



气溶胶粒子凝聚模型研究进展（特邀）

顾有林 张熙 胡以华 孟凡昊 陈国龙 丁婉莹 何海浩

Research progress of aerosol particle aggregation model (*invited*)

Gu Youlin, Zhang Xi, Hu Yihua, Meng Fanhao, Chen Guolong, Ding Wanying, He Haihao

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.3788/IRLA20230243>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

黑碳-氯化钠内混合气溶胶粒子有效吸收研究

Effective absorption for Black Carbon-NaCl internal mixed aerosols

红外与激光工程. 2017, 46(4): 411002 <https://doi.org/10.3788/IRLA201746.0411002>

折射率和粒子尺度对大气气溶胶光散射特性的影响

Effect of the refractive index and particle size parameter on light scattering properties of atmosphere aerosol

红外与激光工程. 2017, 46(12): 1211001 <https://doi.org/10.3788/IRLA201746.1211001>

扫描式气溶胶激光雷达研制与观测研究

Development and observational studies of scanning aerosol lidar

红外与激光工程. 2018, 47(12): 1230009 <https://doi.org/10.3788/IRLA201847.1230009>

气溶胶环境下FMCW与脉冲激光探测性能对比

Comparison on detection performance of FMCW and pulsed lidar in aerosol environment

红外与激光工程. 2020, 49(6): 20190399 <https://doi.org/10.3788/IRLA20190399>

户外型探测臭氧和气溶胶激光雷达系统研制

Outdoor lidar system for measurement of ozone and aerosol profiles

红外与激光工程. 2019, 48(7): 706008 <https://doi.org/10.3788/IRLA201948.0706008>

底层大气探测激光雷达国内研究现状与进展（特邀）

Research status and progress of Lidar for atmosphere in China (*Invited*)

红外与激光工程. 2021, 50(3): 20210032 <https://doi.org/10.3788/IRLA20210032>

气溶胶粒子凝聚模型研究进展 (特邀)

顾有林^{1,2,3}, 张 熙^{1,3}, 胡以华^{1,2,3}, 孟凡昊^{1,3}, 陈国龙^{1,3}, 丁婉莹^{1,3}, 何海浩^{1,3}

1. 国防科技大学 脉冲功率激光技术国家重点实验室, 安徽 合肥 230037;
2. 先进激光技术安徽省实验室, 安徽 合肥 230037;
3. 国防科技大学, 安徽 合肥 230037)

摘要: 气溶胶粒子凝聚模型作为研究大气中的粒子运动过程和凝聚体形貌特征的重要手段, 在光学、天体物理学和材料学等领域有着重要应用。文中根据气溶胶粒子凝聚相关理论及影响因素, 分析了气溶胶粒子的凝聚机理, 阐述了几种主要的气溶胶粒子凝聚模型, 介绍了凝聚模型在光学、天体物理学和动力学等领域的应用, 总结了主要凝聚模型的优化现状, 结合目前气溶胶粒子凝聚模型的应用现状及挑战, 从实现非球形粒子凝聚、多因素耦合及凝聚体实时空间分布仿真等方面进行了展望。

关键词: 气溶胶; 凝聚模型; 凝聚机理; 凝聚动力学; 模型优化

中图分类号: O433.1 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20230243

0 引言

气溶胶粒子是指自然界天然形成或人为因素造成的在大气中悬浮的固体、液体或固液混合物粒子^[1], 其主要组成包含燃烧电焊等产物、金属粉末、微生物粒子、粉尘尘埃等^[2-3], 粒径大小一般在 $10^{-3} \sim 10^2 \mu\text{m}$ 之间。研究气溶胶在大气中的空间结构及运动状态对生态环境治理^[4]、气候变化控制^[5]和功能材料开发应用^[6-7]等方面具有重要意义。

凝聚模型是利用蒙特卡洛或分子动力学等方法, 模拟给定空间内所有粒子的随机运动轨迹, 形成粒子间相切的复杂空间结构的数值模拟模型。气溶胶粒子凝聚模型可用来描述自然界各种现象的凝聚过程, 是研究气溶胶沉降扩散过程的一个重要手段。研究气溶胶粒子凝聚模型, 有利于理解粒子凝聚现象, 探究凝聚动力学特性, 分析团簇结构性能, 促进气溶胶的物理、化学和生物特性应用研究。近年来, 气溶胶粒子凝聚模型在星体尘埃粒子凝聚碰撞^[8]、粉尘或煤烟等粒子消光性能^[6,9]等方面研究较为深入。凝聚模型在光学、物理学和动力学等领域的应用是目前国内外学者的研究热点。一方面, 现实中粒子多以非球形的形式存在^[10-11], 粒子凝聚过程的模拟逼真度急需提

高, 气溶胶粒子凝聚模型应具有模拟非球形粒子凝聚的能力。另一方面, 模型的凝聚机理分析较为简单, 为了提高模拟的准确性, 考虑多因素对凝聚过程的影响, 研究气溶胶粒子空间分布的实时演化特性, 气溶胶粒子凝聚模型应具有多因素耦合和凝聚粒子空间实时分布仿真等能力。

鉴于此, 文中首先从气溶胶粒子凝聚机理出发, 分析影响粒子凝聚的主要因素及其基础理论, 介绍了几种主要的气溶胶粒子凝聚模型, 简要回顾了气溶胶粒子凝聚模型的应用现状和优化方向, 最后提出了气溶胶粒子凝聚模型的发展趋势, 以为气溶胶粒子凝聚模型优化和新型消光材料制备等研究提供有益参考。

1 气溶胶粒子凝聚机理分析

1.1 气溶胶粒子凝聚影响因素分析

气溶胶粒子凝聚模型广泛应用于粒子凝聚动力学及其应用研究, 粒子空间结构特征、粒子凝聚作用力以及环境因素等对气溶胶粒子凝聚过程均有影响。

1.1.1 粒子空间结构特征

粒子的粒径形状、大小、初始粒子浓度等空间结构特征均会导致凝聚体之间的距离、粒子间作用力、碰撞次数与凝聚状态发生变化, 从而影响凝聚过程。

收稿日期: 2023-04-21; 修订日期: 2023-05-29

基金项目: 国家自然科学基金 (62075241); 先进激光技术安徽省实验室基金 (20191003)

作者简介: 顾有林, 男, 教授, 博士生导师, 博士, 主要从事光电信息处理方面的研究。

不同粒径分布的气溶胶,其凝聚的形态、均匀性和动力学特性等均有差异。Morá等^[12]研究粒子体积分数、粒子尺寸和多分散性对粒子凝聚的物理影响,结果表明:粒子的初始粒径较小,其凝聚动力学较强,凝聚体具有较大的分形维数,随着粒子的初始粒径增加,其凝聚动力学减缓,凝聚体的分形维数降低。Eggersdorfe等^[13]利用不同的粒子凝聚模型,分析粒径分布对聚丙烯凝聚体分形维数和结构的影响,研究表明多分散粒子形成的凝聚体比单分散粒子形成的凝聚体更开放,分形维数更低,粒径分布对粒子-团簇凝聚体影响比团簇-团簇凝聚体更明显。

不同形状的粒子因具有不同的几何截面和摩擦时间,导致形成的凝聚体具有不同的凝聚特性。Perry等^[14]研究了不同粒子粒径分布和形状对凝聚体形态的影响,结果表明:球形粒子往往具有相似的摩擦时间,而椭圆形粒子则具有较大的结构和摩擦时间差异,导致其形成的团簇粒子的相对运动速度较大,易发生碰撞。与球形粒子凝聚相比,非球形粒子凝聚速度更快、更有效,形成的凝聚体更紧凑,并且具有更小的等效半径^[14-15]。

初始粒子浓度是影响凝聚过程的一个重要因素,当浓度较高时,粒子之间的相互作用、接触面积发生改变,从而影响粒子凝聚行为。Matsoukas^[16]利用扩散限制凝聚模型研究验证在相同气溶胶体积浓度下,金属氧化物组成的亚微米级气溶胶凝聚体平均大小与初始粒子的粒径大小成反比。Soulgani等^[17]通过使用高分辨率显微镜,实验观察不同正己烷浓度的沥青质凝聚过程,发现沥青质具有不同的凝聚动力学。

1.1.2 粒子凝聚作用力

粒子凝聚过程受气溶胶粒子和团簇或团簇和团簇之间的引力和斥力等相互作用力以及剪切力等外力影响。

由范德华力、静电等产生的粒子间引力对气溶胶粒子凝聚起主导作用时,粒子的运动方向或凝聚速率等影响凝聚体的结构。Meakin等^[18]证明引力导致凝聚体的结构更紧密。Puertas等^[19]研究发现在静电引力作用下,混合正负电荷凝聚形成团簇分支更多,凝聚速度较慢,形成的凝聚体分形维数低。Puerta等^[20]研究稀释条件下长程引力对凝聚产生的凝聚体结构影响。熊海灵等^[21]研究长程范德华引力对团簇粒子

运动方向的导向作用,低浓度作用下的团簇粒子平均自由程较大,导向作用更明显,粒子凝聚速度更快,形成的团簇分形维数较常规模型更大,结构更致密。

由静电斥力或双电层力产生的斥力影响碰撞粘附概率,改变凝聚速率,从而影响团簇结构特征。Kim等^[22]分析静电斥力对反应受限凝聚速率以及粒子碰撞粘附概率的影响。Morán等^[23]探讨一段时间内煤烟成熟度演变和静电力对碰撞概率和粘附概率所起的作用。蒋新^[24]研究静电作用对纳米粒子凝聚过程的影响,研究表明:与双电层厚度近似的团簇粒子^[25]最易受双电层影响,凝聚速率减慢,团簇粒子数量增多,形成的凝聚体内部空隙较多,分形维数较低。

剪切力对于流体、悬浮液、悬浮粒子等物质的凝聚过程和凝聚体形貌结构特征有较大影响。Hopkins等^[26]研究剪切力对胶体悬浮液各项指标的影响。Zaccone等^[27]研究剪切力作用下的胶体凝聚特性。Markutsya等^[28]发现凝聚体结构受粒子间作用力和剪切力的共同影响,大尺寸凝聚体在垂直于剪切流方向上的尺寸可能受剪切流的强度限制,当剪切力小于粒子间作用力时,形成的凝聚体更紧密。

1.1.3 环境因素

不同的大气温度、湿度以及重力等环境下,气溶胶粒子形成的凝聚体表现出不同的凝聚特性。

重力通过影响碰撞概率或者结构坍塌重组改变粒子的凝聚状态。煤烟粒子、金属粉末等气溶胶粒子的密度比大气介质的密度大,其重力加速度导致粒子的沉降速度随体积增大而增大,其中非球形凝聚体的沉降速度比球形凝聚体的沉降速度低^[29]。当粒子数较多、凝聚时间较长时,重力导致的沉降作用加速粒子的凝聚速度^[25]。

不同温度下的粒子凝聚速率与凝聚体结构存在一定差异。一方面,从势能角度分析,温度变化改变带电粒子表面电荷的状态,从而影响粒子间的作用力,导致势垒高度变化,影响粒子凝聚状态;另一方面,从分子动力学分析,温度变化导致粒子运动速率、平均动能均发生改变,其碰撞概率与粘附系数受到影响,从而导致胶体之间的凝聚状态发生改变^[30]。Mohammadi等^[31]在高温高压条件下设计减压实验评估温度对轻质活性油中沥青质的沉淀和凝聚影响,研究发现,减压过程中随着温度的降低,沥青质的凝聚方

