

На правах рукописи



Григорьев Василий Васильевич

Вычислительная идентификация скоростей поверхностных реакций в масштабе пор

Специальность: 1.2.2. Математическое моделирование,
численные методы и комплексы программ

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Якутск – 2022

Работа выполнена на кафедре «Вычислительные технологии» Института математики и информатики ФГАОУ ВО «Северо-Восточного федерального университета имени М.К. Аммосова».

Научный руководитель: **Вабищевич Петр Николаевич**
доктор физико-математических наук, профессор

Официальные оппоненты: **Колдоба Александр Васильевич**,
доктор физико-математических наук, заведующий кафедрой моделирования и технологий разработки нефтяных месторождений Московского физико-технического института (национальный исследовательский университет), г. Москва

Тихонов Роман Семенович,
кандидат технических наук, старший научный сотрудник Института проблем нефти и газа СО РАН, г. Якутск

Ведущая организация: ФГБУН Институт вычислительной математики и математической геофизики СО РАН, г. Новосибирск

Защита состоится «6» сентября 2022 г. в «15:00» часов на заседании диссертационного совета 24.2.396.02 при СВФУ им М.К. Аммосова по адресу:
677000, г. Якутск, ул. Кулаковского, 42, ауд. 237.

С диссертацией можно ознакомиться в Научной библиотеке СВФУ им. М.К. Аммосова, 677000, г. Якутск, ул. Белинского, д. 58 и на сайте университета по адресу:

<https://www.s-vfu.ru/upload/iblock/d8d/d8d1195a53a90d2e4748805dc181b7d8.pdf>

Автореферат разослан «___» _____ 2022 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
к. ф.-м. н.



Степанов С.П.

Общая характеристика работы

Актуальность работы. Понимание явлений и механизмов переноса внутри пористых сред имеет решающее значение для оптимизации структур материалов, контроля протекающих процессов и улучшения характеристик. Моделирование в масштабе пор играет все более важную роль в понимании процессов переноса в пористой среде. Оно может обеспечить детальное описание связанных переменных (скорость, давление, температура, концентрация и т. д.), которые трудно измерить экспериментальными методами. Реагирующим потоком называют течения, в которых происходят химические реакции. Реагирующий перенос в пористых средах широко распространен в научных и инженерных областях и является важным компонентом многих промышленных и экологических проблем: очистка воды и воздуха от примесей, загрязнение почвы и рекультивация, каталитические фильтры, опреснение морской воды, добыча нефти и так далее. Во всех упомянутых промышленных процессах адсорбции крайне важно знать адсорбционную способность адсорбента и кинетику процесса. Каталитические системы работают по принципу поверхностных реакций, разлагая вредные соединения на более простые и менее опасные для человека. Такие фильтры обычно покрыты оксидами палладия, титана и т.д. (зависит от того, что необходимо очищать: выхлопные газы, воздух) для увеличения площади рабочего контакта, следовательно, имеют микромасштабную структуру.

Стандартный подход моделирования сегодня явно не рассматривает микроструктуру пористых сред, а использует приближенные однородные модели, которые представляют микромасштабную структуру с точки зрения усредненных по объему величин. В этом усредненном подходе микромасштабные эффекты обычно включаются в эффективные усредненные по объему коэффициенты диффузии и скорости реакций. Хотя эти однородные описания микромасштабов часто являются успешными и достаточными, при описании поведения, например, химического реактора в более мелком масштабе, учитывающем микроструктуру катализатора, требуется применение математических моделей, которые явно разрешают масштаб пор. Для получения надежных кинетических данных, в нашем случае скорости поверхностных реакций, необходимо очень точно контролировать условия реакции в экспериментальных установках. Случайные ошибки в экспериментальных измерениях, особенно

с небольшим набором данных, также могут оказывать существенное влияние на результаты. Также природные неоднородности самого объекта могут влиять на результат экспериментальных исследований. Расчетные методы могут помочь уточнить кинетические данные.

Цель диссертационной работы состоит в разработке вычислительных алгоритмов для численного решения многомерных задач идентификации параметров поверхностной реакции реагирующего потока в пористых средах в масштабе пор. Необходимо исследовать влияние шума в экспериментальных данных на точность определяемых параметров, количественно оценить неопределенности. Заявленная цель достигается решением следующих задач:

- Разработка программного обеспечения для генерации вычислительных сеток синтетической пористой среды для двумерной и трехмерной задачи;
- Решение прямой задачи массопереноса реагирующего потока в пористой среде;
- Вычислительная реализация детерминированного, статистического и стохастического подходов идентификации неизвестных скоростей адсорбции и десорбции в масштабе пор;
- Разработка вычислительного алгоритма по определению области допустимых значений параметров гетерогенных реакций.

Научная новизна и практическая значимость. Научная новизна полученных результатов заключается в следующем:

- Разработаны вычислительные алгоритмы идентификации параметров адсорбции и десорбции в масштабе пор с учетом влияния шума в экспериментальных данных на основе оценки области допустимых значений параметров через заданный порог. Сам порог определяется через априорную оценку значения функционала невязки с учетом дисперсии шума в экспериментальных данных;
- Дана Байесовская оценка ключевых параметров изотермы реакции для реагирующего потока через доверительный интервал при наличии одного или нескольких наборов экспериментальных данных с разными амплитудами шума;
- Предложена модификация метаэвристического алгоритма, адаптированная для задач реагирующего потока в масштабе пор для эффек-

тивного решения обратной задачи идентификации параметров поверхностной реакции.

Разработанные подходы имеют практическую значимость в исследовании новых сорбентов в промышленности и могут быть применены не только в средах со случайным расположением адсорбентов, но и при обработке изображений полученных с помощью компьютерной томографии от реальных объектов.

Методология и методы исследования. Разработка вычислительных алгоритмов проведена на основе современных вычислительных технологий. Дискретизация по пространству проводится методом конечных элементов на неструктурированной расчетной сетке, при дискретизации по времени используется разностная схема второго порядка точности (схема Кранка-Николсон). Для проверки вычислительных алгоритмов были сгенерированы синтетические экспериментальные данные кривой прорыва (средней концентрации раствора проходящего через границу выхода) с разными амплитудами шума для исследования их влияния на процесс идентификации. Исследование проведено на основе идеализированной геометрии пористой среды в виде периодических включений. Для построения расчетной области с последующей генерацией вычислительной сетки используется собственная программа для ЭВМ основанная на свободном программном обеспечении Gmsh. Исследовательский программный комплекс реализован на языке программирования Python с использованием вычислительной платформы с открытым исходным кодом FEniCS.

