

УДК 614.8.028

## ВИКОРИСТАННЯ CFD-МОДЕЛЮВАННЯ ДЛЯ ОЦІНЮВАННЯ ПАРАМЕТРІВ ПОШИРЕННЯ ХІМІЧНИХ РЕЧОВИН

<https://doi.org/10.33269/nvz.2023.2.173-179>

Огурцов С. Ю., ORCID iD 0000-0003-3224-9436  
E-mail: kafedracz@ukr.net

*Інститут державного управління та наукових досліджень з цивільного захисту, Україна*

### ІНФОРМАЦІЯ ПРО СТАТТЮ

Надійшла до редакції:

11.04.2023

Пройшла рецензування:

02.05.2023

### КЛЮЧОВІ СЛОВА:

небезпечна хімічна речовина,  
зона хімічного забруднення,  
глибина поширення  
вторинної хмари, хлор,  
ALOHA, FDS.

### АНОТАЦІЯ

Стаття присвячена оцінці можливості застосування програмного забезпечення, призначеного для моделювання пожеж Fire Dynamic Simulator (далі – FDS), з метою моделювання та надання оцінки поширенню небезпечних хімічних речовин у просторі у разі розрахункової аварії. Розглянуто варіант розрахункової аварії, пов'язаної з виливом рідкого хлору та його подальшим випаровуванням з поверхні розливу. Отримані дані порівняно з результатами розрахунку, виконаного за допомогою програмного забезпечення «ALOHA». Визначено, що програмне забезпечення FDS може бути застосовано для CFD-моделювання газового середовища у разі невеликих аварій з викидом / виливом небезпечних хімічних речовин через моделювання частини простору у декілька кілометрів. Однак необхідно використовувати додаткові алгоритми щодо визначення інтенсивності викиду небезпечних хімічних речовин, наприклад у разі їх випаровування, що не можуть бути безпосередньо реалізовані засобами FDS. Результати максимальних значень концентрації небезпечної хімічної речовини у просторі, отримані за допомогою FDS, значно відрізняються від даних, отриманих за допомогою програмного забезпечення ALOHA. Співвідношення розрахункових концентрацій НХР досягає 1300% із збільшенням відстані від джерела випаровування. Розсіювання хмари НХР, змодельованої за допомогою FDS, відбувається значно повільніше, ніж для хмари, розрахованої за допомогою ALOHA. Зазначене може бути пов'язано з відсутністю досвіду моделювання атмосферних процесів в FDS, необхідністю уточнення вітрових профілів, граничних умов моделі. Надалі перспективним може бути проведення досліджень щодо моделювання атмосферних процесів та порівняльного аналізу між розрахунковими значеннями параметрів поширення небезпечних хімічних речовин, отриманих із використанням CFD-моделювання, та даними за результатом прямих вимірювань під час експериментальних досліджень.

**Постановка проблеми.** Нині в Україні для оцінки можливої хімічної обстановки та прогнозування масштабів забруднення в разі виникнення аварійних ситуацій, пов'язаних із поширенням в атмосфері небезпечних хімічних речовин (далі – НХР) використовується «Методика прогнозування наслідків виливу (викиду) небезпечних хімічних речовин під час аварій на хімічно небезпечних об'єктах і транспорті» [1], яка замінила попередню методику [2], що своєю чергою стала

чинною з 2001 року. Загальною ознакою цих двох методик [1–2] є застосування підходу, що передбачає використання попередньо розрахованих таблиць, які ув'язують вид небезпечної хімічної речовини (далі – НХР), її масу (яка потрапляє у навколишнє середовище), швидкість вітру та ступінь вертикальної стійкості атмосфери. Потім за допомогою застосування коефіцієнтів, враховуючих співвідношення мас НХР до наведених в таблиці, типу рельєфу місцевості

визначаються глибини поширення первинної та/або вторинної хмари НХР. Необхідно зауважити, що оновлена Методика [1], окрім табличних даних, містить, зокрема й формули, за якими можливо провести розрахунок зазначених вище глибин поширення НХР. Такі формули базуються на найбільш простих залежностях теплофізики та емпіричних залежностях, що дає змогу оцінити розподіл маси НХР між первинною та вторинною хмарами, а також виконати розрахунок швидкості випаровування НХР з поверхні розливу.