式逐渐从反应限制凝聚转变为扩散限制凝聚,温度较高时,缩短了沥青质的凝聚时间,温度较低时,形成的凝聚体结构多孔松散、分形维数相对较低。

此外,气溶胶粒子的形状、粒径大小等特征易受大气环境中的湿度影响,粒子的凝聚状态随湿度而变化^[32]。一般情况下,当湿度足够大时,气溶胶粒子与水融合或被水包裹,部分自然气溶胶粒子随着湿度潮解结晶,导致形成的凝聚体形态结构、物理特性发生改变,其中亲水性粒子比疏水性粒子更容易受环境相对湿度变化的影响^[33-34]。

在复杂的环境中,粒子凝聚过程往往会受到多种因素的共同作用影响,进而影响其凝聚动力学特性和凝聚体结构特征等。Wang 等^[35]利用电镜观察了在不同 pH 值环境因素下,不同尺寸的纳米零价铁与黏土矿物颗粒之间的相互作用和异质聚集现象,研究表明: pH 值越高,异质聚集速率越小,最小尺寸的纳米零价铁与黏土矿物颗粒的异质聚集最强,在中性环境下,高岭石与纳米零价铁相互作用的可能性较强,随着纳米零价铁浓度增加,其形成的异质聚集体尺寸增大。Tran 等^[36]开发了湍流状态下直接成像并测量凝聚体粒径的技术,分析了剪切力作用下的悬浮泥沙浓度对悬浮液中凝聚体粒径的影响,研究发现:在浓度恒定的稳态实验下,凝聚体的粒径和生长速率均随着浓度增加而增大,在浓度随时间衰减的非稳态实验下,凝聚体粒径随浓度衰减而发生较明显变化,此外,当湍流剪切力作用相对较强时,浓度对凝聚体粒径的影响较弱。

综上所述,粒子空间结构特征、粒子凝聚作用力和环境是影响粒子凝聚的主要因素。由于自然凝聚过程的复杂性,针对具体的应用领域时,还需要考虑风力^[37]、化学键^[38]等因素对粒子凝聚过程的影响。

1.2 凝聚理论基础

凝聚理论是研究气溶胶粒子凝聚过程、建立凝聚模型的理论基础。目前研究气溶胶粒子凝聚过程的理论主要包括分形、数理统计和分子模拟等理论。

1.2.1 分形理论

分形理论是研究粒子凝聚形态结构的重要理论基础,可用来描述自然界粒子凝聚过程的非线性规律和凝聚体的复杂结构。分形维数和自相似性等分形特征是反映凝聚体空间结构的重要参数。刘耀民等^[39]

针对二值图像网格划分方式,改进不完整边界网格的处理方式,优化盒维数计算方法。Ghafari 等^[40]利用盒维数法计算分形维数,观察两种钡胶体的凝聚交叉现象。疏学明等^[41]利用分形理论分析火灾烟雾粒子凝聚体的结构特征。Wan 等^[42]利用分形理论和泰勒展开矩方法,研究粒子布朗运动凝聚过程和形成的絮凝凝聚体的结构特征。奚正平等^[43]设计了多孔材料结构的分形维数计算方法,完整描述了复杂多孔材料的结构特征。

1.2.2 数理统计理论

数理统计理论是通过随机游走模型^[44]描述粒子的凝聚过程,研究不同复杂过程下粒子随机运动状态的一个重要理论。该随机游走模型通过假设粒子初始位置、各方向运动概率、运动步长等属性,模拟粒子的运动过程。Witten 等^[45]利用随机游走模型模拟理想状态下的布朗运动凝聚过程。Wang 等^[46]在粒子运动模拟过程中,考虑粒子占据晶格位置的单一性,采用自回避行走模型^[47]研究了扩散限制凝聚的聚合轨迹。Lawler^[48]基于随机游走的概念和基本性质,研究物理化学凝聚和其他临界现象。Balazs 等^[49]利用自回避随机游走模拟柔性聚合物的凝聚过程。Huang 等^[50]研究随机游走步长对扩散限制聚集模型生成的凝聚体结构的影响。

1.2.3 分子模拟理论

分子模拟是模拟实验现象、分析物质与粒子相互作用、探讨凝聚运动规律及其机理和凝聚体物理性质的重要理论。分子动力学模拟是分子模拟理论的重要组成部分,其理论原理是假设初始粒子状态符合统计热力学分布,通过利用牛顿定律,从势能角度求解任意时刻粒子的位置和速度,分析粒子的粘附概率、运动轨迹、凝聚特性等。Hayakawa 等^[51]利用统计力学理论研究不可逆生长扩散限制凝聚的热力学性质,估测凝聚体分形维数。Puertas 等^[52]利用布朗动力学模拟凝聚体的形成。

两个相互接近的粒子之间存在相互作用力。分子模拟通过分析该作用力,研究发现絮凝体、悬浮粒子等粒子的粘附概率与势能密切相关。梁龙^[53]通过分析粒子与粒子、粒子与絮凝剂间的作用力,研究煤炭和高岭石的凝聚机理与规律。柳冠青^[54]采用动力学模拟,分析了范德华力和静电力对粒子运动的影响

规律,完善了粘附性碰撞模型。

由上可知,针对具体的凝聚现象,分析粒子凝聚机制和凝聚体结构特征,确定采用分形理论、数理统计和分子模拟等理论中的一种或多种进行研究。

2 气溶胶粒子凝聚模型分类

2.1 气溶胶粒子凝聚模型分类方式

气溶胶粒子凝聚模型可以按初始粒子的形态特征、凝聚模拟方式、凝聚对象类型等方式进行分类。

气溶胶粒子凝聚模型按初始粒子的形态特征分为球形粒子凝聚模型与非球形粒子凝聚模型。目前球形粒子凝聚模型研究深入,应用简便。但因粒子的多样性和复杂性,其形成的凝聚体与球形粒子凝聚模型形成的凝聚体有一定的偏差。气溶胶粒子只有部分飞灰、粉煤灰等粒子具有球形形态^[2],其余大多数粒子以类似圆柱形、椭球形和 Chebyshev 等^[55]非球形形态存在。而非球形粒子凝聚模型模拟过程更接近现实气溶胶粒子凝聚过程,其产生的凝聚体逼真度更高。目前非球形气溶胶粒子凝聚模型多以椭球形或固定取向的非球形凝聚为主。非球形粒子结构复杂,其中不规则非球形粒子凝聚模型计算量较大、算法复杂,较难实现,目前针对该方向的凝聚模型及其应用还有待进一步研究。

粒子凝聚模型根据其模拟方式分为晶格 (on-lattice) 模拟^[56]和非晶格 (off-lattice) 模拟^[57-58]。晶格和非晶格模拟只有在初始粒子数足够多时,相差不大,可忽略不计^[57]。其在晶格模拟过程中,粒子的存在与运动受晶格的限制,粒子只能朝邻近晶格方向移动晶格单元的整数倍。当两个粒子所在的晶格相邻时,粒子发生凝聚现象。晶格模拟的自由性受维度影响,当晶格维度越大,其模拟空间划分越细,粒子运动方向和移动步长越精确,越接近现实运动模拟,通常晶格模拟更容易编程,效率更高^[56,59]。对于非晶格模拟,粒子的运动方式更接近现实模拟,其方向和步长不受约束,可自由运动,但模拟碰撞凝聚时需要考虑粒子凝聚的空间距离因素,算法复杂,计算量较大,耗时较长。

按参与凝聚的对象类型可大体分为粒子-团簇凝聚和团簇-团簇凝聚两种模型。粒子-团簇凝聚以粒子运动碰撞的方式参与凝聚过程,根据粒子运动的方式

以及粒子碰撞成功的概率将其分为扩散限制凝聚模型、反应限制凝聚模型、弹道凝聚模型和弹道粒子-团簇凝聚模型。而团簇-团簇凝聚是粒子和团簇均可参与凝聚,其凝聚过程是粒子运动碰撞形成团簇后,粒子与团簇均做无规则运动,当满足碰撞凝聚条件时,发生凝聚,其更接近真实碰撞凝聚过程。团簇-团簇凝聚模型根据粒子和团簇移动凝聚方式和凝聚概率等凝聚条件分为扩散限制团簇凝聚、反应限制团簇凝聚、团簇-团簇凝聚和弹道团簇凝聚模型。

2.2 气溶胶粒子凝聚主要模型

气溶胶粒子凝聚模型模拟粒子以相切形式凝聚,即遍历团簇 A(单个运动粒子或运动团簇)与团簇 B(单个粒子或团簇)的位置关系,当团簇 A 和团簇 B 中的最小粒子间距等于对应的两个粒子半径之和时,满足粒子碰撞相切条件。文中按粒子-团簇凝聚和团簇-团簇凝聚分类为例,详细介绍两大类气溶胶粒子凝聚模型。

2.2.1 粒子-团簇凝聚模型

自凝聚模型发展至今,扩散限制凝聚模型 (Diffusion Limited Aggregation, DLA) 一直是研究最多的一类模型,由 Witten 和 Sander 在 1981 年为解决烟尘凝聚和枝晶非平衡生长问题而提出,之后被广泛改进应用在薄膜生长、粉末微粒凝聚、电化学沉积等现象中^[45]。该模型的主要过程^[45]是将设定的有限区域分成一定数量的固定网格,在其网格原点即区域中心放置一个初始静止粒子,在区域边缘(离原点很远的任意位置)添加第二个粒子,让其随机游走,直到它与初始粒子发生接触碰撞,形成团簇。然后以同样的步骤,引入其他粒子,如果粒子在其随机游走过程中碰到区域边界,即该粒子运动到与初始粒子之间的距离超过一定的数值时,则认为该粒子无法达成凝聚条件,应舍弃,从远处重新释放一个新的粒子^[60]。以此类推,当所有达成条件的粒子凝聚在一起,该凝聚过程终止,其算法流程图如图 1 所示^[61]。

1983 年,Meakin^[62]为模拟更实际的 2~4 维空间的粒子凝聚过程,提出了粘附概率一词并进行模拟,后续基于这一研究,考虑粒子碰撞后成功凝聚的概率因素问题,在 DLA 模型的基础上进行改进,加入粒子凝聚的概率条件,正式提出了反应限制凝聚模型 (Reaction Limited Aggregation, RLA),只有粒子大量接

