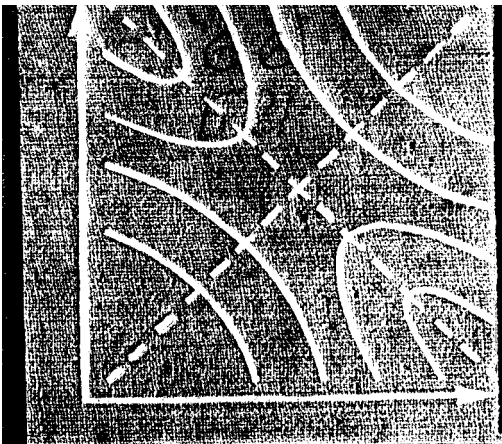


А. Г. БОНДАРЬ
Г. А. СТАТЮХА
И. Д. ПОТЯЖЕНКО

ПЛАНИРОВАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА ПРИ ОПТИМИЗАЦИИ ПРОЦЕССОВ ХИМИЧЕСКОЙ ТЕХНОЛОГИИ

ББК 35я73
6П7.1
Б81

УДК 66:542(07)

Бондарь А. Г., Статюха Г. А., Потяженко И. А. **Планирование эксперимента при оптимизации процессов химической технологии (алгоритмы и примеры):** Учеб. пособие.— Киев: Вища школа. Головное изд-во, 1980.—264 с. — 20507. 2801000000.

Рассмотрены широко используемые при исследовании технологических процессов и систем методы планирования эксперимента. Методы изложены в алгоритмизированной форме. Основное внимание уделено факторному экстремальному эксперименту, а также эксперименту, используемому при исследовании смесевых систем и кинетики химических процессов. Приведен анализ процесса исследования и предложены логические схемы планируемого эксперимента. Описаны особенности решения задач идентификации и оптимизации сложных технологических объектов. Даны примеры реализации различных планов эксперимента при исследовании отдельных процессов и систем химической технологии.

Для студентов химико-технологических специальностей вузов, может быть использовано специалистами, проводящими исследования в лабораториях и на опытных производствах.

Табл. 99. Ил. 31. Список лит.: 43 назв.

Рецензенты: д-р техн. наук В. А. Вознесенский, канд. техн. наук В. Е. Горюшко

Редакция литературы по химии, химической технологии, горному делу и металлургии

Зав. редакцией *Т. С. Антоненко*

Б $\frac{20507-103}{M211(04)-80}$ 135—80 2801000000

© Издательское объединение «Вища школа», 1980.

ПРЕДИСЛОВИЕ

Основными направлениями развития народного хозяйства СССР на 1976—1980 годы предусматривается подъем материального и культурного уровня жизни народа на основе динамичного и пропорционального развития общественного производства и повышения его эффективности, ускорения научно-технического прогресса, роста производительности труда, всемерного улучшения качества работы во всех народнохозяйственных звеньях.

Внося значительный вклад в осуществление программы десятой пятилетки, советская наука успешно решает важнейшие задачи по развитию исследований, которые открывают принципиально новые пути и возможности для преобразования производительных сил страны, создания техники и технологии будущего.

Одной из таких задач, направленных на повышение эффективности и качества научных исследований, является автоматизация эксперимента при условии использования математических методов и электронных вычислительных машин.

Методы теории экспериментов позволяют во многих случаях уменьшить число опытов и таким образом достичь заданных целей с экономией значительных ресурсов (времени, средств на проведение экспериментов). Однако бóльший эффект можно получить, если весь логический путь исследования реализовать на основе системы методов теории эксперимента. В этом случае можно не только сэкономить ресурсы, но и получить новые качественные результаты, подготовить необходимую информацию для проектирования технологических производств.

Цель данного учебного пособия — расширить и углубить идею использования системного подхода при использовании отдельных процессов химической технологии и совокупности процессов. Для этого предполагается

выделить и рассмотреть основные методы планирования эксперимента, применяющиеся для оптимизации и получения математических моделей технологических процессов, представить их алгоритмами, показать их работоспособность при решении практических задач химической технологии, выделить основные цели процесса исследования и указать место алгоритмов в логической схеме исследования.

Такое изложение теории эксперимента подготовит студентов, инженеров-химиков и технологов к работе в системах автоматизированного эксперимента (САЭ), которые сейчас создаются на базе ЭЦВМ. Как правило, САЭ — диалоговые системы и знакомство с математическим обеспечением эксперимента в диалоговом режиме «ЭЦВМ — исследователь — объект исследования» позволят повысить «вооруженность» исследователя при проведении современного эксперимента.

Для эффективного усвоения изложенного в пособии материала студенту достаточно знаний в области теории вероятностей, математической статистики и матричной алгебры, предусмотренных вузовским курсом математики. Для облегчения поиска вспомогательной информации в приложении к пособию приведены некоторые положения математической статистики, теории случайных функций и таблицы, необходимые для решения примеров и задач.

В основу учебного пособия положен курс лекций, прочитанных авторами студентам химико-технологического факультета Киевского политехнического института специальности «Основные процессы химических производств и химическая кибернетика», а также результаты курсовых проектов и научно-исследовательских работ студентов.

Главы 2, 3 написаны доц. Г. А. Статюхой, главы 1, 4 — проф. А. Г. Бондарь и доц. Г. А. Статюхой, главу 5 авторы написали совместно.

Авторы выражают признательность рецензентам докт. техн. наук, проф. В. А. Вознесенскому и канд. техн. наук В. Е. Горюшко за ценные советы и замечания при рецензировании рукописи.

На современном этапе научно-технического прогресса необыкновенно возрастает роль средств, позволяющих рационально использовать ресурсы, выделенные для решения народнохозяйственных задач. Кибернетика предлагает такие средства, как исследование операций, теория систем, математическое моделирование, теория эксперимента, вычислительная техника и др.

Часть этих методов предназначена для увеличения эффективности научного эксперимента на всех стадиях разработки, исследования, проектирования и эксплуатации химических производств. Единство теории и практики эксперимента совместно с вычислительной техникой образуют комплекс автоматизированного эксперимента, предназначенный для повышения производительности научного труда.

Объекты, на которых проводятся эксперименты, отличаются прежде всего протекающими в них процессами. В данном пособии рассматриваются в основном *объекты химической технологии*, под которыми понимают типовой технологический процесс, происходящий в аппаратуре определенного конструктивного оформления, или технологическую цепочку, охватывающую несколько процессов и аппаратов.

Объект химической технологии, на котором осуществляется планируемый эксперимент, характеризуется обязательным условием — все входные переменные, или факторы, x_1, x_2, ..., x_n должны быть управляемыми. Этого требует сама постановка планирования эксперимента, предполагающего активное вмешательство в ход эксперимента. Такой объект химической технологии называют *объектом исследования*.

Согласно принятой терминологии *факторы* x_1, x_2, ..., x_n — это измеряемые и регулируемые входные переменные объекта (независимые переменные); *помехи*

$z_1, z_2, \ldots, z_s$ — это неконтролируемые, случайным образом изменяющиеся переменные объекта; выходные переменные $y_1, y_2, \ldots, y_m$ — это контролируемые переменные, которые определяются факторами и связаны с целью исследования. Часто в планируемом эксперименте y называют параметром оптимизации (технологический или экономический показатель процесса).

Факторы $x_1, x_2, \ldots, x_n$ иногда называют основными, поскольку они определяют условия эксперимента. Помехи $z_1, z_2, \ldots, z_s$ — как правило, недоступны для измерения. Они проявляются лишь в том, что изменяют влияние факторов на выходные переменные. Объект исследования может иметь несколько выходных переменных. Опыт показывает, что в большинстве случаев удается ограничиться одним параметром оптимизации, и тогда вектор $\boldsymbol{Y}$ превращается в скаляр y (в данном пособии рассматриваются объекты исследования с одной выходной переменной).

Количество факторов и характер их взаимосвязей с выходной переменной определяют сложность объекта исследования. При наличии качественной статистической информации о факторах и зависящей от них выходной переменной можно построить математическую модель объекта исследования или функцию отклика $y = f(x_1, x_2, \ldots, x_n)$, связывающую параметр оптимизации с факторами, которые варьируются при проведении опытов.

Пространство с координатами $x_1, x_2, \ldots, x_n$ принято называть факторным, а графическое изображение функции отклика в факторном пространстве — поверхностью отклика.

При описании объектов, находящихся в стационарном состоянии, математическая модель чаще всего представляется полиномом:

$$y = f(x_1, x_2, \ldots, x_n, \beta_0, \beta_1, \ldots, \beta_n). \qquad (0.1)$$

Поскольку в реальном процессе всегда существуют неуправляемые и неконтролируемые переменные, величина y носит случайный характер. Поэтому при обработке экспериментальных данных получаются так называемые выборочные коэффициенты регрессии $b_0, b_1, \ldots, b_i, \ldots, b_n$, являющиеся оценками теоретических коэффициентов $\beta_0, \beta_1, \ldots, \beta_i, \ldots, \beta_n$.

Тогда математическая модель в форме уравнения регрессии в общем случае будет иметь вид

$$\hat{y} = b_0 + \sum_i b_i x_i + \sum_{i<j} b_{ij} x_i x_j + \sum_i b_{ii} x_i^2 + \ldots . \qquad (0.2)$$

Если анализируются нестационарные, т. е. изменяющиеся во времени состояния объекта, приходится рассматривать не случайные величины, как ранее, а случайные процессы. Случайный процесс можно рассматривать как систему, состоящую из бесконечного множества случайных величин. При моделировании таких объектов использовать модель в виде (0.2) уже недопустимо — необходимо переходить к специальным интегрально-дифференциальным моделям.

В отличие от статистических математических моделей существуют физико-химические модели (иногда их называют аналитическими). При построении таких моделей используются физико-химические закономерности моделируемых процессов. Построение физико-химических моделей сопряжено с проведением обширных и длительных исследований, поскольку необходимо рассматривать микроструктуру процессов (чаще это иерархия процессов) и описывать их математически. Модели в этом случае представляются системами алгебраических и различных дифференциальных уравнений. Не всегда удается рассчитать численные значения коэффициентов, входящих в эти системы, и тогда опять прибегают к эксперименту. Используя теорию случайных процессов, удается найти численные значения коэффициентов модели по данным статистической информации. Эта задача известна в теории как *задача идентификации*.

Составлению плана эксперимента всегда должны предшествовать сбор априорной информации для составления характеристики объекта исследования, опыты по наладке экспериментальной установки и при необходимости — опыты для установления области определения наиболее существенных факторов и выходной переменной.

Теорией и практикой эксперимента выработаны определенные требования (условия), которым должны удовлетворять независимые и зависимые переменные. Поэтому на стадии подготовки к проведению эксперимента весьма полезны приведенные ниже рекомендации.

1. При выборе выходной переменной необходимо учитывать, что она должна: иметь количественную характеристику, т. е. должна измеряться; однозначно оценивать (измерять) работоспособность объекта исследования; быть статистически эффективной, т. е. иметь возможно меньшую дисперсию при проведении опытов (это позволяет четко различать опыты); отражать как можно более широкий спектр исследуемого явления, т. е. обладать универсальностью (практически это требование обеспечить трудно, тогда рекомендуют пользоваться так называемой обобщенной переменной); иметь достаточно четкий физический смысл.

Удачный выбор выходной переменной в значительной степени определяется уровнем знания технологии.

2. При выборе факторов нужно выполнять следующие требования: фактор должен быть регулируемым, т. е. определенным регулирующим устройством фактор должен изменяться от значения x'_i до значения x''_i (например, расход вещества может изменяться от 30 до 40 л/ч или количество вещества A в смеси от 10 до 80%, это свойство называют операционной определенностью); точность измерения и управления фактором должна быть известна и достаточно высока (хотя бы на порядок выше точности измерения выходной переменной), очевидно, что низкая точность измерения фактора уменьшает возможности воспроизведения эксперимента; связь между факторами должна быть как можно меньшей (в пределе должна отсутствовать), это свойство называют однозначностью факторов, что соответствует независимости одного фактора от другого.

Ряд требований предъявляется одновременно к факторам и выходной переменной: факторы и выходная переменная должны иметь области определения, заданные технологическими или принципиальными ограничениями (пример технологического ограничения — максимальная производительность компрессора, подающего газ в реактор; пример принципиального — температура кристаллизации жидкого продукта, образующегося в результате реакции); области определения факторов должны быть таковы, чтобы при их предельных значениях значение выходной переменной оставалось в своих границах; между факторами и выходной переменной должно существовать однозначное соответствие (причинно-следственная связь).

Успех современного экспериментирования в значительной мере обязан теории эксперимента, которая признана дать экспериментатору ответы на следующие вопросы:

1. Как нужно организовать эксперимент, чтобы наилучшим образом решить поставленную задачу (в смысле затрат времени, средств или точности результатов)?

2. Как следует обрабатывать результаты эксперимента, чтобы получить максимальное количество информации об исследуемом объекте?

3. Какие обоснованные выводы можно сделать об исследуемом объекте по результатам эксперимента?

Как уже упоминалось, основой теории эксперимента является статистическое представление об эксперименте (рассматриваются случайные величины или случайные функции). Это представление отвечает действительности: как правило, итоги эксперимента связаны с некоторой неопределенностью, получающейся в результате влияния неконтролируемых факторов, случайного характера процесса на микроуровне, изменений условий эксперимента, ошибок измерения и др.

Статистическое представление об эксперименте позволило перейти к многофакторному активному эксперименту, в котором удается надежно отделить влияние факторов от шумового фона и перейти к статистически обоснованным методам анализа результатов и принятия решений.

Теория эксперимента использует принципы и концепции кибернетики, такие как математическое моделирование, оптимизация. Большое значение имеет концепция оптимального использования факторного пространства с точки зрения определенных характеристик точности решения. Так, удается получать оценки коэффициентов модели, обладающие минимальной дисперсией, или удается получать наилучшие предсказательные свойства модели.

Теория эксперимента указывает исследователю точную логическую схему и способы поиска решения задач на разных этапах исследования. Можно представить весь процесс исследования циклами, повторяющимися после решения каждой из последовательных задач исследования, причем объем знаний об объекте непрерывно увеличивается.

Цель настоящего пособия состоит в описании эффективных методов эксперимента, широко используемых при

решении задач лабораторных и промышленных исследований. В пособии, состоящем из пяти глав, рассмотрены основные методы и алгоритмы, относящиеся к экстремальному эксперименту первого и второго порядка, большое внимание уделено полному факторному эксперименту, приведены алгоритмы планирования эксперимента, чаще всего использующиеся в физико-химических исследованиях (симплекс-решетчатые планы для исследования и оптимизации сложных смесевых систем, алгоритмы исследования формальной кинетики химических процессов и построения качественных моделей химико-технологических процессов), рассматриваются методы отсеивания факторов и наиболее распространенные в теории эксперимента алгоритмы оптимизации. Описаны особенности исследования систем технологических процессов, выделены и предложены методы решения задач, большое внимание уделено анализу процесса исследования и построению логических схем эксперимента. Приведены примеры использования различных планов эксперимента при исследовании отдельных технологических процессов, иллюстрирующие возможности алгоритмов планирования эксперимента при решении задач выбора и отсеивания факторов, исследования кинетики процессов и идентификации объектов, а также примеры исследования систем технологических процессов, имеющих различную структуру, и примеры решения системы задач на одном объекте.

В приложении пособия приведены статистические таблицы и некоторые сведения по математической статистике и теории случайных функций, а также используемые при расчетах машинные программы для серии ЭВМ «Мир».

Глава 1

ОСНОВНЫЕ АЛГОРИТМЫ ПЛАНИРОВАНИЯ ЭКСТРЕМАЛЬНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

1. 1. Дисперсионный анализ

Введение. Задачей дисперсионного анализа является исследование влияния различных факторов на изменчивость средних значений наблюдаемых случайных величин. План дисперсионного анализа предполагает проведение эксперимента, позволяющее разложить сложную дисперсию на составляющие (при выполнении гипотезы об аддитивности дисперсий изучаемой случайной величины). Далее полученные дисперсии оцениваются по определенному критерию. Наиболее удобно и оправдано сравнивать полученные дисперсии с ошибкой опытных данных, которую получают по параллельным опытам на каждом (или на некоторых) уровне факторов.

1.1.1. Алгоритм однофакторного дисперсионного анализа. *Исходные данные.* Необходимо выяснить влияние фактора A на выходную переменную y. Предполагается, что результаты наблюдений можно представить моделью

$$\hat{y}_{ij} = \bar{y} + \alpha_i + e_{ij} \quad (j = 1, 2, \ldots, m, \; i = 1, 2, \ldots, p), \qquad (1.1)$$

где $\bar{y}$ — суммарный эффект во всех опытах (среднее значение); α_i — эффект фактора A на i-ом уровне; e_{ij} — ошибка измерения на i-ом уровне; m — число параллельных опытов; p — число уровней фактора A.

Очевидно, общее число опытов

$$N = \sum_{i=1}^{p} m_i \qquad (1.2)$$

или при одинаковом числе параллельных опытов

$$N = pm. \qquad (1.3)$$

Предполагается, что закон распределения случайной величины нормальный, а рассеяние опытов на каждом уровне фактора A не превышает некоторой величины или дисперсии на каждом уровне однородны.

План эксперимента и подготовительные расчеты представлены в табл. 1.1.

Таблица 1.1. **Результаты расчетов при однофакторном дисперсионном анализе**

План			Результаты расчетов	
i \ j		Параллельные опыты 1,2, . . . , m_i	Суммы результатов по параллельным опытам	Средний по параллельным опытам
Уровни фактора A	(1)	$y_{11}y_{12}\cdots y_{1m_1}$	$\sum_{j=1}^{m_1} y_{1j}$	$\bar{y}_1$
	(2)	$y_{21}y_{22}\cdots y_{2m_2}$	$\sum_{j=2}^{m_2} y_{2j}$	$\bar{y}_2$
	.		.	
	.	$\cdots y_{jm_i}\cdots$	.	
	.		.	
	p	$y_{p1}y_{p2}\cdots y_{pm_p}$	$\sum_{j=1}^{m_p} y_{pj}$	$\bar{y}_p$

Расчет средних:

$$\bar{y} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{m_i} y_{ij} \text{ — общее среднее;} \tag{1.4}$$

$$\bar{y}_i = \frac{1}{m_i}\sum_{j=1}^{m_i} y_{ij} \text{ — среднее по уровням фактора } A \text{ (строкам).} \tag{1.5}$$

Расчет сумм квадратов отклонений. Сумма квадратов отклонений, связанная с рассеиванием относительно общего среднего:

$$S_{\text{ост}} = \sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{m_i}(y_{ij} - \bar{y})^2; \tag{1.6}$$

сумма квадратов отклонений, связанная с рассеиванием между уровнями фактора A (междууровневая):

$$S_A = \sum_{i=1}^{p} m_i(\bar{y}_i - \bar{y})^2; \tag{1.7}$$

сумма квадратов отклонений, связанная с рассеиванием внутри выборки по уровням (внутриуровневая):

$$S_R = S_{ост} - S_A; \tag{1.8}$$

сумма квадратов отклонений, связанная с рассеиванием по параллельным опытам на i-ом уровне:

$$S_i = \sum_{j=1}^{m_i} (y_{ij} - \bar{y}_i)^2. \tag{1.9}$$

Расчет дисперсий. Рассчитанные суммы имеют соответственно следующие степени свободы f:

$$f_R = N - p = p(m-1); \tag{1.10}$$

$$f_{ост} = N - 1; \tag{1.11}$$

$$f_A = p - 1; \tag{1.12}$$

$$f_i = m_i - 1. \tag{1.13}$$

Из условия (1.8)

$$N - p = N - 1 - (p - 1),$$

т. е. получается тождество.

Рассчитаем дисперсии:

$$s_A^2 = S_A/f_A \quad \text{— дисперсия фактора } A; \tag{1.14}$$

$$s_{ост}^2 = S_{ост}/N - 1 \quad \text{— остаточная дисперсия;} \tag{1.15}$$

$$s_R^2 = S_R/N - p \quad \text{— ошибка опыта (дисперсия воспроизводимости);} \tag{1.16}$$

$$s_i^2 = S_i/f_i \quad \text{— дисперсия параллельных опытов на } i\text{-ом уровне.} \tag{1.17}$$

Проверка однородности дисперсий. Однородность дисперсий на каждом уровне фактора A можно проверить по критерию Кохрена, расчетное значение которого определяют по уравнению:

$$G = s_{i\,max}^2 \Big/ \sum_{i=1}^{p} s_i^2, \tag{1.18}$$

где s_{imax}^2 — максимальная из рассчитанных дисперсий параллельных опытов (построчных дисперсий, см. табл. 1.1); $\sum_{i=1}^{p} s_i^2$ — сумма всех дисперсий по уровням фактора A.

Если выполняется условие

$$G_{\text{р}} < G_{\text{т}} \quad (f_1 = m_i - 1, \quad f_2 = p, \quad q = 0{,}05), \tag{1.19}$$

то гипотеза об однородности дисперсий правомерна. $G_{\text{т}}$ находят по таблице критерия Кохрена для степеней свободы f_1 (максимальная дисперсия), f_2 (число уровней) и заданного уровня значимости q. В технических расчетах принят 5%-ный уровень значимости.

Оценка различия дисперсий. Строится отношение дисперсий фактора A к ошибке опыта и получается расчетное значение критерия Фишера $\text{F}_{\text{р}}$:

$$\frac{s_A^2}{s_R^2} = \text{F}_{\text{р}}. \tag{1.20}$$

Принятие решений. Если расчетное значение критерия Фишера

$$\text{F}_{\text{р}} > \text{F}_{\text{т}} \quad (f_A = p - 1, \quad f_R = p(m-1), \quad q = 0{,}05) \tag{1.21}$$

($\text{F}_{\text{т}}$ — табличное значение критерия Фишера для степеней свободы f_A, f_R и заданного уровня значимости q), то влияние уровней фактора A существенно. Условие (1.20) означает, что влияние фактора A, разделенного по уровням, превышает уровень ошибки опытных данных.

Результаты однофакторного дисперсионного анализа удобно представить в виде табл. 1.2, где расчет производился по преобразованным формулам (1.6), (1.7) и (1.8).

1.1.2. Алгоритм двухфакторного дисперсионного анализа. *Исходные данные.* Необходимо выяснить влияние двух факторов на некоторую выходную переменную (функцию отклика). Предполагается, что исследуется влияние факторов A и B, варьируемых на p- и k-ом уровнях соответственно. Математическая модель эксперимента следующая:

$$\hat{y}_{ij} = \bar{y} + \alpha_i + \beta_j + e_{ij} \quad (i = 1, 2, \ldots, p, \quad j = 1, 2, \ldots, k), \tag{1.22}$$

где α_i и β_j — эффекты факторов A и B соответственно на i- и j-ом уровнях; $\bar{y}$ — суммарный эффект факторов во всех опытах; e_{ij} — ошибка измерения (помеха), имеющая нормальное распределение, нулевое математическое ожидание и определенную дисперсию. Общее число опытов при однократных наблюдениях

$$N = p - k. \tag{1.23}$$

Таблица 1.2. **Результаты расчетов при однофакторном дисперсионном анализе**

Источник изменчивости	Расчетные формулы и значения			
	S	f	s^2	F_p
Между уровнями фактора	$S_A = \sum_{i=1}^{p} m_i \overline{y_i}^2 - N\overline{y}^2$	$p-1$	$s_A^2 = \frac{S_A}{p-1}$	$\frac{s_A^2}{s_R^2}$
Внутри уровней фактора	$S_R = \sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{m_i} y_{ij}^2 - \sum_{i=1}^{p} m_i \overline{y_i}^2$	$p(m-1)$	$s_R^2 = \frac{S_R}{p(m-1)}$	
	$S_{ост} = \sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{m_i} y_{ij}^2 - N\overline{y}^2$	$N-1$		

План эксперимента и некоторые расчеты сумм и средних представлены в табл. 1.3.

Таблица 1.3. **План эксперимента и расчеты при двухфакторном дисперсионном анализе**

i \ j	Уровни фактора B 1, 2, . . . , k	Средние по строкам
Уровни фактора A		
1	$y_{11}y_{12}, \ldots, y_{1k}$	$\overline{y_1}$
2	$y_{21}y_{22}, \ldots, y_{2k}$	$\overline{y_2}$
.	. . .	.
.	. . . . .	.
.	. . .	.
p	$y_{p1}y_{p2}, \ldots, y_{pk}$	$\overline{y_p}$
Средние по столбцам	$\overline{y_1}\overline{y_2}, \ldots, \overline{y_k}$	Общее среднее

Расчет средних. Можно получить следующие выборочные средние:

$$\bar{y}_i = \frac{1}{k}\sum_{j=1}^{k} y_{ij} \text{ — среднее по строкам;} \tag{1.24}$$

$$\bar{y}_j = \frac{1}{p}\sum_{i=1}^{p} y_{ij} \text{ — среднее по столбцам;} \tag{1.25}$$

$$\bar{\bar{y}} = \frac{1}{pk}\sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{k} y_{ij} \text{ — общее среднее.} \tag{1.26}$$

Расчет сумм квадратов отклонений:

$$S_A = k\sum_{i=1}^{p}(\bar{y}_i - \bar{\bar{y}})^2; \tag{1.27}$$

$$S_B = p\sum_{j=1}^{k}(\bar{y}_j - \bar{\bar{y}})^2; \tag{1.28}$$

$$S_{\text{ост}} = \sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{k}(y_{ij} - \bar{\bar{y}})^2; \tag{1.29}$$

$$S_R = S_{\text{ост}} - S_A - S_B = \sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{k}(y_{ij} - \bar{y}_i - \bar{y}_j + y)^2. \tag{1.30}$$

Расчет дисперсий. Рассчитанные суммы S_A, S_B, S_R имеют следующие степени свободы:

$$f_A = p - 1; \tag{1.31}$$

$$f_B = k - 1; \tag{1.32}$$

$$f_R = (p-1)(k-1). \tag{1.33}$$

Тогда дисперсии можно рассчитывать по формулам:

$$s_A^2 = S_A/f_A; \tag{1.34}$$

$$s_B = S_B/f_B; \tag{1.35}$$

$$s_R^2 = S_R/f_R. \tag{1.36}$$

Оценка отношений дисперсий. Строятся отношения дисперсий факторов A и B к ошибке опыта и получаются расчетные значения критерия Фишера:

$$F_{pA} = \frac{s_A^2}{s_R^2}; \quad F_{pB} = \frac{s_B^2}{s_R^2}. \tag{1.37}$$

Принятие решений. Если расчетные значения критерия Фишера

$$F_{pA} \text{ или } F_{pB} > F_T \quad (f_A = p-1, \text{ или}$$
$$f_B = k-1, f_R = (p-1)(k-1), q = 0{,}05), \tag{1.38}$$

(F_T — табличное значение критерия Фишера для степеней свободы f_A или f_B и заданного уровня значимости q), то влияние факторов A и B на выходную переменную существенно (при выбранных p- и k-ом уровнях).

Результаты и расчеты двухфакторного дисперсионного анализа удобно представить в виде табл. 1.4.

Примечание. Линейная модель (1.22) справедлива, если между факторами A и B отсутствует взаимодействие, т. е. дисперсия $s_{AB}^2 = 0$. Если такое взаимодействие имеется, то s_{AB}^2 входит в дисперсию ошибки опыта s_R^2 и выделить ее можно только при наличии параллельных опытов по уровням факторов A и B. Такой алгоритм хотя принципиально и не отличается от приведенного выше, но имеет особенности.

1.1.3. Алгоритм дисперсионного анализа при использовании схемы латинского квадрата. *Введение.* В предыдущих алгоритмах число необходимых опытов определялось произведением уровней исследуемых факторов. Если предположить, что число уровней одинаково, то в двухфакторном дисперсионном анализе необходимо провести $N = p^2$ (при $p = k$) опытов. Все возможные сочетания уровней и факторов дают так называемый полный факторный эксперимент (ПФЭ). Так, для двухфакторного дисперсионного анализа ДА на трех уровнях ПФЭ дает $N = 3^2 = 9$ опытов, для трехфакторного ДА на трех уровнях ПФЭ дает $N = 3^3 = 27$ опытов и т. д.

Возможно сокращение количества опытов и использование дробного факторного эксперимента (ДФЭ). Количество опытов в дисперсионном анали-

Таблица 14. **Результаты расчетов при двухфакторном дисперсионном анализе**

Источник изменчивости	Расчетные формулы и значения			
	S	f	s^2	F
Фактор A	$S_A = k\sum_{i=1}^{p} \bar{y}_i^2 - pk\bar{\bar{y}}^2$	$p-1$	s_A^2	$\frac{s_A^2}{s_R^2} = F_{pA}$
Фактор B	$S_B = p\sum_{j=1}^{k} \bar{y}_j^2 - pk\bar{\bar{y}}^2$	$k-1$	s_B^2	$\frac{s_B^2}{s_R^2} = F_{pB}$
Ошибка опыта	$S_R = \sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{k} y_{ij}^2 - k\sum_{i=1}^{p} \bar{y}_i^2 - p\sum_{j=1}^{k} \bar{y}_j^2 + pk\bar{\bar{y}}^2$	$(p-1)(k-1)$	$s_R^2 = s_0^2$	
	$S_{ост} = S_A + S_B + S_R$	$pk-1$		

зе сокращается в $1/p$ раз, если использовать в плане эксперимента латинский квадрат. Так, трехфакторный ДА по плану ДФЭ даст всего $\frac{1}{3}\cdot 3^3 = 9$ опытов.

Определение. Латинским квадратом называется такая квадратная матрица $p \times p$ из p элементов, что каждый из элементов встречается в каждой строке и каждом столбце только один раз.

Из трех элементов образуется латинский квадрат 3×3:

$$\begin{matrix} A\,B\,C \\ B\,C\,A \\ C\,A\,B \end{matrix} \quad \text{или} \quad \begin{matrix} 1\,2\,3 \\ 2\,3\,1; \\ 3\,1\,2 \end{matrix} \qquad (1.39)$$

из четырех элементов — латинский квадрат 4×4:

$$\begin{array}{llll} A\,B\,C\,D & & 1\,2\,3\,4 \\ B\,C\,D\,A & \text{или} & 2\,3\,4\,1 \\ C\,D\,A\,B & & 3\,4\,1\,2 \\ D\,A\,B\,C & & 4\,1\,2\,3. \end{array} \qquad (1.40)$$

В дисперсионном анализе используются стандартные латинские квадраты [см. формулы (1.39), (1.40)], у которых первая строка и первый столбец построены в алфавитном порядке (элементы — буквы) или в порядке натурального ряда (элементы — цифры). Способ построения таких квадратов — одношаговая циклическая перестановка.

Применение. К планированию эксперимента по схеме дисперсионного анализа с латинским квадратом прибегают обычно при исследовании влияния на процесс трех дискретно-меняющихся факторов *A, B, C*. При этом факторы *A* и *B* могут быть связаны с переменными, а фактор *C* — с помехами.

Исходные данные. Необходимо выяснить влияние трех источников изменчивости — факторов *A*, *B*, *C*: фактор *A* — строка плана, фактор *B* — столбец плана, фактор *C* — элемент плана. Результаты эксперимента можно представить моделью

$$\hat{y}_{ijh} = \mu + \alpha_i + \beta_j + \gamma_h + \alpha_i\beta_j + \alpha_i\gamma_h + \beta_j\gamma_h + \alpha_i\beta_j\gamma_h + e_{ijh}, \quad (1.41)$$

в которой имеются кроме линейных эффектов еще три парных эффекта и один тройной эффект взаимодействия факторов; e_{ijh} — ошибка с нормальным распределением. Если предположить, что взаимодействия факторов незначимы, то результаты эксперимента можно представить моделью

$$\hat{y}_{ijh} = \mu + \alpha_i + \beta_j + \gamma_h + e_{ijh}, \qquad (1.42)$$

где $\mu = \bar{y}$ — общий эффект во всех опытах; α_i — эффект фактора *A* (строки); β_j — эффект фактора *B* (столбца); γ_h — эффект фактора *C* (элемента квадрата).

План эксперимента без повторных опытов представлен в табл. 1.5.

Расчет итогов по строкам A_i, столбцам B_j и элементам квадрата C_h:

$$A_1 = y_1 + y_2 + y_3;\ A_2 = y_4 + y_5 + y_6;\ A_3 = y_7 + y_8 + y_9; \quad (1.43)$$

Таблица 1.5. **Трехуровневый латинский квадрат**

Фактор A	Фактор B			Итоги по строкам
	b_1	b_2	b_3	
a_1	c_1 $\overline{y_1}$	c_2 $\overline{y_2}$	c_3 $\overline{y_3}$	A_1
a_2	c_2 $\overline{y_4}$	c_3 $\overline{y_5}$	c_1 $\overline{y_6}$	A_2
a_3	c_3 $\overline{y_7}$	c_1 $\overline{y_8}$	c_2 $\overline{y_9}$	A_3
Итоги по столбцам	B_1	B_2	B_3	Общий итог
Итоги по элементам	C_1	C_2	C_3	

$$B_1 = y_1 + y_4 + y_7;\ B_2 = y_2 + y_5 + y_8;\ B_3 = y_3 + y_6 + y_9; \quad (1.44)$$

$$C_1 = y_1 + y_6 + y_8;\ C_2 = y_2 + y_4 + y_9;\ C_3 = y_3 + y_5 + y_7. \quad (1.45)$$

Расчет суммы квадратов всех наблюдений:

$$S_1 = \sum_{i=1}^{p}\sum_{j=1}^{p}(y_{i\,jk})^2 = \sum_{i=1}^{p^2}(y_{i\,jk})^2. \quad (1.46)$$

Расчет сумм квадратов итогов по строкам, столбцам и элементам квадрата, деленных на соответствующее число элементов:

$$S_2 = \frac{1}{p}\sum_{i=1}^{p} A_i^2; \quad (1.47)$$

$$S_3 = \frac{1}{p}\sum_{j=1}^{p} B_j^2; \quad (1.48)$$

$$S_4 = \frac{1}{p}\sum_{k=1}^{p} C_k^2. \quad (1.49)$$

Расчет корректирующего члена, равного квадрату общего итога, деленное на общее число опытов:

$$S_5 = \frac{1}{n^2} G^2. \tag{1.50}$$

Расчет сумм квадратов:

$$S_A = S_2 - S_5 \text{ — для строки;} \tag{1.51}$$

$$S_B = S_3 - S_5 \text{ — для столбца;} \tag{1.52}$$

$$S_C = S_4 - S_5 \text{ — для элементов квадрата;} \tag{1.53}$$

$$S_{\text{общ}} = S_1 - S_5 \text{ — общая;} \tag{1.54}$$

$$S_{\text{ост}} = S_{\text{общ}} - (S_A + S_B + S_C) \text{ — остаточная.} \tag{1.55}$$

Расчет дисперсий:

$$s_A^2 = \frac{S_A}{p-1} \text{ — фактора } A; \tag{1.56}$$

$$s_B^2 = \frac{S_B}{p-1} \text{ — фактора } B; \tag{1.57}$$

$$s_C^2 = \frac{S_C}{p-1} \text{ — фактора } C; \tag{1.58}$$

$$s_0^2 = \frac{S_{\text{ост}}}{(p-1)(p-2)} \text{ — ошибка опыта.} \tag{1.59}$$

Оценка дисперсий осуществляется по критерию Фишера. Составляются дисперсионные отношения (расчетные)

$$\frac{s_A^2}{s_0^2} = F_{pA}, \quad \frac{s_B^2}{s_0^2} = F_{pB}, \quad \frac{s_C^2}{s_0^2} = F_{pC}. \tag{1.60}$$

Принятие решения. Если расчетные значения критерия Фишера удовлетворяют неравенствам

$$F_{pA} < F_T \ (f_A = p-1,\ f_0 = (p-1)(p-2),\ q = 0.05); \tag{1.61}$$

$$F_{pB} < F_T(f_A,\ f_0,\ q); \tag{1.62}$$

$$F_{pC} < F_T(f_A,\ f_0,\ q), \tag{1.63}$$

то влияние всех факторов несущественно.

Если какое-нибудь из отношений (1.60) оказывается большим $F_т$, то влияние этого фактора существенно.

Примечание. Для четырех факторов используется дисперсионный анализ по схеме греко-латинского квадрата, при бо́льшем числе уровней — гипергреко-латинские квадраты и латинские кубы.

1.2. Ранговая корреляция

Введение. Задачей метода ранговой корреляции является оценка связи между упорядоченными объектами исследования. Для упорядочения объектов используются ранги и тогда задача состоит в том, чтобы по совокупности данных экспертами упорядочений составить усредненное упорядочение, наиболее близкое к истинному.

К решению задачи применяется статистический подход. Каждая данная экспертом ранжировка считается несовершенным, искаженным субъективными воздействиями вариантом правильного упорядочения объектов. Тогда к оценке полученных ранжировок можно применять статистические критерии, в частности, для согласованности мнений экспертов используется коэффициент конкордации (согласия), который меняется от нуля (нет согласия) до единицы (полное согласие).

