

研究论文

处理多分散颗粒凝并和冷凝/蒸发问题的 多重 Monte Carlo 算法

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, 湖北 武汉 430074)

摘要: 提出一个新的多重 Monte Carlo (MMC) 算法来求解同时考虑凝并和冷凝/蒸发的通用动力学方程 (GDE), 该算法基于时间驱动, 模拟过程中保持模拟颗粒数目不变和计算区域体积不变. 描述了时间步长确定方法, 同时处理凝并和冷凝/蒸发的方案. 针对常凝并核和常冷凝核, 常凝并核和线性冷凝核, 线性凝并核和线性冷凝核三种特殊工况, MMC 算法模拟了颗粒尺度分布函数的时间演变, 与理论分析解进行了比较, 表明 MMC 算法能解决普通 Monte Carlo 算法的计算精度和计算代价不能协调的矛盾, 具有较小的计算代价和较高的计算精度, 能够适用于工程应用.

关键词: 多重 Monte Carlo 算法; 凝并; 冷凝/蒸发; 通用动力学方程; 多分散性颗粒

中图分类号: TK 121 O 359

文献标识码: A

文章编号: 0438 - 1157 (2005) 05 - 0796 - 06

Multi-Monte Carlo method for simultaneous coagulation and condensation/evaporation of polydisperse particles

ZHAO Haibo, ZHENG Chuguang, XU Minghou

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

Abstract: The time evolution of particle size distribution (PSD) is of fundamental interest and a key issue. PSD along with time is described by general dynamic equation (GDE). There is an antinomy of computation cost and computation precision in some ordinary Monte Carlo methods for GDE. A new multi-Monte Carlo (MMC) method is presented to consider GDE for simultaneous coagulation and condensation/evaporation of polydisperse particles. The MMC method is based on time-driven, constant number technique and constant volume technique. Firstly the MMC method is described in detail, including the setting of time step, the scheme of handling simultaneous coagulation and condensation/evaporation. Then the MMC method is validated by three kinds of special cases: constant coagulation kernel and constant condensation kernel (case1), constant coagulation kernel and linear condensation kernel (case2), and linear coagulation kernel and linear condensation kernel (case3). The simulation results of the MMC method for GDE agreed with analytical solution well, which proved that MMC method could resolve the contradiction between computation cost and computation precision, i.e., MMC method has both lesser computation cost and better computation precision.

Key words: multi-Monte Carlo method; coagulation; condensation/evaporation; general dynamic equation; polydisperse particles

2004 - 03 - 04 收到初稿, 2004 - 07 - 05 收到修改稿.

联系人及第一作者: 赵海波 (1977 —), 男, 博士研究生.

基金项目: 国家重点基础研究项目 (2002CB211602).

Received date: 2004 - 03 - 04.

Corresponding author: ZHAO Haibo, PhD candidate. E-mail: kliinsmannzhb@163.com

Foundation item: supported by the National Key Basic Research and Development Program (2002CB211602).

引 言

超细微颗粒物的凝并和冷凝/蒸发现象在自然界中广泛存在，如雨、雾、气溶胶的形成和演变，燃烧源可吸入颗粒物的生成生长及重金属在其上的富集，很多研究者对此进行了研究^[1]。因为超细微颗粒物的光散射、电荷吸附、毒性、辐射性、沉积率、捕捉策略等都与其尺度分布有关，故研究重点集中于颗粒尺度分布函数。已经发展成熟的通用动力学方程（GDE）来描述颗粒尺度分布函数，考虑凝并和冷凝/蒸发的 GDE 如下

$$\left\{ \frac{dn_p(v,t)}{dt} \right\}_{\text{时间变化率}} = - \left\{ \frac{\partial [I(v,t) n_p(v,t)]}{\partial v} \right\}_{\text{冷凝/蒸发}} + \left\{ \frac{1}{2} \int_{v_{\min}}^v (v-u, u, t) n_p(v-u, t) n_p(u, t) du - n_p(v, t) \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} (v, u, t) n_p(u, t) du \right\}_{\text{凝并}} \quad (1)$$

式中 $n_p(v, t)$ 为颗粒尺度分布函数（particles · m⁻³ · m⁻³，particles 表示颗粒数目），表示时刻 t 、体积为 v 的颗粒的数目浓度； (v, u, t) 是时刻 t ，体积分别为 v 和 u 的两颗粒的凝并核（m³ · s⁻¹），表示单位时间内两颗粒发生一次凝并的概率； $I(v, t)$ 为冷凝/蒸发核（m³ · s⁻¹），表示 t 时刻颗粒的体积变化率。

