

# Статистическое моделирование пространственно неоднородной коагуляции с учетом диффузионного переноса частиц\*

М.А. Марченко

УДК 519.245:519.676

Марченко М.А. Статистическое моделирование пространственно неоднородной коагуляции с учетом диффузионного переноса частиц // Сиб. журн. вычисл. математики / РАН. Сиб. отд.-ние. — Новосибирск, 2005. — Т. 8, № 3. — С. 245–258.

Разработан алгоритм метода Монте-Карло для моделирования пространственно неоднородной коагуляции частиц с диффузией. При этом решается краевая задача для одномерного уравнения Смолуховского с конвекционным и диффузионным членами.

Алгоритм численного решения основан на методе стохастических пробных частиц в ячейках. Основными свойствами алгоритма являются использование специального марковского случайного процесса и применение схемы расщепления по физическим процессам.

Разработана специальная методика уменьшения относительной статистической погрешности численного решения. Предлагается способ предварительного оценивания параметров вычислительного алгоритма.

**Ключевые слова:** метод Монте-Карло, уравнение Смолуховского, коагуляция, диффузия, нуклеация.

Marchenko M.A. Monte Carlo simulation of spatially inhomogeneous coagulation of particles altogether with their diffusion // Siberian J. of Numer. Mathematics / Sib. Branch of Russ. Acad. of Sci. — Novosibirsk, 2005. — Vol. 8, № 3. — P. 245–258.

Monte Carlo algorithm for simulation of coagulation of particles altogether with their diffusion is developed. The problem to solve is the boundary-value problem for the 1D Smoluchowski equation containing convection and diffusion terms.

The stochastic particles method is underlying the algorithm. The principal features of the algorithm are the use of special Markov process and a splitting scheme according to physical processes.

A special technique to reduce the estimator variance is developed. The method of tentative estimation of the algorithm parameters is given.

**Key words:** Monte Carlo, Smoluchowski's equation, coagulation, diffusion, nucleation.

---

## 1. Введение

Целью работы является численное исследование пространственно неоднородной комбинированной модели нуклеации, коагуляции и диффузии наночастиц. Эта модель объединяет два процесса кинетики наночастиц: 1) нуклеационно-коагуляционный, основанный на пространственно неоднородном уравнении Смолуховского с источником, и 2) диффузионный, основанном на классическом уравнении диффузии [1, 4]. Для этой

---

\*Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант 03-01-00040); Интеграционного гранта СО РАН 2003-2; проекта 8322 программы Рособразования "Развитие научного потенциала высшей школы" и проекта ур. 04.01.2003 "Университеты России".

модели рассматриваются соответствующие физическим особенностям начально-краевые условия. Исследование такой комбинированной модели актуально, поскольку она описывает распределение частиц по размерам и по пространству более точно, чем это позволяют модели, основанные на однородном уравнении Смолуховского [5, 7, 9, 10, 12, 13]. Настоящие исследования имеют практическое значение для широкого круга задач химической кинетики и химических технологий.

Для приближенного решения пространственно однородного уравнения Смолуховского существуют различные подходы как статистический (это различные модификации метода стохастических пробных частиц), так и детерминистский (конечно-разностные, конечно-элементные, секционные методы, метод моментов и пр.) (см., напр., [13]). Хотя для пространственно однородного уравнения Смолуховского детерминистские методы, как правило, имеют преимущество в трудоемкости, тем не менее для “сложной” задачи более целесообразным может оказаться применение метода Монте-Карло. Здесь под “сложностью” следует понимать сочетание таких особенностей: размерность задачи; существенная пространственная неоднородность процесса; зависимость ядра коагуляции не только от размеров частиц, но и от их других физических свойств, таких как заряд частиц, пространственная форма частиц; сложные граничные условия; влияние турбулентности и пр. Перечислим некоторые полезные качества метода Монте-Карло, которые могут оказаться определяющими при выборе между детерминистским и статистическим подходами (см., напр., [3]):

- для широкого круга приложений алгоритмы статистического моделирования методологически проще детерминистских алгоритмов;
- возможность эффективного вычисления производных от решения, в частности параметрических производных;
- возможность практически “идеальной” параллелизации статистического алгоритма при условии, что при распределении по процессорам независимые реализации полностью помещаются в оперативной памяти каждого процессора и используемые процессоры достаточно производительны.
- простая методика контроля статистической погрешности вычислений;
- большой класс методов оптимизации статистического моделирования для уменьшения дисперсии и трудоемкости;
- отсутствие у статистических методов некоторых специфических особенностей детерминистских методов, например, необходимости изначально “обрезать” спектр размеров частиц и пр.

Отметим, что разработаны специальные модифицированные статистические методы, позволяющие существенно уменьшить трудоемкость для пространственно однородного уравнения Смолуховского. Среди таких модификаций следует выделить алгоритмы, основанные на методе максимального сечения [2, 3, 6].

Статистическим методам для решения комбинированной модели посвящен ряд работ (см., напр., [7, 10, 12]). Настоящая работа является дальнейшим дополнением и развитием уже проделанных исследований.

Предлагаемый в работе алгоритм численного исследования комбинированной модели основан на методе стохастических пробных частиц в ячейках [2, 8, 13]. При этом на каждом элементарном временном интервале и в каждой пространственной ячейке используется расщепление моделирования на два физических процесса: нуклеацию-коагуляцию и диффузию. Статистический подход позволяет объединить пуассоновский случайный

процесс, соответствующий процессу нуклеации-коагуляции и диффузионный случайный процесс, соответствующий процессу диффузии. В результате получается специальный марковский процесс, соответствующий некоторому интегральному уравнению второго рода, численный анализ которого можно производить с помощью известных методов статистического моделирования (см., напр., [3]).