Положения, выносимые на защиту:

- Вычислительная идентификация параметров скоростей поверхностной реакции при массопереносе в пористой среде на основе наблюдения кривых проскока. Оценены возможности детерминированного, стохастического и многоступенчатых подходов на двумерных задачах. Вычислительные алгоритмы адаптированы к выделению области допустимых параметров, вместо нахождения одного вектора параметров;
- Байесовский подход к идентификации параметров скоростей поверхностной реакции при массопереносе в пористой среде с использованием выборки полученной методом Монте-Карло на цепи Маркова. Выполнено сравнение двух алгоритмов построения выборки: Метро-

полис-Гастингс и Адаптивный Метрополис через функции автокорреляции, скорости приема и доверительные интервалы. Область допустимых параметров определяется через доверительный интервал и дается количественная оценка неопределенности, возникающей из экспериментальных данных с гауссовским шумом;

- Модификация метаэвристического алгоритма стандартной пчелиной колонии (Standard Bees Algorithm, SBA) под названием модифицированный алгоритм пчелиной колонии (Modified Bee Colony, MBC) и её применение для задачи идентификации параметров скоростей реакции массопереноса в пористой среде. Отдельно рассмотрены случаи преобладания реакции и преобладания диффузии. Выполнен статистический сравнительный анализ с двумя пчелиными метаэвристическими алгоритмами: с оригинальным алгоритмом стандартной пчелиной колонии (Standard Bees Algorithm, SBA) и искусственной пчелиной колонией (Artificial Bee Colony, ABC).

Обоснованность и достоверность результатов обеспечена использованием корректно построенных математических моделей, подтверждена вычислительными экспериментами, которые приближены к реальным, а также путем сравнения результатов, полученных с использованием предлагаемых методов, с результатами прямого численного моделирования методом конечных элементов на эталонной сетке.

Апробация работы. Основные результаты диссертации докладывались на следующих конференциях:

- XII Международная конференция "Large-Scale Scientific Computing", Созополь, Болгария, 10.06.2019 – 14.06.2019;
- Международная конференция "Multiscale and high-performance computing for multiphysical problems", Якутск, Россия, 24.06.2019 - 25.06.2019;
- Международная конференция "Multiscale and high-performance computing", Сочи, Россия, 08.09.2020 - 13.09.2020;
- Международная конференция "Multiscale and high-performance computing for multiphysical problems", Якутск, Россия, 07.12.2020;
- Международная конференция "Mathematical Modeling, Inverse Problems and Big Data", Якутск, Россия, 18.07.2021-25.07.2021.

Публикации. По теме диссертации опубликованы 4 научные работы в международных научных изданиях, включенных в систему цитирования Web of Science и Scopus [1, 2, 3, 4], получено свидетельство о государственной регистрации программ для ЭВМ [5].

Личный вклад автора. В работах опубликованных в соавторстве, личный вклад диссертанта состоит в следующем: в работе [1] разработал и реализовал стохастический и статистический методы идентификации параметров; в работе [2] принял участие в численной реализации математической модели, провел расчеты и анализ результатов вычислительных экспериментов; в работах [3, 4] выполнил выбор рассматриваемых методов идентификации параметров, обеспечил численную реализацию, провел расчеты и анализ результатов вычислительных экспериментов; в работе [5] руководил разработкой и написал алгоритмическую часть. Подготовка к опубликованию полученных результатов проводилась совместно с соавторами.

Структура и объем диссертации. Работа состоит из введения, четырех глав, заключения и списка литературы. Общий объем диссертационной работы составляет 142 страницы, содержит 45 иллюстраций, 11 таблиц и 3 алгоритма. Список литературы содержит 177 наименований.

Работа была поддержана Мегагрантом Правительства РФ 14.Y26.31.0013, грантом РФФИ 19-31-90108.

Содержание работы

Во **введении** обоснована актуальность исследуемой задачи, сформулирована цель работы, поставлены задачи, которые необходимо решить для достижения поставленной цели. Дается краткое содержание диссертации по главам.

В **первой главе** рассмотрен двумерный перенос растворенного вещества в масштабе пор с учетом поверхностных реакций, а именно, адсорбции и десорбции. Реализована математическая модель для описания процессов адсорбции и десорбции в масштабе пор при очистке жидкости.

Вычислительная область (см. Рис. 1) состоит из периодически расположенных включений, которые играют роль адсорбентов. Течение в порах часто медленное, поэтому оно описывается стационарными уравнениями Стокса для

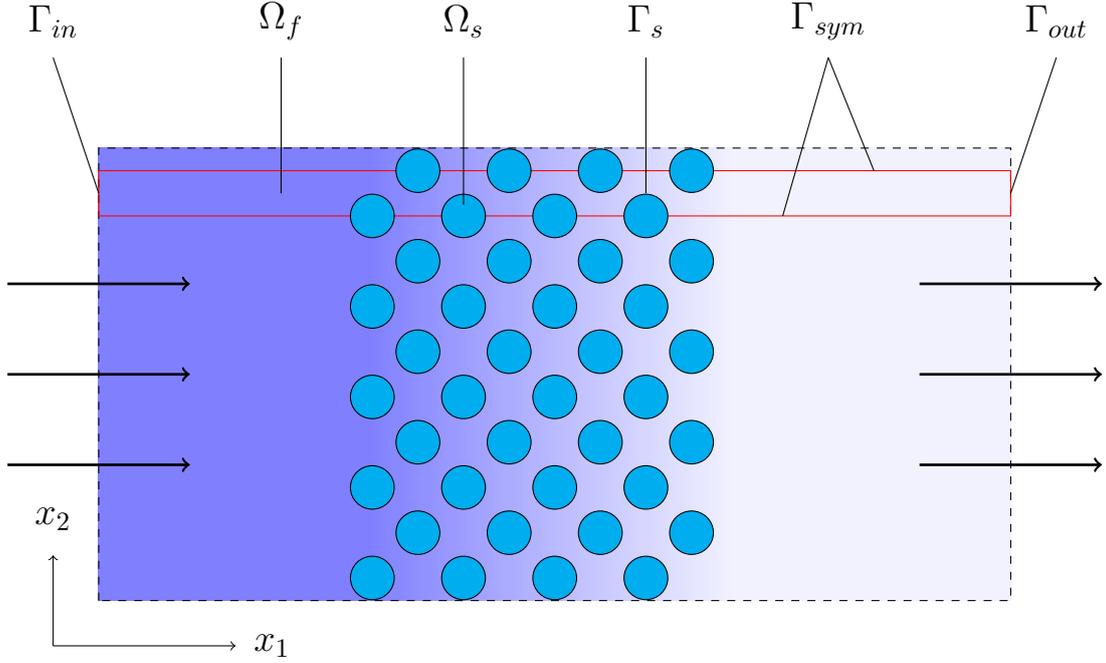


Рис. 1: Эскиз области в масштабе пор

несжимаемой жидкости:

$$\nabla p - \mu \nabla^2 \mathbf{u} = 0, \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Omega_f, \quad (2)$$

где $\mathbf{u}(\mathbf{x})$ и $p(\mathbf{x})$ — скорость жидкости и давление, соответственно, а μ является динамической вязкостью, которая предполагается постоянной.

