

平流层重力占优气溶胶粒子的耦合碰并^{*}

张连众 温景嵩 于瑞泉

(南开大学物理科学学院, 天津 300071)

摘 要 研究大气平流层中的重力作用占优的气溶胶粒子之间的耦合碰并问题。平流层由于空气稀薄, 必须引入高 Knudsen 数下分子体系介质近似, 对于重力占优的气溶胶粒子, 采用高 Q_{ij} 下的处理方法, 在新的对分布方程的基础上, 求得重力作用占优的气溶胶粒子的对分布函数的解析解。结果表明, 对于重力占优的气溶胶粒子, 平流层中碰并率要大于对流层中的碰并率。

关键词: Knudsen 数; 气溶胶粒子; 碰并率

1 引言

重力场中的气溶胶粒子在空气为介质的体系中, 不停地做着布朗运动, 彼此通过 van der Waals 分子引力而发生碰并。在平流层中, 海拔 15 ~ 30 km, 空气相对稀薄, 过去人们一般认为重力作用占优的气溶胶粒子很难存在, 因此没有研究它们之间的碰并问题。其实, 在平流层中, 气溶胶粒子的半径分布跨度同对流层中类似, 从 0.01 μm 到 100 μm 都是存在的^[1], 因此研究重力占优的大气溶胶粒子的碰并也有意义。

在平流层中, 由于压力很小, 空气分子平均自由程会变得很大, 因此对于气溶胶粒子来说, 作为介质的空气不可以简单地看成流体而以连续介质近似来研究, 必须引入分子体系介质近似^[2], 对于重力占优的气溶胶粒子, 可以认为是属于高 Knudsen 数下弱布朗和强重力耦合碰并问题。而要研究这种耦合碰并问题, 就必须从气溶胶粒子的对分布方程出发^[3]。

在高 Knudsen 数条件下, 介质可采用分子体系近似, 我们已经建立了粒子的对分布方程。在低 Péclet 数条件下, 对于布朗作用占优的气溶胶粒子的耦合碰并, 使用奇异扰动理论中的匹配渐近展开法, 求得了该条件下碰并率的三阶渐近展式, 并将结果和低 Knudsen 数下连续介质近似的情况做了比较。结果表明分子体系中的气溶胶碰并率远大于连续介质中的碰并率^[2]。

本文将在此基础上, 研究平流层中重力占优的气溶胶粒子的碰并。我们认为该问题属于高 Knudsen 数和高 Péclet 数条件下气溶胶粒子在沉降过程中的碰并。

2 奇异扰动的对分布方程的求解

处于平流层的气溶胶粒子的对分布函数 p_{ij} 仍应服从于 Fokker - Planck 型的守恒方

程^[2-4], 无量纲化后的对分布方程为

$$\frac{\partial p_{ij}}{\partial t} = -Pe \frac{V_{ij}^{(0)}}{V_{ij}^{(0)}} \cdot \nabla_s p_{ij} + \nabla_s \cdot \left[p_{ij} \nabla_s \left(\frac{\Phi_{ij}}{kT} \right) \right] + \nabla_s^2 p_{ij}, \quad (1)$$

其中, $V_{ij}^{(0)}$ 表示双球在重力作用下的相对重力速度, Φ_{ij} 代表双球的粒子间势, 在碰并问题中, 这里仍是指 van der Waals 分子引力势, k 是 Boltzmann 常数, T 是绝对温度, $s = 2|r|/(a_i + a_j)$, 表示 i 粒子与 j 粒子中心的无量纲距离, a_i 、 a_j 分别是气溶胶粒子 i 、 j 的半径. 参数 Pe 为 Péclet 数, 表示 j 粒子对 i 粒子的重力对流输送项与布朗输送项的相对大小, 由下式表示:

$$Pe = \frac{(a_i + a_j) V_{ij}^{(0)}}{2D_{ij}^{(0)}}, \quad (2)$$

其中, $D_{ij}^{(0)}$ 为两粒子布朗扩散系数. 无论在何种介质条件下, Péclet 数都与粒子平均半径四次方成正比, 比例系数为 10 的负 24 次幂^[2], 因此可知, 粒子半径达到 3 μm , 就已经应该看成重力占优.

值得特别指出的是, 由于平流层不存在对流或明显的垂直气流运动, (1) 式中右边的第一项只是表示粒子间的重力相对作用, 数学上习惯称为重力对流项, 但本文研究的介质已经不是流体, 对流的物理现象也就无从谈起.