Порівнюючи Методику [1] із розрахунковими методами з допомогою таких програмних засобів, як «ALOHA», «PHAST KORA» стає зрозумілим, що такий спрощений підхід не враховує значну кількість факторів, які принципово впливають на результати розрахунку, серед яких: тип витoku (розлив, трубопровід, форма резервуара, розмір отвору пошкодження тощо). Крім того, наведені моделі розрахунку не враховують особливостей рельєфу місцевості, крім загальних коефіцієнтів.

Використання табличного методу дає змогу отримати результат, хоча і відносно наближений, у досить короткий проміжок часу, що є дуже важливим у разі аварійного прогнозування безпосередньо на місці події. Але на сьогодні обчислювальні засоби дають можливість проводити розрахунок у відносно невеликий час, а у разі довгострокового прогнозування час виконання розрахунку взагалі відходить на другорядну позицію.

Отже, цікавим та перспективним є оцінка можливості застосування програмного забезпечення, призначеного для проведення CFD-моделювання газового середовища, що дає змогу визначати концентрації його складових безпосередньо в кожній точці простору, який моделюється. Крім того, такі програмні засоби допомагають змодельовувати як 3D рельєф місцевості, так і розташування будівель та споруд, що потрапляють у зону хімічного ураження.

**Аналіз останніх досліджень і публікацій.** Робота [3] дослідників із США була присвячена порівняльному аналізу 14 моделей розрахунку зон хімічного забруднення, а саме – «ADAM», «AFTOX», «ALOHA», «Britter and McQuaid», «DEGADIS», «HEGADAS», «OB/DG і SLAB», «CHARM», «EАНАР», «PHAST», «SAFETI», «TRACE і WHAZAN». Отримані прогнози максимальних концентрацій мали середні похибки +/- 30% або менше.

Порівняльному аналізу результатів розрахунку меж зон хімічного забруднення із використанням програмних засобів «ALOHA», «PHAST KORA» присвячена стаття південнокорейських авторів Lee H., Sohn J. [4]. У статті розглянуто питання розрахунку глибини поширення 5 різних НХР у разі аварії у різні пори року. За даними авторів, результати розрахунків відрізнялись до 1400% залежно від пори року та виду НХР. Визначено, що для аварій, пов'язаних з азотною кислотою та аміаком, найкращим вибором була ALOHA, тоді як KORA була більш точною для аварій, пов'язаних із хлористим воднем і сірчаною кислотою, а PHAST – для аварій, пов'язаних із формальдегідом.

У технічному звіті [5] підсумовуються результати оцінювання модуля «ADAM», розробленого Спільним дослідницьким центром ЄС. Оцінювання проведено за серією відповідних сценаріїв через порівняння результатів ADAM з результатами, отриманими за допомогою аналогічних програмних засобів, і з експериментальними даними, отриманими в серії польових досліджень. Порівняння проведено за багатьма варіантами аварій із використанням різноманітних фізичних моделей (устаткування зі стисненими газами, трубопроводи, розлив НХР, пожежі розливів та струменів, вибух парів речовин тощо).

**Формулювання цілей дослідження.** За мету дослідження ставилось визначення можливості застосування програмного забезпечення Fire Dynamic Simulator [6] для проведення моделювання поширення НХР у просторі

під час розрахункової аварії та порівняння отриманих значень із розрахованими за допомогою програмного забезпечення для оцінки ризиків аварій, що супроводжуються викидом НХР ALOHA® (Areal Locations of Hazardous Atmospheres) [7], яке розроблено агентством захисту навколишнього середовища (EPA) США.

Для досягнення зазначеного поставлено такі завдання:

- розробити сценарій умовної аварії, що може бути змодельований за допомогою FDS та ALOHA;
- провести моделювання та розрахунок сценарію;
- проаналізувати отримані дані концентрацій НХР.

