

离散系统通用动力学方程求解算法的研究进展*

赵海波[†] 郑楚光 徐明厚

华中科技大学煤燃烧国家重点实验室, 武汉 430074

摘要 离散系统中的颗粒物在凝并、破碎、冷凝 / 蒸发、成核、沉积等事件作用下颗粒尺度分布的时间演变由通用动力学方程所描述. 该方程为一典型的部分积分微分方程, 普通数值方法难以求解. 本文详细介绍了求解通用动力学方程的矩方法、分区法、离散法、离散 - 分区法、Monte Carlo 方法等几种算法的原理、优缺点和最新的研究进展, 并着重介绍了 Monte Carlo 算法, 包括基于时间驱动 Monte Carlo 方法、基于事件驱动 Monte Carlo 方法、常数目法、常体积法以及多重 Monte Carlo 算法.

关键词 通用动力学方程, 颗粒尺度分布, 矩方法, Monte Carlo 方法, 分区法, 离散 - 分区法, 离散法

1 引言

在许多自然和工业领域内, 存在着门类非常广泛的离散颗粒系统, 从自然环境中的气溶胶到燃烧过程中及其排放物中的可吸入颗粒物^[1], 从化工中的胶体系统到工业制备生产中的纳米粉体, 从喷雾燃烧中的小液滴到放矿过程的灰尘, 从水泥分解窑中的细微粉末到海水泡沫破灭形成的盐晶颗粒, 从流化床中的超细床料到火灾燃烧产生的烟雾碳黑, 从焊接过程中飞溅的金属颗粒到交变电场或者声场中的粉尘或烟尘^[2]等等. 无论是从抑制超细微颗粒物的生成和排放的角度^[3], 或者是从促进超细微颗粒物的产生和细化的角度, 人们都需要对超细微颗粒物的各种属性进行了解并控制其行为演变. 由于超细微颗粒物的光散射、电荷吸附、毒性、放射性、沉积率、捕捉策略等都与颗粒尺度分布紧密相关^[4], 所以其尺度分布模型便成为研究超细微颗粒物的一个关键. 影响颗粒尺度分布的主要机理有凝并(或团聚)、冷凝 / 蒸发(或生长)、破碎、成核(或化学反应)、沉积等事件, 如煤粉燃烧中细微颗粒的形成和演变主要由高温熔融状态下颗粒的凝并、灰袋破碎和成核(化学反应)等机理所主导^[5], 痕量元素在可吸入颗粒物上的富集则主要与温度下降过程中的冷凝过程以及凝并和成核机理等有关^[6], 飘尘在大气

中的生命周期由其沉积系数等主导^[7], 柴油机排放的可吸入颗粒物主要由于成核和凝并等机理形成^[8], 非球形硅颗粒在逆流扩散火焰中的生成机理主要为化学反应、凝并和冷凝^[9], 等等. 颗粒群受这些机理的作用使得其尺度分布随时间演变, 该过程可由经典的通用动力学方程 (general dynamic equation, GDE) 或称为粒数衡算方程 (population balance equation, PBE) 所描述, 作者总结该数学方程如下^[10]

$$\begin{aligned} \frac{dn_p(x_k, v, t)}{dt} = & \frac{\partial}{\partial x_k} \left(D \frac{\partial n_p(x_k, v, t)}{\partial x_k} \right) + \\ & \frac{\partial((u_{pk}(v, t) - u_{gk}(t) - c)n_p(x_k, v, t))}{\partial x_k} + \\ & \left\{ \frac{1}{2} \int_{v_{\min}}^v \beta(v-u, u)n_p(x_k, v-u, t)n_p(x_k, u, t)du - \right. \\ & \left. n_p(x_k, v, t) \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} \beta(v, u)n_p(x_k, u, t)du \right\} + \\ & \left\{ \int_v^{v_{\max}} \gamma(u, v)b(u)S(u)n_p(x_k, u, t)du - \right. \\ & \left. S(v)n_p(x_k, v, t) \right\} + \{J_0(v, t)\delta_{(v_{\min}, v)}\} - \\ & \left\{ \frac{\partial(I(v, t)n_p(x_k, v, t))}{\partial v} \right\} - \\ & \{R(v, t)n_p(v, t)\} + \{R_{\text{chemical}}\} + \{R_{\text{other}}\} \quad (1) \end{aligned}$$

收稿日期: 2004-09-30, 修回日期: 2005-06-24

* 国家重点基础研究专项经费 (2002CB211602) 和国家自然科学基金重点项目 (90410017) 资助项目

[†] E-mail: klinsmannzhb@163.com

其中 $n_p(\mathbf{x}_k, v, t)$ 表示时刻 t 、位置 \mathbf{x}_k ($k = 1, 2, 3$) 处、体积为 v 的颗粒在单位体积内的数目浓度, 量纲为 $\text{m}^{-3} \cdot \text{m}^{-3}$. u_g 为气流速度, u_p 为颗粒速度, D 为 Fick 颗粒扩散系数, c 为由外部作用力如重力引起的颗粒迁移速度. $\beta(v, u)$ 是体积分别为 v 和 u 的两颗粒的凝并核, 表示单位时间内两颗粒发生一次凝并事件的概率, 量纲为 $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. $S(u), S(v)$ 分别为体积为 u, v 的颗粒的破碎核或破碎速率 (量纲为 s^{-1}), 表示单位时间内体积为 u, v 的颗粒发生一次破碎事件的概率; $\gamma(u, v)$ 为体积为 u 的颗粒因破碎而产生体积为 v 的颗粒的概率; $b(u)$ 为体积为 u 的颗粒破碎产生的子颗粒的数目; $\gamma(u, v)b(u)$ 也称为子颗粒尺度分布函数. $J_0(v, t)$ 为体积为 v 的颗粒的成核核 (量纲为 $\text{m}^{-3} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$), 表示核体产生的速率. $I(v, t)$ 为体积为 v 的颗粒的冷凝 / 蒸发核 (量纲为 $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), 表示 t 时刻该颗粒的体积变化速率. $R(v, t)$ 为沉积核 (量纲为 s^{-1}), 表示体积为 v 的颗粒沉积的概率, $\delta_{(v_{\min}, v)}$ 为 Dirac delta 函数.

方程 (1) 的左边代表颗粒数目浓度的时间变化率, 方程 (1) 右边第 1 项代表扩散项, 第 2 项代表外力场和颗粒轨道滑移导致的颗粒产生源项, 右边剩下部分为各种物理化学过程导致的颗粒产生源项, 分别为第 3 项代表碰撞所导致的凝并过程, 第 4 项代表破碎, 第 5 项代表成核, 第 6 项代表冷凝 / 蒸发, 第 7 项代表沉积, 第 8 项代表化学反应导致的颗粒产生源项, 第 9 项代表未考虑的其他过程导致的颗粒产生源项, 如热泳、电泳、光泳等产生的颗粒数密度变化.

一般来说, 求解颗粒尺度分布函数的空间演变需要获得气相场和颗粒场的其他信息 (如气体介质和颗粒的速度场等), 但是在一般工程计算中认为系统充分混合, 颗粒场满足各向同性, 所以方程 (1) 中右边第 1 项可以忽略; 另外, 对于超细微颗粒物而言, 其流体跟随性非常好, 所以方程 (1) 中右边第 2 项也可以不予考虑. 基于此, 本文仅仅关注颗粒尺度分布的时间演变过程, 并主要考虑颗粒凝并、破碎、冷凝 / 蒸发、成核和沉积等 5 种主要机理, 此时描述颗粒尺度分布函数时间演变过程的 GDE 如下所示

$$\frac{\partial n_p(v, t)}{\partial t} = \left\{ \frac{1}{2} \int_{v_{\min}}^v \beta(v-u, u) n_p(v-u, t) n_p(u, t) du - n_p(v, t) \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} \beta(v, u) n_p(u, t) du \right\} +$$

$$\left\{ \int_v^{v_{\max}} \gamma(u, v) b(u) S(u) n_p(u, t) du - S(v) n_p(v, t) \right\} + \{ J_0(v, t) \delta_{(v_{\min}, v)} \} - \left\{ \frac{\partial (I(v, t) n_p(v, t))}{\partial v} \right\} - \{ R(v, t) n_p(v, t) \} \quad (2)$$

GDE 是描述颗粒尺度分布函数 $n_p(v, t)$ 的时间演化过程, 而颗粒的不同属性的分布函数在不同的工程应用中有特殊作用, 如研究气溶胶的光散射需要知道颗粒表面积分布函数, 研究锅炉静电除尘器的脱除效果则需要知道颗粒尺度分布函数等. 可以定义一个颗粒的某个属性的分布函数的通用表达式

$$q(v, t) = \alpha v^\gamma n_p(v, t)$$

这里 α 和 γ 为常数. 如果已知颗粒尺度分布函数 $n_p(v, t)$, 则颗粒其他属性的分布函数也可以随之得到. 如 $\alpha = 1$ 和 $\gamma = 0$, 则 $q(v, t)$ 就是颗粒尺度分布函数; 如果 $\alpha = \pi^{1/3} 6^{2/3}$ 和 $\gamma = 2/3$, 则 $q(v, t)$ 就是颗粒表面积分布函数; 如果 $\alpha = 1$ 和 $\gamma = 1$, 则 $q(v, t)$ 就是颗粒体积分布函数; 如果 $\alpha = 1$ 和 $\gamma = 2$, 则 $q(v, t)$ 就是颗粒体积平方分布函数.

通用动力学方程 (1) 和 (2) 是一个典型的部分积分微分方程, 尽管其数学描述能够建立起来, 但是这个方程不仅仅一般不存在理论分析解, 而且采用普通的数值方法 (如有限差分法、有限体积法等) 直接对其进行数学求解也极为困难, 且需要消耗大量的计算机时间和计算机内存. 另外, 对于多分散性的超细微颗粒而言, 由于粒径跨度很大, 粒径初始分布也各异, 各种机理对尺度分布的非线性影响各异, 这些更使得 GDE 的数值求解成为一个难点; 在控制 PSD 演化的各种机理中, 一般来说凝并机理最为广泛存在也最为重要, 考虑凝并的 GDE 的计算方法也最为复杂. 目前国际上最常见的 GDE 解法主要有矩方法、分区法、离散模型、离散 - 分区法和 Monte Carlo 法等, 很多方法主要考虑凝并机理下 GDE 的求解. 本文首先介绍了颗粒尺度分布时间演化过程中的一些特征, 然后详细地介绍了求解 GDE 的数值方法, 特别着重介绍了 Monte Carlo 方法以及作者发展的多重 Monte Carlo 算法.

