

УДК: 519.6

Об однозначности идентификации параметров скорости реакции в модели горения

Г. В. Гренкин

Владивостокский государственный университет,
Россия, 690014, г. Владивосток, ул. Гоголя, д. 41

E-mail: glebgrenkin@gmail.com

Получено 25.09.2023.

Принято к публикации 04.10.2023.

Рассмотрена модель горения предварительно перемешанной смеси газов с одной глобальной химической реакцией, включающая в себя уравнения второго порядка относительно температуры смеси и концентраций топлива и окислителя, в правые части которых входит функция скорости реакции. Эта функция зависит от пяти неизвестных параметров глобальной реакции и служит приближением для многоступенчатого механизма реакций. Модель сводится к одному уравнению второго порядка относительно температуры смеси, которое после замены переменных преобразуется к уравнению первого порядка относительно производной температуры, зависящей от температуры, в которое входит параметр скорости распространения пламени. Таким образом, для вычисления параметра скорости распространения пламени необходимо решить задачу Дирихле для уравнения первого порядка, в результате чего получится модельная зависимость скорости распространения пламени от эквивалентного отношения смеси при заданных параметрах скорости реакции. При наличии экспериментальных данных зависимости скорости распространения пламени от эквивалентного отношения смеси ставится задача оптимального подбора параметров скорости реакции, исходя из минимизации среднеквадратичного отклонения модельных значений скорости распространения пламени от эксперимента. Целью работы является исследование однозначности решения этой задачи. Для этого применяется вычислительный эксперимент, в ходе которого решается задача глобального поиска оптимумов с помощью мультистарта градиентного спуска. В ходе вычислительного эксперимента выяснено, что обратная задача в такой постановке является недоопределенной, и всякий раз при запуске градиентного метода из новой точки получается новая предельная точка. Исследована структура множества предельных точек в пятимерном пространстве параметров и показано, что это множество может быть описано тремя линейными уравнениями. Таким образом, будет некорректным табулировать все пять параметров скорости реакции исходя из одного лишь критерия соответствия модели данным скорости распространения пламени. Вывод исследования заключается в том, что для корректного табулирования параметров необходимо указать значения двух из них исходя из дополнительных критериев оптимальности.

Ключевые слова: модель горения, обратная задача, метод наименьших квадратов, метод градиентного спуска, глобальная оптимизация

UDC: 519.6

On the uniqueness of identification of reaction rate parameters in a combustion model

G. V. Grenkin

Vladivostok State University,
41 Gogolya st., Vladivostok, 690014, Russia

E-mail: glebgrenkin@gmail.com

Received 25.09.2023.

Accepted for publication 04.10.2023.

A model of combustion of premixed mixture of gases with one global chemical reaction is considered, the model includes equations of the second order for temperature of mixture and concentrations of fuel and oxidizer, and the right-hand sides of these equations contain the reaction rate function. This function depends on five unknown parameters of the global reaction and serves as approximation to multistep reaction mechanism. The model is reduced, after replacement of variables, to one equation of the second order for temperature of mixture that transforms to a first-order equation for temperature derivative depending on temperature that contains a parameter of flame propagation velocity. Thus, for computing the parameter of burning velocity, one has to solve Dirichlet problem for first-order equation, and after that a model dependence of burning velocity on mixture equivalence ratio at specified reaction rate parameters will be obtained. Given the experimental data of dependence of burning velocity on mixture equivalence ratio, the problem of optimal selection of reaction rate parameters is stated, based on minimization of the mean square deviation of model values of burning velocity on experimental ones. The aim of our study is analysis of uniqueness of this problem solution. To this end, we apply computational experiment during which the problem of global search of optima is solved using multistart of gradient descent. The computational experiment clarifies that the inverse problem in this statement is underdetermined, and every time, when running gradient descent from a selected starting point, it converges to a new limit point. The structure of the set of limit points in the five-dimensional space is analyzed, and it is shown that this set can be described with three linear equations. Therefore, it might be incorrect to tabulate all five parameters of reaction rate based on just one match criterion between model and experimental data of flame propagation velocity. The conclusion of our study is that in order to tabulate reaction rate parameters correctly, it is necessary to specify the values of two of them, based on additional optimality criteria.

Keywords: combustion model, inverse problem, least squares method, gradient descent method, global optimization

Citation: *Computer Research and Modeling*, 2023, vol. 15, no. 6, pp. 1469–1476 (Russian).

