

УДК 544.45; 519.245

DOI:10.25729/ESI.2024.33.1.006

## Численный анализ статистических закономерностей теплового зажигания в стохастической среде

Донской Игорь Геннадьевич<sup>1</sup>, Гросс Егор Иванович<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт систем энергетики им. Л.А. Мелентьева СО РАН,

Россия, Иркутск, *donskoy.chem@mail.ru*

<sup>2</sup>Иркутский национальный исследовательский технический университет, Россия, Иркутск

**Аннотация.** В работе с помощью численного моделирования исследуется поведение реагирующих сред со стохастическим пространственным распределением реакционной способности. Для таких систем ставится задача определения границ тепловой устойчивости и поведения в закритических условиях. Эти задачи решаются численно с помощью метода Монте-Карло. Проводится анализ результатов моделирования, оцениваются статистические характеристики процессов зажигания в стационарной и нестационарной постановках. Новизна работы заключается в установлении зависимостей между разбросом реакционной способности и дисперсией характеристик зажигания. Результаты работы могут быть полезны при анализе поведения химических систем со случайным распределением реагирующих компонентов.

**Ключевые слова:** стохастический процесс, тепловой взрыв, критические условия, математическое моделирование

**Цитирование:** Донской И.Г. Численный анализ статистических закономерностей теплового зажигания в стохастической среде / И.Г. Донской, Е.И. Гросс // Информационные и математические технологии в науке и управлении. – 2024. – № 1(33). – С. 66-77. – DOI:10.25729/ESI.2024.33.1.006.

**Введение.** Критические явления, в том числе связанные с иницированием и тушением процессов горения, могут быть чувствительны к случайным шумам. Такое влияние может быть определяющим при больших вариациях реакционной способности и макроскопических потоков, например, в дисперсных средах [1, 2] и турбулентных течениях [3–5]. Стохастический характер изменения переменных приводит к тому, что решение может стать неустойчивым при любых начальных условиях, даже если решение усредненного уравнения устойчиво. В связи с этим появляются вопросы о вероятностях осуществления устойчивых режимов и ожидаемых временах «убегания». Актуальность исследования таких явлений связана с типичными задачами хранения и использования топлив: хранение топлива требует исключения возможности зажигания; конверсия топлива, напротив, требует обеспечения устойчивого зажигания для минимизации потерь с недожогом и вредных выбросов.

Исследование критических явлений в изотермических системах проводилось в работах [6, 7]. Адиабатическая постановка задачи о тепловом взрыве (задача Годеса) рассматривалась в работах [8–10], где было показано, что при достижении критических условий влияние флуктуаций меняется с гасящего на усиливающее. В работах [11–14] численно оценивался порог по числу частиц для перехода к континуальной модели.

Задача Семенова со стохастическим слагаемым рассматривалась в работах [15, 16]. В отличие от адиабатической задачи, в задаче с теплопотерями могут сосуществовать два устойчивых стационарных решения, поэтому потенциал в уравнении Фоккера-Планка является бистабильным: динамика такой системы определяется вероятностью преодоления барьера [17]. Влияние флуктуаций температуры потока на устойчивость каталитической частицы исследовалось в работах [18]: интересным результатом этих работ является вывод о неизбежности теплового взрыва при любых начальных условиях (интенсивность флуктуаций определяет ожидаемое время зажигания). Флуктуации коэффициентов переноса рассматривались в [19, 20].

Уравнение Фоккера-Планка для задачи Франк-Каменецкого исследовалось в работах [21, 22]. Исследование устойчивости решений на основе вариационных методов проводилось в работах [23, 24]. Оценки устойчивости реакционных сред с заданным распределением реакционных центров по энергиям получены в работе [25].

Статистические закономерности играют важную роль в химической технологии, где тепловая устойчивость экзотермических реакторов определяется распределением активных частиц в зернистом слое [1, 26, 27]. Случайное распределение реагирующего компонента может оказывать влияние на выгорание твердых топлив [28, 29]. Перколяционные режимы горения исследовались в работах [30–32].

Тепловая устойчивость проточного реактора идеального перемешивания с флуктуациями реакционной способности (числа Дамкелера) теоретически исследовалась в работе [33], где для стационарных состояний были получены приближенные зависимости между параметрами, в явном виде содержащие дисперсионные слагаемые. Моделирование реакторов частичного перемешивания с флуктуациями скорости перемешивания проводилось в работах [34, 35].

Большая часть неопределенности связана, безусловно, с коэффициентами реакционной способности и точностью задания начальных условий. Для исследования этих факторов в работах [36, 37] проводились многовариантные расчеты. В некоторых случаях дисперсия реакционной способности может быть ключевым фактором, определяющим тепловую устойчивость решений системы уравнений тепломассопереноса в реагирующей среде. Эта дисперсия, однако, связана с распределением активных центров, поэтому величина флуктуации зависит от пространственных координат, но не от времени. Такое приближение ограничивает область применимости результатов системами, в которых неоднородность является макроскопической, например, связана со случайным характером засыпки в зернистом слое, или распределением активных частиц по поверхности насадки, при этом реагент в подвижной фазе распределен непрерывно (в первом приближении – однородно). Расчетные исследования таких систем проводились в работах [38, 39] для пористых каталитических гранул. Целью настоящей работы является исследование зависимости характеристик зажигания от параметров распределения реакционной способности. Для этого проводятся расчеты методом Монте-Карло для стационарной и нестационарной задач теплового взрыва, а также определяются статистические свойства практически важных величин.

В настоящей работе рассматривается образец, в котором случайным образом распределены реакционные центры (частицы топлива, или частицы катализатора, или поверхностные дефекты). Для такого образца определяются условия существования теплового равновесия. Сначала мы рассмотрим наиболее простые варианты неоднородного распределения реакционной способности по образцу, затем перейдем к решению стохастической задачи теплового взрыва в квазистационарном приближении, и, наконец, исследуем влияние стохастичности на нестационарные процессы и отбор стационарных состояний.

**1. Стационарная задача теплового взрыва в образце со ступенчатым распределением реакционной способности.** Следуя классическим работам, мы записываем уравнение теплового взрыва в одномерной постановке в следующем виде [40]:

$$\frac{d^2\theta}{d\xi^2} + Fk \exp(\theta) = 0. \quad (1)$$

Здесь  $\theta$  – безразмерная температура,  $Fk$  – число Франк-Каменецкого (критическое значение для единичного отрезка примерно 0.88). Граничные условия для уравнения (1) записываются следующим образом:

$$\frac{d\theta}{d\xi}(0) = 0; \theta(1) = 0. \quad (2)$$

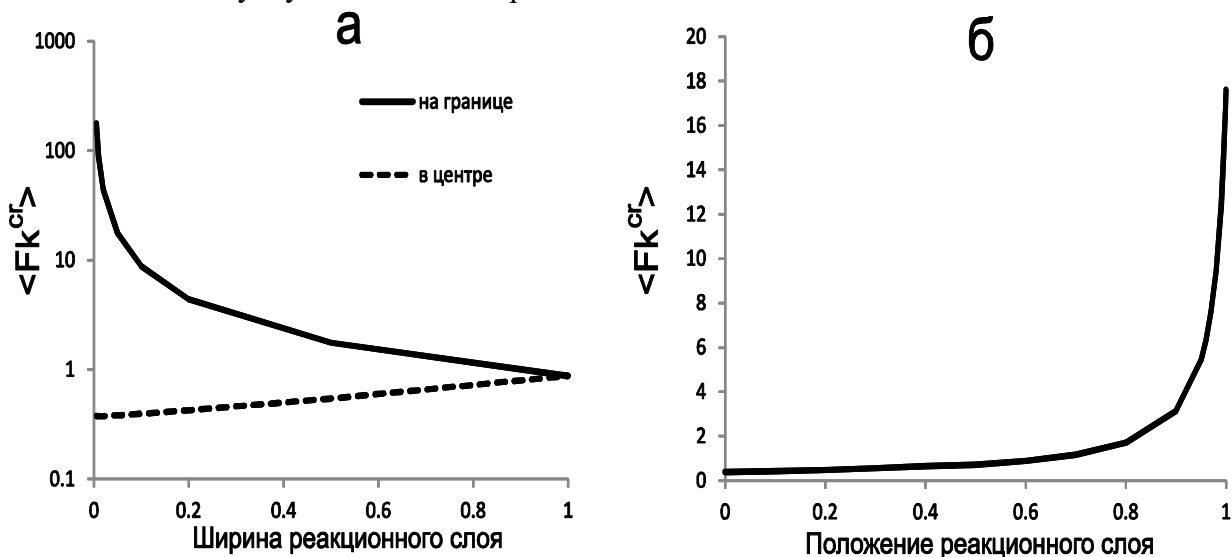
Для численного решения уравнений (1) используется итеративный алгоритм, подробно описанный в [25, 38]: уравнение расщепляется, распределение температуры определяется для заданного распределения источника, затем источник переопределяется для нового распределения температуры; итерации продолжаются до тех пор, пока температура не превышает допустимое значение (происходит тепловой взрыв), либо до установления стационарного состояния.

Мы рассматриваем только вариант с плоской симметрией: цилиндрическая и сферическая симметрия в одномерном случае приводят к неустранимым корреляциям между координатой и распределением реакционной способности.

Рассмотрим случай, когда параметр  $F_k$  зависит от координаты. Тогда уравнение (1) при  $F_k = \text{const}$  соответствует однородному распределению. Зададим неоднородное распределение, например, зададим функцию  $F_k(\xi)$  в виде ступенчатой функции. Кроме того, потребуем, чтобы среднее значение параметра  $F_k$  было равно заданной величине  $\langle F_k \rangle$ . Если реакционная способность образца концентрируется в области, ограниченной координатами  $b_l$  и  $b_r$ , то получим распределение:

$$F_k(\xi) = \begin{cases} 0, & \xi < b_l \\ C, & b_r \leq \xi < b_l \\ 0, & \xi \geq b_r \end{cases} \quad (3)$$

Если  $b_l = 0$ , то реагирующий образец покрыт слоем инертного материала; если  $b_r = 1$ , то реакционноспособный слой нанесен на инертный носитель. Такие постановки задачи теплового взрыва рассматривались в работах [41, 42]. Естественно, что  $\langle F_k \rangle = C(b_r - b_l)$ , поэтому высота  $C$ , в общем случае, больше  $\langle F_k \rangle$ . Результаты расчетов для ступенчатых ( $\Pi$ -образных) распределений представлены на рис. 1: теплоизоляция ожидаемо снижает критическое значение  $\langle F_k \rangle$ ; расположение реакционноспособного слоя ближе к внешней поверхности позволяет повысить тепловую устойчивость образца.



**Рис. 1.** Зависимость критического значения  $\langle F_k \rangle$ : от ширины реакционного слоя при его расположении в центре и на внешней границе (а); и от положения реакционного слоя при его постоянной ширине, равной 0.05 (б)

Таким образом, при неоднородном распределении реакционной способности тепловой взрыв в образце возможен при значениях  $\langle F_k \rangle$  меньших, чем 0.88; также возможно и устойчивое решение при значениях  $\langle F_k \rangle$  больше 0.88. Расчеты для ступенчатых распределений

$F_k(\xi)$  показывают, что расположение реакционного слоя вблизи границ позволяет получить критические значения от 0.3 до 170. Таким образом, при случайном распределении мы можем получать вероятности того, что решение окажется устойчивым или неустойчивым, в зависимости от того, с какой вероятностью произойдет сгущение реакционных центров в разных частях образца. При достаточно больших значениях  $\langle F_k \rangle$  будет расти вероятность реализации неустойчивого решения, при малых – вероятность реализации устойчивого решения.

**2. Стационарная задача теплового взрыва в образце со стохастическим распределением реакционной способности.** В стохастической постановке параметр  $F_k$  является случайным полем:

$$F_k(\xi) = \langle F_k \rangle + \eta(\xi). \quad (4)$$

Здесь  $\langle F_k \rangle$  – среднее число Франк-Каменецкого,  $\eta$  – случайное слагаемое. Для того, чтобы разные варианты распределения были сопоставимы между собой, необходимо, чтобы среднее значение  $F_k$  сохранялось, т.е.  $\langle \eta(\xi) \rangle = 0$ . Удобно принять, что флуктуации нескоррелированы.

Еще одно необходимое условие – это неотрицательность  $F_k$ , поэтому в каждой точке  $|\eta(\xi)| \leq \langle F_k \rangle$ . Для численного моделирования возьмем генератор случайных чисел в диапазоне (0, 1) и будем задавать случайное распределение  $F_k$  по формуле:

$$F_k(\xi) = \langle F_k \rangle \left\{ 1 + \Delta \left[ 2\eta_0^1(\xi) - 1 \right] \right\}. \quad (5)$$

Здесь  $\Delta$  – максимальный разброс значений, отклонение от среднего (не превышает 1),  $\eta_0^1$  – случайное число из диапазона (0, 1). Расчеты проводятся следующим образом: для большого набора случайно сгенерированных распределений  $F_k(\xi)$  решается уравнение (1), после чего определяется доля устойчивых и неустойчивых решений. Тогда, задаваясь разными значениями  $\langle F_k \rangle$ , можно оценить вероятность теплового самовоспламенения в системе со случайным распределением реакционной способности. Для расчетов использовались следующие значения параметров: число узлов сетки – 500; число случайных конфигураций для каждого значения  $\langle F_k \rangle$  – 1000; шаг по  $\langle F_k \rangle$  – 0.005; шаг по  $\Delta$  – 0.1.

На рис. 2 приведены зависимости вероятности зажигания, рассчитанные, как число случайных конфигураций, для которых не было найдено стационарное решение. С увеличением  $\Delta$  ширина переходной области между безопасными и взрывными режимами увеличивается.