求解 GDE 的 Monte Carlo 算法可分为基于时间驱动（time-driven）的 Monte Carlo 算法^[2]和基于事件驱动（event-driven）的 Monte Carlo 算法^[3]，它们在计算过程中保持计算区域不变，属于常体积法（constant-volume），但存在计算代价和计算精度无法协调的矛盾，这是因为随着凝并等事件的进行，实际颗粒和算法中的模拟颗粒数目 N 都不断减少，这类 Monte Carlo 算法的计算精度与 \sqrt{N} 成反比，为了达到指定的计算精度，必须跟踪更多的模拟颗粒，这导致计算代价过大。最近提出的常数目法（constant-number）^[4-6]，基于事件驱动，随着颗粒数目的变化，对计算区域实时作相应调整，虽然保证了计算精度，但是算法能否同时考虑颗粒的空间扩散，颗粒场的动力学演变和具体的工程应用尚未见报道。

本文试图提出一种新的多重 Monte Carlo 算法来求解考虑颗粒凝并和冷凝/蒸发的 GDE，使其既保持较高的计算精度同时具有较低的计算代价。重

点阐述了时间步长的设置标准，凝并和冷凝/蒸发事件同时处理的方案等。并利用该算法数值模拟了特殊条件下的凝并和冷凝/蒸发，与相应的理论分析解进行了比较。

1 多重 Monte Carlo 算法考虑凝并和冷凝/蒸发的计算方案

对实际颗粒进行处理，生成虚拟颗粒，每颗虚拟颗粒 i 被赋予一个数目权值 kw_{ti} ， kw_{ti} 的物理意思是虚拟颗粒 i 所代表的当地实际颗粒的个数，一般来说，虚拟颗粒比实际颗粒数目小得多，多重 Monte Carlo 算法跟踪这些虚拟颗粒。

1.1 时间步长的设置

多重 Monte Carlo 算法属于基于时间驱动的 Monte Carlo 方法，在设定的时间步长内，对于任何颗粒，必须保证各种可能的事件如凝并和冷凝/蒸发等最多发生一次，这样才不至于遗漏对该事件的处理。

在某个计算容积 V 内，假设有 N 个实际颗粒，虚拟颗粒个数为 N_f 。把第 i 虚拟颗粒与其他所有不同于 i 的虚拟颗粒的凝并核之和保存起来^[3]，即

$$S_i = \sum_{j=1, j \neq i}^{N_f} (i, j kw_{tj}) \quad (2)$$

i, j 为时刻 t ，计算容积 V 中颗粒 i 和 j 的凝并核，表示单位时间内颗粒 i 和 j 发生一次凝并的概率。 S_i 的物理意义是第 i 颗虚拟颗粒与其他所有不同于 i 的虚拟颗粒在单位时间内发生一次凝并的总概率。那么某颗颗粒 i 与其他颗粒只发生一次凝并的时间尺度为（称为颗粒 i 的凝并时间）

$$t_{i, \text{coag}} = 1 / S_i \quad (3)$$

对于冷凝/蒸发事件而言，冷凝使得颗粒的体积增大，蒸发使得颗粒体积减少，都不改变颗粒的数目。颗粒 i （体积为 v_i ）发生一次冷凝/蒸发事件的时间尺度（颗粒 i 的冷凝/蒸发时间）为

$$t_{i, \text{cond/evap}} = v_i / I_i \quad (4)$$

I_i 为时刻 t ，体积为 v_i 的颗粒的冷凝/蒸发核，表示颗粒 i 由于冷凝/蒸发而导致的体积变化率。

时间步长 Δt 一方面必须小于等于最小的凝并时间，另外一方面也必须同时小于等于最小的冷凝/蒸发时间，所以

$$\Delta t = \min \left\{ 1 / \max_{i=1, \dots, N_f} (S_i), \min_{i=1, \dots, N_f} (v_i / I_i) \right\} \quad (5)$$