В работе, в качестве первого шага в исследованиях комбинированной модели, рассматривается одномерный по пространству случай. С одной стороны, одномерная модель позволит апробировать и уточнить математический аппарат, необходимый для исследования более сложных многомерных задач. С другой стороны, рассмотрение одномерного случая представляет практическое значение, поскольку даже такая относительно простая модель позволяет описывать реальные явления.

Для алгоритма в работе предлагается специальный метод предварительного выбора размеров пространственных ячеек и временного шага. Убывание со временем числа пробных частиц является важной проблемой, которая усложняется пространственной неоднородностью задачи. Для ее решения предлагается использовать специальное "удвоение" ансамбля пробных частиц, что позволяет уменьшить относительную статистическую погрешность численного решения.

## 2. Математическая модель коагуляции частиц с диффузией

1. В неоднородном и одномерном по пространству неразрывном потоке рассмотрим коагуляцию частиц совместно с их диффузией. В качестве математической модели такого процесса используется уравнение Смолуховского [1, 4]. Назовем  $i$ -мерами частицы, содержащие  $i$  мономеров, т. е.  $i$  элементарных частиц некоторого минимального размера. Можно считать, что  $i$  является объемом частицы (или, что не совсем точно, ее размером). Запишем следующую систему уравнений для концентраций  $i$ -меров (или для спектра размеров частиц)  $c_i = c_i(t, x)$ ,  $i = 1, 2, \dots$ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1}{\partial t} + \frac{\partial(v c_1)}{\partial x} - \frac{\partial^2(D_1 c_1)}{\partial x^2} &= -c_1 \sum_{j=1}^{\infty} K_{1,j} c_j + I_1, \\ \frac{\partial c_i}{\partial t} + \frac{\partial(v c_i)}{\partial x} - \frac{\partial^2(D_i c_i)}{\partial x^2} &= \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} K_{i-j,j} c_{i-j} c_j - c_i \sum_{j=1}^{\infty} K_{i,j} c_j, \quad i \geq 2. \end{aligned} \quad (1)$$

Уравнение рассматривается на конечных временном  $[0, T]$  и пространственном  $[X_1, X_2]$  интервалах. Здесь  $v = v(x) \geq 0$  – величина сноса частиц,  $D_i = D_i(x) \geq 0$  – величина диффузии  $i$ -меров,  $K_{i,j} = K_{i,j}(x)$  – ядро (или частота) коагуляции  $i$ - и  $j$ -меров,  $I_1 = I_1(x)$  есть частота нуклеации (или частота образования мономеров). Для определенности будем считать, что  $I_2 \equiv I_3 \equiv \dots \equiv 0$ . Эта система уравнений выводится из соображений баланса концентрации частиц в точке  $x$  и в момент времени  $t$ , и может быть обоснована теми же способами, что классические уравнения диффузии и Смолуховского [1, 4].

Кроме вычисления спектра размеров, обычно еще интересуются нахождением функционалов от решения, например, моментов порядка  $q$ :

$$M_q(t, x) = \sum_{i=1}^{\infty} i^q c_i(t, x). \quad (2)$$

Момент первого порядка ( $q = 1$ ) интерпретируется как полная масса частиц, а момент нулевого порядка ( $q = 0$ ) – как средняя концентрация частиц. На их основании можно

вычислить величину среднего размера частиц  $i_a$ :

$$i_a(t, x) = \frac{M_1(t, x)}{M_0(t, x)}.$$

2. Для уравнения (1) в зависимости от специфики физической проблемы можно вводить различные начальные и граничные условия. В настоящей работе рассматриваются следующие условия:

$$c_i(0, x) = c_i^0(x), \quad c_i(t, X_1) = 0, \quad \frac{\partial c_i}{\partial x}(t, X_2) = 0, \quad i = 1, 2, \dots, \quad (3)$$

где  $c_i^0(x)$  – начальная концентрация  $i$ -меров (начальный спектр размеров частиц).

При этом значения частот нуклеации и коагуляции, а также сноса и диффузии задаются лишь в интервале  $[X_1, X_2]$ . Будем считать, что эти функции постоянны в некоторой окрестности точки  $X_2$ . Для определенности будем считать, что в интервале  $[-\infty, X_1]$  частоты нуклеации и коагуляции, а также значения сноса и диффузии одновременно равны нулю. В интервале  $[X_2, +\infty]$  частоты нуклеации и коагуляции будем считать нулевыми, а значения сноса и диффузии – постоянными и равными соответствующим значениям в  $X_2$ :  $v(x) \equiv v(X_2)$ ,  $D_i(x) \equiv D_i(X_2)$ ,  $x \geq X_2$ .

3. Сделаем важное предположение об эволюции спектра. Будем считать, что решение краевой задачи (1), (3) практически не меняется при всех значениях времени, больших некоторого конечного  $t_{\text{stat}}$ , причем решение на участке  $[t_{\text{stat}}, +\infty)$  не зависит от начального спектра. Это соответствует физическому представлению о том, что для не зависящих от времени коэффициентах нуклеации, коагуляции, сноса и диффузии при любом начальном спектре процесс кинетики частиц “стабилизируется” к некоторому моменту времени. Ясно, что значение  $t_{\text{stat}}$  определяется средним временем прохождения частицами всего пространственного интервала.

Поэтому поставим задачу исследования решения в стационарном состоянии, т. е. в момент времени  $t = t_{\text{stat}}$ .