Если принять, что каждое сечение  $\Delta = \text{const}$  соответствует своей функции распределения, то можно оценить изменение дисперсии распределения с ростом  $\Delta$ . На рис. 3 показаны результаты аппроксимации функций плотности вероятности (производных от  $P_{ign}$  по  $\langle F_k \rangle$ ) для разных  $\Delta$ . Можно видеть, что численные результаты хорошо аппроксимируются гауссианами: вероятность зажигания имеет экстремум при изменении  $\langle F_k \rangle$ . Экстремумы функций плотности распределения (рис. 3) соответствуют точкам перегиба соответствующих функций распределения (рис. 2). Средним (при этом, содержащим наибольшую неопределенность) оказывается значение  $\langle F_k \rangle$  для равномерного случая, т.е. классическое критическое значение  $F_k = 0.88$ . Зависимость дисперсий аппроксимирующих плотностей распределения, приведенных на рис. 3, линейно зависит от  $\Delta$  (см. рис. 4).

Полученная зависимость позволяет оценивать диапазоны устойчивости для систем со стохастическим распределением реакционной способности. Для заданного уровня отклонений от среднего можно оценить дисперсию плотности вероятности зажигания (при аппроксимации нормальным распределением), и выбрать значение  $\langle F_k \rangle$ , соответствующее нужному режиму протекания химической реакции.

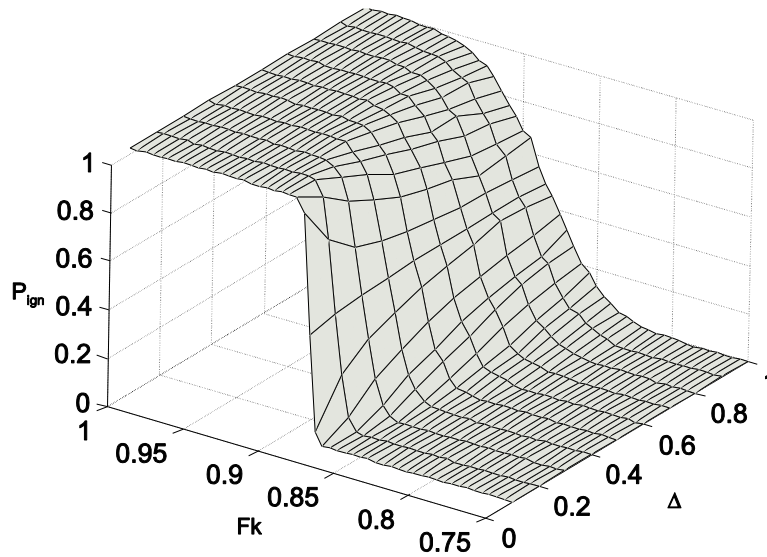


Рис. 2. Зависимость вероятности зажигания от параметров распределения реакционной способности

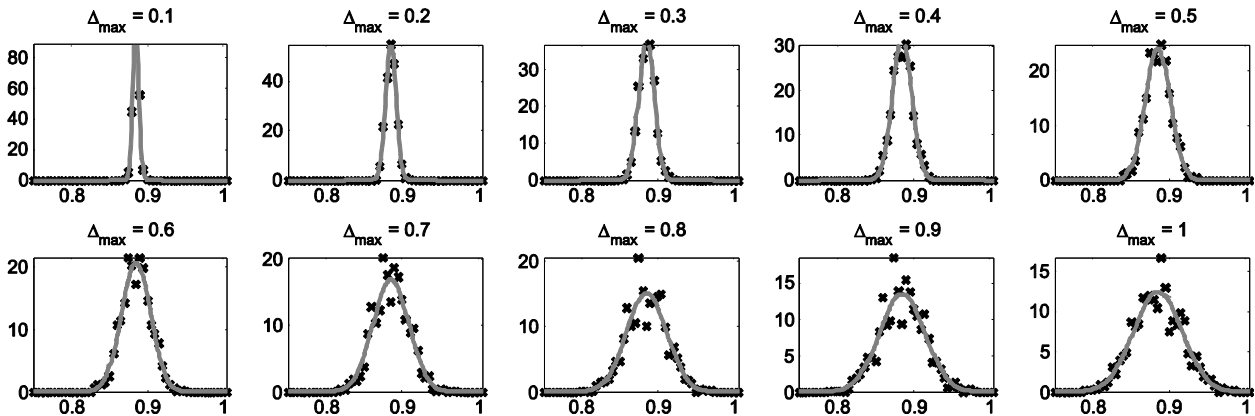


Рис. 3. Аппроксимации плотностей распределения гауссовыми кривыми.

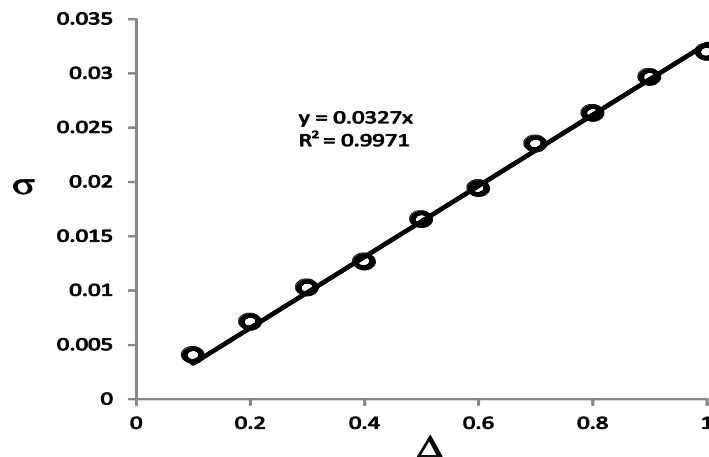


Рис. 4. Зависимость дисперсии вероятности зажигания от максимального отклонения от среднего в формуле (5)

**3. Нестационарная задача зажигания в образце со стохастическим распределением реакционной способности.** Система уравнений для описания нестационарных процессов в образце с распределенной реакционной способностью записывается следующим образом:

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial^2 \theta}{\partial \xi^2} + \text{Da}(\xi) \Theta \varphi \exp\left(\frac{\theta}{1 + \text{Ar}\theta}\right), \quad (6)$$

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = \frac{1}{\text{Le}} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \xi^2} - \text{Da}(\xi) \varphi \exp\left(\frac{\theta}{1 + \text{Ar}\theta}\right). \quad (7)$$

Здесь  $t$  – безразмерное время (приведенное к скорости тепловой релаксации),  $\Theta$  – тепловой эффект реакции,  $\varphi$  – концентрация реагента,  $\text{Le}$  – число Льюиса,  $\text{Da}$  – число Дамкелера,  $\text{Ar}$  – число Аррениуса. Граничные условия для температуры и концентрации записываются следующим образом:

$$\frac{\partial \theta}{\partial \xi}(t, 0) = 0; \theta(t, 1) = 0; \frac{\partial \varphi}{\partial \xi}(t, 0) = 0; \varphi(t, 1) = 1. \quad (8)$$

Начальными условиями являются однородно распределенные поля температуры и концентрации:

$$\theta(0, \xi) = 0; \varphi(0, \xi) = 1. \quad (9)$$

Число Дамкелера является случайным полем:

$$\text{Da}(\xi) = \langle \text{Da} \rangle \left\{ 1 + \Delta \left[ 2\eta_0^1(\xi) - 1 \right] \right\}. \quad (10)$$

Система уравнений (6–10) может служить моделью каталитических процессов для пористых сред (например, слоя насадки) со случайным распределением каталитически активных центров по объему – за счет распределения каталитических центров по поверхности насадки или за счет распределения каталитических гранул в слое инертных частиц. Подобные системы исследовались в работах [1, 39].