2 颗粒尺度分布时间演化的特征

连续形式的颗粒尺度分布函数的 m 阶矩定义为

$$M_m = \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} v^m n_p(v, t) dv \quad (3)$$

显然 M_0 为与颗粒总数目 ($N(t)$), M_1 为颗粒总

体积 (对于单组分颗粒而言, 颗粒体积的描述等价于颗粒质量的描述), M_2 为颗粒体积平方。

在充分长时间之后, 在某种或者某几种机制作用下, 颗粒尺度分布将达到“自保持 (self-preserving)”分布, 即描述颗粒尺度分布的函数形式不再随时间而变, 且并不依赖于初始颗粒尺度分布的函数形式。Swift 和 Friedlander 的实验^[11] 证明不管初始颗粒尺度分布如何, 在足够长时间之后, 在布朗凝并机制的作用下, 颗粒尺度分布将达到自保持分布。Hidy 的数值模拟^[12] 表明达到自保持状态的时间与初始分布有关, 但是不管初始分布如何都将达到自保持分布。

对于初始单分散性颗粒, 在常凝并核 ($\beta(u, v) = A$, A 为常数) 的机制作用下, Friedlander 等^[13] 经过数学分析认为, 在足够长的时间之后, 颗粒尺度分布函数将达到自保持分布, 并符合指数形式的数学表达式。

对于初始单分散性颗粒, 在连续区布朗凝并核 ($\beta(u, v) = K(u^{1/3} + v^{1/3})(1/u^{1/3} + 1/v^{1/3})$, K 为布朗常数) 的机理作用下, Friedlander 等^[13] 经过数学分析认为, 在足够长的时间之后, 颗粒尺度分布函数也将达到自保持分布, 且颗粒尺度分布曲线非常类似于对数正态曲线。此时的尺度分布曲线, 特别是颗粒粒径较小的下端区域的分布曲线, 非常明显地受凝并核的影响。

Friedlander 等^[13] 得到的自保持尺度分布数学表达式是 GDE 研究工作的一个里程碑, 可极好地帮助人们理解颗粒物凝并机制下的演变规律, 也大量地被应用于检验求解 GDE 的数值算法。另外, Hidy 等^[12,14] 研究了初始单分散性分布的颗粒在连续区布朗凝并核的机制作用下达到自保持分布的延迟时间或滞后时间 (time-lag); Vemury 等^[15] 探讨了初始对数正态分布的颗粒群在分别考虑连续区布朗凝并和自由分子区布朗凝并时 PSD 达到自保持分布的延迟时间。

3 矩方法 (moments of method)

矩方法是描述颗粒尺度分布函数的矩的演变过程的方法。一般可假设沉积核满足^[16]

$$R(v, t) = A_R v^a + B_R v^b$$

冷凝 / 蒸发核满足^[17]

$$I(v, t) = E_I v^e$$

其中 A_R, B_R, E_I 均为颗粒体积, v 无关的参数, a, b, e 为常数。

此时, 在方程 (2) 两边均乘以 v^m , 且在最小和最大颗粒体积之间对颗粒体积进行积分, 就得到了尺度分布函数的矩方程^[18~19]

$$\begin{aligned} \frac{dM_m}{dt} = & \frac{1}{2} \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} \beta(v, u) [(u+v)^m - u^m - v^m] \times \\ & n_p(v, t) n_p(u, t) dudv + \\ & \left\{ \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} \int_v^{v_{\max}} \gamma(u, v) S(u) n_p(u, t) v^m dudv - \right. \\ & \left. \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} S(v) n_p(v, t) v^m dv \right\} + \\ & J_0(v, t) v^m \delta_{(v_{\min}, v)} + m E_I M_{m+e-1} - \\ & (A_R M_{m+a} + B_R M_{m+b}) \end{aligned} \quad (4)$$

矩方法一般可得到尺度分布的一些平均信息, 如颗粒总数目、平均尺度、多分散程度 (PSD 的几何标准偏差) 等, 从而通过假设的参数化形式的颗粒尺度分布函数而得到颗粒尺度分布的时间演变过程。

为了求解方程 (4), 矩方法一般只能针对特定函数形式的颗粒尺度分布进行求解, 如假设初始颗粒尺度分布曲线为对数正态分布^[20]、伽马分布^[21] 等, 并认为颗粒尺度分布在其后的演变过程中仍然保持同样的函数形式, 即认为已经达到了自保持状态; 或者假设初始颗粒尺度分布单分散性^[22]; 或者对凝并核进行一阶 Taylor 扩展^[23] 等。

矩方法是一种分析方法, 它被广泛地应用于得到颗粒尺度分布函数随时间演变过程的理论分析解。Lee 和 Park 及其合作者广泛利用这类方法, 得到了特殊核函数形式时一系列的理论分析解, 如分别考虑非规则颗粒和考虑颗粒滑移修正的连续区、自由分子区和过渡区布朗凝并工况的近似解^[20,24~30], 考虑布朗扩散和重力沉降机制的沉积核工况的理论解^[16], 湿去除机制下的沉积核工况的理论解^[31,32], 冷凝 / 蒸发核工况的理论解等^[33,34] 和电厂静电除尘器中颗粒的沉积机制的工况下的理论分析解^[35] 等, 限于篇幅, 不再赘述。

总之, 矩方法计算量小, 但数学模型复杂, 较难推导, 一般需预先设定初始的颗粒尺度分布函数和便于求解的特殊形式的核函数, 且因不能得到颗粒的历史经历效应而丢失颗粒演变的内部细节信息。矩方法由于需要假设颗粒尺度分布已经达到自保持状态, 所以无法描述达到自保持状态之前的过程, 如由于化学反应而生成颗粒的过程等。但是很多工程和自然界工

况中颗粒群服从对数正态或者伽马分布, 所以矩方法仍然有较广泛的应用范围, 而且利用矩方法所推导得到的特定尺度分布形式和特定核函数形式下的理论分析解可作为其他数值方法的参照.

4 分区法 (sectional method)

分区法把颗粒尺度分布曲线进行离散, 划分为有限数目的 m 个区间, 认为每个区间内颗粒尺度分布满足一个统一的分布函数 (如假设每个区间内颗粒满足单分散性分布), 在每个区间内针对某个颗粒属性的分布函数, 建立平衡方程, 联立求解这些平衡方程, 可以得到某个颗粒属性的分布函数随时间的演变过程.

分区边界一般如下确定

$$v_{k+1} = f_s v_k, \text{ 一般 } 1.08 \leq f_s \leq 3.0$$

如果需要求解的颗粒尺度分布的初始体积范围为 $[v_{\min}, v_{\max}]$, 则需要的分区数目为 $m = \lceil \lg(v_{\max}/v_{\min}) / \lg(f_s) \rceil$.

定义 Q_l 为第 l 个区间内颗粒某个属性的分布函数 $q(v, t)$ 的积分变量, 即

$$Q_l = \int_{v_{l-1}}^{v_l} q(v, t) dv = \int_{v_{l-1}}^{v_l} \alpha v^\gamma n_p(v, t) dv \quad (5)$$

其中 v_l 和 v_{l-1} 分别为第 l 个尺度区间的上边界和下边界. 在分区法中, 基于某个选定的颗粒属性的分布函数, 在每个区间内, 推导出该属性的平衡方程, 所有区间的平衡方程组成一个封闭的方程组. 文献 [36] 认为基于颗粒体积平方这个属性 (v^2 -based) 的分区法精度最高, 此时 $q(v, t) = v^2 n_p(v, t)$. 如果仅考虑凝并机理, 则对于第 l 个分区, Q_l 的平衡方程为 [37]

$$\frac{dQ_l}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{l-1} \sum_{j=1}^{l-1} {}^1\bar{\beta}_{i,j,l} Q_i Q_j - Q_l \sum_{i=1}^{l-1} {}^2\bar{\beta}_{i,l} Q_i - \frac{1}{2} {}^3\bar{\beta}_{l,l} Q_l^2 - Q_l \sum_{i=l+1}^m {}^4\bar{\beta}_{i,l} Q_i \quad (6)$$

其中 ${}^1\bar{\beta}_{i,j,l}$, ${}^2\bar{\beta}_{i,l}$, ${}^3\bar{\beta}_{l,l}$, ${}^4\bar{\beta}_{i,l}$ 为区间内部或者跨区间的凝并系数, 可参照文献 [37]. 其中方程右边第 1 项表示分别位于 i 和 j 分区的两个较小颗粒凝并而生成位于 l 区的一个较大颗粒; 第 2 项表示第 l 区的颗粒与位于 i 区的较小颗粒凝并而导致了该 l 区颗粒的净损失; 第 3 项为第 l 区的颗粒与位于 l 区的颗粒凝并而导致了该 l 区颗粒的净损失; 第 4 项为第 l 区的颗粒与和与位于 i 区的较大颗粒凝并而导致了该 l 区颗粒的净损失.

求解方程组 (6) 时, 首先需要计算每个区间的凝并系数, 每个区间需要计算的 ${}^1\bar{\beta}_{i,j,l}$ 为 $m(m-1)/2$ 个, 需要计算的 ${}^2\bar{\beta}_{i,l}$ 和 ${}^4\bar{\beta}_{i,l}$ 均为 $m(m-1)/2$ 个, 需要计算的 ${}^3\bar{\beta}_{l,l}$ 为 m 个, 所以总共需要计算的凝并系数为 $(m^3 + 6m^2 - m)/6$ 个. 显然如果分区数目过多, 所需要的计算机内存和计算代价均急剧增长.

为了使分区法的精度和计算代价取决于所采用的分区的数目、在具体区间内所建立的某个颗粒属性的分布函数的平衡方程、以及对尺度分布的低端部分 (颗粒粒径较小的部分) 的处理等. 但是一般来说, 分区数目越多, 计算代价越大, 计算精度越高.

分区法得到了进一步的发展. Hounslow 等 [38,39] 通过一个特殊的离散规则把 GDE 这个部分积分微分方程转变为一个普通差分方程, 简化了分区算法, 可以容易地利用传统的有限差分技术来求解 GDE 的时间演变. Xiong 等 [40,41] 和 Jeong 等 [42] 发展了二维分区法, 能够同时求解不规则颗粒的体积和表面积分布函数. 分区法在工程实际应用中得到了较为广泛的发展, 特别是考虑凝并和成核机制 [40,42] 时, 对于沉积和冷凝 / 蒸发机制也可以处理 [43,44].

总的说来, 分区法计算量较小, 计算精度较高, 能够协调计算代价和计算精度, 但难于处理多组分工况, 包含化学反应等过程无法描述, 且算法复杂以至需要花费大量的时间进行算法推导和程序编制, 处理粒径分布很广的多分散性颗粒也不方便.

5 离散法 (discrete method)

离散模拟的思路很简单, 那就是对每一个尺度的颗粒粒径建立离散的普通差分方程 (ODEs), 描述某些机制作用下这些颗粒的数目浓度的时间演变过程, 并联合求解这些离散方程组. 这种方法不需要对颗粒的初始尺度分布作任何假设, 并且可避免积分运算. 但是本方法最大的问题在于计算时间和所需计算机内存的限制, 因为离散差分方程的数目理论上来说是无限多的, 即使把本方法的对象即颗粒限定在一定的尺度范围, 仍然有为数不少的颗粒类别. 假如特定时刻颗粒平均尺度为初始时刻颗粒平均尺度的 10^5 倍, 则颗粒类别至少需要划分为 10^5 个, 当存在凝并事件的时候, 由于需要预先计算凝并核 $\beta_{i,j}$, 则需要的计算机内存为 $10^5 \times 10^5$, 也就是说大约需要 10 G 内存, 联合求解 10^5 个离散方程组也需要耗费大量的 CPU 时间, 这对于一般的计算机是不可能的.

对于同时发生的凝并和成核, 假设成核体 (一般认为是尺度分布中颗粒粒径最小的颗粒, 即 v_{\min}) 的

生成速率正比于前驱体数目浓度 $C_{\text{pre}}(t)$ 的一次方, 可以建立如下离散差分方程组 [45]

$$\begin{aligned} \frac{dn_{p1}}{dt} &= J_0(v, t)\delta_{(v_{\min}, v)} - n_{p1} \sum_{j=1}^{\infty} \beta_{1,j} n_{pj} = \\ &C_{\text{pre}}(0)A_v K_N \exp(-K_N t) - n_{p1} \sum_{j=1}^{\infty} \beta_{1,j} n_{pj} \\ \frac{dn_{pi}}{dt} &= \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} \beta_{j,i-j} n_{pj} n_{p,i-j} - n_{pi} \sum_{j=1}^{\infty} \beta_{i,j} n_{pj} \end{aligned} \quad (7)$$

其中 K_N 为成核速率, A_v 为阿佛加得罗 (Avogadro) 常数.

离散法由于其高计算精度可以作为其他方法的一个检验标准, 或者用于考察尺度分布达到自保持分布的过程, 但是由于其巨大的计算代价而很少工程实际应用.

6 离散 - 分区法 (discrete-sectional method)

分区法有着计算代价较低而计算精度尚可的优点, 但是对于尺度分布的低端部分, 分区法的计算精度并不高, 而离散法则对于尺度分布的任何部分都有着极高的计算精度, 但是同时也需要很高的计算代价. 如果只对尺度分布范围较为狭窄的低端部分采用离散法, 而其余部分采用分区法求解, 则新算法的计算代价仍然可以接受而计算精度在低端部分的缺陷将得到弥补. 离散 - 分区法正是基于以上考虑而发展起来的, 它结合了两种方法的优点, 同时尽量避免了各自的缺点.