Обозначим через \mathbf{n} вектор внешней нормали к границе, через $\boldsymbol{\sigma}$ тензор вязких напряжений, который выглядит следующим образом

$$\boldsymbol{\sigma} = \mu (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)$$

и сформулируем граничные условия на $\partial\Omega_f$. Скорость жидкости на входе \bar{u} задается следующим образом:

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = \bar{u}, \quad \mathbf{u} \times \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{in}. \quad (3)$$

На выходе задано отсутствие нормальной и касательной силы:

$$p - \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} \times \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{out}. \quad (4)$$

На стенках включений заданы стандартные условия твердых стенок:

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{u} \times \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_s. \quad (5)$$

На границе симметрии расчетной области заданы условия симметрии:

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} \times \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{sim}. \quad (6)$$

Концентрация растворенного вещества в жидкости обозначается как $c(\mathbf{x}, t)$. Нестационарный перенос растворенного вещества для гетерогенной реакции описывается уравнением конвекции-диффузии:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla(\mathbf{u}c) - D\nabla^2 c = 0, \quad \mathbf{x} \in \Omega_f, \quad t > 0, \quad (7)$$

где $D > 0$ — коэффициент диффузии растворенного вещества, который считается скалярным и постоянным.

Предполагается, что концентрация растворенного вещества на входе $\bar{c} > 0$ известна:

$$c(\mathbf{x}, t) = \bar{c}, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{in}. \quad (8)$$

Нулевой диффузионный поток растворенного вещества на выходе и на внешних границах области (только конвективный перенос) задается следующим образом:

$$D\nabla c \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{sim} \cup \Gamma_{out}. \quad (9)$$

Сам конвективный поток через выход разрешен неявно приведенными выше уравнениями. Поверхностные реакции, которые происходят на поверхности включений Γ_s , удовлетворяют закону сохранения массы. В данном конкретном случае это означает, что изменение адсорбированной поверхностной концентрации равно потоку от жидкости к поверхности. Массовый баланс на поверхности описывается как

$$\frac{\partial m}{\partial t} = -D\nabla c \cdot \mathbf{n}, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_s, \quad (10)$$

где m — это поверхностная концентрация адсорбированного растворенного вещества. Используется смешанное кинетико-диффузионное описание адсорб-

ции:

$$\frac{\partial m}{\partial t} = f(c, m). \quad (11)$$

Для описания гетерогенной реакции выбор зависимости f от c и m имеет решающее значение для моделирования динамики реакции на границе "твердое тело – жидкость". Для описания этой динамики существует ряд различных изотерм (различных функций $f(c, m)$), в зависимости от свойств растворенного вещества, порядка реакции и типа интерфейса.

Простейшим из них является изотерма Генри, которая предполагает линейную зависимость между приповерхностной концентрацией и поверхностной концентрацией адсорбированных частиц и имеет вид:

$$f(c, m) = k_a c - k_d m, \quad (12)$$

где $k_a \geq 0$ – скорость адсорбции, измеренная на единицу длины в единицу времени, и $k_d \geq 0$ – скорость десорбции, измеренная в единицу времени. Изотерма адсорбции Ленгмюра представляет собой более сложную трехпараметрическую модель:

$$f(c, m) = k_a c \left(1 - \frac{m}{m_\infty} \right) - k_d m, \quad (13)$$

где $m_\infty > 0$ – максимально возможная адсорбированная поверхностная концентрация. По сравнению с изотермой Генри (12), изотерма Ленгмюра (13) предсказывает снижение скорости адсорбции по мере увеличения адсорбированной концентрации из-за уменьшения доступной адсорбционной поверхности.

Постановка начально–краевой задачи (в дополнение к основным уравнениям (1), (2), (7), граничным условиям (3)–(6), (8)–(11) и заданной изотерме (12) или (13)) требует задания начальных условий:

$$c(\mathbf{x}, 0) = c_0(\mathbf{x}), \quad \mathbf{x} \in \Omega_f, \quad (14)$$

$$m(\mathbf{x}, 0) = m_0(\mathbf{x}), \quad \mathbf{x} \in \Gamma_s. \quad (15)$$

Когда задача подобная описанной выше должна быть решена для ряда параметров, неоспоримые преимущества дает работа с безразмерной фор-

мой уравнений. Для безразмерных переменных (скорость, давление, концентрация) ниже используются те же обозначения, что и для размерных. Высота расчетной области Ω_f , а именно l , используется для масштабирования пространственных размеров, масштабирование скорости выполняется входной скоростью \bar{u} , а масштабирование концентрации выполняется по входной концентрации \bar{c} .

Уравнения Стокса (3) и граничные условия для него в безразмерном формате записываются относительно безразмерной скорости и давления:

$$\nabla p - \nabla^2 \mathbf{u} = 0, \quad (16)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Omega_f. \quad (17)$$

при выборе масштаба давления

$$\bar{p} = \frac{\mu \bar{u}}{l}.$$

В безразмерном виде тензор вязких напряжений преобразуется в

$$\boldsymbol{\sigma} = \nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T.$$

Граничное условие (3) дает

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 1, \quad \mathbf{u} \times \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{in}, \quad (18)$$

а граничное условие (4) принимает вид

$$p - \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} \times \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{out}. \quad (19)$$

Граничные условия (5) и (6) остаются неизменными:

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{u} \times \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_s, \quad (20)$$

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} \times \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{sim}. \quad (21)$$

В безразмерной форме уравнение (7) принимает следующий вид:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla(\mathbf{u}c) - \frac{1}{\text{Pe}} \nabla^2 c = 0, \quad \mathbf{x} \in \Omega_f, \quad t > 0, \quad (22)$$

где

$$\text{Pe} = \frac{l\bar{u}}{D}$$

является числом Пекле.

Далее граничное условие (8) преобразуется в

$$c = 1, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{in}, \quad (23)$$

а граничное условие (9) принимает вид

$$\nabla c \cdot \mathbf{n} = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_{sim} \cup \Gamma_{out}. \quad (24)$$

Безразмерный вид уравнения (10) дается выражением

$$\frac{\partial m}{\partial t} = -\nabla c \cdot \mathbf{n}, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_s, \quad (25)$$

где m масштабируется следующим образом:

$$\bar{m} = l\bar{c}.$$

В безразмерном виде адсорбционные соотношения, в случае изотермы Генри записываются следующим образом:

$$\frac{\partial m}{\partial t} = \text{Da}_a c - \text{Da}_d m, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_s, \quad (26)$$

где адсорбционные и десорбционные числа Дамколера выражаются как

$$\text{Da}_a = \frac{k_a}{\bar{u}}, \quad \text{Da}_d = \frac{k_d l}{\bar{u}}.$$

В случае, когда мы рассматриваем изотерму Ленгмюра, (11), (13), используется следующее безразмерное соотношение

$$\frac{\partial m}{\partial t} = \text{Da}_a c \left(1 - \frac{m}{M}\right) - \text{Da}_d m, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_s, \quad (27)$$

где безразмерный параметр M определяется выражением

$$M = \frac{m_\infty}{l\bar{c}}.$$

Перед построением конечно-элементной аппроксимации все уравнения необходимо привести к вариационному виду. Для этого определим стандартное гильбертово пространство скалярных функций $L_2(\Omega)$ со скалярным произведением и нормой:

$$(u, v) = \int_{\Omega} u(\mathbf{x})v(\mathbf{x})dx, \quad \|u\| = (u, u)^{1/2}.$$

Определим соответствующее пространство векторных функций $\mathbf{L}_2(\Omega) = (L_2(\Omega))^2$. Далее определим пространства Соболева первого порядка $H^1(\Omega)$ для скалярных функций и $\mathbf{H}^1(\Omega)$ для векторных функций, необходимых для построения вариационной формулировки нашей задачи.