**Методи дослідження.** В межах цієї роботи для оцінки параметрів поширення небезпечних хімічних речовин, а саме: значень концентрації НХР на різних відстанях, візуалізації концентрації на площах поперечних перетинів використано програмне забезпечення «Fire Dynamics Simulator» [6], яке призначене насамперед для моделювання процесів тепломасоперенесення в умовах пожежі, але й здатне визначати розподіл концентрацій газових речовин у повітрі, за умови їх надходження у модель із заданими користувачем витратами. FDS реалізує обчислювальну гідродинамічну модель (CFD) тепломасоперенесення у разі горіння на основі польового методу моделювання. FDS чисельно вирішує рівняння Нав'є-Стокса для низькошвидкісних температурно-залежних потоків. Водночас особлива увага приділяється поширенню диму і теплопередачі під час пожежі. Модель являє собою систему рівнянь у частинних похідних, що містить рівняння збереження маси, моменту та енергії і вирішується на тривимірній постійній сітці.

Для порівняння отриманих за допомогою FDS даних розподілу концентрації НХР в часі та просторі, а також для визначення параметрів випаровування НХР використано програмне забезпечення «ALOHA».

### Виклад основного матеріалу.

Для проведення обчислювальних експериментів вибрано таку НХР, як хлор ( $\text{Cl}_2$ ). Обрання такої речовини визначалось її поширенням у технологічних процесах, зокрема на водоочисних станціях для знезараження питної води, простій молекулярній будові та відомих даних про її токсичний вплив. Крім того, у газоподібному стані хлор є важчим за повітря, тобто хмара НХР буде перебувати у приземному шарі атмосфери. Це дає змогу обмежити вертикальну складову простору, що моделюється.

Враховуючи, що FDS не здатний моделювати високошвидкісні потоки, що супроводжують вибух та руйнування обладнання, яке перебуває під тиском, у межах цієї роботи розглядався варіант аварії, пов'язаний із розливом рідкого, охолодженого до  $-35\text{ }^\circ\text{C}$  хлору на ґрунт та його подальше кипіння та випаровування. В цьому разі можемо розглядати поширення лише вторинної хмари НХР.

Маса розлитої НХР становить 10 кг, площа розливу  $1\text{ м}^2$ .

Стан атмосфери – інверсія, температура повітря  $20\text{ }^\circ\text{C}$ . ALOHA враховує в розрахунку географічні координати місця аварії, час доби, розраховуючи кут нахилу сонячних променів та їх вплив на нагрів земної поверхні та відповідно на стан стабільності атмосферного повітря. З огляду на це час події визначаємо як 00 год 00 хв, 22 червня. Вітер зі швидкістю 1 м/с. Напрямок вітру  $270\text{ }^\circ$ .

Вихідні параметри місця, речовини, атмосферних умов та джерела НХР для ALOHA визначені нижче.

#### SITE DATA:

Location: VISTA, CALIFORNIA

Building Air Exchanges Per Hour: 0.13 (unsheltered double storied)

Time: June 22, 2023 0000 hours PDT (user specified)

#### CHEMICAL DATA:

Chemical Name: CHLORINE

CAS Number: 7782-50-5 Molecular Weight: 70.91 g/mol

AEGL-1 (60 min): 0.5 ppm AEGL-2 (60 min): 2 ppm AEGL-3 (60 min): 20 ppm

IDLH: 10 ppm

Ambient Boiling Point:  $-34.3\text{ }^\circ\text{C}$

Vapor Pressure at Ambient Temperature: greater than 1 atm

Ambient Saturation Concentration: 1,000,000 ppm or 100.0%

#### ATMOSPHERIC DATA: (MANUAL INPUT OF DATA)

Wind: 1 meters/second from  $270\text{ }^\circ$  true at 3 meters

Ground Roughness: open country Cloud Cover: 0 tenths  
 Air Temperature: 20° C Stability Class: F  
 Inversion Height: 10 meters Relative Humidity: 50%

**SOURCE STRENGTH:**

Evaporating Puddle  
 Puddle Area: 1 square meters Puddle Mass: 10 kilograms  
 Ground Type: Default soil Ground Temperature: 20° C  
 Initial Puddle Temperature: -35° C  
 Release Duration: 3 minutes  
 Max Average Sustained Release Rate: 6.14 kilograms/min  
 (averaged over a minute or more)  
 Total Amount Released: 10.00 kilograms

Після введення вихідних даних в ALOHA є можливість визначити зміну масової швидкості випаровування НХР з ґрунту в часі, яка наведена на рис. 1.