颗粒尺度分布被划分为 i_{\max} 个离散尺度和 m 个区间, GDE 在分区尺度区域 (sectional size regime, SSR) 被写成某个颗粒属性 (如数目、表面积、体积、质量或者颗粒体积的平方) 的函数 $W_k (W_k = \alpha v_k^\gamma n_{pk})$ 的形式, 在离散尺度区域 (discrete size regime, DSR) 写成某个颗粒属性的函数 $w_i (w_i = \alpha v_i^\gamma n_{pi})$ 的形式. 假如仅仅考虑同时发生的凝并和成核机理, 则在离散尺度区域, 成核体 (肯定位于离散尺度区域) 的某个颗粒属性 w_1 的平衡方程写为 [36,46]

$$\begin{aligned} \frac{dw_1}{dt} &= \alpha v_{\min}^\gamma C(0)A_v k_N \exp(-k_N t) - \\ &w_1 \sum_{j=1}^{i_{\max}} \beta_{1,j}^* w_j - w_1 \sum_{k=1}^m {}^4\beta_{1,k}^D W_k \end{aligned} \quad (8)$$

对于离散尺度区域的其他颗粒 ($i = 2, \dots, i_{\max}$), w_i

的平衡方程相应为 [36,46]

$$\begin{aligned} \frac{dw_i}{dt} &= \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} \beta_{i-j,j}^* w_{i-j} w_j - \\ &w_i \sum_{j=1}^{i_{\max}} \beta_{i,j}^* w_j - w_i \sum_{k=1}^m {}^4\beta_{i,k}^D W_k \end{aligned} \quad (9)$$

在分区尺度区域, 对于第 1 个分区, W_1 的平衡方程为 [36,46]

$$\begin{aligned} \frac{dW_1}{dt} &= \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{i_{\max}} \sum_{j=1}^{i_{\max}} {}^1\beta_{i,j,1}^{DD} w_i w_j - \\ &W_1 \sum_{i=1}^{i_{\max}} {}^2\beta_{i,1}^D w_i + W_1 \sum_{i=1}^{i_{\max}} {}^5\beta_{i,1}^D w_i - \frac{1}{2} {}^3\beta_1 W_1^2 + \\ &\frac{1}{2} {}^6\beta_1 W_1^2 - W_1 \sum_{i=2}^m {}^4\beta_{1,i} W_i \end{aligned} \quad (10)$$

对于第 k 个区 ($k=2, \dots, m$), W_k 的平衡方程为 [36,46]

$$\begin{aligned} \frac{dW_k}{dt} &= \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{i_{\max}} \sum_{j=1}^{i_{\max}} {}^1\beta_{i,j,k}^{DD} w_i w_j + \\ &\sum_{i=1}^{i_{\max}} \sum_{p=1}^{k-1} {}^1\beta_{i,p,k}^D w_i W_p + \\ &\frac{1}{2} \sum_{i=1}^{k-1} \sum_{j=1}^{k-1} {}^1\beta_{i,j,k} W_i W_j - W_k \sum_{i=1}^{i_{\max}} {}^2\beta_{i,k}^D w_i - \\ &W_k \sum_{i=1}^{k-1} {}^2\beta_{i,k} W_i + W_k \sum_{i=1}^{i_{\max}} {}^5\beta_{i,k}^D w_i + \\ &W_k \sum_{i=1}^{k-1} {}^5\beta_{i,k} W_i - \frac{1}{2} {}^3\beta_k W_k^2 + \\ &\frac{1}{2} {}^6\beta_k W_k^2 - W_k \sum_{i=k+1}^m {}^4\beta_{i,k} W_i \end{aligned} \quad (11)$$

其中的各种凝并系数可参照文献 [46] 或者文献 [36]. 值得注意的是, Yu 等 [47] 通过对自由分子区布朗凝并核进行二项式扩展而大大减少了分区之间的凝并系数的计算代价.

分区边界仍然如下确定:

$$v_{k+1} = f_s v_k, \text{ 一般 } 1.08 \leq f_s \leq 3.0$$

Landgrebe 等 [36] 认为基于颗粒体积平方这个属性 (v^2 -based) 的离散分区模型计算精度更高, 且 f_s 越小, 精度越高; 当 $f_s = 1.5$ 时, 为计算精度和计算代价的最优化处. 离散 - 分区模型的时间步长限定在 $\Delta t \leq 200\tau_C$ 以避免积分误差, 其中 τ_C 为颗粒凝并特征时间尺度.

离散 - 分区模型具备较好的计算精度和计算代价, 不需要假设初始颗粒尺度分布, 能够模拟尺度分布来达到自保持的过程, 使其在工程应用中得到了较为广泛应用. 如 Yu 等^[47] 发展了一个二维的离散 - 分区模型^[48], 并利用其研究氢氧扩散火焰中金属铬颗粒的生成^[49] 和高温气冷堆中石墨尺度的估计^[50] 等. 但是该方法仍然继承了分区法算法复杂和难以处理多组分、多维等工况, 也无法得到颗粒的内部结构信息, 如不规则度等, 这些缺陷限制了其应用范围. 随着计算机速度的急速增长, 发展那些算法简单易编程实现而计算代价较高的算法, 比那些算法非常复杂难于编程实现但是计算代价较低的算法, 要更有优势或者说越来越有优势, 这实际上就是相当于把编程的时间转移到计算机进行计算的时间上.

7 Monte Carlo(MC) 算法

以上描述的 4 种数值方法都是直接以 GDE 为求解对象, 实际上, GDE 的建立是基于某个物理模型的. GDE 求解的主要困难在于其部分积分微分, 它一般需要对颗粒尺度分布进行离散 (矩方法除外), 而 Monte Carlo 方法有着天生的离散特性, 而且它不同于以上那些直接以 GDE 本身为求解对象的方法, 它直接以所描述对象 (超细微颗粒物) 的物理模型为基础, 与描述超细微颗粒物的 GDE 具备同样的假设 (馄饨和稀疏假设), 这使得 Monte Carlo 方法有望成为一种更“纯”、更“真”、更接近物理模型的一种描述颗粒尺度分布演变过程的途径. 求解颗粒尺度分布的 MC 方法脱胎于求解描述稀薄气体动力学的 Boltzmann 方程 (过渡区域) 的直接模拟 Monte Carlo 算法^[51], 这个算法有着坚实的理论基础^[52]; 沈青在其著作^[53] 中对直接模拟 MC 方法有详细描述. 而 Fichthorn 等^[54] 则证明, 对于求解 GDE 的 Monte Carlo 算法, 只要满足 3 个条件, 则 Monte Carlo 方法能够准确地描述颗粒尺度分布的演变过程: (1) 所考虑的动力学事件的概率能够符合系统细节平衡准则 (detailed-balance criterion); (2) 每个成功的事件所导致的时间步长能够恰当计算出; (3) 能够实现组成系统的不同事件的有效的相互独立.

Monte Carlo 法的优点是能得到颗粒的轨道历史效应和历史效应, 从而能够得到颗粒内部结构的细节信息, 可以方便处理多组分、多分散性颗粒, 算法相对较简单, 易于编程实现, 对于复杂的颗粒演变如结构重建 (或团聚)^[55]、不规则形状颗粒^[56]、多维系统^[56,57]、多组分系统^[58]、包覆甚至化学反应等^[59] 均能处理. 另外, 求解 GDE 的 MC 方法存在着与

考虑两相流场动力学演变的两相流模型兼容耦合的扩展性, 此时需要基于如下基本假设^[60]: 在一个充分小的时间步长内, 颗粒的演化过程能够解耦, 分散成两个截然不同的过程, 即扩散过程和凝并、破碎等事件的发生过程 (实际上就是 GDE 的求解过程). 但是, Monte Carlo 法的缺点是计算代价较大, 计算精度难于保证, 这是由于凝并、破碎、成核、沉积等事件导致计算区域内颗粒总数目不断波动, 即 MC 方法的取样空间不断变动. 但是, 随着计算机计算能力的增强和计算方法的改进, 计算代价大和计算精度难于保证的矛盾也有望得到缓解, 这使得 Monte Carlo 方法的优势越来越明显. 需要强调的是, 目前各种求解 GDE 的 Monte Carlo 方法并不是直接对单个颗粒在真实空间中依据颗粒轨道进行随机模拟, 而是通过一些随机过程来描述颗粒的各种事件发生的过程. 下面简单介绍几类 Monte Carlo 方法.

7.1 时间驱动 (time-driven) Monte Carlo 方法

基于时间驱动的 Monte Carlo 算法的模拟思路就是, 在设定的时间步长范围内, 考虑所有颗粒可能会发生的各种事件如凝并、破碎、成核、冷凝 / 蒸发等, 这个时间步长要小于等于计算区域内任一颗粒平均发生一次任一事件的最小时间尺度, 时间步长应当是可调的.

Liffman^[61] 通过一个两步方法来实现时间驱动 Monte Carlo 方法. 首先, 设置时间步长 Δt . 控制容积 V 内, 单位时间内第 i 个颗粒与其它任何不同于其的颗粒发生一次凝并的总概率为

$$CT_i = \sum_{j, j \neq i} \beta_{ij} \approx \sum_j \beta_{ij}$$

所以, 颗粒 i 在两次凝并事件之间的间隙时间 (或称为静止时间) τ_i 为 $\tau_i = 1/CT_i = 1/\sum_j \beta_{ij}$. 当尺度分布随时间演变时, τ_i 不断变化, 导致时间步长 Δt 也不是一个严格的定值. 时间步长 Δt 必须实时改变, 并认为是所有 τ_i 的最小值, 为了增加 MC 循环次数以提高计算精度, 再乘以一个小于 1 的常数因子 α , 所以时间步长一般设置为 $\Delta t^{\text{new}} = \alpha \min(\tau_i|_{t-\Delta t})$.

第二步, 该 MC 轮流检查每颗颗粒是否将与其他颗粒发生凝并以及判断具体与哪颗颗粒发生凝并. τ_i 满足指数分布, 因此单个颗粒 i 在时间步长 Δt 内与其他任意颗粒发生凝并的概率 $Pr_i(\Delta t)$ 为

$$Pr_i(\Delta t) = 1 - \exp[-\Delta t/(2\tau_i)] \approx \Delta t/(2\tau_i) \quad (12)$$

在这里, 由于同一个凝并事件 (如颗粒 i 和颗粒 j 发生凝并) 将会被检测到两次, 并且每一次凝并事件的后果处理都完全体现了一次真实的凝并事件的

结果, 为了避免重复统计, 在分母里面添加因子“2”, 这相当于把颗粒 i 的凝并概率减半.

当判断颗粒 i 是否发生凝并时, 首先产生一个满足均匀分布、位于 $[0, 1]$ 区间的随机数 r_1 (注: 在下文中, 所有随机数均满足均匀分布, 且位于 $[0, 1]$ 区间, 不再重复申明), 然后如果满足 $r_1 < Pr_i(\Delta t^{new})$, 则颗粒 i 将发生凝并.

一旦确定颗粒 i 将发生凝并, 接下来需要判定其凝并伙伴. 首先计算这颗颗粒 i 与任何其他颗粒 j 发生凝并的概率如下

$$P_{ij} = \beta_{ij} / \sum_{k=1, k \neq i}^{\infty} \beta_{ik} \approx \beta_{ij} / \sum_{k=1}^{\infty} \beta_{ik} \quad (13)$$

然后如果 $\sum_{j=1}^{k-1} P_{ij} \leq r_2 \leq \sum_{j=1}^k P_{ij}$, 则 i 和 k 发生凝并. 其中 Liffman^[61] 认为 r_2 为另外一个单独生成的随机数, 而 Nanbu^[62] 则证明, r_2 应当等于 r_1 .

在对凝并结果进行处理时, 注意几点: (1) 在一个时间步长范围内, 每一颗颗粒都需要检测是否发生凝并, 不管其是否检测过已经与某个颗粒发生过凝并, 如果其发生凝并, 则需要选择凝并伙伴; (2) 对每一次检测到的凝并事件的处理都完全体现一次真实凝并过程, 即使该凝并事件理论上将被重复检测到; (3) 每一次检测到的凝并事件的处理结果在该时间步长范围内并不立即体现结果, 而是要等待所有颗粒都循环完毕再来体现凝并结果. 所以每次凝并事件的凝并结果需要储存在一个临时数列中; (4) 当子系统内颗粒数目降低时, MC 将出现较大的统计误差, 为了克服这个问题, 当子系统内颗粒数目为初始时刻颗粒数目的一半时, 由于假设子系统完全代表整体系统, 可以把子系统体积扩大一倍, 使得子系统内的颗粒数目恢复为初始时刻颗粒数目, 保证统计误差.