Введение

Основная трудность в теоретическом описании процессов горения связана с большим числом элементарных химических реакций, участвующих в горении. В то же время ряд важных аспектов распространения фронта пламени может быть описан без детализации химических реакций, если принять, что процесс горения поддерживается одной глобальной химической реакцией. В таком случае в функцию скорости реакции иногда вводят обобщенные степенные параметры при концентрациях топлива и окислителя, отличные от стехиометрических. Помимо этих степенных параметров, подбирают значение коэффициента при всем выражении скорости реакции (предэкспонент), энергию активации, а также вводят в скорость реакции множитель со степенной зависимостью от температуры [Poinsot, Veynante, 2005, с. 56].

Естественно возникает проблема подбора пяти перечисленных параметров скорости реакции, чтобы наилучшим образом отразить физику процесса. Располагая данными скорости распространения пламени при различных значениях эквивалентного отношения смеси [Vagelopoulos, Egolfopoulos, 1998], сформулируем обратную экстремальную задачу: требуется найти такие значения параметров скорости реакции, при которых сумма квадратов отклонений расчетных значений скорости распространения пламени от эксперимента будет минимальной. В настоящей работе изучается возможность однозначного нахождения неизвестных параметров, что имеет значение для табулирования этих параметров с целью дальнейшего их использования в вычислительном моделировании горения [Gubernov, Babushok, Minaev, 2019].

В качестве метода решения поставленной проблемы выбран вычислительный эксперимент. Поскольку ставится вопрос о единственности решения обратной задачи, то численное исследование сводится к глобальному поиску решений. Будет показано, что, каждый раз выбирая новое начальное приближение для локального поиска, получается новая предельная точка. Оказывается, что множество предельных точек принадлежит некоторой гиперплоскости в пятимерном пространстве. Следовательно, аргументы целевой функции нельзя считать независимыми, а потому табулировать необходимо меньшее число параметров.

Проблема нахождения параметров уравнений, описывающих процесс горения, актуальна в связи с техническими приложениями. Соответствие эксперимента и модели с одной глобальной реакцией горения в аспекте скорости распространения пламени изучалось в [Westbrook, Dryer, 1981; Fernández-Tarrazo et al., 2006]. В работе [van Maaren, 1994] поставлена задача наименьших квадратов и изучен вопрос устойчивости нахождения параметров к вариациям экспериментальных данных, но не ставился вопрос нахождения множества параметров, при которых целевая функция остается малой. В недавней работе [Zakharov, Fursenko, Minaev, 2023] проводилось численное исследование сходных обратных задач для моделей горения с одной и несколькими химическими реакциями, однако множество решений оказалось нелинейным.

В общем случае нелинейная задача наименьших квадратов может иметь более одного локального минимума. В работе [Demidenko, 2006] предложен критерий глобальной минимальности. Отметим источники [Bjorck, 1996; Mohammad, Waziri, Santos, 2019], посвященные алгоритмам решения нелинейных задач наименьших квадратов, и статью [Shary, Moradi, 2021], в которой решается линейная задача наименьших квадратов интервальным методом.

Постановка задачи

Вычисление скорости распространения пламени в модели горения предварительно перемешанной смеси топлива и воздуха, заполняющей одномерную область, сводится к нахождению неизвестного коэффициента уравнений второго порядка для концентрации топлива, концентрации кислорода и температуры с граничными условиями на бесконечности, в которых на обоих

концах температура задана вместе со своей производной. Указанная задача сводится к нахождению параметра u из следующей краевой задачи [Канель, 1962; Grenkin et al., 2018]:

$$\frac{dp}{dT} = u - \frac{U(T)}{p}, \quad p(T_0) = p(T_b) = 0,$$

где T_0 — температура свежей смеси, T_b — температура сгоревшей смеси, $p = \frac{dT}{d\xi}$, ξ — вспомогательная переменная [Poinsot, Veynante, 2005, с. 44]. Функция $U(T)$ определяется через функцию скорости реакции

$$W(Y_f, Y_o, T) = \rho A T^n Y_f^\alpha Y_o^\beta \left[\exp\left(-\frac{E}{RT}\right) - \exp\left(-\frac{E}{RT_0}\right) \right],$$

где ρ — плотность смеси, Y_f, Y_o — концентрация топлива и окислителя, соотношение между которыми выражается через эквивалентное отношение ϕ .

