒尺度模型之间的多尺度耦合衔接,建立跨尺度的信息传递与反馈机制,将宏观流态模拟结果与微观包覆结构测量数据相结合,形成闭环建模体系。特别地,包覆层材料的制备模拟可以和计算材料学结合,实现跨尺度、跨学科的协同模拟。

(4)包覆层结构与缺陷机理解析:未来研究应拓展颗粒内分析维度,从包覆厚度分布延伸至壳层缺陷形成、界面黏附及应力演化等机制,非均相包覆模型中的绑定颗粒思路为颗粒内包覆均匀性研究提供了新的方向。通过考虑包覆过程中密度的动态变化,有望揭示包覆层非均质性及结构演化的微观机制。

符号说明

a_{lm}	——球谐系数
C_f	——功率谱
CoV_{inter}	——颗粒间包覆均匀性变异系数
CoV_{intra}	——颗粒内包覆均匀性变异系数
$c(s,t)$	——包覆浓度场
D_s	——表面扩散/流平系数
d_p	——颗粒直径, m
$E[(\Delta h)^2]$	——颗粒间厚度方差
$[E(\bar{h})]^2$	——颗粒间厚度均值平方
f	——受涂面积分数
$g(\theta)$	——喷雾角分布函数
$h(s,t)$	——包覆厚度场
$h(\theta,\phi)$	——表面离散厚度分布函数
k_{mc}	——传质系数
M	——表面离散单元数
m	——每次沉积的平均单元数
N	——包覆/沉积次数

p_i	——第 i 个表面单元的命中概率
s	——液滴沉积位置
u_f	——流体速度场
u_g	——气体速度, m/s
v_p	——颗粒速度, m/s
β	——角分布参数, rad^2
θ	——偏离喷嘴中心线的极角, rad
δ_d	——质心偏移量, m
ρ_c	——包覆密度, kg/m^3

下角标

f	——流体
g	——气体
i	——单元编号
inter	——颗粒间
intra	——颗粒内
l	——球谐阶数
m	——球谐次序
mc	——沉积组分浓度
p	——颗粒

参考文献

- [1] Zhu Q, Chua M H, Ong P J, et al. Recent advances in nanotechnology-based functional coatings for the built environment[J]. Materials Today Advances, 2022, **15**: 100270.
- [2] Pourhashem S, Saba F, Duan J Z, et al. Polymer/inorganic nanocomposite coatings with superior corrosion protection performance: a review[J]. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 2020, **88**: 29–57.
- [3] Zhang W, Wang H M, You C F. Numerical simulation of fluidized bed coating process considering particle abrasion[J]. Chemical Engineering Journal, 2022, **445**: 136632.
- [4] Sharma R, Setia G. Mechanical dry particle coating on cohesive pharmaceutical powders for improving flowability — a review[J]. Powder Technology, 2019, **356**: 458–479.
- [5] Vehring R. Pharmaceutical particle engineering via spray drying[J]. Pharmaceutical Research, 2008, **25**(5): 999–1022.
- [6] Van Duong T, Nguyen H T, Wang F, et al. Surface nanocoating of high drug-loading spray-dried amorphous solid dispersions by atomic layer coating: excellent physical stability under accelerated storage conditions for two years[J]. International Journal of Pharmaceutics, 2022, **620**: 121747.
- [7] Zaid A N. A comprehensive review on pharmaceutical film coating: past, present, and future[J]. Drug Design, Development and Therapy, 2020, **14**: 4613–4623.
- [8] Salawi A. Pharmaceutical coating and its different approaches, a review[J]. Polymers, 2022, **14**(16): 3318.
- [9] Mansouri H, Ait Said H, Noukrati H, et al. Advances in controlled release fertilizers: cost-effective coating techniques and smart stimuli-responsive hydrogels[J]. Advanced Sustainable Systems, 2023, **7**(9): 2300149.
- [10] Meher S, van Rooyen I J, Jiang C. Understanding of fission products transport in SiC layer of TRISO fuels by nanoscale