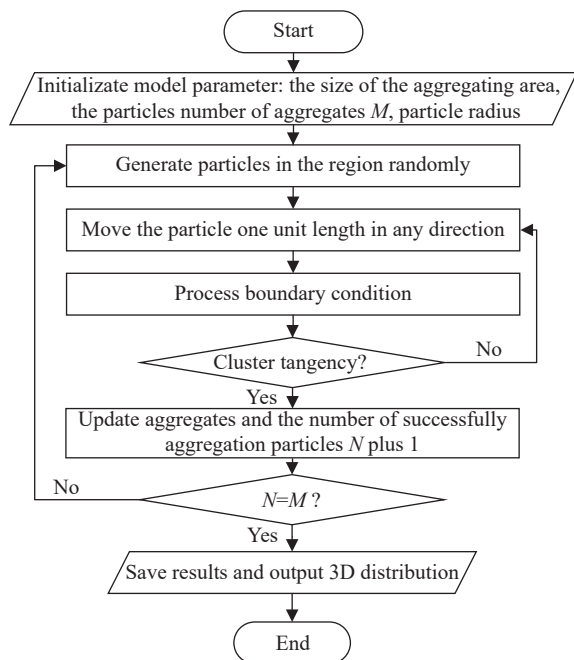


图 1 DLA 算法流程图

Fig.1 DLA algorithm flowchart

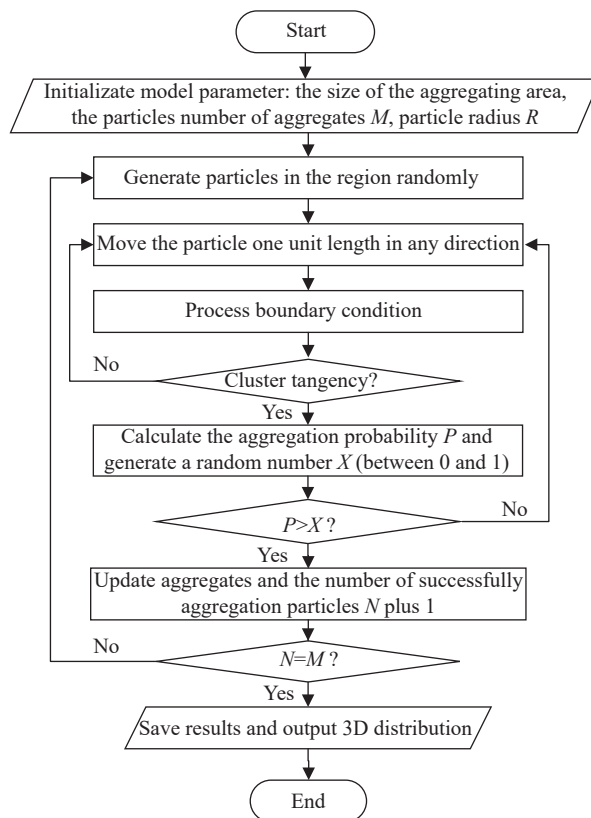


图 2 RLA 算法流程图

Fig.2 RLA algorithm flowchart

触碰撞,克服势垒才能凝聚成功,此时凝聚概率为 1^[63]。该模型由于大量碰撞,其粒子更容易进入团簇内部,凝聚体结构比 DLA 更致密,分形维数更大。RLA 模型具有粘附概率特性,广泛应用于气凝胶生成、材料生长、悬浮液凝聚等领域,其算法流程图如图 2 所示^[61]。

弹道凝聚模型 (Ballistic Aggregation, BA)^[64] 是 Bensimon 等于 1984 年在 Sutherland^[65] 和 Vold^[66] 等提出的弹道学驱动凝聚 (Ballistically Driven Aggregation BDA, 又称 Sutherland-Vold) 模型基础上改进提出的,模型的主要思想:在某一区域内的原点位置产生一个初始粒子,随机生成第二个粒子坐标及其运动的终点坐标(围绕凝聚体粒子半径范围内的任一地方)并进行直线运动,如果接触碰撞到前一个粒子或者是团簇粒子,则认为该粒子凝聚成功,停止运动,以此类推,直至所有粒子凝聚完成。该模型粒子以固定方向直线运动,更容易进入团簇内部发生凝聚,其形成的凝聚体具有分形维数较大,结构紧密,其外形无固定的生长方向等特点^[67-68]。BA 模型初始应用于悬浮液中絮状物的胶体凝聚过程^[69],后期在平面衬底上的薄膜生长^[70]、尘埃气体粒子凝聚等领域得到广泛的应用,其算法流程图如图 3 所示^[64]。

弹道粒子-团簇凝聚模型 (Ballistic Particle-Cluster

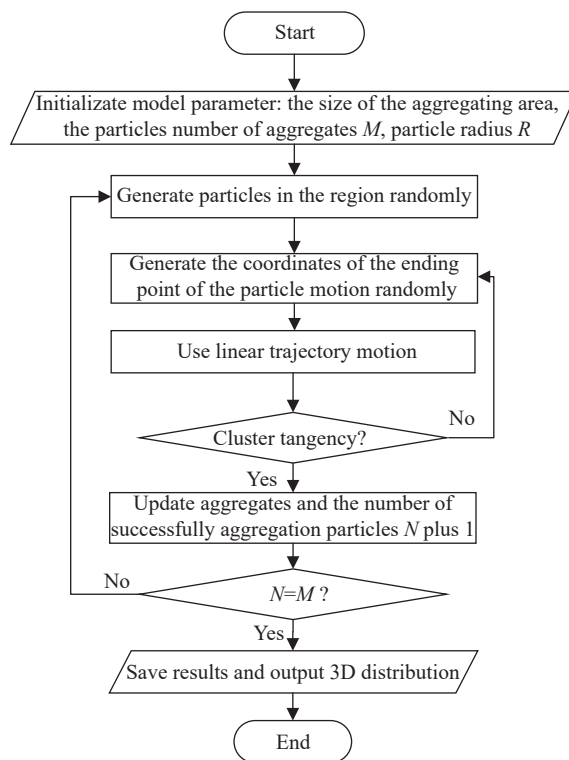


图 3 BA 算法流程图

Fig.3 BA algorithm flowchart

Aggregation, BPCA)^[71] 是 Clague 和 Dickinson 在 1984 年提出的模型,其主要思想:在固定区域内的坐标系原点生成一个静止粒子,从某个任意方向的区域边缘处(离原点无穷远)释放与静止粒子相同粒径的其他粒子,该粒子沿着释放位置到原点附近坐标的直线路径运动,直至其与静止粒子接触时停止,以此类推,直至所有粒子释放完毕。该模型最开始用来研究光散射特性,后期应用在星体尘埃观测、粉尘凝聚等方面,其生成的凝聚体结构类似树枝状,分形维数较大,其算法流程图如图 4 所示^[71-72]。

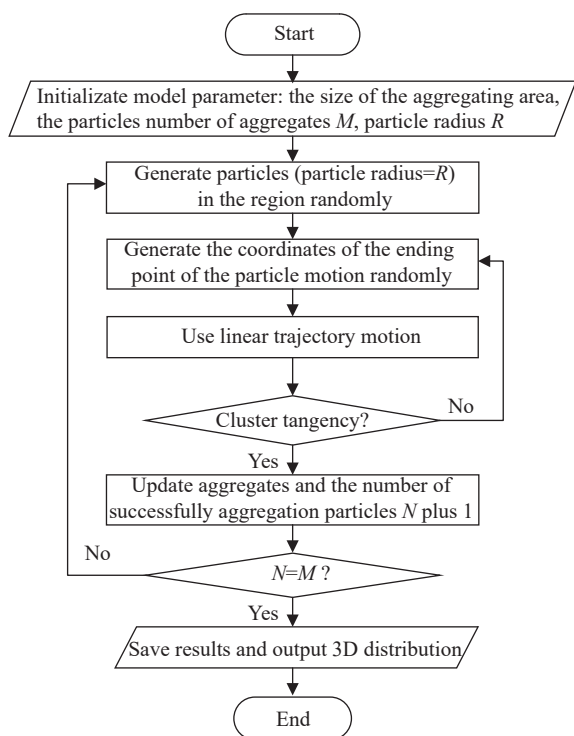


图 4 BPCA 算法流程图

Fig.4 BPCA algorithm flowchart

2.2.2 团簇-团簇凝聚模型

扩散限制团簇凝聚模型 (Diffusion Limited-Cluster Aggregation, DLCA)^[73-74] 是 1983 年 Paul 和 Kolb 等为模拟更真实的胶体凝聚,基于 DLA 模型提出的改进模型。该模型的主要思想^[73-74]:在规定的形状区域内,随机产生一定数量的粒子,其中处于相邻位置或网格的粒子被认为是同一团簇,让粒子和粒子团簇均无规则移动。当移动的粒子与团簇接触时,形成一个更大的团簇,通过团簇与粒子的凝聚运动,直至最后只剩一个大团簇。该模型由扩散系数决定团簇的

生长凝聚效率,其生成的凝聚体结构松散,分形维数小于 DLA。该模型形成的胶体凝聚体分形维数随着粒子半径的增加而显著降低,其值约为 1.75~1.85^[75],其算法流程图如图 5 所示^[61]。

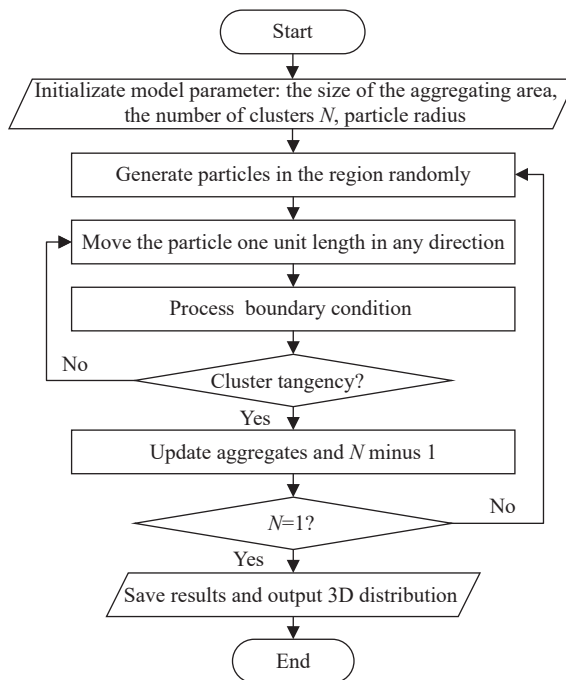


图 5 DLCA 算法流程图

Fig.5 DLCA algorithm flowchart

反应限制团簇凝聚模型 (Reaction-Limited Cluster Aggregation, RLCA) 是 Jullien^[76] 根据 RLA 模型与团簇的概念,在 1984 年提出的,相比于 DLCA 模型,考虑了粒子间存在排斥力时,粒子与团簇碰撞不一定发生凝聚,这点与 RLA 模型特征类似^[77]。当粒子与团簇多次碰撞,克服排斥势垒后,此时粒子成功凝聚的概率为 1,实现凝聚过程。该模型形成凝聚体的结构、分形维数等特征与碰撞概率、凝聚速率高度相关。碰撞概率越低,其粒子更容易进入团簇内部,结构更加致密紧凑。粒子凝聚速率越快,形成的凝聚体结构越松散,分形维数越小。与 DLCA 凝聚模型相比,RLCA 凝聚模型凝聚速度更慢,凝聚体结构更紧密,其算法流程图如图 6 所示^[61]。

团簇-团簇凝聚模型 (Cluster-Cluster Aggregation, CCA) 是 Meakin 等^[78] 提出的模型,该模型^[78-79] 随机产生一定数量的粒子,所有粒子均在体系内进行无规则的布朗运动,先接触的粒子形成小团簇,允许小团