4. В том случае, когда диффузия делает небольшой “вклад” в решение (например, когда величина сноса велика по сравнению с коэффициентами диффузии), уравнение (1) можно упростить [9]. Положим коэффициенты диффузии равными нулю и сделаем в уравнении (1) следующую замену переменных:  $x = \tilde{x}(t)$ , где  $\tilde{x}(t)$  является решением уравнения

$$\tilde{x}'(t) = v(\tilde{x}), \quad t \in [0, \tilde{T}], \quad \tilde{x}(0) = X_1,$$

где  $\tilde{T}$  – время прохождения частицей интервала  $[0, X]$ . В результате вместо неоднородного уравнения получатся более простое однородное уравнение

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{c}_1}{dt} &= -\tilde{c}_1 \sum_{j=1}^{\infty} \tilde{K}_{1,j} \tilde{c}_j + \tilde{I}_1, \\ \frac{d\tilde{c}_i}{dt} &= \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} \tilde{K}_{i-j,j} \tilde{c}_{i-j} \tilde{c}_j - \tilde{c}_i \sum_{j=1}^{\infty} \tilde{K}_{i,j} \tilde{c}_j, \quad \tilde{c}_i(t) = \tilde{c}_i(0), \quad i \geq 2, \end{aligned} \quad (4)$$

где  $\tilde{c}_i(t) = c_i(t, \tilde{x}(t))$ ,  $\tilde{K}_{i,j}(t) = K_{i,j}(\tilde{x}(t))$ ,  $\tilde{I}_1(t) = I_1(\tilde{x}(t))$ ,  $\tilde{c}_i(0) = c_i^0(X_1)$ . Уравнение рассматривается на интервале  $[0, \tilde{T}]$ .

Функцию  $\tilde{c}_i$  можно рассматривать как приближенное решение уравнения (1) в стационарном состоянии:

$$\tilde{c}_i(t) \approx c_i(t_{\text{stat}}, \tilde{x}(t)), \quad t \in [0, \tilde{T}]. \quad (5)$$

Однако, когда диффузия делает весомый “вклад” в решение (например, когда величина сноса мала сравнительно с коэффициентами диффузии), уравнение (4) дает слишком грубое приближение (см. п. 4).

### 3. Метод стохастических пробных частиц в ячейках

#### 3.1. Главная идея метода

1. Рассмотрим тонкий слой от  $x$  до  $x + \Delta x$ . В соответствии с уравнением (1) запишем следующее соотношение баланса частиц с момента времени  $t$  до  $t + \Delta t$ :

$$c_i(t + \Delta t, x)\Delta x \approx c_i(t, x)\Delta x + \Delta_x J_i(t, x)\Delta t - K_i(x)\Delta t\Delta x + I_i(x)\Delta t\Delta x, \quad (6)$$

где  $K_i$  и  $I_i$  соответственно обозначают операторы коагуляции и нуклеации,  $J_i(t, x)$  обозначает поток частиц в точке  $x$  в момент времени  $t$ :

$$J_i = v c_i - \frac{\partial}{\partial x}(D_i c_i),$$

а приращение  $\Delta_x J_i$  определено следующим образом:

$$\Delta_x J_i(t, x) = J_i(t, x + \Delta x) - J_i(t, x).$$

В (6) выражение  $c_i(t, x)\Delta x$  интерпретируется как число  $i$ -меров в слое  $[x, x + \Delta x]$  в момент времени  $t$ ; выражение  $\Delta_x J_i(t, x)\Delta t$  интерпретируется как изменение числа  $i$ -меров в слое  $[x, x + \Delta x]$  в интервале времени  $[t, t + \Delta t]$  вследствие диффузии; выражения  $K_i\Delta t\Delta x$  и  $I_i\Delta t\Delta x$  определяют изменение числа  $i$ -меров в слое  $[x, x + \Delta x]$  в интервале времени  $[t, t + \Delta t]$  вследствие коагуляции и нуклеации соответственно.

2. Используя выражение (6), построим вариант метода стохастических пробных частиц в ячейках [2]. В следующих пунктах будет приведено подробное описание деталей, здесь же рассматривается главная идея алгоритма.

Временной интервал  $[0, T]$  разобьем на  $M$  подинтервалов одинакового размера  $\Delta t = T/M$ . Пространственный интервал  $[X_1, X_2]$  разобьем на  $S$  подинтервалов, возможно, разного размера:  $[x_1, x_2], [x_2, x_3], \dots$ . Подинтервал  $[x_s, x_{s+1}]$  назовем  $s$ -й ячейкой и обозначим его размер как  $\Delta x_s = x_{s+1} - x_s$ . Предполагается, что размеры ячеек достаточно малы для того, чтобы внутри них концентрации  $i$ -меров, а также ядра нуклеации и коагуляции можно было считать постоянными.

Введем в рассмотрение стохастические пробные частицы, что соответствует некоторому “ $N$ -частичному” уравнению [2]. Ансамбль частиц “распределяется” по ячейкам и эволюция ансамбля локально “в среднем” описывается соотношением (6).

При моделировании эволюции ансамбля производится расщепление на два физических процесса. Похожая методика расщепления используется при численном решении уравнения Больцмана методом Монте-Карло [2]. А именно, на очередном  $k$ -м временном шаге последовательно выполняются следующие два этапа.

1. **Нуклеационно-коагуляционный этап.** В каждой ячейке моделируется однородный процесс нуклеации и коагуляции, соответствующий “в среднем” следующему соотношению:

$$\hat{c}_i(t_{k+1}, x_s) = c_i(t_k, x_s)\Delta x_s - K_i(x_s)\Delta t\Delta x_s + I_i(x_s)\Delta t\Delta x_s. \quad (7)$$

При этом считается, что нуклеация и коагуляция в ячейке происходит независимо от тех же процессов в других ячейках и координаты пробных частиц при моделировании не учитываются.

2. **Диффузионный этап.** По окончании во всех ячейках нуклеационно-коагуляционного этапа происходит диффузионный перенос пробных частиц между ячейками в соответствии со следующим "средним" соотношением:

$$c_i(t_{k+1}, x_s) \Delta x_s \approx \hat{c}_i(t_{k+1}, x_s) + \Delta_x J_i(t_k, x_s) \Delta t. \quad (8)$$

Ячейкам поставим в соответствие определенные нормировочные параметры  $N_s$ , которые в общем случае могут зависеть от времени:  $N_s = N_s(t)$ ,  $s = 1, \dots, S$ . Каждой пробной частице  $p$ , находящейся в  $s$ -й ячейке, соответствует тройка параметров

$$p = (i, x, N_s),$$

где  $i$  – размер частицы,  $x = x(p, i)$  – координата частицы ( $x_s \leq x(p, i) \leq x_{s+1}$ ).