- characterization and modeling[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2019, **527**: 151793.
- [11] Teunou E, Poncelet D. Batch and continuous fluid bed coating — review and state of the art[J]. *Journal of Food Engineering*, 2002, **53**(4): 325–340.
- [12] Choy K L. Chemical vapour deposition of coatings[J]. *Progress in Materials Science*, 2003, **48**(2): 57–170.
- [13] Bungert N, Kobler M, Scherließ R. In-depth comparison of dry particle coating processes used in DPI particle engineering[J]. *Pharmaceutics*, 2021, **13**(4): 580.
- [14] Christensen F N, Bertelsen P. Qualitative description of the Wurster-based fluid-bed coating process[J]. *Drug Development and Industrial Pharmacy*, 1997, **23**(5): 451–463.
- [15] Arrieta M Y, Keiser D D, Perez-Nunez D, et al. Fluidized bed chemical vapor deposition of zirconium nitride films[J]. *Nuclear Technology*, 2017, **199**(2): 219–226.
- [16] 邓爱明, 何玉荣, 唐天琪, 等. 导流板对喷雾流化床内颗粒生长过程影响的模拟[J]. *化工学报*, 2024, **75**(8): 2787–2799.
- Deng A M, He Y R, Tang T Q, et al. Simulation of effect of draft plate on particle growth process in spray fluidized beds[J]. *CIESC Journal*, 2024, **75**(8): 2787–2799.
- [17] Okokpue I P, Tartibu L K, Musa-Basheer H O, et al. Effect of coatings on mechanical, corrosion and tribological properties of industrial materials: a comprehensive review[J]. *Journal of Bio- and Tribo-Corrosion*, 2024, **10**: 2.
- [18] Narita T. Diffusion barrier coating system concept for high temperature applications[J]. *Canadian Metallurgical Quarterly*, 2011, **50**(3): 278–290.
- [19] Ohno T, Kumar Padarti J, Hirai S, et al. Effects of coating layer homogeneity of cathode particles on lithium-ion battery performance[J]. *Advanced Powder Technology*, 2024, **35**(9): 104608.
- [20] Jiang Z C, Rieck C, Bück A, et al. Modeling of inter- and intra-particle coating uniformity in a Wurster fluidized bed by a coupled CFD-DEM-Monte Carlo approach[J]. *Chemical Engineering Science*, 2020, **211**: 115289.
- [21] Gerczak T J, Hunn J D, Lowden R A, et al. SiC layer microstructure in AGR-1 and AGR-2 TRISO fuel particles and the influence of its variation on the effective diffusion of key fission products[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2016, **480**: 257–270.
- [22] Verfondern K, Nabielek H, Kendall J M. Coated particle fuel for high temperature gas cooled reactors[J]. *Nuclear Engineering and Technology*, 2007, **39**(5): 603–616.
- [23] Černe B, Petkovšek M. High-speed camera-based optical measurement methods for in-mesh tooth deflection analysis of thermoplastic spur gears[J]. *Materials & Design*, 2022, **223**: 111184.
- [24] Roncallo S, Painter J D, Cousins M A, et al. A method to quantify the degree of uniformity of thickness of thin films[J]. *Thin Solid Films*, 2008, **516**(23): 8493–8497.
- [25] Taylor M, Simoes F, Smith J, et al. Quantifiable correlation ofToF-SIMS and XPS data from polymer surfaces with controlled amino acid and peptide content[J]. *Surface and Interface Analysis*, 2022, **54**(4): 417–432.
- [26] Hejmady P, van Breemen L C A, Anderson P D, et al. A processing route to spherical polymer particles *via* controlled droplet retraction[J]. *Powder Technology*, 2021, **388**: 401–411.
- [27] 陈猛, 刘马林, 唐亚平, 等. 颗粒包覆过程的数值模拟方法比较研究[J]. *中国粉体技术*, 2018, **24**(1): 7–15.