从 (2) 式可以得到, 我们研究的重力占优情况, 就是 Péclet 数很大的情况, 因此把弱布朗作用看成强重力作用的微扰, 从对分布方程 (1) 来看, 就是一个第一项相对很大的问题, 我们习惯上称之为高 Péclet 数问题.

从 Péclet 数的物理概念出发, 高 Péclet 数条件下, 作为一级近似, 完全忽略布朗作用项, 即 (1) 式中的第三项, 则在此条件下对分布方程简化为

$$Pe \frac{V_{ij}^{(0)}}{V_{ij}^{(0)}} \cdot \nabla_s p_{ij} - \nabla_s \cdot \left[p_{ij} \nabla_s \left(\frac{\Phi_{ij}}{kT} \right) \right] = 0. \quad (3)$$

为了继续求解上面的方程, 我们首先引进另一个相似参数 Q_{ij} , 它的定义为相对重力作用与势力作用的比值, 即:

$$Q_{ij} = \frac{(a_i + a_j) V_{ij}^{(0)} kT}{2D_{ij}^{(0)} \Phi_{ij}^{(0)}}. \quad (4)$$

我们取 Hamaker 常数 A 为 $\Phi_{ij}^{(0)}$, 则 Q_{ij} 与 Péclet 数关系为

$$Q_{ij} = \frac{kT}{A} Pe, \quad (5)$$

所以, Q_{ij} 与 Péclet 数是大约为同一量级. (2) 式可以改写为

$$Q_{ij} \mathbf{e}_g \cdot \nabla_s p_{ij} - \nabla_s \cdot \left[p_{ij} \nabla_s \left(\frac{\Phi_{ij}}{A} \right) \right] = 0. \quad (6)$$

其中 $\mathbf{e}_g$ 为重力加速度方向单位矢量. 则当 $Q_{ij} \gg 1$, 对于作用于粒子的三种作用, 作为一级近似, 完全忽略掉上式中的右边一项, 简化为

$$\mathbf{e}_g \cdot \nabla_s p_{ij} = 0. \quad (7)$$

利用文献 [2] 中外边界条件我们都会得到:

$$p_{ij} = 1. \quad (8)$$

上式说明, 纯重力作用对对分布是均匀输送的. 显然, 上式不满足内边界处碰并率函

数为零的不稳体系的内边界条件, 因此, 无法在全域用小参数法对分布方程进行处理, 此问题为奇异扰动问题, 奇点在 $s=2$ 处。

所以下面我们从物理上来看该奇异扰动并找到解决方法。注意到当 $s \rightarrow 2$, 即 $\zeta = (s-2) \rightarrow 0$ 时, 有

$$\Phi_{ij} = -\frac{A\lambda}{3(1+\lambda)^2\zeta}, \quad (9)$$

其中, $\lambda = a_j/a_i$ 为两粒子半径比。我们应该得到以下结论: 当 $\zeta = (s-2) \rightarrow 0$ 时, (6) 式中的第二项将由于 Φ_{ij} 的性质而趋于无穷大, 则在此条件下, 必有一临界距离 s_c 存在, 在 $s < s_c$ 的边界层内, (6) 式中第二项即势力项不可忽略, 边界层内需要恢复势力项。

物理上的原因是, 当 j 球距 i 球很远 (边界层外) 时, 由于 Péclet 数很大, 布朗作用项可忽略不计, van der Waals 分子引力势由于它的快衰减可被忽略, 重力作用将粒子输运到内域。而当 j 球距 i 球较近 (边界层内) 时, 重力对流项与势力项平衡, 因此无论 Péclet 数多么大, 势力作用都不可忽略, 该问题显然是一个奇异扰动问题。所以, 对于边界层内我们必须使用和边界层外的方程 (7) 不同的方程。

我们先用两粒子最近点距离 ζ 代替 s 作为自变量, 则内域方程变为

$$\mathbf{e}_g \cdot \nabla_{\zeta} p_{ij} = \frac{1}{Q_{ij}} \frac{\lambda}{3(1+\lambda)^2} \frac{\partial}{\partial \zeta} \left(\frac{p_{ij}}{\zeta^2} \right), \quad (10)$$