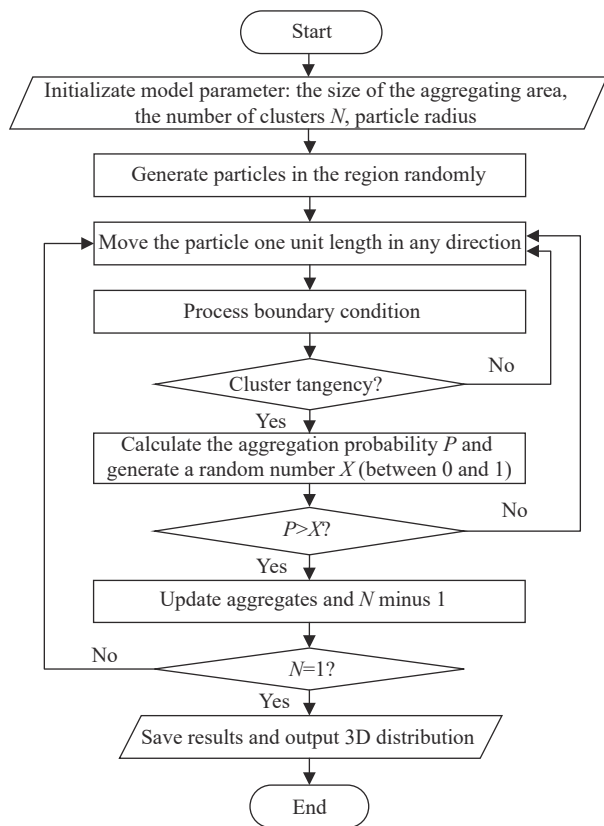


图 6 RLCA 算法流程图

Fig.6 RLCA algorithm flowchart

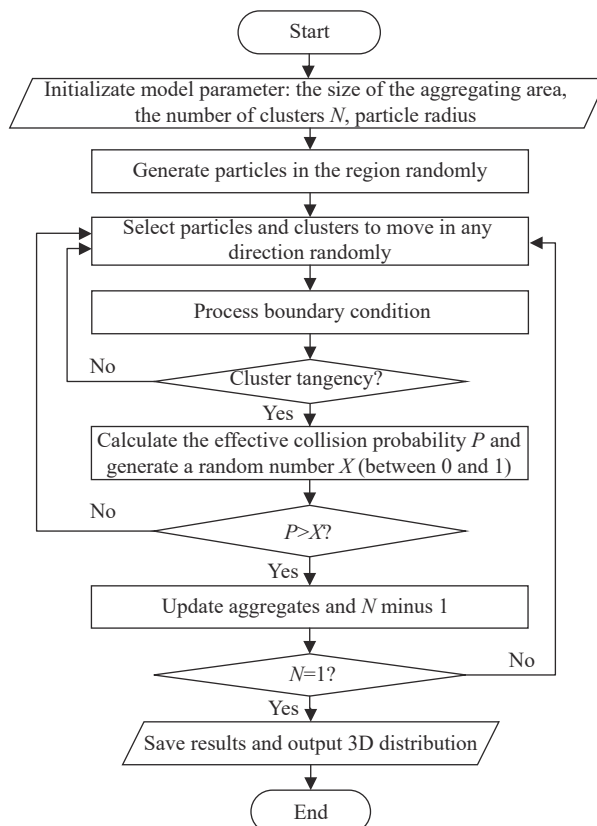


图 7 CCA 算法流程图

Fig.7 CCA algorithm flowchart

簇与粒子继续运动碰撞凝聚,直至最后剩下一个大的团簇,凝聚过程结束。该模型形成的凝聚体结构、凝聚速率等特点受扩散系数、碰撞概率等因素影响^[80]。在模拟过程中需考虑粒子、团簇的大小和质量建立合适的扩散系数,根据扩散系数和粒子的运动特点,设置合适的碰撞概率。该模型应用广泛,可模拟胶体、土壤、气溶胶粒子凝聚等现象^[81],其算法流程图如图 7 所示^[82]。

弹道团簇-团簇凝聚模型 (Ballistic Cluster-Cluster Aggregation, BCCA) 是 Meakin^[83] 提出的,其算法原理:在给定空间内随机产生 2^i 个粒子,粒子和团簇沿任意方向直线运动,当产生碰撞双方的初始粒子数一致时,发生凝聚,否则继续运动,直至空间内只剩一个团簇,结束凝聚^[84]。该模型适用于天体尘埃、生物气溶胶等特性研究,其分形维数约为 1.8~1.9^[85-86],其算法流程图如图 8 所示^[87]。

凝聚模型都有其适用性与局限性。DLA 和 DLCA 模型适用于满足拉普拉斯方程的无规则扩散现象,其形成的凝聚体结构存在屏蔽效应^[88];RLA 和 RLCA 模

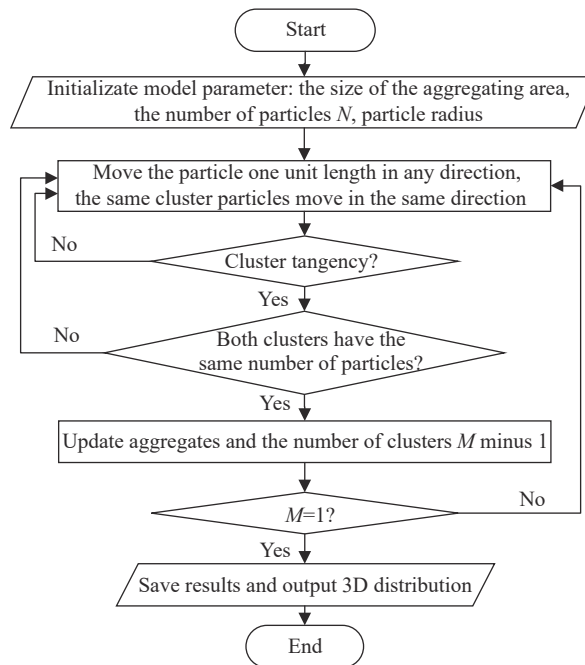


图 8 BCCA 算法流程图

Fig.8 BCCA algorithm flowchart

型适用于粒子需要多次碰撞才能发生凝聚过程的现象,其形成的凝聚体结构克服了屏蔽效应^[89];BA、

BPCA 和 BCCA 适用于以线性轨迹扩散的平均自由程远大于团凝聚体尺寸的粒子凝聚现象^[90],其形成的凝聚体结构因线性运动而更致密。其中 DLA 和 RLA 模型存在中心固定粒子,限定了凝聚体的位置,计算简单。而 CCA、DLCA 和 RLCA 模型运动粒子更多

元,粒子与团簇均随机运动,计算较复杂。此外,BPCA 模型的初始粒径一致,BCCA 模型碰撞双方的初始粒子数量一致,才能发生凝聚,与实际粒子凝聚现象存在一定误差。气溶胶粒子凝聚仿真模型的关系如图 9 所示,各个模型的具体比较如表 1 所示。

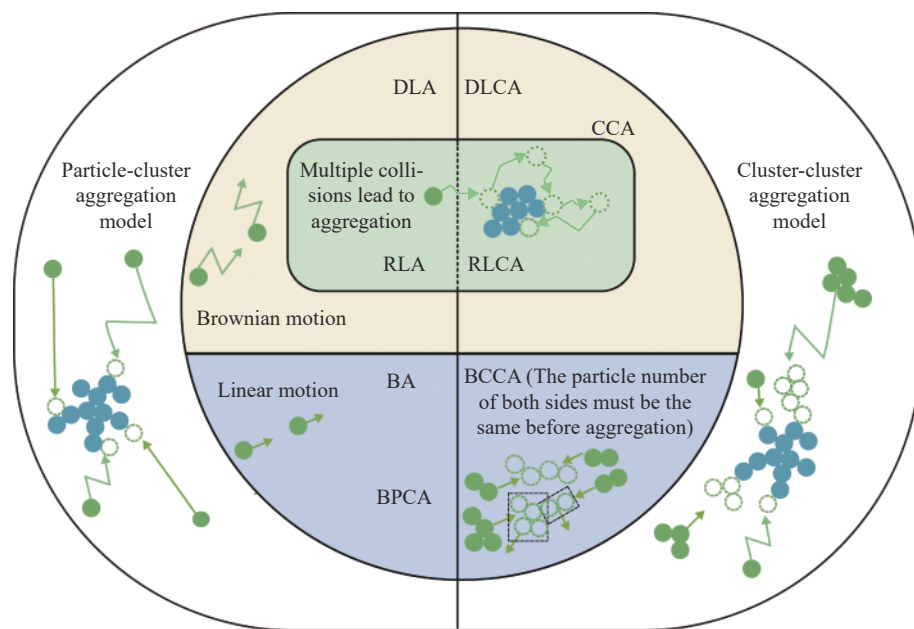


图 9 气溶胶粒子凝聚仿真模型分类示意图

Fig.9 Schematic illustration of classification of aerosol particles aggregation simulation model

表 1 气溶胶粒子凝聚仿真模型比较

Tab.1 Comparison of simulation models for aerosol particles aggregation

Simulation model	Movement mechanism	Structure features	Application scope
DLA	Brownian motion	Dendritic structure, insensitive to adhesion probability	Film growth, powder particle aggregation, electrochemical deposition, etc.
RLA	Brownian motion	Compact structure, high dependence on cohesion probability	Aerogel synthesis, material growth, colloidal particles aggregation, etc.
BA	Linear motion	Compact structure, no fixed trend of growth direction and large fractal dimension	Colloidal particles aggregation, film growth, dust particles aggregation, etc.
BPCA	Linear motion	Compact structure and large fractal dimension	Dust particle aggregation, powder aggregation, etc.
DLCA	Brownian motion	Dendritic structure, small correlation between fractal dimension and cluster size when a large number of particles are simulated	Material growth, electrochemical deposition, aerosol aggregation, etc.
RLCA	Brownian motion	More compact structure than DLCA model, high dependence on coalescence probability	Aerogel synthesis, material growth, colloidal particles aggregation, etc.
CCA	Brownian motion	Compact structure, fractal dimension size is related to adhesion probability and collision efficiency	Colloid, soil, aerosol aggregation, etc.
BCCA	Linear motion	Compact structure and large fractal dimension	Aerosol particles(dust and microbial particles) aggregation, etc.

3 气溶胶粒子凝聚模型应用

气溶胶粒子凝聚模型可模拟凝聚过程,研究凝聚

体的形成机理及其形态结构特征,分析凝聚体的特性参数,探究其对具体应用的影响,其广泛应用于光学、天体物理学和动力学等领域。

3.1 光学特性

气溶胶粒子凝聚模型通过模拟现实气溶胶粒子的凝聚过程,得到不同凝聚体的结构特征,分析气溶胶在大气中的散射特性和传播效率等,为后续材料的筛选和可控制备等提供参考。

徐澍等^[91]利用 DLA 模型生成黑碳凝聚体和具有包覆水层混合态粒子的两种复杂黑碳结构,研究分析了粒子形态结构、包覆水层以及黑碳凝聚体老化过程对凝聚体光学特性参数变化的影响,减小了黑碳气溶胶辐射强迫的估算误差。

Wang 等^[92]利用 BCCA 和 BPCA 模型对生物气溶胶凝聚粒子进行模拟,计算了两种模型下的孔隙率分布并分析其消光性能。Wang 等^[93]利用 CCA 模型构建生物气溶胶凝聚体,计算生物气溶胶的宽波段的消光能力,结果表明:材料的选择影响不同波段的消光性能,增加初始粒子半径和降低凝聚体的孔隙率可提高宽波段消光能力,为进一步研究新型消光材料提供参考。Zhao 等^[94]利用 CCA 模型,建立了生物气溶胶在不同阶段凝聚过程中的凝聚体结构,结果表明,生物气溶胶凝聚体的孔隙率是影响质量消光系数的重要参数,孔隙率越大,生物气溶胶的质量消光系数越小。Jullien^[95]研究了零冲击参数的弹道凝聚,分形维数从 2.04 提高到 2.21,研究证明重构对凝聚体短程结构的影响比对决定其分形维数的长程结构的影响更为重要,为实际系统的广角散射实验研究提供参考。

黄朝军等^[96]利用 CCA 凝聚模型模拟烟尘凝聚体的形成,计算了单次散射特性和电磁波在烟尘中传输的反射率和透射率,分析了电磁波入射角、烟尘能量吸收程度以及烟尘粒子数密度和厚度对反射率和透射率的影响。类成新等^[97]利用 CCA 凝聚模型研究了烟尘凝聚体对不同波长入射光的散射特性与其粒子粒径大小和数量的关系。Filippov 等^[98]改进了 CCA 算法,用于单分散球形粒子凝聚的能量传递和散射特性的模拟。Morán 等^[99]提出多分散粒子凝聚散射特性的算法,形成凝聚体的分形参数计算精准,误差较小,效率高。李海英等^[100]利用 DLA 模型模拟了较大浓度烟尘气溶胶粒子的凝聚过程,计算了波长分别为 30、35、40 μm 的不同数量粒子形成的凝聚体散射特性,并用蒙特卡洛方法得到了均匀分布烟尘气溶胶对太赫兹波的衰减特性,结果显示太赫兹波相比于红外