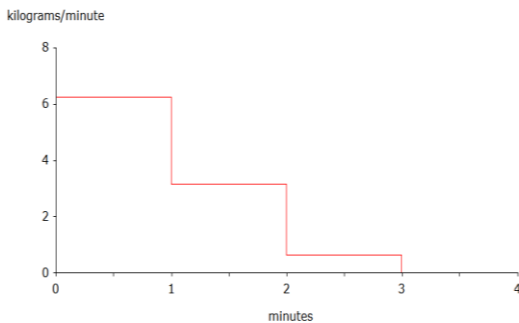


Рисунок 1– Зміна масової швидкості випаровування Cl<sub>2</sub> з поверхні розливу у часі, визначена за допомогою ALOHA

Моделювання випаровування розливу хлору із використанням програмного

забезпечення «FDS» проводилось з огляду на дані, наведені на рис. 1.

Емісія Cl<sub>2</sub> в атмосферу розглядалась як уприскування газу через горизонтальну площину з такими характеристиками опису поверхні SURF:

```
&SURF ID='My source',
  RGB=26,204,26,
  PROFILE='ATMOSPHERIC',
  MASS_FLUX=0.167,
  SPEC_ID='CHLORINE',
  RAMP_MF='My source_RAMP_MF/'
&RAMP ID='My source_RAMP_MF', T=0.0, F=0.614/
&RAMP ID='My source_RAMP_MF', T=59.0, F=0.614/
&RAMP ID='My source_RAMP_MF', T=60.0, F=0.31/
&RAMP ID='My source_RAMP_MF', T=119.0, F=0.31/
&RAMP ID='My source_RAMP_MF', T=120.0, F=0.065/
&RAMP ID='My source_RAMP_MF', T=180.0, F=0.065/
&RAMP ID='My source_RAMP_MF', T=181.0, F=0.0/
```

Розміри обчислювальної сітки склали 1400 м × 600 м × 10 м, розмір чарунок становив 0,5 м для сітки в зоні поверхні емісії та 1 м – для інших зон. Загальна кількість чарунок обчислювальної сітки становила 17 151 000 од. Вітер у розрахунковій зоні задавався за допомогою вбудованої FDS-функції &WIND.

Вимірювання концентрації НХР проводилась за допомогою точкових вимірювачів, розташованих у моделі на відстані 1 м від нижньої межі сітки (рівня ґрунту) (рис. 2).

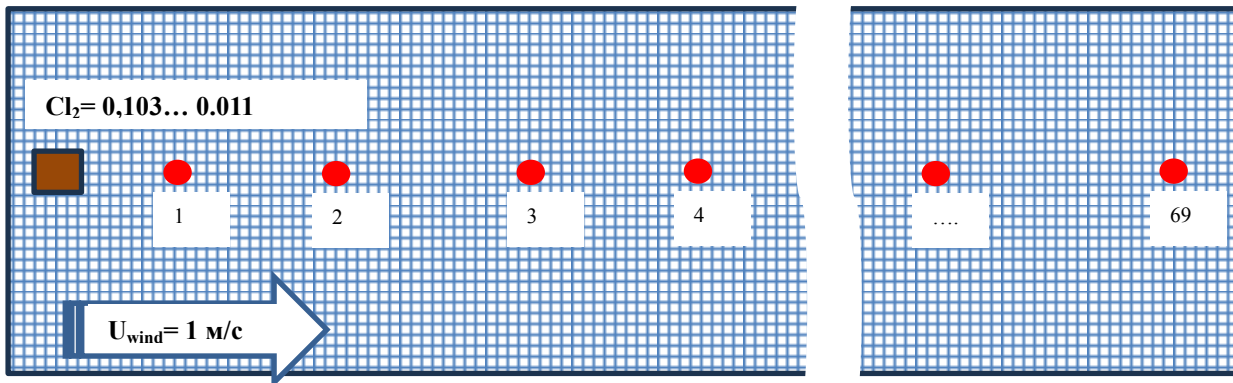


Рисунок 2– Розташування точкових вимірювачів концентрації Cl<sub>2</sub> у внутрішньому об’ємі моделі