一般来说，认为最小凝并时间尺度是所有事件的时间尺度之中的最小值，所以 t 小于等于最小凝并时间即可。时间步长是可调的。

1.2 凝并和冷凝/蒸发事件的同时处理

多重 Monte Carlo 算法在 t 内，对于所有颗粒，考虑它所有可能发生的事件，即凝并和冷凝/蒸发，为了使两事件兼容处理，设计计算方案如图 1 所示。

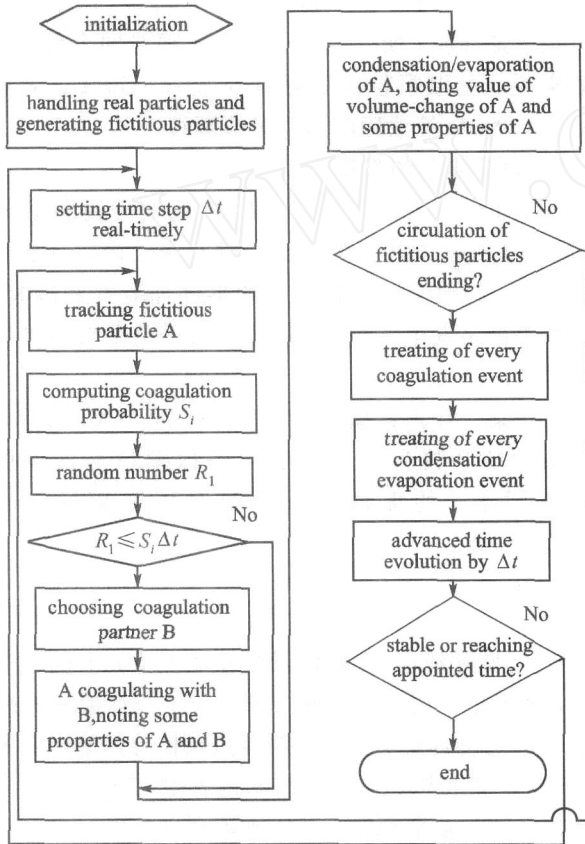


Fig. 1 Scheme of multi-Monte Carlo method for simultaneous coagulation and condensation/ evaporation

需要强调的是，在 t 内，即使颗粒发生了凝并和冷凝/蒸发，并不马上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 t 内的整个颗粒循环全部结束之后，再进行凝并和冷凝/蒸发的后果处理。

对于颗粒凝并事件的处理，包括在 t 范围内颗粒是否与其他某一颗粒发生凝并的判断，凝并伙伴的确定以及凝并后果的处理。

R_1 为满足均匀分布，位于 $[0, 1]$ 的随机数，

则判断虚拟颗粒 i 在时间步长内是否发生一次凝并事件的数学关系式为

$$R_1 \leq S_i \Delta t \quad (6)$$

如果确定虚拟颗粒 i 在 t 内将发生一次凝并事件，则需要选取一颗颗粒作为其凝并伙伴。首先计算得到跟踪颗粒 i 与其他虚拟颗粒发生凝并的概率如下

$$P_{ij} = \frac{k_{w_{ij}} \Delta t}{N_f} = \frac{k_{w_{ij}} \Delta t}{\sum_{k=1, k \neq i}^{N_f} k_{w_{ik}}} \quad (7)$$

如果以下关系得到满足^[2]，则认为虚拟颗粒 j 为 i 的凝并伙伴

$$R_1 \leq \sum_{k=1}^{j-1} P_{ik} + P_{ij} \quad [1, N_f] \quad (8)$$

凝并事件将导致实际颗粒数目不断减少，如果虚拟颗粒数目也相应减少，则 Monte Carlo 算法的计算精度会降低。本 MMC 算法设计为恒定的虚拟颗粒数目。在凝并事件中保持恒定的虚拟颗粒数目的思路如下。

假设当前跟踪的虚拟颗粒为 A，其凝并伙伴为虚拟颗粒 B，体积分别为 v_A 和 v_B ，数目权值分别为 $k_{w_{tA}}$ 和 $k_{w_{tB}}$ 。A 与 B 凝并的后果是生成粒径更大、数目减半的一颗新虚拟颗粒 C。普通 Monte Carlo 算法一般是抛弃颗粒 B，而用颗粒 C 取代颗粒 A，这样一次凝并事件就意味着虚拟颗粒总数目减少一个。在 MMC 算法中，为了保持虚拟颗粒总数目，在每一次检测到的凝并事件中，根据跟踪颗粒 A 和凝并伙伴 B 的数目权值的不同，通过如下算法来保持虚拟颗粒数目不变和满足凝并前后质量守恒和颗粒数目变化原则