波段,更加适合在烟尘气溶胶中传播。Das 等^[101]利用 BPCA 和 BCCA 分别模拟了 128 个球形粒子组成的凝聚体,研究 Levy 1990 XX 彗星的光散射特性,研究发现:与球形粒子相比,紧凑的细长粒子能更好地解释观察到的线偏振数据。Ding 等^[102]基于优化的 BCCA 模型计算了生物粒子凝聚体的光学特性,研究了不同孔隙率和粒子数量对吸收和散射性能的影响,结果表明,随着孔隙率的降低和粒子数量的增加,生物材料的消光性能得到了提高。

3.2 天体物理特性

气溶胶粒子凝聚模型模拟宇宙天体下的粒子和团簇的运动碰撞过程,促进天体性质和运行规律的理解,为探索凝聚体结构组成和物理性质参数等提供参考。气溶胶粒子凝聚模型还可以模拟尘埃凝聚体的形成,分析其结构特征与散射特性、偏振相位、波长等物理元素的关系,用以解释混合气体爆炸和彗星极化等现象。

Wada 等^[103]利用 BPCA 和 BCCA 形成的凝聚体模拟相对高速碰撞过程,检验凝聚体破碎的临界碰撞速度,结果表明两个凝聚体的临界碰撞速度都很高,相比较而言,BPCA 凝聚体更难破碎,由冰粒子组成的尘埃凝聚体可以碰撞生长,为理解小行星形成过程提供参考。Wada 等^[104]为研究尘埃凝聚的压缩破碎过程,利用 BCCA 模型模拟大量不同结构粒子形成的尘埃凝聚体的正面碰撞过程,分析了碰撞结果与凝聚体大小以及粒子间相互作用的关系,结果表明,碰撞压缩可以减少凝聚体的回转半径,增加粒子间的接触量,随着粒子数量的增加,破坏凝聚体变得更加困难。Wada 等^[8]根据 BCCA 生成尘埃凝聚体,利用现实约束力模拟其三维正面碰撞过程,并以此构建原行星盘中的结构演化过程,研究显示,通过相互碰撞生长的尘埃凝聚体具有非常蓬松的结构,其生成凝聚体压缩和破坏的能量准则与二维模拟具有一致性。

Arakawa^[105]利用 BCCA 模型模拟了多孔尘埃凝聚体的形成,研究了其几何结构特征,得到了其热导率与几何结构特征的关系,结果表明静态压缩 BCCA 凝聚体的几何结构具有双重分形的特征,凝聚体的长度影响其压缩状态。Dhaubhadel 等^[106]在室内模拟碳氢化合物气体与氧气混合爆炸后形成的煤烟凝聚体,发现存在一种气溶胶聚集处于从 DLCA 凝聚状态

过渡到凝胶状态的混合形态,有利于爆炸现象观测。Lasue 等^[107]利用 BCCA 或 BPCA 模拟了多达 128 个不同组成成分的不同亚微米粒径的球形或非球状粒子形成的凝聚体,解释彗星尘埃散射光的偏振相位角和波长依赖性等特征,结果表明:粒子的形状、大小和成分很大程度上影响尘埃散射光的特性,模拟的尘埃凝聚体对彗星极化观测至关重要。

3.3 动力学特性

气溶胶粒子凝聚模型模拟不同粒子和团簇的凝聚过程,根据凝聚体的凝聚特性,完善了不同领域凝聚模型的方程,有利于探究不同现象的凝聚动力学特性。

Escobedo 等^[108]根据 BA 凝聚的平均场型方程,探究凝聚率、密度函数与粒子的质量和动量之间的关系。吴世先等^[109]模拟了布朗运动与外场迁移两种作用机制下的气溶胶沉积凝聚过程,有利于其生成物形貌结构变化的机理分析。Brilliantov 等^[110]提出了一种简单的弹道聚合破碎模型,其中当碰撞能量小于凝聚能量阈值时,碰撞粒子合并;当碰撞能量大于凝聚能量并小于破碎能量阈值时,碰撞粒子反弹;当碰撞能量大于破碎能量时,较大的粒子破碎;根据凝聚体质量-速度分布函数的玻耳兹曼动力学方程,推导出团簇浓度随时间演化的速率方程。Paul^[111]研究了自由冷却粒子气体模型 (Granular Gas Model, GGM) 和 BA 模型的凝聚动力学,量化了相应形式的老化现象,并根据老化特性在一维空间建立了更完全的 GGM 和 BA 模型的等价关系。Ziff^[112]等为了研究团簇-团簇凝聚过程的动力学特性,对经历布朗运动的粒子和团簇凝聚进行大规模计算机模拟。结果表明:如果利用测量或计算机模拟得到凝聚体的分形特性来确定平均场方程式所需的动力学速率核,就能利用该方程式准确地描述团簇-团簇凝聚过程的动力学特性,该方程适用于描述团簇-团簇凝聚模型。

Brahma 等^[113]研究了不同添加剂对氧化铝粒子凝聚过程的影响,结果表明:添加剂影响胶体化学,进而影响凝聚机制和骨料结构,大多数凝聚过程在初始阶段表现为 RLA 凝聚,在凝聚体尺寸超过 500 nm 之后,表现为 DLA 凝聚,其中 RLA 生成的凝聚体结构比 DLA 生成的更密集。Anwar 等^[114]利用非晶格形式的 DLCA 模型计算存在惰性杂质情况下的凝聚过

程,得到了杂质对凝聚体孔径分布的影响规律:当杂质未被去除,其凝聚产生的多孔材料由相互关联的分形簇的均匀结构组成,孔径分布的数值与流动杂质的密度和大小有关,凝聚体的相关性长度随着杂质浓度的增加以及杂质尺寸的减小而减小。Paul 等^[115]通过分子动力学模拟,研究了非弹性粒子在不同空间维度上的 BA 和 GGM 模型的凝聚动力学,量化了团簇动能和平均质量的时间依赖性。Jungblut 等^[116]模拟研究了三种作用力条件下纳米粒子凝聚过程的凝聚特性,研究证实,引力对凝聚机制和凝聚体结构特征的影响较小,斥力作用下形成 RLCA 凝聚体结构更致密,类似非相互作用力的非旋转团簇聚集体,分形维数和聚集时间随温度的降低而增加。Borzęcka 等^[117]仿真模拟了二氧化硅气凝胶凝聚过程,验证了实验的动力学特性:当系统接近 RLA/RLCA 状态时,生成的结构变得更密集,随着缩合反应概率和粒子浓度的增加,碰撞可能性增大,模拟时间缩短,有利于利用凝聚参数预测湿凝胶性质,为气凝胶的合成提供了理论依据。

气溶胶粒子凝聚模型作为重要的数值模拟方法之一,能为气溶胶粒子凝聚过程研究提供有力支撑,有利于光学、天体物理学、动力学等各领域的特性研究工作开展。但研究气溶胶粒子凝聚过程及其应用时,应根据实际情况选择相对合理的理论方程和模型进行完善。比如,枝晶生长和电化学沉积等非平衡生长现象的凝聚粒子作无规则扩散运动,在一定条件下满足拉普拉斯方程,可利用 DLA 模型模拟其过程。粒径较大的气溶胶,例如尘埃粒子、飞沫粒子等,其粒子平均自由程远大于凝聚体尺寸,其凝聚过程可利用 BA、BPCA 和 BCCA 模型模拟。胶体化学凝聚和气凝胶凝聚等过程受化学反应条件限制,需多次碰撞发生凝聚,RLA 和 RLCA 模型模拟更适用。

4 气溶胶粒子凝聚模型优化

枝晶生长、气溶胶运动和电化学沉积等现象均具有凝聚特性。气溶胶粒子凝聚模型模拟不同形状和粒径大小的粒子在各种环境下的凝聚过程,并对现实现象的凝聚特性进行分析,其应用广泛。目前气溶胶粒子凝聚模型在算法效率、模拟方式、应用精度等方面仍具有发展潜力,可针对实际情况进行优化。

4.1 算法效率优化

气溶胶粒子凝聚模型可通过改进粒子或团簇位置表达记录方式和使用高性能的存储运行设备等方式,提高算法效率。

Meakin^[118]设计了模拟约上万个粒子的二维 DLA 凝聚模型,通过使用晶格位置来指示最近粒子的位置或距离,当有新粒子加入团簇时,周围的晶格位置信息也随之更新,该算法使得统计误差减少了一个数量级,运算模拟速度快 100~1000 倍。Ball 等^[119]提出了模拟超过 10 万个粒子的新算法,适用于大集群的增长,运算速度较快,能有效利用存储空间。Kasper 等^[120]提出了一种新的 DLCA 模拟算法,通过使用 RAM 存储器来存储有关粒子位置和距离的信息,从而减少模拟创建大型 DLCA 聚集体的计算时间。熊海灵等^[121]基于新的存储结构,通过改变凝聚算法的凝聚体结构的表征方式,改进粒子碰撞与凝聚算法,实现对任意粒子和凝聚体直接定位的目的,有利于模拟大型粒子凝聚过程,减少算法的时间复杂度。

4.2 模拟方式优化

气溶胶粒子凝聚模型可根据应用研究方向,从分子模拟方式上进行优化改进。

基于动力学模型凝聚算法的模拟方式有蒙特卡洛模拟、动力学模拟等。当实验模拟量较大时,采用蒙特卡洛模拟可利用概率或概率分布函数,结合编程技术,简化推导演算步骤,其计算准确省时,效率高。Hagenlocher^[122]为估计燃烧产生的气溶胶气体分子和 DLA 团簇之间的碰撞频率,对小于 1 μm 的均匀粒子的分子碰撞进行蒙特卡洛模拟,发现最大尺寸为 1000 个粒子的团簇,其粒子与悬浮在气体中单个粒子的分子碰撞频率之比在 0.31~0.54 之间。Kim 等^[123]在任意选择粘附概率进行模拟的蒙特卡洛模拟基础上,采用表面络合模型和 Derjaguin-Landau-Verwey-Overbeek(DLVO)理论,连续计算表面电荷状态、粒子之间的总相互作用势、粒子的碰撞或悬浮稳定性,提供实验过程参数和粘附概率值之间的联系,为模拟实际凝聚中的粘附概率值提供有效参考。

分子动力学模拟是根据牛顿运动定理分析粒子凝聚行为,模拟凝聚过程的重要方法。Cerbelaud 等^[124]通过布朗动力学模拟方式改进模型,研究亚微米氧化铝粒子和二氧化硅纳米粒子组成的双组分稀释体系

的凝聚过程。Borzecka 等^[125]基于元胞自动机思想,对有机烷氧基硅烷生成动力学模拟进行改进,确定了气凝胶的初始特征参数,评价了数值方法在凝胶凝聚动力学和凝胶结构预测中的适用性,得到了反映硅基凝胶形成的数值模型,并进行了实验验证,该模型能适当地反映 RLA 动力学和凝聚体的结构特性。Markutsya^[126]基于分子动力学和布朗动力学两种模拟方法,提出了一种预测胶体纳米粒子凝聚过程的改进模型,其模拟结果精确,计算效率高。