Перший вимірювач розташовувався у 15 м від краю поверхні розливу, наступні – через кожні 20 м. Розташування точкових вимірювачів збіглося з віссю напрямку вітру (270 °). Загальна кількість таких

вимірювачів становила 69 од. Моделювання проводилось протягом 2700 с.

Процес розрахунку моделі, що містить обчислювальну сітку таких розмірів, потребував більше 44 ГБ оперативної пам'яті та 44 процесорні ядра (відповідно до поділу обчислювальної сітки), але водночас, враховуючи невелику швидкість газових потоків у моделі, шаг розрахунку становив близько 30 с, що дало змогу провести моделювання за час, який не перевищував 12 год.

Зовнішній вигляд слайсів розподілу концентрації  $Cl_2$  в моделі на висоті 1 м, що візуалізовано за допомогою програмного забезпечення «Pyrosim Results», наведено на рис. 3. Pyrosim Results використано внаслідок того, що в ньому на відміну від Smokeview є можливість легко встановлювати вручну верхні та нижні діапазони візуалізації значень фізичних величин.

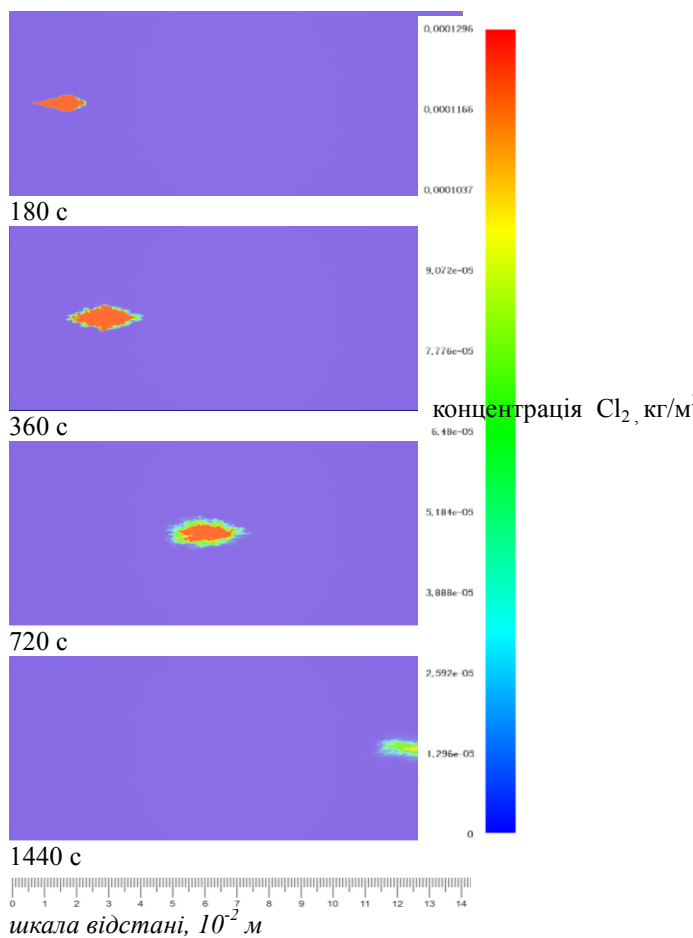


Рисунок 3 – Візуалізація руху хмари  $Cl_2$  з концентрацією  $PC_{t50}=129,6$  мг/м<sup>3</sup> у внутрішньому об'ємі моделі

З огляду на дані, наведені на рис. 3, концентрація  $Cl_2$ , що відповідає

граничному значенню токсодози  $PC_{t50}=129,6$  мг/м<sup>3</sup> зберігається до відстані 1100 м, але у досить невеликій порівняно із розмірами хмари НХР зоні.