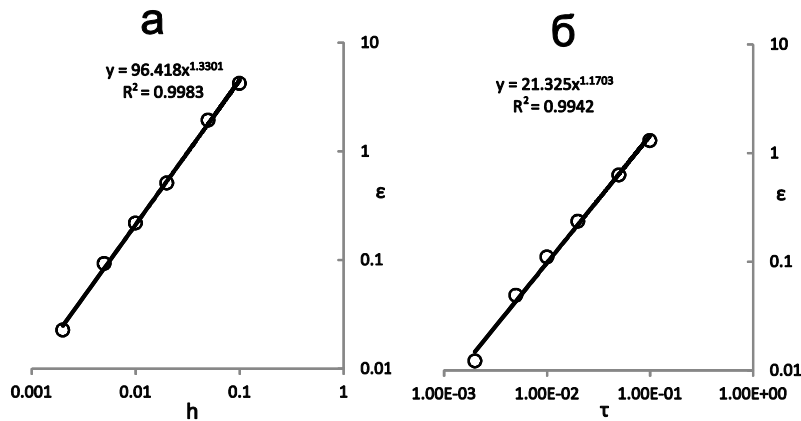
Как и в предыдущем разделе, будем искать распределение решений с разными случайными полями с фиксированным средним значением  $\langle \text{Da} \rangle = 0.02$ . Значения других параметров:  $\Theta = 50$ ,  $\text{Le} = 0.5$ ,  $\text{Ar} = 0.02$  (выбраны таким образом, чтобы зажигание достигалось за время порядка нескольких чисел Фурье). Начальным условием является однородное распределение температуры и концентрации. Значение параметра  $\langle \text{Fk} \rangle$  для стационарного аналога в этом случае оказывается выше критического ( $\langle \text{Fk} \rangle = \langle \text{Da} \rangle \Theta = 1 > 0.88$ ), поэтому для всех случаев наблюдается устойчивое зажигание (см. рис. 3). При этом, однако, в зависимости от конкретной реализации распределения реакционной способности, время зажигания будет разным. Целью расчетов является получение расчетного распределения времени зажигания при выбранных значениях параметров.

Нестационарные расчеты требуют большего вычислительного времени, поэтому, по сравнению со стационарными расчетами, было выбрано меньшее число реализаций (150 для каждого значения  $\Delta$ ). Разностная схема записывается следующим образом:

$$\frac{\varphi_i - \varphi_i^0}{\tau} = \frac{1}{\text{Le}} \frac{\varphi_{i-1} + \varphi_{i+1} - 2\varphi_i}{h^2} - \text{Da}_i \Theta \varphi_i \exp\left(\frac{\theta_i^0}{1 + \text{Ar}\theta_i^0}\right), \quad (11)$$

$$\frac{\theta_i - \theta_i^0}{\tau} = \frac{\theta_{i-1} + \theta_{i+1} - 2\theta_i}{h^2} + \text{Da}_i \Theta \varphi_i \exp\left(\frac{\theta_i^0}{1 + \text{Ar}\theta_i^0}\right). \quad (12)$$

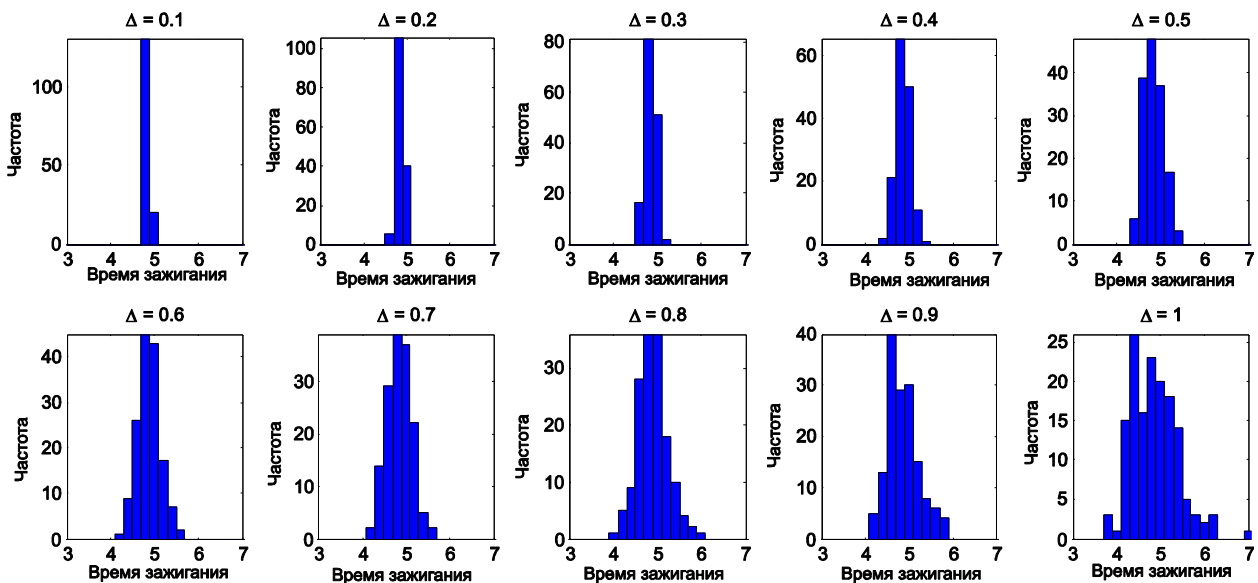
Схема (11–12) получается из уравнений (6–7) путем дискретизации и расщепления по физическим процессам. Здесь индекс 0 относится к предыдущему временному слою. Как видно из рис. 5, схема (11–12) имеет первый порядок аппроксимации по времени и по пространству (из-за нелинейности и резких градиентов в приграничной области, второй порядок аппроксимации по пространственному шагу остается лишь верхней оценкой). В расчетах используются следующие параметры сетки:  $\tau = 8 \times 10^{-3}$ ;  $h = 10^{-3}$ . Погрешность определения времени зажигания при этом составляет около 2%.