4.3 模型运用优化

气溶胶粒子凝聚模型可通过分析影响凝聚过程的因素,根据应用需求进行改进,更直观显示凝聚体的凝聚特性,减小应用误差,提高模型的精度。

Dey 等^[127]为推导未来颗粒气体的连续行为,对 BA 晶格模型的粒子位置占据方式进行改进,分别提出了具有单粒子和多粒子占据的一维 BA 晶格模型,该模型同时具有速度场和密度场,能实现实时模拟演化。Li 等^[128]用 Java 语言改进了 CCA 模型,实现了三维生长过程的动态显示,可记录凝聚相关动力学数据,实时性好,操作简单,有助于观察研究。Fan 等^[129]为更直观高效地显示三维凝聚过程,耦合相关模型进行应用研究,提出了利用 Java 语言进行改进的三维仿真 CCA 模型,新增了记录集聚过程团簇坐标的功能,并且对不同团簇用不同颜色标记区分,减少了对团簇列表的大量冗余遍历,提高了算法效率,缩短了仿真时间。Ding 等^[87]为研究凝聚粒子结构的光学特性,基于 BCCA 模型,提出了粒子大小和数量可任意设置的优化模型,并通过计算 BCCA 模型和改进模型的消光特性误差,验证优化模型的可推广性和准确性。

Jullien 等^[130]在 DLA 模型的基础上,考虑聚合物重构、团簇极化和间接凝聚三个因素,对该模型进行扩展。Chai 等^[131]为模拟更接近现实的凝聚模型,基于 DLCA 和 RLCA 凝聚机理,提出了考虑布朗运动、重力、水流剪切应力、絮体破碎和初始泥沙粒径分布不均匀等因素的三维粘性泥沙絮体生长模型,实验结果验证表明,该模型减少了模拟过程的内存使用和时间消耗,分析了不同水深下絮凝体的结构特征以及初始粒径分布对凝聚体结构参数的影响,模拟结果准确。Campo 等^[132]在溶胶凝胶化条件下,对 RLCA 模型进行改进,模拟了气凝胶结构的产生过程,并对中

性二氧化硅气凝胶进行了测试,结果表明,模型密度和加工条件等参数调整使其产生的凝胶结构发生改变,因此根据生产应用需求选择合适的工艺条件,是不同气凝胶结构制备的首要基础。Tan 等^[13]基于凝聚过程的二聚化特征,利用 Metropolis 采样法改进 CCA 凝聚模型,该模型将粒子团簇运动序列化,可用于胶体团簇分散过程,能够良好地表达快速扩散和慢速扩散的特征,可与传统的 CCA 模型耦合来研究胶体的稳定性,通用性高。

气溶胶粒子凝聚模型是模拟凝聚过程、解决实际应用问题的重要方法。模型优化应根据应用场景与需求,从算法高效性、应用精确性、模型推广性等方面综合考虑。

5 总结与展望

随着气溶胶粒子凝聚模型在光学、天体物理学和动力学等领域的广泛应用,其消光特性、天体运行规律和动力学特性相关工作研究也取得一定的进展。但近年来,新型气溶胶粒子凝聚模型的提出构建、多因素耦合凝聚模型的模拟分析和凝聚模型的应用扩展等方面仍存在一些挑战。

(1) 非球形粒子凝聚模型构建

目前为了简便计算,气溶胶粒子凝聚及其应用大多采用球形粒子近似或固定取向的非球形粒子研究。实际上,自然中常见粒子多为非球形结构,如椭圆形、圆柱形、切比雪夫形等。在大量粒子凝聚模拟下,球形粒子凝聚模型部分反映非球形粒子凝聚动力学特性,其模拟形成的凝聚体与自然凝聚形成的有一定的偏差。而固定取向非球形粒子凝聚模拟的粒子运动状态比现实凝聚状态更有序,形成的凝聚体结构能表征部分沉降粒子凝聚的凝聚体结构特征,与无序运动凝聚体存在一定的差异。因此,为了更符合自然粒子的无序运动凝聚状态,提高模型的逼真度,研究现实粒子的凝聚动力学特性,了解其形成的凝聚体结构特征,随机取向的不规则非球形粒子凝聚模型及其应用还有待研究。

(2) 多因素耦合凝聚模型应用

不同凝聚条件下的粒子空间结构特征、粒子间作用力以及环境因素等凝聚机理均有差异。以往粒子凝聚模型的机理研究大多考虑各种因素独立作用的

线性叠加或只考虑部分因素。在实际模拟应用中,影响气溶胶粒子凝聚的因素多元复杂,粒子受温度、湿度和 pH 值等大气环境影响,改变粒子形状大小、凝聚速率和粒子间作用力等参数,粒子的凝聚特性随之变化。但目前凝聚机理分析较为简单,流体中的凝聚模型大多考虑剪切力、粒子空间结构特征,而忽略了粒子因压力、温度和静电作用力等机理带来的影响。而真实大气中,模型的影响因素复杂多变,凝聚机理也不是简单的线性叠加,若忽略某因素的作用,其模拟形成的凝聚体结构特征易偏离实际结构。因此,针对具体的应用领域,建立多因素耦合的凝聚模型,有利于提高模拟的准确性,是未来气溶胶粒子凝聚模型的研究热点。

(3) 凝聚粒子空间实时分布仿真

目前采用气溶胶粒子凝聚模型分析凝聚体的空间结构特征、光学特性等文献较多,但对真实大气环境中,气溶胶粒子凝聚体的空间实时分布情况研究不够充分。气溶胶粒子的凝聚使其体积、质量和空间结构特征动态变化,时刻影响粒子凝聚体的扩散速率和沉降速度。重力沉降速度、扩散速率的改变影响大气空间内的密度场、浓度场和速度场等。目前气溶胶粒子凝聚模型无法实现对气溶胶粒子空间实时分布的模拟。因此,为了更好地描述气溶胶粒子的凝聚动力学过程,分析风速、温度对粒子空间分布、凝聚特性和凝聚体结构特征的影响,气溶胶凝聚粒子空间实时分布仿真将成为未来气溶胶粒子凝聚模型应用的重要趋势。

综上所述,非球形粒子凝聚模型构建、多因素耦合凝聚模型应用、凝聚粒子空间实时分布仿真等完善将是未来气溶胶粒子凝聚模型的研究重点。

参考文献:

- [1] 蒋仲安,陈举师,温昊峰. 气溶胶力学及应用 [M]//北京:冶金工业出版社,2018.
- [2] Kindratenko V V, Van Espen P J, Treiger B A, et al. Fractal dimensional classification of aerosol particles by computer-controlled scanning electron microscopy [J]. *Environmental Science & Technology*, 1994, 28(12): 2197-2202.
- [3] Li Yanpeng, Liu Pengxia, Xie Zhengsheng, et al. Recent research progress and perspective of characteristics of ambient bioaerosols during hazy pollution in China [J]. *Chinese*

- Science Bulletin*, 2018, 63(10): 940-953. (in Chinese)
- [4] Wang Lan, Li Hao, Deng Congrui. Research progress of biogenic aerosols [J]. *Journal of Fudan University(Natural Science)*, 2022, 61(4): 495-512. (in Chinese)
- [5] Liu Yuzhi, Luo Run, Zhu Qingzhe, et al. Advances in researches on properties and interactions of aerosols and clouds over drylands of East Asian [J]. *Meteorological Sciences and Technology*, 2023, 51(1): 124-133. (in Chinese)
- [6] Gu Youlin, Lu Wei, Fang Jiajie, et al. Research progress on artificially prepared infrared extinction materials and their extinction properties (Invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(7): 20201018. (in Chinese)
- [7] Hu Y, Zhao X, Gu Y, et al. Significant broadband extinction abilities of bioaerosols [J]. *Science China Materials*, 2019, 62(7): 1033-1045.
- [8] Wada K, Tanaka H, Suyama T, et al. Numerical simulation of dust aggregate collisions. II. Compression and disruption of three-dimensional aggregates in head-on collisions [J]. *Astrophysical Journal*, 2008, 677(2): 1296-1308.
- [9] Wang Xuanyu. Development of anti-infrared smoke material and its extinction performance (Invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(7): 20201019. (in Chinese)
- [10] Ye Kuntao, Fei Xingming, Li Wen, et al. Influence of nonspherical aerosols' forward-scattering on light extinction [J]. *Applied Laser*, 2022, 42(9): 118-125. (in Chinese)
- [11] Xu Jiaying, Xia Min, Yang Kecheng, et al. Machine learning inversion algorithm for particle size distribution of non-spherical particle system [J]. *Acta Optica Sinica*, 2023, 43(9): 0929002. (in Chinese)
- [12] Morán J, Yon J, Poux A, et al. Monte Carlo aggregation code (MCAC) Part 2: Application to soot agglomeration, highlighting the importance of primary particles [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2020, 575: 274-285.
- [13] Eggersdorfer M L, Pratsinis S E. The structure of agglomerates consisting of polydisperse particles [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2012, 46(3): 347-353.
- [14] Perry J, Kimery J, Matthews L S, et al. Effects of monomer shape on the formation of aggregates from a power law monomer distribution [J]. *New Journal of Physics*, 2013, 15(7): 073026.
- [15] Perry J D, Gostomski E, Matthews L S, et al. The influence of monomer shape on aggregate morphologies [J]. *Astronomy and Astrophysics*, 2012, 539: A99.
- [16] Matsoukas T, Friedlander S K. Dynamics of aerosol agglomerate formation [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1991, 146(2): 495-506.
- [17] Soulgani B S, Reisi F, Norouzi F. Investigation into mechanisms and kinetics of asphaltene aggregation in toluene/n-hexane mixtures [J]. *Petroleum Science*, 2020, 17(2): 457-466.
- [18] Meakin P, Muthukumar M. The effects of attractive and repulsive interaction on two-dimensional reaction-limited aggregation [J]. *The Journal of the Chemical Physics*, 1989, 91(5): 3212-3221.
- [19] Puertas A M, Fernández-Barbero A, Nieves F J D L. Colloidal aggregation induced by attractive interactions [J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2001, 115(12): 5662-5668.
- [20] Puertas A M, Fernández-barbero A, De las Nieves F J, et al. Colloidal aggregation induced by long range attractions [J]. *Langmuir*, 2004, 20(22): 9861-9867.
- [21] Xiong Hailing, Yuan Yongzhi, Li Hang, et al. Computer simulation of colloidal aggregation induced by directionality of long range van der waals forces [J]. *Acta Physico-Chimica Sinica*, 2007(8): 1241-1246. (in Chinese)
- [22] Kim A Y, Berg J C. Fractal aggregation: Scaling of fractal dimension with stability ratio [J]. *Langmuir*, 2000, 16(5): 2101-2104.
- [23] Morán J, Henry C, Poux A, et al. Impact of the maturation process on soot particle aggregation kinetics and morphology [J]. *Carbon*, 2021, 182: 837-846.
- [24] Jiang Xin. Simulation of colloidal particles aggregation in presence of diffuse double layer [J]. *Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities*, 2004, 18(1): 33-37. (in Chinese)
- [25] Polimeno M, Kim C, Blanchette F. Toward a realistic model of diffusion-limited aggregation: rotation, size-dependent diffusivities, and settling [J]. *ACS Omega*, 2022, 7(45): 40826-40835.
- [26] Hopkins A J, Woodcock L V. Granular dynamics simulations of colloidal suspensions: scaling effects of stabilisation forces [J]. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions*, 1990, 86(14): 2593.
- [27] Zaccone A, Wu H, Gentili D, et al. Theory of activated-rate processes under shear with application to shear-induced aggregation of colloids [J]. *Physical Review E*, 2009, 80(5): 051404.
- [28] Markutsya S, Fox R O, Subramaniam S. Characterization of sheared colloidal aggregation using langevin dynamics