В нашей работе рассматривается односторонняя связь. Поток жидкости влияет на перенос веществ, но нет обратного влияния концентрации веществ на поток жидкости. Конечно-элементная аппроксимация стационарной задачи обтекания основана на вариационной формулировке рассматриваемой краевой задачи (1)–(6). Следующее функциональное пространство \mathbf{V} определено для скорости \mathbf{u} ($\mathbf{u} \in \mathbf{V}$):

$$\mathbf{V} = \{\mathbf{u} \in \mathbf{H}^1(\Omega) : \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 1, \mathbf{u} \times \mathbf{n} = 0 \text{ на } \Gamma_{in}, \\ \mathbf{u} = 0 \text{ на } \Gamma_s, \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0 \text{ на } \Gamma_{sym}\}.$$

Тестовая функция $\mathbf{v} \in \hat{\mathbf{V}}$, где

$$\hat{\mathbf{V}} = \{\mathbf{v} \in \mathbf{H}^1(\Omega_f) : \mathbf{v} = 0 \text{ на } \Gamma_{in}, \mathbf{v} = 0 \text{ на } \Gamma_s, \mathbf{v} \cdot \mathbf{n} = 0 \text{ на } \Gamma_{sym}\}.$$

Для давления p и соответствующей тестовой функции q требуется, чтобы $p, q \in Q$, где

$$Q = \{q \in L_2(\Omega_f) : q = 0 \text{ на } \Gamma_{out}\}.$$

Умножим уравнение (1) на \mathbf{v} , уравнение (2) на q , и проинтегрируем по вычислительной области. Беря во внимание граничные условия (3)–(6), получается следующая система уравнений относительно $\mathbf{v} \in \mathbf{V}$, $q \in Q$:

$$a(\mathbf{u}, \mathbf{v}) - b(\mathbf{v}, p) = 0 \quad \forall \mathbf{v} \in \hat{\mathbf{V}}, \quad (28)$$

$$b(\mathbf{u}, q) = 0 \quad \forall q \in Q. \quad (29)$$

Для билинейных форм имеем

$$a(\mathbf{u}, \mathbf{v}) := \int_{\Omega_f} \nabla \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{v} \, d\mathbf{x},$$

$$b(\mathbf{v}, q) := \int_{\Omega_f} (\nabla \cdot \mathbf{v}) q \, d\mathbf{x}.$$

Проблема нестационарного переноса раствора (22)–(27) решается численно с использованием стандартных лагранжевых конечных элементов P_1 . Определим

$$S = \{c \in H^1(\Omega_f) : c = 1 \text{ на } \Gamma_{in}\},$$

$$\hat{S} = \{s \in H^1(\Omega_f) : s = 0 \text{ на } \Gamma_{in}\}.$$

Приближенное решение $c \in S$ ищется из

$$\left(\frac{\partial c}{\partial t}, s \right) + d(c, s) = \left(\frac{\partial m}{\partial t}, s \right)_s \quad \forall s \in \hat{S}, \quad (30)$$

где используются следующие обозначения

$$d(c, s) := - \int_{\Omega_f} c \mathbf{u} \cdot \nabla s \, d\mathbf{x} + \frac{1}{\text{Pe}} \int_{\Omega_f} \nabla c \cdot \nabla s \, d\mathbf{x} + \int_{\Gamma_{out}} (\mathbf{u} \cdot \mathbf{n}) c s \, d\mathbf{x},$$

$$(\varphi, s)_s := - \int_{\Gamma_s} \varphi s \, d\mathbf{x}.$$

Для определения $m \in G = L_2(\Gamma_s)$ (смотрите (11)) мы используем

$$\left(\frac{\partial m}{\partial t}, g \right)_s - (f(c, m), g)_s = 0, \quad g \in G. \quad (31)$$

Дискретизация по времени основана на симметричной аппроксимации (схема Кранка – Николсон), которая имеет второй порядок точности. Пусть τ — шаг равномерной сетки по времени такой, что $c^n = c(t^n)$, $t^n = n\tau$, $n = 0, 1, \dots$

Уравнение (30) аппроксимируется по времени следующим образом

$$\left(\frac{c^{n+1} - c^n}{\tau}, s \right) + d \left(\frac{c^{n+1} + c^n}{2}, s \right) = \left(\frac{m^{n+1} - m^n}{\tau}, s \right)_s.$$

Аналогично для (31) мы получим

$$\left(\frac{m^{n+1} - m^n}{\tau}, g \right)_s - \left(f \left(\frac{c^{n+1} + c^n}{2}, \frac{m^{n+1} + m^n}{2} \right), g \right)_s = 0, \quad n = 0, 1, \dots$$

В рассматриваемом нами случае ставятся однородные начальные условия:

$$c^0 = 0, \quad \mathbf{x} \in \Omega_f,$$

$$m^0 = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma_s.$$

Расчетная область Ω_f представляет собой часть прямоугольника с безразмерной высотой $x_2 = 1$ и безразмерной длиной $x_1 = 17,5$, в который вложены десять полуцилиндров. Расстояние между центрами цилиндров в направлении x_1 составляет 1.5 безразмерных единицы, радиус цилиндров – 0.4 безразмерных единиц. Триангуляция и подготовка геометрии была проведена с помощью нашей разработки «Программа для ЭВМ: Synthetic porosity by spherical particles» для создания синтетических пористых сред посредством добавления круглых частиц в двумерных и сферических частиц в трехмерных задачах.

Для конечно-элементной аппроксимации скорости, давления и соответствующих тестовых функций выбраны следующие конечномерные подпространства $V_h \subset V$, $\hat{V}_h \subset \hat{V}$ и $Q_h \subset Q$. Использовались элементы Тейлора-Худа $P_2 - P_1$. Это непрерывные элементы Лагранжа P_2 для компонент скорости и непрерывные элементы P_1 Лагранжа для поля давления. Для нестационарного переноса раствора, как было написано выше, были использованы лагранжевы элементы P_1 для конечномерных подпространств $S_h \subset S$ и $\hat{S}_h \subset \hat{S}$ вместе с неявной дискретизацией по времени. Программное обеспечение подготовлено с использованием вычислительной платформы для уравнений в частных производных FEniCS. Нестационарная задача решается на безразмерном интервале времени $(0, T)$, где $T = 40$, с использованием временного шага $\tau = 0.1$ (выбран путем вычислительного эксперимента). Были выполнены расчеты на последовательно сгущающихся сетках и по их результатам была выбрана базовая сетка с 18743 узлами и 35958 ячейками. Расчетные компоненты скорости и давления показаны на Рис. 2. Концентрации раствора в разные моменты времени показаны на Рис. 3.