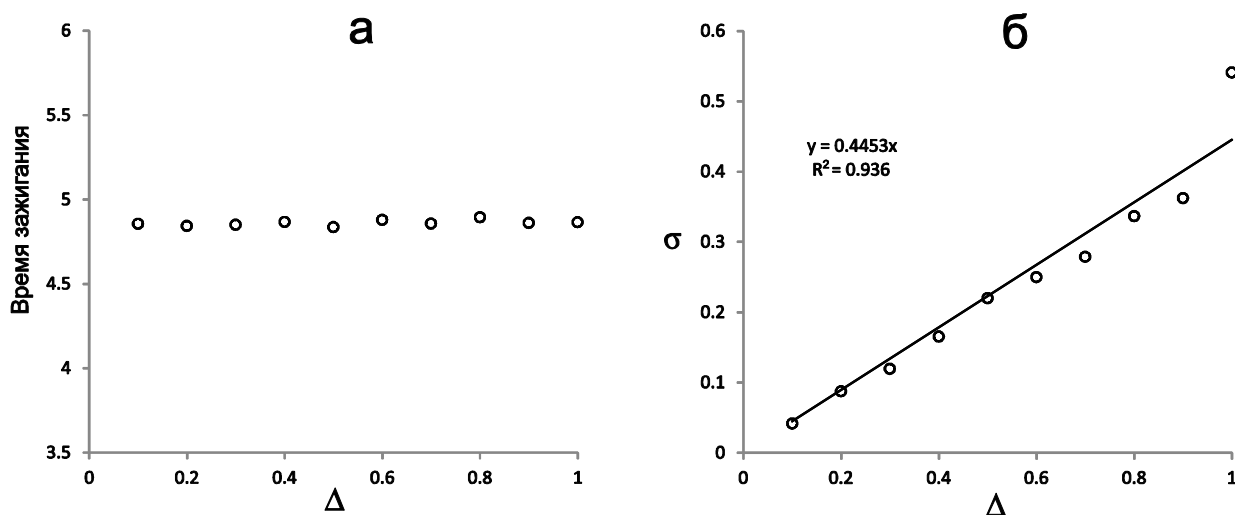
**Рис. 5.** Определение порядков сходимости разностной схемы (11)-(12):  
 $\epsilon$  – оценка погрешности численного решения;  $h$  – шаг пространственной сетки;  
 $\tau$  – шаг временной сетки

В отличие от расчетов в предыдущем разделе, нас интересует распределение динамических характеристик. Основной такой характеристикой является время зажигания, которое определяется как время достижения максимальной скорости роста температуры в центре образца. Результаты расчетов приведены на рис. 6 и 7: среднее время зажигания практически не меняется, а зависимость дисперсии распределения времени зажигания от разброса опять можно аппроксимировать прямой линией. Увеличение дисперсии вполне ожидаемо, хотя линейный характер ее зависимости от разброса реакционной способности не очевиден. Вероятно, полученные качественные зависимости будут сохраняться для других значений параметров (положение границы между докритическими и сверхкритическими режимами, как правило, слабо зависит от особенностей уравнения (7)). Для подтверждения этих закономерностей, однако, требуются более развернутые расчеты с варьированием всех параметров задачи.

Отметим, что полученные результаты соответствуют наиболее грубым предположениям о кинетике химических реакций. При переходе к явлениям зажигания даже в простейших газовых системах требуется анализ большого числа одновременно протекающих гомогенных и гетерогенных превращений [43]. Представленные результаты соответствуют условиям, когда тепловое самоускорение и стохастическая природа реагирующей среды являются определяющими факторами.



**Рис. 6.** Распределение времен зажигания (отн. ед.) при разных значениях максимального разброса реакционной способности



**Рис. 7.** Зависимость среднего времени зажигания (а) и дисперсии распределения времени зажигания (б) от максимального разброса реакционной способности в формуле (9)

**Заключение.** В работе проведены расчеты для оценки тепловой устойчивости реагирующих сред со стохастическим полем реакционной способности в одномерном приближении. Расчеты проводятся методом Монте-Карло, параметром является разброс реакционной способности (по физическим соображениям, он меняется от 0 до 1). Анализ результатов показывает, что критическое значение числа Франк-Каменецкого для однородной задачи соответствует точкам перегиба для распределений вероятности зажигания в квазистационарном приближении.

**Благодарности.** Работа выполнена в рамках проекта государственного задания (№ FWEU-2021-0005) программы фундаментальных исследований РФ на 2021-2030 гг. с использованием ресурсов ЦКП "Высокотемпературный контур" (Минобрнауки России, проект № 13.ЦКП.21.0038).

#### Список источников

1. Ganzer G., Freund H. Influence of statistical activity variations in diluted catalyst beds on the thermal reactor behavior: Derivation of an a priori criterion. *Chemical engineering science*, 2020, v. 220, p. 115607, DOI: 10.1016/j.ces.2020.115607.
2. Hareli S., Nave O., Gol'dshtein V. The evolutions in time of probability density functions of polydispersed fuel spray – The continuous mathematical model. *Applied sciences*, 2021, v. 11, p. 9739, DOI:10.3390/app11209739.
3. Dopazo C., O'Brien E.E. An approach to the autoignition of a turbulent mixture. *Acta Astronautica*, 1974, v. 1, pp. 1239-1266, DOI:10.1016/0094-5765(74)90050-2.
4. Fernandez A., Rabitz H. Stochastic theory of ignition processes. *International journal of theoretical physics*, 1987, v. 26, pp. 1093-1105, DOI: 10.1007/BF00669364.
5. Lackmann T., Hewson J.C., Knaus R.C. et al. Stochastic modeling of unsteady extinction in turbulent non-premixed combustion. *Proceedings of the combustion institute*, 2017, v. 36, iss. 2, pp. 1677-1684, DOI:10.1016/j.proci.2016.07.014.
6. Frankowicz M., Mansour M.M., Nicolis G. Stochastic analysis of explosive behaviour: A qualitative approach. *Physica*, 1984, v. 125, iss. 1, pp. 237-246, DOI:10.1016/0378-4371(84)90011-6.
7. van Kampen N.G. Intrinsic fluctuations in explosive reactions. *Journal of statistical physics*, 1987, v. 46, pp. 933-948, DOI:10.1007/BF01011150.
8. Baras F., Nicolis G., Mansour M.M., Turner J.W. Stochastic theory of adiabatic explosion. *Journal of statistical physics*, 1983, v. 32, pp. 1-23, DOI:10.1007/BF01009416.
9. de Pasquale F., Mecozzi A. Theory of chemical fluctuations in thermal explosions. *Physical Review A*, 1985, v. 31, p. 2454. DOI:10.1103/PhysRevA.31.2454.
10. Vlad M.O., Ross J. A stochastic approach to nonequilibrium chain reactions in disordered systems: Breakdown of eikonal approximation. *International journal of thermophysics*, 1997, v. 18, pp. 957-975, DOI:10.1007/BF02575241.
11. Gorecki J., Popielawski J. On the stochastic theory of adiabatic thermal explosion in small systems – Numerical results. *Journal of statistical physics*, 1986, v. 44, pp. 941-954, DOI:10.1007/BF01011916.