上式带着我们指定的大的参数 Q_{ij} , 使匹配求解无法进行。我们可以设:

$$\delta = \sqrt{\frac{\lambda}{3(1+\lambda)^2} \frac{1}{Q_{ij}}}, \quad (11)$$

内域自变量变为

$$\eta = \frac{\zeta}{\delta}. \quad (12)$$

则 $\lambda > 1$ 时, 内域方程确定为

$$\left(\cos\theta + \frac{1}{\eta^2} \right) \frac{\partial p_{ij}}{\partial \eta} - \frac{\delta \sin\theta}{2} \frac{\partial p_{ij}}{\partial \theta} = \frac{2}{\eta^3} p_{ij}. \quad (13)$$

边界条件:

$$\eta = 0 \text{ 时, } p_{ij} = 0, \quad (14)$$

$$\eta \rightarrow \infty \text{ 时, } p_{ij} \rightarrow 1. \quad (15)$$

解得:

$$p_{ij} = \frac{\eta^2 \cos\theta}{\cos\theta + 1} + O(\delta). \quad (16)$$

实际上, 我们可以把 δ 理解为 $\theta=0$ 处势力速度与重力对流纵向速度相同处的边界层代表性厚度, 则由方程 (6) 和 (9), 可以得到:

$$\mathbf{e}_g \cdot \mathbf{e}_s = \frac{1}{Q_{ij}} \left\{ \frac{d}{d\zeta} \left[-\frac{\lambda}{3(1+\lambda)^2} \frac{1}{\zeta} \right] \right\}_{\zeta=\delta}. \quad (17)$$

其中, $\mathbf{e}_s$ 为轴向单位矢量。 $\theta=0$ 处即是 $\mathbf{e}_s = -\mathbf{e}_g$ 的情况, 则由上式也可以求出 δ 来。所以我们可以认为内域是除以边界层代表性厚度而放大的坐标。

$\lambda < 1$ 时, 方程 (10) 变为

$$\left(\cos\theta - \frac{1}{\eta^2}\right)\frac{\partial p_{ij}}{\partial\eta} - \frac{\delta\sin\theta}{2}\frac{\partial p_{ij}}{\partial\theta} = -\frac{2}{\eta^3}p_{ij}. \quad (18)$$

同样有边界条件 (14) 和 (15), 则得:

$$p_{ij} = \frac{\eta^2 \cos\theta}{\eta^2 \cos\theta - 1} + O(\delta). \quad (19)$$

物理上, 得到 (16) 和 (19) 两式的原因是, 实际在边界层内 $\eta < 1$, 我们选择的外边界条件只是匹配渐进展开方法, 因此在边界层内上下游就有不同的解。

3 捕获系数的结果

对于纯重力或者以重力作用为主的情况, 我们一般用捕获系数来描述粒子间的碰并。捕获系数的定义为: 碰并率除以 Smoluchowski 完全忽略弱布朗的纯决定型的轨迹法求得的重力对流碰并率通量。表达式为

$$E_{ij} = \frac{F_{ij}}{F_{ij}^{(0)}}. \quad (20)$$

而 Smoluchowski 完全忽略弱布朗的纯决定型的轨迹法求得的重力对流碰并率通量为

$$F_{ij}^{(0)} = \pi(a_i + a_j)^2 V_{ij}^{(0)} n_j. \quad (21)$$

注意上式不仅是完全不考虑布朗作用, 而且完全不考虑势力作用, 只是用两粒子之间的重力相对速度乘以碰撞截面, 求得 i 粒子在单位时间内走过的体积, 再乘以 j 粒子的数密度, 就是求得该体积内 j 粒子的粒子数, 这种方法认为两粒子之间没有势力作用。由于求解 (21) 式时使用的是轨迹方法, 并且完全没有考虑到流体动力相互作用, 因此物理条件完全等同于我们这里研究的高 Knudsen 数情况。我们也同样用 (21) 式来表示轨迹法的纯重力结果, 但是要注意到式中的 $V_{ij}^{(0)}$ 在低 Knudsen 数条件下与我们的低 Knudsen 数条件下的表达式并不相同。

值得特别指出的是, 在低 Knudsen 数条件下, Batchelor 和温景嵩已经建立了一系列完整理论^[7], 对于纯重力碰并, 就是进入 i 粒子边界层顶的一部分 j 粒子, 为势力所捕获, 而另一部分 j 粒子为对流作用输送到下游, 在下游为对流输送走, Smoluchowski 的纯重力对流的轨迹碰并理论没有真实的描绘物理现象。而在我们这里研究的高 Knudsen 数自由分子体系, Smoluchowski 的纯重力对流的轨迹碰并理论在粒子很大, 或者说几乎不存在布朗运动时, 是真实的描绘物理现象的。