Обозначим через  $n_i^{(s)} = n_i^{(s)}(t)$  число пробных  $i$ -меров в  $s$ -й ячейке в момент времени  $t$ . Для аппроксимации концентрации используется следующая формула:

$$c_i(t_k, x_s) \approx \frac{n_i^{(s)}(t_k)}{\Delta x_s N_s(t_k)}. \quad (9)$$

3. Для каждой реализации ансамбля пробных частиц моделируется его начальное распределение. Положим  $N_s(0) = N$ ,  $s = 1, \dots, S$ . В соответствии с начальным спектром  $c_i^0(x)$  в  $s$ -ю ячейку "попадет" следующее число  $i$ -меров:

$$n_i^{(s)}(0) = \text{int}(c_i^0(x_s) \Delta x_s N),$$

где  $\text{int}()$  обозначает целую часть числа. При этом координаты пробных частиц для определенности выбираются в соответствии с равномерным распределением в  $[x_s, x_{s+1}]$ .

4. Заметим, что значение некоторого искомого функционала  $\Phi(t, x)$  в точке  $t = t_{\text{stat}}$  можно вычислить двумя способами:

1. Осреднить  $R$  независимых статистических оценок  $F^{(r)}$ , каждая из которых вычисляется на независимой реализации ансамбля пробных частиц:

$$\Phi(t_{\text{stat}}, x_s) \approx \frac{1}{R} \sum_{r=1}^R F^{(r)}(t_{\text{stat}}, x_s). \quad (10)$$

2. По одной реализации ансамбля пробных частиц осреднить значения статистической оценки  $F^{(1)}$  в  $R$  последовательных временных точках  $t_1 = t_{\text{stat}} < t_2 < \dots < t_R$ :

$$\Phi(t_{\text{stat}}, x_s) \approx \frac{1}{R} \sum_{r=1}^R F^{(1)}(t_r, x_s). \quad (11)$$

Второй способ хорош тем, что при правильном выборе временных точек  $t_1, t_2, \dots, t_R$  последовательные значения статистической оценки  $F^{(1)}(t_r, \cdot)$ ,  $r = 1, 2, \dots, R$ , будут коррелированы, и вследствие этого функционал будет вычисляться точнее. Первый способ больше подходит для параллельной реализации моделирования при условии, что при распределении по процессорам независимые реализации ансамбля полностью помещаются в оперативной памяти процессоров и используемые процессоры достаточно производительны.

### 3.2. Моделирование нуклеационно-коагуляционного этапа

1. Рассмотрим произвольную ячейку с номером  $s$ . Введем обозначение

$$c_i^{(s)}(t) = c_i(t, x_s) \Delta x_s.$$

Для функции  $c_i^{(s)}(t)$  в интервале времени  $[t_k, t_{k+1}]$  можно записать следующую однородную систему уравнений Смолуховского:

$$\begin{aligned} \frac{dc_1^{(s)}}{dt} &= -c_1^{(s)} \sum_{j=1}^{\infty} K_{1,j}^{(s)} c_j^{(s)} + I_1^{(s)}, \\ \frac{dc_i^{(s)}}{dt} &= \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} K_{i-j,j}^{(s)} c_{i-j}^{(s)} c_j^{(s)} - c_i^{(s)} \sum_{j=1}^{\infty} K_{i,j}^{(s)} c_j^{(s)}, \quad i \geq 2. \end{aligned} \quad (12)$$

Здесь ядро коагуляции  $K_{i,j}^{(s)}$  и частота нуклеации  $I_1^{(s)}$  определены следующим образом:

$$K_{i,j}^{(s)} = \frac{1}{\Delta x_s} K_{i,j}(x_s), \quad I_1^{(s)} = \Delta x_s I_1(x_s).$$

Для уравнения (12) определим начальные условия: вместо “точного” начального условия  $c_i^{(s)}(t_k) = c_i(t_k, x_s) \Delta x_s$  используется следующее приближенное выражение:

$$c_i^{(s)}(t_k) = \frac{n_i^{(s)}(t_k)}{N_s(t_k)}, \quad (13)$$

где значения  $n_i^{(s)}(t_k)$  и  $N_s(t_k)$  вычисляются в конце предыдущего временного интервала после завершения диффузионного этапа.

2. Для численного решения однородного уравнения (12), (13) можно использовать различные алгоритмы метода Монте-Карло: прямое статистическое моделирование процесса коагуляции [5, 8, 13], его модификацию на основе метода максимального сечения [6] и пр. Эти алгоритмы заключаются в моделировании случайных процессов, описывающих эволюцию ансамбля пробных частиц: рождения мономеров и коагуляции.

Хотя координаты пробных частиц не влияют на процессы нуклеации и коагуляции, тем не менее их нужно рассчитывать для последующего диффузионного переноса. Для определенности будем считать, что координата частицы, которая “родилась” в результате акта коагуляции, будет иметь равномерное распределение в ячейке. При “слипании” двух частиц  $p_1$  и  $p_2$  в одну ее координату положим равной координате одной из “слипшихся” частиц:  $(i_1, x(p_1, i_1), N_s) + (i_2, x(p_2, i_2), N_s) \rightarrow (i_1 + i_2, x(p_1, i_1), N_s)$ .

3. Если частота коагуляции велика, то ансамбль пробных частиц будет терять частицы. Это обстоятельство приводит к увеличению относительной статистической погрешности оценки спектра размеров.