1.2.1. Алгоритм метода ранговой корреляции. *Исходные данные.* Имеются объекты $x_1, x_2, \ldots, x_n$. Специалистам, хорошо знакомым с исследуемыми объектами, предлагается расположить объекты, предположим, в порядке убывания степени их влияния на некоторый показатель, т. е. присвоить ранг r_{ij} — ранг для каждого j-го объекта, данный i-ым экспертом.

Пояснение. Сводная матрица $[r_{ij}]$ размерами $m \times n$ содержит по строкам натуральный ряд чисел, расположенных в различном порядке. Среднее арифметическое натурального ряда чисел равно

$$\frac{1}{n}(1 + 2 + \ldots + n) = \frac{n+1}{2} \tag{1.64}$$

и тогда общее среднее равно

$$a = \frac{1}{2} m(n+1). \tag{1.65}$$

В матрице $[r_{ij}]$ возможны и дробные ранги. Они появляются тогда, когда эксперт не может отдать предпоч-

тение двум или большему числу объектов, например, если эксперт не может упорядочить объекты с рангами 4 и 5, то он может приписать этим двум объектам ранг $(4+5)/2=4{,}5$.

План эксперимента представляет собой анкеты, получаемые экспертами. Суммарная анкета — *таблица*, по строкам которой располагаются ранжировки экспертов, а по столбцам — ранги объектов исследования (табл. 1.6).

Таблица 1.6. **Результаты расчетов методом ранговой корреляции**

i \ j	Объекты исследования			
	x_1	x_2	. . .	x_n
Номер эксперта				
1	r_{11}	r_{12}	. . .	r_{1n}
2	r_{21}	r_{22}	. . .	r_{2n}
.				
.	. . .	. . .	. . .	
.				
m	r_{m1}	r_{m2}	. . .	r_{mn}
Сумма рангов	$\sum_{i=1}^{m} r_{i1}$	$\sum_{i=1}^{m} r_{i2}$	. . .	$\sum_{i=1}^{m} r_{in}$

Расчет средних:

$$a_n = \frac{n+1}{2} \quad \text{— среднее ранжировочного ряда эксперта,} \qquad (1.66)$$

где n — число объектов исследования;

$$a = \frac{1}{2} m(n+1) \quad \text{— общее среднее таблицы рангов,} \qquad (1.67)$$

где m — число экспертов.

Расчет суммы квадратов отклонений. Первоначально рассчитываются квадраты отклонений суммарных рангов от общего среднего:

$$d_j^2 = (\sum_{i=1}^{m} a_{ij} - a)^2, \qquad (1.68)$$

затем суммы квадратов отклонений:

$$S(d_j^2) = \sum_{j=1}^{n}\left(\sum_{i=1}^{m} a_{ij} - a\right)^2. \qquad (1.69)$$

Расчет максимальной суммы квадратов отклонений. Доказано, что при полном согласии мнений экспертов максимальная сумма квадратов будет равна:

$$S(d_j^2) = \frac{1}{12} m^2(n^3 - n). \qquad (1.70)$$

Расчет показателя дробных рангов. При наличии дробных рангов максимальная сумма квадратов уменьшается на

$$m\sum_{i=1}^{e} T_i, \qquad (1.71)$$

где

$$T_i = \frac{1}{12}\sum_{v=1}^{g}(t_v^3 - t_v); \qquad (1.72)$$

e — число строк матрицы, содержащей связанные ранги; g — число типов связанных рангов в строке; t — количество равных рангов в i-ой строке.

Расчет коэффициента конкордации. При отсутствии связанных рангов коэффициент конкордации получается как отношение рассчитанной $S(d_j^2)$ к максимальной $S(d_j^2)_{\max}$:

$$W_p = \frac{S(d_j^2)}{S\left(d_j^2\right)_{\max}} = \frac{\sum_{j=1}^{n}\left(\sum_{i=1}^{m} a_{ij} - a\right)^2}{\frac{1}{12} m^2(n^3 - n)}; \qquad (1.73)$$

при наличии связанных рангов

$$W_p = \frac{\sum_{j=1}^{n}\left(\sum_{i=1}^{m} a_{ij} - a\right)}{\frac{1}{12} m^2(n^3 - n) - m\sum_{i=1}^{e} T_i}. \qquad (1.74)$$

Оценка коэффициента конкордации. Установлено, что для числа объектов $n > 7$ величина $[m(n-1)W_p]$ имеет

χ^2-распределение (при $n < 7$ используются специальные таблицы Кендалла):

$$\chi^2_{\text{р}} = m(n-1)W_{\text{р}}. \tag{1.75}$$

Принятие решений. Если расчетное значение χ^2-распределения окажется меньше табличного

$$\chi^2_{\text{р}} < \chi^2_{\text{т}} \ (f = n-1, \quad q = 0{,}05) \tag{1.76}$$

при числе степеней свободы f и заданном уровне значимости q, то мнения экспертов считают согласованными. В этом случае строят диаграмму рангов (гистограмму), где по оси абсцисс дискретно откладывают объекты ранжирования, а по оси ординат суммы рангов в обратном порядке. Вид сглаженной ранжировочной кривой в какой-то мере позволяет решить задачу классификации объектов (при двух классах).

Если неравенство (1.76) не выполняется, т. е. мнения экспертов не согласованы, то одним из решений может быть изменение состава экспертов или их обучение. Иногда меняют и количество объектов.

Примечание. Кроме ранжирования объектов в некоторых случаях приходится с целью разработки весов ранжировать и качественные показатели объектов. При этом алгоритм, естественно, усложняется.

1.3. Регрессионный анализ

Введение. По результатам эксперимента над объектом исследования, входы и выходы которого известны, можно получить математическую модель определенного вида. Полученная математическая модель (если это полином определенной степени) называется уравнением регрессии.

Степень приближения уравнения регрессии к реальному объекту зависит не только от экспериментальных данных, но и от метода построения полинома. В качестве такого метода обычно выбирают метод наименьших квадратов, являющийся частным случаем метода максимума правдоподобия для случайных переменных с нормальным распределением. Уравнение регрессии, полученное по методу наименьших квадратов, подвергается статистическому анализу,

основанному на оценках дисперсий: проверяется однородность дисперсий, значимость коэффициентов и адекватность уравнения регрессии. Это и есть регрессионный анализ[1].

В основе регрессионного анализа лежит несколько статистических предпосылок, выполнение которых гарантирует достоверность анализа полученной математической модели:

1. Выходная переменная — случайная величина с нормальным распределением; факторы — суть неслучайные величины; практически это означает, что ошибки в управлении факторами по крайней мере на порядок меньше ошибок при измерении выходной переменной.

2. Связь между факторами отсутствует.

3. Дисперсии выходной переменной однородны (равноточны) в любой точке факторного пространства.

4. Исследуемый объект лишен динамических свойств (рассматриваются стационарные режимы объекта).

1.3.1. Метод наименьших квадратов (МНК). *Исходные данные.* Имеется выборка эксперимента объемом N: Задан некоторый класс функций $f(x)$ с числом связей l, равным числу коэффициентов, которые необходимо определить. Требуется найти уравнение регрессии.

Пояснение. Наилучшее уравнение регрессии дает та функция из рассматриваемого класса, для которой сумма квадратов

$$S = \sum_{u=1}^{N} [y_u - f(x_u)]^2 \tag{1.77}$$

имеет наименьшее значение.

Если

$$f(x_u) = \hat{y} = f(x_u, b_0, b_1, b_2, \ldots) \tag{1.78}$$

дифференцируема и требуется найти

$$S = \sum_{u=1}^{N} [y_u - f(x_u, b_0, b_1, b_2, \ldots)]^2 \longrightarrow \min, \tag{1.79}$$

[1] Иногда не совсем обоснованно в регрессионный анализ включают метод наименьших квадратов как средство получения уравнения регрессии.

то необходимым условием минимума S является выполнение равенств

$$\frac{\partial S}{\partial b_0} = 0, \quad \frac{\partial S}{\partial b_1} = 0, \ldots \tag{1.80}$$

или

$$\left.\begin{aligned} \sum_{u=1}^{N} 2[y_u - f(x_u, b_0, b_1, b_2, \ldots)] \frac{\partial f(x_u)}{\partial b_0} = 0 \\ \sum_{u=1}^{N} 2[y_u - f(x_u, b_0, b_1, b_2, \ldots)] \frac{\partial f(x_u)}{\partial b_1} = 0 \end{aligned}\right\} \tag{1.81}$$

. . . . . .

Система (1.81) состоит из уравнений, число которых равно числу неизвестных коэффициентов b_0, b_1, b_2, ... и называется системой нормальных уравнений.

Выбор полинома $f(x_u, b_0, b_1, \ldots)$ зависит от имеющейся у исследователя априорной информации и является в значительной степени искусством.

Исходные данные (продолжение). Предположим, что полином (1.78) имеет вид

$$\hat{y} = b_0 + b_1 x. \tag{1.82}$$

Требуется найти коэффициенты b_0 и b_1 (в данном случае число связей $l=2$).

План эксперимента. В целом регрессионный анализ не обязательно рассчитан на планирование эксперимента, хотя использование планирования, как будет показано в дальнейших алгоритмах, значительно расширяет его возможности. Здесь план эксперимента не используется. Выборка N получается пассивным наблюдением за объектом, хотя наблюдение и ведется по плану.

Расчет коэффициентов регрессии. Исходя из (1.81) для полинома (1.82) получим:

$$\left.\begin{aligned} Nb_0 + b_1 \sum_{u=1}^{N} x_u = \sum_{u=1}^{N} y_u; \\ b_0 \sum_{u=1}^{N} x_u + b_1 \sum_{u=1}^{N} x_u^2 = \sum_{u=1}^{N} x_u y_u, \end{aligned}\right\} \tag{1.83}$$

откуда

$$b_0 = \frac{\sum_{u=1}^{N} y_u \sum_{u=1}^{N} x_u^2 - \sum_{u=1}^{N} x_u \sum_{u=1}^{N} x_u y_u}{N \sum_{u=1}^{N} x_u^2 - \left(\sum_{u=1}^{N} x_u\right)^2}; \qquad (1.84)$$

$$b_1 = \frac{N \sum_{u=1}^{N} x_u y_u - \sum_{u=1}^{N} x_u \sum_{u=1}^{N} y_u}{N \sum_{u=1}^{N} x_u^2 - \left(\sum_{u=1}^{N} x_u\right)^2}. \qquad (1.85)$$

1.3.2. Статистический анализ уравнения регрессии. *Исходные данные.* Получено уравнение регрессии (1.82) с коэффициентами (1.84) и (1.85). Необходимо провести статистический анализ коэффициентов и уравнения в целом.

Пояснение. Статистический анализ уравнения регрессии включает три этапа: проверку однородности дисперсий в каждой точке экспериментальной выборки N; оценку значимости всех коэффициентов регрессии; проверку адекватности уравнения регрессии экспериментальным данным.

Учитывая, что при пассивном эксперименте наблюдения дублировать принципиально невозможно, проверку однородности дисперсии провести нельзя. Таким образом, нарушается одна из предпосылок регрессионного анализа, что влечет за собой ряд трудностей. В частности, невозможно точно оценить значимость коэффициентов и адекватность уравнения. Однако иногда удается получить два-три наблюдения для идентичных значений факторов (в одной точке факторного пространства). И хотя это не дает возможности проверить однородность дисперсий, но позволяет сделать другие оценки.

Оценка значимости коэффициентов регрессии производится по критерию Стьюдента, однако сначала необходимо рассчитать дисперсию воспроизводимости (ошибку опыта):

$$s_0^2 = \frac{1}{N_0 - 1} \sum_{k=1}^{N_0} (y_{0k} - \bar{y}_0)^2, \qquad (1.86)$$

где y_{0k} — значение переменной в точке факторного пространства; N_0 — число параллельных опытов в этой точке;

$$\bar{y}_0 = \frac{1}{N_0} \sum_{k=1}^{N_0} y_{0k} \tag{1.87}$$

— среднее значение переменной в этой точке;

среднеквадратические отклонения коэффициентов регрессии

$$s_{b_0} = \sqrt{\frac{s_0^2 \sum_{u=1}^{N} x_u^2}{N \sum_{u=1}^{N} x_u^2 - \left(\sum_{u=1}^{N} x_u \right)^2}}; \tag{1.88}$$

$$s_{b_1} = \sqrt{\frac{s_0^2 N}{N \sum_{u=1}^{N} x_u^2 - \left(\sum_{u=1}^{N} x_u \right)^2}}. \tag{1.89}$$

Расчет t-критерия Стьюдента:

$$t_{ip} = \frac{|b_i|}{s_{b_i}}, \tag{1.90}$$

где b_i — i-ый коэффициент регрессии.

Принятие решений. Если окажется, что

$$t_{ip} > t_т(f_0 = N_0 - 1,\ q = 0{,}05) \tag{1.91}$$

для числа степеней свободы f_0 и заданного уровня значимости q, то i-ый коэффициент признается значимым [1]. Незначимые коэффициенты могут исключаться из уравнения регрессии. Оставшиеся коэффициенты пересчитываются заново.

Проверка адекватности уравнения регрессии. Для проверки необходимо рассчитать остаточную сумму квадратов

$$S_{ост} = \sum_{u=1}^{N} (y_u - \hat{y}_u)^2, \tag{1.92}$$

где y_u — экспериментальные значения выходной переменной; $\hat{y}_u$ — значения, рассчитанные по уравнению регрессии.

[1] В принципе использование t-критерия здесь некорректно, но допустимо.

Число степеней свободы

$$f_{ад} = N - l, \tag{1.93}$$

где l — число связей, равное числу коэффициентов уравнения, оставшихся после проверки их значимости. Тогда дисперсия адекватности

$$s^2_{ад} = \frac{S_{ост}}{f_{ад}}; \tag{1.94}$$

адекватность уравнения проверяется по критерию Фишера:

$$F_р = \frac{s^2_{ад}}{s^2_0}. \tag{1.95}$$

Принятие решений. Если расчетное значение критерия Фишера

$$F_р < F_т(f_{ад} = N - l, \quad f_0 = N_0 - 1, \quad q = 0{,}05) \tag{1.96}$$

для степеней свободы $f_{ад}$, f_0 и заданного уровня значимости, то уравнение считается адекватным. Если условие (1.96) не выполняется, то уравнение считается неадекватным и требуется изменение полинома $f(x_u)$ — вводятся новые факторы, изменяется порядок полинома.

1.4. Регрессионный анализ и МНК в матричной форме

Введение. Регрессионный анализ в матричной форме удобен для расчетов на ЭВМ, поскольку в программном обеспечении современных ЭВМ всегда есть такие процедуры, как обращение, умножение матриц и др. Кроме того, алгебра матриц уже стала универсальным языком современной науки и техники, позволяющим компактно и информативно представлять получаемые результаты.

1.4.1. Метод наименьших квадратов (МНК). *Исходные данные* не отличаются от предыдущих, только уравнение регрессии представляют в виде

$$\hat{y} = \sum_{i=1}^{n} b_i x_i, \; i = 0,1, \ldots, n, \tag{1.97}$$

где x_0 — фиктивная переменная, равная 1. Исходная матрица статистических измерений факторов $\boldsymbol{X}$ и вектор наблюдений $\boldsymbol{Y}$ имеют вид:

$$\mathbf{X} = \begin{bmatrix} x_{01}x_{11} \ldots x_{n1} \\ x_{02}x_{12} \ldots x_{n2} \\ \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \\ \\ \\ x_{0N}x_{1N} \ldots x_{nN} \end{bmatrix}; \; \boldsymbol{Y} = \begin{bmatrix} y_1 \\ y_2 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ y_N \end{bmatrix}. \tag{1.98}$$

Тогда система искомых уравнений

$$\hat{\boldsymbol{Y}} = \boldsymbol{X}_u^{\mathrm{T}}\boldsymbol{B}, \tag{1.99}$$

где матрица — столбец $\boldsymbol{B}$ коэффициентов регрессии и матрица — столбец $\boldsymbol{X}_u^{\mathrm{T}}$ факторов

$$\boldsymbol{B} = \begin{bmatrix} b_0 \\ b_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ b_n \end{bmatrix}; \quad \boldsymbol{X}_u^{\mathrm{T}} = \begin{bmatrix} x_0 \\ x_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ x_n \end{bmatrix}. \tag{1.100}$$

Расчет коэффициентов регрессии. Для получения системы нормальных уравнений необходимо получить произведение транспонированной матрицы $\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}$ на исходную $\boldsymbol{X}$

$$\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X} = \begin{bmatrix} x_{01}x_{02}, \ldots, x_{0N} \\ x_{11}x_{12}, \ldots, x_{1N} \\ \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \\ x_{n1}x_{n2}, \ldots, x_{nN} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x_{01} \; x_{11}, \ldots, x_{n1} \\ x_{02} \; x_{12}, \ldots, x_{n2} \\ \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \\ x_{0N} \; x_{1N}, \ldots, x_{nN} \end{bmatrix} =$$

$$= \begin{bmatrix} \sum\limits_{u=1}^{N} x_{0u}x_{0u} & \sum\limits_{u=1}^{N} x_{0u}x_{1u} & \ldots & \sum\limits_{u=1}^{N} x_{0u}x_{nu} \\ \sum\limits_{u=1}^{N} x_{1u}x_{0u} & \sum\limits_{u=1}^{N} x_{1u}x_{1u} & \ldots & \sum\limits_{u=1}^{N} x_{1u}x_{nu} \\ \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \\ \sum\limits_{u=1}^{N} x_{nu}x_{0u} & \sum\limits_{u=1}^{N} x_{nu}x_{1u} & \ldots & \sum\limits_{u=1}^{N} x_{nu}x_{nu} \end{bmatrix}; \tag{1.101}$$

и произведение матрицы $\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}$ на $\boldsymbol{Y}$.

$$\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{Y}=\begin{bmatrix} x_{01}x_{02},\ \ldots,\ x_{0N} \\ x_{11}x_{12},\ \ldots,\ x_{1N} \\ \cdots\cdots\cdots \\ x_{n1}x_{n2},\ \ldots,\ x_{nN} \end{bmatrix}\begin{bmatrix} y_1 \\ y_2 \\ \vdots \\ y_N \end{bmatrix}=\begin{bmatrix} \sum\limits_{u=1}^{N} x_{0u}y_u \\ \sum\limits_{u=1}^{N} x_{1u}y_u \\ \vdots \\ \sum\limits_{u=1}^{N} x_{nu}y_u \end{bmatrix}. \quad (1.102$$

Система нормальных уравнений имеет вид

$$(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})\boldsymbol{B}=\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{Y},$$

а ее решение:

$$\begin{aligned} (\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})\boldsymbol{B} &= (\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{Y}; \\ \boldsymbol{E}\boldsymbol{B} &= (\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{Y}; \\ \boldsymbol{B} &= (\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{Y}, \end{aligned} \quad (1.103)$$

где $\boldsymbol{E}$ — единичная матрица; $(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}$ — обратная матрица (дисперсионная), находится стандартными методами.

Обратная матрица $(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}$ обычно записывается так:

$$(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}=[c_{ij}]=\begin{bmatrix} c_{00}c_{10}\ \ldots\ c_{n0} \\ c_{01}c_{11}\ \ldots\ c_{n1} \\ \cdots\cdots\cdots \\ c_{0n}c_{1n}\ \ldots\ c_{nn} \end{bmatrix}, \quad (1.104)$$

а решение нормальных уравнений:

$$\begin{bmatrix} b_0 \\ b_1 \\ \cdots \\ b_n \end{bmatrix}=\begin{bmatrix} c_{00}c_{10}\ \ldots\ c_{n0} \\ c_{01}c_{11}\ \ldots\ c_{n1} \\ \cdots\cdots\cdots \\ c_{0n}c_{1n}\ \ldots\ c_{nn} \end{bmatrix}\begin{bmatrix} \sum\limits_{u=1}^{N} x_{0u}y_u \\ \sum\limits_{u=1}^{N} x_{1u}y_u \\ \cdots \\ \sum\limits_{u=1}^{N} x_{nu}y_u \end{bmatrix}. \quad (1.105)$$

Например, для b_i:

$$b_i = \sum_{i=1}^{n} c_{ij} \sum_{u=1}^{N} x_{iu} y_u. \tag{1.106}$$

Следствие 1. Добавление или исключение какого-либо члена полинома приводит к изменению как элементов алгебраических дополнений, так и определителя, что, в свою очередь, ведет к необходимости нового расчета коэффициентов.

Следствие 2. Если дисперсионная матрица диагональная

$$(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1} = \begin{bmatrix} c_{00} & 0 & \dots & 0 \\ 0 & c_{11} & \dots & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & 0 & \dots & c_{nn} \end{bmatrix}, \tag{1.107}$$

то коэффициенты уравнения регрессии будут определяться независимо друг от друга

$$b_i = c_{ii} \sum_{u=1}^{N} x_{iu}\, y_u, \tag{1.108}$$

где

$$c_{ii} = 1 \Big/ \sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2. \tag{1.109}$$

В этом случае исключение или добавление строк или столбцов в матрице нормальных уравнений не изменяет остальных коэффициентов.

1.4.2. Статистический анализ уравнения регрессии. *Исходные данные* не отличаются от предыдущих, однако число коэффициентов увеличивается в соответствии с уравнением (1.97).

Оценка значимости коэффициентов регрессии осуществляется исследованием математического ожидания разности матрицы — столбца истинных значений коэффициентов регрессии β и их оценками $\boldsymbol{B}$:

$$M[(\boldsymbol{B}-\beta)\,(B-\beta)^{\mathrm{T}}] = M\left[\begin{pmatrix} b_0-\beta_0 \\ b_1-\beta_1 \\ \dots \\ b_n-\beta_n \end{pmatrix}(b_0-\beta_0\; b_1-\beta_1 \dots b_n-\beta_n)\right] =$$

$$= M\begin{bmatrix} (b_0-\beta_0)^2 & (b_0-\beta_0)(b_1-\beta_1) & \dots & (b_0-\beta_0)(b_n-\beta_n) \\ (b_1-\beta_1)(b_0-\beta_0) & (b_1-\beta_1)^2 & \dots & (b_1-\beta_1)(b_n-\beta_n) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ (b_n-\beta_n)(b_0-\beta_0) & (b_n-\beta_n)(b_1-\beta_1) & \dots & (b_n-\beta_n)^2 \end{bmatrix} =$$

$$= \begin{bmatrix} \sigma^2_{b_0} & \operatorname{cov} b_0 b_1 & \dots & \operatorname{cov} b_0 b_n \\ \operatorname{cov} b_1 b_0 & \sigma^2{}_{b_1} & \dots & \operatorname{cov} b_1 b_n \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \operatorname{cov} b_n b_0 & \operatorname{cov} b_n b_1 & \dots & \sigma^2{}_{n} \end{bmatrix}. \qquad (1.110)$$

Получается корреляционная матрица, где $\sigma^2_{b_i}$ — дисперсия коэффициентов регрессии; $\operatorname{cov} b_i b_j$ — корреляционные моменты между коэффициентами b_i; b_j — $M[(b_i - \beta_i)(b_j - \beta_j)]$.

Для расчета $\sigma^2_{b_i}$ используется дисперсионная матрица. Вводится вектор-столбец

$$\overset{0}{\boldsymbol{Y}} = (\boldsymbol{Y} - M[\boldsymbol{Y}]) = \begin{bmatrix} y_1 - m_{y_1} \\ y_2 - m_{y_2} \\ \dots \\ y_N - m_{y_N} \end{bmatrix} \qquad (1.111)$$

и находится $M[\overset{0}{\boldsymbol{Y}}\overset{0}{\boldsymbol{Y}}{}^{\mathrm{T}}]$:

$$M\left[\begin{pmatrix} y_1 - m_{y_1} \\ y_2 - m_y{}^2 \\ \dots \\ y_N - m_{y_N} \end{pmatrix} (y_1 - m_{y_1} \;\; y_2 - m_{y_2} \dots y_N - m_{y_N})\right] =$$

$$= M\begin{bmatrix} (y_1 - m_{y_1})^2 & (y_1 - m_{y_1})(y_2 - m_{y_2}) & \dots & (y_1 - m_{y_1})(y_N - m_{y_N}) \\ (y_2 - m_{y_2})(y_1 - m_{y_1}) & (y_2 - m_{y_2})^2 & \dots & (y^2 - m_{y_2})(y_N - m_{y_N}) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ (y_N - m_{y_N})(y_1 - m_{y_1}) & (y_N - m_{y_N})(y_2 - m_{y_2}) & \dots & (y_N - m_{y_N})^2 \end{bmatrix}$$

С учетом предпосылок регрессионного анализа 3 и 4 (см. 1.3), получается

$$M[(y_i - m_{y_i})(y_j - m_{y_j})] = 0;$$
$$\sigma^2_{y_1} = \sigma^2_{y_2} = \dots = \sigma^2_{y_N} = \sigma^2_0. \qquad (1.112)$$

Тогда

$$M[\overset{0}{\boldsymbol{Y}}\overset{0}{\boldsymbol{Y}}{}^{\mathrm{T}}] = \begin{bmatrix} \sigma^2_{y_i} & & 0 \\ & \sigma^2_{y_2} & \\ 0 & & \sigma^2_{y_N} \end{bmatrix} \qquad (1.113)$$

После преобразований, с учетом $M(B)=\beta$ и предпосылки 1 (см. 1.3) получается:

$$M[(B-\beta)(B-\beta)^{\mathrm{T}}]=(X^{\mathrm{T}}X)^{-1}E\sigma_0^2. \qquad (1.114)$$

Вследствие (1.114) матрица $(X^{\mathrm{T}}X)^{-1}$ иногда называется ковариационной.

Поскольку используется оценка σ_0^2, т. е. s_0^2, записывают с учетом $(X^{\mathrm{T}}X)^{-1}=[c_{ij}]$:

$$(X^{\mathrm{T}}X)^{-1}s_0^2=\begin{bmatrix} c_{00}c_{01} & \dots & c_{0n} \\ c_{10}c_{11} & \dots & c_{1n} \\ \dots & \dots & \dots \\ c_{n0}c_{n1} & \dots & c_{nn} \end{bmatrix} s_0^2. \qquad (1.115)$$

Сравнением с корреляционной матрицей (1.110) получаются условия расчета оценок дисперсий коэффициентов уравнения регрессии:

$$s_{b_i}^2 = c_{ii}s_0^2; \qquad (1.116)$$

$$\operatorname{cov} b_i b_j = c_{ij}s_0^2. \qquad (1.117)$$

Следствие 1. Если матрица $(X^{\mathrm{T}}X)^{-1}$ диагональна, т. е. ковариации равны нулю

$$\operatorname{cov} b_i b_j = 0, \qquad (1.118)$$

то оценки дисперсий коэффициентов регрессии равны и определяются независимо друг от друга:

$$s^2_{b_i} = c_{ii}s^2_0 = \frac{s_0^2}{\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2}. \qquad (1.119)$$

Следствие 2. Если матрица $(X^{\mathrm{T}}X)^{-1}$ диагональна, то доверительные интервалы для каждого из коэффициентов регрессии в отдельности определяются по формуле

$$b_i - t_{\mathrm{T}}\sqrt{c_{ii}s_0^2} \leqslant \beta_i \leqslant b_i + t_{\mathrm{T}}\sqrt{c_{ii}s_0^2}, \qquad (1.120)$$

где t_{T} — табличное значение критерия Стьюдента.

Расчет t-критерия:

$$t_{ip} = \frac{|b_i|}{s_0\sqrt{c_{ii}}}. \qquad (1.121)$$

Полученные значения t_{ip} можно рассматривать как средство ранжирования факторов вследствие невыполнения равенства (1.117).

Принятие решений. Не отличается от принятия решений по условию (1.91).

Оценка адекватности уравнения регрессии осуществляется сравнением дисперсии адекватности $s^2_{ад}$ с ошибкой опытов s^2_0. Для определения дисперсии адекватности экспериментальных данных относительно предсказанных по уравнению регрессии $\hat{\boldsymbol{Y}} = \boldsymbol{X}_u^{\mathrm{T}}\boldsymbol{B}$ рассчитывается сумма квадратов

$$S_{ад} = (\hat{\boldsymbol{Y}} - \boldsymbol{Y})^{\mathrm{T}}(\hat{\boldsymbol{Y}} - \boldsymbol{Y}) = \sum_{u=1}^{N}(y_u - \hat{y}_u)^2. \qquad (1.122)$$

Сумму квадратов $S_{ад}$ можно представить несколько иначе:

$$S_{ад} = \boldsymbol{Y}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{Y} - \boldsymbol{B}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{Y}, \qquad (1.123)$$

или в обычной форме:

$$S_{ад} = \sum_{u=1}^{N} y_u^2 - \sum_{i=1}^{n} b_i \sum_{u=1}^{N} x_{iu}y_u \qquad (1.124)$$

с числом степеней свободы $f_{ад} = N - l$, где l — число членов в уравнении регрессии.

Ошибка опытов находится по параллельным опытам в некоторой точке факторного пространства.

Расчет критерия Фишера и принятие решений не отличается от расчета критерия и принятия решений по условиям (1.95) и (1.96).

1.5. Полный и дробный факторные эксперименты (ПФЭ и ДФЭ) первого порядка

Введение. Факторный эксперимент первого порядка предполагает такое проведение исследований, которое позволяет некоторым оптимальным образом получить

информацию об объекте, оформить ее в виде полиномиальной линейной модели и провести ее статистический анализ. Полученная математическая модель обычно служит целям экстраполяции (в небольших пределах), оптимизации (поиска локального оптимума) и может использоваться для интерполяции.

Оптимальное расположение точек в факторном пространстве и линейное преобразование координат позволяет преодолеть недостатки классического регрессионного анализа. Одновременное варьирование всех факторов позволяет получить коэффициенты математической модели с меньшей ошибкой, не увеличивая, а чаще уменьшая число опытов.

ПФЭ и ДФЭ фактически представляют собой применение классических методов наименьших квадратов и регрессионного анализа (МНК и дисперсионный статистический анализ), проводимых по определенному плану.

Пояснение. Факторный эксперимент использует схему дисперсионного анализа — реализуются возможные комбинации факторов на всех выбранных уровнях. Общее число опытов для полного факторного эксперимента в случае, когда реализуются все комбинации факторов, равно

$$N = p^n, \tag{1.125}$$

где p — число уровней; n — число факторов.

Если планирование ведется на двух уровнях ($p=2$), то реализуется ПФЭ типа 2^n.

1.5.1. Алгоритм полного факторного эксперимента на двух уровнях с равным числом параллельных опытов. *Исходные данные.* Ставится задача определения локального оптимума на объекте исследования, для этого предполагается использовать математическую модель, полученную с помощью полного факторного эксперимента.

Выбирают факторы и выходную переменную, задают области определения факторов и выходной переменной

$$\begin{aligned} y_{\min} &\leqslant y \leqslant y_{\max}; \\ X_{1\min} &\leqslant X_1 \leqslant X_{1\max}; \\ X_{2\min} &\leqslant X_2 \leqslant X_{2\max}; \\ &\ldots\ldots\ldots \end{aligned} \tag{1.126}$$

Кодирование. В области определения факторов выбирается точка X_{i0}, $i = \overline{1, n}$ (нулевой уровень факторов),

которая в предварительных исследованиях была признана наилучшей с точки зрения оптимума y. Задается интервал варьирования факторов ΔX_i. Определяются верхние и нижние уровни факторов:

$$X_{i\text{в}} = X_{i0} + \Delta X_i;$$
$$X_{i\text{н}} = X_{i0} - \Delta X_i \qquad (1.127)$$

при условии, что $(X_{i\text{н}} \div X_{i\text{в}}) < (X_{i\min} \div X_{i\max})$.

Кодируются факторы (переход к новой безразмерной системе координат $x_1, x_2, \ldots, x_n$):

$$x_{i\text{в}} = \frac{X_{i\text{в}} - X_{i0}}{\Delta X_i};$$
$$x_{i\text{н}} = \frac{X_{i\text{н}} - X_{i0}}{\Delta X_i}. \qquad (1.128)$$

В новой системе координат факторы принимают значения $+1$ и -1.

План эксперимента. План проведения эксперимента (матрица планирования) записывается в виде табл. 1.7.

Таблица 1.7. **План эксперимента**

Номер опыта	x_0	План				Выходная переменная				
		x_1	x_2	...	x_n	y_{u1}	y_{u2}	...	y_{um}	$\bar{y}$
1	+1	+1	+1	...	+1	y_{11}	y_{12}	...	y_{1m}	$\bar{y}_1$
2	+1	−1	+1	...	+1	y_{21}	y_{22}	...	y_{2m}	$\bar{y}_2$
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮		⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
N	+1	−1	−1	...	−1	y_{N1}	y_{N2}	...	y_{Nm}	$\bar{y}_N$

В приведенном плане x_0 — фиктивная переменная, равная единице; здесь также проводятся параллельные опыты — их число равно m в каждой строке матрицы планирования.

Пояснение. Предложенный план эксперимента обладает ортогональностью:

$$\sum_{u=1}^{N} x_{iu} x_{ju} = 0, \; i \neq j, \; i, j = 0, 1, \ldots, n, \qquad (1.129)$$

что соответствует следствию 2 [см. (1.107)] и вытекающему из него преимуществу независимого определения коэффициентов [см. (1.108) и (1.109)].

Как следствие (1.129) план эксперимента обладает симметричностью

$$\sum_{u=1}^{N} x_{iu} = 0, \tag{1.130}$$

и нормировкой

$$\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2 = N. \tag{1.131}$$

Ортогональные планы ПФЭ (для линейных моделей) обладают также ротатабельностью. Последнее предполагает равенство и минимальность дисперсий предсказанных значений выходной переменной для всех точек факторного пространства. По закону накопления ошибок для дисперсии предсказанных уравнением регрессии значений выходной переменной можно записать:

$$s^2_{\hat{y}} = s^2_{b_0} + s^2_{b_1} x_1^2 + \ldots + s^2_{b_n} x_n^2. \tag{1.132}$$

Из условий (1.112) вытекает, что дисперсии коэффициентов регрессии равны между собой, тогда

$$s^2_{\hat{y}} = s^2_{b_i}\left(1 + \sum_{i=1}^{n} x_i^2\right), \tag{1.133}$$

или с учетом того, что $\sum_{i=1}^{n} x_i^2 = \rho^2$ (ρ — радиус сферы)

$$s^2_{\hat{y}} = s^2_{b_i}(1 + \rho^2). \tag{1.134}$$

Отсюда ясно, что дисперсия предсказанного значения выходной переменной зависит только от радиуса сферы. Это свойство ротатабельности эквивалентно независимости дисперсии выходной переменной от вращения координат в центре плана и оправдано при поиске оптимума градиентными методами. Интуитивно понятно, что исследователю удобно иметь дело с такой информацией, содержащейся в уравнении регрессии, которая равномерно «размазана» по сфере радиусом ρ. Действительно, такое положение можно признать разумным, ибо с помо-

щью уравнения регрессии будут предприниматься попытки предсказать положение еще неизвестных участков факторного пространства. Равноценность этих участков в смысле ошибки предсказания, по-видимому, является необходимой.

Расчет коэффициентов уравнения регрессии. Исходя из (1.108), (1.109) и (1.131) коэффициенты рассчитываются по уравнению

$$b_i = \frac{1}{N} \sum_{u=1}^{N} x_{iu} \bar{y}_u, \quad i = 0, 1, 2, \ldots, n, \tag{1.135}$$

где $\bar{y} = \frac{1}{m} \sum_{k=1}^{m} y_{uk}$, (1.136)

и окончательно

$$b_i = \frac{1}{Nm} \sum_{u=1}^{N} \sum_{k=1}^{m} x_{iu} y_{uk}, \tag{1.137}$$

где N — число строк матрицы планирования (число разных условий опыта); m — число параллельных опытов на каждой строке матрицы.

Построчные дисперсии по параллельным опытам на каждой строке матрицы рассчитываются по уравнению

$$s_u^2 = \sum_{k=1}^{m} (y_{uk} - y_u)^2 / f_u, \tag{1.138}$$

где $f_u = m_u - 1$. (1.139)

Проверка однородности дисперсий осуществляется по уравнениям (1.18) и (1.19) при условии $m_i = m$, $p = N$; индекс i заменяется индексом u.

Принятие решений. Если не выполняется условие (1.19), то гипотеза об однородности дисперсий отвергается и одними из решений являются увеличение числа параллельных опытов, изменение метода контроля выходной переменной, масштабирование выходной переменной.

Расчет ошибки опыта производится усреднением построчных дисперсий

$$s_0^2 = \frac{1}{N} \sum_{u=1}^{N} s_u^2 = \frac{1}{N(m-1)} \sum_{u=1}^{N} \sum_{k=1}^{m} (y_{uk} - \bar{y}_u)^2 \tag{1.140}$$

для числа степеней свободы

$$f_0 = N(m-1). \qquad (1.141)$$

Оценка значимости коэффициентов регрессии производится расчетом t-критерия по формуле (1.90), расчетом дисперсий коэффициентов по формуле (1.119) с учетом (1.131) и оценкой по условию (1.91):

$$s^2_{b_i} = \frac{s^2_0}{Nm}. \qquad (1.141,а)$$

Принятие решений. Если для какого-то коэффициента условие (1.91) не выполняется, то соответствующий фактор можно признать незначимым и исключить его из уравнения. Однако рекомендуется помнить, что скорее всего полученная незначимость фактора является следствием неудачно выбранного (малого) интервала варьирования. Отсюда ясно, что более правильным является решение повторить эксперимент, расширив интервал варьирования для исследуемого фактора. Конечно, при этом число опытов, а значит и длительность эксперимента, возрастают. Иногда половину опытов сохраняют тем, что интервал варьирования расширяют только в одну сторону, другой же (верхний или нижний) уровень остается прежним.