- Chen M, Liu M L, Tang Y P, et al. Comparative study of numerical simulation method for particle coating process[J]. *China Powder Science and Technology*, 2018, **24**(1): 7–15.
- [28] Guo J N, Liu D Y, Ma J L, et al. Particle circulation and coating in a Wurster fluidized bed under different geometries[J]. *Powder Technology*, 2024, **433**: 119223.
- [29] Cheng X X, Turton R. The prediction of variability occurring in fluidized bed coating equipment (II): The role of nonuniform particle coverage as particles pass through the spray zone[J]. *Pharmaceutical Development and Technology*, 2000, **5**(3): 323–332.
- [30] Narita T, Hébraud P, Lequeux F. Effects of the rate of evaporation and film thickness on nonuniform drying of film-forming concentrated colloidal suspensions[J]. *The European Physical Journal E*, 2005, **17**(1): 69–76.
- [31] Grohn P, Heinrich S, Antonyuk S. Numerical investigation of the particle dynamics in a rotorgranulator depending on the properties of the coating liquid[J]. *Pharmaceutics*, 2023, **15**(2): 469.
- [32] Choi M M S, Meisen A. Sulfur coating of urea in shallow spouted beds[J]. *Chemical Engineering Science*, 1997, **52**(7): 1073–1086.
- [33] Tian Y, Yan Z F, Jiang L, et al. Multiscale models of CVD process: review and prospective[J]. *Materials*, 2024, **17**(20): 5131.
- [34] Li L, Rummelgas J, van Wachem B G M, et al. Effect of drag models on residence time distributions of particles in a Wurster fluidized bed: a DEM-CFD study[J]. *KONA Powder and Particle Journal*, 2016, **33**: 264–277.
- [35] Li L, Rasmuson A, Ingram A, et al. PEPT study of particle cycle and residence time distributions in a Wurster fluid bed[J]. *AIChE Journal*, 2015, **61**(3): 756–768.
- [36] Kariuki W I J, Freireich B, Smith R M, et al. Distribution nucleation: quantifying liquid distribution on the particle surface using the dimensionless particle coating number[J]. *Chemical Engineering Science*, 2013, **92**: 134–145.
- [37] Böhling P, Khinast J G, Jajcevic D, et al. Computational fluid dynamics-discrete element method modeling of an industrial-scale wurster coater[J]. *Journal of Pharmaceutical Sciences*, 2019, **108**(1): 538–550.
- [38] Rieck C, Bück A, Tsotsas E. Monte Carlo modeling of fluidized bed coating and layering processes[J]. *AIChE Journal*, 2016, **62**(8): 2670–2680.
- [39] Pandey P, Katakdaunde M, Turton R. Modeling weight variability in a pan coating process using Monte Carlo simulations[J]. *AAPS PharmSciTech*, 2014, **7**(4): 83.
- [40] KuShaari K, Pandey P, Song Y X, et al. Monte Carlo simulations to determine coating uniformity in a Wurster fluidized bed coating process[J]. *Powder Technology*, 2006, **166**(2): 81–90.
- [41] Yang Q L, Chen J L, Zhou X H, et al. Modeling of inter-tablet coating uniformity of electrostatic dry powder coating by discrete element method[J]. *Powder Technology*, 2022, **411**: 117929.
- [42] Ketterhagen W R. Modeling the motion and orientation of various pharmaceutical tablet shapes in a film coating pan using DEM[J]. *International Journal of Pharmaceutics*, 2011, **409**(1/2): 137–149.
- [43] Pasha M, Ghadiri M, Gunadi A, et al. Distinct element analysis of inter-particle coating variability in a batch seed coater[J]. *EPJ Web of Conferences*, 2017, **140**: 15035.