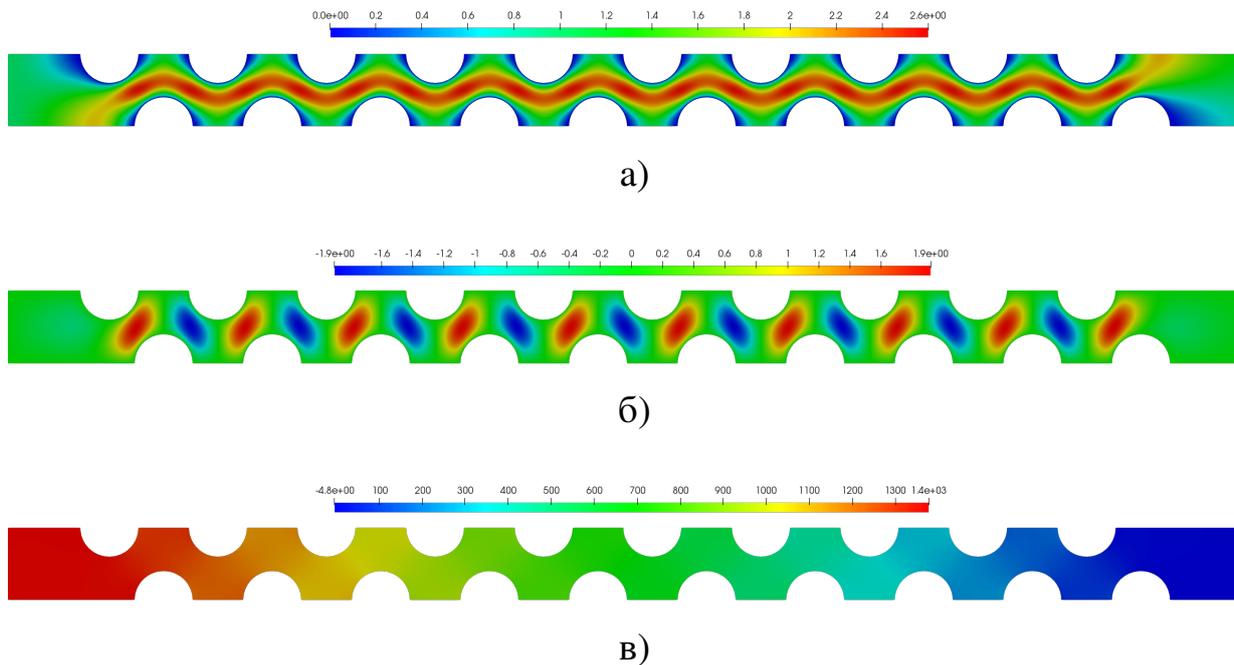


Рис. 2: Скорость и давление: а) горизонтальная составляющая вектора скорости u_1 , б) вертикальная составляющая вектора скорости u_2 , в) давление.

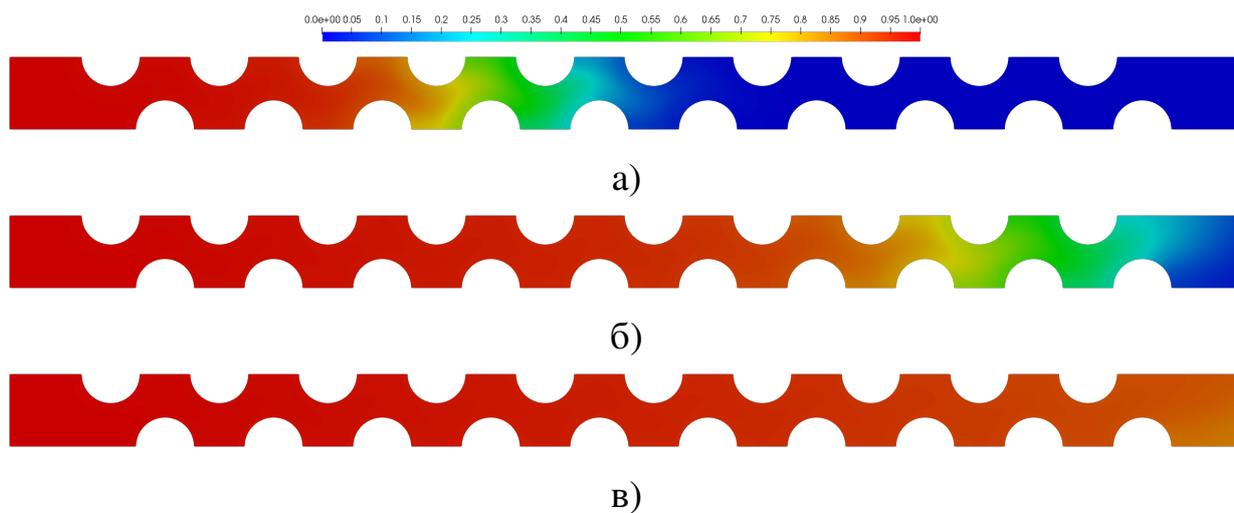


Рис. 3: Концентрация c в разные моменты времени: а) $t = 5$, б) $t = 10$, в) $t = 15$.

Также были проведены исследования чувствительности для того, чтобы увидеть, как изменение различных параметров приводит к изменению кривой прорыва. Такие исследования чувствительности часто являются первым этапом процедур оптимизации или определения параметров.

Во **второй главе** рассмотрена обратная задача определения неизвестной скорости адсорбции и десорбции, используя информацию о динамике средней выходной концентрации $c_{out}(t)$, которая рассчитывается следующим образом:

$$c_{out}(t) = \frac{\int_{\Gamma_{out}} c(\mathbf{x}, t) d\mathbf{x}}{\int_{\Gamma_{out}} d\mathbf{x}}. \quad (32)$$

Решение обратной задачи состоит в минимизации функционала невязки между измеренными и вычисленными данными. Отправной точкой является отслеживание невязки для двух разных значений параметров в изотерме Генри.

Функционал невязки определяется выражением

$$J(Da_a, Da_d) = \int_0^T (c_{out}(t) - \tilde{c}(t))^2 dt, \quad (33)$$

где функция $c_{out}(t)$ задана после решения прямой задачи в безразмерной форме. Мы используем синтетический подход для имитации данных измерений. На предварительном этапе решается прямая задача для выбранных фиксированных значений $(\widetilde{Da}_a, \widetilde{Da}_d)$, которые мы будем называть точным решением процедуры идентификации, или точными параметрами, которые в наших численных экспериментах равны следующим значениям (0.005, 0.05).

В действительности данные измерений часто зашумлены, поэтому важно понимать, как шум влияет на идентификацию параметров. Предположим, что измерения проводятся на каждом временном шаге. Рассмотрим зашумленное измерение:

$$\tilde{c}(t^n) = c_{out}(t^n; \widetilde{Da}_a, \widetilde{Da}_d) + \delta\sigma(t^n), \quad n = 1, 2, \dots, N, \quad N\tau = T.$$

Здесь параметр δ определяет амплитуду шума, а $\sigma(t^n)$ —случайная величина, равномерно распределенная на интервале $[-1, 1]$.