$$(k_{w_{tA}})_{new} = k_{w_{tA}} / 2; (v_A)_{new} = v_A + v_B \quad (9)$$

由于 t 内颗粒对之间发生的一次凝并事件能够被检测到两次，所以，只对当前的跟踪颗粒 A 的数目权值 $k_{w_{tA}}$ 和体积 v_A 进行调整，凝并伙伴 B 不作任何改变。当轮到跟踪颗粒 B 的时候，理论上会检测到同一凝并事件并且其凝并伙伴为 A，此时同样的算法被采用

$$(k_{w_{tB}})_{new} = k_{w_{tB}} / 2; (v_B)_{new} = v_A + v_B \quad (10)$$

这样不仅保持了整体虚拟颗粒数目的不变，而且也符合凝并实际过程。

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 t 范围内处理每颗颗粒的体积变化值即可。在 t 内某颗颗粒 A 由于冷凝/蒸发而导致的体积变化值如下

$$V_A = I_A \cdot t \tag{11}$$

式中 I_A 为颗粒 A (体积为 v_A) 的冷凝/蒸发核， V_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

$$v_{A,new} = v_A + V_A \tag{12}$$

2 多重 Monte Carlo 算法验证

本文选择特定条件下的理论解作为检验本 MMC 算法的标准，采用文献 [7] 中的计算条件。颗粒初始尺度分布函数满足指数分布

$$n_p(v, 0) = (N_0 / v_{g0}) e^{-v/v_{g0}} \tag{13}$$

式中 N_0 和 v_{g0} 分别为初始颗粒总数目和初始颗粒几何平均体积，选择 $N_0 = 10^6 \text{ particles} \cdot \text{cm}^{-3}$ ， $v_{g0} = 0.027 \mu\text{m}^3 \cdot \text{cm}^{-3}$ 。

在如下几种特殊的凝并核和冷凝核工况下，颗粒尺度分布函数存在理论解。

case1: 常凝并核和常冷凝核， $(u, v) = K_0$, $I(v, t) =$

case2: 常凝并核和线性冷凝核， $(u, v) = K_0$, $I(v, t) = v$

case3: 线性凝并核和线性冷凝核， $(u, v) = K_0(u+v)$, $I(v, t) = v$

式中 K_0 和 I 均为常数。对于不同工况，均可定义特征凝并时间尺度 τ_{coag} ，特征冷凝时间尺度 τ_{cond} ，两时间尺度的比例 $\tau = \tau_{coag} / \tau_{cond}$ ，如表 1 所示^[7]。如果 $\tau \ll 1$ ，意味着特征凝并时间尺度 τ_{coag} 远远小于特征冷凝时间尺度 τ_{cond} ，假如颗粒演变时间为 τ_{coag} ，则凝并事件将主导颗粒尺度分布的演变，冷凝事件可以忽略不计；同样的，如果 $\tau \gg 1$ ，则冷凝事件起主导作用。为了同时考虑凝并和冷凝事件，选择合适的 K_0 和 I ，使得 τ 接近 1，这样凝并和冷凝事件均将对颗粒尺度分布的演变起主要作用。表 1 列举

了对不同工况所选择的 K_0 和 I 。^[7]

在本文所有的数值模拟过程中，如不特别指明，虚拟颗粒数目均取为 3000，初始颗粒粒径范围为 $[0 \mu\text{m}, 0.83 \mu\text{m}]$ ，相应的颗粒体积范围为 $[0 \mu\text{m}^3, 0.3 \mu\text{m}^3]$ ，为了使虚拟颗粒的初始分布符合设定的指数分布，以及便于统计不同时刻的颗粒尺度分布曲线，对颗粒按照体积等分的方法分为 200 类（注意：计算过程中并不需要对颗粒进行分类，这可减少数值误差及数值扩散^[8]）。