Рассмотрим задачу нахождения параметров A (предэкспонент), E (энергия активации), α, β (обобщенные коэффициенты глобальной реакции) и n (степенной параметр при температуре), при которых сумма (по набору эквивалентных отношений ϕ_i) квадратов отклонений найденной из модели скорости распространения пламени от заданных экспериментальных данных будет наименьшей. Вектор из пяти параметров будем обозначать как $X = (A, E, \alpha, \beta, n)$.

Обозначим через $u_i(X)$ функцию скорости распространения пламени при i -м значении эквивалентного отношения ($\phi = \phi_i$) от параметров, через v_i — соответствующие данные эксперимента. Составим целевую функцию метода наименьших квадратов:

$$F(X) = \sum_{i=1}^m (u_i(X) - v_i)^2 \rightarrow \min_X.$$

Перейдем к новым переменным $x_1 = \ln A$, $x_2 = -\frac{E}{R}$, $x_3 = -\alpha$, $x_4 = -\beta$, $x_5 = n$ и обозначим через $x = (x_1, x_2, x_3, x_4, x_5)$ вектор независимых переменных, $f(x)$ — целевая функция в новых переменных. Необходимое условие минимума функции f в точке x имеет вид

$$\frac{\partial f(x)}{\partial x_j} = 2 \sum_{i=1}^m (u_i(x) - v_i) \frac{\partial u_i(x)}{\partial x_j} = 0, \quad j = 1, \dots, 5.$$

В дальнейшем при оценке величины производной на определенном диапазоне изменения аргументов мы можем полагать, основываясь на результатах вычислительного эксперимента, что все частные производные $\frac{\partial u_i}{\partial x_j}$ положительны и все вторые частные производные $\frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_k}$ также положительны.

Метод глобального поиска

Предположим, что множество локальных оптимумов экстремальной задачи

$$f(x) = \sum_{i=1}^m (u_i(x) - v_i)^2 \rightarrow \min_x$$

является конечным. Для нахождения всех точек локального минимума функции f разработан метод ветвей и границ. Следующий вариант этого метода описан в [Hansen, Walster, 1992, с. 307]. Ставится задача поиска всех оптимумов, принадлежащих некоторому прямоугольному диапазону. На этом диапазоне производится оценка значения целевой функции и ее производных. Если

производная не меняет знак или если нижняя оценка целевой функции превосходит текущий минимум, то этот параллелепипед не содержит глобального минимума, а потому исключается из дальнейшего рассмотрения. Иначе диапазон разбивается на части, и описанная процедура повторяется для каждой из частей.

В силу трудоемкости описанного алгоритма сформулируем метод, основанный на локальном поиске. Рассмотрим метод градиентного спуска с переменной метрикой [Коннов, 2013, с. 74], который является одномерным вариантом метода Гаусса – Ньютона:

$$x_j^{(k+1)} = x_j^{(k)} - \frac{\lambda_k}{d_j(x^{(k)})} \frac{\partial f(x^{(k)})}{\partial x_j}, \quad \text{где} \quad \frac{\partial^2 f(x)}{\partial x_j^2} \approx d_j(x) = 2 \sum_{i=1}^m \left(\frac{\partial u_i(x)}{\partial x_j} \right)^2$$

и λ_k – шаг градиентного метода, который подбирается адаптивно.

Выберем начальную точку $x = a$ и запустим из нее указанный метод локального поиска, и пусть он пришел в точку $x = b$. Примем такое допущение: будем считать, что прямоугольный диапазон $[a, b]$ не содержит более сильных локальных минимумов, чем точка $x = b$. Исходя из этого, весь диапазон $[a, b]$ будет исключен из дальнейшего рассмотрения.

Аргументы в пользу нашего допущения таковы: предполагая, что изменение функции f между двумя точками оценивается через расстояние между ними, можно утверждать, что, поскольку точки внутри диапазона удалены от точки a меньше, чем точка b , разность $f(a) - f(c)$ не превзойдет разности $f(a) - f(b)$ для любой точки c , принадлежащей диапазону. Если оценить расстояние между поверхностями уровня функции $\sigma = \sqrt{\frac{L}{m}}$, то можно считать, что это расстояние примерно пропорционально разности значений функции на этих поверхностях, то есть функция σ изменяется почти равномерно. Это означает, что если предположить существование более сильного минимума в параллелепипеде между начальной и конечной точками градиентного спуска (который движется перпендикулярно поверхностям уровня в преобразованных переменных $y_j = x_j \sqrt{d_j}$), то расстояние от этого минимума до начальной точки должно быть больше, чем расстояние между углами рассматриваемого параллелепипеда, – противоречие.