В случае зашумленных данных измерений, вместо попытки идентифицировать одну точку в пространстве параметров, следует идентифицировать

набор в пространстве параметров, для которого значение невязки функционала ниже установленного порога. Учитывая дисперсию равномерно распределенной случайной величины σ , определим множество допустимых параметров следующим неравенством:

$$J(Da_a, Da_d) \leq \gamma \delta^2 \frac{T}{3}, \quad (34)$$

где $\gamma > 1$ числовой параметр.

Рассматривается детерминированный подход, когда пространство параметров дискретизируется равномерной сеткой и для каждой пары параметров вычисляется значение невязки. Способ является простейшим, но в то же время является весьма дорогостоящим подходом. Параметры ищутся в диапазоне $0 \leq Da_a \leq 0.01$, $0 \leq Da_d \leq 0.1$. Результаты для маленькой амплитуды шума показаны на Рис. 4а.

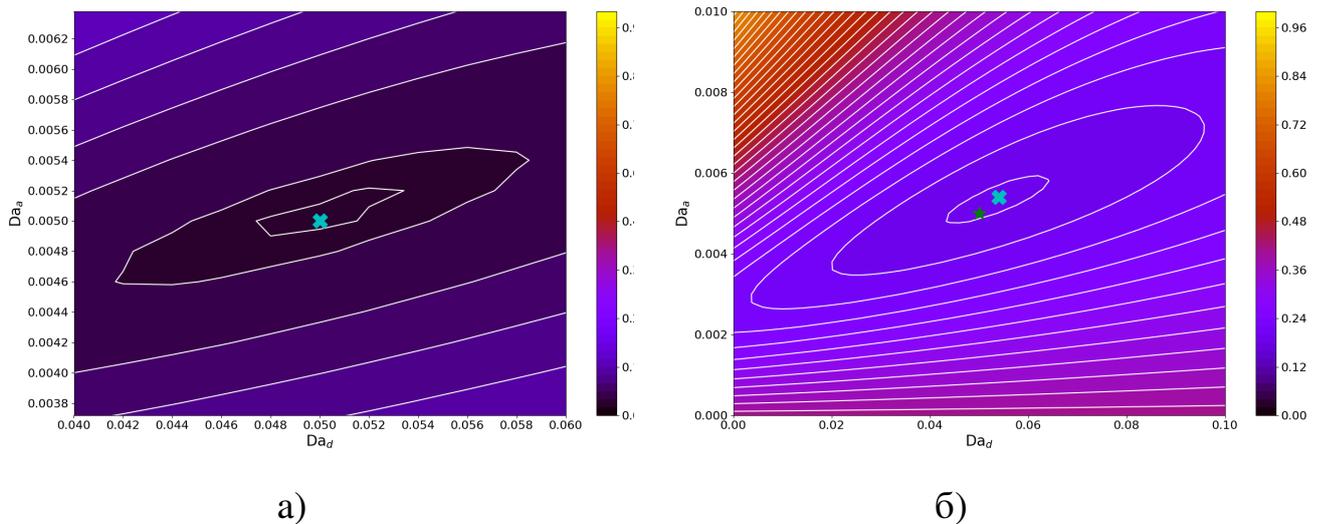


Рис. 4: Функционал невязки при: а) $\delta = 0.01$, б) $\delta = 0.05$

Аналогичные результаты для значительно более высокой амплитуды шума ($\delta = 0.05$) показаны на Рис. 4б. В этом случае минимум функционала равен 0.1840. Расчеты выполнены с $\gamma = 1.02625$. Мы видим, что минимум функционала в этом случае достигается в точке, которая относительно далека от точного значения, что указывает на то, что одного измерения может быть недостаточно для точной идентификации параметров в случае очень зашумленных данных.

Рассмотрен стохастический подход в виде чистого случайного поиска и статистический подход с использованием выборки квазислучайных последовательностей Соболя из пространства искомых параметров. Проведена процедура Монте-Карло для исследования неопределенностей исходящих из стохастики в шуме. В рассматриваемом нами классе задач важно определять не отдельные параметры, а определить именно допустимую область параметров. Это особенно актуально в случае зашумленных экспериментальных данных. Для всех подходов исследованы влияния шумов в экспериментальных данных на процедуру идентификации допустимых наборов параметров, где допустимый набор параметров определяется через установленный порог. Сам порог определяется с помощью априорной оценки функционала невязки с учетом дисперсии равномерно распределенной случайной величины шума в экспериментальных данных. Определение допустимого набора параметров удовлетворяет целям промышленности, где необходимо определять параметры с точностью порядка шума.

В **третьей главе** рассмотрен Байесовский подход в оценке параметров адсорбции и десорбции с количественной оценкой неопределенности. Определение скоростей реакции проводим на основе синтетических экспериментальных измерений d , которые определяются как:

$$d = f(\theta) + \varepsilon, \quad (35)$$

где $f(\theta)$ — кривая проскока из прямой задачи описанной в предыдущем разделе с заданным вектором параметров $\theta = \{Da_a, Da_d\}$, ε — аддитивный шум имеющий гауссово распределение $\mathcal{N}(0, \sigma^2)$ с нулевым средним и дисперсией σ^2 .

Байесовская формулировка ставит задачу оценки параметров как задачу статистического вывода по пространству параметров. Решением полученной байесовской обратной задачи является функция плотности апостериорной вероятности (Posterior Density Function, PDF). Теорема Байеса явно устанавливает апостериорную PDF как

$$\rho(\theta|d) \propto \rho(d|\theta)\rho(\theta), \quad (36)$$

где $\rho(d|\theta)$ — функция правдоподобия, $\rho(\theta)$ — априорные знания о параметрах.

Если предполагается, что дисперсия шума известна, и с учетом того, что шум ϵ не зависит от θ , функция правдоподобия принимает простую мультигауссовскую форму

$$\rho(\mathbf{d}|\theta) = \frac{1}{(2\pi\sigma^2)^{N/2}} \prod_{i=1}^N \exp\left(-\frac{1}{2\sigma^2} \|\mathbf{d}_i - \mathbf{f}(\theta)\|^2\right), \quad (37)$$

где N — количество измерений.

Выборка с апостериорного распределения получена методом Монте-Карло на цепи Маркова. Реализованы два алгоритма для построения выборки: Метрополис-Гастингс (Metropolis-Hastings, МН) и Адаптивный Метрополис (Adaptive Metropolis, АМ). Рассмотрено влияние шума с разной дисперсией на процедуру идентификации. Проведены сравнения между двумя алгоритмами через функцию автокорреляции. Область допустимых значений определяется через доверительный интервал для обоих алгоритмов. Исследовано влияние количества экспериментальных данных для уточнения области допустимых значений (см. Рис. 5). Выполнен анализ выборки с использованием автокорреляционной функции, также проведен анализ скорости приема для оценки смещения цепи Маркова. Установлено, что выборка МСМС (Markov chain Monte-Carlo) достаточно хороша для определения допустимого набора параметров через доверительный интервал для обоих алгоритмов, однако, предпочтительнее Адаптивный Метрополис, поскольку в нем нет необходимости в "настройках" алгоритма.