Зона концентрації  $Cl_2$  визначена та візуалізована за допомогою ALOHA, що наведено на рис. 4.

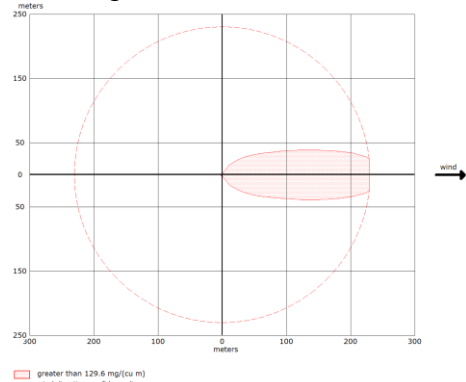


Рисунок 4 – Візуалізація поширення хмари  $Cl_2$  з концентрацією  $PC_{t50}=129,6$  мг/м<sup>3</sup> за допомогою ALOHA

З огляду на дані рис. 4 зона, в якій концентрація  $Cl_2$  буде 129,6 мг/м<sup>3</sup> уздовж осі напрямку вітру, становить 229 м.

Для більш точного порівняння значення концентрацій  $Cl_2$  на різних відстанях від джерела випаровування визначимо максимальні значення концентрації НХР за допомогою ALOHA на відстанях, що відповідають розташуванню точкових вимірювачів у моделі рис. 2. Наведені на рис. 5 значення відповідають максимальним значенням отриманих концентрацій  $Cl_2$  на різних відстанях від джерела випаровування. Вони були отримані за допомогою аналізу у табличному процесорі «Microsoft Excel 2019» масивів значень точкових вимірювачів FDS та розрахунку зміни концентрації НХР у конкретній точці за допомогою функції Display / Threat At Point ALOHA.

Отримані значення свідчать про значну розбіжність максимального значення концентрацій НХР на різних відстанях від джерела випаровування, отриманих за допомогою FDS та ALOHA. Різниця між значеннями досягає 1300% та збільшується зі збільшенням відстані від джерела НХР. Хмара НХР, зважаючи на отримані значення точкових вимірювачів

FDS та даних слайсів на рис. 3, залишається більш стабільною та розсіюється значно повільніше, ніж це передбачає ALOHA. Це можна пояснити браком досвіду моделювання атмосферних

процесів у FDS, необхідністю уточнення механізмів вітрових профілів, що вбудовані у програмне забезпечення, граничних умов моделі.

