

На правах рукописи

Осинский Александр Игоревич

**Кинетика агрегации и фрагментации в неоднородных
системах**

Специальность 1.2.2 —
«Математическое моделирование, численные методы и
комплексы программ»

Автореферат
диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Москва — 2022

Работа выполнена в Автономной некоммерческой образовательной организации высшего профессионального образования «Сколковский институт науки и технологий».

Научный руководитель: **Бриллиантов Николай Васильевич**,
доктор физико-математических наук

Официальные оппоненты: **Сабельфельд Карл Карлович**,
доктор физико-математических наук, профессор,
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт вычислительной математики и математической геофизики Сибирского отделения Российской академии наук,
главный научный сотрудник

Богомолов Сергей Владимирович,
доктор физико-математических наук, доцент,
Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова»,
профессор

Ведущая организация: Федеральное государственное учреждение «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной математики им. М.В. Келдыша Российской академии наук»

Защита состоится 28 сентября 2022 г. в 16:30 часов на заседании диссертационного совета 24.1.455.01 на базе Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института вычислительной математики им. Г.И. Марчука Российской академии наук по адресу: 119991, г. Москва, ул. Губкина, д. 8, ауд. 727.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИВМ РАН и на сайте <https://www.inm.ras.ru>.

Отзывы на автореферат в двух экземплярах, заверенные печатью учреждения, просьба направлять по адресу: 119991, г. Москва, ул. Губкина, д. 8, учёному секретарю диссертационного совета 24.1.455.01.

Автореферат разослан «__» _____ 2022 года.

Ученый секретарь
диссертационного совета
24.1.455.01,
д. ф.-м. н.

Бочаров Геннадий Алексеевич

Общая характеристика работы

Актуальность темы исследования. Адекватное моделирование агрегации и фрагментации необходимо для описания широкого класса явлений, включая природные и производственные процессы. Особый интерес представляют указанные процессы, отвечающие баллистическому механизму переноса частиц. Среди природных явлений можно упомянуть атмосферные явления агрегации загрязняющих воздух частиц, образование дождевых капель, формирование протопланет, планетных колец и другие. Производственные процессы, связанные с напылением на подложку новой фазы, с использованием струйных мельниц, для получения ультрадисперсных продуктов сухим способом, также основаны на баллистической агрегации и фрагментации частиц.

Теоретической основой описания указанных процессов являются классические уравнения Смолуховского, для решения которых был развит обширный арсенал численных методов. Тем не менее моделирование баллистической агрегации и фрагментации связано с целым рядом сложностей. Это определено, во-первых, отсутствием строго полученных уравнений Смолуховского для указанных процессов, включая уравнения для пространственно-неоднородных систем. Во-вторых, отсутствием эффективных численных методов решения таких уравнений. Существующие подходы для описания баллистической агрегации и фрагментации основаны на феноменологическом обобщении классических уравнений Смолуховского. Кинетические коэффициенты в этих уравнениях, как правило, представляют собой феноменологические или модельные соотношения, не отражающие микроскопические механизмы изучаемых процессов.

Уравнения Смолуховского представляют собой бесконечную систему дифференциальных уравнений, что, само по себе, существенно усложняет численное решение последних. Несмотря на то, что к настоящему времени были разработаны быстрые малоранговые методы для решения классических уравнений Смолуховского, они не могут быть непосредственно применены к новым моделям, где матрицы кинетических коэффициентов имеют более сложный вид и зависят от времени. Поэтому необходимо обобщение малорангового подхода для задач, отвечающих обобщенным уравнениям Смолуховского. Последнее относится и к моделированию методами Монте-Карло, применение которых к полидисперсным (многокомпонентным) системам сопряжено с высокими вычислительными затратами. Потребность в более эффективных методах моделирования особенно важна в системах, для которых нельзя аналитически вывести соответствующие им уравнения Смолуховского. Следовательно, актуальным является рассмотрение возможности применения малоранговой аппроксимации для ускорения численных экспериментов на основе методов Монте-Карло.

Таким образом, микроскопический вывод и анализ обобщенных уравнений Смолуховского, описывающих агрегацию и фрагментацию частиц и учитывающих пространственную неоднородность системы, а также разработка

эффективных численных методов для их решения представляет собой важную и актуальную научную проблему.

Целью данной работы является исследование моделей агрегации и фрагментации, которые задаются обобщенными уравнениями Смолуховского, учет влияния агрегации на температуры, скорости потока и транспортные коэффициенты полидисперсных газов, разработка эффективных численных методов решения обобщенных уравнений Смолуховского и проведения Монте-Карло моделирования.

Для достижения поставленной цели решены следующие **задачи**:

1. Выведены обобщенные уравнения Смолуховского, а именно Смолуховского-Эйлера и Смолуховского-Навье-Стокса на основе микроскопических моделей столкновений частиц для адекватного описания пространственно-неоднородных систем;
2. Аналитически и численно проанализированы полученные уравнения, в том числе с использованием скейлингового подхода и путем построения точных решений для модельных кинетических коэффициентов;
3. Построены эффективные численные методы для решения больших систем обыкновенных дифференциальных уравнений, отвечающих полученным обобщенным уравнениям Смолуховского, и соответствующие им методы Монте-Карло.

Научная новизна:

1. Впервые из базовых физических принципов выведены обобщенные уравнения Смолуховского для пространственно неоднородных систем – уравнения Смолуховского-Эйлера и Смолуховского-Навье-Стокса и проведен их аналитический и численный анализ. Вывод ядер для этих и более сложных уравнений выполняется автоматически, с использованием программы символьных вычислений.
2. Впервые получено прямое численное решение обобщенных уравнений Смолуховского и разработана скейлинговая теория, предсказывающая вид решения на больших временах.
3. Впервые предложен малоранговый метод решения обобщенных уравнений Смолуховского.
4. Впервые малоранговый метод был успешно использован для ускорения моделирования гранулярных газов методом Монте-Карло. Получено существенное ускорение численных методов решения уравнений Смолуховского и моделирования методом Монте-Карло гранулярных газов.
5. Впервые получены точные решения температурно-зависимых уравнений Смолуховского для целого ряда модельных кинетических коэффициентов.
6. Благодаря высокой скорости новых методов, впервые удалось проанализировать распределение скоростей и температур частиц в

агрегирующих гранулярных газах и распределение температур в полидисперсных неагрегирующих гранулярных газах.