Для решения этой проблемы применяется методика “удвоения” ансамбля частиц [13]. Если в ячейке число частиц уменьшится до некоторого критического предела  $n_{\text{дб}}$ :

$$\sum_i n_i^{(s)} < n_{\text{дб}},$$

то ансамбль частиц будет продублирован и нормировочный параметр  $N_s$  будет удвоен:

$$\{(i_1, x(p_1, i_1), N_s), \dots, (i_n, x(p_n, i_n), N_s)\} \\ \rightarrow \{(i_1, x(p_1, i_1), 2N_s), (i_1, x(p_1, i_1), 2N_s), \dots, (i_n, x(p_n, i_n), 2N_s), (i_n, x(p_n, i_n), 2N_s)\},$$

$$N_s \rightarrow 2N_s.$$

Заметим, что при этом позиции частиц тоже дублируются. Ясно, что такое преобразование не меняет “мгновенное” значение концентрации  $c_i$ :

$$c_i(t, x_s) \approx \frac{n_i^{(s)}(t)}{\Delta x_s N_s(t)} = \frac{2n_i^{(s)}(t)}{\Delta x_s 2N_s(t)}.$$

После “удвоения” моделирование продолжается с полученными ансамблем и нормировочным параметром.

Таким образом, описанная методика “удвоения” ансамбля пробных частиц позволяет контролировать величину относительной статистической погрешности численного решения.

### 3.3. Моделирование диффузионного этапа

**1. Моделирование траекторий пробных частиц и граничных условий.** Для моделирования траектории частицы  $p = (i, x(p, i), N_s)$  используется схема Эйлера [11]:

$$x'(p, i) = x(p, i) + \Delta t v(x(p, i)) + \sqrt{2\Delta t D_i(x(p, i))} \xi. \quad (14)$$

Здесь  $x(p, i)$  – координата частицы до переноса,  $x'(p, i)$  – ее новая координата, а  $\xi$  – случайная величина со стандартным нормальным распределением.

Определим способ моделирования граничных условий (3). Для того, чтобы учесть граничное условие при  $x = X_1$ , частицам разрешается выходить за левую границу и не разрешается через нее возвращаться. Тогда приближенно выполняется граничное условие  $c_i(t, X_1) = 0$ .

Для моделирования второго граничного условия введем дополнительный интервал  $[X_2, X_2']$ . Для учета граничного условия при  $x = X_2$  частицам разрешается выходить за правую границу и возвращаться через нее. Поскольку справа от  $X_2$  частоты нуклеации и коагуляции равны нулю, а величины сноса и диффузии постоянны, то моделирование диффузионного переноса на интервале  $[X_2, X_2']$  приводит к тому, что концентрации частиц в окрестности точки  $X_2$  не меняются. Следовательно, приближенно выполняется соотношение  $\frac{\partial c_i}{\partial x}(t, X_2) = 0$ .

**2. Преобразование ансамбля пробных частиц.** Если в ряде ячеек происходит удвоение ансамблей, то после выполнения диффузионного этапа необходимо специальным образом преобразовать ансамбль пробных частиц, поскольку в какой-либо ячейке могут оказаться частицы, соответствующие разным нормировочным параметрам.

А именно, предположим, что в  $s$ -й ячейке после выполнения диффузионного этапа находится следующий набор частиц:  $\{p_1^{s1}, p_2^{s2}, \dots, p_l^{sl}\}$ , где  $p_m^{sm} = (i_m, x(p_m^{sm}, i_m), N_{s_m})$  обозначает частицу, “перенесенную” из ячейки с номером  $s_m$  (некоторые из номеров  $s_m$  могут быть равны  $s$  – это значит, что соответствующие частицы не покидали ячейку). Тогда концентрация вычисляется по формуле



$$c_i(t_k, x_s) \approx \frac{1}{\Delta x_s} \sum_{m=1}^l \frac{n_i^{s_m}}{N_{s_m}},$$

где  $n_i^{s_m}$  обозначает число  $i$ -меров, соответствующих ячейке с номером  $s_m$ .

Обозначим

$$N_s^{\max} = \max_{m=1,2,\dots,n} N_{s_m}.$$

Выберем  $N_s^{\max}$  в качестве нового нормировочного параметра для ячейки:  $N_s = N_s^{\max}$ .

Рассмотрим  $q_m = \frac{N_s^{\max}}{N_{s_m}}$  копий частицы  $p_m^{s_m}$  при условии, что  $q_m > 1$ :

$$(i_m, x(p_m^{s_m}, i_m), N_{s_m}) \rightarrow \underbrace{(i_m, x(p_m^{s_m}, i_m), N_s^{\max}), \dots, (i_m, x(p_m^{s_m}, i_m), N_s^{\max}))}_{q_m \text{ копий}}.$$

При этом также копируются координаты частиц. Отметим, что концентрация остается неизменной:

$$\frac{1}{\Delta x_s} \sum_{m=1}^n \frac{n_i^{s_m} q_m}{N_s^{\max}} = \frac{1}{\Delta x_s} \sum_{m=1}^l \frac{n_i^{s_m}}{N_{s_m}}.$$

### 3.4. Выбор шага по времени и размеров ячеек

1. По-видимому, сама по себе схема расщепления не диктует явных ограничений на соотношения между размерами ячеек и шагом по времени. Поэтому размеры ячеек следует выбирать из требований на погрешность моделирования однородных процессов коагуляции и нуклеации в ячейках, а размер шага по времени следует выбирать из соображений точности моделирования процесса диффузии.

Для проверки правильности этой методики был проведен ряд модельных численных экспериментов. Однако было замечено, что с уменьшением характерного размера ячеек при фиксированном шаге по времени увеличиваются флуктуации решения в ячейках. По-видимому, размеры ячеек все же следует связывать с размером шага по времени условием ограничения величины флуктуаций некоторой величиной.

2. Решая соответствующее одномерное уравнение диффузии с источником методом стохастических частиц, можно приближенно проверить правильность выбора конкретного набора параметров алгоритма  $\{N; \Delta t; S, \Delta x_1, \Delta x_2, \dots, \Delta x_S\}$ , а также длины дополнительного интервала  $[X_2, X_2']$ , необходимого для моделирования второго граничного условия.