Если фактор остался незначимым после повторения эксперимента и всех необходимых расчетов, то его (или их) отбрасывают и переходят к анализу адекватности уравнения.

Проверка адекватности уравнения регрессии осуществляется по формулам (1.92), (1.94), (1.95) с учетом параллельных опытов:

$$s^2_{ад} = \frac{m}{N-l}\sum_{u=1}^{N}(y_u - \hat{y}_u)^2. \qquad (1.141,б)$$

Поиск $F_т$ производится для степеней свободы $f_{ад}$ (1.93) и f_0 (1.141).

Принятие решений. При выполнении условия (1.96), т. е. при неадекватной линейной модели, наиболее часто принимают решение об уменьшении интервалов варьирования факторов и повторении эксперимента. Такое решение хотя и уменьшает кривизну поверхности отклика, однако может привести к появлению незначимых коэф-

фициентов. Очень эффективно включать в план эксперимента новый фактор из числа отсеянных ранее. Если условие (1.96) выполняется, то адекватный линейный полином можно использовать для решения различных задач (гл. 3).

1. 5. 2. Алгоритм ПФЭ с параллельными опытами в одной точке факторного пространства. *Исходные данные* не отличаются от алгоритма ПФЭ с одинаковым числом параллельных опытов (см. 1. 5. 1); так же проводится и кодирование.

План эксперимента строится с учетом априорной информации о хорошей воспроизводимости опытов, что не требует проверки однородности построчных дисперсий. Тогда для расчета ошибки опыта достаточно провести параллельных опытов (см. 1. 5. 1); так же проводится и пространства (без потери общности они могут быть поставленными в центре плана с координатами $\boldsymbol{X} = \{0, 0 \ldots, 0\}$, табл. 1. 8).

Таблица 1.8. **План эксперимента**

Номер опыта	x_0	План				Выходная переменная
		x_1	x_2	. . .	x_n	
1	+1	+1	+1	. . .	+1	y_1
2	+1	−1	+1	. . .	+1	y_2
.	.	.	.	.	.	.
.	.	.	.	.	.	.
.	.	.	.	.	.	.
N	+1	−1	−1	. . .	−1	y_N
$N+1$	+1	0	0	. . .	0	y_{01}
$N+2$	+1	0	0	. . .	0	y_{02}
.						.
.	. . .	. . .	. . .	. . .	. . .	.
.						.
$N+N_0$	1	0	0	. . .	0	y_{0N_0}

Расчет ошибки опыта производится по формуле

$$s_0^2 = \sum_{k=1}^{N_0} (y_{0k} - \overline{y_0})^2 / f_0, \qquad (1.142)$$

где
$$f_0 = N_0 - 1. \qquad (1.143)$$
За исключением этапа проверки однородности дисперсий, все остальные этапы данного алгоритма совпадают с алгоритмом 1. 5. 1.

1. 5. 3. Алгоритм ПФЭ при неравном числе параллельных опытов. *Введение.* На практике приходится сталкиваться с такими ситуациями, которые не позволяют при реализации эксперимента выдержать одинаковое число параллельных опытов по каждой строке матрицы планирования. Это происходит либо из-за случайных грубых нарушений условий эксперимента, когда измерение признается неудачным, а повторить его по каким-либо причинам не удается, либо вследствие неуверенности экспериментатора в «чистоте» опыта.

Последовательность обработки результатов эксперимента при неравном количестве параллельных опытов не нарушается, однако алгоритмы расчета меняются вследствие нарушения ортогональности матрицы планирования. Это приводит к изменению расчетных формул для коэффициентов регрессии и их ошибок, а также для дисперсии адекватности.

Исходные данные не отличаются от исходных данных алгоритма 1. 5. 1.

План эксперимента соответствует приведенному в табл. 1. 7, однако в каждой строке число параллельных опытов m_u может быть иным.

Расчет коэффициентов уравнения регрессии. Вследствие неортогональности матрицы планирования расчет коэффициентов регрессии осуществляется по методу наименьших квадратов. Лучше всего использовать матричную форму записи и стандартные программы ЭВМ — обращение матриц, транспонирование, расчет детерминанта матриц и т. д. [см. 1. 4. 1, формула (1. 103)].

Расчет ошибки опыта. Рассчитываются построчные дисперсии по формулам (1. 138) и (1. 139).

При усреднении построчных дисперсий пользуются средневзвешенными значениями дисперсий, взятыми с учетом числа степеней свободы f_u для u-ой строки матрицы планирования:
$$s_0^2 = \frac{s_1^2 f_1 + s_2^2 f_2 + \cdots + s_N^2 f_N}{f_1 + f_2 + \cdots + f_N} = \frac{\sum_{u=1}^{N} f_u s_u^2}{\sum_{u=1}^{N} f_u}. \qquad (1.144)$$

Проверка однородности дисперсий. При неравном числе параллельных опытов для проверки однородности дисперсий используется критерий Бартлета. Для этого рассчитывается величина $A_р$:

$$A_р = \frac{1}{c}(f_0 \lg s_0^2 - \sum_{u=1}^{N} f_u \lg s_u^2); \tag{1.145}$$

$$c = 0{,}4343\left[1 + \frac{1}{3(N-1)}\left(\sum_{u=1}^{N}\frac{1}{f_u} - \frac{1}{f_0}\right)\right], \tag{1.146}$$

$$f_0 = \sum_{u=1}^{N} f_u, \tag{1.147}$$

где f_0 — число степеней свободы; N — число сравниваемых дисперсий (здесь их число равно числу строк матриц).

Принятие решений. Бартлет доказал, что рассчитанная величина $A_р$ приближается к χ^2-распределению с $N-1$ степенями свободы. Тогда, если выполняется неравенство

$$A_р = \chi_р^2 < \chi_т^2,\ (f_0,\ q = 0{,}05), \tag{1.148}$$

то дисперсии признаются однородными.

Замечание. Критерий Бартлета базируется на нормальном распределении случайной величины y_u. Поэтому проверка нормальности закона распределения y_u весьма желательна.

Учитывая сложность применения критерия Бартлета при неодинаковом числе параллельных опытов, практически удобно использовать критерий Фишера. Для этого составляется отношение максимальной построчной дисперсии к минимальной:

$$F_р = \frac{s_{u\,max}^2}{s_{u\,min}^2}. \tag{1.149}$$

Очевидно, что если выполняется условие

$$F_р < F_т \tag{1.150}$$

при $f_{umax} = m_{umax} - 1$, $f_{umin} = m_{umin} - 1$ и заданном уровне значимости q (т. е. максимальная и минимальная

дисперсии отличаются незначимо), то и остальные дисперсии будут отличаться незначимо. Таким образом, гипотезу об однородности дисперсий можно признать правомерной при выполнении условия (1. 150).

Проверка значимости коэффициентов регрессии не отличается от произведенной выше при равном числе параллельных опытов. Следует отметить, что смысл проверки несколько меняется вследствие неортогональности матрицы планирования, что приводит к появлению недиагональных элементов в матрице $(X^TX)^{-1}$. Однако по значениям они обычно невелики и поэтому критерий Стьюдента можно использовать как средство ранжирования коэффициентов регрессии в соответствии с формулами (1.90), (1.91), числом степеней свободы f_0 (1.147) и заданным уровнем значимости.

Принятие решений не отличается от предыдущих алгоритмов.

Проверка адекватности уравнения регрессии. Расчет дисперсии адекватности осуществляется по формуле

$$s^2_{\text{ад}} = \frac{1}{N-l} \sum_{u=1}^{N} m_u (y_u - \hat{y}_u)^2. \qquad (1.151)$$

Физический смысл формулы таков: различию между экспериментальным и расчетным значениями выходной переменной придается тем больший вес, чем большее число опытов реализуется. Здесь m_u фактически является весовым коэффициентом. Для проверки адекватности используется критерий Фишера в соответствии с (1. 95) и (1. 96).

Принятие решений не отличается от предыдущих алгоритмов.

1.5.4. Алгоритм ПФЭ с расчетом коэффициентов взаимодействий факторов. *Введение.* Ранее уже упоминалось, что цель ПФЭ — получение адекватной линейной модели, которую предполагается использовать для оптимизации объекта исследования. В задачах интерполяции же математическая модель должна адекватно описывать объект в области эксперимента и потому может быть нелинейной. Планы ПФЭ, с одной стороны, позволяют достаточно просто рассчитать коэффициенты при взаимодействиях факторов и, если они значимы, использовать полученную модель для интерполяционных целей. С другой стороны, значимость коэффициентов при взаимодей-

ствиях факторов сразу же позволяет сделать вывод о неадекватности линейной модели.

Исходные данные в отличие от 1. 5. 1 пополняются условием необходимости расчета коэффициентов при взаимодействиях факторов, т. е. ищется модель в виде

$$\hat{y} = b_0x_0 + b_1x_1 + \ldots + b_nx_n + b_{12}x_1x_2 + \ldots + \\ + b_{ij}x_ix_j + \ldots = \sum_{u=0}^{n} b_ix_i + \sum_{i\neq j}^{n} b_{ij}x_ix_j. \quad (1.152)$$

План эксперимента дополняется расчетными столбцами x_ix_j. Например, план ПФЭ 2^3 приведен в табл. 1. 9.

Таблица 1.9. **План эксперимента**

Номер опыта	x_0	План						Выходная переменная
		реализуемый			расчетный			
		x_1	x_2	x_3	x_1x_2	x_1x_3	x_2x_3	
1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	y_1
2	−1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	y_2
3	+1	+1	−1	+1	−1	+1	−1	y_3
4	+1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	y_4
5	+1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	y_5
6	+1	−1	+1	−1	−1	+1	−1	y_6
7	+1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	y_7
8	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	y_8

Расчет коэффициентов проводится по уравнению

$$b_{ij} = \frac{1}{N}\sum_{u=1}^{N} x_{iu}x_{ju}y_u, \; i = 1, 2, \ldots, n, \; i \neq j. \quad (1.153)$$

Остальные этапы не отличаются от приведенных в алгоритме 1. 5. 1.

Замечание 1. В задачах оптимизации необходимо, чтобы все b_{ij} были незначимы, а в задачах интерполяции наоборот — значимы (хотя бы некоторые). Поэтому для задач оптимизации всегда проводят расчет b_{ij} и используют их для проверки адекватности модели.

Замечание 2. Существует еще одна проверка нелинейности модели оценкой гипотезы о равенстве нулю сум-

мы коэффициентов при квадратичных членах. С этой целью в центре плана ставят несколько опытов, определяют среднее $\bar{y}_0$ и вычисляют разность $(b_0 - \bar{y}_0)$, которая и является оценкой суммы коэффициентов при квадратичных членах.

Действительно, свободный член b_0, который рассчитывают по уравнению:

$$b_0 = \frac{1}{N} \sum_{u=1}^{N} x_{0u} y_u = \frac{1}{N} \sum_{u=1}^{N} y_u = \bar{y}, \qquad (1.154)$$

является совместной оценкой β_0 и $\sum_{i=1}^{n} \beta_{ii}$:

$$b_0 \to \beta_0 + \sum_i \beta_{ii}, \qquad (1.155)$$

где β_0 — свободный член уравнения регрессии по генеральной совокупности экспериментальных данных; β_{ii} — коэффициенты при x_i^2 также по генеральной совокупности.

Это положение вытекает из идентичности столбцов матрицы планирования при x_0 и x_i^2 (они все равны $+1$). Тогда разность $(\bar{y} - \bar{y}_0) \to \sum \beta_{ii}$ может в какой-то мере служить оценкой кривизны поверхности отклика выходной переменной. Значимость этой разницы проверяют по условию:

$$t_p = \frac{(b_0 - \bar{y}_0)\sqrt{N}}{s_0} > t_т, \qquad (1.156)$$

где s_0 — среднеквадратичное отклонение ошибок опыта; N — число опытов; $t_т$ — табличное значение критерия Стьюдента для числа степеней свободы дисперсии s_0^2 и уровня значимости q.

Выполнение условия (1. 156) свидетельствует о значимости квадратичных членов, и требуется их введение в интерполяционное уравнение или уменьшение интервалов варьирования факторов для получения адекватной линейной модели.

1. 5. 5. Алгоритм дробного факторного эксперимента (ДФЭ). *Введение.* Полный факторный эксперимент является весьма эффективным средством получения математической модели исследуемого объекта особенно при числе факторов $n > 3$. Однако увеличение числа факторов приводит к резкому увеличению числа опытов. Так, ПФЭ 2^6 требует постановки 64 опытов, а 2^7 — 128 опытов. Ко-

нечно, точность модели при увеличении числа опытов также возрастает, однако, известно, что увеличение числа опытов приводит к большим затратам средств и времени.

Практика показывает, что для получения достаточно точных оценок коэффициентов регрессии можно обойтись малым количеством опытов, вводя понятие дробного факторного эксперимента (или дробных реплик), который представляет собой некоторую часть $\left(\frac{1}{2}, \frac{1}{4}, \frac{1}{8}\right.$ и т. д.) от полного факторного эксперимента (см. 1. 1. 3).

Сокращение числа опытов влечет за собой появление корреляции между некоторыми столбцами матрицы планирования. Это обстоятельство не позволяет раздельно оценивать эффект факторов и эффекты взаимодействия. Получаются так называемые смешанные оценки.

Определения. Для дробных реплик используют специальные алгебраические соотношения, облегчающие выявление смешанных эффектов. Они называются генерирующими соотношениями и определяющими контрастами.

Генерирующим называется соотношение, которое показывает, какое из взаимодействий принято незначимым, а потому заменено в матрице планирования новой независимой переменной. Так, рассмотренный в табл. 1. 10 план типа 2^{3-1} задавался генерирующим соотношением

$$x_3 = x_1 x_2.$$

Таблица 1.10. **План эксперимента**

Номер опыта	x_0	План			Выходная переменная
		x_1	x_2	$x_3 = x_1 x_2$	
1	+1	+1	+1	+1	y_1
2	+1	−1	+1	−1	y_2
3	+1	+1	−1	−1	y_3
4	+1	−1	−1	+1	y_4

С генерирующими соотношениями можно производить алгебраические операции: умножать обе части равенства на любые эффекты — линейные и определенные взаи-

модействия. При этом, если фактор входит в уравнение в квадрате или в другой четной степени, то он заменяется единицей ($x_i^{2n}=1$; $n=1, 2, ..., k$). Умножив генерирующее соотношение для плана 2^{3-1} на x_3:

$$x_3^2 = x_1x_2x_3,$$

или, учитывая вышесказанное, получим

$$1 = x_1x_2x_3.$$

Это и есть определяющий контраст — соотношение, которое задает элементы первого столбца матрицы (как известно, элементы первого столбца матрицы равны 1).

План эксперимента. Зная определяющий контраст, можно найти соотношения, задающие все смешанные оценки для данной дробной реплики. Для этого определяющий контраст умножается на каждый фактор. В рассматриваемом примере для первой полуреплики от плана 2^3 смешанные оценки коэффициентов регрессии задаются следующими соотношениями:

$$x_1 = x_1x_1x_2x_3 = x_2x_3;$$
$$x_2 = x_2x_1x_2x_3 = x_1x_3;$$
$$x_3 = x_3x_1x_2x_3 = x_1x_2,$$

что соответствует оценкам

$$b_1 \longrightarrow \beta_1 + \beta_{23}; \qquad b_2 \longrightarrow \beta_2 + \beta_{13}; \qquad b_3 \longrightarrow \beta_3 + \beta_{12}.$$

Замечание. Эффективность системы смешивания факторов и взаимодействий факторов определяется так называемой разрешающей способностью матрицы. Она считается максимальной, если линейные эффекты смешаны с эффектами взаимодействия, наибольших по числу факторов в него входящих. Так, при выборе полуреплики 2^{4-1} возможны восемь решений

1. $x_4 = x_1x_2$;
2. $x_4 = -x_1x_2$;
3. $x_4 = x_2x_3$;
4. $x_4 = -x_2x_3$;
5. $x_4 = x_1x_3$;
6. $x_4 = -x_1x_3$;
7. $x_4 = x_1x_2x_3$;
8. $x_4 = -x_1x_2x_3$.

Согласно принятому определению, наибольшая разрешающая способность у реплик 7 и 8, они называются главными. При наличии априорной информации и значимости взаимодействий факторов можно разработать наилучшую систему смешивания оценок. Если эти сведения отсутствуют, то выбирают реплику с наибольшей разрешающей способностью, поскольку тройные взаимодействия обычно менее важны, чем двойные.

Остальные этапы алгоритма — расчет коэффициентов регрессии и статистический анализ уравнения — не отличаются от приведенных выше.

1.6. Факторный эксперимент второго порядка

Введение. Задачей факторного эксперимента второго порядка является проведение оптимального плана исследований, получение нелинейной модели и ее статистический анализ. Модель применяется для поиска координаты оптимума и может использоваться для целей интерполяции и экстраполяции.

Обычно факторный эксперимент второго порядка используется для описания существенно нелинейных объектов полиномом

$$\hat{y} = b_0 + \sum_{i=1}^{n} b_i x_i + \sum_{\substack{i,\ j=1 \\ i \neq j}}^{n} b_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^{n} b_{ii} x_i^2 . \qquad (1.157)$$

Пояснение. Построить планы, по которым можно получить модель в виде (1.157) с помощью ранее рассмотренных алгоритмов не удается хотя бы потому, что условие ортогональности в столбцах матрицы не выполняется (сумма элементов столбцов не равна нулю). Также требуется поставить большое число опытов. Очевидно, что планирование на трех уровнях 3^n неэкономично и потому предложено дополнить план ПФЭ 2^n определенными точками факторного пространства так, чтобы выполнялось условие ортогональности или ротатабельности, но при этом число опытов таких планов было меньшим, чем ПФЭ 3^n:

$$N = 2^n + 2n + N_0 < 3^n, \qquad (1.158)$$

где каждое слагаемое определяет число опытов ПФЭ 2^n, число «звездных» и число нулевых опытов (в центре

плана). Из формулы (1. 158) вытекает, что предлагаемые планы (при $n>2$) экономичнее планов на трех уровнях (обычно $N_0 = 1$).

Большим преимуществом таких планов является то, что их можно получать из планов 2^n. Для построения используется план 2^n, линейная модель по которому при поиске области оптимума оказалась неадекватной. Все проведенные эксперименты остаются, а план пополняется определенным количеством специально подобранных «звездных» точек. Отметим, что дробная реплика предыдущего плана в новом плане дополняется до полного факторного эксперимента, если $n\leqslant 4$; при $n>4$ возможно использование дробных реплик. Организованные таким образом планы называются центральными и композиционными. Общий вид плана приведен в табл. 1. 11 .

Таблица 1.11. **План эксперимента**

Номер опыта	x_0	План					Выходная переменная
		x_1	x_2	$x_1 x_2$	x_1^2	x_2^2	
1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	y_1
2	+1	+1	−1	−1	+1	+1	y_2
3	+1	−1	+1	−1	+1	+1	y_3
4	+1	−1	−1	+1	+1	+1	y_4
5	+1	$+\alpha$	0	0	α^2	0	y_5
6	+1	$-\alpha$	0	0	α^2	0	y_6
7	+1	0	$+\alpha$	0	0	α^2	y_7
8	+1	0	$-\alpha$	0	0	α^2	y_8
9	+1	0	0	0	0	0	y_9

Выбор плеча «звездных» точек и числа нулевых точек зависит от критерия оптимальности плана. В инженерной практике широко применяются ортогональные и ротатабельные планы второго порядка.

1. 6. 1. Алгоритм ортогонального плана второго порядка (ЦКОП). *Исходные данные.* Имеется план ПФЭ 2^n. Математическая модель, полученная по этому плану, неадекватная. Условия (1.126) остаются прежними.

Кодирование. Для получения ортогональных планов второго порядка необходимо провести некоторое преобразование столбцов квадратичных переменных и столб-

ца x_0. Это вызвано неортогональностью указанных столбцов матрицы планирования (см. табл. 1.11), поскольку

$$\sum_{u=1}^{N} x_{0u} x_{iu}^2 \neq 0; \tag{1.159}$$

$$\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2 x_{ju}^2 \neq 0. \tag{1.160}$$

Неравенства справедливы, поскольку значения в столбцах x_0 и x_i^2 всегда положительны. Заметим, что в ортогональных планах на количество нулевых точек обычно не накладывают никаких условий, поэтому N_0 принимают равным единице.

Для ортогональности исходного плана введем преобразование

$$x_i' = x_i^2 - \frac{1}{N} \sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2 = x_i^2 - \overline{x_i^2}, \tag{1.161}$$

тогда

$$\sum_{u=1}^{N} x_{0u} x_{iu}' = \sum_{u=1}^{N} x_{0u} x_i^2 - \sum_{u=1}^{N} x_{0u} x_i^2 = 0.$$

Если приравнять недиагональный элемент ковариционной матрицы $(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}$ нулю и решить его относительно α, то можно найти его значение, организующее ортогональность столбцов x_i^2 (значения α для различных n приведены в табл. 1. 12).

Таблица 1.12. **Величина плеча для ортогональных планов второго порядка**

Наименование элементов плана	Число независимых факторов			
	2	3	4	5
Ядро плана	2^2	2^3	2^4	2^{5-1}
α	1,00	1,215	1,414	1,547

План эксперимента. Ортогональная матрица композиционного плана для $n=2$ приведена в табл. 1. 13. Значения x_i' находятся по формуле (1. 161)

$$1 - {}^6/_9 = {}^1/_3, \text{ или } 0 - {}^6/_9 = -{}^2/_3.$$

Таблица 1.13. **План эксперимента**

Номер опыта	x_0	План		Расчетная матрица			Выходная переменная
		x_1	x_2	$x_1 x_2$	x_1'	x_2'	
1	+1	+1	+1	1/3	1/3	1/3	y_1
2	+1	+1	−1	1/3	1/3	1/3	y_2
3	+1	−1	+1	1/3	1/3	1/3	y_3
4	+1	−1	−1	1/3	1/3	1/3	y_4
5	+1	0	+1	1/3	1/3	−2/3	y_5
6	+1	0	−1	1/3	1/3	−2/3	y_6
7	+1	+1	0	−2/3	−2/3	1/3	y_7
8	+1	−1	0	−2/3	−2/3	1/3	y_8
9	+1	0	0	−2/3	−2/3	−2/3	y_9

Ортогональная матрица композиционного плана для $n = 3$ приведена в табл. 1.14. Значения x_i' находят по формуле (1. 161)

$$1 - 10{,}94/15 = 1 - 0{,}73, \text{ или } 0 - 0{,}73 = -0{,}73.$$

Расчет коэффициентов регрессии осуществляется в соответствии с методом наименьших квадратов (см. 1.4.1). Коэффициенты и их дисперсии можно также рассчитывать по формулам

$$b_0 = \frac{1}{N}\sum_{u=1}^{N} y_u; \tag{1.162}$$

$$b_i = \frac{\sum_{u=1}^{N} x_{iu} y_u}{\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2}; \tag{1.163}$$

$$b_{ij} = \frac{\sum_{u=1}^{N} x_{iu} x_{ju} y_u}{\sum_{u=1}^{N} (x_{iu} x_{ju})^2}; \tag{1.164}$$

$$b_{ii} = \frac{\sum_{u=1}^{N} x_{iu}' y_u}{\sum_{u=1}^{N} (x_{iu}')^2}; \tag{1.165}$$

Таблица 1.14. **План эксперимента**

Номер опыта	x_0	План			Расчетная матрица						Выходная переменная
		x_1	x_2	x_3	x_1'	x_2'	x_3'	x_1x_2	x_1x_3	x_2x_3	
1	+1	+1	+1	+1	0,27	0,27	0,27	+1	+1	+1	y_1
2	+1	−1	+1	+1	0,27	0,27	0,27	−1	−1	+1	y_2
3	+1	+1	−1	+1	0,27	0,27	0,27	−1	+1	−1	y_3
4	+1	−1	−1	+1	0,27	0,27	0,27	+1	−1	−1	y_4
5	+1	+1	+1	−1	0,27	0,27	0,27	+1	−1	−1	y_5
6	+1	−1	+1	−1	0,27	0,27	0,27	−1	+1	−1	y_6
7	+1	+1	−1	−1	0,27	0,27	0,27	−1	−1	+1	y_7
8	+1	−1	−1	−1	0,27	0,27	0,27	+1	+1	+1	y_8
9	+1	1,215	0	0	0,746	−0,73	−0,73	0	0	0	y_9
10	+1	−1,215	0	0	0,746	−0,73	−0,73	0	0	0	y_{10}
11	+1	0	1,215	0	−0,73	−0,746	−0,73	0	0	0	y_{11}
12	+1	0	−1,215	0	−0,73	−0,746	−0,73	0	0	0	y_{12}
13	+1	0	0	1,215	−0,73	−0,73	0,746	0	0	0	y_{13}
14	+1	0	0	−1,215	−0,73	−0,73	0,746	0	0	0	y_{14}
15	+1	0	0	0	−0,73	−0,73	−0,73	0	0	0	y_{15}

$$s^2_{b_0} = \frac{s^2_0}{N}; \tag{1.166}$$

$$s^2_{b_i} = \frac{s^2_0}{\sum_{u=1}^{N} x^2_{iu}}; \tag{1.167}$$

$$s^2_{b_{ij}} = \frac{s^2_0}{\sum_{u=1}^{N} (x_{iu}x_{ju})^2}; \tag{1.168}$$

$$s^2_{b_{ii}} = \frac{s^2_0}{\sum_{u=1}^{N} (x'_i)^2}, \tag{1.169}$$

где s^2_0 — ошибка опыта, известная по полному факторному эксперименту.

Дисперсия величины b_0 оценивается по уравнению

$$s^2_{b_0} = s^2_{b'_0} + (x_1^2)\, s^2_{b_{11}} + \cdots + (x_n^2)\, s^2_{b_{nn}}. \tag{1.170}$$

Оценка значимости коэффициентов проводится по критерию Стьюдента (см. (1.90)), а *решения принимаются* в соответствии с (1.91). Благодаря ортогональности плана после отбрасывания незначимых коэффициентов оставшиеся не пересчитываются.

Проверка адекватности уравнения регрессии осуществляется расчетом $S_{ост}$ сначала по формуле (1. 92) и далее по формулам (1.93), (1.94), (1.95).

Значение $\hat{y}_u$ определяется по уравнению

$$\hat{y} = b'_0 + b_1x_1 + \cdots + b_nx_n + b_{12}x_1x_2 + \cdots +$$

$$+ b_{n-1,n}\, x_{n-1}x_n + b_{11}(x_1^2 - \bar{x}_1^2) + \cdots + b_{nn}\,(x_n^2 - \bar{x}_n^2), \tag{1.171}$$

или

$$\hat{y} = b_0 + b_1x_1 + \ldots + b_nx_n + b_{12}x_1x_2 + \ldots +$$

$$+ b_{n-1,\,n}\, x_{n-1}x_n + b_{11}x_1^2 + \ldots + b_{nn}x^2_n. \tag{1.172}$$

Переход от (1. 171) к (1. 172) осуществляется расчетом величины свободного члена по уравнению

$$b_0 = b'_0 - b_{11}\overline{x_1^2} - \ldots - b_{nn}\overline{x_n^2}, \qquad (1.173)$$

где

$$\overline{x_i^2} = x_i^2 - x'_i.$$

Принятие решений осуществляется в соответствии с (1. 96).

1. 6. 2. Алгоритм ротатабельности плана второго порядка (ЦКРП). *Исходные данные* те же, что и в алгоритме ЦКОП 1. 6. 1.

Кодирование и основы построения плана. Построение ротатабельности планов второго порядка — сложная математическая задача, требующая доказательства нескольких теорем. Воспользуемся результатами исследований, где предлагается условия ротатабельности задавать уравнениями

$$\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2 = N\lambda_2, \quad i = 1, 2, \ldots, n;$$

$$\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^4 = 3\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2 x_{ju}^2 = 3N\lambda_4 \qquad (1.174)$$

$$(i \neq j, \quad i, j = 1, 2, \ldots, n),$$

где n — число факторов; N — число опытов; λ_2 и λ_4 — некоторые константы, связанные неравенством

$$\frac{\lambda_4}{\lambda_2} > \frac{n}{n+2}, \qquad (1.175)$$

которое является условием невырожденности информационной матрицы $(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})$.

Если ввести несколько точек на сфере с нулевым радиусом, т. е. несколько точек в центре плана N_0, то можно рассчитать параметр

$$\lambda_4 = \frac{n(N_0 + N_1)}{(n+2)N_1}, \qquad (1.176)$$

где $N_1 = N - N_0$, и усилить неравенство (1.175), поскольку

$$\lambda_4 > \frac{n}{n+2}. \qquad (1.177)$$

«Звездные» точки ротатабельности планов строят на осях координат факторов с величиной звездного плеча α, рассчитанного по формуле

$$\alpha = 2^{n/4}, \tag{1.178}$$

а для дробного факторного эксперимента

$$\alpha = 2^{\frac{n-p}{2}}, \tag{1.179}$$

где n — число факторов; p — определяет дробность реплики ($p=1$ — полуреплика, $p=2$ — четверть реплики и т. д.).

Выбор α, числа «звездных» и числа нулевых точек удобно делать по табл. 1. 15.

Таблица 1.15. **Параметры ротатабельных планов второго порядка**

Наименование элементов плана	ПФЭ 2^n				ДФЭ 2^{n-p}
	$n=2$	$n=3$	$n=4$	$n=5$	$n=5$
Число опытов в ядре матрицы	$2^2=4$	$2^3=8$	$2^4=16$	$2^5=32$	$2^{5-1}=16$
Число «звездных» точек	4	6	8	10	10
Число нулевых точек	5	6	7	10	6
Значение α	1,414	1,682	2,000	2,378	2,000

План эксперимента совпадает с ЦКОП, но при других значениях параметров α, N_0 (см. табл. 1. 11).

Расчет коэффициентов регрессии. Обработка результатов реализации планов второго порядка требует в целом значительной вычислительной работы и лучше всего ее проводить на ЭЦВМ по формуле (1. 103).

Специфический характер матрицы $(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})$ для ЦКРП позволяет получить общие формулы для расчета коэффициентов. Основная задача вычислительной машины в этом случае — выдача на печать следующих элементов обращенной матрицы:

$$\sum_{u=1}^{N} y_u = (0y), \quad \sum_{u=1}^{N} x_{iu}y_u = (iy);$$

$$\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2 y_u = (iiy), \quad \sum_{u=1}^{N} x_{iu}x_{ju}y_u = (ijy). \tag{1.180}$$

Если обозначить

$$\frac{1}{2\lambda_4[(n+2)\lambda_4 - n]} = A; \qquad \frac{N}{\sum_{u=1}^{N} x_{iu}^2} = C, \quad (1.181)$$

то с учетом (1. 176), (1. 180) и (1. 181) коэффициенты регрессии можно определить по формулам

$$b_0 = \frac{A}{N}\,[2\lambda_4^2\,(n+2)(0y) - 2\lambda_4 C \sum_{i=1}^{N} (ijy)]; \quad (1.182)$$

$$b_i = \frac{C}{N}(iy); \quad (1.183)$$

$$b_{ii} = \frac{A}{N}\{C^2[(n+2)\lambda_4 - n](iiy) + C^2(1-\lambda_4)\} \sum_{i=1}^{n} (iiy); \quad (1.184)$$

$$b_{ij} = \frac{C^2}{N\lambda_4}(ijy). \quad (1.185)$$

Для $n=3$ приведенные формулы имеют вид

$$b_0 = 0{,}1633(0y) - 0{,}05679\ (iiy); \quad (1.186)$$

$$b_i = 0{,}07322(iy); \quad (1.187)$$

$$b_{ii} = 0{,}0625\ (iiy) + 0{,}06889(iiy) - 0{,}05679(0y); \quad (1.188)$$

$$b_{ij} = 0{,}125(ijy). \quad (1.189)$$

Оценка значимости коэффициентов регрессии. Дисперсии для коэффициентов регрессии рассчитываются по формулам

$$s^2_{b_0} = \frac{2A\lambda_4(n+2)s_0^2}{N}; \quad (1.190)$$

$$s^2_{b_i} = \frac{Cs_0^2}{N}; \quad (1.191)$$

$$s^2_{b_{ii}} = \frac{A[(n+1)\lambda_4 - (n-1)]C^2 s_0^2}{N}; \quad (1.192)$$

$$s^2_{b_{ij}} = \frac{C^2 s_0^2}{N\lambda_4}, \quad (1.193)$$

где s_0^2 — дисперсия опыта.

Оценка значимости коэффициентов регрессии проводится так же, как и в ЦКОП.

Принятие решений. Если незначимым оказался один из квадратичных эффектов, то после его исключения уравнение регрессии необходимо посчитать заново (это связано с неортогональностью квадратичных столбцов матрицы планирования). Остальные незначимые коэффициенты упускаются без пересчета уравнения.

Проверка адекватности уравнения регрессии. Преобразования ротатабельного плана несколько изменили формулы расчета дисперсий.

Так, сумму квадратов отклонений в центре плана можно подсчитать по формуле

$$S_0 = \sum_{k=1}^{N_0} (y_{0k} - \bar{y}_0), \quad f_0 = N_0 - 1, \tag{1.94}$$

где f_0 — число степеней свободы этой суммы; $k = 1, 2, ..., N_0$.

Дисперсия опыта получается делением суммы (1. 194) на f_0:

$$s_0^2 = S_0/N_0 - 1. \tag{1.195}$$

Остаточная сумма квадратов вычисляется так:

$$S_{\text{ост}} = \sum_{u=1}^{N} (\hat{y}_u - \bar{y}_u)^2, \quad f_{\text{ост}} = N - \frac{(n+2)(n+1)}{2}, \tag{1.196}$$

или

$$S_{\text{ост}} = (yy) - b_0(0y) + \sum_{i=1}^{n} b_i(iy) + \sum_{i<j}^{n} b_{ij}(ijy). \tag{1.197}$$

Сумма квадратов $S_{\text{ад}}$, оценивающая адекватность модели, подсчитывается по формуле

$$S_{\text{ад}} = S_{\text{ост}} - S_0, \quad f_{\text{ад}} = N - \frac{(n+2)(n+1)}{2} (N_0 + 1). \tag{1.198}$$

Расчетное значение критерия Фишера, как и ранее, формируют как отношение дисперсии адекватности к дисперсии опыта (1. 94) и (1. 95) и сравнивают с табличными значениями $F_т$ для степеней свободы $f_{\text{ад}}$ и f_0 по известным равенствам (см. (1. 96)).

Принятие решений. Если условие (1. 96) не выполняется, то нелинейная модель, полученная по плану ЦКРП, неадекватна. В этом случае требуется изменение порядка полинома (переход к полиному третьего порядка), добавление факторов в уравнение регрессии или тщательный анализ ошибок в эксперименте (получающихся, например, вследствие временно́го дрейфа).

Глава 2

СПЕЦИАЛЬНЫЕ АЛГОРИТМЫ ПЛАНИРОВАНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА ДЛЯ ЗАДАЧ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКОГО ХАРАКТЕРА

2.1. Факторный эксперимент при изучении смесевых систем

Введение. Задача факторного эксперимента при изучении смесевых систем не отличается от задачи факторного эксперимента второго порядка, изложенной в 1. 6. Однако при изучении свойств смесей, зависящих только от соотношений компонентов, желательно учитывать условие

$$\sum_{i=1}^{n} x_i = 1, \tag{2.1}$$

где x_i — относительные концентрации компонента ($x_i \geqslant \geqslant 0$); n — количество компонентов ($n \geqslant 2$).

Условие (2. 1) не позволяет использовать планы ПФЭ и модели типа (1. 97) — матрица $(\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}$ оказывается вырожденной.