假设 θ_{MC} , θ_{PSD} 分别为 MC 结果和理论分析解, 则可定义相对误差为

$$\delta = (\theta_{MC} - \theta_{PSD}) / \theta_{PSD}$$

在 Liffman^[61] 的时间驱动 Monte Carlo 方法中, 当子系统内颗粒数目降为原来一半时, 通过拷贝现有颗粒的复制体来恢复子系统内颗粒数目, 虽然这种操作对随机变量的期望值和几何标准偏差不会产生影响, 但是将增大相对误差, Liffman^[61] 通过数值模拟发现, 相对误差符合如下关系式 $\delta < 2/N(t)^{1/2}$, $N(t)$ 为子系统内模拟颗粒数目.

值得指出的是, 由于几乎所有的颗粒相湍流模型的数值求解均是基于时间驱动的模式, 所以该类

MC 方法存在考虑颗粒空间扩散以及颗粒拉格朗日轨迹跟踪的扩展性. 另外, 对于颗粒破碎、冷凝 / 蒸发、成核、沉积等机制, 目前很少有文献报道基于时间驱动的 Monte Carlo 对其的解决方案, 但是作者在其后的多重 Monte Carlo 算法的描述中可证明基于时间驱动的 MC 可解决这些问题.

7.2 事件驱动 (event-driven) Monte Carlo 方法

从时间尺度的设定方面看, MC 方法可分为两大类: 一类就是以上描述的基于时间驱动的 Monte Carlo 算法, 另外常见的一类是基于事件驱动的 Monte Carlo 算法^[60]. 基于事件驱动的 MC 方法的思路是, 首先从对应事件的平均速率推导出该事件的发生概率, 然后依据事件的发生概率来随机选定判断可能发生的事件类型, 并实现该事件, 然后计算该事件发生的时间长度, 如碰撞时间、成核时间等, 前进相应的时间长度, 不断循环往复, 直至稳定或者达到设定时间. 基于事件驱动的 MC 方法不需要进行精确的时间窗口离散.

基于事件驱动的 MC 方法中最重要的步骤是确定具体发生何种事件、计算两事件之间的时间长度 (或称为静止时间) 和对该事件的处理 (如选择凝并颗粒对等).

对于同时发生几个事件的工况, 需要首先依据事件的发生概率来随机选定判断可能发生的事件类型. 表 1 为几种常见的事件 (或者过程) 的发生概率^[63]. 假如一个系统同时存在几种事件类型, 则对于某个特定事件 l , 其发生的概率 P_l 为 $P_l = R_l / \sum_i R_i$. 例如对于同时发生的凝并、破碎和成核系统, 可首先计算 P_{coag} 、 P_{brk} 和 P_{nuc} , 如果一个随机数 r_3 满足: $0 \leq r_3 \leq P_{coag}$, 则认为将发生凝并事件, 如果 $P_{coag} < r_3 \leq P_{coag} + P_{brk}$, 则认为将发生破碎事件; 如果 $P_{coag} + P_{brk} < r_3 \leq 1$, 则认为将发生成核事件.

表 1 中, R_{event} 为对应事件单位体积、单位事件内发生一次的概率; r_{event} 为无量纲化的事件发生概率; z_{event} 为对应事件发生一次所导致的颗粒数目的变化量; δv_{event} 为对应事件发生一次所导致的颗粒质量的变化量; τ_{event} 为对应事件的特征时间尺度; C 为实际颗粒数目浓度, C_* 为特征颗粒数目浓度 ($1/m^3$), c 为无量纲的、特征化的颗粒数目浓度; K_C 、 K_B 、 K_S 、 K_D 等分别为凝并核 β_{ij} 、破碎核 S_i 、冷凝 / 蒸发核 I_i 、沉积核 R_i 等的量纲部分, 而 k_{Cij} 、 k_{Bi} 、 $A_i C_S$ 、 k_{Di} 等分别为其对应的无量纲部分; K_N 为成核速率, A_v 为 Avogadro 常数, $C_{pre}(t)$ 为前驱体的数目浓度.

第 k 次事件与第 $k-1$ 个事件之间的时间间隔 (或称为静止时间) 为^[64]

$$\Delta t_k = \frac{1}{V_{k-1} \sum_i R_{i,k}} = \frac{1}{\sum_i r_{i,k}} \frac{c_{k-1}}{N_{k-1}} \quad (14)$$

V_{k-1} 为 $k-1$ 时刻计算区域的体积 ($V_{k-1} = N_{k-1}/C_{k-1}$), N_{k-1} 为 $k-1$ 时刻计算区域颗粒总数目, c_{k-1} 为计算区域无量纲的颗粒数目浓度 ($= C_{k-1}/C_*$).

表 1 几种常见事件的发生概率

事件类型	$R_{\text{event}} \text{ (m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}\text{)}$	$r_{\text{event}} = R_{\text{event}}/C_* \text{ (s}^{-1}\text{)}$	z_{event}	δv_{event}	定义
凝并	$\frac{1}{2} \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} \beta(u, v) \cdot n_p(u, t) n_p(v, t) du dv$	$\langle k_{Cij} \rangle c^2 / (2\tau_C)$	-1	0	$\beta_{ij} = K_C k_{Cij}$ $\tau_C = 1/(K_C C_*)$ $c = C/C_*$
破碎 (b 个子颗粒)	$\int_{v_{\min}}^{v_{\max}} S(u) n_p(u, t) du$	$\langle k_{Bi} \rangle c / \tau_B$	$b-1$	0	$S_i = K_B k_{Bi}$ $\tau_B = 1/K_B$
冷凝 / 蒸发	$C_s K_s \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} A(v, t) n_p(v, t) dv$	$\langle a \rangle c c_s / \tau_S$	0	$\pm v_{\text{sur}}$	$I_i = K_S A_i C_S$ $a = A_i/A_*$ $\tau_S = 1/(K_S A_* C_*)$ $c_S = C_S/C_*$
成核	$J_0(v, t) \delta_{(v_{\min}, v)} = K_N C_{\text{pre}}(t) A_v$	$c_{\text{pre}} A_v / \tau_N$	1	v_{nuc}	$\tau_N = 1/K_N$ $c_{\text{pre}} = C_{\text{pre}}/C_*$
沉积	$\int_{v_{\min}}^{v_{\max}} R(v, t) n_p(v, t) dv$	$\langle k_{Di} \rangle c / \tau_D$	-1	$-v_{\text{dep}}$	$c = C/C_*$, $R_i = K_D k_{Di}$, $\tau_D = 1/K_D$
流入 / 流出	FC_{FS}/V_R	c_{FS}/τ_{FS}	± 1	$\pm v_i$	$\tau_{FS} = V_R/L'$ $c_{FS} = C_{FS}/C_*$

如果仅仅只考虑颗粒凝并事件, 则无需判定具体发生的事件类型, 但是发生凝并事件的时间长度和凝并对的选择仍然是难点, Garcia^[60] 利用一个标准的 Markov 过程来描述凝并过程.

首先, 认为发生凝并事件的时间长度 (即两次凝并事件之间的时间间隔) τ 是满足指数分布的随机变量. 假设 W_Σ 为控制容积内颗粒间的总凝并概率, $W_\Sigma = \sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N \beta_{ij} = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1, j \neq i}^N \beta_{ij} / 2$, 则 τ 满足如下分布: $P(\tau) = W_\Sigma \exp(-W_\Sigma \tau)$. 此时 τ 的数学期望值为 $\langle \tau \rangle = 1/W_\Sigma$.

第二步就是寻找凝并颗粒对. 两颗颗粒 i 和 j 发生凝并的概率 P_{ij} 正比于凝并核 β_{ij} , 也就是 $P_{ij} = \beta_{ij}/W_\Sigma$.

这样, 两个概率分布 $P(\tau)$ 和 P_{ij} 完全决定了 Markov 随机过程. 通过求解此 Markov 随机过程可

以描述颗粒的凝并过程. Garcia^[60] 发展了两种方法来实现颗粒的凝并过程.

方法 1: 倒数法 (inverse method)

该方法适用于网格内颗粒数目不太多的情况. 该方法分为两步. 首先计算得到发生凝并事件的时间步长如下: $\tau = -\ln r_1/W_\Sigma$, r_1 为随机数. 第二步是选择凝并颗粒对. 对于随机数 r_2 , 如果 $\sum_{k=1}^{j-1} P_{ik} \leq r_2 \leq \sum_{k=1}^j P_{ik}$, 则 i 和 j 发生凝并. 这种倒数法对于有着离散状态序列的概率分布是精确的.

方法 2: 接收 - 拒绝法 (acceptance-rejection method)

当计算区域内颗粒数目太多时, 计算颗粒间的总凝并概率 W_Σ 所耗费的计算代价将非常巨大, 为了减少计算代价, Garcia^[60] 发展了一种近似方法, 即

接收 - 拒绝法, 该方法也分为两步. 首先通过一个随机过程选定一对颗粒, 如果 $r_1 < \beta_{ij} / \max\{\beta_{ij}\}$, 则认为 i 和 j 发生凝并. 如果这个关系式不能满足, 则重新随机选择一对颗粒, 并且需要重新产生一个随机数 r_1 , 重新判定该对颗粒是否发生碰撞, 直到选定一对将发生凝并的颗粒对为止. 如果 β_{ij} 的最大值过大, 那么该方法的效率并不高, 因为关于一对颗粒是否凝并的判断中拒绝的次数会比较多而接受的次数会比较少.

第二步, 利用 Bird^[65] 所发展的一种近似方法来确定两次凝并事件之间的时间间隔 τ_a 为 $\tau_a = \Delta t_k = 1/(VR_C) \approx 2/[N(N-1)\beta_{ij}]$. 此时不需要计算颗粒间的总凝并概率 W_Σ , 而且凝并时间长度与发生凝并的那对颗粒相关. 这种方法并不精确, 但是整体而言, 通常可以忽略这种误差, 而且, $\langle \tau \rangle = \langle \tau_a \rangle = 1/W_\Sigma$.

对于其他事件如破碎、冷凝 / 蒸发等, 基于事件驱动的 MC 方法也可以相应解决. 一般都采用接受 - 拒绝法来处理. 对于破碎事件, 如果确定下一个事件是破碎事件, 则首先随机选定一颗颗粒 i , 并随机产生一个随机数 r_1 , 如果 $r_1 < S_i / \max\{S_i\}$, 则颗粒 i 发生破碎, 否则重新重复以上动作, 直到选定一颗发生破碎的颗粒为止. 其他成核、沉积等与其类似, 不再描述.

至于各种事件的后果处理, 则各有不同. 在一般的基于事件驱动的 MC 方法当中, 不论是哪种方法, 一旦选定了凝并对, 则其中的一颗颗粒的尺度为两颗颗粒尺度之和, 另外一颗颗粒被抛弃. 在一次凝并事件之后, 颗粒总数目将减一, MC 的计算精度将降低, 这时颗粒总凝并核之和 W_Σ 和 $\max\{\beta_{ij}\}$ 等必须重新计算; 对于有着 b 个子颗粒的破碎事件, 则发生破碎的那颗母颗粒被其中一颗子颗粒取代, 并新产生 $(b-1)$ 个颗粒来逐一代表其他子颗粒. 一次破碎事件之后, 颗粒总数目增加 $(b-1)$ 个, MC 的计算代价将增大, 此时 $\max\{S_i\}$ 等需要重新计算; 其他冷凝 / 蒸发、成核、沉积等事件的后果处理与此类似.

在基于事件驱动的 MC 中, 选择事件类型、实现事件和处理事件后果、计算静止时间等步骤不断循环进行, 直到累积的时间超过了指定的时间长度.

一般的基于事件驱动的 MC 方法由于无法保持计算区域内颗粒数目而无法保持恒定的计算精度. 当采用接受 - 拒绝法时, Garcia^[60] 的理论分析和 Kruijs^[59] 的数值实验都表明其存在较明显的数值误差, 且对于颗粒粒径范围分布较宽时, 随机选定的颗粒对拒绝发生凝并事件的概率很高导致该方法计算效率并不太高. 而当采用倒数法时, 必须在每一次凝并事件之后都计算颗粒总凝并核之和 W_Σ , 这将耗费

极大的计算代价和计算机内存.