- [44] Madlmeir S, Forgber T, Trogrlic M, et al. Modeling the coating layer thickness in a pharmaceutical coating process[J]. *European Journal of Pharmaceutical Sciences*, 2021, **161**: 105770.
- [45] Norouzi H R. Simulation of pellet coating in Wurster coaters[J]. *International Journal of Pharmaceutics*, 2020, **590**: 119931.
- [46] Farivar F, Zhang H, Tian Z F, et al. CFD-DEM-DDM model for spray coating process in a Wurster coater[J]. *Journal of Pharmaceutical Sciences*, 2020, **109**(12): 3678–3689.
- [47] Fries L, Antonyuk S, Heinrich S, et al. DEM – CFD modeling of a fluidized bed spray granulator[J]. *Chemical Engineering Science*, 2011, **66**(11): 2340–2355.
- [48] Song Y Q, Liu N N, Fang R, et al. CFD-DEM simulation of the Wurster coating process with particle cohesion and heat and mass transfer[J]. *Applied Thermal Engineering*, 2025, **279**: 127542.
- [49] Deng A M, Tang T Q, Sun S S, et al. Particle coating growth behaviors in a spray fluidized bed based on gas-liquid-solid quasi-three-phase DEM numerical simulation[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2023, **476**: 146480.
- [50] Chen Z, Jiang L, Qiu M F, et al. CFD-DEM simulation of spouted bed dynamics under high temperature with an adhesive model[J]. *Energies*, 2021, **14**(8): 2276.
- [51] Liu M L, Chen M, Li T J, et al. CFD-DEM-CVD multi-physical field coupling model for simulating particle coating process in spout bed[J]. *Particuology*, 2019, **42**: 67–78.
- [52] Liu M L, Liu R Z, Chen M, et al. Preliminary simulation study of particle coating process by FB-CVD method using a CFD-DEM-PBM model[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2018, **329**: 53–59.
- [53] Li J F, Freireich B, Wassgren C, et al. A general compartment-based population balance model for particle coating and layered granulation[J]. *AIChE Journal*, 2012, **58**(5): 1397–1408.
- [54] Kumar R, Freireich B, Wassgren C. DEM-compartment-population balance model for particle coating in a horizontal rotating drum[J]. *Chemical Engineering Science*, 2015, **125**: 144–157.
- [55] Chen M, Chen Z, Tang Y P, et al. CFD-DEM simulation of particle coating process coupled with chemical reaction flow model [J]. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 2021, **19**(4): 393–413.
- [56] Griesbach C, Gerczak T, Zhang Y F, et al. Microstructural heterogeneity of the buffer layer of TRISO nuclear fuel particles [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2023, **574**: 154219.
- [57] Freireich B, Wassgren C. Intra-particle coating variability: analysis and Monte-Carlo simulations[J]. *Chemical Engineering Science*, 2010, **65**(3): 1117–1124.
- [58] Liu Z H, Ma H Q, Zhou L Y, et al. DEM-DDM investigation of the intra-tablet coating uniformity for tablets with different shapes[J]. *Powder Technology*, 2024, **438**: 119666.
- [59] Suzzi D, Radl S, Khinast J G. Local analysis of the tablet coating process: impact of operation conditions on film quality[J]. *Chemical Engineering Science*, 2010, **65**(21): 5699–5715.
- [60] Hilton J E, Ying D Y, Cleary P W. Modelling spray coating using a combined CFD-DEM and spherical harmonic formulation[J]. *Chemical Engineering Science*, 2013, **99**: 141–160.
- [61] Jiang L, Gong M, Lan R, et al. A novel heterogeneous binding model for simulating nuclear fuel particle FB-CVD coating process based on CFD-DEM concept[J]. *Particuology*, 2025, **103**: 1–17.
- [62] 韩方伟, 彭莹莹, 张金宜, 等. 抑尘液滴对煤表面动态润湿特征模拟评估方法[J]. *煤炭学报*, 2024, **49**(4): 1931–1940.
- Han F W, Peng Y Y, Zhang J Y, et al. Simulation and evaluation method of dynamic wetting characteristics of dust suppression droplets on coal surface[J]. *Journal of China Coal Society*, 2024, **49**(4): 1931–1940.
- [63] 张玉春, 王振波, 金有海, 等. 超短接触旋流反应器混合腔内气固混合特性的数值模拟[J]. *化工学报*, 2012, **63**(2): 424–432.
- Zhang Y C, Wang Z B, Jin Y H, et al. Numerical simulation on gas-solid mixing characteristics in mixing cavity of quick-contact cyclone reactor[J]. *CIESC Journal*, 2012, **63**(2): 424–432.
- [64] Schöning N, Briesen H. Intra- and interparticle coating homogeneity and minimum coating amount of hot melt coating products identified by Monte Carlo-model[J]. *Powder Technology*, 2026, **467**: 121506.
- [65] 赵永志, 程易, 金涌. 颗粒移动床内不稳定运动的计算颗粒动力学模拟[J]. *化工学报*, 2007, **58**(9): 2216–2224.
- Zhao Y Z, Cheng Y, Jin Y. Computational granular dynamics simulation of unsteady movement in particle moving bed[J]. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)*, 2007, **58**(9): 2216–2224.
- [66] Grohn P, Lawall M, Oesau T, et al. CFD-DEM simulation of a coating process in a fluidized bed rotor granulator[J]. *Processes*, 2020, **8**(9): 1090.
- [67] Li L, Remmelgas J, van Wachem B G M, et al. Residence time distributions of different size particles in the spray zone of a Wurster fluid bed studied using DEM-CFD[J]. *Powder Technology*, 2015, **280**: 124–134.
- [68] Song Y Q, Zhou T, Bai R Q, et al. Review of CFD-DEM modeling of wet fluidized bed granulation and coating processes[J]. *Processes*, 2023, **11**(2): 382.
- [69] Jiang Z C, Bück A, Tsotsas E. CFD-DEM study of residence time, droplet deposition, and collision velocity for a binary particle mixture in a Wurster fluidized bed coater[J]. *Drying Technology*, 2018, **36**(6): 638–650.
- [70] Ai J, Chen J F, Rotter J M, et al. Assessment of rolling resistance models in discrete element simulations[J]. *Powder Technology*, 2011, **206**(3): 269–282.
- [71] Oesterle B, Petitjean A. Simulation of particle-to-particle interactions in gas solid flows[J]. *International Journal of Multiphase Flow*, 1993, **19**(1): 199–211.
- [72] Jajcevic D, Siegmund E, Radeke C, et al. Large-scale CFD-DEM simulations of fluidized granular systems[J]. *Chemical Engineering Science*, 2013, **98**: 298–310.
- [73] Wang S, Shen Y S. CFD-DEM modelling of dense gas-solid reacting flow: recent advances and challenges[J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2025, **109**: 101221.