Шеффе ввел каноническую форму полинома степени n:

$$\hat{y} = \sum_{i=1}^{n} \beta_i x_i + \sum_{m=2}^{p} \Big[\sum_{1<i<j<q} \beta_{ij}^{(m)} x_i x_j (x_i - x_j)^{m-2} \Big] + \\ + \sum_{m=3}^{p} \Big[\sum_{1<i_1<i_2<\cdots<i_m<q} \beta_s x_{i_1}^{s_1} x_{i_2}^{s_2} \ldots x_{im}^{s_m} \Big], \tag{2.2}$$

где

$$s = i_1^{s_1} \; i_2^{s_2} \ldots i_m^{s_m}; \quad s_1 + s_2 + \cdots + s_m = p.$$

Наиболее часто пользуются следующими приведенными (каноническими) полиномами:

$$\hat{y} = \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \beta_3 x_3 + \beta_{12} x_1 x_2 + \beta_{13} x_1 x_3 + \beta_{23} x_2 x_3 \qquad (2.3)$$

— полином второго порядка для трехкомпонентной смеси;

$$\hat{y} = \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \beta_3 x_3 + \beta_{12} x_1 x_2 + \beta_{13} x_1 x_3 + \beta_{23} x_2 x_3 + \qquad (2.4)$$
$$+ \beta_{123} x_1 x_2 x_3$$

— полином неполного третьего порядка для трехкомпонентной смеси;

$$\hat{y} = \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \beta_3 x_3 + \beta_{12} x_1 x_2 + \beta_{13} x_1 x_3 + \beta_{23} x_2 x_3 +$$
$$+ \gamma_{12} x_1 x_2 (x_1 - x_2) + \gamma_{13} x_1 x_3 (x_1 - x_3) + \gamma_{23} x_2 x_3 (x_2 - x_3) + \qquad (2.5)$$
$$+ \beta_{123} x_1 x_2 x_3$$

— полином третьего порядка для трехкомпонентной смеси;

$$\hat{y} = \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \beta_3 x_3 + \beta_{12} x_1 x_2 + \beta_{13} x_1 x_3 +$$
$$+ \beta_{23} x_2 x_3 + \gamma_{12} x_1 x_2 (x_1 - x_2) + \gamma_{13} x_1 x_3 (x_1 - x_3) +$$
$$+ \gamma_{23} x_2 x_3 (x_2 - x_3) + \delta_{12} x_1 x_2 (x_1 - x_2)^2 + \qquad (2.6)$$
$$+ \delta_{13} x_1 x_3 (x_1 - x_3)^2 + \delta_{23} x_2 x_3 (x_2 - x_3)^2 +$$
$$+ \beta_{1123} x_1^2 x_2 x_3 + \beta_{1223} x_1 x_2^2 x_3 + \beta_{1233} x_1 x_2 x_3^2$$

— полином четвертого порядка для трехкомпонентной смеси.

Пояснение. От стандартного полинома, например, второго порядка

$$\hat{y} = b_0 + b_1 x_1 + b_2 x_2 + b_3 x_3 + b_{12} x_1 x_2 + b_{13} x_1 x_3 +$$
$$+ b_{23} x_2 x_3 + b_{11} x_1^2 + b_{22} x_2^2 + b_{33} x_3^2 \qquad (2.7)$$

к полиному Шеффе (2.3) переходят путем несложных преобразований условия

$$x_1 + x_2 + x_3 = 1$$

в условия

$$b_0x_1 + b_0x_2 + b_0x_3 = b_0;$$

$$x_1^2 = x_1 - x_1x_2 - x_1x_3;$$

$$x_2^2 = x_2 - x_1x_2 - x_2x_3; \qquad (2.8)$$

$$x_3^2 = x_3 - x_1x_3 - x_2x_3;$$

и подстановкой (2.8) в (2.7). Получают

$$\hat{y} = (b_0 + b_1 + b_{11})x_1 + (b_0 + b_2 + b_{22})x_2 +$$
$$+ (b_0 + b_3 + b_{33})x_3 + (b_{12} - b_{11} - b_{22})x_1x_2 + \qquad (2.9)$$
$$+ (b_{13} - b_{11} - b_{33})x_1x_3 + (b_{23} - b_{22} - b_{33})x_2x_3.$$

Симплекс-решетчатые планы Шеффе. Известно, что геометрическое место точек, удовлетворяющее условию (2.1), представляет собой $n - 1$ правильный симплекс. Тогда факторное пространство может быть представлено симплексами с такой же системой координат. Планирование на симплексах осуществляется равномерным разбросом экспериментальных точек. Получаются $\{n, m\}$-решетки, где n — число компонентов смеси; m — порядок полинома. Примеры $\{3, m\}$-решеток с принятыми обозначениями выходной переменной приведены на рис. 2.1.

Симплекс-решетчатые планы частично композиционные. Неполную кубическую решетку $\{3, 3^*\}$ (рис. 2. 1, *б*) можно получить из $\{3, 2\}$ (см. рис. 2. 1, *а*) добавлением одной точки в центре симплекса; решетку $\{3, 4\}$ (см. рис. 2.1, *г*) — добавлением точек к решетке $\{3, 2\}$ (см. рис. 2.1, *а*).

2. 1. 1. Алгоритм симплекс-решетчатых планов второго порядка для трехкомпонентной смеси. *Исходные данные.* Имеется трехкомпонентная смесь. Необходимо получить зависимость некоторого свойства y от состава смеси в виде (2. 3) и проверить ее адекватность.

План эксперимента для рассматриваемого случая приведен в табл. 2. 1.

В каждой точке решетки проводится одинаковое число (m) параллельных опытов.

Расчет коэффициентов уравнения. Расчет коэффициентов возможен методом наименьших квадратов по уравнению $\boldsymbol{\beta} = (\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{X})^{-1}\,\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{Y}$.

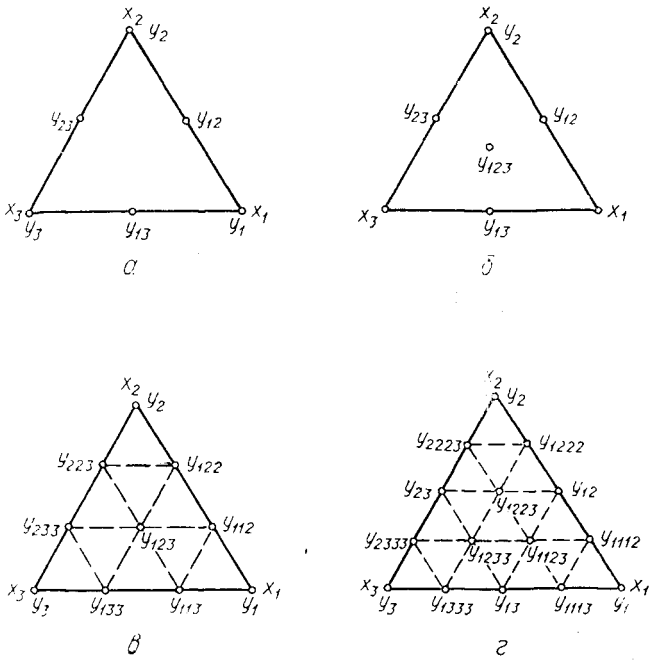


Рис. 2.1. $(3, m)$-симплексные решетки для полинома порядка:

а — второго; *б* — неполного третьего; *в* — третьего; *г* — четвертого.

Таблица 2.1. **План эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная				
	x_1	x_2	x_3	$y_u^{(1)}$	$y_u^{(2)}$	. . .	$y_u^{(m)}$	$\bar{y}_u$
1	1	0	0	$y_1^{(1)}$	$y_1^{(2)}$	. . .	$y_1^{(m)}$	$\bar{y}_1$
2	0	1	0	$y_2^{(1)}$	$y_2^{(2)}$	. . .	$y_2^{(m)}$	$\bar{y}_2$
3	0	0	1	$y_3^{(1)}$	$y_3^{(2)}$	. . .	$y_3^{(m)}$	$\bar{y}_3$
4	0,5	0,5	0	$y_{12}^{(1)}$	$y_{12}^{(2)}$	. . .	$y_{12}^{(m)}$	$\bar{y}_{12}$
5	0,5	0	0,5	$y_{13}^{(1)}$	$y_{13}^{(2)}$	. . .	$y_{13}^{(m)}$	$\bar{y}_{13}$
6	0	0,5	0,5	$y_{23}^{(1)}$	$y_{23}^{(2)}$	. . .	$y_{23}^{(m)}$	$\bar{y}_{23}$

Однако, учитывая, что план эксперимента насыщен (число неизвестных коэффициентов равно числу уравнений), несложными преобразованиями можно получить следующие расчетные уравнения:

$$\beta_1 = \overline{y_1},\ \beta_2 = \overline{y_2},\ \beta_3 = \overline{y_3} \text{ или } \beta_i = \overline{y_i}; \tag{2.10}$$

$$\beta_{ij} = 4\overline{y_{ij}} - 2\overline{y_i} - 2\overline{y_j}, \text{ например, } \beta_{12} = 4\overline{y_{12}} - 2\overline{y_1} - 2\overline{y_2}. \tag{2.11}$$

Проверка адекватности уравнения. Учитывая, что план эксперимента насыщенный, проверка адекватности по критерию Фишера (см. (1.92) — (1.96)) невозможна. Для проверки адекватности необходимо выбрать несколько дополнительных точек плана, провести в них эксперимент и изучить разность между экспериментальным значением и полученным по уравнению. Эти точки выбирают либо в интересующей исследователя области, либо в точках, которые можно использовать для построения полинома более высокого порядка. Для получения дисперсии адекватности можно применять уравнение остаточной суммы

$$S_{\text{ост}} = \sum_{u=1}^{g} (y_{\text{эи}} - \hat{y}_u)^2; \quad f_{\text{ад}} = g - 1, \tag{2.12}$$

где $y_{\text{эи}}$ — экспериментальные значения выходной переменной в дополнительных проверочных точках; $\hat{y}_u$ — значения выходной переменной для условий $X_{\text{э}}$ проверочных точек, полученных по уравнению; g — число проверочных точек; $f_{\text{ад}}$ — дисперсия адекватности.

Если $g > 2$, то адекватность можно проверять по критерию Фишера (см. (1.94), (1.95), а ошибку опыта s_0^2 при равном числе параллельных опытов m рассчитать по формулам (1. 138) — (1. 141) (условие однородности дисперсий также необходимо проверять).

Если адекватность уравнения оценивается по одной проверочной точке, то удобнее пользоваться уравнениями, приведенными ниже (их доказательство в [5]). Для оценки используется t-критерий:

$$t_{\text{р}} = \frac{\Delta y \sqrt{m}}{s_0 \sqrt{1 + \frac{1}{m}}}, \tag{2.13}$$

где m — число параллельных опытов в каждой точке симплекса; разность Δy (между экспериментальным и теоретическим выходом)

$$\Delta y = (y_э - \hat{y}_т); \tag{2.14}$$

$s_0 = \sqrt{s_0^2}$ — среднеквадратичное отклонение опытных данных; ξ — величина, связанная с коэффициентами уравнения

$$\xi = \sum_{i=1}^{n} a_i^2 + \sum_{i<j}^{n} a_{ij}, \tag{2.15}$$

причем

$$a_i = x_i(2x_i - 1);\ a_{ij} = 4x_i x_j.$$

Ошибка опыта s_0^2 определяется также по формулам (1.138)—(1.141).

Проверка адекватности производится по неравенству

$$t_р < t_т(l, f_0, q = 0{,}05) \tag{2.16}$$

для заданного уровня значимости; l — число коэффициентов уравнения регрессии; f_0 — число степеней свободы при определении ошибки опыта.

Примечание. В некоторых исследованиях, даже если число проверочных точек $g \gg 2$, оценку адекватности уравнения регрессии проводят в каждой точке по формулам (2.13) — (2.16).

Принятие решений. Если условие (2.16) не выполняется, то уравнение регрессии признается неадекватным и его порядок повышается. Если правило композиционности выполняется, то в план включают проверочную точку и переходят к расчетам коэффициентов уравнения более высокого порядка.

Если условие (2.16) выполняется, то обычно строят изолинии (линии равного выхода) соответствующего свойства непосредственно на симплексе. Графическое изображение зависимостей свойство — состав позволяет решать задачи интерполяции и оптимизации (конечно, если число компонентов в смеси не превышает четырех).

Примечание. Если исследуемая смесевая система неоднородна, то возникают значительные трудности ее математического описания (о методах преодолевания этих трудностей см. [5]).

2. 1. 2. Алгоритм симплекс-решетчатых планов неполного третьего порядка для трехкомпонентной смеси.

Исходные данные. Имеется трехкомпонентная смесь. Необходимо получить зависимость некоторого свойства от состава смеси в виде (2. 4) и проверить ее адекватность.

План эксперимента для рассматриваемого случая представлен в табл. 2.2 (см. рис. 2.1, *б*). Как и ранее, предполагается, что параллельные опыты проводятся в каждой точке симплексной решетки.

Таблица 2.2. **План эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная
	x_1	x_2	x_3	
1	1	0	0	y_1
2	0	1	0	y_2
3	0	0	1	y_3
4	0,5	0,5	0	y_{12}
5	0,5	0	0,5	y_{13}
6	0	0,5	0,5	y_{23}
7	0,333	0,333	0,333	y_{123}

Расчет коэффициентов уравнения для модели (2. 4) удобно проводить

$$\beta_1, \beta_2, \beta_3 \text{ — по формуле } (2.10);$$

$$\beta_{12}, \beta_{13}, \beta_{23} \text{ — по формуле } (2.11);$$

$$\beta_{ijk} = 27\overline{y}_{ijk} - 12(\overline{y}_{ij} + \overline{y}_{ik} + \overline{y}_{jk}) + 3(\overline{y}_i + \overline{y}_j + \overline{y}_k). \quad (2.17)$$

Оценка адекватности уравнения регрессии осуществляется по формулам (2. 13), (2. 15), (2. 16), а коэффициент ξ определяется по формуле

$$\xi = \sum_{i=1}^{n} b_i^2 + \sum_{i<j}^{n} b_{ij} + \sum_{i<j<k}^{n} b_{ijk}, \quad (2.18)$$

где

$$b_i = \frac{1}{2} x_i(6x_i^2 - 2x_i + 1) - 3\sum_{j=1}^{n} x_j^2;$$

$$b_{ij} = 4x_ix_j(3x_i - 3x_j - 2); \quad b_{ijk} = 27x_ix_jx_k.$$

При наличии параллельных опытов в каждой точке симплексной решетки ошибка опыта s_0^2 определяется по формулам (1. 138) — (1. 141).

Принятие решений не отличается от предыдущего случая (2. 1. 2).

2. 1. 3. **Алгоритм симплекс-решетчатых планов третьего порядка для трехкомпонентной смеси.** *Исходные данные.* Имеется трехкомпонентная смесь. Необходимо получить зависимость некоторого свойства от состава смеси в виде (2. 5) и проверить ее адекватность.

План эксперимента для этого случая представлен в табл. 2.3 (см. рис. 2.1, *в*). Предполагается, что параллельные опыты проводятся в каждой точке симплексной решетки.

Таблица 2.3. **План эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная
	x_1	x_2	x_3	
1	1	0	0	$\overline{y}_1$
2	0	1	0	$\overline{y}_2$
3	0	0	1	$\overline{y}_3$
4	2/3	1/3	0	$\overline{y}_{112}$
5	1/3	2/3	0	$\overline{y}_{122}$
6	0	2/3	1/3	$\overline{y}_{223}$
7	0	1/3	2/3	$\overline{y}_{233}$
8	2/3	0	1/3	$\overline{y}_{113}$
9	1/3	0	2/3	$\overline{y}_{133}$
10	1/3	1/3	1/3	$\overline{y}_{123}$

Коэффициенты регрессии β_1, β_2, β_3 рассчитывают по формуле (2. 10).

Коэффициенты β_{ij} рассчитываются по формулам

$$\beta_{12} = \frac{9}{4}(y_{112} + y_{122} - y_1 - y_2);$$

$$\beta_{13} = \frac{9}{4}(y_{113} + y_{133} - y_1 - y_3);$$

$$\beta_{23} = \frac{9}{4}(y_{223} + y_{233} - y_2 - y_3),$$

или в общем виде

$$\beta_{ij} = \frac{9}{4}(y_{iij} + y_{ijj} - y_i - y_j). \qquad (2.19)$$

Коэффициенты γ_{ij} рассчитывают по формулам

$$\gamma_{12} = \frac{9}{4}(3y_{112} - 3y_{122} - y_1 + y_2);$$

$$\gamma_{13} = \frac{9}{4}(3y_{113} - 3y_{133} - y_1 + y_3);$$

$$\gamma_{23} = \frac{9}{4}(3y_{223} - 3y_{233} - y_2 + y_3),$$

или в общем виде

$$\gamma_{ij} = \frac{9}{4}(3y_{iij} - 3y_{ijj} - y_i + y_j). \qquad (2.20)$$

Коэффициенты β_{ijk} рассчитываются по формулам

$$\beta_{123} = 27y_{123} - \frac{27}{4}(y_{112} + y_{122} + y_{113} +$$

$$+ y_{133} + y_{223} + y_{233}) + \frac{9}{2}(y_1 + y_2 + y_3),$$

или в общем виде

$$\beta_{ijk} = 27y_{ijk} - \frac{27}{4}(y_{ijk} + y_{ijj} + y_{iik} + \qquad (2.21)$$

$$+ y_{ihk} + y_{jjk} + y_{jkk}) + \frac{9}{2}(y_i + y_j + y_k).$$

Оценка адекватности уравнения регрессии осуществляется по формулам (2. 13), (2. 14), (2. 16), а коэффициент ξ определяется по формуле

$$\xi = \sum_{i=1}^{n} c_i^2 + \sum_{i<j}^{n} c_{ij}^2 + \sum_{i<j}^{n} c_{iij}^2 + \sum_{i<j}^{n} c_{ijj}^2 + \sum_{i<j<k}^{n} c_{ijk}^2, \qquad (2.22)$$

где

$$c_i = \frac{1}{2} x_i (3x_i - 1)(3x_i - 2);$$

$$c_{iij} = \frac{9}{2} x_i x_j (3x_i - 1);$$

$$c_{ijj} = \frac{9}{2} x_i x_j (3x_j - 1);$$

$$c_{ijk} = 27 x_i x_j x_k.$$

Ошибка опыта s_0^2 определяется также по формулам (1. 138) — (1. 141).

Принятие решений не отличается от предыдущих случаев (см. 2. 1. 2.).

Примечание. Симплексную решетку при переходе к полиномам более высоких порядков можно достраивать точками из «последующих» планов.

2.2. Насыщенный и сверхнасыщенный планы факторного эксперимента

Введение. Одной из целей использования математической модели является грубая оценка степени воздействия факторов на выходную переменную объекта исследования. Эта цель может быть достигнута различными методами, но всех их объединяет условие минимизации числа экспериментов. Этот критерий привел к построению насыщенных и сверхнасыщенных планов экспериментов, позволяющих разделить всю совокупность факторов на два класса: доминирующие факторы и «шумовой» фон (несущественные факторы).

Определение. Ненасыщенность, насыщенность и сверхнасыщенность планов определяются соотношением числа опытов плана эксперимента N и числа определенных параметров l:

$N-l>0$ — ненасыщенный план;
$N-l=0$ — насыщенный план;
$N-l<0$ — сверхнасыщенный план.



Замечание. Рассмотренные ранее планы ПФЭ и ДФЭ были ненасыщенными, а симплекс-решетчатые планы — насыщенными.

2. 2. 1. Алгоритм насыщенного плана дробного факторного эксперимента. *Исходные данные.* Имеется совокупность факторов, воздействующих на объект исследования. Известно, что степень влияния этих факторов на выходную переменную различна. Предлагается выделить существенные факторы с помощью минимально возможного числа экспериментов.

План эксперимента. Использование плана дробного факторного эксперимента в качестве насыщенного возможно при числе факторов $n=3$ $(N=4)$, $n=7$ $(N=8)$, $n=15$ $(N=16)$, $n=31$ $(N=32)$ и т.д. В этом случае можно получить математическую модель $\hat{y}=b_0+\sum_{i=1}^{n} b_i x_i$ и использовать t-критерий для отсеивания факторов.

Наличие смешанных оценок по этому плану для решения задачи отсеивания факторов не играет серьезной роли.

Расчет коэффициентов b_0, b_1, ..., b_i, ... и оценка значимости факторов проводятся по алгоритмам 1. 5. 5 и 1. 5. 2 (в этом случае, естественно, достаточно провести параллельные опыты в одной точке).

Принятие решений. Коэффициенты, для которых t_{ip} оказалось меньше $t_т$ (1.91) ($f_0 = N_0 - 1$, $q = 0{,}05$), относят к «шумовому» фону, остальные — считают значимыми. Иногда проверку значимости проводят по формуле, эквивалентной условию (1.91):

$$|b_i| \geqslant t_т S_{b_i}, \tag{2.23}$$

где $|b_i|$ — абсолютное значение i-го коэффициента; $t_т$ — табличное значение критерия Стьюдента; s_{b_i} — среднеквадратичное отклонение i-го коэффициента

$$s_{b_i} = \sqrt{\frac{s_0^2}{N}}. \tag{2.24}$$

В этом случае коэффициенты, не удовлетворяющие условию (2. 23), относятся к «шумовому» фону.

2. 2. 2. Алгоритм насыщенного плана Плакетта — Бермана. *Исходные данные* те же, что и в предыдущем алгоритме.

План эксперимента и его построение. Плакеттом и Берманом были сконструированы ортогональные насыщенные планы, число экспериментов в которых кратно четырем:

$$N = 4p,\ p = 1, 2, \ldots . \tag{2.25}$$

Используя эти планы, можно исследовать объекты, имеющие $(4p - 1)$ факторов. Такие планы более выгодны, чем насыщенные планы ДФЭ, поскольку удовлетворяют условиям исследования через четыре фактора.

Алгоритм построения планов следующий. Факторы изменяются на двух уровнях: $+1$ и -1.

Первая строка матрицы плана задается таблицей 2. 4, вторая и последующие строки получаются сдвигом всех элементов влево (или вправо) и перестановкой крайнего элемента на образовавшееся свободное место с другой стороны строки. Получаются одинаковые знаки по диагоналям матрицы. Этот процесс повторяется $(N - 2)$ раз.

Таблица 2.4. **Первые строки планов Плакетта — Бермана**

Номер опыта	Первая строка матрицы плана
8	+ + + − + − −
12	+ + − + + + − − − + −
16	+ + + + − + − + + − − + − − −
20	+ + − − + + + + − + − + − − − − + + −
24	+ + + + + − + − + + − − + + − − + − + − − − −

Последняя строка плана составляется только из элементов —1. Матрица плана имеет размерность $N \times (N-1)$.

Построенные таким образом планы являются ортогональными и поэтому *расчет коэффициентов* и *оценка их значимости* проводится обычными методами (см. алгоритм 1. 5. 2).

Замечание 1. Иногда применяется несколько иной алгоритм построения плана, дающий тот же результат. Строка табл. 2. 4 используется для построения столбца плана. Следующий столбец получается сдвигом элементов первого столбца вниз или вверх и т. д. Последняя строка составляется из элементов — 1.

Замечание 2. Построение планов Плакетта — Бермана для $N=28$ и выше приведено в [6].

Замечание 3. Для расчета ошибки опыта s_0^2 в планах Плакетта — Бермана часто используют прием фиктивных переменных. Он заключается в том, что недостающие факторы (например, если в объекте $n=12$, а план предусматривает $n=15$, то недостающих факторов $n=3$) заменяются фиктивными факторами. Эффекты этих факторов отличаются от нуля, если их взаимодействия значимы и ошибки измерения отсутствуют. Если считать, что величины взаимодействия факторов малы, а $b_{\Phi_1}, b_{\Phi_2}, \ldots, b_{\Phi k}$ — k эффектов (коэффициентов) фиктивных переменных, то ошибка опыта будет определяться по формуле

$$s_0^2 = \frac{N(b_{\Phi 1}^2 + b_{\Phi 2}^2 + b_{\Phi k}^2)}{N-(n+1)}. \qquad (2.26)$$

где N — число опытов по матрице планирования; n — число факторов; $N-(n+1)$ — число фиктивных факторов.

Далее оценка проводится по (1.119), (1.131) и (2.23), (2.24). Табличное значение критерия Стьюдента находят для $f=N-(n+1)$ степеней свободы.

Принятие решений не отличается от предыдущего алгоритма.

2. 2. 3. Алгоритмы метода случайного баланса (сверхнасыщенный план). *Исходные данные* те же, что и в предыдущих алгоритмах.

В плане эксперимента по методу случайного баланса исследуемые факторы варьируются на двух уровнях — верхнем и нижнем. Для построения матрицы планирования предлагается «чистый» случайный баланс, при котором распределение уровней в столбцах осуществляется по таблице случайных чисел, или случайное смешивание двух дробных планов ПФЭ. Один из возможных планов случайного баланса (случайное смешивание ДФЭ 2^{5-1} и 2^{6-1}) приведен в табл. 2.5. Условие $\sum_{u=1}^{N} x_u$ должно выполняться всегда. Этот план может использоваться и для меньшего числа факторов.

Таблица 2.5. **План эксперимента**

Номер опыта	План														Выходная переменная	
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6	x_7	x_8	x_9	x_{10}	x_{11}	x_{12}	x_{13}	x_{14}	y	y^{I}
1	−	−	+	+	+	−	+	−	+	−	+	+	−	+	y_1	y_1^{I}
2	+	−	−	+	−	−	−	−	−	+	−	−	−	+	y_2	y_2^{I}
3	−	+	−	+	+	−	−	+	+	+	+	−	+	−	y_3	·
4	+	+	+	+	+	+	−	−	+	+	−	+	−	+	y_4	·
5	−	−	−	−	−	+	+	+	−	−	+	−	−	−	y_5	·
6	+	−	+	−	+	+	+	−	+	+	+	−	+	+	y_6	·
7	−	+	+	−	−	+	+	−	+	+	−	+	+	−	y_7	·
8	+	+	−	−	−	−	−	+	−	−	+	−	−	−	y_8	·
9	−	−	+	−	−	+	−	+	−	+	+	+	+	+	y_9	·
10	+	−	−	−	−	+	−	−	−	−	−	−	+	+	y_{10}	·
11	−	+	−	−	+	−	+	−	+	−	−	−	−	−	y_{11}	·
12	+	+	+	−	+	−	+	−	−	−	−	−	+	−	y_{12}	·
13	−	−	−	+	+	+	−	+	−	+	+	+	+	−	y_{13}	·
14	+	−	+	+	−	−	+	+	+	−	+	+	−	−	y_{14}	·
15	−	+	+	+	−	−	+	+	+	+	−	+	+	+	y_{15}	·
16	+	+	−	+	+	+	+	+	−	−	−	+	−	+	y_{16}	y_{16}^{I}

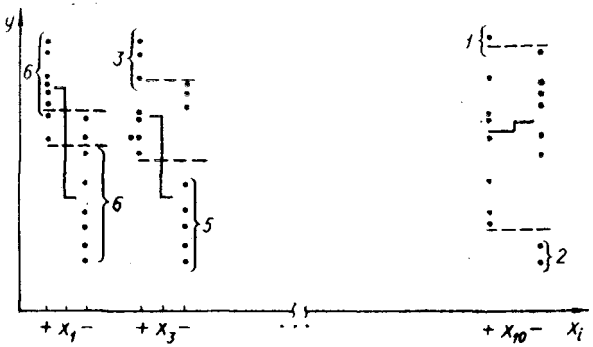


Рис. 2.2. Построение диаграмм рассеивания.

Диаграммы рассеивания строят с целью выделения факторов или их взаимодействий. Выделение осуществляют визуально. Диаграммы рассеивания строят так: по оси абсцисс откладывают значения факторов для уровней «+» и «—», а по оси ординат — значения выходной переменной (рис. 2. 2.).

В каждом столбце x_i диаграммы рассеивания размещены все значения выходной переменной, которые разбиваются на две группы. Одна из групп соответствует тем опытам, где фактор был на нижнем уровне, другая— где фактор был на верхнем уровне.

Среди опытных данных на каждом уровне находят медиану Ме. *Медианой называется линия, по обе стороны которой находится одинаковое число точек.* При нечетном числе точек медиана проходит через среднюю точку. Разность между медианами ΔМе двух уровней характеризует качественное влияние фактора x_i на выходную переменную. Таким образом, построение диаграммы рассеивания позволяет визуально по максимальному значению ΔМе выделить наиболее значимые факторы. Для этой же цели используют так называемые выделяющиеся точки L в нижней и верхней частях диаграммы рассеивания. Для фактора x_1 их число равно 6+6=12, для факторов x_3 и x_{10} соответственно 3+5=8 и 1+2=3 и т. д. На рис. 2. 2 группы выделяющихся точек отмечены фигурными скобками.

Примечание. Иногда в качестве критерия значимости факторов на диаграмме рассеивания используют произ-

ведение разности между медианами на число выделяющихся точек

$$T = |\Delta \mathrm{Me}L|. \qquad (2.27)$$

Последовательное выделение существенных факторов. Для количественной оценки факторов нужно отделить значимые факторы от незначимых. Процедура выделения такова. Выбирают два-три фактора, имеющие максимальную разность между медианами или максимальное число выделяющихся точек. Строят таблицу с тремя или двумя входами. Допустим, это будут факторы x_1, x_3, x_4 (см. табл. 2. 5). В клетки табл. 2. 6 записывают значения выходной переменной для различных комбинаций уровней. Так, в первой клетке (слева вверху) записаны значения y_4 и y_{14} — те значения, которые получились, когда x_1, x_3, x_4 были на верхнем уровне и т. д.

Таблица 2.6. **Подготовка данных для оценки линейных эффектов**

x_4	x_1+		x_1-	
	x_3+	x_3-	x_3+	x_3-
„+“	y_4 y_{14} $\bar{y}_1$	y_2 y_{16} $\bar{y}_2$	y_1 y_{15} $\bar{y}_5$	y_3 y_{13} $\bar{y}_6$
„—“	y_6 y_{12} $\bar{y}_3$	y_8 y_{10} $\bar{y}_4$	y_7 y_9 $\bar{y}_7$	y_5 y_{11} $\bar{y}_8$

Вычисление линейных эффектов производят по формулам, смысл которых ясен из уравнений

$$\text{эф. } x_1 = \frac{\bar{y}_1 + \bar{y}_2 + \bar{y}_3 + \bar{y}_4}{4} - \frac{\bar{y}_5 + \bar{y}_6 + \bar{y}_7 + \bar{y}_8}{4};$$

$$\text{эф. } x_3 = \frac{\bar{y}_1 + \bar{y}_3 + \bar{y}_5 + \bar{y}_7}{4} - \frac{\bar{y}_2 + \bar{y}_4 + \bar{y}_6 + \bar{y}_8}{4}; \qquad (2.28)$$

$$\text{эф. } x_4 = \frac{\bar{y}_1 + \bar{y}_2 + \bar{y}_5 + \bar{y}_6}{4} - \frac{\bar{y}_3 + \bar{y}_4 + \bar{y}_7 + \bar{y}_8}{4}.$$

Оценки коэффициентов производят по формуле

$$b_i = \frac{\text{эф. } x_i}{2}. \qquad (2.29)$$

Усреднение в клетках таблицы приходится делать потому, что в случайно организованном плане эксперимента различным комбинациям уровня соответствует различное число наблюдений.

Если есть основания к изменению выходной переменной принять гипотезу нормального распределения, то значимость эффектов можно оценить по критерию Стьюдента

$$t_{\text{р}} = \frac{\text{эф. } x_i \sqrt{\sum_i m_i}}{\sqrt{s^2_R}}, \qquad (2.30)$$

где m_i — число наблюдений в i-ой клетке таблицы; s^2_R — остаточная дисперсия, находится как среднее по каждой $s^2_{R_i}$ для i-ой клетки таблицы; число степеней свободы $f = \Sigma m_i - a$, a — число среднеарифметических значений в таблице с несколькими входами. Оценку рассеивания $s^2_{R_i}$ для каждой клетки находят относительно средних значений $\bar{y}_i$ этой же клетки.

Оценка значимости эффектов по критерию Стьюдента вследствие громоздкости расчетов проводится не всегда.

Корректировка исходного вектора матрицы плана. После выделения эффектов проводят корректировку исходных данных матрицы плана. Для этого от всех y_N в плане эксперимента, где факторы x_i находятся на уровне «+», уменьшают на эф. x_i. Получают новый вектор результатов эксперимента y^{I}_N, освобожденный от влияния фактора x_i. Далее строится новая диаграмма рассеивания и алгоритм повторяется.

Таким же образом производится отсеивание эффектов парных взаимодействий.

Принятие решений. Процесс выделения существенных факторов можно закончить, если выполняется условие

$$F_{\text{р}} = \frac{s^2_r}{s^2_0} < F_{\text{т}} \quad (f_r, f_0, q = 0{,}05). \qquad (2.31)$$

где s_r^2 — оценка дисперсии результатов эксперимента относительно их среднеарифметического значения на r-ом шаге процедуры; s_0^2 — ошибка опыта, полученная по нескольким параллельным наблюдениям.

Замечание. Вследствие трудоемкости метода, расчеты лучше всего проводить на ЭВМ.

2.3. Алгоритм исследования формальной кинетики химических процессов

Введение. В настоящее время значительное внимание уделяется применению статистических методов вообще и методов планирования эксперимента в частности для изучения механизма и определения констант химических реакций. Многие методы исследования уже апробированы практикой и их можно алгоритмизировать, другие еще проверяются практически. В данном разделе рассмотрены наиболее употребляемые алгоритмы: линеаризации кинетических зависимостей и минимизации квадратов разностей по концентрациям и скоростям химических превращений.

2. 3. 1. Алгоритм линеаризации кинетических зависимостей. *Исходные данные.* Предполагается, что механизм химической реакции может быть представлен реакцией

$$\sum_{i=1}^{m} a_i A_i \rightarrow \sum_{j=1}^{k} b_j B_j, \tag{2.32}$$

где A_i и B_j — исходные вещества и продукты реакции соответственно; a_i, b_j — стехиометрические коэффициенты.

Скорость этой реакции можно описать уравнением формальной кинетики:

$$R = \frac{d[c]}{dt} = k \prod_{i=1}^{m} [c_i]^{n_i}, \tag{2.33}$$

где k — константа скорости реакции; n_i — порядок реакции по i-му веществу; $[c_i]$ — концентрация i-го вещества.

Константа скорости реакции в зависимости от температуры изменяется по закономерности Аррениуса

$$k = k_0 e^{-\frac{E}{RT}}, \tag{2.34}$$

где k_0 — предэкспоненциальный множитель; E — энергия активации; R — универсальная газовая постоянная; T — абсолютная температура.

Линеаризация уравнения (2.33). Логарифмирование (2. 33) с учетом (2. 34) дает

$$\ln R = \ln k_0 - \frac{E}{R}\frac{1}{T} + \sum_{i=1}^{m} n_i \ln [c_i]. \qquad (2.35)$$

Обозначим переменные

$$\ln R = \hat{y}; \qquad \ln k_0 = b'_0;$$

$$\ln \frac{1}{T} = X_1; \qquad -E/R = b'_1;$$

$$\ln [c_1] = X_2; \qquad n_1 = b'_2;$$

$$\ldots\ldots\ldots\ldots$$

$$\ln [c_m] = X_{m+1}; \qquad n_m = b_{m+1}$$

(штрих у коэффициентов b_i означает, что они имеют размерность). Окончательно получим линейное уравнение

$$\hat{y} = b'_0 + b'_1 X_1 + b'_2 X_2 + \cdots + b'_{m+1} X_{m+1}. \qquad (2.36)$$

Для определения коэффициентов b'_i, $i=0, 1, \ldots, m+1$ можно использовать *планы ПФЭ или ДФЭ* и соответствующие *расчеты* по алгоритмам 1. 5.

Замечание. Переход от коэффициентов b_i, полученных по планам ПФЭ или ДФЭ с кодированными факторами, к коэффициентам b'_i, имеющим размерность, осуществляется по формулам

$$b'_i = \frac{b_i}{\Delta X_i},$$

$$b'_0 = b_0 + \sum_{i=1}^{m+1} b_i \frac{X_{i0}}{\Delta X_i}, \qquad (2.37)$$

где ΔX_i — интервал варьирования факторов; X_{i0} — нулевой уровень факторов (см. (1. 127) и (1. 128)).

2. 3. 2. Алгоритм линеаризации кинетики процессов (частный случай). *Исходные данные.* Предполагается,

что кинетика исследуемого процесса может быть описана дифференциальным уравнением первого порядка

$$\frac{d[c]}{dt} = -k[c] \text{ или } \frac{dy}{dt} = -ky, \tag{2.38}$$

где $[c]=y$ — концентрация вещества; k — константа скорости реакции; t — длительность реакции.

Константа скорости реакции в исследуемом диапазоне температур не меняется.

Линеаризация уравнения (2.38). Решением уравнения (2.38) является

$$y = y_0 e^{-kt} \tag{2.39}$$

или после логарифмирования

$$\ln y = \ln y_0 - kt, \tag{2.40}$$

где y_0 — начальное значение концентрации вещества A (или другая переменная).

Используя *планы ПФЭ или ДФЭ,* можно определить константу скорости k или длительность реакции в зависимости от режимных параметров (скоростей потоков, температуры исходных продуктов и т. д.).

2.3.3. Алгоритм определения кинетических констант по дифференциальным уравнениям. *Исходные данные.* Известен механизм химической реакции. В соответствии с этим механизмом может быть записана система кинетических уравнений

$$\sum_{i=1}^{g} \frac{d\hat{c}_i(t)}{dt} = \sum_{j=1}^{n} k_j \prod_{i=1}^{m} c_i^{u_i}(t). \tag{2.41}$$

Известны также начальные условия: $t = 0$; $c_0 = A$.