7.3 常体积法 (Constant-Volume)

如果依据颗粒演变过程中所跟踪的模拟颗粒数目和计算区域体积是否发生变化而划分, MC 方法也可以分为两大类: 一类是最常见的常体积法, 即计算区域在计算过程中保持不变, 另外一类为常数目法. 由于凝并、成核、沉积等事件的发生, 常体积法中计算区域内实际颗粒总数目 N 可能会发生改变, 如果颗粒由于凝并、沉积等而使数目 N 减少, 则会降低计算精度; 如果由于成核、破碎等事件使得计算区域内颗粒数目增加, 则计算代价将增大. 所以常体积法存在计算精度和计算代价无法协调的矛盾. 前面描述的基于事件驱动的 MC 方法^[60] 为常体积法, 而前面描述的基于时间驱动的 MC 方法^[61] 则为非严格意义的常体积法.

常体积法总颗粒的取样误差的量级为 $O(\sigma/N^{1/2})$, 其中 N 为随时间变化的计算区域内颗粒总数目, σ 为尺度分布的标准偏差, 对于单分散性颗粒, $\sigma = 1$. 相对误差的数学期望值为

$$E(\delta) = E\left(\frac{O(\sigma/\sqrt{N_c})}{\Theta_{\text{PSD}}}\right) = O\left(\frac{\sigma\sqrt{N_c}}{\Theta_{\text{PSD}}}\right) = \left(\frac{\Theta_{\text{PSD}} - 1}{N_c}\right)^{1/2} \approx \left(\frac{1}{N_c}\right)^{1/2} \quad (15)$$

对于纯凝并工况, 第 k 个凝并事件之后, 相对误差可估计为

$$\delta = \left(\frac{1}{N_c}\right)^{1/2} = \left(\frac{1}{N_0 - k}\right)^{1/2} = \left(\frac{1}{N_0}\right)^{1/2} \left(\frac{v_{\text{avg},k}}{v_{\text{avg},0}}\right)^{1/2} \quad (16)$$

其中 $v_{\text{avg},k}$ 和 $v_{\text{avg},0}$ 分别为第 k 个事件之后和初始时刻的颗粒平均质量.

7.4 常数目法 (Constant-Number)

为了克服常体积法计算精度和计算代价无法协调的矛盾, Matsoukas 等^[63,66,67] 提出了常数目法, 它基于事件驱动, 并且随着颗粒数目的变化, 对计算区域的体积实时作相应调整, 以此保持调整后的计算区域内颗粒总数目不变. 常数目法能够保持恒定的统计精度.

常数目法采用基于事件驱动 Monte Carlo 方法中的接受 - 拒绝法来实现事件. 依据事件的发生概率来随机选定判断可能发生的事件类型也与普通的基于事件驱动的 MC 法一样. 静止时间的计算如下

$$\Delta t_k = \frac{1}{V_{k-1} \sum_i R_{i,k}} = \frac{1}{\sum_i r_{i,k}} \frac{c_{k-1}}{N_{k-1}} = \frac{1}{\sum_i r_{i,k}} \frac{c_{k-1}}{N} \quad (17)$$

常数目法不同于普通基于事件驱动的 MC 法最大的不同点在于对事件后果的处理. 依据各种事件的具体后果, 常数目法采用相应的算法来调整子系统的体积以保证新的子系统内颗粒数目仍然保持初始时刻的值, 这个过程称为颗粒数目恢复过程. 颗粒数目恢复过程是一个随机过程, 当某个事件导致子系统内颗粒总数目减少或者增多时, 随机选定一个 (或几个) 已有的颗粒, 通过复制或者抛弃这些颗粒来恢复子系统内颗粒总数目. 例如, 一次二元凝并事件 (设发生凝并的两颗颗粒为 A 和 B , 凝并之后形成新生颗粒 C) 将使得数目恢复之前的子系统内模拟颗粒数目减一, 此时把颗粒 C 取代颗粒 A 的位置, 并从已有的模拟颗粒中随机选择一颗颗粒 D , 把颗粒 D 的复制体代替颗粒 B 的位置, 这相当于随机复制了一颗颗粒; 一个二元破碎事件 (设发生破碎的颗粒为 A , 两颗子颗粒为 B 和 C) 将使得数目恢复之前的子系统内模拟颗粒数目加一, 此时把颗粒 B 取代颗粒 A 的位置, 并从已有的模拟颗粒中随机选择一颗颗粒 D , 把颗粒 C 取代颗粒 D 的位置, 这相当于随机抛弃了一颗颗粒.

Matsoukas 等^[63]发展了两种途径来实现常数目法.

方法 1: 质量法 (mass method)

质量法保持事件发生后进行的颗粒数目恢复过程中子系统内颗粒质量浓度不受数目恢复动作中的随机选择过程影响. 注意到颗粒质量浓度为

$$m = M/V \quad (18)$$

其中 V 为子系统体积, M 为子系统内颗粒总质量, $M = Nv_{\text{avg}}$, N 为子系统内颗粒总数目, v_{avg} 为颗粒平均质量. 对方程 (18) 进行微分, 得到

$$\frac{\Delta m_k}{m_{k-1}} = \frac{\Delta M_k}{M_{k-1}} - \frac{\Delta V_k}{V_{k-1}} = \frac{\Delta M_k}{Nv_{\text{avg},k-1}} - \frac{\Delta V_k}{V_{k-1}} \quad (19)$$

假如在第 k 个事件的数目恢复过程中, 随机选择的颗粒质量为 v_k , 该事件导致子系统内颗粒总质量的变化量为 δv_{event} , 颗粒数目变化为 z_k , 则颗粒数目恢复过程之后子系统内颗粒总质量变化量为 $\Delta M_k = \delta v_{\text{event},k} - z_k v_k$. 为了使随机增加或者移除颗粒这个动作 (即随机选择一个颗粒质量 v_k) 不会对颗粒质量浓度产生影响, 对于子系统的体积的变化量, 必须有

$$\frac{\Delta V_k}{V_{k-1}} = -\frac{z_k v_k}{Nv_{\text{avg},k-1}} \quad (20)$$

此时

$$\frac{\Delta m_k}{m_{k-1}} = \frac{\delta v_{\text{event},k}}{Nv_{\text{avg},k-1}} \quad (21)$$

颗粒质量浓度的变化量 Δm 与 v_k 无关.

于是

$$m_k = m_{k-1} + \Delta m = m_{k-1} \left(1 + \frac{\delta v_{\text{event},k}}{Nv_{\text{avg},k-1}} \right) \quad (22)$$

由于第 k 个事件之后子系统内颗粒平均质量 $v_{\text{avg},k}$ 可在模拟中直接统计得到, 于是 k 个事件之后颗粒数目浓度 $c_k = m_k/v_{\text{avg},k}$ 可以得到. 下一次 MC 循环中的静止时间 Δt_{k+1} 可以利用 c_k 依据方程 (17) 计算得到.

方法 2: 数目法 (number method)

数目方法则是保持事件发生后进行的颗粒数目恢复过程中子系统内颗粒数目浓度不受数目恢复动作中的随机选择过程影响.

通过类似的分析, 可以得到 k 个事件之后颗粒的数目浓度 c_k 为

$$c_k = c_{k-1} + \Delta c_k = c_{k-1} \left(1 + \frac{z_k}{N} \right) \quad (23)$$

第 k 个事件之后子系统内颗粒平均质量 $v_{\text{avg},k}$ 可在模拟中直接统计得到, 于是 k 个事件之后颗粒质量浓度 $m_k = c_k v_{\text{avg},k}$ 可以得到, 从而可以进入下一次 MC 循环. 当前这次 MC 循环的时间步长的计算是依据事件发生之前的颗粒数目浓度 c_{k-1} 等属性估计得到的.

对于一个同时发生凝并和破碎事件的工况, Matsoukas 等^[63]的数值模拟结果表明, 相比于数目法, 质量法中的颗粒平均质量 $v_{\text{avg},k}$ 要更稳定一些. $v_{\text{avg},k}$ 的脉动是由于颗粒数目恢复过程中的随机行为所引起的, 数目法对上一步时间步长中所选择的事件类型非常敏感, 如果上一次选择的是凝并事件, 则下一个时间步长中选择凝并的概率要低一些, 对于破碎事件也是一样. 质量法则对子系统中事件所导致的后果非常敏感, 如果颗粒平均尺度增加, 则下一个时间步长中凝并的概率就要高一些, 破碎的概率要低一些, 这样可以自动快速地调整 $v_{\text{avg},k}$ 的脉动.

对于纯凝并工况, Matsoukas 等^[66]通过数值模拟分析了常数目法的误差. 对于不同的凝并核, 相对误差 δ 服从如下经验公式

$$\delta = [\ln(v_{\text{avg},k}/v_{\text{avg},0})]^{0.8} / \sqrt{2N} \quad (24)$$

相比较于常体积法的相对误差 $\delta = (1/N_0)^{1/2} \cdot (v_{\text{avg},k}/v_{\text{avg},0})^{1/2}$, 显然要小得多, 特别是当凝并事件发生次数较多时.

Liffman^[61]的基于时间驱动的 MC 方法可归纳为非连续型常数目法, 因为它只有当子系统内颗粒数

目下降一半时才恢复颗粒数目, 而 Matsoukas 的常数法则是连续型常数法, 它实时地恢复子系统内颗粒数目. 两类方法都以收缩或者扩展子系统的体积来实现颗粒数目恢复的目的, 这对于工程应用和科学定量分析会带来一定的麻烦.

另外, Kruis 等^[59] 借鉴 Liffman 的颗粒数目恢复办法, 并利用一个改进的倒数法, 提出了一个能一定程度节省计算代价和计算内存的所谓快速直接模拟 Monte Carlo 法 (direct simulation Monte Carlo, DSMC) 法; Debry 等^[68] 提出了一种质量流算法, 利用随机方法求解, 实际上是一种基于时间驱动的 MC 方法. 这些方法虽有改进和新意, 但尚无法脱离以上几类 MC 的范围, 在此不再赘述.

7.5 多重 Monte Carlo (multi-Monte Carlo, MMC) 算法

综上所述, 在目前已有的 MC 方法中, 常体积法便于工程应用和科学定量分析, 便于考虑颗粒的空间扩散和边界条件, 便于与两相湍流模型耦合起来考察颗粒的动力学行为, 但是其无法保持恒定的统计精度, 存在着计算精度和计算代价无法协调的矛盾. 而常数法则与此恰恰相反, 虽然能够保持恒定的计算精度, 但是由于以子系统体积的收缩或者扩展为代价来保持子系统内颗粒数目恒定, 难以考虑颗粒的空间扩散和边界条件, 扩展性和实用性都较差. 至于基于事件驱动的 MC 方法, 倒数法的计算代价较高, 而接受 - 拒绝法存在着计算效率偏低和计算精度偏低的问题; 基于时间驱动的 MC 方法则需要划分明确的时间间隔, 计算代价较高.

另外, 由于一个一般体积的计算区域内实际颗粒数目很容易达到 10^{10} 或者更多个颗粒, 对于目前的计算机无法实现如此巨大的内存要求和 CPU 要求, 目前几乎所有的求解 GDE 的 Monte Carlo 算法都是基于以下假设: 系统已经充分搅拌, 颗粒场空间各向同性. 这样 Monte Carlo 算法可以取样一个子系统, 其内含有 $10^4 \sim 10^7$ 个实际颗粒, 跟踪子系统内的实际颗粒的动力学演变, 认为子系统是整个系统的指示器, 子系统内颗粒 PSD 随时间的演变规律就是整体系统内 PSD 随时间演变规律; 对于子系统, 应用周期性边界条件. 这种处理有几个问题: 无法考虑边界条件; 无法考虑非均匀颗粒场以及颗粒的空间扩散等.

为了克服目前已有 MC 方法的这些缺陷, 特别是必须引入子系统和无法克服计算精度和计算代价的矛盾的缺陷, 作者发展了一种新的多重 Monte Carlo 算法, 求解单独或组合考虑颗粒凝并^[69]、破碎^[70]、成核^[71]、冷凝 / 蒸发^[72]、沉积^[73] 等的通用动力

学方程.