Теоретическая значимость полученных результатов заключается в выводе из первых принципов обобщенных уравнений Смолуховского. Вывод основан на микроскопической модели столкновений, включенной в уравнения Больцмана, а потому превосходит существующие феноменологические модели. Полученные результаты позволяют учитывать пространственную неоднородность системы, включая неоднородность распределения температур, скоростей потоков агрегирующих частиц и их изменение в процессе агрегации и фрагментации, а также влияние размеров частиц на вероятность агрегации, вклад в кинетику агрегации тройных столкновений.

Практическая значимость полученных результатов определяется тем, что в диссертации решаются актуальные проблемы моделирования баллистической агрегации и фрагментации. Полученные результаты могут быть использованы для моделирования целого ряда атмосферных явлений, таких как агрегация и распространение твердых частиц, загрязняющих воздух, агрегация водяных капель в облаках и во время дождя, где важную роль играет неоднородность распределения скоростей и размеров по вертикали. Обобщенные уравнения Смолуховского могут быть также использованы для построения более точных моделей формирования планетных колец и протопланет, где существенное влияние на агрегацию частиц оказывает неоднородность распределения температур в протопланетном диске. Наконец, результаты работы могут найти применение в моделировании струйных мельниц, используемых для получения ультрадисперсных продуктов, и многих других природных и производственных процессов.

Описание методологии исследования. Вывод обобщенных уравнений Смолуховского был осуществлен на основе кинетических интегралов столкновений Больцмана. Для учета пространственных неоднородностей применялись метод моментов Грэда и подход Чепмена-Энскога. Для ускорения решения обобщенных уравнений Смолуховского были применены методы быстрой малоранговой аппроксимации, такие как mtxvol . Фрагментационные столкновения исследовались с помощью программного пакета LAMMPS.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Написан код на языке символьного программирования Wolfram Mathematica, позволяющий автоматически получать аналитические соотношения для интегралов столкновений Больцмана. На его основе найдены микроскопические выражения для кинетических коэффициентов в обобщенных уравнениях Смолуховского, включая уравнения Смолуховского-Эйлера и Смолуховского-Навье-Стокса, отвечающие баллистической агрегации и фрагментации частиц. Также получены соотношения для коэффициентов вязкости и теплопроводности, и коэффициенты разложения функции распределения скоростей агрегатов по полиномам Сонина;

2. Разработан метод решения температурно-зависимых уравнений Смолуховского, обобщающий метод малорангового решения классических уравнений. Показано, как можно увеличить точность малоранговой аппроксимации и использовать адаптивный шаг по времени. Новый способ ускоряет решение обобщенных температурно-зависимых уравнений Смолуховского примерно в 60 раз;
3. Построены малоранговые методы Монте-Карло для решения классических и температурно-зависимых уравнений Смолуховского, и уравнений Больцмана. Использование малорангового мажоранта приводит к ускорению в 7 и более раз по сравнению со стандартными методами Монте-Карло.
4. Разработана скейлинговая теория кинетики агрегации, предсказывающая режимы и скорость агрегации в зависимости от параметров системы. Показано, как на основе показателей однородности ядра столкновений и вероятности агрегации можно определить на больших временах функцию распределения концентраций и температур агрегатов;
5. С использованием новых численных методов установлен ряд новых режимов агрегации – автомодельного роста температур и разделения распределения концентраций на большие и малые кластеры. Подтверждены предсказания скейлинговой теории и доказано отсутствие режима гелеобразования для баллистической агрегации;
6. Проведено прямое моделирование методом Монте-Карло уравнения Больцмана для агрегирующих систем. Установлено незначительное отличие функции распределения скоростей частиц от распределения Максвелла. Теоретически описано отклонение фактического распределения скоростей частиц от максвелловского с использованием полиномов Сонина; показано хорошее согласие теории с результатами численного моделирования;
7. Методом молекулярной динамики проведены численные эксперименты по столкновению агрегатов с различным потенциалом взаимодействия частиц в кластерах. Эксперименты показали полиномиальную зависимость размеров и кинетических энергий осколков от их массы, а также экспоненциальную зависимость числа осколков, состоящих из нескольких мономеров, от скорости столкновения.

Достоверность и апробация результатов. Достоверность результатов подтверждается использованием широкого спектра дополняющих друг друга аналитических и численных методов. Теоретические выводы подтверждаются как прямым численным решением обобщенных уравнений Смолуховского, так и моделированием агрегирующих систем методами Монте-Карло. Положения и выводы, сформулированные в диссертации, получили квалифицированную

апробацию на международных научных конференциях. Достоверность также подтверждается публикацией результатов исследований в рецензируемых научных журналах.

Результаты работы были представлены на ведущих российских и международных конференциях, в том числе:

1. Международная конференция “The 5th International Conference on Matrix Methods in Mathematics and applications (МММА 2019)”, Москва, Россия, 2019.
2. Международная конференция “33rd M. Smoluchowski Symposium on Statistical Physics”, Краков, Польша, 2020.

Публикации. По теме диссертации опубликовано 6 работ [1-6], из них все 6 в журналах, входящих в перечень рецензируемых научных изданий, в которых должны быть опубликованы основные научные результаты диссертаций на соискание учёной степени кандидата наук, в том числе все 6 публикаций в изданиях, включенных в международные системы цитирования WoS и/или Scopus.