Константы скоростей реакций можно определять из условия минимума функционала

$$\Phi = \sum_{i=1}^{g} \int_0^T [c_i^э(t) - \hat{c}_i(t)]^2 \longrightarrow \min_k, \tag{2.42}$$

где $c_i^э(t)$ — изменения концентраций веществ во времени, полученные экспериментально; $\hat{c}_i(t)$ — изменения концентраций веществ во времени, полученные численным интегрированием уравнения (2.39)

$$\hat{c}_i(t) = \sum_{j}^{n} k_j \int_0^T \prod c_i^{u_i}(t)dt. \tag{2.43}$$

Решение задачи минимизации Ф осуществляют каким-либо методом нелинейного программирования или с использованием аналогоцифрового вычислительного комплекса.

2.3.4. Алгоритм определения кинетических констант по дифференциальным уравнениям (частный случай). *Исходные данные.* Кинетика химических реакций описывается системой обыкновенных дифференциальных уравнений, содержащих в правой части суммы членов полиномов, линейных взаимодействий и квадратичных — по концентрациям реагирующих веществ. Необходимо определить константы скоростей реакций, которые в данном случае можно интерпретировать как линейные коэффициенты b_i (константы скоростей реакций первого порядка), как коэффициенты взаимодействий b_{ij} (константы скоростей реакций смешанного второго порядка), как квадратичные коэффициенты b_{ii} (константы скоростей реакций второго порядка).

План эксперимента разрабатывается так, чтобы полученные результаты позволили найти независимые оценки всех коэффициентов уравнения регрессии. Это может быть ПФЭ (ДФЭ), если в правой части системы кинетических уравнений имеются только линейные члены (концентрации) или их взаимодействия; или планы второго порядка (ЦКОП), если имеются реакции второго порядка.

Примечание: Помимо констант скоростей реакций, определяемых экспериментально, возможна оценка предложенного механизма реакций по адекватности уравнений регрессии.

Расчеты по рассмотренному методу не отличаются от алгоритмов ПФЭ или ЦКОП (1.5.1, 1.6.1), однако в расчетах присутствуют некоторые операции, характерные для кинетических исследований (см. гл. 4).

Принятие решений связано с оценкой адекватности системы уравнений, т. е. с адекватностью предложенного механизма реакций.

2.4. Методы выбора моделей химических процессов

Введение. В. В. Налимов и Т. И. Голикова пишут, что развитие математической теории эксперимента началось с решения вопроса о хороших оценках, хорошем эксперименте, а теперь возникла новая проблема — что

есть хорошая модель? Зачем предлагать модели, для которых заведомо нельзя получить хороших оценок? Действительно, интерес к качеству моделей сейчас неизмеримо возрос. В этом разделе рассмотрено несколько методов сравнения моделей и постановки эксперимента в области наибольшего их различия. Вследствие отсутствия отработанного и проверенного материала по этим задачам изложение этих методов не алгоритмизировано и не подкреплено примерами.

2.4.1. Метод выбора модели процесса по взвешенным суммам квадратов отклонений. Для простоты изложения ограничимся двумя конкурирующими моделями:

$$\overset{\Lambda}{y}_{т1} = \varphi_{т1}(X\ \Theta_1), \qquad \overset{\Lambda}{y}_{т2} = \varphi_{т2}(X, \Theta_2), \tag{2.44}$$

где X — вектор факторов; Θ_1, Θ_2 — векторы параметров соответственно для 1- и 2-ой моделей.

Если в результате измерений получены значения y_1, y_2, ..., y_N с весами w_1, w_2, ..., w_N $(\sum_i w_i = 1)$, то взвешенные суммы квадратов отклонений можно рассчитать по формулам

$$\begin{aligned} S_1 &= \sum_{u=1}^{N} w_u [y_u - y_{т1}(X_u,\ \Theta_1^*)]^2; \\ S_2 &= \sum_{u=1}^{N} w_u [y_u - y_{т2}(X_u,\ \Theta_2^*)]^2, \end{aligned} \tag{2.45}$$

где Θ_1^*, Θ_2^* — оценки параметров моделей, полученные по N измерениям (о методах оценок параметров см. 2.5).

Если S_1 и S_2 сильно отличаются друг от друга, то сравнение можно производить по критерию Фишера. При условии

$$S_1/S_2 > 10 \tag{2.46}$$

выбирается модель, имеющая меньшую значимую сумму квадратов отклонений (значимость S_i можно оценить с помощью критерия Пирсона).

Если разница между S_1 и S_2 мала, то необходимо поставить $(N+1)$-ый эксперимент (желательно в области экспериментирования, где ожидается наибольшая разница S_i) и повторить все расчеты и оценки. Процедура повторяется до получения значимой разницы между суммами квадратов отклонений.

Метод скорее эвристический, чем обоснованно-статистический, и поэтому пригоден для грубых оценок конкурирующих моделей.

2.4.2. Байесов подход к выбору моделей. Выбор модели строится на основе известной теоремы Байеса, связывающей априорную и апостериорную вероятности. Априорная вероятность выражается исследователем, как мера его уверенности в распределении параметра $\boldsymbol{\Theta}$ соответствующей модели.

Предположим, что модель характеризуется уравнением

$$\hat{y}_i = f(\boldsymbol{X}_i, \boldsymbol{\Theta}_i) + e_i, \quad (2.47)$$

где $\hat{y}_i$ — значение i-го измерения ($i = 1, 2, ..., N$); $\boldsymbol{\Theta}_i$ — вектор-столбец параметров модели; $\boldsymbol{X}_i$ — вектор-столбец факторов; e_i — погрешность i-го измерения.

Предположим также, что априорное распределение вектора параметров модели является многомерным нормальным распределением со средним $\boldsymbol{\Theta}_0$ и матрицей ковариаций D. Это распределение характеризует степень предварительных знаний о векторе параметров $\boldsymbol{\Theta}$.

Если уравнение (2.47) нелинейное, то его можно линеаризовать так:

$$\boldsymbol{U} = \boldsymbol{X}(\boldsymbol{\Theta} - \Theta_0) + \varepsilon, \quad (2.48)$$

где $\boldsymbol{U}$ — вектор-столбец с элементами

$$[y_i - f(\theta_0; \boldsymbol{X}_i)]; \quad (2.49)$$

$\boldsymbol{X}$ — матрица с элементами

$$\left[\frac{\partial f(\theta, X_i)}{\partial \theta}\right]_{\theta=\theta_0}; \quad (2.50)$$

ε — вектор погрешности.

Допустим, что вектор погрешности имеет многомерное нормальное распределение с нулевым математическим ожиданием и матрицей ковариаций $J\sigma^2$ (I — единичная матрица). Тогда $\boldsymbol{U}$ имеет нулевое математическое ожидание и матрицу ковариаций $\boldsymbol{X}\boldsymbol{D}\boldsymbol{X}_{\text{т}} + J\sigma^2$ (сложение ошибок возможно вследствие линейности $\boldsymbol{U}$). Исходя из этих данных, легко рассчитать условную ве-

роятность для r-ой модели $P(u/r)$ — она отражает влияние опытных данных

$$P(u/r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi|\boldsymbol{X}\boldsymbol{D}\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}} - J\sigma^2|}} e^{\frac{\boldsymbol{U}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{U}}{2|\boldsymbol{X}\boldsymbol{D}\boldsymbol{X}^{\mathrm{T}} + J\sigma^2|}}, \qquad (2.51)$$

где элемент $\boldsymbol{U}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{U}$ имеет вид

$$[\sum_{i=1}^{N}[y_i - f(\theta_0, X)]^2]. \qquad (2.52)$$

Если учесть априорные вероятности r-ых моделей $P(r)$, то апостериорные вероятности можно рассчитать в соответствии с формулой Байеса

$$P(r/u) = \frac{P(r)P(U/r)}{\sum\limits_{r} P(r)P(U/r)}. \qquad (2.53)$$

Выбирается та модель, апостериорная вероятность которой увеличилась по сравнению с априорной.

2.4.3. Постановка эксперимента по выбору математических моделей. Вопрос выбора моделей успешно решается в той области эксперимента, где различие между ними максимально. Поэтому разработка критериев для выбора наиболее благоприятных условий эксперимента является важнейшей задачей качественного анализа моделей. Известны три критерия постановки оптимального эксперимента — Рота, Бокса и Хилла, энтропийный. Суть подхода объясним на примере использования критерия Рота.

Критерий Рота определяет взвешенное среднее полного отличия между моделями. В качестве весов используются байесовские апостериорные вероятности (их расчет приведен в предыдущем разделе). Расчет ведут по $(N-1)$-экспериментам. Условие эксперимента для N-го опыта определяется выражением

$$Z(X_э) = \sum_{i=1}^{m}[P(i, N-1)\prod_{\substack{j=1\\ i\neq j}}|\hat{y}_j(X_э) - \hat{y}_i(X_э)|], \qquad (2.54)$$

где $X_э$ — вектор условий эксперимента; $P(i, N-1)$ — апостериорные байесовские вероятности выбора i-ой мо-

дели после $(N-1)$-го эксперимента; $y_j(X_э)$ — прогнозируемое значение выходной переменной для условий $X_э$ и при использовании модели j с оценками параметров θ_j^*, полученных по $(N-1)$-экспериментам (любым подходящим методом).

Условия $X_э$, где значение $Z(X_э)$ будет максимальным, дают максимальное различие между моделями и потому следующий N-ый эксперимент должен ставиться в этой точке.

Доказано, что перечисленные выше критерии (Рота, Бокса и Хилла,энтропийные) дают идентичные результаты.

2.5. Алгоритмы идентификации математических моделей

Введение. Задача идентификации математического описания становится в последнее время одной из центральных задач исследования химико-технологических процессов. Это вызвано необходимостью «привязки» общей математической модели, которая в большинстве случаев существует, к реальному объекту. «Привязка» осуществляется расчетом параметров математической модели по результатам эксперимента на реальном объекте.

Если химико-технологический объект характеризуется n-мерным вектором состояния $Y(t)$, m-мерным вектором управления $U(t)$, то математическое описание процесса можно представить в канонической или нормальной форме:

$$\dot{\boldsymbol{Y}} = \frac{dY}{dt} = f(\boldsymbol{Y}(t), \boldsymbol{U}(t), \mathrm{A}(t), \varepsilon(t), t), \qquad (2.55)$$

где $\boldsymbol{A}(t)$ — l-мерный вектор неизвестных параметров системы, состоящей из коэффициентов системы дифференциальных уравнений; $\varepsilon(t)$ — помехи объекта и измерительных приборов; t — время.

Решение задачи идентификации предполагает по данным наблюдения векторов $\boldsymbol{Y}(t)$, $\boldsymbol{U}(t)$ и, возможно, при наличии некоторых характеристик помехи $\varepsilon(t)$, определение неизвестных параметров и оценку внутренних, не доступных для измерения выходных переменных объекта (например, концентраций промежуточных продуктов).

Задача идентификации принадлежит к так называемым некорректно поставленным задачам, и ее решение возможно только приближенно.

Классификация методов идентификации. По мнению В. В. Кафарова и И. Н. Дорохова [12], методы идентификации удобно разделить на две большие группы по типу математического описания той системы, к которой они применяются. К первой группе относятся все методы идентификации, применяемые только к линейным системам, ко второй — методы, применяемые как к линейным, так и к существенно нелинейным системам.

В первую группу можно включить: нахождение весовых функций непосредственным решением интегрального уравнения свертки; определение параметров дифференциальных уравнений и передаточных функций по экспериментальным функциям отклика на входные возмущения стандартного типа (импульсное, ступенчатое, синусоидальное и др.). Ко второй группе относят: метод адаптирующейся модели; методы статистической теории нелинейных систем; методы теории оптимальной фильтрации Калмана; методы байесовской идентификации; методы стохастической аппроксимации.

Для объектов химической технологии характерны большие степени нелинейности, распределенность параметров, нестационарность переменных (дрейф основных показателей процесса). В этих условиях для идентификации объектов исследователи чаще всего применяют методы второй группы. Особенно эффективны методы статистической идентификации объектов на основе теории случайных процессов и решения задачи поиска импульсной функции по уравнению Винера—Хопфа. Собственно в теории управления применение этих методов и составляет суть методов идентификации.

В связи с этим представляется целесообразным рассмотреть основные алгоритмы статистической идентификации: оценки характеристик случайных процессов, сглаживания случайных процессов, решения интегрального уравнения Винера—Хопфа, расчета моментов.

2.5.1. Алгоритм оценки стационарности и эргодичности. *Введение.* Эта оценка осуществляется с целью проверки исходных предпосылок теории случайных функций. Если случайные функции удовлетворяют требованиям стационарности и эргодичности, то в последующих расчетах можно пользоваться более простым математи-

ческим аппаратом (см. приложение 2). Известно, что реальные химико-технологические объекты не могут полностью удовлетворять требованиям стационарности и эргодичности, поэтому задачу оценки необходимо формулировать так: в какой мере свойства объекта отвечают требованиям стационарности и эргодичности?

Исходные данные. В результате наблюдения за объектом получены реализации входных $\boldsymbol{U}(t)$ и выходных $\boldsymbol{Y}(t)$ переменных во времени (случайные функции). Предполагается, что наблюдение возможно (объект оснащен приборами) и получена достаточно длительная реализация.

Определение. Случайные функции обладают свойством стационарности, если все их статистические характеристики (оценки математического ожидания $M[u(t)]$ и $M[y(t)]$, оценки дисперсий $D[u(t)]$ и $D[y(t)]$) постоянны во времени. Если случайная функция обладает свойством эргодичности, то статистические характеристики можно рассчитывать по одной достаточно длинной реализации (а не по множеству реализаций).

Допущение 1. Если исследуемые случайные процессы стационарны, то статистические характеристики, вычисляемые на коротких интервалах (частях реализации), не будут существенно меняться от интервала к интервалу.

Допущение 2. Для большинства технических приложений достаточно проверить слабую стационарность и эргодичность, т. е. тот факт, что средние значения случайных функций и квадратов случайных функций не зависят от времени.

Расчеты. 1. Реализация, например $y(t)$, длиной T (причем $T = N\Delta t$, где N — число участков разбиения реализации; Δt — интервал разбиения) делится на n частей так, чтобы каждую из них можно было считать независимой (рис. 2.3).

2. Вычисляются средние значения по i-ым частям реализации $M[y_i(N)]$ и средние значения квадрата $M[y_i^2(N)]$ $(i = 1, 2, ..., n)$:

$$M[y_i(N)] = \frac{1}{N}\sum_{u=1}^{N} y_{iu}; \tag{2.56}$$

$$M[y_i^2(N)] = \frac{1}{N}\sum_{u=1}^{N} y_{iu}^2. \tag{2.57}$$

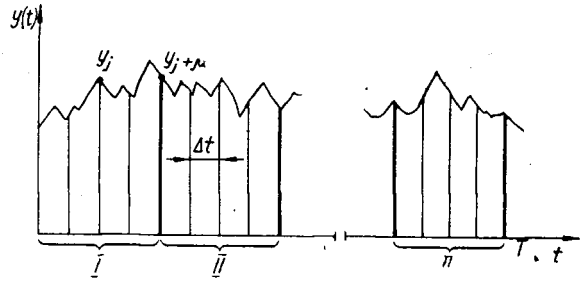


Рис. 2.3. Реализация случайной функции.

3. Вычисляются средние значения для всей реализации:

$$M[y(N)] = \frac{1}{N}\sum_{u=1}^{N} y_u; \tag{2.58}$$

$$M[y^2(N)] = \frac{1}{N}\sum_{u=1}^{N} y^2_u. \tag{2.59}$$

4. Для проверки гипотезы о стационарности средние значения сравниваются попарно (для двух любых частей реализации):

$$|M[y_i(N)] - M[y_j(N)]| < \varepsilon; \tag{2.60}$$

$$|M[y^2_i(N)] - M[y^2_j(N)]| < \varepsilon', \tag{2.61}$$

где $i, j = 1, 2, \ldots, n$; $i \neq j$; ε — заданное число или один из непараметрических критериев (критерий серий или тренда).

5. Для проверки гипотезы об эргодичности сравниваются средние значения для всей реализации и средние значения по всем частям реализации:

$$|M[y(N)] - \overline{M[y(N)]}| < \varepsilon'_1; \tag{2.62}$$

$$|M[y^2(N)] - \overline{M[y^2(N)]}| < \varepsilon'_2, \tag{2.63}$$

где средние значения по всем участкам рассчитываются по формулам

$$\overline{M[y(N)]} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} M[y_i(N)]; \tag{2.64}$$

$$\overline{M[y^2(N)]} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} M[y_i^2(N)]. \qquad (2.65)$$

Принятие решений. Если условия (2.60)—(2.63) выполняются, то случайные функции (реализации переменных по времени) признаются стационарными и эргодичными. Тогда все дальнейшие расчеты ведутся с использованием математического аппарата, рассмотренного ниже. В противном случае проводится фильтрация исходных реализаций.

2.5.2. Алгоритм текущего центрирования случайной функции. *Введение.* Текущее центрирование применяется в том случае, когда исследователь выясняет, что в исследуемом случайном процессе имеются разночастотные колебания. Это могут быть, например, низкочастотные (полезный сигнал) и высокочастотные колебания (шум). Последние устраняют с помощью фильтров. Рассмотрим один из фильтров — текущее среднее.

Исходные данные. Имеются реализации случайных процессов. Выяснено, что они слабо-нестационарные (не выполняется условие (2.60)). Предлагается «отфильтровать» высокочастотные колебания, распределенные по всей длине реализации.

Расчет ординат по алгоритму текущее среднее производится так:

$$\mathring{u}(t) = u(t) - \frac{1}{2\tau}\int_{t-\tau}^{t+\tau} u(q)\,dq, \qquad (2.66)$$

где $\mathring{u}(t)$ — центрированная и сглаженная случайная функция; $u(t)$ — исходная реализация; τ — интервал текущего усреднения ($\tau = \text{const}$). Обычно используют дискретный алгоритм (2.66)

$$\mathring{u}_j(N) = u_j(N) - \bar{u}_j(N), \qquad (2.67)$$

где $\mathring{u}_j(N)$ — ординаты центрированного случайного процесса; $j = 1, 2, \ldots, N$ — номер ординаты случайного процесса; $j = (l+1) \div (N-l)$; $(2l+1)$ — интервал усреднения. Текущее среднее в интервале $[(j-l) \div (j+l)]$:

$$\bar{u}_j(N) = \frac{1}{2l+1}\sum_{q=j-l}^{q=j+l} x_q. \qquad (2.68)$$

Число ординат центрированного процесса

$$\overset{\circ}{N} = N - 2l, \tag{2.69}$$

причем, очевидно, N должно быть значительно больше $2l$.

Примечание. Если гипотеза о стационарности случайных процессов (2.60) принимается, то центрирование проводится обычным вычитанием из ординат случайной функции по всей реализации:

$$\mathring{u}(N) = u(N) - M[u(N)],$$

или

$$\mathring{y}(N) = y(N) - M[y(N)], \tag{2.70}$$

где $M[y(N)]$ или $M[u(N)]$ рассчитывают по формуле (2.58).

2. 5. 3. Алгоритм расчета корреляционных функций. *Введение.* Корреляционные функции оценивают связь между ординатами одной случайной функции (автокорреляционная функция $R_{uu}(\tau)$) или ординатами различных случайных функций (взаимокорреляционная функция $R_{uy}(\tau)$). Физически величина корреляционной функции для некоторого момента t_1 показывает, насколько значение случайного процесса в момент времени t_2 связано со значением, отстоящим от последнего на время $\tau = (t_1 - t_2)$:

$$R_{uu}(\tau) = \lim \frac{1}{2T} \int_{-\infty}^{+\infty} u(t)u(t+\tau)dt, \tag{2.71}$$

$$R_{yu}(\tau) = \lim \frac{1}{2T} \int_{-\infty}^{+\infty} u(t)y(t+\tau)dt. \tag{2.72}$$

Исходные данные. Имеются конечные реализации случайных процессов $u(t)$ и $y(t)$ объекта исследования. Реализации стационарны, эргодичны и уже подвергнуты центрированию — $\mathring{u}(t)$ и $\mathring{y}(t)$. Требуется рассчитать корреляционные функции для дискретных $\mathring{u}(N)$ и $\mathring{y}(N)$.

Расчет корреляционных функций производится по формулам автокорреляционной и взаимокорреляцион-

ной функции соответственно:

$$R_{uu}(\mu) = \frac{1}{N-\mu}\sum_{j=1}^{N-\mu} \mathring{u}_j \mathring{u}_{j+\mu}, \tag{2.73}$$

$$R_{uy}(\mu) = \frac{1}{N-\mu}\sum_{j=1}^{N-\mu} \mathring{u}_j \mathring{y}_{j+\mu}, \tag{2.74}$$

где μ — дискретный аргумент корреляционной функции ($\mu = 0, 1, 2, \ldots, p$); j — номер ординаты случайной функции ($j = 1, 2, \ldots, N$).

Примечание. Вычисления по формулам производят до значения аргумента $\mu_{max} = (0{,}05 \div 0{,}10)$ (как для отрицательных, так и для положительных значений μ).

2.5.4. Алгоритм расчета функции веса по корреляционным функциям. *Введение.* Определение функции веса (или импульсной функции) основано на ее связи с взаимокорреляционной функцией входной и выходной переменных и автокорреляционной функцией входной переменной (уравнение Винера—Хопфа):

$$R_{yu}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} R_{uu}(t-\tau)k(t)dt. \tag{2.75}$$

Основная задача идентификации $k(t)$ — решение уравнения (2.75).

Исходные данные. По реализациям входных и выходных переменных получены автокорреляционная и взаимокорреляционная функции. Необходимо решить уравнение (2.75) и определить функцию веса $k(t)$.

Уравнение Винера—Хопфа можно решить несколькими методами. Рассмотрим метод сведения уравнения (2.75) к системе линейных алгебраических уравнений. Для этого представим его в виде

$$\frac{1}{T}R_{yu}(\tau) = \sum_{N_1=0}^{N} k(N_1T)R_{uu}(\tau - N_1T), \tag{2.76}$$

где N_1 — число участков разбиения реализаций; T — интервал времени участка реализаций; t — время (примем равным N_1T).

Обозначив $k_N = k(NT)$ (N — номер участка) и учитывая, что $k_0 = 0$, можно для каждого $\tau = 0, T, 2T, \ldots, NT$ записать систему N линейных уравнений с N неизвестными:

$$\frac{1}{T}R_{uy}(T) = k_1R_{uu}(0) + k_2R_{uu}(T) + \cdots + k_NR_{uu}[(N-1)T];$$

$$\frac{1}{T}R_{uy}(T) = k_1R_{uu}(T) + k_2R_{uu}(0) + \cdots + k_NR_{uu}[(N-2)T];$$

$$\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \tag{2.77}$$

$$\frac{1}{T}R_{uy}(NT) = k_1R_{uu}[(N-1)T] + k_2R_{uu}[(N-2)T] + \cdots$$

$$\cdots + k_NR_{uu}(0).$$

В матричной форме это уравнение можно записать так:

$$\frac{1}{T}\boldsymbol{R}_{uy} = \boldsymbol{R}_{uu}\boldsymbol{K}, \tag{2.78}$$

где $\boldsymbol{R}_{uu}$ — квадратичная матрица с диагональю в виде корреляционной функции от нуля:

$$\boldsymbol{R}_{uu} = \begin{bmatrix} R_{uu}(0) & R_{uu}(T) & \cdots & R_{uu}[(N-1)T] \\ R_{uu}(T) & R_{uu}(0) & \cdots & R_{uu}[(N-2)T] \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ R_{uu}[(N-1)T] & R_{uu}[(N-2)T] & \cdots & R_{uu}(0) \end{bmatrix} \tag{2.79}$$

K — вектор-столбец функции веса для принятой дискретности NT $(N = 1, 2, \ldots, N_1)$:

$$K = \begin{bmatrix} k_1 \\ k_2 \\ \vdots \\ k_N \end{bmatrix}; \tag{2.80}$$

$\boldsymbol{R}_{uy}$ — вектор-столбец:

$$\boldsymbol{R}_{uy} = \frac{1}{T}\begin{bmatrix} R_{uu}(T) \\ R_{uy}(2T) \\ \\ R_{uy}(NT) \end{bmatrix}. \tag{2.81}$$

Уравнение (2.78) можно решать различными методами, которые, как известно, определяются методами обращения матриц (метод Гаусса, метод окаймления, метод главного элемента и др.):

$$K = \boldsymbol{R}_{uu}^{-1}\boldsymbol{R}_{uy}. \tag{2.82}$$

Если матрица $\boldsymbol{R}_{uu}$ плохо обусловленная, то решение $\boldsymbol{K}$ будет неустойчиво к ошибкам в $R_{uu}(\tau)$ и $R_{uy}(\tau)$. В этом случае приходится прибегать к алгоритмам регуляризации, позволяющим избежать некорректности решаемой задачи.

2.5.5. Алгоритм расчета моментов по весовой функции. *Введение.* Важнейшей и наиболее полной характеристикой гидродинамической обстановки в аппарате является функция распределения частиц потока по времени пребывания их в аппарате. Дифференциальная функция распределения может быть отождествлена с C — кривой, которая, как известно, представляет собой график изменения концентрации индикатора на выходе из аппарата в зависимости от времени при импульсном вводе индикатора во входной поток.

Эта функция распределения совпадает с весовой функцией гидродинамического объекта.

При обработке результатов наблюдений удобно производить операции не с самой функцией распределения, а с ее вероятностными характеристиками. Такими характеристиками являются начальные μ_s и центральные ξ_s моменты случайных функций:

$$\mu_s = \int_0^\infty t^s k(t)\,dt; \qquad (2.83)$$

$$\xi_s = \int_0^\infty (t - \bar{t})^s k(t)\,dt, \qquad (2.84)$$

$$s = 0,\ 1,\ 2,\ \ldots,\ n.$$

Интегрируются уравнения (2.83) и (2.84) одним из методов численного интегрирования, например, методом Симпсона:

$$\int_a^b f(x)\,dx = \frac{\Delta}{3}\,(y_0 + 4y_1 + 2y_2 + 4y_3 + \ldots + 4y_{n-1} + y_n), \qquad (2.85)$$

где Δ — шаг разбиения интервала $[a \div b]$; y_i — ординаты функции.

Исходные данные. Имеется весовая функция объекта исследования $k(t)$. Необходимо рассчитать начальные моменты этой функции.

Решение. Вычисляется начальный момент нулевого порядка ($s = 0$):

$$\mu_0 = \int_0^\infty k(t)dt. \tag{2.86}$$

Если исследуется гидродинамика объекта, μ_0 соответствует общему количеству введенного в поток индикатора.

Вычисляется среднее время пребывания потока в аппарате, как отношение начального момента первого порядка к μ_0

$$\overline{t} = \frac{\int_0^\infty tk(t)dt}{\int_0^\infty k(t)dt}. \tag{2.87}$$

Обычно здесь вводится безразмерное время для j-ой ординаты

$$\theta_j = \frac{t_j}{\overline{t}}, \tag{2.88}$$

и безразмерная ордината функции

$$y(\theta_j) = \frac{k(t_j)}{\mu_0}. \tag{2.89}$$

Тогда расчет момента s-го порядка определяется по формуле

$$\mu_s = \theta \int_0^\infty \theta^s y(\theta)d\theta, \tag{2.90}$$

а решается (2.90) с учетом (2.85).

Замечание. Обычно расчет моментов — трудоемкая операция, требующая применения вычислительной техники.

Принятие решений. После расчета начальных моментов μ_0, ..., μ_4 возможен расчет чисел Пекле, которые определяют тип модели гидродинамической системы (идеальное вытеснение, перемешивание и др.).

Дополнение. Параметром, характеризующим гидродинамику системы, может быть критерий Пекле

$$\mathrm{Pe} = \frac{uL}{D_{\text{п.д}}}, \tag{2.91}$$

где u — средняя скорость потока; L — длина аппарата; $D_{\text{п.д}}$ — коэффициент продольной диффузии.

В [17] показана связь моментов весовой функции с параметром Pe в виде системы уравнений

$$\begin{cases} \mu_0 = 1; \\ \mu_1 = 1; \\ \mu_2 = 1 + \dfrac{2(\mathrm{Pe} - 1 + e^{-\mathrm{Pe}})}{\mathrm{Pe}^2}; \\ \mu_3 = 1 + \dfrac{6[\mathrm{Pe}(\mathrm{Pe}+1) - 4 + 3\mathrm{Pe}\, e^{-\mathrm{Pe}} + 4e^{-\mathrm{Pe}}]}{\mathrm{Pe}^3}; \\ \mu_4 = 1 + 12\,\dfrac{[\mathrm{Pe}^3 + 4\mathrm{Pe}^2 - 28 + (9\mathrm{Pe}^2 + 30\mathrm{Pe} + 26)e^{-\mathrm{Pe}}] + 24e^{-2\mathrm{Pe}}}{\mathrm{Pe}^4}. \end{cases} \tag{2.92}$$

Зная μ_0, ..., μ_4 и решив систему (2.92), можно найти значение Pe.

2.6. Алгоритмы оптимизации в планировании эксперимента

Введение. При решении экстремальных задач теории планирования эксперимента, целью которой является достижение некоторого оптимума, широко используются различные методы оптимизации. В данном разделе рассмотрены метод крутого восхождения, симплексный метод и метод канонических преобразований уравнения регрессии второго порядка (как метод исследования поверхности отклика в области оптимума).

2.6.1. Алгоритм метода крутого восхождения. *Введение.* Метод крутого восхождения, или метод Бокса — Уилсона объединяет положительные стороны трех методов — метода Гаусса—Зейделя, метода градиента и метода полного (или дробного) факторного эксперимента, как средства получения линейной математической модели. Задача метода крутого восхождения заключается в осуществлении шагового движения в направлении наискорейшего возрастания (или убывания) выходной переменной, т. е. по grad $y(x_i)$:

$$\operatorname{grad} y(x_i,\ b_i) = \frac{\partial y}{\partial x_1}\vec{i} + \frac{\partial y}{\partial x_2}\vec{j} + \ldots + \frac{\partial y}{\partial x_n}\vec{k}, \tag{2.93}$$

где $\dfrac{\partial y}{\partial x_i}$ — частная производная по i-му фактору; $\vec{i}$, $\vec{j}$, ..., $\vec{k}$ — единичные векторы.

Если $y(x_i, b_i)$ — линейная модель, то частные производные равны ее коэффициентам.

В отличие от метода градиента корректировка направления шагового движения производится не после каждого следующего шага, а по достижении в некоторой точке $\boldsymbol{X}_q$ на данном направлении частного оптимума целевой функции, как это делается при использовании метода Гаусса—Зейделя.

Исходные данные. Имеется линейная модель объекта исследования, полученная методами полного или дробного факторного эксперимента. Необходимо найти локальный оптимум объекта.

Расчет составляющей градиента. Практически расчет составляющих градиента реализуется вычислением произведений коэффициентов регрессии на соответствующие интервалы варьирования значимых факторов. Тогда уравнение (2.93) примет вид

$$\operatorname{grad} y(\boldsymbol{X}) = b_1\Delta X_1 + b_2\Delta X_2 + \ldots + b_n\Delta X_n, \qquad (2.94)$$

т. е. в качестве шагов крутого восхождения выбираются интервалы варьирования факторов.

Выбор базового фактора. Фактор, для которого произведение коэффициента регрессии на интервал варьирования максимально, принимается базовым:

$$\max (b_i\Delta X_i) = a. \qquad (2.95)$$

Выбор шага крутого восхождения. Для базового (или другого) фактора выбирают шаг крутого восхождения h_a. Обычно этот шаг выбирают по рекомендации технологов или по имеющейся априорной информации.

Пересчет составляющих градиента. Здесь используется условие: умножение составляющих градиента на любое положительное число дает точки, которые также лежат на градиенте. Пересчет составляющих градиента производят по выбранному шагу крутого восхождения базового фактора:

$$h_j = \frac{(b_i\Delta X_i)}{a} h_a. \qquad (2.96)$$

Коэффициенты b_i в выражении (2.96) берутся со своими знаками, значения шагов h_j округляют.

Организация поиска локального оптимума осуществляется последовательным прибавлением составляющих

градиента к нулевому уровню факторов. Получают серию значений факторов крутого восхождения. Переводя их в кодированную форму по уравнениям (1.128) и подставляя в уравнение регрессии, получают ряд «предсказанных» значений выходной переменной $\hat{y}$. Иногда эти опыты называют «мысленными».

Условия крутого восхождения через несколько шагов реализуются и, таким образом, проверяется степень точности описания объекта уравнением регрессии. В том случае, если ожидается отклонение опытных значений переменной от расчетных, реализуются все условия крутого восхождения. Стратегия проведения опытов заключается в нахождении таких шагов, которые приводят к увеличению выходной переменной, а затем к ее уменьшению.

Замечание 1. Отметим, что выбор шага крутого восхождения до некоторой степени произволен. Здесь можно рекомендовать следующее правило: при сложении численной величины шага с нулевым уровнем фактора результат должен давать координату, лежащую за пределами экспериментальной области.

Замечание 2. В процессе выполнения расчетов необходимо иметь в виду, что если отыскивается минимум выходной переменной, то знаки коэффициентов следует поменять на обратные, если какой-либо из факторов в процессе движения к оптимуму достигает границы области определения, то его можно зафиксировать и продолжать движение к оптимуму по остальным факторам.

2.6.2. Алгоритм симплексного метода оптимизации представляется следующей последовательностью действий и вычислений.

1. Оцениваются априорные сведения о процессе и выбираются интервалы варьирования ΔX_i ($i = 1, 2, \ldots, n$) по каждому фактору, необходимые для определения ребра симплекса.

2. Задается значение ребра симплекса в единицах варьирования соответствующих переменных (проводится кодирование переменных). Ребро симплекса обычно принимается равным единице.

3. Проводится первоначальная ориентация симплекса в факторном пространстве одним из способов, описанных ниже.

4. Рассчитывается выходная переменная согласно матрицы симплексного плана или эта матрица реализуется на объекте (при симплексном планировании).

5. Симплекс перемещается в факторном пространстве. Для этого вершина симплекса, в которой значение выходной переменной минимально (при поиске минимума) по сравнению с остальными, «отбрасывается» и находится вершина, являющаяся зеркальным отображением отброшенной вершины. Координаты зеркально-отображенной вершины определяются по формуле

$$x^*_{j,\,i} = \frac{2}{n}\,(x_{1,\,i} + x_{2,\,i} + \cdots + x_{j-1,\,i} + x_{j+1,\,i} + \cdots + x_{n+1,\,i}) - x_{j,\,i}, \tag{2.97}$$

где $j = 1, 2, \ldots, n+1$ — номер вершины симплекса; $i = 1, 2, \ldots, n$ — номер координаты; $x_{j,i}$ — координата наихудшей точки.

6. Рассчитывается выходная переменная в соответствии с координатами вершин нового симплекса и процедура повторяется.

Первоначальная ориентация симплекса. Обычно принято рассматривать два способа задания координат вершин правильного симплекса.

Первый способ. Если одну из вершин симплекса поместить в начало координат, а остальные n вершин расположить так, чтобы ребра, выходящие из первой вершины, образовывали одинаковые углы с соответствующими координатными осями (рис. 2.4, *а*), то координ-

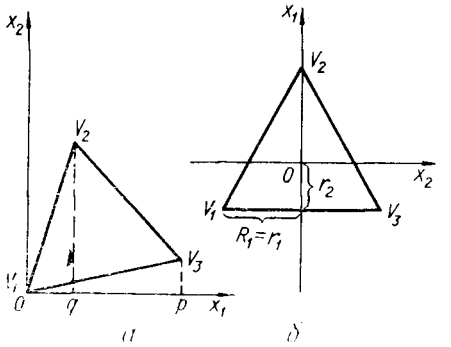


Рис. 2.4. Первоначальная ориентация симплекса.
а — угловая; *б* — центральная.

наты вершин симплекса будут определяться строками матрицы

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & \dots & 0 \\ p & q & q & \dots & q \\ q & p & q & \dots & q \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ q & q & q & \dots & p \end{bmatrix}, \qquad (2.98)$$

где $p = \frac{1}{n\sqrt{2}}(n - 1 + \sqrt{n+1})$; $q = \frac{1}{n\sqrt{2}}(\sqrt{n+1} - 1)$;

n — число факторов.

Например, при реализации симплекс-планирования для трех факторов координаты вершин первоначального положения симплекса по вышеприведенному способу отображены в табл. 2.7.

Таблица 2.7. **План эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная
	x_1	x_2	x_3	
1 (V_1)	0	0	0	y_1
2 (V_2)	0,944	0,236	0,236	y_2
3 (V_3)	0,236	0,944	0,236	y_3
4 (V_4)	0,236	0,236	0,944	y_4

Второй способ. Если центр симплекса поместить в начало координат, а вершину V_{n+1} — на ось x_n, то остальные вершины расположатся симметрично относительно координатных осей, плоскостей или, в общем случае, гиперплоскостей (см. рис. 2.4, *б*). Координаты вершин в этом случае будут определяться строками матрицы

$$\begin{matrix} (V_1) \\ (V_2) \\ (V_3) \\ \cdots \\ (V_{n+1}) \end{matrix} \begin{bmatrix} -r_1 & -r_2 & -r_3 & \dots & -r_{n-1} & -r_n \\ R_1 & -r_2 & -r_3 & \dots & -r_{n-1} & -r_n \\ 0 & R_2 & -r_3 & \dots & -r_{n-1} & -r_n \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ 0 & 0 & 0 & \dots & 0 & R_n \end{bmatrix}. \qquad (2.99)$$

При длине ребра, равной единице, радиусы вписанной r_i и описанной R_i окружностей будут определяться по формулам

$$r_i = \frac{1}{\sqrt{2i(i+1)}}; \qquad R_i = \sqrt{\frac{1}{2(i+1)}}, \qquad (2.100)$$

где i — номер столбца матрицы.