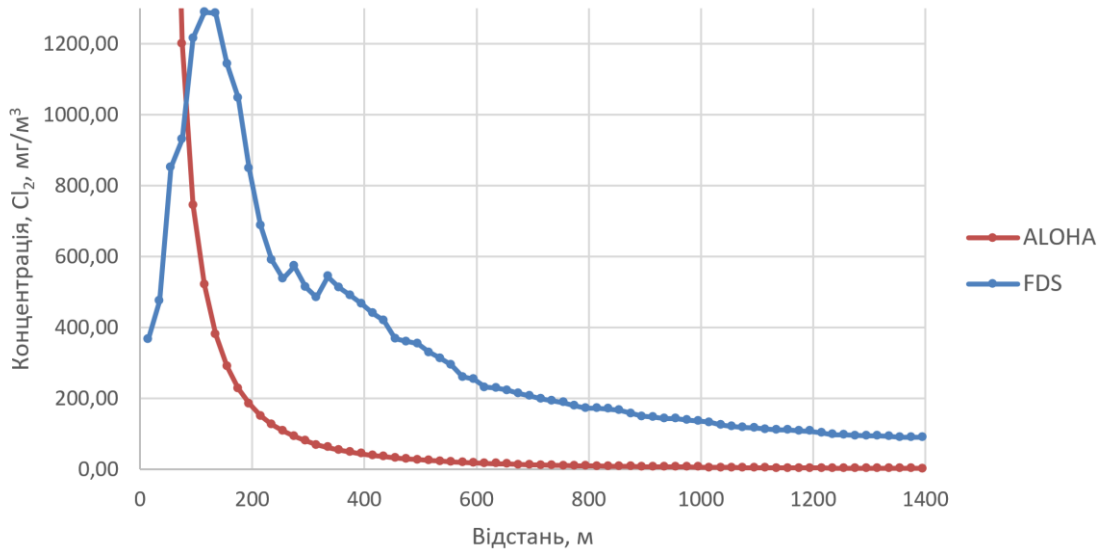


Рисунок 5 – Максимальні значення концентрацій у хмарі  $Cl_2$ , визначені за допомогою FDS та ALOHA

**Висновки та напрями подальших досліджень.** Внаслідок проведених розрахунків поширення НХР у разі розливу рідкого хлору на поверхню ґрунту, проведеного за допомогою двох програмних засобів розрахунку FDS та ALOHA, можна зробити такі висновки.

1. Програмне забезпечення «Fire Dynamic Simulator», призначене для моделювання пожеж, може бути застосовано також для CFD-моделювання газового середовища у разі невеликих аварій з викидом / виливом небезпечних хімічних речовин через моделювання частини простору на декілька кілометрів. Однак необхідно використовувати додаткові алгоритми, пов'язані із визначенням інтенсивності викиду небезпечних хімічних речовин, наприклад у разі їх випаровування, що не можуть бути безпосередньо реалізовані засобами FDS.

2. Результати максимальних значень концентрації небезпечної хімічної речовини у просторі, отримані за

допомогою FDS, значно відрізняються від даних, отриманих за допомогою програмного забезпечення «ALOHA». Співвідношення розрахункових концентрацій НХР досягає 1300% із збільшенням відстані від джерела випаровування. Тобто розсіювання хмари НХР, змодельованої за допомогою FDS, відбувається значно повільніше, ніж для хмари, розрахованої за допомогою ALOHA. Це може бути пов'язано із браком досвіду моделювання атмосферних процесів у FDS, необхідністю уточнення вітрових профілів, граничних умов моделі.

3. Надалі перспективним може бути проведення досліджень, спрямованих на моделювання атмосферних процесів та порівняльний аналіз між розрахунковими значеннями параметрів поширення небезпечних хімічних речовин, які отримано із використанням CFD-моделювання та даними, отриманими за результатом прямих вимірювань під час експериментальних досліджень.

### СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. Методика прогнозування наслідків вилу (викиду) небезпечних хімічних речовин під час аварій на хімічно небезпечних об'єктах і транспорті / Офіційний вебпортал ВРУ. URL : <https://zakon.rada.gov.ua/laws/show/z0440-20#Text> (дата звернення : 13.10.2023).
2. Про затвердження Методики прогнозування наслідків вилу (викиду) небезпечних хімічних речовин при аваріях на промислових об'єктах і транспорті / Офіційний вебпортал ВРУ. URL : <https://zakon.rada.gov.ua/laws/show/z0326-01#Text> (дата звернення : 13.10.2023).
3. Hanna S. R., Strimaitis D. G., Chang J. C. Evaluation of fourteen hazardous gas models with ammonia and hydrogen fluoride field data. *J Hazard Mater.* 1991. Vol. 26. № 2. P. 127–158.
4. Lee H. E. et al. Alternative risk assessment for dangerous chemicals in South Korea regulation : Comparing three modeling programs. *Int J Environ Res Public Health.* 2018. Vol. 15. № 8.
5. Fabbri L., Wood M. H. Accident Damage Analysis Module (ADAM) : Novel European Commission tool for consequence assessment – Scientific evaluation of performance. *Process Safety and Environmental Protection.* 2019. Vol. 129.
6. McGrattan K. B. Fire dynamics simulator (version 6) : Technical Reference Guide. Vol. 1. Mathematical Model. Gaithersburg, MD, 2023.
7. Oceanic N., Administration A., of Response O. ALOHA® (Areal Locations Of Hazardous Atmospheres) 5.4.4 : Technical Documentation. 2013.