Таким образом, запуская итерационный метод из всех углов заданного параллелепипеда, найдем множество предельных точек. Если предельная точка оказалась одна и та же для всех углов, выбранных в качестве начальной точки, то, по нашему допущению, весь параллелепипед считаем полностью обработанным. Иначе находим разность исходного параллелепипеда и его частей, отброшенных нашим алгоритмом, и повторяем процедуру для оставшихся прямоугольных частей.

Вычислительные эксперименты

Возьмем экспериментальные данные скорости горения метана. Выберем параллелепипед, на котором мы ищем глобальный минимум, и запустим алгоритм градиентного спуска из всех углов параллелепипеда. В результате не удалось найти однозначную предельную точку для всех начальных приближений, и каждый раз алгоритм сходится к новой точке. Ознакомиться с результатами вычислительных экспериментов можно на сайте <http://github.com/grenkin/flame-speed>.

Проанализируем полученные данные – попытаемся найти множество, которому принадлежат предельные точки. Для этого применим метод наименьших квадратов для аппроксимации наших точек линейной зависимостью. В результате получаем устойчивую зависимость

$$c_1 x_1 + c_2 x_2 + c_3 x_3 + c_4 x_4 + c_5 x_5 = 1, \quad (1)$$

где $c_1 = 0,171$, $c_2 = 0,0000882$, $c_3 = 0,833$, $c_4 = 0,655$, $c_5 = 1,298$.

Изучим величину диапазона значений переменных, при котором значение целевой функции близко к минимуму. Зафиксируем пороговое значение $\sigma \leq 0,02$, которое соответствует минимуму с точностью до 0,001 м/с. Выберем значения $\alpha = 0,146$ и $\beta = 0,451$ и построим график функции $\sigma(x)$, где параметр $n = x_5$ определяется из соотношения (1).

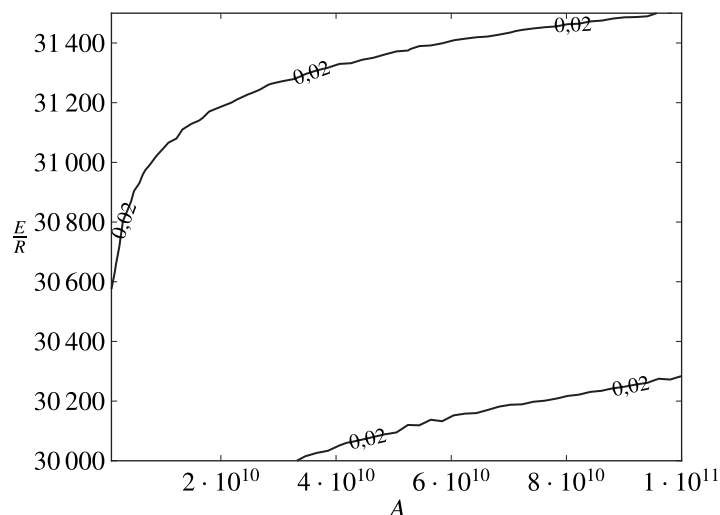


Рис. 1. График функции $\sigma(x)$ при $\alpha = 0,146$, $\beta = 0,451$ и $n = x_5$ из (1)

На рис. 1 видно, что множество значений параметров A и $\frac{E}{R}$ со значениями $\sigma \leq 0,02$ занимает значительную область — однозначно выбрать эти параметры не представляется возможным.

Теперь зафиксируем параметры $A = 827\,609\,000$ и $\frac{E}{R} = 30\,243$ и аналогичным образом построим график функции $\sigma(x)$ в зависимости от параметров α и β (рис. 2).