В табл. 2.8 представлена матрица планирования трех факторов по второму способу ориентации симплекса.

Таблица 2.8. **План эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная
	x_1	x_2	x_3	
1	—0,5	—0,289	—0,204	y_1
2	0,5	—0,289	—0,204	y_2
3	0	0,578	0,204	y_3
4	0	0	0,612	y_4

Принятие решений при реализации симплексного метода оптимизации. Можно выделить ряд типовых ситуаций, когда принимаемые решения отличаются от стандартного, которое было описано выше.

1. При расчете выходной переменной согласно матрице симплексного планирования может оказаться, что ее минимальное значение будет находиться в двух вершинах симплекса или в нескольких (последнее — маловероятно). В такой ситуации рекомендуется принимать решение по одному из случайных механизмов (например, бросание монеты).

2. Может возникнуть ситуация, когда во вновь организованной вершине симплекса значение выходной переменной снова минимально по сравнению с остальными. Рекомендуется вернуться к исходному симплексу и построить новый симплекс, являющийся зеркальным отображением предыдущей вершины по минимальности значения выходной переменной.

3. Последовательное «отбрасывание» вершин симплекса может привести к замене поступательного движения симплекса вращательным вокруг одной из вершин (так называемое «зацикливание» симплекса). Такая ситуация возможна при достижении области оптимума факторного пространства.

При «зацикливании» расчет выходной переменной на предыдущем симплексе повторяют. Также весьма эффективно повторить процедуру поиска координаты оптимума из другой точки факторного пространства и с дру-

ними размерами симплекса. Завершение поиска в первоначальной области свидетельствует о нахождении локального оптимума.

Симплексный метод оптимизации широко используется для поиска оптимума как непосредственно на объекте, так и по математической модели. Ряд преимуществ делает его применение весьма эффективным, к числу которых следует отнести прежде всего независимость направления движения от абсолютных значений выходной переменной в вершинах симплекса. Действительно, это направление зависит от ранжирования значений выходной переменной, что позволяет привлекать для принятия решений другие переменные, характеризующие объект. Здесь обычно решаются компромиссные задачи. Метод легко позволяет достроить симплекс при включении новой переменной: добавляется еще одна вершина симплекса, алгоритм поиска при этом не изменяется.

2.6.3. Алгоритм канонического преобразования и анализа поверхности отклика. *Введение.* Для целей оптимизации исследуемого объекта, который описывается уравнением второго порядка, существует преобразование, позволяющее получить графическую и аналитическую интерпретации области оптимума. Упомянутое преобразование называется каноническим. Каноническое преобразование исходного уравнения регрессии второго порядка

$$\hat{y} = b_0 + \sum_i b_i x_i + \sum_{i<j} b_{ij} x_i x_j + \sum_i b_{ii} x^2_i \qquad (2.101)$$

представляет собой переход к стандартному уравнению

$$\hat{Y} - Y_s = \sum_{i=1}^{n} B_{ii} X_i, \qquad (2.102)$$

где Y_s — значение выходной переменной в центре поверхности отклика; X_i — канонические переменные; B_{ii} — коэффициенты канонического уравнения.

К новому уравнению переходят, перенося начало координат в центр поверхности отклика и поворачивая оси на определенный угол.

Перенос начала координат приводит к устранению линейных и свободного членов в уравнении, поворот осей — к исключению взаимодействий.

Трудности геометрической интерпретации уравнения регрессии второго порядка возрастают с увеличением числа факторов. При $n > 3$ дать наглядное представление о геометрии функции отклика, очевидно, невозможно, однако и в этом случае каноническое преобразование дает хорошие результаты, если последовательно рассматривать изменение двух факторов при стабилизированных остальных. Такой прием позволяет получить серию контурных кривых на плоскости для числа факторов $n \geqslant 3$ (очевидно, что объемное изображение функции отклика при $n \geqslant 3$ также не дает исследователю особых преимуществ).

При каноническом преобразовании уравнения регрессии второго порядка для двух факторов ($n = 2$) получают уравнение

$$\hat{Y} - Y_s = B_{11}X_1^2 + B_{22}X_2^2. \qquad (2.103)$$

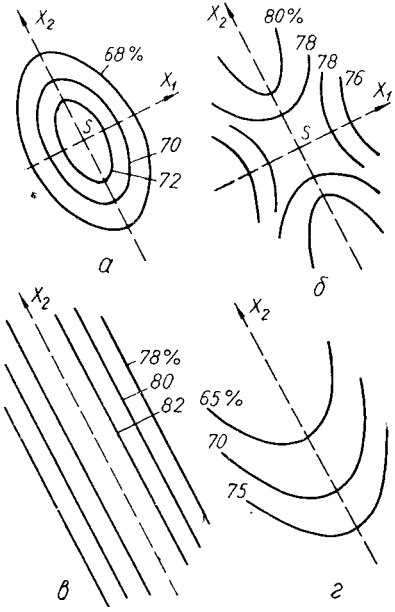


Рис. 2.5. Контурные кривые функции отклика области оптимума, описываемой уравнением второго порядка.

Для уравнения (2.103) в зависимости от знаков и значений B_{11} и B_{22} возможны четыре вида контурных кривых для равных значений параметра оптимизации (рис. 2.5): *а — коэффициенты B_{11} и B_{22} имеют одинаковые знаки;* контурные кривые в этом случае являются эллипсами; при $B_{ii} < 0$ центр эллипсов будет максимумом, при $B_{ii} > 0$ — минимумом, если $(B_{22}) < (B_{11})$, то эллипс вытянут по оси X_2 и наоборот; *б — коэффициенты B_{11} и B_{22} имеют разные знаки;* контурные кривые в этом случае являются гиперболами; центр фигуры называется «седлом» или «минимаксом»; в зависимости от соотношения

абсолютных значений коэффициентов B_{11} и B_{22} изменение выходной переменной по осям X_1X_2 будет различным; *в, г — один из коэффициентов* близок или равен нулю; один из коэффициентов (B_{22}) равен нулю, центр фигуры находится на бесконечности; поверхность отклика представляет собой возрастающее возвышение — «гребень» — (*г*); возможен также случай, когда $B_{22} \approx 0$ и центр фигуры находится в любой точке оси X_2, поверхность отклика представляет собой «стационарное возвышение» — (*в*). На практике случай (*в*) встречается редко.

Указанные случаи идеализированы, однако они помогают исследователю ориентироваться в структуре поверхности отклика. Основные типы поверхностей отклика для двух переменных приведены в табл. 2.9.

Таблица 2.9. **Типы поверхностей отклика канонического уравнения двух переменных**

Номер типа поверхности	Коэффициенты	Знаки коэффициентов		Тип кривых в сечении	Геометрическая интерпретация	Центр
		B_{11}	B_{22}			
1	$B_{11} = B_{22}$	—	—	Окружность	Круглая выпуклость	Максимум
2	$B_{11} = B_{22}$	+	+	То же	Круглая впадина	Минимум
3	$B_{11} > B_{22}$	—	—	Эллипс	Эллипсоидная выпуклость	Максимум
4	$B_{11} > B_{22}$	+	+	То же	Эллипсоидная впадина	Минимум
5	$B_{11} = B_{22}$	+	—	Гипербола	Симметричное седло	Седловая точка
6	$B_{11} = B_{22}$	—	+	То же	То же	То же
7	$B_{11} > B_{22}$	+	—	»	Вытянутое седло	»
8	$B_{22} = 0$	—	0	Прямая	Стационарный гребень	Нет
9	$B_{22} = 0$	—	0	Парабола	Возрастающий гребень	На бесконечности

Кратко изложим алгоритм канонического преобразования уравнения регрессии второго порядка в уравнение (2.103).

Начало координат переносят в новую точку факторного пространства S. Для этого уравнение регрессии второго порядка дифференцируют по каждому фактору и приравнивают к нулю. Решая систему уравнений, находят координаты нового центра, подставляют их в уравнение регрессии и получают значение выходной переменной Y_s в центре факторного пространства S. В уравнении регрессии исчезают члены первой степени и изменяется значение свободного члена

$$\hat{Y} - Y_s = \sum_{i,\ j=1}^{n} b_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^{n} b_{ii} x_i^2. \qquad (2.104)$$

В новом центре *поворачивают оси* до совмещения с главными осями поверхности функции отклика. Эта операция осуществляется по правилам аналитической геометрии.

Например, для $n = 2$ характеристическое уравнение имеет вид

$$f(B) = \begin{vmatrix} (b_{11} - B) & 0{,}5b_{12} \\ 0{,}5b_{21} & (b_{22} - B) \end{vmatrix} = 0. \qquad (2.105)$$

Решение (2.105) записывают уравнением

$$B^2 - a_1 B + a_2 = 0, \qquad (2.106)$$

где

$$a_1 = (b_{11} + b_{22}); \qquad a_2 = (b_{11} b_{22} - 0{,}25 b_{12})^2.$$

Два корня этого уравнения дают искомые значения коэффициентов уравнения в канонической форме.

Для $n = 3$ характеристическая матрица (2.105) дополняется соответствующими строками и столбцами:

$$f(B) = \begin{vmatrix} (b_{11} - B) & 0{,}5b_{12} & 0{,}5b_{13} \\ 0{,}5b_{21} & (b_{22} - B) & 0{,}5b_{23} \\ 0{,}5b_{31} & 0{,}5b_{32} & (b_{33} - B) \end{vmatrix} = 0. \qquad (2.107)$$

Решение (2.107) записывают уравнением

$$B^3 - a_1 B^2 + a_2 B - a_3 = 0,$$

где

$$a_1 = \sum_{i=1}^{n} b_{ii};$$

$$a_2 = \sum_{i,\ j=1}^{n} b_{ii} b_{jj} - 0{,}25 \sum_{i<j}^{n} b_{ij}^2;$$

$$a_3 = \prod_{i=1}^{n} b_{ii} + 0{,}25 \prod_{i,\ j=1}^{n} b_{ij} - 0{,}25 \sum_{\substack{i,\ j=1 \\ i \neq j \neq q}}^{n} b_{ii} b_{iq}.$$

Правильность расчетов проверяют по формуле

$$\sum_{i=1}^{n} B_{ii} = \sum_{i=1}^{n} b_{ii}. \qquad (2.108)$$

Пример. Произвести канонический анализ уравнения регрессии

$$\hat{y} = 85{,}14 + 3{,}43x_1 - 1{,}32x_2 + 2{,}60x_1^2 - 1{,}19x_2^2 + 3{,}00x_1x_2.$$

Решение. Начало координат переносим в новую точку факторного пространства следующими действиями:

$$\frac{\partial \hat{y}}{\partial x_1} = 3{,}43 + 2 \cdot 2{,}60x_1 + 3{,}00x_2 = 0;$$

$$\frac{\partial \hat{y}}{\partial x_2} = -1{,}32 - 2 \cdot 1{,}19x_2 + 3{,}00x_1 = 0;$$

$$x_{1s} = -0{,}197; \qquad x_{2s} = -0{,}802.$$

Подставляем значения x_{1s} и x_{2s} в уравнение регрессии и получаем значение выходной переменной $Y_s = 85{,}33$ в центре S.

Для поворота осей в новом центре надо знать значения канонических коэффициентов B_{11} и B_{22}. Для вычисления этих значений приравняем характеристический детерминант к нулю:

$$\begin{vmatrix} (2{,}60 - B) & 0{,}5 \cdot 3{,}00 \\ 0{,}5 \cdot 3{,}00 & (-1{,}19 - B) \end{vmatrix} = 0,$$

или воспользуемся формулами (2.105)

$$a_1 = 2{,}60 - 1{,}19 = -1{,}41;$$

$$a_2 = -2{,}60 \cdot 1{,}19 - 0{,}25(3{,}00)^2 = -5{,}34.$$

Получим уравнение

$$B^2 - 1{,}41B - 5{,}34 = 0.$$

Корнями этого уравнения будут $B_{11} = 3{,}2$, $B_{22} = 1{,}71$. Условие (2.108) выполняется:

$$2{,}60 - 1{,}19 = 3{,}12 - 1{,}71.$$

Уравнение регрессии в канонической форме примет вид

$$\hat{Y} - 85{,}33 = 3{,}12X_1^2 - 1{,}71X_2^2.$$

В соответствии с приведенной выше классификацией контурными кривыми в области оптимума являются гиперболы ($B_{11} < 0$, $B_{22} > 0$).

Глава 3

ОСОБЕННОСТИ ПРИМЕНЕНИЯ МЕТОДОВ ПЛАНИРОВАНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА ПРИ ИССЛЕДОВАНИИ СЛОЖНЫХ ОБЪЕКТОВ ХИМИЧЕСКОЙ ТЕХНОЛОГИИ

Введение. В настоящее время очень редко приходится сталкиваться с необходимостью изучать обособленный технологический процесс. Чаще всего исследуемый объект представляет собой совокупность связанных процессов (говорят, что исследуемый объект обладает структурой). Очевидно, применение методов планирования эксперимента к таким объектам с одной стороны требует выработки новых рекомендаций и приемов, позволяющих решить поставленные задачи моделирования и оптимизации, с другой стороны — для реализации эксперимента на сложном технологическом объекте (будем называть его системой), требуется своя система исследования, представляющая собой объединение технологической установки, ЭВМ, исследователя и некоторых правил действий (или алгоритмов), обеспечивающих достижение поставленных целей. На рис. 3.1 представлена схема такой системы исследования.

Глобальную задачу исследования как целенаправленного процесса можно сформулировать так: в соответствии с некоторым заданием, вызванным потребностью

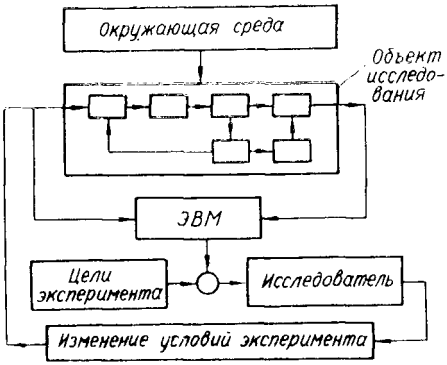


Рис. 3.1. Схема системы исследования сложного объекта.

народного хозяйства в определенном продукте, необходимо получить информацию о способе производства этого продукта (совокупности процессов), достаточную для проектирования химико-технологического комплекса заданной мощности. Решение глобальной задачи в значительной степени зависит от методов и средств, имеющихся в распоряжении исследователя. Будем считать, что исследователь имеет возможность проводить эксперименты на технологических установках определенного масштаба, пользоваться методами теории эксперимента (а значит, и вычислительной машиной). Исследователь ограничен временными, физическими и материальными ресурсами.

Очевидно, решение глобальной задачи исследования с системных позиций — это решение сложной задачи оптимизации по многим критериям в условиях значительных ограничений и неопределенности. В настоящее время эта задача не формализована, тем не менее, она успешно решается исследователями с использованием проверенных практикой правил и принципов.

В этой главе рассмотрены особенности применения методов планирования эксперимента к сложным объектам химической технологии, а также правила, объединенные некоторой логической схемой достижения поставленных целей.

3.1. Постановка задач исследования сложных объектов химической технологии

Введение. При исследовании сложных объектов химической технологии встречается ограниченное число типов соединения процессов в системы. В работе [38] рассмотрены пять типов: последовательное, последовательно-обводное (с байпасом), параллельное, обратное (с рециклом) и перекрестное. Учитывая, что с точки зрения использования методов теории эксперимента и оптимизации системы с байпасом и последовательным соединением, а также системы с рециклом и перекрестные почти идентичны, ниже рассматриваются только три типа соединения процессов — последовательное, параллельное и с рециклом (рис. 3.2).

3.1.1. Исследование системы с последовательным соединением процессов. *Исходные данные.* Имеется система, процессы которой соединены последовательно (см. рис. 3.2, *а*) технологическими потоками, т. е. система обладает структурой, которую можно выразить условиями:

$$y_1 = x_4;$$
$$y_2 = x_7;$$
$$\ldots$$

в общем виде для i- и k-го процессов

$$y_k = x_i. \tag{3.1}$$

Необходимо найти математическую модель системы, используя методы планирования эксперимента, и решить задачу оптимизации системы. Математическая модель ищется в виде регрессионного уравнения

$$\hat{y}_N = f(x_1,\ x_2, \ldots, x_{N+1},\ b_0,\ b_1, \ldots, b_{N+1}), \tag{3.2}$$

а задача оптимизации

$$R = \operatorname*{extr}_{x} y_N, \tag{3.3}$$

где R — экстремальное значение функции цели.

План эксперимента. К каждому процессу, начиная с первого, применяется соответствующий план экспери-

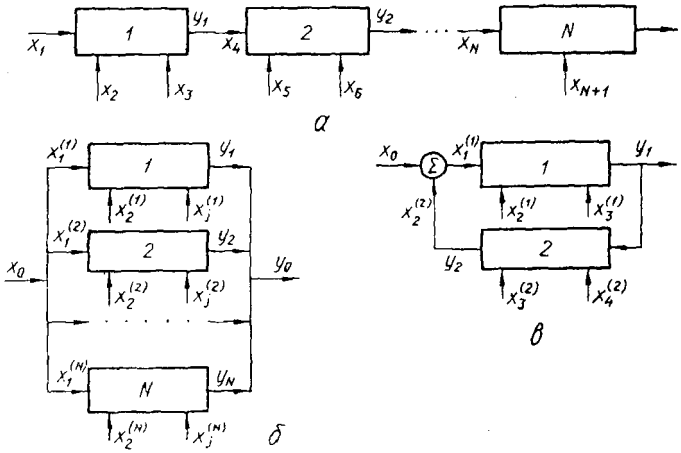


Рис. 3.2. Типы соединения процессов в системах исследования:
а — последовательное; *б* — параллельное; *в* — соединение с рециклом.

мента (первого или второго порядка) и определяются модели

$$y_1 = f_1(x_1,\ x_2,\ x_3,\ b_j^{(1)});$$
$$y_2 = f_2(x_4,\ x_5,\ x_6,\ b_j^{(2)});$$
$$\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \qquad (3.4)$$
$$y_N = f_N(x_N,\ x_{N+1},\ b_j^{(N)}).$$

При этом найденное значение выходной переменной y_1 (при постановке планируемого эксперимента на процессе *1*) является фактором x_4 (при исследовании процесса *2* (см. рис. 3.2, *а*)). Желательно при этом решить автономную задачу оптимизации для процесса *1*, т. е. найти

$$\underset{x_1,\ x_2,\ x_3}{\text{extr}}\ y_1 = R_1, \qquad (3.5)$$

и в качестве нулевого уровня фактора x_4 использовать

$$R_1 = \text{extr}\ y_1.$$

Решение задачи. Если не наметится противоречий в физико-химических связях уравнения

$$\text{extr}\ y_k = x_i, \qquad (3.6)$$

то, зафиксировав фактор $x_N = \text{extr}\, y_{N-1}$, можно решить глобальную задачу оптимизации (3.3). Для этого достаточно найти

$$\text{extr}\, y_N = R_N = R \text{ при } x_N = \text{extr } y_{N-1} = \text{const}.$$

Если физико-химические ограничения не позволят использовать условие (3.6), то для решения задачи (3.3) целесообразно использовать принцип динамического программирования: задается y_N и по модели $y_N = f(x_N, x_{N+1}, b_j^{(N)})$ определяются соответствующие x_N и x_{N+1}. Ранее задается $x_N = y_{N-1}$ и решается задача поиска соответствующих факторов для блока $(N-1)$. Расчетная процедура поиска оптимальных факторов (наверное, обратная рассмотренной выше прямой процедуре) продолжается до тех пор, пока не будут найдены x_1, x_2, x_3. Полученные результаты проверяются на экспериментальной установке и, если расхождения невелики, принимается найденный технологический режим.

Замечание 1. Если в процессе оптимизации технологического режима на установке по каким-либо факторам будут достигнуты граничные условия, то они могут быть зафиксированы, и таким образом исключены из процедуры планируемого эксперимента и поиска оптимальных значений выходных переменных.

Замечание 2. Если процессы в системе или сама система характеризуется больше чем одной переменной, то задача усложняется и переходит в область методов многокритериальной оптимизации.

3.1.2. Исследование системы с параллельным соединением процессов. *Исходные данные.* Исследуется система, процессы в которой соединены параллельно общими технологическими потоками (см. рис. 3.2, *б*). Структура системы может характеризоваться условиями

$$x_0 = \sum_{i=1}^{N} x_1^{(i)}; \tag{3.7}$$

$$y_0 = \sum_{i=1}^{N} y_i. \tag{3.8}$$

Необходимо найти математическую модель системы, используя методы планирования эксперимента, и ре-

шить задачу оптимизации системы. Математическая модель ищется в виде

$$\hat{y}_i = f_i(x^{(i)}_1, x^{(i)}_2, \ldots, x^{(i)}_j, \ldots, b^{(i)}_j), \tag{3.9}$$

где $i = 1, 2, \ldots, N$ — номер процесса.

Задачу оптимизации можно записать так:

$$R = \operatorname*{extr}_x y_0 = \sum_i R_i = \operatorname*{extr}_x \sum_i y_i(x^{(i)}_1, x^{(i)}_j, \ldots, b^{(i)}_j). \tag{3.10}$$

План эксперимента. Если выполняется условие (3.7) и возможно измерение, а также управление факторами $x^{(1)}_1, x^{(2)}_1, \ldots, x^{(N)}_1$, то задача получения математической модели системы в виде (3.9) методами планирования эксперимента распадается на отдельные процедуры по числу блоков в исследуемой системе. Таким образом, математическая модель системы, состоящая из параллельно соединенных процессов, представляет систему линейных и нелинейных регрессионных уравнений

$$\begin{aligned}
y_1 &= f_1(x^{(1)}_1, x^{(1)}_2, \ldots, x^{(1)}_j, \ldots, b^{(1)}_j);\\
y_2 &= f_2(x^{(2)}_1, x^{(2)}_2, \ldots, x^{(2)}_j, \ldots, b^{(2)}_j);\\
&\ldots\ldots\ldots\ldots\\
y_N &= f_N(x^{(N)}_1, x^{(N)}_2, \ldots, x^{(N)}_j, \ldots, b^{(N)}_j).
\end{aligned} \tag{3.11}$$

Решение задачи оптимизации. При выполнении условия (3.8) задача оптимизации системы также распадается на автономные задачи поиска оптимума по каждому процессу:

$$R_i = \operatorname{extr} y_i(x^{(i)}_1, x^{(i)}_2, \ldots, b^{(i)}_j), \tag{3.12}$$

а далее оптимум системы находится в соответствии с условием (3.10).

Замечание. Условие (3.8), как правило, выполняется для сложных объектов, у которых функция цели y_i совпадает с выходной переменной, характеризующей технологический режим (например, содержание некоторого продукта A в выходных потоках технологической системы). В тех случаях, когда y_i является показателем эф-

фективности работы системы (надежность, устойчивость, рентабельность, стоимость и др.), условие (3.8) не выполняется, и тогда используют взвешенные оценки ρ_i для y_i, получаемые экспертизами.

3.1.3. Исследование систем с рециклом. *Исходные данные.* Значительно сложнее решаются задачи моделирования и оптимизации, когда в схеме имеется один или несколько рециклов. Структуру такой системы (см. рис. 3.2, *в*) можно выразить уравнениями:

$$x^{(1)}_1 = x_0 + x^{(2)}_2; \tag{3.13}$$

$$y_2 = x^{(2)}_2. \tag{3.14}$$

Ставится задача: найти математическую модель системы методами теории эксперимента и определить оптимум y_1:

$$R = \underset{x}{\operatorname{extr}}\, y_1 \tag{3.15}$$

при

$$y_1 = f_1(x_0,\ x^{(1)}_2,\ x^{(1)}_3,\ b^{(1)}_j); \tag{3.16}$$

$$y_2 = f_2(x^{(2)}_3,\ x^{(2)}_4,\ b^{(2)}_j). \tag{3.17}$$

Замечание 1. Возможен рецикл вида $y_1 = y_2$, т. е. выходной поток объекта *1*, характеризующийся переменной y_1, направляется на вход того же объекта.

План эксперимента. При наличии рецикла использование планов эксперимента для получения регрессионных моделей невозможно вследствие коррелированности факторов между собой (x_0 коррелировано с $x^{(1)}_2$ и др.). Напомним, что одной из предпосылок регрессионного анализа является отсутствие корреляции между факторами. При исследовании системы с рециклом возможны два случая.

1. Если существует возможность физически «разорвать» рецикл (между y_2 и $x^{(2)}_2$ поместить, например, емкость, накапливающую продукты выходного потока объекта *2*), то моделирование сводится к соответствующей задаче последовательного соединения объектов в систему. Например для блока *1* (см. рис. 3.2, *в*) факторами будут $x^{(1)}_1 = x_0 + x^{(2)}_2$ при $x^{(2)}_2 = \text{const}$, $x^{(1)}_2$, $x^{(1)}_3$, а выходной переменной y_1.

2. Если рецикл «разорвать» нельзя, то моделировать процессы в системе следует на основе физико-химических закономерностей. Идентификацию системы и оценку ее адекватности можно осуществить изложенными выше алгоритмами (см. 2.5). Напомним, что для этого необходимо иметь выборку экспериментальных данных.

Решение задачи оптимизации. В первом случае, когда существует возможность «разрыва» рецикла, задача оптимизации системы решается так же, как и при последовательном соединении объектов. Находится

$$R_1 = \underset{x^{(1)}}{\operatorname{extr}}\, y_1 \tag{3.18}$$

при условии, что модель в виде (3.16) получена. Далее определяется

$$R_2 = \underset{x^{(2)}}{\operatorname{extr}}\, y_2. \tag{3.19}$$

«Стыковку» R_2 (оптимальное значение для y_2) и $x_2^{(2)}$ можно рассчитать, используя, например, итерацию.

Задача оптимизации системы по физико-химическим моделям рассчитывается с использованием целого арсенала поисковых методов.

3.2. Основные цели и задачи процесса исследования химико-технологических систем

Введение. Как уже упоминалось ранее, процесс исследования в химии и химической технологии может быть представлен как некоторая система, предназначенная для достижения определенных целей. Все операции по исследованию объектов химической технологии обычно связаны некоторой логической схемой «добывания» информации и использования ее для решения поставленных задач. В этой логической схеме исследования методы планирования эксперимента позволяют решить отдельные задачи и задачу исследования в целом. В этом разделе рассмотрены основные принципы решения задач исследования, выделены цели логической схемы исследования и намечены пути использования системы алгоритмов теории эксперимента в существующем процессе исследования химико-технологических комплексов.

3.2.1. Основные принципы исследования химико-технологических комплексов. Практикой исследования на-

коплено много принципов, реализация которых в значительной мере способствует эффективности проводимых экспериментов.

Ниже рассмотрены основные из них. Отметим, что одновременное использование большинства принципов характерно для исследователей с высокой культурой исследования и большим опытом.

Ранее теория эксперимента не затрагивала эту сторону деятельности исследователя. Однако теперь при создании автоматизированных систем эксперимента возникла необходимость сбора и обобщения опыта исследования, как некоторого целенаправленного процесса. Изложенные ниже принципы не ранжировались по их значимости.

Определение. Процесс исследования в целом можно рассматривать как совокупность операций над объектом исследования. Объект исследования (лабораторная установка определенного масштаба), исследователь и ЭВМ с соответствующим математическим и программным обеспечением объединены в систему. Перед системой исследования поставлена цель. Вход в систему — существующая вне ее информация о свойствах продукта и способах его получения (возможно по аналогии с другими продуктами); выход — данные для проектирования химического предприятия определенной мощности.

Примечание 1. Здесь и далее проблемы объединения технологической установки и ЭВМ в единый экспериментальный комплекс не рассматриваются.

Принцип 1. Процесс исследования — это анализ физических и химических явлений на глубину, достаточную для получения информации и передачи ее в систему проектирования. Логическая схема исследования (ЛСИ) строится так, чтобы последовательно, шаг за шагом, увеличить информацию об объеме исследования до уровня, достаточного для проектирования химико-технологического комплекса. ЛСИ предполагает также организацию последовательных приближений и повторных циклов исследований на отдельных этапах.

Принцип 2. При решении задач исследования всегда существует неопределенность, преодолеваемая исследователем (он принимает одно из альтернативных решений).

Принятие решений — это «стыковочный узел» этапов исследования. Именно здесь можно учесть неформализу-

емые условия — ресурсы творческой активности, прогнозы специалистов и т. п.

Принцип 3. Логическая схема исследования имеет глобальную цель (о ней говорилось во введении главы) и подцели, достижение которых позволяет решить задачу в целом. На каждом этапе, при достижении подцели, исследователь пользуется определенной информацией, полученной на предыдущем этапе или имеющейся вне системы. На всех этапах исследования можно пользоваться информационным обеспечением (ИО) данной подсистемы или ИО более высокого уровня, например, отрасли.

Принцип 4. При решении задач в рамках системы исследования удобно и оправдано пользоваться математическими моделями физических и химических явлений. Однако, следует отметить, что на протяжении исследования роль математических моделей меняется. Если отрабатывается технологический режим на лабораторной установке, то математическая модель используется как средство достижения оптимального технологического режима (например, максимального выхода продукта). Если «нарабатывается» информация для проектирования, то математическая модель является целью процесса исследования, и эта цель достигается некоторым оптимальным путем (минимизируются, например, ресурсы для достижения цели).

Принцип 5. В процессе исследования широко используется принцип декомпозиции технологической системы на технологические узлы. Логика построения технологических комплексов предлагает четыре типа таких узлов: подготовки сырья *A*, химического превращения *B*, разделения продуктов реакции *C* и переработки и обезвреживания отходов производства *D*. Декомпозиция ABCD-комплексов на составляющие узлы позволяет эффективно проводить новые исследования или пользоваться известной информацией с уточнением параметров по результатам эксперимента.

Принцип 6. В процессе исследования соблюдается принцип главного технологического узла (чаще всего это химический процесс). От степени изученности главного технологического узла в значительной степени зависят дальнейшие проектные решения. В процессе исследования соблюдается также принцип главного руководителя исследований, принима-

ющего основные решения в логической схеме исследования.

Принцип 7. В процессе исследования существует иерархия принимаемых решений (например, принятие решений на уровне руководителя исследований и технического Совета).

Принцип 8. Процесс исследования имеет свой документооборот и свои способы его организации, в том числе и способы связи с процессом проектирования. С внедрением ЭВМ в процесс исследования эти принципы подвергаются коренной перестройке.

Перечисленные принципы являются основными в процессе исследования. Они сохраняются и при автоматизированном эксперименте, хотя организация всего процесса исследования, использование и переработка информации, безусловно, меняются.

3. 2. 2. Логические схемы исследования (ЛСИ). Существует множество логических схем исследования. Их разнообразие обусловлено возможностями современной науки, ограничениями, которые накладывают исследуемые процессы, и конкретными условиями существования данного исследовательского подразделения (традиции НИИ). Самым сильным ограничением, накладываемым на химико-технологические процессы, является неадекватность масштабного перехода от изучения явления на условном микроуровне к изучению условий на макроуровне. Информация, полученная на микроуровне, не может быть полностью использована на макроуровне. Приходится организовывать многоступенчатую систему исследования, причем шаг ступени нельзя заранее определить точно, хотя такие предложения есть.

Ниже рассмотрены три ЛСИ — две полярные по структуре и одна компромиссная. В методических целях структура рассматриваемых ЛСИ значительно упрощена.

Многоступенчатая ЛСИ. Эта логическая схема более всего отражает трудности, с которыми приходится сталкиваться, когда учитывается неадекватность масштабного перехода. Многоступенчатость вызвана стремлением учесть неадекватность масштабного перехода. Заранее преполагается, что есть такой шаг масштабного перехода, в пределах которого неадекватность сводится к минимуму или практически ею можно пренебречь. К сожалению, выбор величины этого шага ни теоретически, ни экономи-

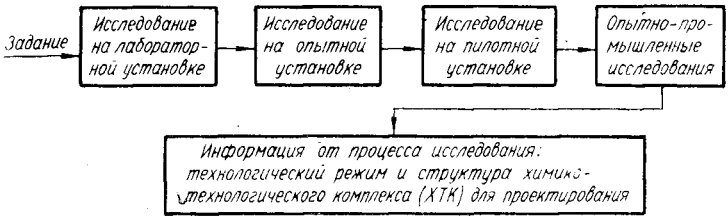


Рис. 3.3. Многоступенчатая логическая схема исследования.

чески не доказан. Существует практическая многоступенчатая ЛСИ, ее общий (сокращенный) вид приведен на рис. 3.3. Число ступеней может быть бо́льшим или меньшим в зависимости от сложности исследуемых процессов и заданной глубины исследования.

В результате деятельности такой ЛСИ проектировщики получали значительную информацию — условия технологического режима, достаточно близкие к оптимальным, и апробированную структуру химико-технологического комплекса (ведь опытно-промышленная установка по структуре почти идентична промышленной). Но такая ЛСИ дорогостоящая, и главный ее недостаток — длительность исследования. Современные условия проектирования требуют сокращения непроизводственных этапов «жизненного» цикла химико-технологического производства.

Многоступенчатая ЛСИ не потеряла актуальности. Она используется там, где требуются фундаментальные исследования процессов (или производств), использование которых прогнозируется на долгие годы. Эту систему можно считать крайним полюсом в различных логических схемах.

Одноступенчатая ЛСИ. Другим полюсом ЛСИ является схема, изображенная на рис. 3.4. Ее лаконичность обусловлена применением метода математического моделирования. Принципиально возможно провести исследования на лабораторной установке и получить полную математическую модель системы, адекватную масштаб-

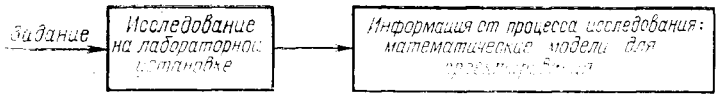


Рис. 3.4. Одноступенчатая логическая схема исследования.

ному переходу, а затем предоставить эту информацию для проектирования предприятий любой мощности. Однако некоторые специалисты считают, что расходование ресурсов в многоступенчатой и одноступенчатой схемах примерно одинаково (сравнительный анализ этих ЛСИ не проводился). Это связано с тем, что реализация одноступенчатой ЛСИ требует очень тонких и дорогостоящих исследований в рамках системы автоматизированного эксперимента. Тем не менее, ожидаемое сокращение времени исследования позволяет считать, что в будущем будут использоваться одноступенчатые логические схемы исследования.

Компромиссная ЛСИ. Для большинства технологических исследований тех производств, которые часто меняются, значительные затраты на исследования не оправданы. Поэтому предлагаются и существуют различные компромиссные схемы исследования. Компромисс находят в основном между глубиной исследования и временем выдачи результатов. В рассматриваемой здесь компромиссной ЛСИ это достигается за счет использования ряда узлов *A*, *B*, *C*, *D* различной производительности.

Синтез технологического комплекса осуществляется условно за счет емкостей накопления продукта. Это дает возможность не строить опытной установки, которая, как известно, должна быть согласована по производительности. Компромиссная принципиальная схема исследования представлена на рис. 3. 5.

Преимущество компромиссного подхода — быстрота получения информации за счет использования ряда узлов *A, B, C, D* различной производительности в модельном цехе. На рис. 3. 5 пример такого соединения — $A_2\ B_4\ C_n\ D_3$: подготовка сырья в узле *A* производительностью *1,* накопление сырья в емкости *1,* химическое превращение в узле *B* производительностью *4,* накопление продукта в емкости *2,* разделение продукта на ректификационной колонне *C* производительностью *n,* накопление продуктов в емкости *3,* очистка выбросов в узле *D* производительностью *3.* В сочетании с принципом главного узла (этому узлу уделяется особое внимание, например, он может быть создан заново) такая схема имеет высокую эффективность. Она особенно хороша, когда есть общий вид математических моделей и необходимо уточнить их параметры (здесь резко возрастает роль методов идентификации).