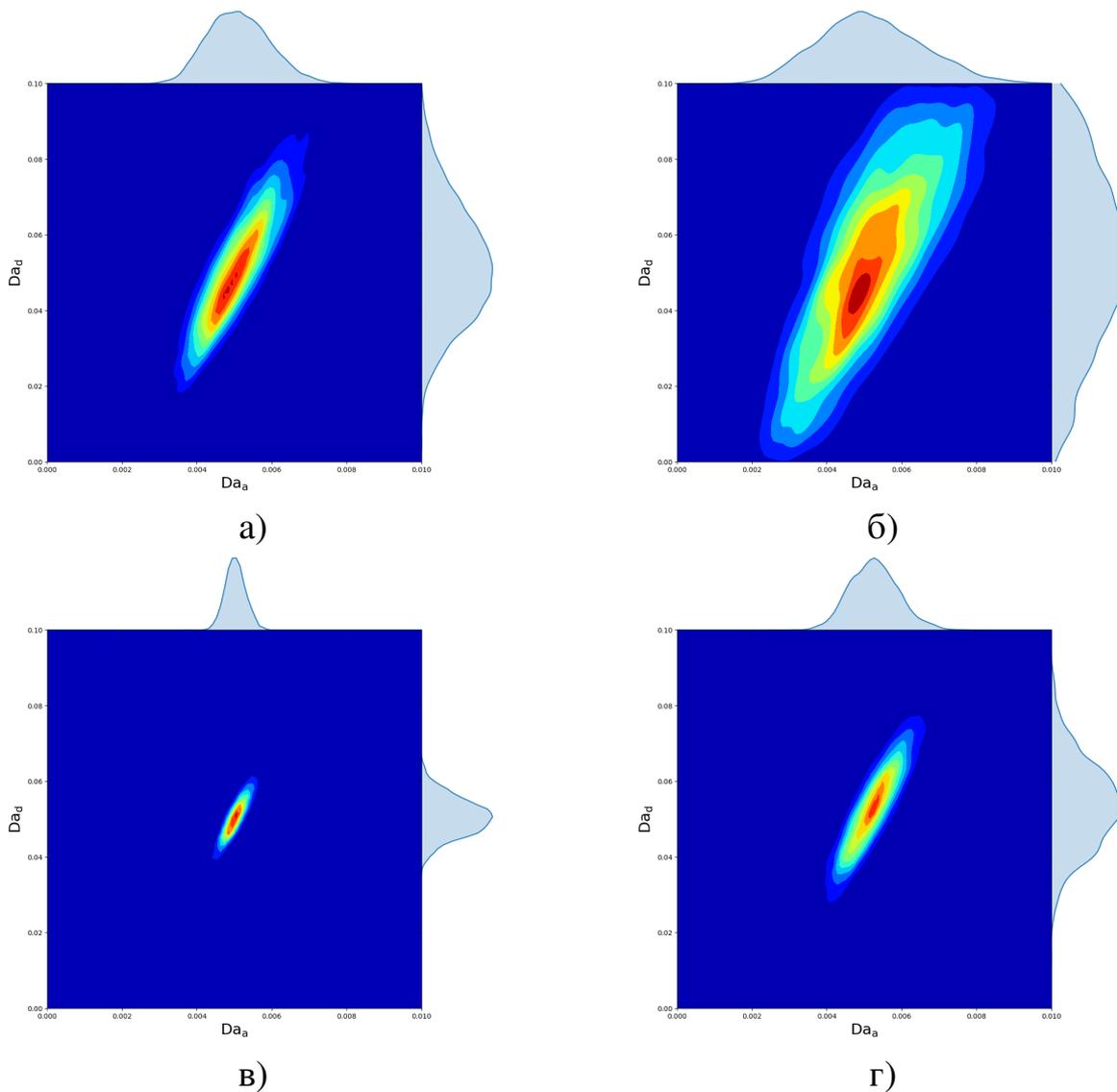


Рис. 5: Выходы МСМС для МН, где были получены результаты для: а) измерения с дисперсией шума 0.01, б) измерения с дисперсией шума 0.05, в) десять различных измерений с отклонением шума 0.01, г) десять различных измерений с отклонением шума 0.05.

В четвертой главе предложена модификация стандартного алгоритма пчелиного роя (Standard Bees Algorithm, BA), которая является поведенческим методом. Поведенческие методы — это многоагентные методы, основанные на моделировании интеллектуального поведения колоний агентов (интеллект роя). Модификация предлагает более агрессивный поиск не только глобального экстремума функционала невязки, но и локальных экстремумов. Проведено статистическое сравнение предложенного алгоритма с двумя другими концептуально различными пчелиными алгоритмами на 100 независимых прогонах тестовых функций. Предложенная модификация хорошо справляется с

определением области допустимых значений при условии умеренного количества экстремумов. Модифицированный алгоритм применен для минимизации функционала невязки в случае доминирующей диффузии, когда функционал выпуклый, и в случае доминирующей реакции, когда функционал имеет форму узкой долины с крутыми берегами (см. Рис. 6). В случае доминирующей реакции параметры будем искать в подобласти $60 \leq Da_a \leq 140$, $0 \leq Da_d \leq 2$, $800 \leq M \leq 1200$. Для случая доминирующей диффузии будут использоваться те же диапазоны показанные ранее.

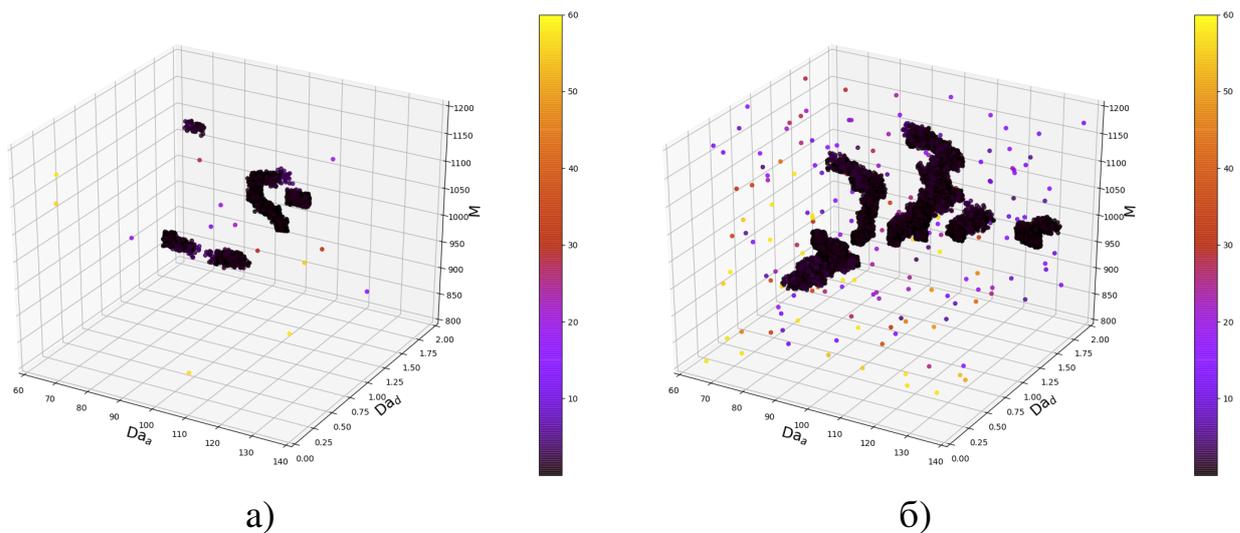


Рис. 6: Результат работы алгоритма: а) набор параметров I, б) набор параметров II.