12. Gorecki J., Gryko J. The adiabatic thermal explosion in a small system: Comparison of the stochastic approach with the molecular dynamics simulation. *Journal of statistical physics*, 1987, v. 48, pp. 329-342, DOI:10.1007/BF01010412.
13. Vlachos D.G. Stochastic modeling of chemical microreactors with detailed kinetics – induction times and ignitions of H<sub>2</sub> in air. *Chemical engineering science*, 1998, v. 53, pp. 157-168, DOI:10.1016/S0009-2509(97)00275-3.
14. Chou D.-P., Lackner T., Yip S. Fluctuation effects in models of adiabatic explosion. *Journal of statistical physics*, 1992, v. 69, pp. 193-215, DOI:10.1007/BF01053790.
15. Saceres M.O., Nicolis G., Budde C.E. About the shift between the advanced and delayed thermal explosion times. *Chaos, solitons & fractals*, 1995, v. 6, pp. 51-57, DOI:10.1016/0960-0779(95)80010-E.
16. Fedotov S.P., Tret'yakov M.V. Stochastic criteria for ignition of single particles. *Combustion science and technology*, 1991, v. 78, pp. 1-6, DOI:10.1080/00102209108951737.
17. van Kampen N.G. *Stochastic processes in physics and chemistry*. Amsterdam, Elsevier, 1992, 480 p.
18. Derevich I., Galdina D. Simulation of thermal explosion of catalytic granule in fluctuating temperature. *Applied mathematics and physics*, 2013, v. 1, pp. 1-7, DOI:10.4236/jamp.2013.15001.
19. Буевич Ю.А. Формирование режимов гетерогенной реакции под воздействием мультипликативного шума / Ю.А. Буевич, С.П. Федотов // *Инженерно-физический журнал*, 1987. – Т. 53. – № 5. – С. 802-807.
20. Nowakowski B., Lemarchand A. Thermal explosion near bifurcation: stochastic features of ignition. *Physica A: Statistical mechanics and its applications*, 2002, v. 311, pp. 80-96, DOI:10.1016/S0378-4371(02)00824-5.
21. Fernandez A., Rabitz H. The scaling of nonequilibrium fluctuations in gaseous thermal explosions. *Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie*, 1988, v. 92, no. 6, pp. 754-760, DOI: 10.1002/bbpc.198800184.
22. Baer M.R., Gartling D.K., Desjardin P.E. Probabilistic models for reactive behaviour in heterogeneous condensed phase media. *Combustion theory and modelling*, 2012, v. 16, pp. 75-106, DOI:10.1080/13647830.2011.606916.
23. Fedotov S.P. Statistical model of the thermal ignition of a distributed system. *Combustion and flame*, 1992, v. 91, no. 1, pp. 65-70, DOI:10.1016/0010-2180(92)90127-B.
24. Fedotov S.P. Stochastic analysis of the thermal ignition of a distributed explosive system. *Physics letters A*. – 1993, v. 176, pp. 220-224, DOI:10.1016/0375-9601(93)91038-7.
25. Донской И.Г. Стационарное уравнение теплового взрыва в среде с распределенной энергией активации: численное решение и приближения / И.Г. Донской // *iPolytech Journal*, 2022. – Т. 26. – № 4. – С. 626-639. – DOI: 10.21285/1814-3520-2022-4-626-639.
26. Sofekun O.A., Rollins D.K., Doraiswamy L.K. A random particle model for catalyst dilution. *Chemical engineering science*, 1994, v. 49, iss. 16, pp. 2611-2620, DOI:10.1016/0009-2509(94)E0053-S.
27. Calverley E.M., Witt P.M., Sweeney J.D. Reactor runaway due to statistically driven axial activity variations in graded catalyst beds. *Chemical engineering science*, 2012, v. 80, pp. 393-401, DOI:10.1016/j.ces.2012.06.047.
28. Du Y., Wang C., Che D., Mathews J.P. The influence of char particle morphology on char burnout behavior by atomistic simulation. *Fuel*, 2022, v. 314, p. 123129, DOI:10.1016/j.fuel.2022.123129.
29. Goroshin S., Palecka J., Bergthorson J.M. Some fundamental aspects of laminar flames in nonvolatile solid fuel suspensions. *Progress in energy and combustion science*, 2022, v. 91, p. 100994, DOI:10.1016/j.peccs.2022.100994.
30. Рашковский С.А. Очаговое горение гетерогенных конденсированных смесей. Тепловая перколяция / С.А. Рашковский // *Физика горения и взрыва*, 2005. – Т. 41. – № 1. – С. 41-54.
31. Гринчук П.С. Влияние стохастичности пространственного распределения частиц газозвеси на распространение фронта пламени / П.С. Гринчук // *Физика горения и взрыва*, 2014. – Т. 50. – № 3. – С. 32-42.
32. Schiulaz M., Laumann C.R., Balatsky A.V., Spivak B.Z. Theory of deflagration in disordered media. *Physical Review E*, 2017, v. 95, p. 032103, DOI: 10.1103/PhysRevE.95.032103.
33. Oberlack M., Arlitt R., Peters N. On stochastic Damkohler number variations in a homogeneous flow reactor. *Combustion theory and modelling*, 2000, v. 4, p. 495, DOI: 10.1088/1364-7830/4/4/307.
34. Chen J.-Y. Stochastic modeling of partially stirred reactors. *Combustion science and technology*, 1997, v. 122, pp. 63-94, DOI:10.1080/00102209708935605.
35. Iavarone S., Pequin A., Chen Z.X. et al. An a priori assessment of the Partially Stirred Reactor (PaSR) model for MILD combustion. *Proceedings of the combustion institute*, 2021, v. 38, iss. 4, pp. 5403-5414, DOI:10.1016/j.proci.2020.06.234.
36. Медведев В.Г. Статистический анализ кинетики адиабатического теплового взрыва / В.Г. Медведев, В.Г. Телегин, Г.Г. Телегин // *Физика горения и взрыва*, 2009. – № 3. – С. 44-48.
37. Fischer M., Vignes A. An imprecise bayesian approach to thermal runaway probability. *Proceedings of the 12th International symposium on imprecise probability: Theories and applications (PMLR)*, 2021, v. 147, pp 150-160.
38. Деревич И.В. Математическая модель катализатора синтеза с локальными центрами реакции / И.В. Деревич, А.Ю. Фокина // *Математика и математическое моделирование*, 2017. – № 3. – С. 13-31.

39. Derevich I.V., Ermolaev V.S., Mordkovich V.Z. et al. Heat and mass transfer in Fischer–Tropsch catalytic granule with localized cobalt microparticles. *Journal of heat and mass transfer*, 2018, v. 121, pp. 1335-1349, DOI:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.01.077.
40. Франк-Каменецкий Д.А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике / Д.А. Франк-Каменецкий. – М.: Наука, 1987. – 502 с.
41. Колесников А.К. Тепловой взрыв в слое реагирующей жидкости, ограниченном массивами разной теплопроводности / А.К. Колесников // *Физика горения и взрыва*. – 1984. – № 2. – С. 91-94.
42. Gainutdinov R.S. Conjugate problem of thermal explosion. *Journal of engineering physics and thermophysics*, 1999, v. 72, pp. 181-185, DOI:10.1007/BF02699135.
43. Козлова М.А. Построение графа химических реакций для анализа реагирующих систем / М.А. Козлова, В.А. Шаманский // *Информационные и математические технологии в науке и управлении*, 2022. – № 4. – С. 108-118, DOI:10.38028/ESI.2022.28.4.008.