Личный вклад автора в разработку проблемы. Диссертант участвовал в формулировке цели и задач исследования, произвел вывод новых видов обобщенных уравнений Смолуховского и их теоретический анализ, построил новые эффективные алгоритмы их решения. Все алгоритмы решения уравнений и проведения Монте-Карло моделирования были написаны автором на языке Fortran. Эксперименты по молекулярной динамике и их анализ были проведены автором с помощью пакета LAMMPS. Автором были получены и проанализированы решения всех видов обобщенных уравнений Смолуховского, в том числе с помощью Монте-Карло моделирования.

Личный вклад соискателя в работах с соавторами заключается в следующем. В работах [1-2] автором были проведены все Монте-Карло симуляции, получен и описан эффективный алгоритм для них. Соискателем также был получен строгий вывод вида распределения температур для гранулярных газов с различными типами притока энергии и достаточные для этого условия. Работа [3] полностью написана соискателем. Автором был разработан малоранговый метод решения температурно-зависимых уравнений Смолуховского, проведено его сравнение с методом конечных объемов и методом Монте-Карло. В работе [4] соискателем было получено выражение для скорости сходимости решения температурно-зависимых уравнений Смолуховского к предельному распределению концентраций, численно получен вид распределения концентраций по размерам, зависимость общей концентрации и температуры от времени в 2D и 3D, зависимость числа мономеров от времени, а также аналитические аппроксимации для всего вышеперечисленного. В работе [5] соискателем были численно получены распределения концентраций и температур и их эволюция во времени, выведены параметры автомодельных решений и границы областей фазовой диаграммы. Был разработан и применен малоранговый метод Монте-Карло для температурно-зависимых уравнений Смолуховского. В работе [6]

соискателем было проведено моделирование фрагментационных столкновений и на его основе получены распределения масс осколков и их кинетических энергий, угловое распределение фрагментов, предложен способ разделения типов столкновений, обнаружен скейлинг для числа «немономеров» и потерь кинетической энергии.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения и 5 приложений. Полный объем диссертации составляет 171 страницу текста с 37 рисунками и 12 таблицами. Список литературы содержит 129 наименований.

Содержание работы

Во введении обосновывается актуальность диссертационной работы, описаны решаемые проблемы и использованные для решения методы, сформулированы цели и задачи исследования, представлены выносимые на защиту научные положения, аргументирована научная новизна исследований, обоснована теоретическая и практическая значимость полученных результатов, перечислены публикации по теме диссертации.

В первой главе проведен обзор литературы по теме диссертации. Описан вывод броуновского и баллистического ядер, приведены известные результаты теории масштабирования для агрегации, упомянуты результаты моделирования фрагментации, описаны основные методы учета пространственных неоднородностей в уравнениях Больцмана, приведено описание численных методов решения уравнений Смолуховского.

Во второй главе рассматриваются температурно-зависимые уравнения Смолуховского и их обобщения.

Температурно-зависимые уравнения Смолуховского записываются как:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_k &= \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} C_{ij}(T_i, T_j) n_i n_j - \sum_{j=1}^N C_{kj}(T_i, T_j) n_k n_j, \quad k = \overline{1, N}, \\ \frac{\partial}{\partial t} (n_k T_k) &= \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} B_{ij}(T_i, T_j) n_i n_j - \sum_{j=1}^N D_{kj}(T_i, T_j) n_k n_j, \quad k = \overline{1, N}. \end{aligned} \quad (1)$$

где n_k – это парциальные концентрации, а T_k – парциальные температуры. Данные уравнения уже были известны ранее, однако не было достигнуто понимания поведения их решений, как и не существовало эффективных численных методов для их анализа. Заметим, что стандартные методы Монте-Карло (обратный метод и метод принятия-отклонения) и их модификации в данном случае не применимы.

Точные решения температурно-зависимых уравнений были получены для некоторых специальных ядер, которые обобщают известные аналитические решения для случаев $C_{ij} = 1$, $C_{ij} = i + j$ и $C_{ij} = ij$. Примеры таких решений приведены в таблице 1.

Таблица 1 — Некоторые точные решения системы (1).

C_{ij}	B_{ij}	D_{ij}	T_k	n_k
$T_i + T_j$	$(T_i + T_j)^2 / 2$	$(T_i + T_j)^2 / 2 \pm jT_i$	$e^{\mp Tt}$	$\left(\frac{\pm(1-e^{\mp Tt})}{1 \pm (1-e^{\mp Tt})} \right)^{k-1} \times (1 \pm (1-e^{\mp Tt}))^{-2}$
$T_i + T_j$	$(T_i + T_j)^2$	$(T_i + T_j + 1)T_i$	$\frac{k}{1+t}$	$\frac{k^{k-1}}{k!(1+t)} \left(\frac{t}{1+t} \right)^{k-1} \times e^{-kt/(1+t)}$
$T_i T_j$	$T_i T_j (T_i + T_j)$	$T_i T_j (T_i + 1)$	$\frac{k}{1+t}$	$\frac{k^{k-3}}{(k-1)!} \left(\frac{t}{1+t} \right)^{k-1} \times e^{-kt/(1+t)}$
$\frac{T_i}{i} + \frac{T_j}{j}$	$\left(\frac{T_i}{i} + \frac{T_j}{j} \right) (T_i + T_j)$	$\left(2\frac{T_i}{i} + \frac{T_j}{j} \right) T_i$	$\frac{k}{\sqrt{1+2t}}$	$\left(1 - \frac{1}{\sqrt{1+2t}} \right)^{k-1} \times (1 + 2t)^{-1}$
$\frac{T_i}{i} + \frac{T_j}{j}$	$\left(\frac{T_i}{i} + \frac{T_j}{j} \right) (T_i + T_j)$	$\left(\frac{T_i}{i} + \frac{T_j}{j} - T_j \right) T_i$	$\frac{k}{1-t}$	$\left(\frac{-\ln(1-t)}{1-\ln(1-t)} \right)^{k-1} \times (1 - \ln(1-t))^{-2}$

Малоранговый Монте-Карло метод (описание которого мы приведем позже) был использован для приближения решений уравнений Больцмана, описывающих баллистическую агрегацию. Показано, что коэффициент α_2 перед вторым полиномом Сонина пропорционален $1/k$ для кластеров размера k . Это означает, что распределение скоростей для кластеров большого размера близко к распределению Максвелла (рисунок 1). Даже для частиц малого размера, где распределение скоростей должно стремиться к $f(\vec{v}) = \frac{1}{\pi} e^{-2m|\vec{v}|/T}$ согласно предсказанию полученной теории масштабирования, оно является близким к распределению Максвелла на конечных временах, и, как видно на том же рисунке, разность между ними хорошо приближается вторым полиномом Сонина.