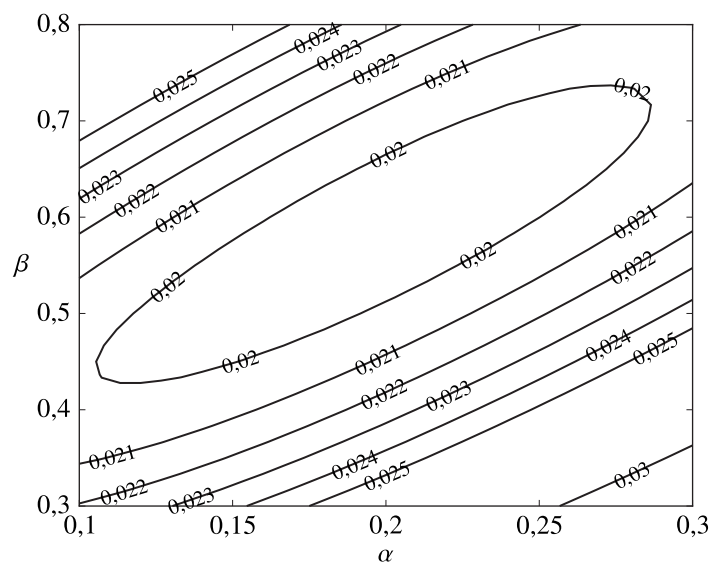
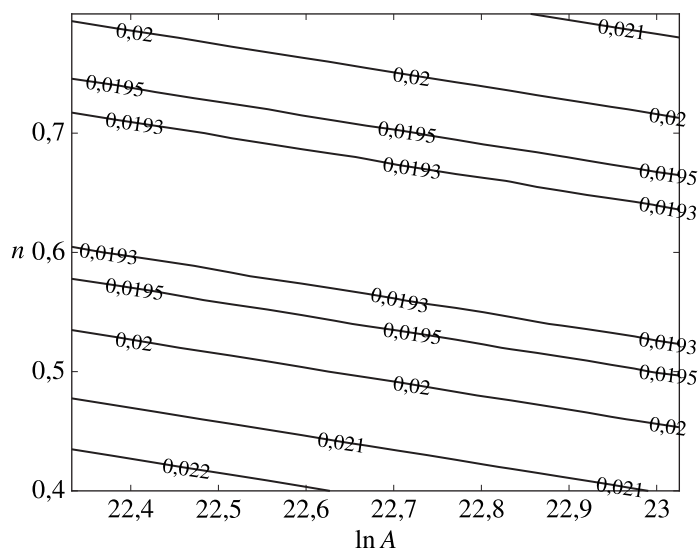


Рис. 2. График функции $\sigma(x)$ при $A = 827\,609\,000$, $\frac{E}{R} = 30\,243$ и $n = x_5$ из (1)

Видно, что параметры α и β не получается выбрать точно: существует область с разбросом порядка 0,2 по каждому параметру, внутри которой целевая функция достаточно близка к минимуму.

Наконец, выберем параметры $\alpha = 0,3$ и $\beta = 0,8$ и построим график функции $\sigma(x)$ в зависимости от A и n , найдя параметр $\frac{E}{R}$ из соотношения (1); см. рис. 3.

Рис. 3. График функции $\sigma(x)$ при $\alpha = 0,3$, $\beta = 0,8$ и $\frac{E}{R} = x_2$ из (1)

Итак, мы выяснили, что множество оптимальных решений экстремальной задачи состоит из точек, зависящих от четырех свободных переменных. Проведем дополнительный эксперимент, чтобы выяснить, можно ли сузить найденное множество (гиперплоскость), которому с высокой точностью принадлежат все предельные точки, до пересечения гиперплоскостей. Найдем глобальные минимумы функции $f(x_1, x_2, x_3, x_4, g(x_1, x_2, x_3, x_4))$, где g дает решение уравнения (1) относительно переменной x_5 .

В результате снова получили, что предельные точки лежат на гиперплоскости

$$c'_1 x_1 + c'_2 x_2 + c'_3 x_3 + c'_4 x_4 = 1, \quad (2)$$

где $c'_1 = -0,0172$, $c'_2 = -0,000126$, $c'_3 = -17,2$, $c'_4 = 9,95$. Отсюда делаем вывод, что множество оптимальных решений содержит три свободные переменные.

Наконец, выразим из соотношения (2) переменную x_1 и решим задачу глобального поиска минимума целевой функции, зависящей от трех свободных переменных — x_2, x_3, x_4 . Здесь алгоритм также нашел существенно различные точки со значениями целевой функции, близкой к минимуму. Координаты точек удовлетворяют соотношению

$$c''_2 x_2 + c''_3 x_3 + c''_4 x_4 = 1, \quad (3)$$

где $c''_2 = 8 \cdot 10^{-5}$, $c''_3 = 27,6$, $c''_4 = -14,8$. Следовательно, число свободных переменных, описывающих множество оптимальных решений, можно считать равным двум. С практической точки зрения это означает, что из пяти неизвестных параметров следует оставить два, которые будут вычисляться как решение задачи наименьших квадратов.