MMC 算法对 case1、case2 和 case3 的数值模拟结果（图中标记为“MMC”）与理论分析解（图中标记为“analytical”）^[9] 的比较分别如图 2~图 4 所示，模拟结果与理论分析解的符合情况令人满意，验证了 MMC 算法的数值计算精度。在计算过程中，不保持虚拟颗粒数目不变的普通的 Monte Carlo 算法的计算结果（图中标记为“MC”）虽然也基本符合理论分析解，但是，显然其精度要比 MMC 算法差，曲线脉动强烈，特别是当演变时间较长时，精度要差得多，如图 2、图 3 中的插图是演变时间为 $5 \tau_{coag}$ 的结果，图 4 中的插图是演变时间为 τ_{coag} 的结果。普通 MC 算法较 MMC 算法计算精度差的原因在于：随着凝并事件的发生，虚拟颗粒数目随着实际颗粒数目的减少而一起减少，使得 Monte Carlo 算法的取样空间减少而导致计算精度持续降低。例如，当时间演变到 $5 \tau_{coag}$ 时，图 2 中的普通 Monte Carlo 算法中虚拟颗粒数目已经下降到 493，而 MMC 算法虚拟颗粒数目总是保持在 3000。为了提高计算精度，普通 Monte Carlo 算法不得不提高初始的虚拟颗粒数目，这导致了计算代价的增大。图 2 中的“MC (10000)”为初始虚拟颗粒数目为 10000 时的普通 Monte Carlo 算法计算结果，当时间演变到 $5 \tau_{coag}$ 时，其虚拟颗粒数目已经下降到 1684，其计算精度虽然与 MMC 算法差不多，但是计算代价要明显大一些。MMC 算法，普通 MC 算法对 case1、case2 和 case3 的数值模拟

Table 1 Characteristic time scales and computational conditions of some special cases

Cases	τ_{coag}	τ_{cond}	$\tau (= \tau_{coag} / \tau_{cond})$	K_0	I	τ_{coag} / s	τ_{cond} / s
case1	$2 / (K_0 N_0)$	$v_{g0} /$	$2 / (K_0 N_0 v_{g0})$	$6.405 \times 10^{-10} \text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	$9.2 \times 10^{-6} \mu\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	3122.6	3122.6
case2	$2 / (K_0 N_0)$	1/	$2 / (K_0 N_0)$	$6.405 \times 10^{-10} \text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	$3.202 \times 10^{-4} \cdot \text{s}^{-1}$	3122.6	3122.6
case3	$1 / (K_0 N_0 v_{g0})$	1/	$1 / (K_0 N_0 v_{g0})$	$1.115 \times 10^{-8} \text{cm}^3 \cdot \mu\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$	$3.202 \times 10^{-4} \cdot \text{s}^{-1}$	3122.6	3122.6

所消耗的 CPU 时间列于表 2 中 (计算环境均为 Athlon Xp2500 + , 512M, Visual Fortran 6.0, Windows Xp pro.). 采用初始虚拟颗粒数目为 10000 的普通 Monte Carlo 算法, 初始虚拟颗粒数目为 3000 的普通 Monte Carlo 算法, 初始虚拟颗粒数目为 3000 的 MMC 法对同一问题进行的计算表明, 普通 Monte Carlo 算法要么计算代价低而计算精度难以接受, 要么为了达到相当的计算精度而不得不消耗很大的计算代价, 而 MMC 算法具备较高的计算精度和较低的计算代价, 解决了普通 Monte Carlo 算法计算精度和计算代价不协调的矛盾.

Table 2 CPU time/s

Cases	MMC[A]	MC[A]	MMC[B]	MC[B]	MC(10000)[B]
1	8.625	5.766	37.031	10.031	108.672
2	8.609	5.703	37.125	10.343	109.656
3	55.640	41.938	142.031	71.609	1127.515

Note: [A] denotes computational condition A in which evolution time length of PSD is appointed $\omega_{ag}/2$ for case 1 and case 2, $\omega_{ag}/4$ for case 3; [B] denotes computational condition B in which evolution time length of PSD is appointed $5\omega_{ag}$ for case 1 and case 2, $\omega_{ag}/2$ for case 3.