Малоранговый метод Монте-Карло также позволил построить распределения температур для гранулярных газов с подкачкой энергии. Более того, было строго доказано, что для кластеров большого размера распределение температур близко к

$$T_i \sim m_i^\alpha,$$

где

$$\alpha = \begin{cases} \frac{5}{9} + \frac{2}{3}\gamma, & \text{если } \gamma \geq \frac{2}{3}, \\ \gamma + \frac{1}{3}, & \text{если } -\frac{1}{3} \leq \gamma \leq \frac{2}{3}, \end{cases} \quad (2)$$

независимо от механизма диссипации в столкновениях. Здесь приток энергии к кластерам размера k пропорционален k^γ . В частности, $\gamma = -1/3$ соответствует взаимодействию с молекулярным газом, поддерживаемом при постоянной

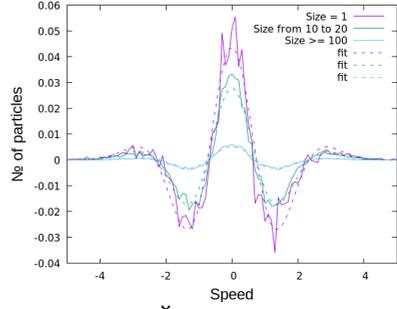
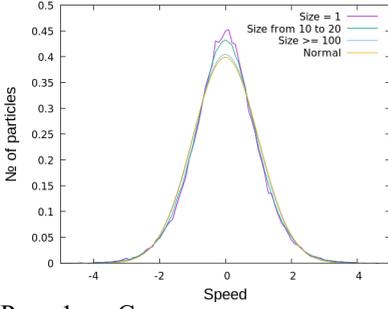


Рис. 1 — Слева: x -компонента распределения скоростей для различных размеров по сравнению с нормальным распределением для начального числа в $3 \cdot 10^7$ частиц в агрегирующем гранулярном газе. Распределения отнормированы к $T = 1$. Справа: разность между фактическим распределением и нормальным распределением, аппроксимированная проекцией второго полинома Сонина S_2 .

температуре. Распределение температур в этом случае будет постоянным, хотя температура гранулярного газа может сильно отличаться от температуры молекулярного газа.

В третьей главе приведены системы обобщенных уравнений Смолуховского с пространственными неоднородностями, показано, как их вывести с использованием программы на символьном языке программирования Wolfram Mathematica, приведены примеры численного решения уравнений с пространственными неоднородностями.

А именно, учет пространственных однородностей приводит к уравнениям Смолуховского-Эйлера:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_k + \vec{\nabla} (n_k \vec{u}_k) &= \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} C_{ij} n_i n_j - \sum_{j=1}^{\infty} C_{kj} n_k n_j, \quad k = \overline{1, \infty}, \\ \frac{\partial}{\partial t} (n_k \vec{u}_k) + n_k \vec{u}_k \cdot \vec{\nabla} \vec{u}_k + \vec{u}_k \vec{\nabla} (n_k \vec{u}_k) + \vec{\nabla} (n_k T_k / k) \\ &= \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} \vec{P}_{ij} n_i n_j - \sum_{j=1}^{\infty} \vec{R}_{kj} n_k n_j, \quad k = \overline{1, \infty}, \\ \frac{\partial}{\partial t} (n_k T_k) + n_k \vec{u}_k \cdot \vec{\nabla} T_k + T_k \vec{\nabla} (n_k \vec{u}_k) \\ &= \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} B_{ij} n_i n_j - \sum_{j=1}^{\infty} D_{kj} n_k n_j, \quad k = \overline{1, \infty}. \end{aligned}$$

Используя метод моментов Грэда и подход Чепмена-Энскога, были выведены уравнения Смолуховского-Навье-Стокса:

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t} n_k + \vec{\nabla} \cdot (n_k \vec{u}_k) &= \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} C_{ij} n_i n_j - \sum_{j=1}^{\infty} C_{kj} n_k n_j, \quad k = \overline{1, \infty}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (n_k \vec{u}_k) + n_k \vec{u}_k \cdot \vec{\nabla} \vec{u}_k + \vec{u}_k \vec{\nabla} \cdot (n_k \vec{u}_k) + \vec{\nabla} \cdot (n_k T_k / k) \\
- \frac{1}{k} \sum_{l=1}^{\infty} \eta_{kl} \vec{\nabla} \cdot \left(\nabla_i (u_l)_j + \nabla_j (u_l)_i - \frac{2}{3} \delta_{ij} \vec{\nabla} \cdot \vec{u}_l \right) \\
&= \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} \vec{P}_{ij} n_i n_j - \sum_{j=1}^{\infty} \vec{R}_{kj} n_k n_j, \quad k = \overline{1, \infty}, \\
\frac{\partial}{\partial t} (n_k T_k) + n_k \vec{u}_k \cdot \vec{\nabla} T_k + T_k \vec{\nabla} \cdot (n_k \vec{u}_k) \\
- \frac{2}{3} \sum_{l=1}^{\infty} \left(\eta_{kl} \left(\nabla_i (u_l)_j + \nabla_j (u_l)_i - \delta_{ij} \vec{\nabla} \cdot \vec{u}_l \right) : \vec{\nabla} \vec{u}_k + \frac{2}{3} \kappa_{kl} \Delta T_l \right) \\
&= \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} B_{ij} n_i n_j - \sum_{j=1}^{\infty} D_{kj} n_k n_j, \quad k = \overline{1, \infty}.
\end{aligned}$$

Эти уравнения дополняются уравнениями для парциальных вязкостей η_{kl} и теплопроводностей κ_{kl} . Данные коэффициенты переноса также описывают отклонение функции распределения скоростей от распределения Максвелла в терминах градиентов потоков и температур.