Таблица 1: Результаты для случая доминирующей реакции.

Набор параметров I			
Вывод программы	Погрешность (%)	Итерации	NFE
$J(84.554, 0.845, 995.593) = 0.002$	0.016		
$J(112.266, 1.126, 1029.347) = 0.031$	0.056		
$J(100.455, 1.001, 964.319) = 0.0477$	0.08	94	2230
$J(116.173, 1.17, 1078.88) = 0.085$	0.15		
$J(91.394, 0.928, 1200.789) = 0.213$	0.374		
Набор параметров II			
Вывод программы	Погрешность (%)	Итерации	NFE
$J(92.794, 0.928, 997.607) = 1.29 \times 10^{-3}$	0.002		
$J(83.358, 0.833, 994.812) = 3.01 \times 10^{-3}$	0.003		
$J(101.655, 1.017, 1000.054) = 4.2 \times 10^{-3}$	0.007	281	12,300
$J(136.404, 1.367, 1011.473) = 5.7 \times 10^{-3}$	0.01		
$J(117.636, 1.178, 1014.271) = 0.011$	0.02		

МВС запускается здесь с двумя наборами параметров. Некоторые параметры одинаковы для обоих прогонов: $n = 2$, $d_x = 6$, $d_y = 0.06$, $d_z = 20$, $\delta = 1$, $abb = 50$, $\tau = 5$, $\varepsilon_1 = 10^{-8}$, $\varepsilon_2 = 1$. Параметры, которые различаются в двух прогонах, равны

I: $m = 3$, $sb = 20$, $abb = 50$, $abp = 20$;

II: $m = 5$, $sb = 200$, $abb = 50$, $abp = 40$.

Кроме того, для нас крайне важно контролировать количество вычислений функций (Number of Function Evaluation, NFE). По Таблице 1 видно, что набор параметров I уже показывает отличные результаты всего при 2230 запусках прямой задачи.

Основные результаты работы. В работе разработаны ключевые элементы вычислительной технологии идентификации параметров поверхностной реакции в реагирующих потоках в масштабе пор. В диссертационной работе получены следующие основные результаты:

1. Реализована двумерная математическая модель прямой задачи реагирующего потока в пористых средах. Модель включает стационарные уравнения Стокса и уравнение конвекции-диффузии, дополненное граничными условиями третьего рода, учитывающими адсорбцию и десорбцию. Рассмотрены две изотермы описывающие кинетику реакции: Ленгмюра для доминирующей реакции и Генри для доминирующей диффузии. Указаны основные безразмерные параметры. Подход применим для широкого диапазона микрогеометрий и параметров процесса. Численное решение гидродинамических процессов основано на треугольных сетках и МКЭ с элементами Тейлора-Худа. Проведено исследование влияния вычислительных параметров дискретизации по пространству и времени. Создано и зарегистрировано в Роспатенте программное обеспечение для создания вычислительных сеток синтетических пористых сред.
2. Разработаны детерминированные и стохастические, одноступенчатые и многоступенчатые алгоритмы для идентификации неизвестных скоростей адсорбции и десорбции на изотерме Генри в сочетании с моделированием реагирующего потока в масштабе пор. Учитываются точные и зашумленные данные. В последнем случае обсуждается их влияние на процедуру идентификации. Показана роль

стохастичности в шуме путем проведения процедуры Монте-Карло на 10 разных реализациях шума.

3. Выполнено определение скоростей поверхностных реакций в переносе раствора в пористой среде с использованием выборки метода Монте-Карло на цепях Маркова в рамках байесовского подхода. Реализованы алгоритмы Метрополиса-Гастингса и Адаптивного Метрополиса. Проведены сравнения между двумя алгоритмами через функции автокорреляции. Доверительные интервалы были построены на основе апостериорных распределений для обоих алгоритмов. Исследовано влияние шума на измерения для байесовской процедуры оценки. Количество экспериментальных данных было увеличено до десяти для обоих алгоритмов, чтобы сузить доверительный интервал. Выполнен анализ выборки с использованием автокорреляционной функции и уровня приема для оценки смещения цепи Маркова.
4. Предложен и реализован Модифицированный алгоритм пчелиной колонии (МВС) как модификация обычного алгоритма пчелиной колонии для идентификации неизвестных скоростей адсорбции и десорбции на изотерме Ленгмюра для случая доминирующей реакции и на изотерме Генри для случая доминирующей диффузии. Были проведены тестовые запуски алгоритма для оценки эффективности на известных бенчмарк функциях. Были также проведены статистические исследования по сравнению предложенной модификации с оригинальным Стандартным пчелиным алгоритмом (SBA) и более популярным алгоритмом Искусственной пчелиной колонии (ABC) на 100 независимых прогонах для каждой из бенчмарк функций. На основании полученных результатов можно сделать вывод, что предложенный алгоритм МВС способен быстро и точно находить все экстремумы в случае умеренного количества экстремумов. Численные эксперименты показали, что алгоритмы пчелиных колоний могут быть эффективно использованы для решения мультимодальных инженерных задач с высокой размерностью.

Публикации автора по теме диссертации

1. **Grigoriev V. V., Iliev O., Vabishchevich P. N. Computational identification of adsorption and desorption parameters for pore scale transport in periodic porous media // Journal of Computational and Applied Mathematics. —2020. —Т. 370. —С. 112661. (Web of Science, Q1)**
2. **Grigoriev V. V., Iliev O., Vabishchevich P. N. Computational Identification of Adsorption and Desorption Parameters for Pore Scale Transport in Random Porous Media // Lecture Notes in Computer Science. — 2020. — Т. 11958 LNCS. —С. 115–122. (Scopus, Q2)**
3. **Grigoriev V. V., Vabishchevich P. N. Bayesian Estimation of Adsorption and Desorption Parameters for Pore Scale Transport // Mathematics. — 2021. —Т. 9, № 16. (Web of Science, Q1)**
4. **Grigoriev V. V., Iliev O., Vabishchevich P. N. On Parameter Identification for Reaction-Dominated Pore-Scale Reactive Transport Using Modified Bee Colony Algorithm // Algorithms. —2022. —Т. 15, № 1. (Scopus, Q2)**
5. **Григорьев В. В., Саввин А. В., Вабищевич П. Н. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ "Программа для ЭВМ "Synthetic porosity by spherical particles". № 2021616253 от 02.04.2021. — 2021. (Роспатент)**