А именно, в (1), (3) положим  $K_{i,j} \equiv 0$ . Рассмотрим первое уравнение для функции  $c_1$ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1}{\partial t} + \frac{\partial(v c_1)}{\partial x} - \frac{\partial^2(D_1 c_1)}{\partial x^2} &= I_1, \quad t \in [0, T], \quad x \in [X_1, X_2], \\ c_1(0, x) &= c_1^0(x), \quad c_1(t, X_1) = 0, \quad \frac{\partial c_1}{\partial x}(t, X_2) = 0. \end{aligned} \quad (15)$$

Заметим, что можно рассматривать уравнения и для остальных функций  $c_2, c_3, \dots$ . Однако коэффициенты диффузии, как правило, находятся в обратной степенной зависимости от размеров частицы:  $D_i \sim i^{-r}$ ,  $r \geq 0$ . Следовательно, коэффициент  $D_1$  будет максимальным и поэтому уравнение для  $c_1$  в некотором роде определяет "характер" диффузии и нуклеации.

Составим несколько наборов параметров  $\{N; \Delta t; S, \Delta x_1, \Delta x_2, \dots, \Delta x_S\}$ , а также несколько вариантов для дополнительного интервала  $[X_2, X'_2]$ . Сравнивая решения уравнения (15), полученные каким-либо конечно-разностным методом и методом стохастических пробных частиц без коагуляции, можно выбрать набор параметров, обеспечивающий лучшее соответствие конечно-разностного решения стохастическому.

#### 4. Численные эксперименты

В этом разделе для модельной задачи (1), (3) произведено сравнение ее решения с решением приближенной задачи (4). Показано, что численные решения двух задач заметно отличаются.

##### 4.1. Модельная задача

Рассмотрим классический случай броуновской коагуляции [4]. Положим

$$D_i(x) = C(x) \left( \frac{3}{4\pi} \right)^{-1/3} i^{-1/3},$$

где функция  $C(x)$  определяет "неоднородность" задачи. Тогда ядро коагуляции равно

$$K_{i,j}(x) = 4\pi C(x) (i^{1/3} + j^{1/3}) (i^{-1/3} + j^{-1/3}).$$

Положим

$$\begin{aligned} X_1 &= 0, & X_2 &= 10, & T &= 0.2, \\ C(x) &= \begin{cases} -\frac{45}{256}(8-x)^3 + 100 & \text{при } x \leq 8, \\ 100 & \text{при } x > 8, \end{cases} \\ v(x) &\equiv 100, & I_1(x) &\equiv 10, & c_i^0(x) &\equiv 0. \end{aligned}$$

Ясно, что с выбранным значением сноса без учета диффузии частица пройдет интервал  $[0, 10]$  за 0.1 единиц времени, поэтому при  $t = 0.2$  уже с учетом диффузии гарантированно наступит стационарное состояние решения, таким образом, положим  $t_{\text{stat}} = 0.2$ .

При таком выборе функции  $C(x)$  коэффициент диффузии  $D_1$  на участке  $[0, 8]$  будет возрастать примерно от 10 до 100, а при больших значениях  $x$  становится постоянным. Такой выбор обеспечит значительный "вклад" диффузии в решение. Коэффициент коагуляции зависит от переменной  $x$  аналогичным образом.

##### 4.2. Оценка параметров алгоритма

Используя методику, описанную в п. 3.4, подберем параметры алгоритма

$$\{N; \Delta t; S, \Delta x_1, \Delta x_2, \dots, \Delta x_S\},$$

а также длину дополнительного интервала  $[X_2, X'_2]$ .

Положим  $N = 100$ ,  $X'_2 = 20$ . Как показывают расчеты, выбирать параметр  $N$  большим 100 нецелесообразно из-за ограниченных ресурсов ЭВМ. Сравнительно большая величина  $X'_2 = 20$  обусловлена значительным "вкладом" диффузии в решение, и при меньших значениях  $X'_2$  правое граничное условие моделируется неточно.

Рассмотрим два варианта временного шага:  $\Delta t = 2.5 \cdot 10^{-3}$  и  $5 \cdot 10^{-3}$ . Также рассмотрим два варианта выбора размеров ячеек:  $\Delta x_i = 2 \cdot 10^{-1}$ ,  $S = 50$  и  $\Delta x_i = 10^{-1}$ ,  $S = 100$ .

Как показывают результаты расчетов, уменьшение размера временного шага в два раза не приводит к существенному улучшению результата. Кроме того, было замечено, что с уменьшением размера ячеек при фиксированном шаге по времени увеличиваются флуктуации решения в ячейках.

Таким образом, следует признать целесообразным использовать следующий набор параметров:  $\Delta t = 5 \cdot 10^{-3}$ ,  $\Delta x_i = 2 \cdot 10^{-1}$ ,  $S = 50$ .

Для уравнения (15) на рис. 1 приведено сравнение конечно-разностного решения (энергетическая разностная схема) со стохастическим решением с указанными параметрами.

Для стохастического решения количество траекторий составило  $L = 10^3$ , что обеспечило уровень относительной статистической погрешности оценки  $c_1$  примерно в 5% в среднем по пространственному интервалу.