Соответствующие соотношения слишком сложны, чтобы приводить здесь, но они могут быть получены автоматически с использованием кода в Wolfram Mathematica, где также показывается пошаговый вывод:

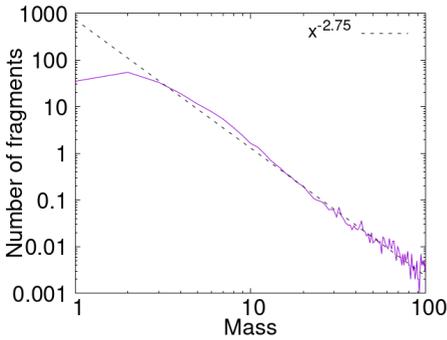
<https://github.com/RodniO/BoltzmannIntegrals/releases/tag/v1.0>

Указанный код также позволяет вывести ядра в уравнениях на коэффициенты полиномов Сонина и коэффициенты ядер фрагментации.

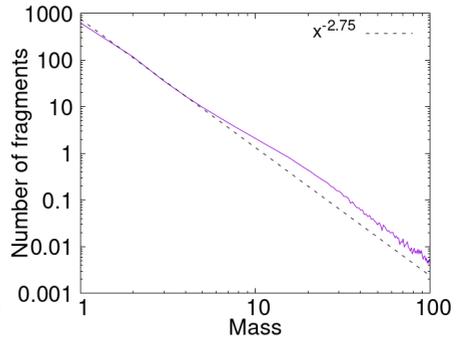
В четвёртой главе приводятся результаты моделирования фрагментационных столкновений методами молекулярной динамики для получения вида ядер фрагментации.

Было проведено множество экспериментов по фрагментации, чтобы найти аналитические выражения для соответствующих ядер. Было рассмотрено четыре потенциала: потенциал Леннарда-Джонса, его модификация с увеличением ширины потенциальной ямы, потенциал Терсоффа для углерода и модель Джонсона-Кендалла-Робертса для макроскопического адгезионного взаимодействия.

Результаты моделирования молекулярной динамики включают распределение масс осколков (рисунок 2), средней кинетической энергии осколков

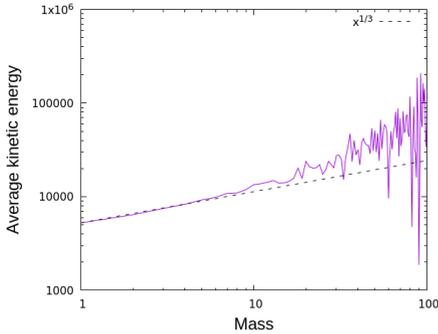


а) Потенциал Терсоффа для углерода, радиус кластеров $R = 2,87$ единиц решетки, $v_{imp} = 200$, усреднение по 1000 столкновениям.

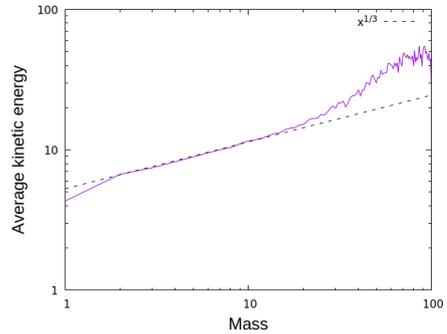


б) Потенциал Леннарда-Джонса, радиус кластеров $R = 5$, $v_{imp} = 4$, усреднение по 6635 столкновениям.

Рис. 2 — Распределение масс осколков для потенциалов Терсоффа и Леннарда-Джонса — число осколков размера m как функция их массы.



а) Потенциал Терсоффа для углерода, радиус кластеров $R = 2,87$ единиц решетки, $v_{imp} = 200$, усреднение по 500 столкновениям.



б) Потенциал Леннарда-Джонса, радиус кластеров $R = 5$, $v_{imp} = 4$, усреднение по 6635 столкновениям.

Рис. 3 — Распределение средней кинетической энергии осколков для потенциалов Терсоффа и Леннарда-Джонса.

(рисунок 3), относительного числа мономеров, суммарной потенциальной энергии и другие характеристики.

Получены следующие результаты. Число осколков $\sim m^{-2.75}$ для потенциалов Леннарда-Джонса и Терсоффа, $\sim m^{-2}$ для модифицированного

потенциала Леннарда-Джонса и $\sim m^{-4}$ для модели Джонсона-Кендалла-Робертса. Кинетические энергии осколков $E_{kin} \sim m^{1/3}$ для всех потенциалов. Причем, результаты не зависят от скорости соударения (если она достаточна для фрагментации). Для числа «немономеров» получено распределение $\sim e^{-cv_{col}}$, где v_{col} – скорость соударения. Эта зависимость наблюдалась независимо от вида потенциала. Для полной потенциальной энергии всех осколков наблюдалась зависимость $E_{pot,tot} \sim e^{-cv_{col}^2}$ для потенциалов Терсоффа и модели Джонсона-Кендалла-Робертса, и полиномиальное убывание для потенциалов Леннарда-Джонса и модифицированного потенциала Леннарда-Джонса.