### REFERENCES

1. Metodika prognozuvannya naslidkiv vilivu (vikidu) nebezpechnih himichnih rechovin pid chas avarij na himichno nebezpechnih ob'ektah i transporti [Methodology for forecasting the consequences of the spill (emission) of hazardous chemicals during accidents at chemically hazardous facilities and transport]. Retrived from <https://zakon.rada.gov.ua/laws/show/z0440-20#Text>. [in Ukrainian].
2. Pro zatverdzhennya Metodiki prognozuvannya naslidkiv vilivu (vikidu) nebezpechnih himichnih rechovin pri avariyah na promislivih ob'ektah i transporti [On the approval of the Methodology for forecasting the consequences of the spill (emission) of hazardous substances during accidents at industrial facilities and transport]. Retrived from <https://zakon.rada.gov.ua/laws/show/z0326-01#Text>. [in Ukrainian].
3. Hanna, S. R., Strimaitis, D. G., Chang, J. C. Evaluation of fourteen hazardous gas models with ammonia and hydrogen fluoride field data. *J Hazard Mater.* 1991. Vol. 26. № 2. P. 127–158.
4. Lee, H. E. et al. Alternative risk assessment for dangerous chemicals in South Korea regulation: Comparing three modeling programs // *Int J Environ Res Public Health.* 2018. Vol. 15, № 8.
5. Fabbri, L., Wood, M. H. Accident Damage Analysis Module (ADAM): Novel European Commission tool for consequence assessment – Scientific evaluation of performance. *Process Safety and Environmental Protection.* 2019. Vol. 129.
6. McGrattan, K. B. Fire dynamics simulator (version 6): Technical Reference Guide Volume 1: Mathematical Model. Gaithersburg, MD, 2023.
7. Oceanic N., Administration A., of Response O. ALOHA® (Areal Locations Of Hazardous Atmospheres) 5.4.4: Technical Documentation. 2013.

## USE OF CFD-MODELING FOR ESTIMATION OF DISTRIBUTION PARAMETERS OF CHEMICAL SUBSTANCES

*Ohurtsov S.*

*Institute of Public Administration and Research in Civil Protection, Ukraine*

**KEYWORDS:** ANNOTATION

hazardous  
chemical,  
chemical  
contamination  
zone, secondary  
cloud depth,  
chlorine, ALOHA,  
FDS.

In this article we assess the possibility of the Fire Dynamic Simulator (FDS), software designed for simulating fires, usage in order to simulate and evaluate the processes of the spread of hazardous chemicals in the air in the case of a calculated accident at a chemically hazardous facility. We have considered and calculated an accident related to the spill of liquid chlorine with a temperature below the boiling point on the soil and its subsequent evaporation from the surface of the spill. The obtained data were compared with the results of the calculation of such an accident performed using the ALOHA software. It has been proved that FDS software can be used for CFD modeling of gas environments in the case of small accidents involving the release / spill of hazardous chemicals by modeling a section of surface several kilometers long. Such calculations will require a significant amount of RAM of the computing equipment, at the same time, they will impose strict requirements on the performance of the central processing unit compared to the performance of tasks related to fire simulation. However, it is necessary to use additional algorithms related to determining the intensity of emission of hazardous chemicals, for example in the case of their evaporation, which cannot be directly implemented by means of FDS. The results of the maximum values of the concentration of a hazardous chemical substance in the air obtained with the help of FDS are significantly different from the data obtained with the help of the ALOHA software. The ratio of calculated concentrations of NKR reaches 1300% with increasing distance from the source of evaporation. The dispersion of the NCR cloud simulated using FDS is much slower than that of the cloud calculated using ALOHA, which may be due to the lack of experience in modeling atmospheric processes in FDS, the need to refine wind profiles, and model boundary conditions. In the future, it may be promising to carry out research aimed at modeling atmospheric processes and a comparative analysis between the calculated values of the parameters of the distribution of hazardous chemicals obtained using CFD-modeling and the data obtained as a result of direct measurements during experimental studies.