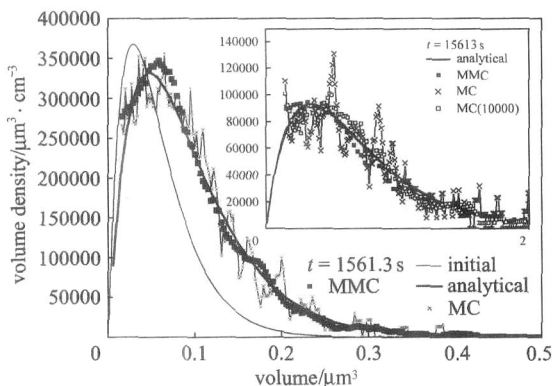


Fig. 2 Constant coagulation kernel and constant condensation kernel

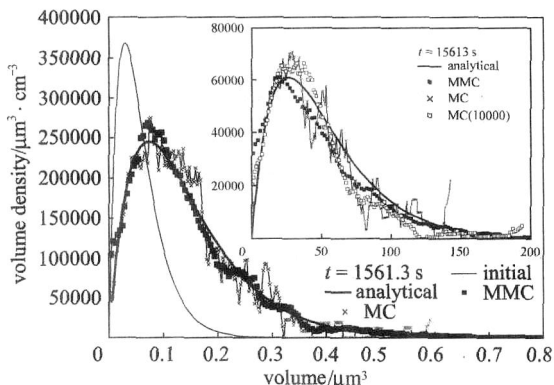


Fig. 3 Constant coagulation kernel and linear condensation kernel

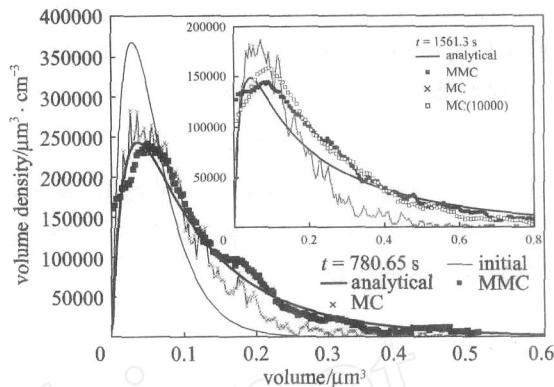


Fig. 4 Linear coagulation kernel and linear condensation kernel

3 结 论

本文发展了多重 Monte Carlo 算法来求解同时考虑凝并和冷凝/蒸发的通用动力学方程, 该算法跟踪比实际颗粒数目少得多的虚拟颗粒, 基于时间驱动, 模拟过程中保持虚拟颗粒数目和计算区域体积不变. 该算法能够协调计算代价和计算精度之间的矛盾, 在减少计算代价的同时, 能够保持计算精度. 利用 MMC 算法对几个特殊工况进行了数值模拟, 结果与理论分析解进行对照, 证明了该算法具有相当的计算精度, 且计算代价能够工程上接受.

致谢: 感谢清华大学核能与新能源技术研究院于溯源教授提供的资料和建议.

References

- [1] Wang Haoran (王浩然), Wang Liye (王立业), Yang Chuanfang (杨传芳), Liu Huizhou (刘会洲). Solution of coalescence frequency in liquid-liquid mixing. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)* (化工学报), 2001, 52: 446—450
- [2] Liffman Kurt. A direct simulation Monte Carlo method for cluster coagulation. *Journal of Computational Physics*, 1992, 100: 116—127
- [3] Kruijs F E, Maisels A, Fissan H. Direct simulation Monte Carlo method for particle coagulation and aggregation. *AIChE Journal*, 2000, 46 (9): 1735—1742
- [4] Smith M, Matsoukas T. Constant-number Monte Carlo simulation of population balances. *Chemical Engineering Science*, 1998, 53 (9): 1777—1786
- [5] Lee Kangtaek, Matsoukas T. Simultaneous coagulation and break-up using constant-N Monte Carlo. *Powder*

- Technology, 2000, 110: 82—89
- [6] Lin Yulan, Lee Kangtaek, Matsoukas T. Solution of the population balance equation using constant-number Monte Carlo. *Chemical Engineering Science*, 2002, 57: 2241—2252
- [7] Debry Edouard, Sportisse Bruno, Jourdain Benjamin. A stochastic approach for the numerical simulation of the general dynamics equation for aerosols. *Journal of Computational Physics*, 2003, 184: 649—669
- [8] Fernandez-Diaz J M, Gonzalez Muniz C, Rodriguez Brana M A. A modified semi-implicit method to obtain the evolution of an aerosol by coagulation. *Atmospheric Environment* 2000, 34: 4301—4314
- [9] Ramabhadran T E, Peterson T W, Seinfeld J H. Dynamics of aerosol coagulation and condensation. *AIChE Journal*, 1976, 22 (5): 840—851

《化工学报》赞助单位

四川大学化工学院

浙江大学化学工程与生物工程学系

大连理工大学化工学院

北京化工大学

浙江工业大学化工学院

湘潭大学化工学院

上海化工研究院

上海交通大学化学化工学院

华南理工大学化工学院

武汉化工学院

石油大学（北京）