Пятая глава посвящена новым численным методам решения уравнений Смолуховского, ускорению Монте-Карло моделирования, а также сравнению численных решений с предсказаниями теории масштабирования.

Чтобы моделировать температурно-зависимые уравнения Смолуховского, необходимо определить средние изменения парциальных температур в результате каждого столкновения. Это может быть достигнуто путем разбиения ядра D_{ij} на агрегационную и реституционную часть. Затем, используя выражения для среднего промежутка времени между столкновениями для каждой пары размеров i и j , выводятся изменения температур. А именно, когда кластеры i и j агрегируют, температуры обновляются следующим образом:

$$\begin{cases} T_i := T_i + \frac{T_i - D_{ij}^{agg}/C_{ij}}{N_i - 1}, \\ T_j := T_j + \frac{T_j - D_{ij}^{agg}/C_{ij}}{N_j - 1}, \\ T_{i+j} := T_{i+j} + \frac{B_{ij}/C_{ij} - T_{i+j}}{N_{i+j} + 1}. \end{cases}$$

Когда кластеры отскакивают друг от друга, обновления имеют вид:

$$\begin{cases} T_i := T_i - \frac{D_{ij}^{res}}{N_i C_{ij} (1 - P)/P}, \\ T_j := T_j - \frac{D_{ij}^{res}}{N_j C_{ij} (1 - P)/P}, \end{cases}$$

где P – вероятность агрегации, а N_i и N_j – число кластеров размера i и j .

Остальные этапы температурно-зависимого метода Монте-Карло аналогичны классическим методам.

Теперь перейдем к вопросу о том, как можно существенно ускорить Монте-Карло моделирование путем использования малорангового разложения.

Наиболее затратная часть моделирования агрегации методом Монте-Карло состоит в выборе пары сталкивающихся частиц. Чтобы ускорить этот

процесс, предлагается использовать малоранговое разложение ядра C_{ij} :

$$C_{ij}n_in_j = \sum_{l=1}^r \mathbf{u}^l \mathbf{v}^l.$$

На каждом временном шаге метода выбирается одно из l слагаемых данного разложения. Затем размеры сталкивающихся частиц i и j выбираются на основе компонент векторов \mathbf{u}^l и \mathbf{v}^l . Этот выбор, как и обновления соответствующих вероятностей, может быть ускорен при использовании деревьев отрезков, построенных на векторах \mathbf{u}^l и \mathbf{v}^l .

В случае, если ядро C_{ij} не является малоранговым, предлагается использовать мажорант $\tilde{C}_{ij} \geq C_{ij}$. Затем, после выбора частот на основе ядра \tilde{C}_{ij} , столкновение принимается с вероятностью

$$P_{acc} = \frac{C_{ij}}{\tilde{C}_{ij}},$$

что восстанавливает исходные частоты столкновений: столкновение между частицами i и j в итоге будет принято с вероятностью, пропорциональной $\tilde{C}_{ij}n_in_j \cdot \frac{C_{ij}}{\tilde{C}_{ij}} = C_{ij}n_in_j$.

Пусть мы выбрали произвольный (желательно близкий к C_{ij}) малоранговый мажорант $\tilde{C}_{ij} \geq C_{ij}$, так что теперь

$$\tilde{C}_{ij}n_in_j = \sum_{l=1}^r \mathbf{u}^l \mathbf{v}^l. \quad (3)$$

Тогда каждый шаг малорангового Монте-Карло метода состоит из следующих этапов:

1. Шаг по времени $\Delta t = \frac{2V}{\sum_{i=1}^r \sum_i u_i^l \sum_j v_j^l}$, где V – объем системы.
2. Выбирается компонента k разложения (3) с вероятностью, равной
$$P_k = \frac{\sum_i u_i^k \sum_j v_j^k}{\sum_{i=1}^r \sum_i u_i^i \sum_j v_j^i}.$$
3. Выбирается размер i с вероятностью $P_i = \frac{u_i^k}{\sum_i u_i^k}$ с помощью бинарного поиска в дереве отрезков на векторе \mathbf{u}^k .
4. Выбирается размер j с вероятностью $P_j = \frac{v_j^k}{\sum_j v_j^k}$ с помощью бинарного поиска в дереве отрезков на векторе \mathbf{v}^k .
5. Выбранные размеры принимаются с вероятностью $P_{acc} = \frac{C_{ij}}{\tilde{C}_{ij}}$, иначе алгоритм возвращается к шагу 1.
6. Производится столкновение: обновляются концентрации n_i, n_j, n_{i+j} и температуры T_i, T_j, T_{i+j} .

7. Обновляются деревья отрезков на векторах u^l и v^l для каждого $l = \overline{1, r}$. Полная вычислительная сложность каждого соударения определяется самым дорогим шагом – обновлением всех $2r$ деревьев отрезков – и составляет $O(r \log N)$, где $r = 3$ для аппроксимации баллистического ядра сверху, а N – максимальный размер кластеров в системе. Преимущество нового метода весьма значительно по сравнению со сложностью $O(N)$ обратного метода и сложностью $O(N^\alpha)$, $\alpha > 0$ для $C_{ij} \neq \text{const}$, для метода принятия-отклонения. Это позволило использовать при моделировании порядка 10^7 частиц, по сравнению с порядка 10^4 частиц, что является стандартом при решении классических уравнений Смолуховского.

Малоранговое разложение может быть также использовано для ускорения решения системы температурно-зависимых уравнений Смолуховского. В случае, когда малоранговое разложение известно и не меняется, сложность решения ОДУ Смолуховского снижается с $O(N^2)$ до $O(Nr \log N)$, где логарифмический множитель появляется из-за необходимости вычисления r дискретных сверток. Для температурно-зависимых уравнений появляется дополнительная сложность $O(Nr^2)$, связанная с необходимостью построения малоранговой аппроксимации на каждом шаге по времени. Для 5000 температурно-зависимых уравнений Смолуховского было достигнуто ускорение в 60 раз по сравнению со стандартным конечно-разностным методом. С увеличением числа уравнений преимущество нового метода возрастает.