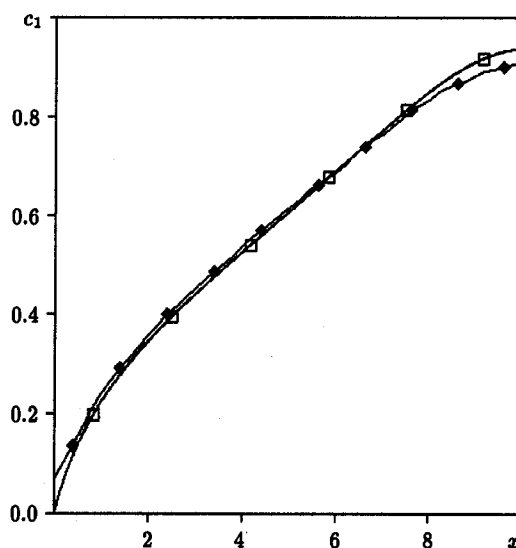


Рис. 1. Сравнение конечно-разностного (□) и стохастического (♦) численных решений для уравнения (15)

### 4.3. Сравнение решения задачи (1), (3) с решением задачи (4)

Сравним функционалы от решения задачи (1), (3) с функционалами от решения задачи (4), пользуясь соотношением (5). В соотношении (5) положим  $\bar{T} = 0.1$ . Для простоты будем называть задачу (1), (3) "неоднородной", а задачу (4) – "однородной". Результаты сравнения приведены на рис. 2–6.

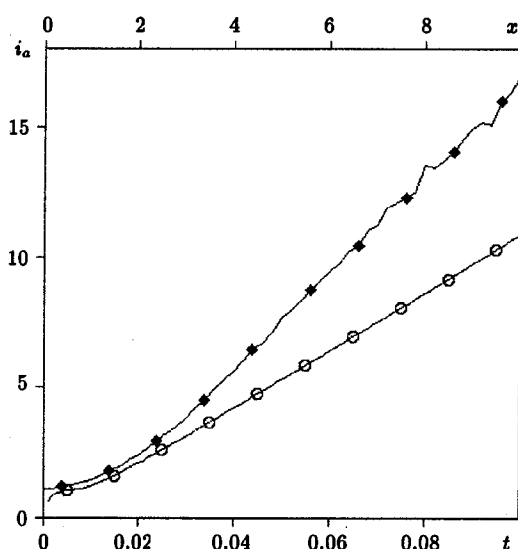


Рис. 2. Сравнение среднего размера частиц  $i_a$  для неоднородной (♦) и однородной (○) задач

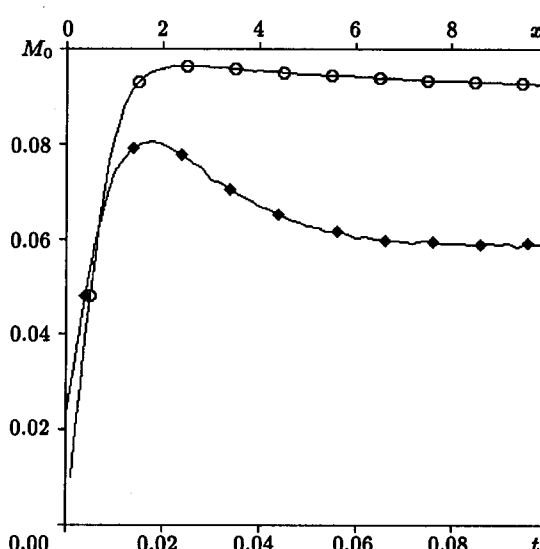


Рис. 3. Сравнение нулевых моментов  $M_0$  для неоднородной (♦) и однородной (○) задач

Для численного решения однородной задачи использовался метод прямого статистического моделирования с нормировочным параметром  $N = 10^4$  и числом траекторий  $L = 6 \cdot 10^3$ . Также использовалась описанная в разделе 3.2 методика удвоения ансамбля с параметром  $n_{\text{дв}} = 5 \cdot 10^3$ . Эти параметры обеспечили уровень относительной статистической погрешности оценки функционалов меньше 1% в среднем по пространственному интервалу.

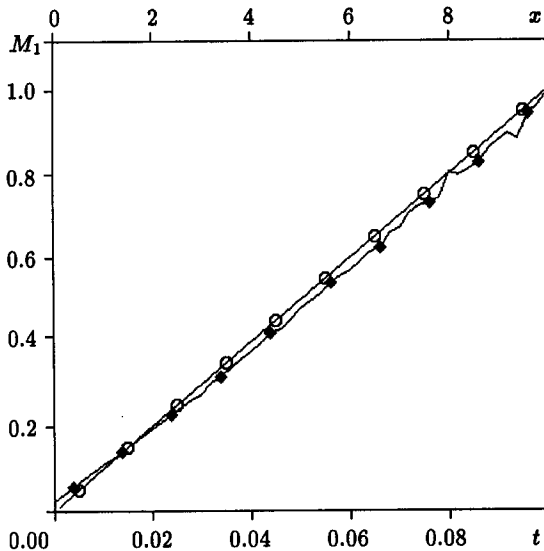


Рис. 4. Сравнение первых моментов  $M_1$  для неоднородной ( $\blacklozenge$ ) и однородной ( $\circ$ ) задач

не привела к разнице между оценками первого момента для однородной и неоднородной задач. Отметим также, что как видно из рис. 6, использование методики удвоения ансамбля частиц помогает сохранять достаточное число частиц.

Из сравнения рассчитанных функционалов видно, что для модельной проблемы численные решения однородной и неоднородной задач заметно отличаются.

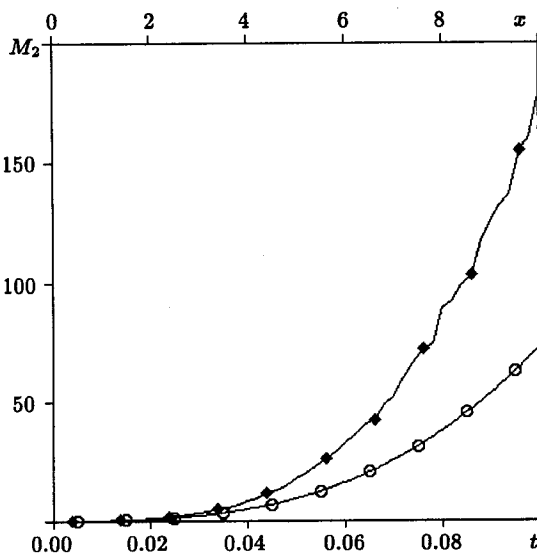


Рис. 5. Сравнение вторых моментов  $M_2$  для неоднородной ( $\blacklozenge$ ) и однородной ( $\circ$ ) задач

При численном решении неоднородной задачи использовались параметры, подобранные в п. 4.2. Также использовалась описанная в п. 3.2 методика удвоения ансамбля с параметром  $n_{\text{дв}} = 50$ . Число моделируемых траекторий составило  $L = 200$ . Эти параметры обеспечили уровень относительной статистической погрешности в среднем по пространственному интервалу для оценки среднего размера частиц  $i_a$  – меньше 5%; для оценки нулевого момента  $M_0$  – меньше 2%; для оценки первого момента  $M_1$  – меньше 5%; для оценки второго момента  $M_2$  – меньше 10%.