首先, 该 Monte Carlo 算法并不跟踪实际颗粒的演变, 而是引入加权的虚拟颗粒的概念, 该算法描述虚拟颗粒的时间演变. 认为一组体积相同或者相近的实际颗粒具备同样的属性和行为, 这些实际颗粒由一颗或几颗虚拟颗粒代表, 虚拟颗粒是这些实际颗粒的指示器, 虚拟颗粒的演变过程可以代表计算区域内这些实际颗粒的演变过程. 生成虚拟颗粒的步骤如下: 对计算区域内的实际颗粒进行分类处理, 按照每类颗粒内实际颗粒数目的多少, 分配相应数目的虚拟颗粒来代表该类内的这些实际颗粒, 每颗虚拟颗粒 i 赋予一个数目权值 kwt_i , kwt_i 表示虚拟颗粒 i 所代表的当地实际颗粒的个数, 每颗虚拟颗粒 i 的体积就是所代表的实际颗粒的体积. 不同类的虚拟颗粒具有不同的初始数目权值 kwt , 但是同类的虚拟颗粒具有相同的初始 kwt . 引入加权虚拟颗粒的概念的详细过程和示例可以参考文献 [70]. 一般来说, 虚拟颗粒比实际颗粒数目小得多, kwt 的值达到 $O(10^3) \sim O(10^4)$ 量级仍然可以保持 MMC 算法较高的计算精度; 数值模拟过程中跟踪的是虚拟颗粒, 相比较于跟踪所有实际颗粒, 这种处理要减少计算代价, 特别是当计算区域内颗粒数目较多时, 该方法在计算代价方面有很大优势. 并且引入“加权虚拟颗粒”的概念使得模拟整体系统的颗粒尺度分布函数随时间和空间的演变过程成为可能. 在系统演变过程中, 按照各种事件的不同后果, 改变对应的虚拟颗粒的数目权值 kwt 和体积, 不仅保持计算区域总体积不变, 而且保持虚拟颗粒总数目不变. 实际上, 在 MMC 算法中, 随着时间的演变, 只有发生了凝并等事件的相关虚拟颗粒的数目权值发生变化, 而且其数目权值的改变依据所发生的事件的具体后果, 并不一定统一改变.

然后, 在一个实时设定的时间步长范围内, 发展基于时间驱动的 Monte Carlo 方法来考虑颗粒之间的凝并、破碎、冷凝 / 蒸发、沉积、成核等事件, 虽然颗粒凝并过程导致总的实际颗粒数目不断减少, 但此时通过调整虚拟颗粒的数目权值 kwt , 能保持虚拟颗粒数目不变, 此时不需要对计算区域的体积进行调整.

时间步长设置的关键在于: 保证在一个时间步长范围内, 每颗颗粒最多只可能发生一次某一类型的事件 (可以一颗颗粒在一个时间步长范围内发生几个不同类型的事件), 这样才不至于遗漏颗粒某一事件的发生.

在 MMC 方法中, 在某个计算区域 V 内, 假设有 N 个实际颗粒, N_f 个虚拟颗粒数, 这时间步长如下设置

$$\Delta t = \alpha \min \left\{ \begin{aligned} &1 / \max_{i=1, \dots, N_f} (C_i), \quad \min_{i=1, \dots, N_f} (v_i / I_i), \\ &1 / \max_{i=1, \dots, N_f} (S_i), \quad 1 / \max_{i=1, \dots, N_f} (R_i), \\ &\delta_{(v_{\min}, v_i)} [1 / J_0(v_i)] \end{aligned} \right\} \quad (25)$$

其中 C_i 为某颗虚拟颗粒 i 与其他任何虚拟颗粒在单位时间内发生凝并事件的总概率, 表达式为

$$C_i = \frac{\beta_{ii} \times (kwt_i - 1)}{2} + \sum_{j=1, i \neq j}^{N_f} (\beta_{ij} \times kwt_j) \approx \sum_{j=1, i \neq j}^{N_f} (\beta_{ij} \times kwt_j) \approx \sum_{j=1}^{N_f} (\beta_{ij} \times kwt_j) \quad (26)$$

S_i 、 I_i 、 R_i 分别为虚拟颗粒 i 的破碎核、冷凝 / 蒸发核和沉积核, 对于成核事件而言, 认为成核形成的颗粒为粒径最小的颗粒, 即 v_{\min} , $J_0(v_{\min})$ 为成核体的成核核。

在 MMC 算法中, 对于凝并事件的判断和寻找凝并伙伴采用 Nanbu^[62] 算法. 如果 r_1 为随机数, 则判断当前跟踪的虚拟颗粒 i 是否发生凝并的数学关系式为 $r_1 \leq C_i \Delta t$. 一旦判定跟踪虚拟颗粒 i 会与计算区域内其他某颗虚拟颗粒发生凝并, 则需要选定具体是哪颗虚拟颗粒是其凝并伙伴. 首先计算得到跟踪颗粒 i 与某颗虚拟颗粒 j 发生凝并的概率如下 $P_{ij} = kwt_j \times \beta_{ij} \times \Delta t$. 然后仍然通过随机数 r_1 来判断与虚拟颗粒 i 发生凝并的伙伴颗粒 j , 如果以下关系得到满足, 则认为虚拟颗粒 j 为 i 的凝并伙伴

$$\sum_{k=1}^{j-1} P_{ik} \leq r_1 \leq \sum_{k=1}^j P_{ik}, \quad j \in [1, N_f] \quad (27)$$

跟踪虚拟颗粒 A 与其凝并伙伴 B 发生一次凝并事件的过程, 相当于 A 所代表的某些实际颗粒集合 a (实际颗粒数目为 kwt_A) 与 B 代表的某些实际颗粒集合 b (实际颗粒数目为 kwt_B) 发生了实际颗粒间的凝并事件, 此时可以不管到底是 a 中的哪些实际颗粒与 b 中的哪些实际颗粒发生了凝并, 总之后果是生成了 $(kwt_A + kwt_B) / 2$ 个体积为 $(v_A + v_B)$ 的新的实际颗粒. 在 MMC 算法中, 为了保持虚拟颗粒总数目, 并不舍弃虚拟颗粒 A 和 B 中的任何一颗, 也不添加一颗新的虚拟颗粒, 而是通过调整两颗虚拟颗粒的数目权值和体积来体现凝并后果. 由于每颗虚拟颗粒均需要判断其是否凝并和寻找其凝并伙伴, 所以对于同一凝并事件将被检测到两次. 如果当前跟踪的虚

拟颗粒为 A , 则只处理虚拟颗粒 A 以体现凝并事件的后果, 而不对当前的凝并伙伴 B 作任何改变, 也就是

$$\begin{aligned} (kwt_A)_{\text{new}} &= (kwt_A)_{\text{old}} / 2 \\ (v_A)_{\text{new}} &= (v_A)_{\text{old}} + (v_B)_{\text{old}} \end{aligned} \quad (28)$$

如果当前跟踪颗粒轮到虚拟颗粒 B 的时候, 理论上会检测到同一凝并事件, 且其凝并伙伴为虚拟颗粒 A , 同样仅仅改变当前跟踪的虚拟 B 的数目权值和体积以体现凝并事件的后果. 这样不仅保持了整体虚拟颗粒数目的不变, 而且也符合凝并事实.

对于破碎事件, 包括跟踪颗粒是否发生破碎的判断以及破碎产生的子颗粒的处理.

r_2 为满足均匀分布、位于 $[0, 1]$ 的随机数, 那么判断虚拟颗粒 A (序号为 i) 在 Δt 内是否发生一次破碎事件的数学关系式为

$$r_2 \leq S_i \times \Delta t \quad (29)$$

破碎产生的子颗粒采用子颗粒尺度分布函数来描述. γ_{ij} 为颗粒 i 因破碎而产生颗粒 j 的概率; b_i 为颗粒 i 破碎产生的子颗粒的数目; 如果确定虚拟颗粒 A (序号为 i , 局部空间权值为 kwt_A) 将发生破碎, 首先根据 b_i 得到子颗粒数目, 然后通过 γ_{ij} 确定子颗粒的尺度, 并确保破碎前后质量守恒. 对于二元破碎而言, 子颗粒数目为 2, 分别为虚拟颗粒 B 和虚拟颗粒 C , 局部空间权值分别为 kwt_B 和 kwt_C , 序号分别为 j 和 k . 破碎事件发生之后

$$kwt_B = kwt_C = kwt_A, \quad v_A = v_B + v_C \quad (30)$$

如果通过 γ_{ij} 确定了其中一颗子颗粒 j 的尺度, 则另外一颗子颗粒 k 的尺度就能通过上式得到.

注意到, 随着一次破碎事件的进行, 一颗虚拟颗粒 A 变成了两颗虚拟颗粒 B 和 C , 虚拟颗粒总数目加 1, 如果在下一个时间步长内跟踪所有虚拟颗粒的话, 将使得计算代价不断增大. 对破碎后果的处理的一项重要内容是保持虚拟颗粒数目恒定. 首先把其中的一颗子颗粒 B 来取代母颗粒 A 在虚拟颗粒序列中的位置. 然后, 另外一颗子颗粒 C 与虚拟颗粒数列中的某一颗虚拟颗粒 D 合并, 该虚拟颗粒 D 与虚拟颗粒 C 有着相同或者相近的尺度, 是与虚拟颗粒 C 同属于一类颗粒中的任何一颗虚拟颗粒 (通过随机数来选取). 合并过程中保持质量守恒原则, 如下

$$v_{D, \text{new}} = v_D, \quad kwt_{D, \text{new}} = kwt_D + kwt_C \quad (31)$$

这样可以保持破碎之后虚拟颗粒数目仍然保持不变.

对于冷凝 / 蒸发事件的处理, 由于该事件无论如何都对任何一颗颗粒发生影响, 其影响就是导致颗粒的体积发生变化, 故只需要在 Δt 范围内处理每颗颗粒的体积变化值即可. 在 Δt 内某颗颗粒 A 由于冷凝 / 蒸发而导致的体积变化值如下

$$\Delta V = I_A \times \Delta t \quad (32)$$

其中 I_A 为颗粒 A (体积为 v_A) 的冷凝 / 蒸发核, ΔV_A 为颗粒 A 的体积变化率. 则颗粒 A 发生冷凝 / 蒸发事件后的体积 $v_{A,new}$ 为

$$v_{A,new} = v_A + \Delta V_A \quad (33)$$

MMC 算法对沉积事件的处理包括颗粒是否沉积的判断以及沉积后果的处理.

虚拟颗粒 A (序号为 i) 是否发生沉积事件的判断表达式如下

$$r_3 \leq R_i \Delta t \quad (34)$$

其中, r_3 为随机数.

颗粒沉积的直接后果是实际颗粒总数目的减少, 如果不进行处理, 虚拟颗粒数目也会相应减少. 为了保持 Monte Carlo 算法的计算精度, 需要控制虚拟颗粒的数目. 通过一个随机过程从虚拟颗粒数列中随机选取一颗虚拟颗粒 B , 其序号为 $\text{integer}[r_4 \times (N_f - 1)]$, $\text{integer}[\]$ 表示取整, r_4 为随机数. 如果选择的虚拟颗粒就是已经判断出来将要沉积的虚拟颗粒 A , 则需要重新选择. 此时, 把虚拟颗粒 B 分裂成两颗虚拟颗粒 C 和 D , $kwt_B = 2kwt_C = 2kwt_D$, 且 $v_B = v_C = v_D$, 其中 v_B 、 v_C 和 v_D 为相应的颗粒体积; 把虚拟颗粒 C 和 D 分别取代虚拟颗粒 A 和 B 在虚拟颗粒序列中的位置. 这样的处理手段保持了虚拟颗粒总数目不变.