Для дальнейшего увеличения скорости малорангового метода, было сделано несколько дополнительных модификаций. Во-первых, аппроксимация ядер проводилась после умножения на концентрации, которые малы для кластеров большого размера, то есть, аппроксимировалось ядро $A_{ij} = C_{ij} n_i n_j$. Это позволило существенно уменьшить требуемый ранг. Во-вторых, температурно-зависимые ядра были разбиты на более простые слагаемые (а именно, отвечающие за агрегацию, теплообмен, и диссипацию в результате неэластичных столкновений), что увеличило точность путем аппроксимации каждого слагаемого в отдельности. В-третьих, был использован адаптивный шаг по времени, который не только позволил существенно уменьшить время решения, но также предотвратить накопление ошибок. А именно, шаг Δt выбирался как

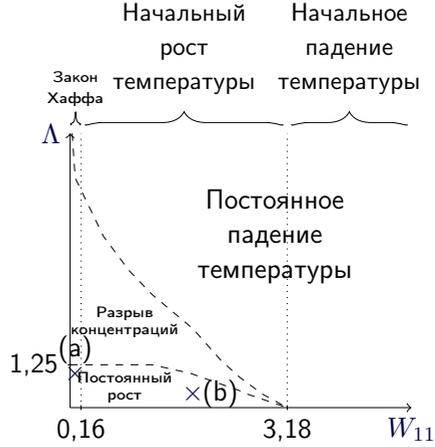
$$\Delta t = \tau \min \left(\frac{\max_i n_i}{\max_i |dn_i/dt|}, \frac{\max_i (n_i T_i)}{\max_i |d(n_i T_i)/dt|} \right),$$

где $\tau < 1$ – заранее заданная точность. Наконец, концентрации кластеров с размером, превышающим N , были также аппроксимированы как

$$n_k \approx ax^b e^{-ck},$$

что позволило избежать потерь массы и, тем самым, уменьшить необходимое число уравнений N .

Рис. 4 — Кинетическая фазовая диаграмма для температурно-зависимых уравнений Смолуховского. Тонкие пунктирные разделительные линии построены на основе точек моделирования, отмеченных светло-серыми кружками. Сверху указано поведение системы при малых t , внутри областей указан вид поведения системы при больших t . Λ — параметр однородности барьера агрегации, W_{11} — величина барьера для мономеров. Английская версия опубликована в [5].



Благодаря существенному уменьшению вычислительной сложности, удалось построить полную фазовую диаграмму для температурно-зависимой модели (рисунок 4). Предсказания разработанной для температурно-зависимых уравнений Смолуховского теории масштабирования согласуются с решением ОДУ (рисунок 5) и результатами Монте-Карло моделирования (рисунок 6).

Новая теория масштабирования позволяет предсказать не только вид распределения концентраций и скорость падения общей концентрации в результате агрегации, но и найти вид распределения температур. А именно, пусть потенциальный барьер для агрегации является однородной функцией радиусов сталкивающихся кластеров с параметром однородности Λ . Тогда при $\Lambda < 5/4$ и малой вероятности агрегации

$$n = \sum_{k=1}^{\infty} n_k \sim t^{-\frac{6}{5-\Lambda}}, \quad T_{avg} = \frac{\sum_{k=1}^{\infty} n_k T_k}{\sum_{k=1}^{\infty} n_k} \sim t^{\frac{2\Lambda}{5-\Lambda}}.$$

Для распределение температур в фиксированный момент времени получены зависимости

$$T_k \sim k^{\Lambda/3}, k \sim 1, \quad T_k \sim \text{const}, k \gg 1.$$

В случае высокой начальной вероятности агрегации или $\Lambda > 5/4$ зависимости меняются:

$$n = \sum_{k=1}^{\infty} n_k \sim t^{-1}, \quad T_{avg} = \frac{\sum_{k=1}^{\infty} n_k T_k}{\sum_{k=1}^{\infty} n_k} \sim t^{-1/3},$$

а для распределения температур по размерам верно

$$T_k \sim k, k \sim 1, \quad T_k \sim \text{const}, k \gg 1.$$

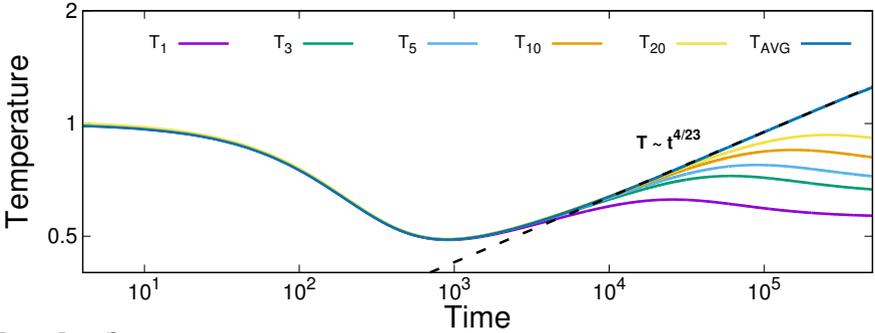
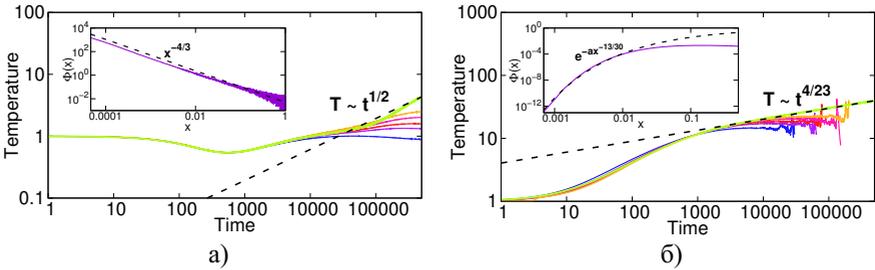


Рис. 5 — Зависимость от времени температур частиц различного размера для решения температурно-зависимых уравнений Смолуховского с параметрами $\Lambda = 0,4$, $W_{11} = 0,075$. T_{AVG} — средняя температура. Пунктирная линия показывает предсказание теории масштабирования. Начальные температуры равны $T_i = 1$. Рисунок опубликован в [3].