На практике некоторые параметры могут быть известны, и тогда может возникнуть задача выбора оставшихся параметров, наилучшим образом соответствующих данным скорости распространения пламени. Допустим, что известно значение $\frac{E}{R} = 31\,000$ и степенной зависимостью скорости реакции от температуры решили пренебречь, приняв $n = 0$. Тогда из уравнений (1)–(3) найдем остальные параметры: $A = 3,1 \cdot 10^{10}$, $\alpha = 0,12$, $\beta = 0,45$. Оптимизационный метод, запущенный из этой точки, выдал точку с координатами, мало отличающимися от начальных. Тем самым показано, что уравнения связи между координатами x_i можно использовать для нахождения недостающих параметров скорости реакции.

Выводы

Из проведенных вычислительных экспериментов можно сделать важный вывод: решением задачи идентификации параметров скорости реакции недопустимо считать единственную пятерку чисел, если отталкиваться от одного лишь среднеквадратичного критерия по отношению к данным скорости распространения пламени. Использование данного критерия приводит к неоднозначности восстановления параметров, поскольку экстремальная задача является недоопределенной. Это означает, что для выбора наиболее подходящего набора параметров нужна дополнительная информация: либо должны быть известны некоторые параметры, либо должен быть определен дополнительный критерий оптимальности.

Дальнейшие исследования данной проблемы могут быть направлены на теоретическое объяснение линейности множества решений обратной экстремальной задачи.

Список литературы (References)

- Канель Я. И.* О стабилизации решений задачи Коши для уравнений, встречающихся в теории горения // Матем. сб. — 1962. — Т. 59 (101) (дополнительный). — С. 245–288.
Kanel Ya. I. O stabilizatsii resheniy zadachi Koshi dlya uravneniy, vstrechayuschikhsya v teorii gorenija [Stabilization of solutions of the Cauchy problem for equations encountered in combustion theory] // Mat. sb. (N.S.). — 1962. — Vol. 59 (101) (supplementary). — P. 245–288 (in Russian).
- Коннов И. В.* Нелинейная оптимизация и вариационные неравенства. — Казань: Казан. ун-т, 2013.
Konnov I. V. Nelineynaya optimizatsiya i variatsionnye neravenstva [Nonlinear optimization and variational inequalities]. — Kazan, 2013 (in Russian).
- Bjorck A.* Numerical methods for least squares problems. — SIAM, 1996.
- Demidenko E.* Criteria for global minimum of sum of squares in nonlinear regression // Comput. Stat. Data Anal. — 2006. — Vol. 51, No. 3. — P. 1739–1753.
- Fernández-Tarrazo E., Sánchez A. L., Liñán A., Williams F. A.* A simple one-step chemistry model for partially premixed hydrocarbon combustion // Combustion and Flame. — 2006. — Vol. 147, No. 1–2. — P. 32–38.
- Grenkin G. V., Chebotarev A. Yu., Babushok V. I., Minaev S. S.* Determination of global kinetic parameters by optimization procedure using burning velocity measurements // Math. Model. Nat. Phenom. — 2018. — Vol. 13, No. 6. — P. 50.
- Gubernov V. V., Babushok V. I., Minaev S. S.* Phenomenological model of chain-branching premixed flames // Combustion Theory and Modelling. — 2019. — Vol. 23, No. 2. — P. 261–278.
- Hansen E., Walster G. W.* Global optimization using interval analysis. — Marcel Dekker, 1992.
- van Maaren A.* One-step chemical reaction parameters for premixed laminar flames. — 1994.
- Mohammad H., Waziri M. Y., Santos S. A.* A brief survey of methods for solving nonlinear least-squares problems // Numer. Algebra Control Optim. — 2019. — Vol. 9, No. 1. — P. 1.
- Poinsot T., Veynante D.* Theoretical and numerical combustion. — Edwards, 2005.
- Shary S. P., Moradi B.* Solving interval linear least squares problems by PPS-methods // Numer. Algorithms. — 2021. — Vol. 87, No. 1. — P. 41–75.
- Vagelopoulos C. M., Egolfopoulos F. N.* Direct experimental determination of laminar flame speeds // Symposium (International) on Combustion. — 1998. — Vol. 27. — P. 513–519.
- Westbrook C. K., Dryer F. L.* Simplified reaction mechanisms for the oxidation of hydrocarbon fuels in flames // Combustion science and technology. — 1981. — Vol. 27, No. 1–2. — P. 31–43.
- Zakharov A. D., Fursenko R. V., Minaev S. S.* Optimisation method for automatic selection of rate constants of global reaction mechanisms // Combustion Theory and Modelling. — 2023. — Vol. 27, No. 2. — P. 153–167.