对于成核事件的处理, 利用随机过程来判断是否会发生成核事件, 成核体产生的速率一般取决于前驱体的数目浓度, 一般认为成核体的产生速率与前驱体的数目浓度 $C_{pre}(t)$ 成一阶正比, 也就是说

$$J_0(t)\delta(v_{min}, v) = K_N C_{pre}(t) A_v = -A_v dC_{pre}(t)/dt$$

可以推导得到

$$J_0(t)\delta(v_{min}, v) = K_N A_v C_{pre}(0) \exp(-K_N t)$$

所以 Δt 时间范围内、单位体积内通过成核事件产生的实际颗粒数目为

$$n_{nul} = \Delta t K_N A_v C_{pre}(0) \exp(-K_N t)$$

如果随机数 $r_4 > n_{nul}$, 可认为此时无成核现象, 否则如果 $r_4 \leq n_{nul}$, 则认为此时发生了成核现象, 利用一

个虚拟颗粒 A (假设编号为 i) 来代表这些新产生的成核体, 令

$$v_i = v_{min}, \quad kwt_i = 1 \quad (35)$$

此时虚拟颗粒总数目将增加一个, 这将增加 MC 的计算代价, 特别是时间演变较长的情形下, 为了保持虚拟颗粒数目, 采用与破碎事件类似的处理方法, 随机寻找一个已经存在的虚拟颗粒 B , 该虚拟颗粒 B 的体积等于或者近似等于 v_{min} , 合并代表新生的成核体的虚拟颗粒 A 和代表已存在的成核体的虚拟颗粒 B 为一个虚拟颗粒, 并把该虚拟颗粒取代原来的虚拟颗粒 B , 也就是说

$$v_{B,new} = v_{min}, \quad kwt_{B,new} = kwt_A + kwt_B \quad (36)$$

这样可保持虚拟颗粒总数目不变.

在一个时间步长内, 当前跟踪颗粒即使发生了某事件 (如凝并), 也不会立即影响本时间步长内的这颗颗粒和相关颗粒, 而只会在下一个时间步长内影响这颗颗粒与相关颗粒的行为属性. 所以在当前时间步长内的整个颗粒循环全部结束之后, 再进行该事件后果的处理. 也应当注意到, 本 MMC 算法假设在足够短的时间步长内, 颗粒所发生的各种不同类型的事件可以完全解耦, 也就是说, 认为不同类型的事件是相互独立的, 可以分别单独处理. 对 MMC 算法更详细的描述和算法验证可以参考文献 [69~73]. 对于初始颗粒尺度分布为指数分布、同时发生的凝并和冷凝 / 蒸发的工况, 图 1 为同时发生的常凝并核和常冷凝核 ($\beta_{ij} = K_0, I_i = \sigma$), $t \approx 1561.3s$ 时的颗粒尺度分布; 图 2 为相应的同时发生的线性凝并核和线性冷凝核 ($\beta_{ij} = K_0(v_i + v_j), I_i = \sigma v_i$), $t \approx 1561.3s$ 时的颗粒尺度分布. MMC 的数值模拟结果与理论分析值符合很好.

总之, 与目前几乎所有的求解 GDE 的 Monte Carlo 算法不同, MMC 算法由于引入加权的虚拟颗粒的概念, 不仅具备适用于工程计算的计算代价, 且可以抛弃“子系统”概念而模拟整体系统的颗粒尺度分布函数随时间和空间的演变规律; 与常数目法 [63,66~67] 类似, MMC 算法由于保持恒定的虚拟颗粒数目从而具备较高的计算精度; 另外, MMC 算法保持常计算区域体积, 可以方便地应用于工程实际计算和科学定量分析; 最后, MMC 算法基于时间驱动技术, 具备非常强的扩展能力, 不但可以对计算区域划分网格而把颗粒尺度分布函数的空间扩散考虑进来, 而且可以与求解颗粒运动方程的算法耦合起

来,不但描述颗粒尺度分布函数的变化,而且描述颗粒的速度场等属性,并可进而扩展到考虑颗粒场和气相场演变的两相湍流模型中去,本算法也可以进行多组分,多分散性颗粒的 GDE 求解.

除了以上所述几类主流方法之外,还存在一些较为新奇的方法.如文献 [74] 发展了基于内插小波转换的方法,文献 [75] 发展了有限元方法,但是应用范围都较为有限,而且本身也不太完善.

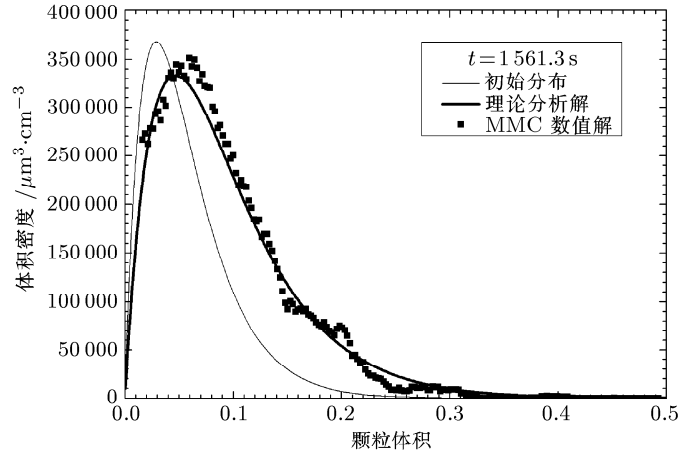


图 1 同时发生的常凝并核和常冷凝核

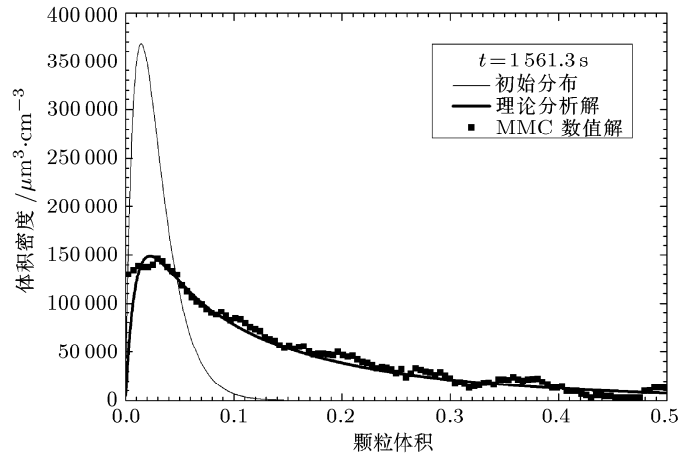


图 2 同时发生的线性凝并核和线性冷凝核

8 总结

本文详细描述了目前几乎所有的求解通用动力学方程 (GDE) 的算法,包括矩方法、分区法、离散法、离散 - 分区法、Monte Carlo 方法. 这些方法各有其优缺点,但是总得说来,矩方法在得到特殊工况下的一些理论分析解方面有着重要贡献,并且可定量和简化地描述某些简单的工程问题,但是限于其需要对分布函数形式作假设等固有缺陷,其进一步工程应用的前景并不乐观;分区法和离散 - 分区法由于其具备一定的计算精度和恰当的计算代价,在现阶段可以得到适当发展和应用,但是这两个方法存在很多无法求解的死角,如结构重建、颗粒包覆等,对于多组

分、粒径分布较广的多分散性颗粒也难于处理;离散法巨大的计算内存和计算代价限制了其应用范围,一般只可作为其他数值方法的参照物;另外需要强调的是,分区法、离散分区法和离散法都需要对颗粒尺度分布进行人为离散,会带来离散误差,而 Monte Carlo 方法具有天生内在的离散特性,可以轻易解决以上方法由于离散而造成的各种难题. 虽然 MC 的计算代价较大,但是随着 MC 方法的改进和发展,以及计算机速度的日益提高,MC 方法完全具备工程应用前景. 而且,MC 方法能够考虑颗粒的有限尺度效应 (finite-size effects), 空间关联 (spatial corrections) 和当地脉动 (local fluctuations), 这是那些进行连续场平均化处理的数值方法所不具备的. MC

方法能得到颗粒的轨道经历效应和历史效应,从而能够得到颗粒内部结构的细节信息,可以方便处理多组分,多分散性颗粒,对于复杂的颗粒演变如结构重建、包覆、不规则形状颗粒甚至化学反应等均能处理。MC 另外一个优点是编程实现较为简单,这与那些计算代价较低但是算法非常复杂的分区法,离散-分区法,矩方法等比较而言,实际上相当于把编程过程中节省的时间填补到计算过程中的时间消耗上去了,对于解决同一个实际问题,并不一定总的的时间代价就多一些。鉴于 MC 的种种优点,作者建议应该优先发展和推广 MC 方法。

本文详细地描述了目前流行的几类 MC 方法,作者认为 Matoussas 等^[63,66,67]发展的能够保持常颗粒数目、基于事件驱动的 MC 方法和作者提出的能够保持常虚拟颗粒数目、基于时间驱动的 MC 方法(MMC 方法)克服了普通 MC 方法计算精度和计算代价无法协调的矛盾,值得重点推广应用和进一步的研究。特别是 MMC 方法,由于引入了加权的虚拟颗粒的概念,可以抛弃“子系统”的禁锢,从而具备空间扩散、与两相流模型耦合等扩展性,这将是作者下一阶段的重点研究目标之一。

求解 GDE 的数值方法与空气动力学中求解过渡区域的 Boltzmann 方程的数值方法在很大程度上具有相似性,后者相对来说要更为成熟和丰富^[53],如果能够建立起两个系统之间的内在联系,也许能够为 GDE 的求解提供一些新的灵感。另外,目前也有少量文献^[76~78]在试图探索利用 CFD 软件(如 FLUENT 等)来求解 GDE。

参 考 文 献

- 1 Sloss L L, Smith I M. PM2.5 and PM10: An international perspective. *Fuel Processing Technology*, 2000, 65-66: 127~141
- 2 向晓东, 陈旺生, 幸福堂等. 变电场中电凝并收尘理论与实验研究. *环境科学学报*, 2000, 20(2): 187~191
- 3 Tucker W G. An overview of PM2.5 sources and control strategies. *Fuel Processing Technology*, 2000, 65-66: 379~392
- 4 Meng Z, Dabdub D, Seinfeld J H. Size-resolved and chemically resolved model of atmospheric aerosol dynamics. *J Geophys Res*, 1998, 103: 3419~3435
- 5 Seames W S. An initial study of the fine fragmentation fly ash particle mode generated during pulverized coal combustion. *Fuel Processing Technology*, 2003, 81: 109~125
- 6 Lockwood F C, Yousif S. A model for the particulate matter enrichment with toxic metals in solid fuel flames. *Fuel Processing Technology*, 2000, 65-66: 439~457
- 7 Corner J, Pendlebury E D. The coagulation and deposition of a stirred aerosol. *Proceedings of the Physics Society B*, 1951, 64: 645~654
- 8 Kim D, Gautam M, Gera D. Parametric studies on the formation of diesel particulate matter via nucleation and coagulation modes. *J Aerosol Sci*, 2002, 33: 1609~1621