T_1 — T_3 — T_5 — T_{10} — T_{20} — T_{avg} —

Рис. 6 — Примеры эволюции парциальных температур в разных точках фазовой диаграммы, рисунок 4, отмеченных крестами. (а) $\Lambda = 1$, $W_{11} = 0,075$ (б) $\Lambda = 0,4$, $W_{11} = 1,8$. Монте-Карло моделирование проведено с 10^7 частицами. Вставки отображают функцию масштабирования $\Phi(x)$ (взвешенного распределения концентраций). Пунктирные линии показывают предсказания теории масштабирования. Начальные температуры равны $T_i = 1$. Рисунок опубликован в [5].

В заключении приведены основные результаты работы.

Основные результаты работы:

1. Получены точные решения температурно-зависимых уравнений Смолуховского. Данные решения необходимы для тестирования численных методов и дают представление о возможных режимах эволюции агрегирующих систем.
2. Методом Монте-Карло получен вид распределения температур для неагрегирующих гранулярных газов. Рассмотрены как случаи теплообмена с окружающим молекулярным газом, так и общий случай внешнего подвода энергии в модели гауссова термостата.
3. Разработана модель тройных столкновений, которая позволяет корректно описывать тройные столкновения в уравнениях Смолуховского. Модель свободна от ошибочного повторного учета бинарных столкновений в существующих подходах.
4. Получено разложение по полиномам Сонина функции распределения скоростей в баллистически агрегирующих системах. Разложение позволяет с высокой точностью описывать отклонение распределения скоростей от распределения Максвелла. Разложение получено путем Монте-Карло моделирования уравнений Больцмана, но коэффициенты разложения также можно получить путем решения полученных систем дифференциальных уравнений.
5. Из первых принципов выведены новые уравнения Смолуховского-Эйлера и Смолуховского-Навье-Стокса, которые описывают кинетику агрегации в неоднородных средах, в том числе при наличии потоков частиц. Получены микроскопические выражения для соответствующих новым уравнениям кинетических коэффициентов в зависимости от характера взаимодействия частиц. Написан код, содержащий пошаговый вывод кинетических коэффициентов. Приведены примеры решений новых уравнений баллистической агрегации в случае наличия вертикального ускорения и в случае сдвигового течения.
6. На основе проведенного методами молекулярной динамики моделирования столкновений кластеров разработана физически обоснованная модель фрагментации частиц для использования последней в кинетических уравнениях. Численные эксперименты содержат распределения числа и кинетических энергий осколков в зависимости от потенциала взаимодействия, угловое распределение осколков, зависимость числа осколков и потерь кинетической энергии от скорости столкновения.
7. Для решения обобщенных уравнений Смолуховского разработан целый ряд эффективных численных методов, в основе которых лежит метод малоранговой аппроксимации матриц кинетических коэффициентов. Малоранговый метод аппроксимации ядер кинетических коэффициентов при решении ОДУ обобщен на ядра, зависящие от

времени. Показано, как эффективно выбирать временной шаг и приближать «хвост» распределения концентраций. Также, малоранговая аппроксимация была применена для ускорения методов Монте-Карло моделирования. Новые методы позволяют получать решения как классических, так и обобщенных уравнений Смолуховского, а также существенно ускорить метод прямого Монте-Карло моделирования уравнений Больцмана.

8. С использованием новых численных методов была построена кинетическая фазовая диаграмма агрегирующего гранулярного газа. Обнаружен и объяснен целый ряд новых агрегационных режимов, включая перманентный рост средней температуры и режим агрегации с разделением концентраций, который отвечает дефициту кластеров среднего размера. Показано совпадение предсказаний скейлинговой теории, решений ОДУ и результатов Монте-Карло моделирования. Также выявлены все возможные виды эволюции температур в начале баллистической агрегации.

Публикации автора по теме диссертации:

1. **Osinsky A.I.**, Bodrova A.S., Brilliantov N.V. Size-polydisperse dust in molecular gas: Energy equipartition versus nonequipartition // *Physical Review E*. — 2020. — Vol. 101, no. 2. — P. 022903.
2. Bodrova A.S., **Osinsky A.I.**, Brilliantov N.V. Temperature distribution in driven granular mixtures does not depend on mechanism of energy dissipation // *Scientific Reports*. — 2020. — Vol. 10, no. 1. — P. 693.
3. **Osinsky A.I.** Low-rank method for fast solution of generalized Smoluchowski equations // *Journal of Computational Physics*. — 2020. — Vol. 422. — P. 109764.
4. Brilliantov N.V., **Osinsky A.I.**, Krapivsky P.L. Role of energy in ballistic agglomeration // *Physical Review E*. — 2020. — Vol. 102, no. 4. — P. 042909.
5. **Osinsky A.I.**, Brilliantov N.V. Anomalous aggregation regimes of temperature-dependent Smoluchowski equations // *Physical Review E*. — 2022. — Vol. 105, no. 3. — P. 034119.
6. **Osinsky A.I.**, Brilliantov N.V. Scaling laws in fragmentation kinetics // *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*. — 2022. — Vol. 603. — P. 127785.

Осинский Александр Игоревич

Кинетика агрегации и фрагментации в неоднородных системах
Автореф. дис. на соискание ученой степени канд. физ.-мат. наук

Подписано в печать _____._____._____. Заказ № _____

Формат 60×90/16. Усл. печ. л. 1. Тираж 100 экз.

Типография _____