Рис. 4 показывает, что первый момент, или “полная масса” всех частиц определяется только функцией  $I_1$  и длиной временного интервала  $[0, T]$ . Интересно, что даже неоднородность коэффициента диффузии

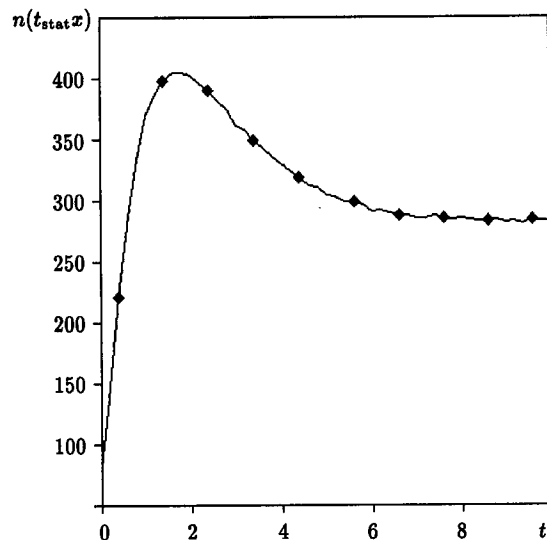


Рис. 6. Среднее число частиц  $n$  для неоднородной задачи

## 5. Заключение

Разработанный в работе стохастический алгоритм численного решения неоднородного уравнения Смолуховского с диффузией может быть сравнительно просто обобщен для широкого круга приложений. Заметим, учитывая сказанное во введении, что несмотря на большую вычислительную трудоемкость, алгоритм может оказаться полезным для решения сложных практических задач.

В заключение выделим некоторые возможные направления будущих исследований:

- исследовании дисперсии статистических оценок, ее зависимость от параметров алгоритма;
- исследование сходимости алгоритма;
- вычисление параметрических производных от решения, например производных по нормировочному параметру или по диффузионным коэффициентам.
- обобщение алгоритма для многомерных задач;
- оптимизация алгоритма с целью уменьшения вычислительной трудоемкости (в частности, использование методов, сохраняющих число модельных части при моделировании коагуляции).

## Список литературы

- [1] Волощук В.М. Кинетическая теория коагуляции. — Л.: Гидрометеиздат, 1984.
- [2] Иванов М.С., Рогазинский С.В. Метод прямого статистического моделирования в динамике разреженного газа. — Новосибирск: ВЦ СО АН СССР, 1988.
- [3] Михайлов Г.А. Весовые алгоритмы статистического моделирования. — Новосибирск: Изд. ИВМиМГ СО РАН, 2003.
- [4] Смолуховский М. Три доклада о диффузии, броуновском молекулярном движении и коагуляции коллоидных частиц // Броуновское движение. — М., 1936.
- [5] Aldous D.J. Deterministic and stochastic models for coalescence (aggregation and coagulation): A review of the mean-field theory for probabilists // Bernoulli. — 1999. — Vol. 5, № 1. — P. 3–48.
- [6] Eibeck A., Wagner W. An Efficient Stochastic Algorithm for Studying Coagulation Dynamics and Gelation Phenomena // SIAM J. Sci. Comput. — 2000. — Vol. 22, № 3. — P. 802–821.
- [7] Garcia A. L., den Broeck V., Aertsens M., Serneels R. A Monte Carlo simulation of coagulation // Physica A. — 1987. — № 143. — P. 535–546.
- [8] Gillespie, D. T. Exact Method for Numerically Simulating the Stochastic Coalescence Process in a Cloud // J. Atmospheric Sci. — 1975. — Vol. 32, № 10. — P. 1977–1989.
- [9] Grosschmidt D., Bockhorn H., Goodson M., Kraft M. Two approaches to the simulation of silica particle systems // Proc. Combust. Inst. — 2002. — Vol. 29. — P. 1039–1046.
- [10] Guias F. Stochastic Models for Coagulation-Fragmentation Processes / ECMI–Activity Report. Ed. by Milan Research Center for Indust. and Appl. Math. — 1999.
- [11] Kloeden P.E., Platen E. Numerical solution of stochastic differential equations // Application of Math. — Berlin: Springer, 1995. — № 13.

- [12] Kolodko A., Sabelfeld K. Stochastic Lagrangian model for spatially inhomogeneous Smoluchowski equation governing coagulating and diffusing particles // Mathematics and Computers in Simulation. — 2003. — Vol. 61, № 2. — P. 115–137.
- [13] Sabelfeld K., Rogasinsky S., Kolodko A., Levykin A. Stochastic algorithms for solving the Smolouchovski coagulation equation and applications to aerosol growth simulation // Monte Carlo Methods and Appl. — 1996. — Vol. 2, № 1. — P. 41–87.

Институт вычислительной математики  
и математической геофизики СО РАН,  
просп. Акад. М.А. Лаврентьева, 6,  
Новосибирск, 630090  
E-mail: mam@osmf.sccc.ru

*Статья поступила*  
*2 февраля 2005 г.*  
*Переработанный вариант*  
*17 февраля 2005 г.*