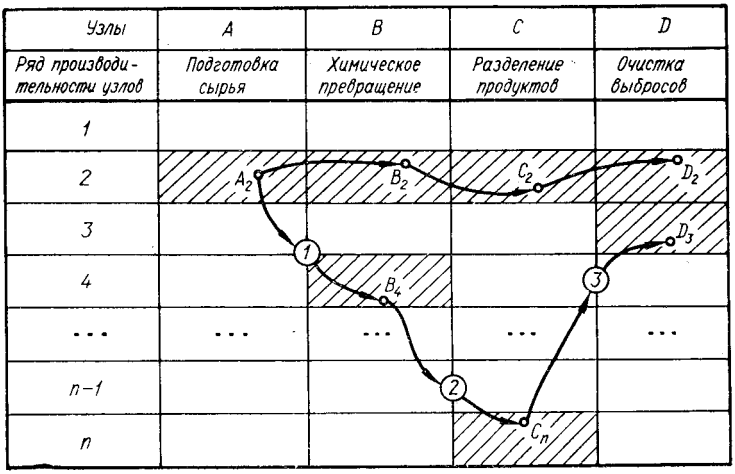


Рис. 3.5. Компромиссная принципиальная логическая схема исследования:

$A_2B_2C_2D_2$ — установка, согласованная по производительности узлов (соединение в схему возможно); $A_2B_4C_nD_3$ — модельная установка, не согласованная по производительности узлов (соединение в схему невозможно); ○ — условная накопительная емкость.

Недостаток модельного компромиссного подхода — отсутствие сведений о технологическом режиме замкнутой схемы (аппараты различной производительности нельзя соединить в схему иначе как последовательно через емкости). Действующие рециклы возможны только в схеме с аппаратами примерно равной производительности. Таким образом, материальные и тепловые балансы технологической схемы с рециклами (замкнутой схемы) можно рассчитать только на этапе проектирования.

Более полная, чем предыдущие ЛСИ, компромиссная логическая схема изображена на рис. 3. 6.

3. 2. 3. Временная и объектная декомпозиция процесса исследования. Выше упоминалось, что процесс анализа объекта исследования строится иерархически и главная его цель — получение информации, достаточной для проектирования. Также известно, что процесс исследования является итерационным — если на последующем этапе обнаружится недостаток информации или ее ошибочность, то исследователь возвращается на предыдущий этап и пополняет или исправляет информацию. Для организации этого итерационного процесса необхо-

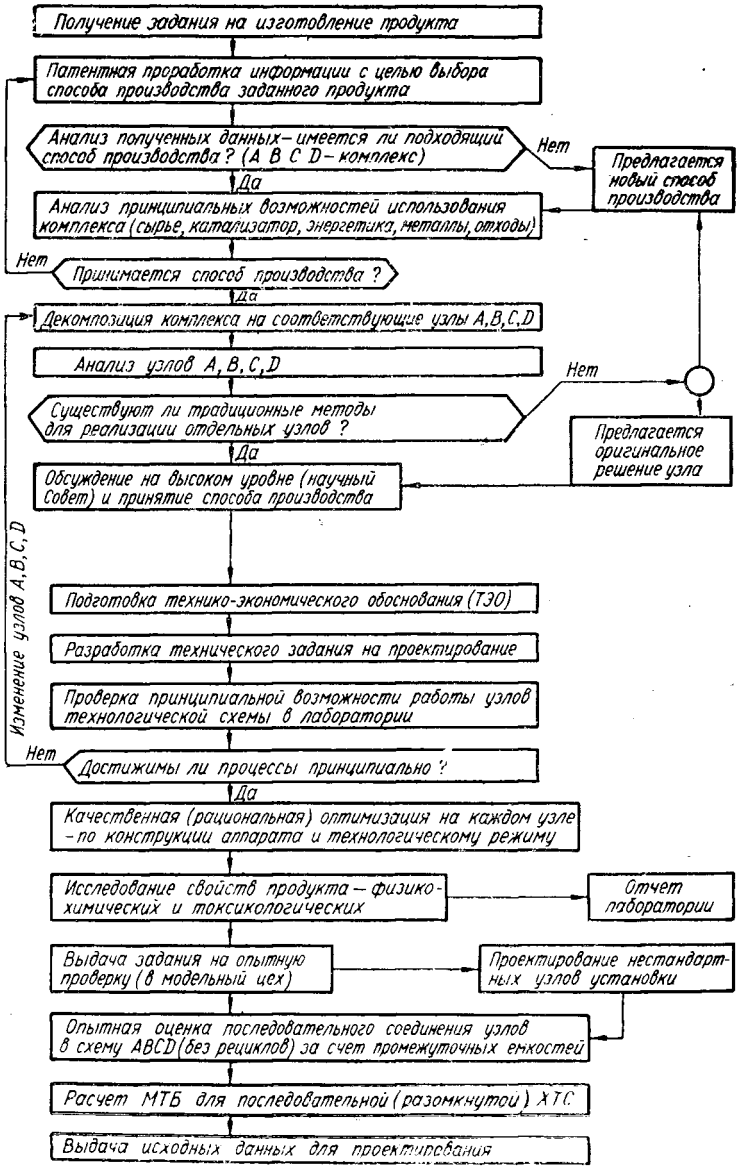


Рис. 3.6. Компромиссная логическая схема исследования.

димо провести декомпозицию как по времени (этапам исследования), так и по объекту исследования (решение этой задачи в общем определяет логическую структуру системы автоматизированного эксперимента).

В предыдущем разделе рассматривалась компромиссная ЛСИ, принятая в некоторых научно-исследовательских институтах. В этой ЛСИ декомпозиция объекта исследования не идет далее узлов технологической схемы. Очевидно, что единых рецептов глубины декомпозиции предложить нельзя. Однако успешная работа системы исследования, включая и ЭВМ, зависит от тщательно аргументированной декомпозиции процесса исследования по времени и по объекту.

Предлагается по времени декомпозировать объект исследования на два этапа: архитектурный А и функциональный Ф. Архитектурный этап предполагает анализ структуры подсистем каждого уровня декомпозиции объекта исследования, функциональный — анализ функционирования подсистем некоторого уровня (или работоспособности подсистем определенной структуры).

По объекту исследования предлагается выделить четыре уровня декомпозиции. Первый уровень, наиболее общий — это уровень объекта (О) исследования в целом. На этом уровне анализируются способ производства заданного продукта, связи его с окружающей средой (рынком, отраслями и т. д.); возможности функционирования производства (изменения, вносимые в окружающую среду выпуском продукта), анализируются сырье, катализаторы, энергетика и т. д.

Второй уровень — это уровень анализа узлов *A, B, C, D* технологического комплекса (ТК), их связей с узлами промышленного здания и системой управления.

Третий уровень — это уровень анализа законов функционирования (ЗФ) процессов в узлах технологического комплекса (технологических аппаратах) в связях этих узлов друг с другом (трубопроводах) и системой управления. Четвертый уровень связан с анализом элементарных законов функционирования в процессах и анализом существующих между явлениями связей. Выделение этого уровня сулит исследователям значительные выгоды, особенно при использовании ЭВМ. Временная и объектная декомпозиция процесса исследования представлена в табл. 3.1.

Таблица 3.1. **Декомпозиция этапов и объектов исследования**

T* / N	А	Ф
О	Анализ связей ТК с окружающей средой (рынком, другими отраслями; предприятием, где будет спроектирован комплекс)	Анализ функционирования ТК (способ производства продукта; анализ сырья, катализатора, энергетики, материала аппаратов, отходов; анализ динамики экономических отношений при сбыте продукта)
ТК	Анализ связей между узлами ТК; узлами и зданием; комплексом и системой управления	Анализ функционирования узлов *A, B, C, D*; узлов здания; открытых площадок, емкостей накопления продуктов, системы управления
ЭФ	Анализ законов функционирования: связей между аппаратами узлов, транспортных связей, управленческих связей (возможна лабораторная проверка)	Анализ функционирования процессов в аппаратах узлов (лабораторный масштабный уровень); исследование свойств продукта и свойств информационных процессов
ЭЭФ	Анализ элементарных законов функционирования — связей между элементарными процессами	Анализ функционирования элементарных процессов с лабораторной проверкой

→ Математические модели

* T — этапы исследования; N — уровни декомпозиции объекта исследования.

Следует отметить, что каждый из предложенных уровней можно декомпозировать еще на несколько. Количество уровней, в конечном счете, определяется конкретным объектом.

На рис. 3. 7 также показано, что процесс исследования всегда заканчивается математическими моделями явлений и связей. Если обозначить индексом d уровни таблицы ($d=1, 2, 3, 4$), а i — этапы ($i=1,2$), то обозначение ячейки будет d_i, и тогда можно утверждать, что система полученных моделей $M\{M^d{}_i\}$ должна соответствовать матрице декомпозиции.

3. 2. 4. Формальное описание процесса исследования. Основная задача формального описания процесса иссле-

дования — получить такую логическую схему, которая позволила бы формальными средствами до окончания всего исследования произвести оценку разрешимости задачи вообще и установить, какие ресурсы понадобятся для достижения поставленной цели (получения математических моделей). Для формализации любой сложной системы в настоящее время используются идеи системного подхода и языки теории множеств, теории графов и, конечно, ЭВМ.

Прежде всего выделим ячейку исследования J — формализованное понятие, включающее ряд элементов и процедур: исходные данные A_j; ограничение C_j; математическую модель M_j (для достижения цели); решающую процедуру T_j; оценку результата исследования K_j; результат исследования (решение) R_j.

Эту явную часть ячейки исследования удобно записывать в виде множеств $\{A_j, C_j, M_j, T_j, K_j, R_j\}$.

Пояснение 1. Следует отличать математическую модель M_j ячейки J, которая предназначена для получения только результата R_j, от математической модели как цели всего процесса исследования.

Пояснение 2. Процедура T только в общем случае является решающей (множество функций цели, значительная неопределенность), а в частном случае — это может быть одним из случаев оптимизации. Например, в ячейке {ЗФ, Ф} декомпозиционной матрицы обычно возникает задача поиска максимального выхода продукта на лабораторной установке, который может быть найден симплекс-методом по регрессионной модели второго порядка, полученной экспериментально.

Явной части ячейки исследования всегда сопутствует ее неявная часть J^1: ресурсы исследования Z_j; затраты на исследование L_j; цели функционирования G_j.

Неявную часть ЯИ можно записать в виде множества $\{Z_j, L_j, G_j\}$. Эта оценка может быть прогностичной (до операций по достижению цели) и итоговой (после проведения исследований).

В каждой ячейке исследования формируются операторы или функциональные отношения F, отображающие одно множество в другое. Для перехода от $(J-1)$- к J-й и далее к $(J+1)$-й ячейке можно записать

$$F_1 : R_{j-1} \longrightarrow \{A_j, C_j\}; \tag{3.20}$$

$$F_2 : R_j \longrightarrow \{A_{j+1}, C_{j+1}\}; \tag{3.21}$$

$$F_2^1: \{Z_j,\ L_j,\ G_j\} \longrightarrow R_j. \tag{3.22}$$

Эта запись читается так. Функциональная система F_1 является отражением результата исследования предыдущей $(J-1)$-й ячейки во множество исходных данных $\{A_j,\ C_j\}$ j-й ячейки. Функциональная система F_2 является отражением результата исследования R_j, являющегося следствием $(A_j,\ C_j,\ M_j,\ T_j,\ K_j)$, во множество исходных данных $\{A_{j+1},\ C_{j+1}\}$ для $(J+1)$-й ячейки. На результат исследования влияет функциональная система F_2^1, представляющая собой отражение множества оценок K_j, зависящего от множества $\{Z_j,\ L_j,\ G_j\}$, во множество результатов исследования R_j.

Функциональные системы $F_1,\ F_2,\ \ldots,\ F_N$ реализуются с помощью натурного эксперимента (как правило, на лабораторной установке, хотя в начальной стадии не исключены и экспертные оценки). Таким образом, исходные данные для каждой последующей системы «добываются» натурным экспериментом (в отличие от процесса проектирования, где они «добываются» математическим экспериментом на модели). Натурный эксперимент дает результаты, отмеченные неопределенностью масштабного перехода, а математический эксперимент — отмеченные неопределенностью-прогноза.

Если считать декомпозиционную матрицу основой для создания ячеек исследования, то в целом исследование можно представить как некоторый итерационный процесс. Например, последовательность

$$F_1: R^{\text{О, А}} \longrightarrow \{A^{\text{О, Ф}},\ C^{\text{О, Ф}}\}; \tag{3.23}$$

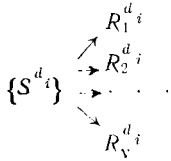
$$F_2: R^{\text{ТК, Ф}} \longrightarrow \{A^{\text{ТК, Ф}},\ C^{\text{ТК, Ф}}\}; \tag{3.24}$$

$$F_3: R^{\text{ТК,Ф}} \longrightarrow \{A^{\text{ТК,А}},\ C^{\text{ТК,А}}\}, \tag{3.25}$$

предполагает переход от анализа функционирования узлов системы к анализу ее связей и наоборот.

Двумерную систему задач исследования можно представить таблицей $\{S^{d\,i}\}$, где $d = $ О, ТК, ЗФ, ЭЗФ; $i = $ А, Ф. Тогда можно предложить две идеализированные системы исследования: $\{S^{d\,1}\} \rightarrow \{S^{d\,2}\}$ — последовательную, декомпозированную только по этапам; $\{S^{1\,i}\} \rightarrow \{S^{2\,i}\}$ — параллельную, декомпозированную только по объекту.

Системные задачи исследования не разрешимы ни по одной из этих идеализированных систем вследствие недостатка информации на предыдущем этапе (более глубокое исследование всегда дает неопределенность), а также вследствие неоднозначности решения при использовании решающей процедуры (альтернативные решения $\nu = 1, 2, \ldots$):



Возможно последовательно-параллельное осуществление процесса исследования:

1. О {А, Ф}⟶ТК {А, Ф} — возможно технико-экономическое обоснование будущего ХТК;

2. ЗФ {А}⟶ЗФ {Ф} — возможно получение упрощенных моделей;

3. ЭЗФ {А}⟶ЗФ{Ф} — возможно получение полных математических моделей.

Изложенное выше позволяет говорить о целесообразности выделения двух систем в исследовании:

а) процедурной, связанной с получением информации (фактически она изложена в матрице декомпозиции);

б) целевой, связанной с получением информации на лабораторной установке.

Последнюю лучше всего представить в виде дерева декомпозиции объекта исследования (рис. 3. 7).

Проведенный анализ позволяет также уточнить общую цель исследования. Следует выделить две разновидности целей:

Цель I, характерная для научного фундаментального познания,— это создание математических моделей без учета схемы производства, которая будет затем синтезироваться. Для этой цели характерно отсутствие итераций в исследовании.

Цель II, характерная для прикладных исследований,— это создание математических моделей для процессов того производства, которое будет создано на новом масштабном уровне. Для ЛСИ здесь характерны итерационные процессы (уточняются состав процессов, законы их функционирования и архитектура).

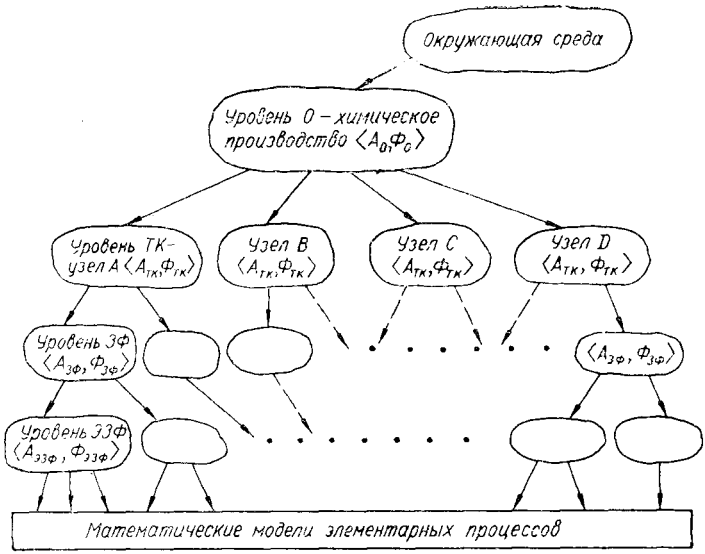


Рис. 3.7. Дерево декомпозиции объекта исследования.

3. 2. 5. Выделение основных целей процесса исследования. Предложенные выше уровни декомпозиции как объекта исследования, так и этапов его исследования можно разделить еще на несколько подуровней. Количество уровней, как уже указывалось, определяется стоящим перед исследователем конкретным объектом. Однако цели исследования в химической технологии достаточно четко определены и могут быть выделены и отнесены к некоторому инварианту (неизменной части процесса исследования). Одновременно рассматриваются методы (или алгоритмы), позволяющие достичь выделенных целей.

Цель 1 — сбор априорной информации о методе производства заданного продукта, условиях проведения технологических процессов, основных показателях технологии в целом и ее узлов.

Эта цель достигается без лабораторного натурного эксперимента. Исследователи проводят литературный и патентный обзор, т. е. анализируют имеющиеся в их распоряжении данные. Оценивают существующие или аналогичные способы производства заданного продукта, анализируют узлы схемы. Методы исследования — обыч-

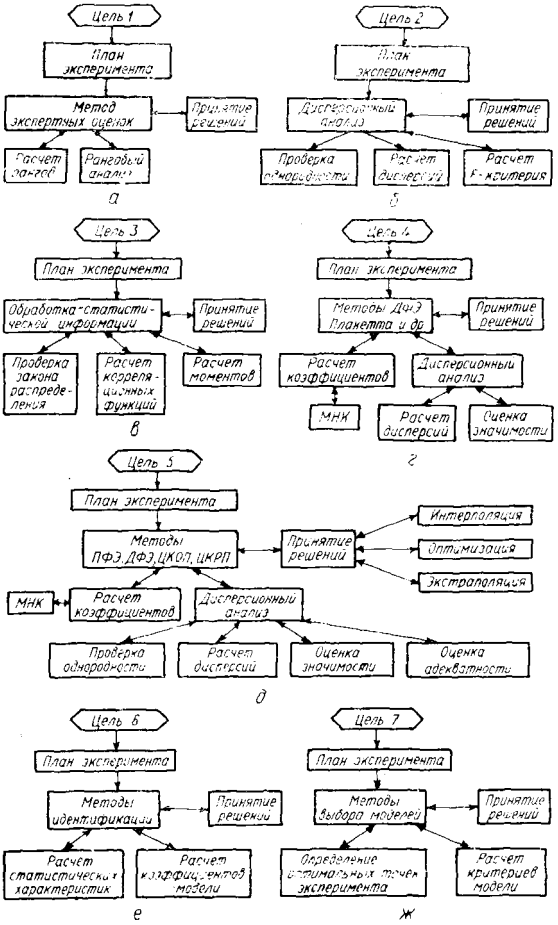


Рис. 3.8. Схемы реализации целей в процессе исследования технологических систем.

но экспертные оценки, в частности, метод ранговой корреляции (рис. 3. 8, *а*).

Системные элементы ячейки исследования для достижения цели 1 представлены в табл. 3. 2.

Цель 2 — выбор факторов технологического комплекса. Прежде всего это выбор сырья и катализаторов, определяющих выход заданного продукта, и затем выбор режимных переменных технологического комплекса.

Таблица 3.2. **Системные элементы достижения цели 1**

Элементы ЯИ[1]	Содержание элементов
A_1, C_1 — исходные данные и ограничения	Потребности народного хозяйства в продукте и промышленные возможности его получения
M_1 — математическая модель	Модель экспертных оценок, план постановки экспертиз и обработка результатов (усредненная оценка экспертов)
T_1 — решающая процедура	При согласованности оценок экспертов принимается их усредненная оценка или используется мнение главного руководителя исследований
R_1 — результаты исследования	Способ производства, узлы производства, список возможного сырья и катализаторов; энергетические решения, материалы аппаратов, использование отходов
K_1 — оценка результатов исследования	Используются технико-экономические показатели объекта исследования и процесса исследования с точки зрения ресурсов, затрат и достижения цели

[1] ЯИ — ячейка исследования.

Цель достигается постановкой экспериментов на лабораторной установке. Задача решается методами дисперсионного анализа или с применением планирования по схеме латинских квадратов. Схема реализации этой цели изображена на рис. 3. 8, *б,* а системные элементы процесса ее достижения приведены в табл. 3. 3. Заметим, что режимные факторы выбираются исследователем по аналогии с другими производствами, возможен анализ экспертных оценок.

Цель 3 — получение предварительной информации о переменных технологического процесса.

Для достижения этой цели используются малые выборки «настроечных» опытов, которые проводились при реализации цели 1, либо были специально поставлены (обычно информацию получают пассивно, наблюдением). Задача решается методами математической статистики и теории случайных функций. Находятся математические ожидания, дисперсии (моменты) переменных, их интервальные оценки; оценивается закон распределения и рассчитываются коэффициенты корреляции переменных;

Таблица 3.3. **Системные элементы достижения цели 2**

Элементы ЯИ	Содержание элементов
A_2, C_2	Задан способ производства продукта и составляющие его технологические узлы; есть перечень типов сырья и катализаторов; имеются режимные переменные
M_2	Модели дисперсионного анализа, различные планы его реализации
T_2	Соответствие статистическому критерию Фишера с учетом мнения исследователя
R_2	Сырье и катализаторы, дающие наибольший выход продукта, и режимные переменные
K_2	Оценка технико-экономических показателей, полученных результатов — сырья и катализаторов, а также оценка стоимости операций по достижению цели

оцениваются стационарность, эргодичность случайных функций, рассчитываются корреляционные функции и др. Схема реализации этой цели изображена на рис. 3.8, *в*. Системные элементы достижения цели приведены в табл. 3. 4.

Таблица 3.4. **Системные элементы достижения цели 3**

Элементы ЯИ	Содержание элементов
A_3, C_3	Задан способ производства, сырье, катализатор; имеется лабораторная установка, на которой получены малые выборки пассивной информации
M_3	Модели математической статистики и теории случайных функций и постановка пассивного плана эксперимента
T_3	Принятие решений по статистическим критериям
K_3	Количественные нормы статистических критериев (t-критерий, критерий Пирсона и др.)
R_3	Все статистические оценки переменных, оценка динамики объекта и связей между переменными

Цель 4 — отсеивание факторов.

В числе факторов, предложенных для отсеивания, могут быть и дискретные, и непрерывные. Цель достигается постановкой экспериментов на лабораторной установке.

Задача решается методами экспертных оценок, планов дробного факторного эксперимента и Плакетта — Бермана, методом случайного баланса. Планы строятся по критерию минимального числа опытов. Схема реализации цели 4 изображена на рис. 3.8, *г*, а системные элементы — в табл. 3.5.

Таблица 3.5. **Системные элементы достижения цели 4**

Элементы ЯИ	Содержание элементов
A_4, C_4	Лабораторная установка, список факторов, их статистические оценки
M_4	Модели разделения факторов на значимые, относящиеся к «шумовому» фону, модели линейной регрессии и планы эксперимента по их получению
T_4	Принятие решений на основе статистических критериев
K_4	Количественные нормы статистических критериев (обычно t-критерий)
R_4	Факторы, существенно влияющие на выходную переменную; области существования факторов, интервалы варьирования, оценочное число параллельных опытов

Цель 5 — интерполяция, экстраполяция и оптимизация по математическим моделям полиномиального вида первого, второго и более высоких порядков. Наиболее подробно эта цель и ее достижение рассмотрены в [24]. Пользуясь классификацией, приведенной в упомянутой книге, рассмотрим несколько подцелей этой цели (схема реализации цели 5 изображена на рис. 3.8, *д*, а системные элементы в табл. 3.6).

Цель 5а — интерполяция результатов исследования. Если область эксперимента достаточно мала, то можно использовать линейную модель (1.97), в противном случае используется нелинейная модель, например, (1.157). Задача математически формулируется так: имеется вектор факторов $\boldsymbol{X}$ и выходная переменная объекта y; область эксперимента — $A \leqslant X_3 \leqslant B$; необходимо найти интерполяционное значение $y_и$ по $X_и \in X_3$. Задача решается постановкой ряда опытов по планам ПФЭ, ДФЭ, ЦКОП, ЦКРП, Шеффе, обработкой результатов в соответствии с приведенными в гл. 1 алгоритмами и определением $X_и$.

Таблица 3.6. **Системные элементы достижения цели 5**

Элементы ЯИ	Содержание элементов
A_5, C_5	Лабораторная установка; список переменных, существенно влияющих на ее работу, их характеристики
M_5	Математические модели полиномиального вида первого, второго и более высоких порядков и планы эксперимента по их получению
T_5	Принятие решений на основе статистических критериев
K_5	Количественные нормы статистических критериев (обычно t- и F-критерии, критерий Кохрена)
R_5	Интерполяционное и экстраполяционное значения выходной переменной, экспериментальное значение, частный и локальный оптимум функции цели; минимальные ресурсы объекта исследования

Цель 5б — экстраполяция результатов исследования. Условия те же, что и в предыдущем опыте, но ищется экстраполяционное значение $y_и$ по $X_и \in X_э$, т. е. по значениям факторов, лежащим вне области эксперимента. Задача решается упомянутыми выше методами (см. цель 5*а*). Здесь часто используется каноническое преобразование модели и требуется обязательная экспериментальная проверка $y_и$*.

Цель 5в — получение экстремума функции цели в области эксперимента. Для достижения этой цели могут использоваться как линейная, так и нелинейная модели, которые получаются уже упоминавшимися при достижении цели 5*а* планами эксперимента. Задача решается методом линейного программирования (по линейной модели) или любым нелинейным методом (симплексным, методом Гаусса, ридж-анализом и др.). Решение $y_{опт}$ находится либо в области эксперимента $X_{опт} \in X_э$, либо на границе области.

Цель 5г — получение частного и локального оптимумов объекта исследования. Для достижения этой цели чаще всего используется линейная модель, полученная по планам ПФЭ (ДФЭ). Частный (промежуточный) оптимум и локальный (один из возможных оптимумов объекта исследования по области существования факторов) обычно находят одним из поисковых методов оптимизации, например, методом крутого восхождения. Поиск

осуществляется за пределами области эксперимента. Полученное $y_{опт}$ обязательно уточняется экспериментально.

Цель 5д — минимизация ресурсов объекта исследования. Эта цель достигается решением задачи, обратной цели 5в: находят $X_{i\,min}$ при заданном y. Модель может быть как линейной, так и нелинейной. При решении задачи возможны различные варианты: стабильны все факторы X_i, кроме одного, который и нужно минимизировать; стабильны все факторы X_i, кроме двух, один из которых должен быть минимизирован, а для другого — допускается полный расход ресурса ($X_j = -1$); переменны все факторы X_i, сумму которых необходимо минимизировать. Часто задача решается графоаналитическими методами.

Цель 6 — получение математических моделей объекта исследования. Достижение этой цели осуществляется неформальным (и, по-видимому, неформализуемым) предложением вида (класса) математической модели исследуемого процесса исходя из имеющейся у исследователя информации, его творческого мышления и интуиции. Чаще всего модель предлагается в виде (2.55). Необходимо по результатам наблюдения (или по плану) за $y(t)$, $u(t)$ найти вектор параметров $A(t)$. Задача решается методами идентификации (один из них приведен в 1.11). В результате получают численные оценки параметров $A(t)$, т. е. собственно математическую модель объекта в заданном классе моделей (см. рис. 3.8, *е* и табл. 3.7).

Таблица 3.7. **Системные элементы достижения цели 6**

Элементы ЯИ	Содержание элементов
A_6, C_6	Оптимальные переменные объекта исследования, вид математической модели процессов объекта, лабораторная установка
M_6	Математические модели идентификации
T_6	Принятие решений об адекватности моделей, учет априорной информации и экспериментальная проверка
R_6	Количественные оценки параметров математической модели (математическая модель объекта)

Цель 7 — отсеивание (дискриминация) математических моделей. Достижение этой цели возможно двумя комплексами операций:

1) постановкой эксперимента в некоторой области $A \leqslant X_9 \leqslant B$; расчетом параметров для конкурирующих моделей по этим опытам; прогнозом значений y по всем моделям для некоторого шага факторов в области эксперимента; расчетом критерия (Рота, Бокса и Хилла и др.), характеризующего различие в моделях; постановкой следующего опыта в той точке факторного пространства, где различие между моделями было наибольшим; включение этой точки в массив данных и повторение всех операций до тех пор, пока значение критерия не будет изменяться;

2) расчетом критериев математической модели (сумм квадратов отклонений, функций максимума правдоподобия, байесовой оценки); анализом этих критериев и принятием решений по выбору наилучшей в смысле применявшегося критерия модели. Таким образом, задача дискриминации модели решается последовательным поиском наилучшей точки экспериментальной области, где различие между моделями наибольшее, и расчетом в этой точке некоторых критериев моделей, по которым судят об их пригодности (см. рис. 3.8, *ж*, табл. 3.8).

Таблица 3.8. **Системные элементы достижения цели 7**

Элементы ЯИ	Содержание элементов
A_7, C_7	Несколько математических моделей для одного объекта исследования и возможность постановки экспериментов на лабораторной установке
M_7	Модели определения максимального различия между математическими моделями и модели их дискриминации
T_7	Принятие решений по специальным критериям
K_7	Количественные оценки специальных критериев дискриминации
R_7	Одна, наилучшая в смысле применявшихся критериев, математическая модель объекта исследования

В результате получают одну математическую модель (модели) объекта исследования, которую и используют при проектировании химико-технологического комплекса.

Глава 4

ПРИМЕРЫ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ПЛАНОВ ЭКСПЕРИМЕНТА ДЛЯ РЕШЕНИЯ ОТДЕЛЬНЫХ ЗАДАЧ ХИМИЧЕСКОЙ ТЕХНОЛОГИИ

Введение. В этой главе приведены примеры использования методов планирования эксперимента для решения разнообразных задач химической технологии. Особенностью этих примеров является то, что методы используются для решения частных задач, не связанных в технологическую или логическую систему.

Вследствие того, что алгоритм полного и дробного факторного эксперимента, ортогональные и ротатабельные планы широко представлены в системных задачах (см. гл. 5), в данной главе задачи с их применением не приводятся.

4.1. Применение плана однофакторного дисперсионного анализа

Введение. Дисперсионный анализ широко применяется в задачах химической технологии как составная часть факторного анализа, а также как основной инструмент при решении задач влияния качественных факторов, меняющихся дискретно, на некоторую переменную исследуемого процесса. Ниже рассмотрены примеры автономного использования дисперсионного анализа по схемам, изложенным в 1. 1.

4. 1. 1. Задача исследования активности катализатора в зависимости от способа его получения. Катализатор для химической реакции получали четырьмя различными способами, которые соответствовали $p=4$ уровням фактора A. В эксперименте измерялась активность катализатора, которая выражалась некоторой величиной y. Для каждого уровня было сделано по одинаковому числу ($m_i=5$) измерений. Необходимо проверить независимость качества катализатора (его активности) от способа получения. Измерение значения активности катализатора в некоторых условных единицах приведены в табл. 4. 1. В этой же таблице приведены средние, рассчитанные по формулам (1.4) и 1.5). В табл. 4.2 приведены результаты рас-

Таблица 4.1. **Результаты эксперимента при однофакторном дисперсионном анализе**

i \ j	Параллельные опыты 1	2	3	4	5	Σ	$\bar{y}_i$
Уровни фактора A							
1	56	55	62	59	60	292	58,4
2	64	61	50	55	56	286	57,2
3	45	46	45	39	43	218	43,6
4	42	39	45	43	41	210	42,0
						$\Sigma\Sigma = 1006$	$\bar{y} = 50,3$

Таблица 4.2. **Расчеты для оценки однородности дисперсий**

i \ j	Параллельные опыты 1	2	3	4	5	S_i	s_i^2 ($f_i = 3$)
Уровни фактора A							
1	$2,4^2$	$3,4^2$	$3,6^2$	$0,6^2$	$1,6^2$	33,20	11,07
2	$6,8^2$	$3,8^2$	$7,2^2$	$2,2^2$	$1,2^2$	118,80	39,60
3	$1,4^2$	$2,4^2$	$1,4^2$	$4,6^2$	$0,6^2$	31,20	10,40
4	0^2	3^2	3^2	1^2	1^2	20,00	6,66
						$\bar{S}_R = 203,20$	$\Sigma = 67,72$

четов для оценки однородности дисперсий, рассчитанные по формулам (1.9) и (1.17). Если учесть, что $s_i^2{}_{\max} = 39,60$, то по формуле (1.18)

$$G_p = \frac{39,60}{67,72} = 0,585,$$

и по условию (1.19) (см. приложение 7)

$$G_p < G_т = 0,6841 \qquad (f_1 = 4 - 1 = 3, \quad f_2 = 4, \quad q = 0,05).$$

Вывод: дисперсии однородны.

Результаты расчета сумм квадратов отклонений и дисперсий по формулам (1.6) — (1.16) сведены в табл. 4. 3.

Таблица 4.3. **Результаты расчетов при однофакторном дисперсионном анализе**

Источник изменчивости	Расчетные формулы и значения			
	S	f	s^2	F
Между уровнями фактора	$S_A = 1135{,}0$	$f_A = 4-1=3$	$s_A^2 = 378{,}3$	$F_p = 29{,}8$
Внутри уровней фактора	$S_R = 203{,}2$	$f_R = 4(5-1) = 16$	$s_R^2 = 12{,}7$	
	$S_{ост} = 1338{,}2$	$f_{ост} = 4 \cdot 5 - 1 = 19$		

Расчетное значение критерия Фишера оказывается большим табличного (см. приложение 5):

$$F_p = 29{,}8 > F_т = 3{,}24 \qquad (f_A = 3,\ f_R = 16,\ q = 0{,}05).$$

Таким образом, влияние фактора A превышает уровень ошибок опытных данных, или на качество катализатора влияют способы его получения.

4.2. Применение плана двухфакторного дисперсионного анализа

4. 2. 1. Задача исследования конверсии процесса радикальной полимеризации. Исследовалось влияние на процесс радикальной полимеризации двух факторов: A — тип растворителя на уровнях (a_1, a_2, a_3, a_4) и B — тип галоидных алкилов (b_1 — CH_3, b_2 — C_3H_7, b_3 — C_4H_9, b_4 — C_2H_5Br). Выход полимера в процентах представлен в табл. 4. 4.

Рассчитанные по формулам (1.24), (1.25), (1.26) средние и формулы расчета сумм квадратов отклонений (1.27), (1.28), (1.29), использованы для заполнения табл. 4. 5. Отсюда можно сделать вывод, что при уровне значимости $q=0{,}05$ ($F_{pA} < F_т$ и $F_{pB} < F_т$) факторы A и B не влияют на выход полимера. Если исследователи сомневаются в правильности сделанного вывода, то можно дополнительно провести опыты и, изменив схему дисперсионного анализа, произвести новые расчеты. Для рассмотренной здесь задачи проведены параллельные опыты и окончательный

Таблица 4.4. **Результаты эксперимента при двухфакторном дисперсионном анализе**

	Уровни фактора B				Средние по строкам
	b_1	b_2	b_3	b_4	
Уровни фактора A					
a_1	13,2	18,9	7,3	20,0	59,4 : 4 = 14,85
a_2	4,7	19,8	38,2	60,1	122,8 : 4 = 32,20
a_3	53,4	14,0	5,1	19,6	92,1 : 4 = 23,02
a_4	13,6	9,5	54,4	58,2	135,7 : 4 = 33,92
	$\frac{84,9}{4} = 21,2$	$\frac{62,2}{4} = 15,6$	$\frac{105,0}{4} = 26,3$	$\frac{157,9}{4} = 39,5$	$\frac{410,0}{16} = 25,6$

Таблица 4.5. **Расчеты по схеме двухфакторного анализа**

Источники изменчивости	Расчетные формулы и значения			
	S	f	s^2	F
Фактор A	$S_A = 1273,00$	$f_A = 3$	424,33	$F_{pA} = 1,34$
Фактор B	$S_B = 1994,00$	$f_B = 3$	664,66	$F_{pB} = 2,11$
Ошибка опыта	$S_R = 2829,00$	$f_R = 9$	314,33	$F_т = 3,86$
	$S_{ост} = 6096,22$	$f_{ост} = 15$		

результат изменился — факторы A и B оказались значимыми. По-видимому, невысокая воспроизводимость опытов сильно влияет на результат исследования.

4.3. Применение дисперсионного анализа с использованием схемы латинского квадрата

4. 3. 1. Задача исследования процесса радикальной полимеризации. Решалась та же задача, что и в 4. 2. 1. Однако предполагалась оценка кроме фактора A (типа галоидного алкила на уровнях a_1, a_2, a_3, a_4) и фактора B (типа растворителя на уровнях b_1, b_2, b_3, b_4) еще и фактора C — отношения количества мономера к растворителю. Дисперсионный анализ трех факторов по схеме

латинского квадрата, как известно, более экономичен по числу опытов, чем трехфакторный дисперсионный анализ.

Эксперимент проводился без повторных опытов. Требовалось оценить влияние факторов A, B и C на выход полимера. Результаты эксперимента представлены в табл. 4. 6.