*Донской Игорь Геннадьевич. Кандидат технических наук, старший научный сотрудник лаборатории термодинамики ИСЭМ СО РАН, AuthorID: 670547, SPIN: 9616-0926, ORCID: 0000-0003-2309-8461, donskey.chem@mail.ru.*

*Гросс Егор Иванович. Студент ИрНИТУ, кафедра радиоэлектроники и телекоммуникационных систем, 664033, Россия, г. Иркутск, ул. Лермонтова, 130.*

UDC 544.45; 519.245

DOI:10.25729/ESI.2024.33.1.006

## Numerical analysis of thermal ignition statistics in a stochastic reacting medium

Igor G. Donskoy<sup>1</sup>, Egor I. Gross<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Melentiev Energy Systems Institute SB RAS,  
Russia, Irkutsk, *donskey.chem@mail.ru*

<sup>2</sup>National Research Irkutsk State Technical University, Russia, Irkutsk

**Abstract.** In this work, we use numerical modeling, to study the behavior of reacting media with a stochastic spatial distribution of reactivity. The aim is to determine the boundaries of thermal stability and ignition behavior under supercritical conditions for such systems. These problems are solved numerically using the Monte Carlo method. The simulation results are analyzed and the statistical characteristics of ignition processes in stationary and non-stationary settings are assessed. The results of the work can be useful in analyzing the behavior of chemical systems with a random distribution of reacting components.

**Keywords:** stochastic process, thermal explosion, critical conditions, mathematical modeling

**Acknowledgements:** The research was carried out under State Assignment Project (no. FWEU-2021-0005) of the Fundamental Research Program of Russian Federation 2021-2030 using the resources of the High-Temperature Circuit Multi-Access Research Center (Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation, project no 13.СКР.21.0038).

### References

1. Ganzer G., Freund H. Influence of statistical activity variations in diluted catalyst beds on the thermal reactor behavior: Derivation of an a priori criterion. *Chemical engineering science*, 2020, v. 220, p. 115607, DOI: 10.1016/j.ces.2020.115607.
2. Hareli S., Nave O., Gol'dshtein V. The evolutions in time of probability density functions of polydispersed fuel spray – The continuous mathematical model. *Applied sciences*, 2021, v. 11, p. 9739, DOI:10.3390/app11209739.
3. Dopazo C., O'Brien E.E. An approach to the autoignition of a turbulent mixture. *Acta Astronautica*, 1974, v. 1, pp. 1239-1266, DOI:10.1016/0094-5765(74)90050-2.
4. Fernandez A., Rabitz H. Stochastic theory of ignition processes. *International journal of theoretical physics*, 1987, v. 26, pp. 1093-1105, DOI: 10.1007/BF00669364.
5. Lackmann T., Hewson J.C., Knaus R.C. et al. Stochastic modeling of unsteady extinction in turbulent non-premixed combustion. *Proceedings of the combustion institute*, 2017, v. 36, iss. 2, pp. 1677-1684, DOI:10.1016/j.proci.2016.07.014.

6. Frankowicz M., Mansour M.M., Nicolis G. Stochastic analysis of explosive behaviour: A qualitative approach. *Physica*, 1984, v. 125, iss. 1, pp. 237-246, DOI:10.1016/0378-4371(84)90011-6.
7. van Kampen N.G. Intrinsic fluctuations in explosive reactions. *Journal of statistical physics*, 1987, v. 46, pp. 933-948, DOI:10.1007/BF01011150.
8. Baras F., Nicolis G., Mansour M.M., Turner J.W. Stochastic theory of adiabatic explosion. *Journal of statistical physics*, 1983, v. 32, pp. 1-23, DOI:10.1007/BF01009416.
9. de Pasquale F., Mecozzi A. Theory of chemical fluctuations in thermal explosions. *Physical Review A*, 1985, v. 31, p. 2454. DOI:10.1103/PhysRevA.31.2454.
10. Vlad M.O., Ross J. A stochastic approach to nonequilibrium chain reactions in disordered systems: Breakdown of eikonal approximation. *International journal of thermophysics*, 1997, v. 18, pp. 957-975, DOI:10.1007/BF02575241.
11. Gorecki J., Popielawski J. On the stochastic theory of adiabatic thermal explosion in small systems – Numerical results. *Journal of statistical physics*, 1986, v. 44, pp. 941-954, DOI:10.1007/BF01011916.
12. Gorecki J., Gryko J. The adiabatic thermal explosion in a small system: Comparison of the stochastic approach with the molecular dynamics simulation. *Journal of statistical physics*, 1987, v. 48, pp. 329-342, DOI:10.1007/BF01010412.
13. Vlachos D.G. Stochastic modeling of chemical microreactors with detailed kinetics – induction times and ignitions of H<sub>2</sub> in air. *Chemical engineering science*, 1998, v. 53, pp. 157-168, DOI:10.1016/S0009-2509(97)00275-3.
14. Chou D.-P., Lackner T., Yip S. Fluctuation effects in models of adiabatic explosion. *Journal of statistical physics*, 1992, v. 69, pp. 193-215, DOI:10.1007/BF01053790.
15. Caceres M.O., Nicolis G., Budde C.E. About the shift between the advanced and delayed thermal explosion times. *Chaos, solitons & fractals*, 1995, v. 6, pp. 51-57, DOI:10.1016/0960-0779(95)80010-E.
16. Fedotov S.P., Tret'yakov M.V. Stochastic criteria for ignition of single particles. *Combustion science and technology*, 1991, v. 78, pp. 1-6, DOI:10.1080/00102209108951737.
17. van Kampen N.G. *Stochastic processes in physics and chemistry*. Amsterdam, Elsevier, 1992, 480 p.
18. Derevich I., Galdina D. Simulation of thermal explosion of catalytic granule in fluctuating temperature. *Applied mathematics and physics*, 2013, v. 1, pp. 1-7, DOI:10.4236/jamp.2013.15001.
19. Buyevich Yu.A., Fedotov S.P. Formirovaniye rezhimov geterogennoj reaktivnoy pod vozdeystviem mul'tiplikativnogo shuma [Formation of heterogeneous reaction modes under the influence of multiplicative noise]. *Inzhenerno-fizicheskiy zhurnal [Engineering-physical journal]*, 1987, v. 53, no. 5, pp. 802-807.
20. Nowakowski B., Lemarchand A. Thermal explosion near bifurcation: stochastic features of ignition. *Physica A: Statistical mechanics and its applications*, 2002, v. 311, pp. 80-96, DOI:10.1016/S0378-4371(02)00824-5.
21. Fernandez A., Rabitz H. The scaling of nonequilibrium fluctuations in gaseous thermal explosions. *Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie*, 1988, v. 92, no. 6, pp. 754-760, DOI: 10.1002/bbpc.198800184.
22. Baer M.R., Gartling D.K., Desjardin P.E. Probabilistic models for reactive behaviour in heterogeneous condensed phase media. *Combustion theory and modelling*, 2012, v. 16, pp. 75-106, DOI:10.1080/13647830.2011.606916.
23. Fedotov S.P. Statistical model of the thermal ignition of a distributed system. *Combustion and flame*, 1992, v. 91, no. 1, pp. 65-70, DOI:10.1016/0010-2180(92)90127-B.
24. Fedotov S.P. Stochastic analysis of the thermal ignition of a distributed explosive system. *Physics letters A*. – 1993, v. 176, pp. 220-224, DOI:10.1016/0375-9601(93)91038-7.
25. Donskoy I.G. Statsionarnoye uravneniye teplovogo vzryva v srede s raspredelennoy energiyey aktivatsii: chislennoye resheniye i priblizheniya [Steady-state equation of thermal explosion in a distributed activation energy medium: numerical solution and approximations]. *iPolytech Journal*, 2022, v. 26, no. 4, pp. 626-639, DOI:10.21285/1814-3520-2022-4-626-639.
26. Sofekun O.A., Rollins D.K., Doraiswamy L.K. A random particle model for catalyst dilution. *Chemical engineering science*, 1994, v. 49, iss. 16, pp. 2611-2620, DOI:10.1016/0009-2509(94)E0053-S.
27. Calverley E.M., Witt P.M., Sweeney J.D. Reactor runaway due to statistically driven axial activity variations in graded catalyst beds. *Chemical engineering science*, 2012, v. 80, pp. 393-401, DOI:10.1016/j.ces.2012.06.047.
28. Du Y., Wang C., Che D., Mathews J.P. The influence of char particle morphology on char burnout behavior by atomistic simulation. *Fuel*, 2022, v. 314, p. 123129, DOI:10.1016/j.fuel.2022.123129.
29. Goroshin S., Palecka J., Bergthorson J.M. Some fundamental aspects of laminar flames in nonvolatile solid fuel suspensions. *Progress in energy and combustion science*, 2022, v. 91, p. 100994, DOI:10.1016/j.pecs.2022.100994.
30. Rashkovskiy S.A. Ochagovoe gorenje geterogennykh kondensirovannykh smesey. Teplovaya perkoljatsiya [Focal combustion of heterogeneous condensed mixtures. Thermal percolation]. *Fizika gorenija i vzryva [Combustion, Explosion and Shock Waves]*, 2005, v. 41, no. 1, pp. 41-54.