- simulation [J]. *Physical Review E*, 2014, 89(6): 062312.
- [29] Johnson C P, Li X, Logan B E. Settling velocities of fractal aggregates [J]. *Environmental Science & Technology*, 1996, 30(6): 1911-1918.
- [30] Xiong Yu. Computer simulation of fractal aggregation [D]. Chongqing: Southwest University, 2022. (in Chinese)
- [31] Mohammadi S, Rashidi F, Mousavi-dehghani S A, et al. On the effect of temperature on precipitation and aggregation of asphaltenes in light live oils [J]. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 2016, 94(9): 1820-1829.
- [32] Gu Fang, Zhang Jiahong, Chen Yunyun, et al. Hygroscopic growth model and scattering characteristics of two-particle agglomerated aerosol [J]. *Acta Optica Sinica*, 2021, 41(3): 0301001. (in Chinese)
- [33] Zhang Hui, Tao Zongming, Ma Xiaomin, et al. Fitting of hygroscopic factor between PM_{2.5} mass concentration and aerosol backscattering coefficient in hefei area [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(7): 0704006. (in Chinese)
- [34] Zhang Xuehai, Dai Congming, Zhang Xin, et al. Effect of relative humidity and particle shape on the scattering properties of sea salt aerosols [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2019, 48(8): 0809002. (in Chinese)
- [35] Wang Y, Yang K, Chefetz B, et al. The pH and concentration dependent interfacial interaction and heteroaggregation between nanoparticulate zero-valent iron and clay mineral particles [J]. *Environmental Science: Nano*, 2019, 6(7): 2129-2140.
- [36] Tran D, Kuprenas R, Strom K. How do changes in suspended sediment concentration alone influence the size of mud flocs under steady turbulent shearing? [J]. *Continental Shelf Research*, 2018, 158: 1-14.
- [37] Qi Can, Zhu Hui, Zhao Huan. Monte Carlo simulation of atmospheric particles aggregation growth under wind action [J]. *Manufacturing Automation*, 2012, 34(22): 76-79, 83. (in Chinese)
- [38] Liu Ziqiang. Hydration products from condensed cementitious materials to flocs-analysis of hydration process of silicate cementitious materials [J]. *Jiangxi Building Materials*, 2022(5): 17-23, 26. (in Chinese)
- [39] Liu Yaoming, Liu Zhongliang, Huang Lingyan. Improved computation method of box dimension and its application in frost formation [J]. *Journal of Beijing University of Technology*, 2012, 38(11): 1724-1730. (in Chinese)
- [40] Ghafari M, Ranjbar M, Rouhani S. Observation of a crossover in kinetic aggregation of Palladium colloids [J]. *Applied Surface Science*, 2015, 353: 1143-1149.
- [41] Shu Xueming, Fang Jun, Shen Shifei, et al. Study on fractal coagulation characteristics of fire smoke particles [J]. *Acta Physica Sinica*, 2006, 55(9): 4466-4471. (in Chinese)
- [42] Wan Z H, You Z J, Sun Z L, et al. Method of Taylor expansion moment incorporating fractal theories for brownian coagulation of fine particles [J]. *International Journal of Nonlinear Sciences and Numerical Simulation*, 2012, 13(7-8): 459-467.
- [43] 奚正平, 朱纪磊, 汤慧萍, 等. 一种多孔材料孔结构分形维数的计算方法: 中国, 200810232611.3[P]. 2011-08-10.
- [44] Pearson K. The problem of the random walk [J]. *Nature*, 1905, 72(1865): 294-294.
- [45] Witten T A, Sander L M. Diffusion-limited aggregation, a kinetic critical phenomenon [J]. *Physical Review Letters*, 1981, 47(19): 1400-1403.
- [46] Wang X, Zheng D, Lin Z, et al. Trails on a regular diffusion-limited aggregation fractal [J]. *Chinese Physics Letters*, 1990, 7(5): 193-196.
- [47] Lyklema J W, Kremer K. Irreversible self avoiding walks [M]//Kinetics of Aggregation and Gelation. Amsterdam: Elsevier, 1984: 241-243.
- [48] Lawler G. Intersections of Random Walks[M]//Modern Birkhäuser Classics. New York: Springer, 2013.
- [49] Balazs A C, Anderson C, Muthukumar M. A computer simulation for the aggregation of associating polymers [J]. *Macromolecules*, 1987, 20(8): 1999-2003.
- [50] Huang Y-B, Somasundaran P. Effects of random-walk size on the structure of diffusion-limited aggregates [J]. *Physical Review A*, 1987, 36(9): 4518-4521.
- [51] Hayakawa Y, Sato S. Statistical theory of diffusion-limited growth in two dimensions [J]. *Physical Review Letters*, 1997, 79(1): 95-98.
- [52] Puertas A M, Maroto J A, Barbero A F, et al. Particle interactions in colloidal aggregation by Brownian dynamics simulation [J]. *Physical Review E*, 1999, 59(2): 1943-1947.
- [53] Liang Long. The selective aggregation mechanism of clay mineral in coal slime [D]. Xuzhou: China University of Mining and Technology, 2017. (in Chinese)
- [54] Liu Guanqing. Discrete element methods of fine particle dynamics in presence of van der Waals and electrostatic forces [D]. Beijing: Tsinghua University, 2011. (in Chinese)
- [55] Nie Min, Ren Jiaming, Yang Guang, et al. Influences of nonspherical aerosol particles and relative humidity of

- atmosphere on the performance of free space quantum communication [J]. *Acta Physiologica Sinica*, 2016, 65(19): 190301. (in Chinese)
- [56] Otálora F, García-Ruiz J. The anisotropy of on-lattice simulations of aggregate growth [J]. *Fractals*, 2012, 1(4): 867-874.
- [57] Alves S G, Ferreira S C, Martins M L. Strategies for optimize off-lattice aggregate simulations [J]. *Brazilian Journal of Physics*, 2008, 38(1): 81-86.
- [58] Tolman S, Meakin P. Off-lattice and hypercubic-lattice models for diffusion-limited aggregation in dimensionalities 2-8 [J]. *Physical Review A*, 1989, 40(1): 428-437.
- [59] Meakin P. Models for colloidal aggregation [J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 1988, 39(1): 237-267.
- [60] Witten T A, Sander L M. Diffusion-limited aggregation [J]. *Physical Review B*, 1983, 27(9): 5686-5697.
- [61] Zheng Hongbo. Software development and application study of particles aggregation simulation [D]. Shanghai: East China Normal University, 2013. (in Chinese)
- [62] Meakin P. Diffusion-controlled cluster formation in two, three, and four dimensions [J]. *Physical Review A*, 1983, 27(1): 604-607.
- [63] Meakin P, Family F. Structure and dynamics of reaction-limited aggregation [J]. *Physical Review A*, 1987, 36(11): 5498-5501.
- [64] Bensimon D, Shraiman B, Liang S. On the ballistic model of aggregation [J]. *Physics Letters A*, 1984, 102(5-6): 238-240.
- [65] Sutherland D N. A theoretical model of floc structure [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1967, 25(3): 373-380.
- [66] Vold M J. Computer simulation of floc formation in a colloidal suspension [J]. *Journal of Colloid Science*, 1963, 18(7): 684-695.
- [67] Liang Shoudan, Kadanoff L P. Scaling in a ballistic aggregation model [J]. *Physical Review A*, 1985, 31(4): 2628-2630.
- [68] Ramanlal P, Sander L M. Theory of ballistic aggregation [J]. *Physical Review Letters*, 1985, 54(16): 1828-1831.
- [69] Dirkse J F, Cawley J D. A modified ballistic aggregation model [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1995, 170(2): 466-476.
- [70] Pelliccione M, Lu T-M. Ballistic Aggregation Models [M]// Evolution of Thin Film Morphology: Modeling and Simulations. New York, NY: Springer, 2008: 121-141.
- [71] Clague I G, Dickinson E. Light scattering from a coagulating dispersion of random aggregates [J]. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 2: Molecular and Chemical Physics*, 1984, 80(11): 1485-1488.
- [72] Herrington T M, Midmore B R, Lips A. Theoretical modelling of an infinitely dilute irreversibly aggregating suspension [J]. *Journal of the Chemical Society Faraday Transactions*, 1990, 86(17): 2961-2966.
- [73] Meakin P. Formation of fractal clusters and networks by irreversible diffusion-limited aggregation [J]. *Physical Review Letters*, 1983, 51(13): 1119-1122.
- [74] Kolb M, Botet R, Jullien R. Scaling of kinetically growing clusters [J]. *Physical Review Letters*, 1983, 51(13): 1123-1126.
- [75] Wu H, Lattuada M, Morbidelli M. Dependence of fractal dimension of DLCA clusters on size of primary particles [J]. *Advances in Colloid and Interface Science*, 2013, 195-196: 41-49.
- [76] Jullien R, Kolb M. Hierarchical model for chemically limited cluster-cluster aggregation [J]. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, 1984, 17(12): L639-L643.
- [77] Family F, Meakin P, Vicsek T S. Cluster size distribution in chemically controlled cluster-cluster aggregation [J]. *Journal of Chemical Physics*, 1985, 83(8): 4144-4150.
- [78] Meakin P, Wasserman Z R. Some universality properties associated with the cluster-cluster aggregation model [J]. *Physics Letters A*, 1984, 103(6-7): 337-341.
- [79] Meakin P. Structure of the active zone in diffusion-limited aggregation, cluster-cluster aggregation, and the screened-growth model [J]. *Physical Review A*, 1985, 32(1): 453-459.
- [80] Jungblut S, Joswig J-O, Eychmüller A. Diffusion-limited cluster aggregation: impact of rotational diffusion [J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2018, 123(1): 950-954.
- [81] Meakin P. Off lattice simulations of cluster-cluster aggregation in dimensions 2-6 [J]. *Physics Letters A*, 1985, 107(6): 269-272.
- [82] Zhang Kebo. Study on the aggregation and breakup of fractal clusters through computer simulation [D]. Chongqing: Southwest University, 2017. (in Chinese)
- [83] Meakin P. Fractal aggregates in geophysics [J]. *Reviews of Geophysics*, 1991, 29(3): 317-354.
- [84] Okuzumi S, Tanaka H, Sakagami M A. Numerical modeling of the coagulation and porosity evolution of dust aggregates [J]. *Astrophysical Journal*, 2009, 707(2): 1247-1263.
- [85] Tence M, Chevalier J P, Jullien R. On the measurement of the