- 9 Lee B W, Jeong J I, Hwang J Y, et al. Analysis of growth of non-spherical silica particles in a counterflow diffusion flame considering chemical reactions, coagulation and coalescence. *J Aerosol Sci*, 2001, 32: 165~185
- 10 赵海波, 郑楚光, 柳朝晖等. 燃煤锅炉 PM 微尺度流体力学研究模型初探. *华中科技大学学报*, 2003, 31(11): 72~75
- 11 Swift D L, Friedlander S K. The coagulation of hydrosols by Brownian motion and laminar shear flow. *J Colloid Interface Sci*, 1964, 19: 621~647
- 12 Hidy G M. On the theory of the coagulation of noninteracting particles in Brownian motion. *J Colloid Interface Sci*, 1965, 20: 123~144
- 13 Friedlander S K, Wang C S. The self-preserving particle size distribution for coagulation by Brownian motion. *J Colloid Interface Sci*, 1966, 22: 126~132
- 14 Hidy G M, Lilly D K. Solutions to the kinetics of coagulation. *J Colloid Interface Sci*, 1965, 20: 867~874
- 15 Vemury S, Kusters K A, Pratsinis S E. Time-lag for attainment of the self-preserving particle size distribution by coagulation. *J Colloid Interface Sci*, 1994, 165: 53~59
- 16 Park S H, Lee K W. Analytical solution to change in size distribution of polydisperse particles in closed chamber due to diffusion and sedimentation. *Atmospheric Environment*, 2002, 36: 5459~5467
- 17 Seinfeld J H, Pandis S N. *Atmospheric Chemistry and Physics*. New York, USA: Wiley-Interscience, 1998
- 18 Barrett J C, Webb N A. A comparison of some approximate methods for solving the aerosol general dynamic equation. *J Aerosol Sci*, 1988, 29(1/2): 31~39
- 19 Barrett J C, Jheeta J S. Improving the accuracy of the moments method for solving the aerosol general dynamic equation. *J Aerosol Sci*, 1996, 27(8): 1135~1142
- 20 Lee K W, Lee Y J, Han D S. The log-normal size distribution theory for Brownian coagulation in the low Knudsen number regime. *J Colloid Interface Sci*, 1997, 188: 486~492
- 21 Williams M M R. Some exact and approximate solutions of the nonlinear Boltzmann equation with applications to aerosol coagulation. *Phys A: Math Gen*, 1981, 14: 2037~2089
- 22 Friedlander S K. *Smoke, Dust and Haze: Fundamentals of Aerosol Behavior*. New York, USA: Wiley, 1997
- 23 Frenklach M, Harris S J. Aerosol dynamics modeling using the method of moments. *J Colloid Interface Sci*, 1987, 118(1): 252~261
- 24 Lee K W. Change of Particle size distribution during Brownian coagulation. *J Colloid Interface Sci*, 1983, 92(2): 315~325
- 25 Park S H, Lee K W, Otto E, et al. The log-normal size distribution theory of Brownian aerosol coagulation for the entire particle size range: Part I—analytical solution using the harmonic mean coagulation kernel. *J Aerosol Sci*, 1999, 30(1): 3~16
- 26 Otto E, Fissan H, Park S H, et al. The log-normal size distribution theory of brownian aerosol coagulation for the entire particle size range: Part II—analytical solution using Dahneke's coagulation kernel. *J Aerosol Sci*, 1999, 30(1): 17~34
- 27 Park S H, Xiang R, Lee K W. Brownian coagulation of fractal agglomerates: analytical solution using the log-normal size distribution assumption. *J Colloid Interface Sci*, 2000, 231: 129~135
- 28 Park S H, Lee K W. Asymptotic particle size distributions attained during coagulation processes. *J Colloid Interface*

- Sci*, 2001, 233: 117~123
- 29 Park S H, Lee K W. Change in particle size distribution of fractal agglomerates during brownian coagulation in the free-molecule regime. *J Colloid Interface Sci*, 2002, 246: 85~91
 - 30 Kim D S, Park S H, Song Y M, et al. Brownian coagulation of polydisperse aerosols in the transition regime. *J Aerosol Sci*, 2003, 34: 859~868
 - 31 Jung C H, Kim Y P, Lee K W. Analytic solution for polydispersed aerosol dynamics by a wet removal process. *J Aerosol Sci*, 2002, 33: 753~767
 - 32 Jung C H, Kim Y P, Lee K W. A moment model for simulating raindrop scavenging of aerosols. *J Aerosol Sci*, 2003, 34: 1217~1233
 - 33 Park S H, Lee K W, Shimada M, et al. Alternative analytical solution to condensational growth of polydisperse aerosols in the continuum regime. *J Aerosol Sci*, 2001, 32: 187~197
 - 34 Park S H, Lee K W, Shimada M, et al. Change in particle size distribution of aerosol undergoing condensational growth: alternative analytical solution for the low Knudsen number regime. *J Aerosol Sci*, 2002, 33: 1297~1307
 - 35 Kim S H, Park H S, Lee K W. Theoretical model of electrostatic precipitator performance for collecting polydisperse particles. *Journal of Electrostatics*, 2001, 50: 177~190
 - 36 Landgrebe J D, Pratsinis S E. A discrete-sectional model for particulate production by gas-phase chemical reaction and aerosol coagulation in the free-molecular regime. *J Colloid Interface Sci*, 1990, 139: 63~86
 - 37 Gelbard F, Tambour Y, Seinfeld J H. Sectional representations for simulating aerosol dynamics. *J Colloid Interface Sci*, 1980, 76: 541~556
 - 38 Hounslow M J, Ryall R L, Marshall V R. A discretized population balance for nucleation, growth, and aggregation. *AIChE Journal*, 1988, 34(11): 1821~1832
 - 39 Litster J D, Smit D J, Hounslow M J. Adjustable discretized population balance for growth and aggregation. *AIChE Journal*, 1995, 41(3): 591~603
 - 40 Xiong Y, Pratsinis S E. Formation of agglomerate particles by coagulation and sintering: Part 1: A Two-dimensional solution of the population balance equation. *J Aerosol Sci*, 1993, 24: 283~300
 - 41 Xiong Y, Akhtar M K, Pratsinis S E. Formation of agglomerate particles by coagulation and sintering: Part 2: The evolution of the morphology of aerosol-made titania, silica and silica-doped titania powders. *J Aerosol Sci*, 1993, 24: 301~313
 - 42 Jeong J I, Choi M. A sectional method for the analysis of growth of polydisperse non-spherical particles undergoing coagulation and coalescence. *J Aerosol Sci*, 2001, 32: 565~582
 - 43 Butuira F, Kielkiewicz M. Comparison of two approximate methods of aerosol dynamics. *Ann Nucl Energy*, 1995, 22(7): 497~501
 - 44 Butuira F, Kielkiewicz M. On additivity of coagulation kernels. *Ann Nucl Energy*, 1996, 23(13): 1091~1096
 - 45 Landgrebe J D, Pratsinis S E. Gas-phase manufacture of particulate: interplay of chemical reaction and aerosol coagulation in the free-molecular regime. *Ind Eng Chem Res*, 1989, 28: 1474~1481
 - 46 Wu J J, Flagan R C. A discrete-sectional solution to the aerosol dynamic equation. *J Colloid Interface Sci*, 1988, 123: 339~352
 - 47 Yu S, Kennedy I M. An approximate method to calculate the collision rate of a discrete-sectional model. *Aerosol Science and technology*, 1997, 27(2): 266~273
 - 48 Yu S, Yoon Y, Muller-Roosen M, et al. Two-dimensional discrete-sectional model for metal aerosol dynamics in a flame. *Aerosol Science and technology*, 1998, 28(3): 185~196
 - 49 于溯源, 吕雪峰, 杨龙. 铬在氢氧扩散火焰中燃烧的颗粒行为. *工程热物理学报*, 2002, 23(supp): 221~224
 - 50 于溯源, 华宏亮. HTR-10 氦气流中石墨颗粒尺寸的估计. *核动力工程*, 2001, 22(5): 410~413
 - 51 Bird G A. Direct simulation and the Boltzmann equation. *Physics of Fluids*, 1970, 13(11): 2676~2681
 - 52 Wagner W A. A convergence proof for Bird's direct simulation Monte Carlo method for the Boltzmann equation. *J Stat Phys*, 1992, 66: 1011~1044,
 - 53 沈青. 稀薄气体动力学. 北京: 国防工业出版社, 2003
 - 54 Fichthorn K A, Weinberg W H. Theoretical foundations of dynamical Monte Carlo simulations. *J Chem Phys*, 1991, 95 (2): 1090~1096
 - 55 Tandon P, Rosner D E. Monte Carlo simulation of particle aggregation and simultaneous restructuring. *J Colloid Interface Sci*, 1999, 213: 273~286
 - 56 Rosner D E, Yu S. MC simulation of aerosol aggregation and simultaneous spheroidization. *AIChE Journal*, 2001, 47(3): 545~561
 - 57 Peborgh J R van G, Hounslow M J. Monte Carlo simulation of size-enlargement mechanisms in crystallization. *AIChE Journal*, 1996, 42(7): 1864~1874
 - 58 Efendiev Y, Zachariah M R. Hybrid Monte Carlo method for simulation of two-component aerosol coagulation and phase segregation. *J Colloid Interface Sci*, 2002, 249: 30~43
 - 59 Kruis F E, Maisels A, Fissan H. Direct simulation Monte Carlo method for particle coagulation and aggregation. *AIChE Journal*, 2000, 46(9): 1735~1742
 - 60 Garcia A L. A Monte Carlo simulation of coagulation. *Physica*, 1987, 143A: 535~546
 - 61 Liffman K. A direct simulation Monte-Carlo method for cluster coagulation. *Journal of Computational Physics*, 1992, 100: 116~127
 - 62 Nanbu K. Direct simulation scheme derived from the Boltzmann equation. I. Monocomponent gases. *J Phys Soc Jpn*, 1980, 49: 2042~2049
 - 63 Lin Y, Lee K, Matsoukas T. Solution of the population balance equation using constant-number Monte Carlo. *Chemical Engineering Science*, 2002, 57: 2241~2252
 - 64 Shah B H, Ramkrishna D, Borwanker J D. Simulation of particulate systems using the concept of the interval of quiescence. *AIChE Journal*, 1977, 23(6): 897~904
 - 65 Bird G A. *Molecular Gas Dynamics*. Oxford: Clarendon Press, 1976
 - 66 Smith M, Matsoukas T. Constant-number Monte Carlo simulation of population balances. *Chemical Engineering Science*, 1998, 53(9): 1777~1786
 - 67 Lee K, Matsoukas T. Simultaneous coagulation and breakup using constant-N Monte Carlo. *Powder Technology*, 2000, 110: 82~89
 - 68 Debry E, Sportisse B, Jourdain B. A stochastic approach for the numerical simulation of the general dynamics equation for aerosols. *Journal of Computational Physics*, 2003, 184: 649~669
 - 69 赵海波, 郑楚光, 徐明厚. 考虑颗粒凝并的多重 Monte Carlo 算法. *应用数学与力学*, 2005, 26(7): 875~882

- 70 Zhao H B, Zheng C G, Xu M H. Multi-Monte Carlo approach for general dynamic equation considering simultaneous particle coagulation and breakage. *Powder Technology*, 2005, 154(2-3): 164~178
- 71 赵海波, 郑楚光, 徐明厚. 凝并和成核机理下颗粒尺度分布的 Monte Carlo 求解. 高等学校化学学报, 2005, 26(11): 2086~2089
- 72 Zhao H B, Zheng C G, Xu M H. Multi-Monte Carlo method for coagulation and condensation/evaporation in dispersed systems. *J Colloid Interface Sci*, 2005, 286(1): 195~208
- 73 赵海波, 郑楚光. 降雨过程中气溶胶湿沉降的数值模拟. 环境科学学报, 2005, 25(12): 1590~1596
- 74 Liu Y, Cameron I T. A new wavelet-based adaptive method for solving population balance equations. *Powder Technology*, 2003, 130: 181~188
- 75 Sandu A, Borden C. A framework for the numerical treatment of aerosol dynamics. *Applied Numerical Mathematics*, 2003, 45: 475~497
- 76 Maggioris D, Goulas A, Alexopoulos A H, et al. Use of CFD in prediction of particle size distribution in suspension polymer reactors. *Computers Chem Engng*, 1998, 22: S315~S322
- 77 Pyykönen J, Jokiniemi J. computational fluid dynamics based sectional aerosol modelling schemes. *J Aerosol Sci*, 2000, 31(5): 531~550
- 78 Marchisio D L, Vigil R D, Fox R O. Implementation of the quadrature method of moments in CFD codes for aggregation-breakage problems. *Chemical Engineering Science*, 2003, 58: 3337~3351

ADVANCES OF NUMERICAL METHODS FOR GENERAL DYNAMIC EQUATION DESCRIBING DISPERSED SYSTEM*

ZHAO Haibo[†] ZHENG Chuguang XU Minghou

State Key Laboratory of Coal Combustion, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China

Abstract The time evolution of particle size distribution (PSD) in dispersed systems is described by the General Dynamic Equation (GDE), taking account of coagulation, breakage, condensation/evaporation, nucleation, deposition, etc. GDE is a typical partially integro-differential equation. Consequently, normal numerical methods can hardly be used to solve it. The paper discusses the theoretical foundations, advantages and disadvantages, and the recent development of some numerical methods for GDE, including the moments of method, sectional method, discrete method, discrete-sectional method, and Monte Carlo method. The paper pays special attention to the Monte Carlo method, including the “time-driven” Monte Carlo method, “event-driven” Monte Carlo method, constant number method, constant volume method.

Keywords general dynamic equation, particle size distribution, moments of method, monte carlo method, sectional method, discrete method, discrete-sectional method, particulate matter

* The project supported by the National Key Basic Research and Development Program 2002CB211602 and the National Natural Science Foundation of China (90410017)

[†] E-mail: klinsmannzhhb@163.com