我们得到捕获系数为

$$E_{ij} = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \left[p_{ij} \left(\cos\theta + \frac{1}{\eta^2} \right) \right] \sin\theta d\theta + \int_{\frac{\pi}{2}}^{\pi} \left[p_{ij} \left(-\cos\theta + \frac{1}{\eta^2} \right) \right] \sin\theta d\theta, \quad (22)$$

把 (16) 和 (19) 两式代入, 得到:

$$E_{ij} = 1 + O(\delta). \quad (23)$$

由 (23) 式可知, 高 Knudsen 数条件下, 由于没有流体动力相互作用, 所以物理图像与 Smoluchowski 完全忽略弱布朗的纯决定型的轨迹法有类似之处, 我们以求解对分布方程的统计理论求得的捕获系数的第一项, 与经典轨迹法的结果一致, 这就证明了我们的在高 Knudsen 数下的理论是正确的。

对流层中的重力占优的气溶胶粒子，进入彼此的边界层后，只有部分发生碰并，其他则由于对流作用输送到下游不发生碰并；平流层中的重力占优的气溶胶粒子，一旦进入彼此的边界层，就一定会发生碰并。因此，我们可以得到，由于二者有不同的物理过程，平流层重力占优的气溶胶粒子之间比在对流层中有更大的碰并率。

4 发现的问题和展望

把高与低 Knudsen 数情况下的结果进行比较，我们会发现在高 Knudsen 数条件下出现的问题虽然与低 Knudsen 数情况下相似，却是无法用现有的理论推广来解决的。即如果把 (16) 和 (19) 式的下一级解求出，带入到捕获系数的表达式，我们会发现积分发散的问题，其性质与低 Knudsen 条件下求解对分布方程是类似的，这也正是严格统计理论当初无法建立的主要两个困难之一^[4~6]。Batchelor 和温景嵩在低 Knudsen 数下解决了该困难^[7]。但是，由于高 Knudsen 数条件下不存在流体动力相互作用，无法使用 Batchelor 和温景嵩在低 Knudsen 数下的成熟理论和方法，这就要求我们必须发展一条崭新的思路来解决该问题。我们认为，利用气溶胶碰并率在粒子半径空间的连续性质和一定存在极小值的物理性质来解决该问题是一个可行的方法。

参 考 文 献

1 NASA, Terrestrial environment (climatic) criteria handbook for use in aerospace vehicle development, Washington, DC, United States; NASA - Handbook - 1001, 2000, 10 ~ 2.

2 Zhang Lianzhong and Wen Jingsong, Coupled coagulation of aerosol particles at large Knudsen and small Peclet Numbers, *Progress in Natural Science*, 2001, **11** (2), 94 ~ 99.

3 温景嵩、G. K. Batchelor, 稀释悬浮体中小粒子碰并率, 中国科学 (A 辑), 1984, 996 ~ 1004

4 Wen, C. S., *The Fundamentals of Aerosol Dynamics*. Singapore: World Scientific Publishing Company, 1996, 105 ~ 148.

5 温景嵩, 微大气物理学导论, 北京: 科学出版社, 1989, 61 ~ 62.

6 温景嵩, 概率论与微大气物理学, 北京: 气象出版社, 1995, 230 ~ 243.

7 Batchelor, G. K. and C. S. Wen, Sedimentation in a Dilute Polydisperse System of Interacting Spheres, Part 2. Numerical Results, *J. Fluid Mech.*, 1982, **124**, 495 ~ 498.

Coupled Coagulation of Aerosols in the Stratosphere
when Gravity Motion is Dominant

Zhang Lianzhong, Wen Jingsong, and Yu Ruiquan
(*Institute of Physics, Nankai University, Tianjin 300071*)

Abstract Coupled coagulation of aerosol particles in the stratosphere is carried out when gravity motion is dominant. As the atmosphere is dilute in the stratosphere, the molecular system approximation at large Knudsen number must be used. When gravity motion is dominant, the analytic solutions of the new pair-distribution equation are obtained by the method at high Q_{ij} number. The results show that there is larger coagulation rate of the aerosol particles in the stratosphere than in the troposphere.

Key words: Knudsen number; aerosol particles; coagulation