- fractal dimension of aggregated particles by electron microscopy: experimental method, corrections and comparison with numerical models [J]. *Journal de Physique*, 1986, 47(11): 1989-1998.
- [86] Meakin P, Jullien R. The effects of restructuring on the geometry of clusters formed by diffusion - limited, ballistic, and reaction - limited cluster-cluster aggregation [J]. *Journal of Chemical Physics*, 1988, 89(1): 246-250.
- [87] Ding W, Gu Y, Hu Y, et al. Ballistic cluster -cluster aggregation model optimization [J]. *AIP Advances*, 2023, 13(3): 035017.
- [88] Jing Ningde, Gao Zhongke. Nonlinear Information Processing Techniques [M]/Tianjin: Tianjin University Press, 2017. (in Chinese)
- [89] Gao Chen. Fractal diffusion and aggregation control of soot particles of diesel tail gas based on complex network [D]. Jinan: Shangdong University, 2020. (in Chinese)
- [90] Zhang Wenbo. Numerical simulation of fractal aggregation and dispersion behavior of nanoparticle aggregates [D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2018. (in Chinese)
- [91] Xu Shu, Bai Lianhong, Fan Meng, et al. Optical properties of soot aggregates and mixture particles with water coatings [J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37(2): 0201002. (in Chinese)
- [92] Wang X, Hu Y, Gu Y, et al. Comparison of two agglomerated particle simulation models for extinction performance calculation of bioaerosol [C]/Proc of International Photonics and OptoElectronics Meeting 2019 (OFDA, OEDI, ISST, PE, LST, TSA), 2019: JW4 A. 25.
- [93] Wang X Y, Hu Y H, Gu Y L, et al. Analysis of factors affecting the broadband extinction performance of bioaerosol [J]. *Optik*, 2020, 201: 163527.
- [94] Zhao X Y, Hu Y H, Gu Y L, et al. Aggregation-driven reductions in the mass extinction coefficient of bioaerosols [J]. *Optik*, 2019, 184: 115-120.
- [95] Jullien R, Meakin P. Simple models for the restructuring of three-dimensional ballistic aggregates [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1989, 127(1): 265-272.
- [96] Huang Chaojun, Liu Yafeng, Wu Zhensen, et al. Monte Carlo simulation of transfer-characteristics of electromagnetic wave propagating in soot [J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, 58(4): 2397-2404. (in Chinese)
- [97] Lei Chengxin, Zhang Huaifu, Liu Hanfa. Numerical calculation of Mueller matrices of randomly distributed soot cluster agglomerates [J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, 58(10): 7168-7175. (in Chinese)
- [98] Filippov A V, Zurita M, Rosner D E. Fractal-like aggregates: relation between morphology and physical properties [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2000, 229(1): 261-273.
- [99] Morán J, Fuentes A, Liu F, et al. FracVAL: An improved tunable algorithm of cluster-cluster aggregation for generation of fractal structures formed by polydisperse primary particles [J]. *Computer Physics Communications*, 2019, 239: 225-237.
- [100] Li Haiying, Wu Zhensen, Lin Leke, et al. The propagation characters of terahertz wave in the soot and fog medium [J]. *Journal of Microwaves*, 2015, 31(S1): 32-35. (in Chinese)
- [101] Das H S, Das S R, Paul T, et al. Aggregate model of cometary dust: an application to comet Levy 1990 XX [J]. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*, 2008, 389(2): 787-791.
- [102] Ding W, Gu Y, Hu Y, et al. Study of infrared optical properties of polydisperse aggregated bioparticles based on optimized BCCA model [C]/Proc of SPIE, 2023, 12556: 125561H.
- [103] Wada K, Tanaka H, Suyama T, et al. Numerical simulation of dust aggregate collisions: growth and disruption of dust aggregates [C]/Proc of AIP Conference Proceedings, 2009: 103-106.
- [104] Wada K, Tanaka H, Suyama T, et al. Numerical simulation of dust aggregate collisions. I. Compression and disruption of two-dimensional aggregates [J]. *Astrophysical Journal*, 2007, 661(1): 320-333.
- [105] Arakawa S, Takemoto M, Nakamoto T. Geometrical structure and thermal conductivity of dust aggregates formed via ballistic cluster-cluster aggregation [J]. *Progress of Theoretical and Experimental Physics*, 2019, 2019(9): 093E002.
- [106] Dhaubhadel R, Pierce F, Chakrabarti A, et al. Hybrid superaggregate morphology as a result of aggregation in a cluster-dense aerosol [J]. *Physical Review E*, 2006, 73(1): 011404.
- [107] Lasue J, Levasseur-regourd A C. Porous irregular aggregates of sub-micron sized grains to reproduce cometary dust light scattering observations [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2006, 100(1-3): 220-236.
- [108] Escobedo M, Mischler S. Scalings for a ballistic aggregation equation [J]. *Journal of Statistical Physics*, 2010, 141(3): 422-458.
- [109] Wu Shixian, Zhu Hui, Qi Can, et al. Numerical analysis of

- aerosol deposition onto horizontal surfaces by combined mechanisms [J]. *China Environmental Science*, 2016, 36(3): 687-693. (in Chinese)
- [110] Brilliantov N V, Bodrova A S, Krapivsky P L. A model of ballistic aggregation and fragmentation [J]. *Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment*, 2009, 2009(06): P06011.
- [111] Paul S, Das S K. Ballistic aggregation in systems of inelastic particles: Cluster growth, structure, and aging [J]. *Physical Review E*, 2017, 96(1): 012105.
- [112] Ziff R M, Mcgrady E D, Meakin P. On the validity of Smoluchowski's equation for cluster-cluster aggregation kinetics [J]. *Journal of Chemical Physics*, 1985, 82(11): 5269-5274.
- [113] Brahma N, Talbot J B. Effects of chemical mechanical planarization slurry additives on the agglomeration of alumina nanoparticles II: aggregation rate analysis [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2014, 419: 25-30.
- [114] Hasmy A, Primera J, Woignier T. Cluster-cluster aggregation with mobile impurities [J]. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 2019, 90(1): 87-94.
- [115] Paul S, Das S K. Dimension dependence of clustering dynamics in models of ballistic aggregation and freely cooling granular gas [J]. *Physical Review E*, 2018, 97(3-1): 032902.
- [116] Jungblut S, Joswig J O, Eychmuller A. Diffusion- and reaction-limited cluster aggregation revisited [J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2019, 21(10): 5723-5729.
- [117] Borzęcka N H, Nowak B, Pakula R, et al. Cellular automata modeling of silica aerogel condensation kinetics [J]. *Gels*, 2021, 7(2): 50.
- [118] Meakin P. The structure of two-dimensional Witten-Sander aggregates [J]. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, 1985, 18(11): L661-L666.
- [119] Ball R, Brady R M. Large scale lattice effect in diffusion-limited aggregation [J]. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, 1985, 18(13): L809-L813.
- [120] Kuijpers K R, De Martín L, Van Ommen J R. Optimizing off-lattice diffusion-limited aggregation [J]. *Computer Physics Communications*, 2014, 185(3): 841-846.
- [121] Xiong Hailing, Yang Zhimin, Li Hang. Improved simulation algorithm for soil colloid fractal aggregation based on unparallel Brownian motion [J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2015, 31(6): 129-134. (in Chinese)
- [122] Hagenlocher R, Friedlander S K. Numerical calculations of collision frequency of molecules with DLA clusters [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1989, 133(1): 185-191.
- [123] Kim S, Lee K S, Zachariah M R, et al. Three-dimensional off-lattice Monte Carlo simulations on a direct relation between experimental process parameters and fractal dimension of colloidal aggregates [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2010, 344(2): 353-361.
- [124] Cerbelaud M, Videcoq A, Abelard P, et al. Heteroaggregation between Al₂O₃ submicrometer particles and SiO₂ nanoparticles: experiment and simulation [J]. *Langmuir*, 2008, 24(7): 3001-3008.
- [125] Borzęcka N H, Nowak B, Pakula R, et al. Diffusion/reaction limited aggregation approach for microstructure evolution and condensation kinetics during synthesis of silica-based alcogels [J]. *International Journal of Molecular Sciences*, 2023, 24(3): 1999.
- [126] Markutsya S. Modeling and simulation of nanoparticle aggregation in colloidal systems [D]. Ames, US: Iowa State University, 2008.
- [127] Dey S, Das D, Rajesh R. Lattice models for ballistic aggregation in one dimension [J]. *Europhysics Letters*, 2011, 93(4): 44001.
- [128] Li C, Xiong H. 3D simulation of the cluster-cluster aggregation model [J]. *Computer Physics Communications*, 2014, 185(12): 3424-3429.
- [129] Fan L Y, Liao J W, Zuo J S, et al. Version 4.0 of code Java for 3D simulation of the CCA model [J]. *Computer Physics Communications*, 2018, 228: 290-292.
- [130] Jullien R, Botet R, Mors P M. Computer simulations of cluster-cluster aggregation [J]. *Faraday Discussions of the Chemical Society*, 1987, 83: 125-137.
- [131] Chai Z, Lu J, Yao S, et al. Modeling the growth of cohesive sediment flocs in three-dimensional space [J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2018, 215: 11-19.
- [132] Campo F A, Murillo J S R, Barbero E J. Aggregation model for the gelation of a sol starting from the processing conditions [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2011, 357(10): 2046-2053.
- [133] Tan N, Chen L, Ye X, et al. A novel dichotomy model based on the traditional CCA [J]. *Computer Physics Communications*, 2021, 265: 107984.

Research progress of aerosol particle aggregation model (*invited*)

Gu Youlin^{1,2,3}, Zhang Xi^{1,3}, Hu Yihua^{1,2,3}, Meng Fanhao^{1,3}, Chen Guolong^{1,3}, Ding Wanying^{1,3}, He Haihao^{1,3}

(1. State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology, National University of Defense Technology, Hefei 230037, China;

2. Advanced Laser Technology Laboratory of Anhui Province, Hefei 230037, China;

3. National University of Defense Technology, Hefei 230037, China)

Abstract:

Significance Aerosol particles refer to the solid, liquid or solid-liquid mixture particles suspended in the atmosphere caused by naturally formed or artificial factors, which are composed of metal powder, bioparticle, dust particle and so on. The analysis of the spatial structure and motion status of aerosol particles is of great significance for ecological environmental protection, climate change control and functional materials development. As an important means to study the spatial structure and motion status of aerosol particles, the aggregation model of aerosol particles is used to simulate the aggregated procedure of aerosol particles under different conditions, which is employed to explain its aggregation and physical mechanism. Aggregation models are widely used in optics, astronomical physics, dynamics and so on. The investigation on the mechanism, influential factors and application of aerosol particles aggregation model is beneficial to the optimization of aerosol particles aggregation model and the preparation of novel extinction materials.

Progress Firstly, the mechanism and main influential factors of aerosol particle aggregations are analyzed, such as particle spatial structure characteristics, the interaction of particles, and atmospheric environment. The theory of fractal, mathematical statistics and molecular simulation used in the study of aerosol particle aggregation are summarized. Secondly, based on the implementation methods of aerosol particle aggregation simulation, the classifications and characteristics of aggregation models are described. In addition, the application of the aerosol particle aggregation model in optics, astrophysics, and dynamics is mentioned. The model optimization such as algorithm efficiency, simulation modes, and application errors reduction is analyzed. Finally, in view of the current application status and challenges faced by aerosol particle aggregation models, the trend of aggregation models is proposed, such as the construction of a non-spherical particle aggregation model, application of multi-factor coupled aggregation model and simulation of real-time spatial distribution of aggregation particles, etc.

Conclusions and Prospects In recent years, the aerosol particle aggregation models have been used in a variety of areas. The aerosol particle aggregation model can be used to simulate the visual procedure of particle aggregation, study the formation mechanism and aggregation dynamics of particles, and carry out an in-depth analysis of aggregation characteristics. The aerosol particle aggregation model is important to analyze dynamics, morphology and other properties of aggregates. These models can be used to explain the phenomena such as gas mixture explosions and comet polarization. It can also provide a means for the screening and controllable preparation of extinction materials. However, there are still some shortcomings. Firstly, the complex morphology and structures of non-spherical particles are an important part of simulating and analyzing more realistic aerosol particle applications. The aggregation model of randomly oriented non-spherical aerosol particles with controllable particle shape and size has not yet been established. Secondly, the analysis of the aggregation

mechanism of the model is relatively simple. To improve the accuracy of the simulation, the influence of multiple factors on the aggregation procedure needs to be considered. In addition, the simulation of real-time spatial distribution of the particles is acquired to further investigate in future. Therefore, the model can be optimized as followings. On the one hand, the aggregation models for of randomly oriented non-spherical aerosol particles can be analytically established. On the other hand, it can be revised in terms of multi-factor coupling and real-time spatial distribution of particles.

Key words: aerosol; aggregation model; aggregation mechanism; aggregation dynamics; model optimization

Funding projects: National Natural Science Foundation of China (62075241); Advanced Laser Technology Laboratory Foundation of Anhui Province of China (20191003)