31. Grinchuk P.S. Vlijanie stokhastichnosti prostranstvennogo raspredelenija chastits gazovzvesi na rasprostranenie fronta plameni [Effect of stochasticity of the spatial distribution of particles in a gas suspension on combustion front propagation]. Fizika gorenija i vzryva [Combustion, Explosion and Shock Waves], 2014, v. 50, no. 3, pp. 32-42
32. Schiulaz M., Laumann C.R., Balatsky A.V., Spivak B.Z. Theory of deflagration in disordered media. Physical Review E, 2017, v. 95, p. 032103, DOI: 10.1103/PhysRevE.95.032103.
33. Oberlack M., Arlitt R., Peters N. On stochastic Damkohler number variations in a homogeneous flow reactor. Combustion theory and modelling, 2000, v. 4, p. 495, DOI: 10.1088/1364-7830/4/4/307.
34. Chen J.-Y. Stochastic modeling of partially stirred reactors. Combustion science and technology, 1997, v. 122, pp. 63-94, DOI:10.1080/00102209708935605.
35. Iavarone S., Pequin A., Chen Z.X. et al. An a priori assessment of the Partially Stirred Reactor (PaSR) model for MILD combustion. Proceedings of the combustion institute, 2021, v. 38, iss. 4, pp. 5403-5414, DOI:10.1016/j.proci.2020.06.234.
36. Medvedev V.G., Telegin V.G., Telegin G.G. Statisticheskij analiz kinetiki adiabaticheskogo teplovogo vzryva [Statistical analysis of kinetics of an adiabatic thermal explosion]. Fizika gorenija i vzryva [Combustion, explosion and shock waves], 2009, no. 3, pp. 44-48.
37. Fischer M., Vignes A. An imprecise bayesian approach to thermal runaway probability. Proceedings of the 12th International symposium on imprecise probability: Theories and applications (PMLR), 2021, v. 147, pp 150-160.
38. Derevich I.V., Fokina A.Ju. Matematicheskaja model' katalizatora sinteza s local'nymi tsentrami reaktsii [Mathematical model of synthesis catalyst with local reaction centers]. Matematika i matematicheskoe modelirovanie [Mathematics I mathematical modelling], 2017, no 3, pp. 13-31, DOI:10.24108/mathm.0317.0000071.
39. Derevich I.V., Ermolaev V.S., Mordkovich V.Z. et al. Heat and mass transfer in Fischer–Tropsch catalytic granule with localized cobalt microparticles. Journal of heat and mass transfer, 2018, v. 121, pp. 1335-1349, DOI:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.01.077.
40. Frank-Kamenetskii D.A. Diffuzija i teploperedacha v khimicheskij kinetike [Diffusion and heat transfer in chemical kinetics]. Moscow, Nauka [Science], 1987, 502 p.
41. Kolesnikov A.K. Teplovoj vzryv v sloe reagirujuschej zhidkosti, ogranichennoj massivami raznoj teplovopodnosti [Thermal explosion in a layer of reacting liquid bounded by arrays of different thermal conductivities]. Fizika gorenija i vzryva [Combustion, explosion and shock waves], 1984, no. 2, pp. 91-94.
42. Gainutdinov R.S. Conjugate problem of thermal explosion. Journal of engineering physics and thermophysics, 1999, v. 72, pp. 181-185, DOI:10.1007/BF02699135.
43. Kozlova M.A., Shamanskij V.A. Postroenie grafa khimicheskikh reaktsij dlja analiza reagirujuschikh system [Application of graphs for the analysis of the mechanism of chemical kinetics]. Informatsionnye i matematicheskie tekhnologii v nauke i upravlenii [Information and mathematical technologies in science and management], 2022, no. 4, pp. 108-118, DOI:10.38028/ESI.2022.28.4.008.

**Donskoy Igor Gennad'evich.** Candidate of sciences (Eng.), senior researcher in the laboratory of Thermodynamics of Melentiev energy systems institute, AuthorID: 670547, SPIN: 9616-0926, ORCID: 0000-0003-2309-8461, [donskoy.chem@mail.ru](mailto:donskoy.chem@mail.ru).

**Gross Egor Ivanovich.** Student in Irkutsk state technical university. 664033, Russia, Irkutsk, Lermontova st., 130.

Статья поступила в редакцию 18.10.2023; одобрена после рецензирования 08.02.2024; принята к публикации 05.03.2024.

The article was submitted 10/18/2023; approved after reviewing 02/08/2024; accepted for publication 03/05/2024.