Таблица 4.6. **Результаты реализации трехуровневого латинского квадрата**

Уровни фактора A	Уровни фактора B								Средние по строкам
	b_1		b_2		b_3		b_4		
a_1	c_1	13,2	c_2	2,7	c_3	49,1	c_4	7,2	72,2
a_2	c_2	19,0	c_3	8,0	c_4	15,5	c_1	9,5	52,0
a_3	c_3	4,6	c_4	5,9	c_1	31,5	c_2	53,1	95,1
a_4	c_4	14,7	c_1	16,3	c_2	60,9	c_3	55,2	147,1
Средние по столбцам	51,5		32,9		157,0		125,0		Общее среднее $G=$ $=366,4$

Расчет итогов по строкам и столбцам (формулы (1.43), (1.44)) включен в табл. 4. 6. Итоги по латинской букве рассчитывались по формуле (1.45):

$$c_1 = 70,5; \quad c_2 = 135,7; \quad c_3 = 116,9; \quad c_4 = 43,3.$$

Расчет сумм квадратов (по формулам (1.46) — (1.50)):

$$S_1 = 13,2^2 + 2,7^2 + \ldots + 55,2^2 = 14\,505,14;$$

$$S_2 = \frac{1}{4}(72,2^2 + \ldots + 147,1^2) = 9649,82;$$

$$S_3 = \frac{1}{4}(51,5^2 + \ldots + 125,0^2) = 11\,002,16;$$

$$S_4 = \frac{1}{4}(70,5^2 + \ldots + 43,3^2) = 9731,31:$$

$$S_5 = \frac{1}{4^2}(366{,}4)^2 = 8390{,}56.$$

Расчет сумм квадратов (по формулам (1.51)—1.55)):

$S_A = 1259{,}26$ для строки;

$S_B = 2611{,}60$ для столбца;

$S_C = 1340{,}75$ для элементов;

$S_{\text{общ}} = 6114{,}58$ общая;

$S_{\text{ост}} = 902{,}97$ остаточная.

Расчет дисперсий (по формулам (1.56) — (1.59)):

$$s_A^2 = \frac{1}{3} \cdot 1259{,}26 = 419{,}75 \text{ фактора } A;$$

$$s_B^2 = \frac{1}{3} \cdot 2611{,}60 = 870{,}53 \text{ фактора } B;$$

$$s_C^2 = \frac{1}{3} \cdot 1340{,}75 = 446{,}92 \text{ фактора } C;$$

$$s_0^2 = \frac{1}{(4-1)(4-2)} 902{,}97 = 150{,}5 \text{ ошибка опыта.}$$

Оценка дисперсий проводится по формулам (1.60):

$$F_{pA} = s_A^2 / s_0^2 = 419{,}75/150{,}5 = 2{,}789;$$

$$F_{pB} = s_B^2 / s_0^2 = 870{,}0/150{,}5 = 5{,}78;$$

$$F_{pC} = s_C^2 / s_0^2 = 446{,}92/150{,}5 = 2{,}97.$$

Табличное значение критерия Фишера $F_т = 4{,}76$ ($f_1 = 3$, $f_0 = 6$, $q = 0{,}05$), т. е. следует признать влияние факторов A и C (тип галоидного алкила и отношение количеств мономера и растворителя) несущественным. На процесс влияет только фактор B (тип растворителя).

4.4. Использование алгоритмов отсеивания для выделения существенных факторов

Введение. Исследуемые объекты, как правило, характеризуются большим числом факторов, влияющих на выходную переменную. Однако степень их влияния неодинакова. В зависимости от поставленной цели (оптимиза-

ция, моделирование и пр.) часть факторов может влиять существенно, а часть — несущественно. Ниже рассмотрены задачи химической технологии, в которых алгоритмы, описанные во второй главе, используются для отсеивания несущественных с точки зрения поставленной цели факторов.

4. 4. 1. Выбор факторов в схеме хлорирования спирта. Система технологических аппаратов колонна — холодильник определяется в первом приближении выходной переменной — плотностью продукта и шестью факторами: x_1 — расходом хлора; x_2 — расходом воды, поступающей в колонну; x_3 — расходом флегмы; x_4 — температурой в колонне; x_5 — уровнем в колонне; x_6 — расходом воды, поступающей в холодильник.

Необходимо, используя результаты опроса экспертов, выделить существенные и несущественные факторы. Мнения четырех экспертов приведены в табл. 4.7 (число экспертов уменьшено с целью упрощения примера).

Таблица 4.7. **Результаты экспертиз**

Номер эксперта	Ранги						$t_v^3 - t_v$	T_i
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6		
1	1,5	5,0	1,5	4,0	3,0	6,0	$2^3 - 2 = 6$	0,5
2	2,0	3,0	1,0	4,5	4,5	6,0	$2^3 - 2 = 6$	0,5
3	2,0	3,0	1,0	5,5	5,5	4,0	$2^3 - 2 = 6$	0,5
4	1,5	3,5	1,5	5,0	3,5	6,0	$(2^3 - 2 + 2^3 - 2) = 12$	1,0
Σa_{ij}	7	14,5	5	19	16,5	22		
d_j	−7	0,5	−9	5	2,5	8	$S'(d_j)^2 = 225,5$	$\Sigma T_i = 2,5$
d_j^2	49	0,25	81	25	6,25	64		

Общее среднее рассчитывают по формуле (1—67)

$$a = \frac{1}{2} \cdot 4(6 + 1) = 14.$$

Результаты расчета отклонений d_j и квадратов отклонений d_j^2 по формулам (1.68) и (1.69) также приведены в табл. 4. 7. Показатель дробных рангов T_i рассчитывался по формуле (1.72). Поскольку используются дробные

ранги, коэффициент конкордации рассчитывался по формуле (1.74)

$$W_p = \frac{225{,}5}{\frac{1}{12}\cdot 4^2(216-6)-4\cdot 2{,}5} = 0{,}83.$$

Расчет значения χ^2-распределения проведем по формуле (1.75)

$$\chi^2_p = 4(6-1)\cdot 0{,}83 = 16{,}6.$$

Поскольку из приложения $3\ \chi^2_т = 11{,}07$ ($f = n-1 = 6-1 = 5$, $q = 0{,}05$), то $\chi^2_p > \chi^2_т$. Значит, мнения экспертов согласованы. Можно строить гистограмму ранжирования по $\sum_i a_{ij}$ (см. табл. 4. 7 и рис. 4. 1). Из рисунка видно, что суммы рангов изменяются неравномерно, и поэтому одним из решений может быть признание существенными факторов x_1, x_2, x_3, x_5 и несущественными — x_4, x_6. Однако более осторожный подход требует от исследователя изучения факторов большим количеством экспертов или исследования более тонким или менее субъективным методом (например, методом случайного баланса).

4. 4.2. Выбор факторов при производстве синтетического каучука. С целью оценки правильности предварительных расчетов по оптимизации производства синтетического каучука, проведен опрос специалистов, работающих на этом производстве. Перечень факторов, предъявленный специалистам, приведен в табл. 4.8.

Задача экспертов — проранжировать 11 факторов по степени их влияния на скорость высыхания крошки каучука.

В табл. 4.9. приведена матрица рангов опроса 18-ти экспертов. Поскольку некоторые эксперты не отдали предпочтения тем или иным факторам и присвоили им

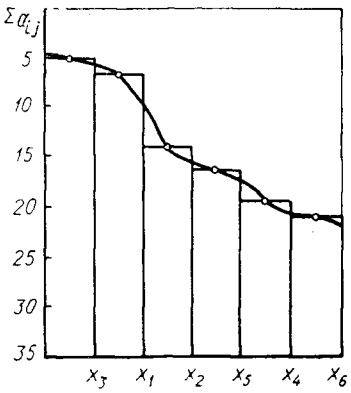


Рис. 4.1. Гистограмма ранжирования факторов в системе хлорирования спирта.

Таблица 4.8. **Перечень факторов для ранжирования**

Номер фактора	Наименование фактора
1	Относительная влажность крошки на входе в сушилку
2	pH в 6-ом аппарате
3	pH в 7-ом аппарате
4	Расход хлорида натрия
5	Расход серума в 6-ом аппарате
6	Расход серума в 7-ом аппарате
7	Температура серума
8	Дефо латекса
9	Процентное содержание масла в каучуке
10	Расход латекса-масла на машину
11	Поверхностное натяжение латекса

одинаковые ранги, матрица была преобразована (табл. 4.10). Смысл получения дробных рангов ясен из расчетов по данным, принадлежащим первому эксперту (первая строка табл. 4. 9).

Таблица 4.9. **Сводная таблица экспертиз**

Номер эксперта	Номер фактора										
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
1	1	2	2	2	3	3	4	1	1	2	4
2	1	8	3	6	11	10	7	2	9	5	4
3	1	4	7	8	6	10	11	3	5	1	9
4	3	8	1	4	8	8	5	8	6	2	7
5	7	9	1	5	6	6	2	8	3	1	4
6	1	1	3	2	2	3	4	1	2	1	4
7	1	1	2	2	2	3	4	1	2	2	4
8	1	2	3	3	3	3	4	2	3	4	4
9	1	3	4	3	4	4	4	2	4	1	2
10	1	4	4	2	4	4	4	3	3	5	6
11	2	5	5	6	7	7	7	3	4	1	8
12	2	1	4	3	2	6	1	1	3	1	3
13	3	2	5	4	5	6	2	1	3	3	4
14	3	2	4	2	6	7	5	1	4	1	8
15	2	1	9	5	7	8	10	3	4	6	2
16	1	5	3	5	6	6	6	2	4	1	5
17	1	4	10	9	7	8	6	2	5	3	11
18	4	4	2	3	5	5	5	1	3	5	6

Таблица 4.10. **Преобразованная матрица рангов**

Номер эксперта	Номер фактора											
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	
1	2,0	5,5	5,5	5,5	8,5	8,5	10,5	2,0	2,0	5,5	10.5	3, 4, 2, 2
2	1,0	8,0	3,0	6,0	11,0	10,0	7,0	2,0	9,0	5,0	4,0	0
3	1.0	4,0	7,0	8,0	6,0	10,0	11,0	3,0	5,0	2,0	9,0	0
4	3,0	9.0	1,0	4,0	9,0	9,0	5,0	9,0	6.0	2,0	9,0	5
5	9.0	11,0	1,5	6,0	7,5	7,5	3,0	10,0	4.0	1,5	5,0	2, 2
6	2,5	2,5	8,5	6,0	6,0	8,5	10,5	2,5	6,0	2,5	10,5	4, 2. 3,2
7	2,0	2,0	6,0	6,0	6,0	9,0	10,5	2,0	6,0	6,0	10,5	3, 5, 2
8	1,0	2,5	6,0	6,0	6,0	6,0	10,0	2,5	6,0	10,0	10,0	2, 5, 3
9	1,5	5,5	9,0	5,5	9,0	9,0	9,0	3,5	9,0	1,5	3,5	2, 2, 2,5
10	1,0	7,0	7,0	2,0	7,0	7,0	7,0	3,5	3,5	10,0	11,0	2,5
11	2,0	5,5	5,5	7,0	9,0	9,0	9,0	3,0	4,0	1,0	11,0	2, 3
12	2,5	2,5	10,0	8,0	5,5	11,0	2,5	2,5	8,0	2,5	8,0	4, 2, 3
13	5.0	2,5	9,5	7,5	9,5	11,0	2,5	1,0	5,0	5,0	7,5	3, 2, 2, 2
14	5.0	3,5	6,5	3,5	9,0	10,0	8,0	1,5	6,5	1,5	11,0	2, 2, 2
15	2,0	1,0	9,0	5,0	7,0	8,0	10,0	3,0	4,0	6,0	11,0	0
16	1,5	7,0	4,0	7,0	10,0	10,0	10,0	3,0	5,0	1,5	7,0	2, 3, 3
17	1,0	4 0	10,0	9,0	7,0	8,0	6,0	2,0	5,0	3,0	11,0	0
18	5,5	5,5	2,0	3,5	8,5	8,5	8 5	1,0	3,5	8,5	11,0	2, 2, 4
Σa_{ij}	51,5	88,5	111,0	105,5	141,5	160,0	140,0	57,0	97,5	75,0	160,5	$\Sigma T_i = 108$
d_j	56,5	19,5	3,0	2,5	33,5	52,0	32,0	51,0	10,5	33,0	52,5	
d_j^2	192,25	380,25	9,00	6,25	122,25	2704,00	1024,00	2601,00	110,25	1089,00	2756,25	$S(d_j^2) =$ $=10\,994$

Факторы 1, 8, 9 занимают места 1, 2, 3, т. е. их ранг (1+2+3) /3=2; факторы 2, 3, 4, 10 занимают места 4, 5, 6, 7, т. е. их ранг (4+5+6+7) 4/=5,5; и далее — (8+ +9) /2=8,5, (10+11) /2=10,5. Расчеты проводились в соответствии с алгоритмом 1. 2. 1

$$W_{\text{р}} = \frac{10\,994{,}0}{\frac{1}{12}\cdot 18^2\cdot 11\cdot 120 - \frac{1}{12}\cdot 18\cdot 1194} = 0{,}324;$$

$$\chi^2_{\text{р}} = 18\cdot 10\cdot 0{,}324 = 58{,}32;$$

$$\chi^2_{\text{т}} = 25{,}188 \qquad (f = 11 - 1 = 10, \quad q = 0{,}005).$$

Поскольку $\chi^2_{\text{р}} > \chi^2_{\text{т}}$, то принимается гипотеза о согласованности мнений экспертов. В результате анализа получено, что первые шесть мест заняли факторы 1, 8, 10, 2, 9, 4. Такое ранжирование факторов отличалось от полученного в предварительных исследованиях (ранее фактор «относительная влажность» вообще не учитывался). Новое разделение факторов на существенные и несущественные должно быть учтено при аналогичных исследованиях и проектировании новых производств.

4.1.3. Выбор типа сорбента по экспертным оценкам. Решалась задача выбора сорбента для извлечения ртути из отработанной серной кислоты. Для очистки отработанной серной кислоты могут быть использованы пять типов сорбентов — КУ-2 (y_1), ДК-3 (y_2), АВ-17 (y_3), АН-20 (y_4) и оксигидрид кремния (y_5). Каждый сорбент оценивается по 10-ти основным свойствам: полной обменной емкости (x_1), рабочей области pH (x_2), рабочей области температур (x_3), селективности (x_4), простоте выделения ртути (x_5), набуханию (x_6), удельной поверхности (x_7), механической прочности (x_8), химической стойкости (x_9), стоимостной характеристике (x_{10}).

От предыдущих задач эта отличается тем, что необходимо двойное ранжирование — и сорбентов и их свойств. Суммарная ранжировка свойств используется для расчета весов, которые в свою очередь используются для оценки типа сорбента.

Использовалась информация четырех экспертов. В табл. 4. 11 приведены ранги, присвоенные экспертами каждому свойству, а также значения суммарных рангов и квадратов отклонений от среднего $a=22$. Коэффициент

Таблица 4.11. **Ранжирование факторов и расчеты**

Номер эксперта	Ранги				
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5
1	1	5	4	2	7
2	1	8	9	2	5
3	2	7	8	1	5
4	1	6	7	2	5
Σa_{ij}	5	26	28	7	22
d_j	—17	4	6	—15	0
d_j^2	289	16	36	225	0
V_q	0,1852	0,0785	0,0616	0,1770	0,1008

Номер эксперта	Ранги				
	x_6	x_7	x_8	x_9	x_{10}
1	8	9	6	3	10
2	10	6	3	7	4
3	10	3	6	4	9
4	10	9	4	3	8
Σa_{ij}	38	27	19	17	31
d_j	16	5	—3	—5	9
d_j^2	256	25	9	25	81
V_q	0,0185	0,0747	0,1156	0,1258	0,0543

конкордации $W_p = 0{,}741$ в соответствии с требованием (1.75) свидетельствует о согласованности мнений экспертов относительно важности свойств сорбентов. Полученная в табл. 4.11 суммарная ранжировка используется для получения весовых коэффициентов свойств по формуле

$$V_q = V_0 + \frac{y_q - y_0}{y_s - y_0}(V_s - V_0),$$

где V_5, y_5; V_0, y_0 — соответственно веса и суммарные ранги наиболее и наименее важного свойства.

Согласованность мнений группы экспертов относительно ранжирования типа сорбента по каждому свойству оценивалась на основании анкет с помощью коэффициента согласия W_p (см. (1.73)). В табл. 4.12 приведены суммарные ранги пяти типов сорбентов для каждого из

Таблица 4.12. **Матрица суммарных рангов**

Свойства сорбента	Ранги					Коэффициент согласия W_p	Критерий χ^2_p
	y_1	y_2	y_3	y_4	y_5		
x_1	17	1	7	11	6	0,759	12,00
x_2	1	9	7	14	5	0,710	11,36
x_3	8	6	16	13	17	0,463	7,40
x_4	19	16	8	12	5	0,100	13,00
x_5	19	16	8	12	5	0,100	13,00
x_6	13	11	10	15	4	0,500	8,00
x_7	14	17	6	7	14	0,500	9,40
x_8	14	14	10	15	7	0 305	5,00
x_9	15	17	14	6	8	0,565	9,00
x_{10}	7	10	13	16	14	0,305	5,00

10-ти свойств и соответствующие им коэффициенты согласия. Оценка значимости с достаточной степенью точности может быть проведена по χ^2-критерию (1. 75). Для 10%-ного уровня значимость и числа степеней свободы $f=4$, $\chi^2_p = 7{,}78$. Таким образом, существует согласованность во мнениях экспертов по семи из десяти свойств, что можно считать удовлетворительным результатом.

Суммарная взвешенная ранжировка сорбентов определяется в результате расчета произведения вектора-строки $\mathbf{V}_q$ на матрицу суммарных рангов $\mathbf{A}$:

$$\|a_i\| = VA, \quad (i = 1, 2, \ldots, n; \quad n = 5)$$

или

$$a_i = \sum_{q=1}^{k} \sum_{j=1}^{m} V_q a^j_{qi};$$

$$q = 1, 2, \ldots, k, \; k = 10; \quad j = 1, 2, \ldots, m, \; m = 4.$$

Суммарную взвешенную ранжировку можно получить умножением последней строки табл. 4. 11 на матрицу суммарных рангов (табл. 4. 13). Результаты вычислений приведены в последней строке табл. 4. 13.

Таким образом, по мнению данной группы экспертов для очистки отработанной серной кислоты от ртути наиболее предпочтительно использовать оксигидрид кремния.

4. 4. 4. Выбор существенных факторов насыщенным дробным факторным экспериментом. Требуется найти факторы, существенно влияющие на процесс получения

Таблица 4.13. **Результаты расчетов**

Тип сорбента	Выходная переменная				
	y_1	y_2	y_3	y_4	y_5
Суммарные взвешенные ранги	19,026	18,563	15,790	19,352	14,613
Результаты ранжировки типов сорбента	4	3	2	5	1

металлического титана, включающий стадию хлорирования титановых шлаков. Для исследования отобраны 15 факторов: расход хлора (x_1); температура (x_2); концентрация углерода в шлаке (x_3); концентрация диоксида титана в расплаве (x_4); другие компоненты шлака (x_5—x_{11}); компоненты расплава (x_{12}—x_{15}).

Переменной, характеризующей объект, является скорость хлорирования.

Для отбора существенных факторов применялся ДФЭ типа 2^{15-11}, содержащий 16 экспериментов (их количества достаточно для определения линейных коэффициентов и свободного члена). Уровни факторов и результаты эксперимента с двумя параллельными опытами приведены в табл. 4. 14. Коэффициенты рассчитывались по алгоритму 1.5.2. Согласно (2.24) $s^2_{b_i} = \sqrt{\frac{39 \cdot 85}{16 \cdot 2}} = 1{,}12$, тогда $t_\tau s_{b_i} = 2$, $12 \cdot 1{,}12 = 2{,}37$. Используя условие (2.23), можно сделать вывод о незначимости факторов x_3, x_7, x_{10}, x_{14}. Таким образом, число факторов, которые можно использовать, например, для математической модели можно сократить до десяти.

4.4.5. Отсеивание факторов в процессе нейтрализации по плану Плакетта — Бермана. Исследовалась возможность получения азотно-калийно-фосфорного удобрения частичной заменой поташа аммиаком при нейтрализации азотнокислой вытяжки. При исследовании последовательной нейтрализации вытяжки аммиаком и поташем особый интерес представляло выяснение степени ретроградации усвояемых форм пентоксида фосфора. Поэтому показателем процесса (y) служила степень усвояемости образующихся фосфорных соединений (процентное отношение количества водорастворимых и лимоннорастворимых форм фосфора к общему количеству фосфора в

Таблица 4.14. **Результаты эксперимента по отбору факторов**

	QCl_2	T	C	Компоненты шлака								Компоненты расплава				Скорость хлорирования
				TiO_2	Mg	Ca	Fe''	Fe'''	FeSi	Al	Mn	Ca	Fe	Na	$Co_{отн}$	
Основной уровень	16,6	750	3,5	2	5,65	1,0	8.3	1	6,65	5,7	4,7	7	7	8	1:1	
Интервал варьирования	5,2	50	1,5	1	1,35	0,5	1,7	1	1,35	1.3	1,3	3	3	2	1:0,5	
Верхний уровень	21,8	800	5	3	7,0	1,5	10,0	2	8,0	7,0	6.0	10	10	10	1:1.5	
Нижний уровень	11,4	700	2	1	4,3	0,5	6,6	0	5,3	4,4	3,4	4	4	6	1:0,5	

Номер опыта	Кодированные переменные	План														Выходная переменная		
	x_0	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6	x_7	x_8	x_9	x_{10}	x_{11}	x_{12}	x_{13}	x_{14}	x_{15}	y_1	y_2	$\bar{y}$
1	+	−	−	−	−	+	+	+	+	+	+	+	−	−	−	−	39,2	48,5	43,85
2	+	+	−	−	−	−	−	−	+	+	+	+	+	+	−	−	48,0	47,5	47,75
3	+	−	+	−	−	−	+	+	−	−	+	+	+	−	+	−	44,7	48,5	46,60
4	+	+	+	−	−	+	−	−	−	−	+	−	−	+	+	+	47,2	43,7	45,45
5	+	−	−	+	−	+	−	+	−	+	−	+	−	+	+	−	41,7	33,4	37,55
6	+	+	−	+	−	−	+	−	−	−	−	−	+	−	+	+	40,5	48,2	44,35
7	+	−	+	+	−	−	−	+	+	−	−	−	+	+	−	+	48,2	49,2	48,70
8	+	+	+	+	−	+	+	−	+	−	−	+	−	−	−	−	49,4	49,5	49,45
9	+	−	−	−	+	+	+	−	+	−	−	−	+	+	+	−	98,5	95,0	96,75
10	+	−	+	−	+	−	+	−	−	+	−	+	−	+	−	+	115,0	92,5	103,75
11	+	+	+	−	+	+	−	+	−	+	−	−	+	−	−	−	110,0	102,5	106,75
12	+	−	−	+	+	+	−	−	−	−	+	+	+	−	−	+	50,4	47,0	48,70
13	+	+	−	+	+	−	+	+	−	−	+	−	−	+	−	−	151,0	151,1	151,05
14	+	−	+	+	+	−	−	−	+	+	+	−	−	−	+	−	93,5	103,7	98,60
15	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	127,0	123,5	125,25
16	+	+	−	−	+	−	−	+	+	−	−	+	−	−	+	+	85,0	103,0	94,0
e_i	75,25	8,69	3,75	1,20	28,79	8,38	−5,09	1,29	7,40	1,65	1,66	−5,12	−3,71	7,78	−0,68	−4,99	$s_0^2 = 39,85$		

продуктах реакции). Выбраны следующие факторы: температура аммонизации, °С (x_1); продолжительность аммонизации, мин (x_2); норма аммиака (превышение от стехиометрической нормы, % (x_3); содержание примесей в исходной вытяжке, % (x_4—x_7); температура при взаимодействии компонентов аммонизированной вытяжки с раствором карбоната калия, °С (x_8); продолжительность взаимодействия с карбонатом калия, мин (x_9); норма карбоната калия (превышение от стехиометрической нормы, %, x_{10}).

Постоянными оставались содержания в вытяжке P_2O_5 (6,9%) и CaO (11,0%).

Необходимо выделить существенные факторы в исследуемом процессе.

В качестве плана эксперимента использовался план Плакетта — Бермана для $N=12$, построенный в соответствии с замечанием 1 (см. 2.2.1). План приведен в табл. 4. 15. Средние значения степени усвояемости y определены по двум параллельным опытам. Ошибка опыта равна $s_0^2=1{,}48$, число степеней свободы $f_0=12(2-1)=12$. Табличное значение критерия Стьюдента $t_т=3{,}05$ ($f_0=12$, $q=0{,}01$, см. приложение 4).

В соответствии с (2.24) $s_{b_i}=1{,}48/12{,}2=0{,}348$ и $t_т s_{b_i}=3{,}05\cdot 0{,}245=0{,}75$, т. е. $|b_i|>0{,}73$. Таким образом, все коэффициенты оказались значимыми.

В дальнейшие исследования необходимо включить все 10 факторов.

4. 4. 6. Отсеивание факторов методом случайного баланса при исследовании процесса изомеризации сульфаниламидного соединения. Исследовался процесс получения сульфаниламидного соединения. Требовалось на первом этапе выделить существенные факторы с целью включения их в план второго порядка. Использовался метод случайного баланса. План эксперимента (сверхнасыщенный) составлялся как случайная выборка из полного факторного эксперимента 2^4 (табл. 4. 17), в который включались 10 факторов (табл. 4. 16).

На первом этапе значимые факторы выделялись визуально по диаграмме рассеивания (рис. 4. 2). Было выделено три фактора x_1, x_2, x_{10} (использовались медианы). Количественная оценка выделенных факторов (эффектов) проводилась с помощью таблиц с несколькими входами. Построим табл. 4. 18 на три входа.

Таблица 4.15. **Результаты планирования отсеивающего эксперимента**

	Факторы										Степень усвояемости
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6	x_7	x_8	x_9	x_{10}	
Верхний уровень	70	30	150	3,16	0,89	0,56	0,88	70	60	120	
Нижний уровень	25	15	100	0	0	0	0	25	30	100	

Номер опыта	Кодированные переменные	План										Выходная переменная
	x_0	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6	x_7	x_8	x_9	x_{10}	$\bar{y}$
1	+	+	−	+	−	−	−	+	+	+	+	19,15
2	+	+	+	−	+	+	−	−	+	+	+	34,44
3	+	−	+	+	−	−	−	−	−	+	+	85,08
4	+	+	−	+	+	−	+	−	−	−	+	92,88
5	+	+	+	−	+	+	−	+	−	−	−	90,91
6	+	+	+	+	−	+	+	−	+	−	−	51,76
7	+	−	+	+	+	−	+	+	−	+	−	101,33
8	+	−	−	+	+	+	−	+	+	−	+	101,34
9	+	−	−	−	+	+	+	−	+	+	−	98 62
10	+	+	−	−	−	+	+	+	−	+	+	87,85
11	+	−	+	−	−	−	+	+	+	+	+	84,49
12	+	−	−	−	−	−	−	−	−	−	−	89,89
b_i	78,19	15,36	−3,43	−2,83	8,40	7,84	7,96	2,64	−13,23	−7,01	2,91	$s_0^2 = 1{,}48$

Таблица 4.16. **Параметры и факторы отсеивающего эксперимента**

Номер фактора	Фактор	Нижний уровень	Верхний уровень	Единица измерения
x_1	Отношение растворителя к основному веществу	0,2	0,9	г/ч
x_2	Температура реакционной среды	130	165	°С
x_3	Время реакции (отсчет от заданной температуры)	20	80	мин
x_4	Перемешивание реакционной массы	Без перемешивания	С перемешиванием	—
x_5	Дисперсность исходного сырья	Мелкие частицы	Крупные частицы	мин
x_6	Содержание основного вещества в сырье	98,4	99,4	%
x_7	Время выхода на заданную температуру	8	15	мин
x_8	Способ окончания процесса	Самоохлаждение	Подача горячей воды	—
x_9	Разные сорта фильтров	Беззольный	Зольный	—
x_{10}	Разные исполнители	№ 1	№ 2	—

Таблица 4.17. **Результаты расчета отсеивающего эксперимента**

Номер опыта	Факторы										Выходная переменная
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6	x_7	x_8	x_9	x_{10}	
1	+	+	+	−	−	+	−	−	+	−	67,5
2	−	+	−	−	−	+	−	+	−	−	83,7
3	+	−	+	+	−	+	+	+	+	+	27,8
4	+	−	+	−	+	+	−	−	+	+	21,6
5	−	−	−	−	+	+	−	+	−	−	5,0
6	−	+	−	+	−	+	+	−	+	−	84,8
7	+	+	−	−	−	−	−	−	−	+	67,5
8	−	−	+	+	−	−	−	+	−	+	8,5
9	+	−	−	+	+	+	+	−	+	+	9,7
10	+	+	+	+	+	−	+	+	+	−	70,5
11	−	−	+	−	+	−	−	−	+	+	7,5
12	+	−	−	−	+	−	+	−	−	−	7,2
13	+	+	−	+	−	−	+	−	+	−	70,5
14	−	+	+	+	+	−	−	+	−	+	85,2
15	−	+	+	−	+	+	+	+	−	−	84,8
16	−	−	−	+	−	−	+	+	−	+	8,0

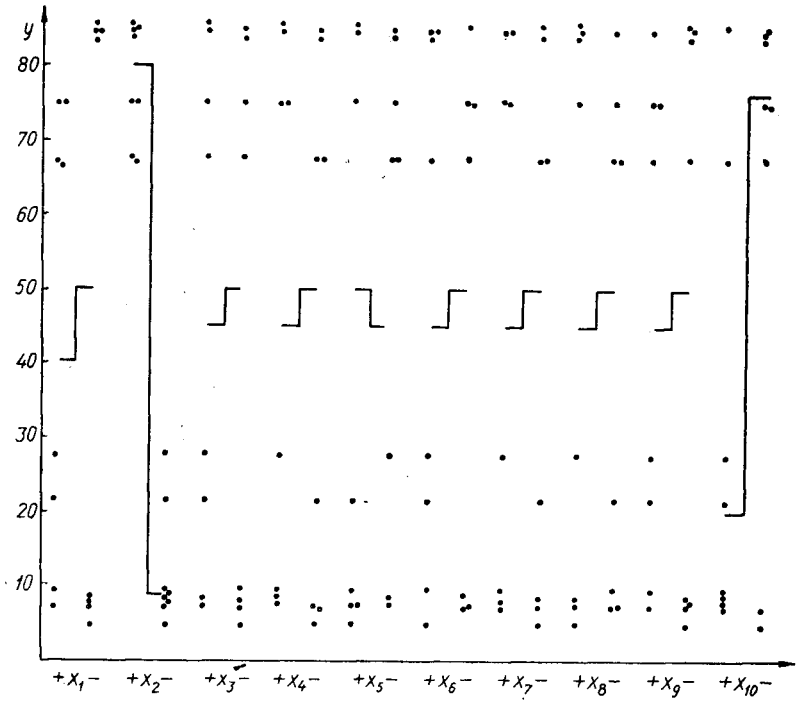


Рис. 4.2. Диаграмма рассеивания первого шага.

Таблица 4.18. **Подготовка данных для оценки линейных эффектов**

x_2	x_1 „+“		x_1 „−“	
	x_{10} „+“	x_{10} „−“	x_{10} „+“	x_{10} „−“
„+“	67,5 $\overline{y_1}=67,5$	67,5 70,5 70,5 $\overline{y_2}=69,5$	85,2 $\overline{y_5}=85,2$	83,7 84,8 84,8 $\overline{y_6}=84,4$
„−“	27,8 21,6 67,5 $\overline{y_3}=38,97$	7,2 $\overline{y_4}=7,2$	8,5 7,5 8,0 $\overline{y_7}=8,0$	5,0 $\overline{y_8}=5,0$

Линейные эффекты вычислим по формулам (2.28)

$$\text{эф } x_1 = \frac{\bar{y}_1+\bar{y}_2+\bar{y}_3+\bar{y}_4}{4} - \frac{\bar{y}_5+\bar{y}_6+\bar{y}_7+\bar{y}_8}{4} =$$

$$= \frac{67{,}5+69{,}5+38{,}97+7{,}2}{4} - \frac{85{,}2+84{,}4+8+5}{4} =$$

$$= 45{,}79 - 45{,}65 = 0{,}14.$$

$$\text{эф } x_{10} = \frac{\bar{y}_1+\bar{y}_3+\bar{y}_5+\bar{y}_7}{4} - \frac{\bar{y}_2+\bar{y}_4+\bar{y}_6+\bar{y}_8}{4} =$$

$$= \frac{67{,}5+27{,}8+5+67{,}5}{4} - \frac{83{,}7+21{,}6+84{,}8+8{,}5}{4} =$$

$$= 41{,}95 - 49{,}65 = -7{,}7;$$

$$\text{эф } x_2 = \frac{\bar{y}_1+\bar{y}_2+\bar{y}_5+\bar{y}_6}{4} - \frac{\bar{y}_3+\bar{y}_4+\bar{y}_7+\bar{y}_8}{4} =$$

$$= \frac{67{,}5+83{,}7+5+84{,}8}{4} - \frac{27{,}8+21{,}6+67{,}5+8{,}5}{4} =$$

$$= 60{,}25 - 31{,}35 = 28{,}90.$$

Эффект действия $x_2 = 28{,}90$ на порядок больше эффектов всех остальных факторов.

Оценим значимость эффектов по критерию Стьюдента. Для этого вычислим оценки дисперсий для каждой клетки табл. 4. 18

$$s^2_{R_1} = 0;$$

$$s^2_{R_2} = \frac{1}{2}\left[(67{,}5 - 69{,}5)^2 + (70{,}5 - 69{,}5)^2 + (70{,}5 - 69{,}5)^2\right] = 6{,}0;$$

$$s^2_{R_3} = \frac{1}{2}\left[(27{,}80 - 38{,}97)^2 + (21{,}60 - 38{,}97)^2 + (67{,}60 - 38{,}97)^2\right] = 413{,}48; \qquad s^2_{R_4} = 0; \qquad s^2_{R_5} = 0;$$

$$s^2_{R_6} = \frac{1}{2}\left[(83{,}7 - 84{,}4)^2 + (84{,}8 - 84{,}4)^2 + (84{,}8 - 84{,}4)^2\right] = 0{,}81;$$

$$s^2_{R_7} = (8{,}5 - 8)^2 + (7{,}5 - 8)^2 = 0{,}5; \qquad s^2_{R_8} = 0.$$

Средняя дисперсия равна

$$s^2_R = \frac{6{,}0 + 413{,}48 + 0{,}81 + 0{,}50}{8} \approx 52{,}60.$$

Значения критерия Стьюдента согласно (2. 30)

$$t_{p_1} = \frac{(67{,}5+69{,}5+38{,}97+7{,}2)-(85{,}2+84{,}4+8+5)\sqrt{16}}{\sqrt{52{,}6}} =$$

$$= \frac{(183{,}17-182{,}6)\cdot 4}{7{,}2} = 0{,}32;$$

$$f_R = 16-8 = 8; \qquad t_т = 2{,}31.$$

$$t_{p_{10}} = \frac{[(67{,}5+27{,}8+5+67{,}5)-(83{,}7+21{,}6+84{,}8+8{,}5)]4}{7{,}2} = -17{,}11;$$

$$t_{p_2} = \frac{[(67{,}5+83\cdot 7+5+84{,}8)-(27{,}8+21{,}6+67{,}5+8{,}5)]4}{7{,}2} = 64{,}22.$$

Сравнивая t_p с $t_т$ ($t_т=2{,}31$ при $f_R=16-8=8$ и $q=0{,}05$), получаем, что фактор x_1 незначим. Исследователи также предложили не рассматривать на этом этапе фактор x_{10}. Тогда исходные данные корректируют по фактору x_2, влияние которого на порядок больше, чем остальных.

Корректируют результаты наблюдений так: ко всем результатам, полученным на верхнем уровне x_2, прибавляют —65. Для скорректированных результатов эксперимента снова строят диаграмму рассеивания по основным эффектам и некоторым эффектам взаимодействия. На этой диаграмме визуально выделяют x_7, x_8 и x_1, x_2 (рис.4. 3). Расчеты эффектов производят согласно табл. 4. 19.

Вычисляют линейные эффекты

$$\text{эф } x_7 = \frac{\bar{y}_1+\bar{y}_2+\bar{y}_3+\bar{y}_4}{4} - \frac{\bar{y}_5+\bar{y}_6+\bar{y}_7+\bar{y}_8}{4} =$$

$$= \frac{39{,}25+56{,}3+70{,}5+33{,}9}{4} - \frac{6{,}75+84{,}45+67{,}5+53{,}4}{4} = -3{,}037;$$

$$\text{эф } x_1x_2 = \frac{\bar{y}_1+\bar{y}_3+\bar{y}_5+\bar{y}_7}{4} - \frac{\bar{y}_2+\bar{y}_4+\bar{y}_6+\bar{y}_8}{4} =$$

$$= \frac{39{,}25+70{,}5+6{,}75+67{,}5}{4} - \frac{56{,}3+33{,}9+84{,}45+53{,}4}{4} = 11{,}0125;$$

$$\text{эф } x_8 = \frac{\bar{y}_1+\bar{y}_2+\bar{y}_5+\bar{y}_6}{4} - \frac{\bar{y}_3+\bar{y}_4+\bar{y}_7+\bar{y}_8}{4} =$$

$$= \frac{39{,}25+56{,}3+6{,}75+84{,}45}{4} - \frac{70{,}5+33{,}9+67{,}5+53{,}4}{4} = -9{,}635.$$

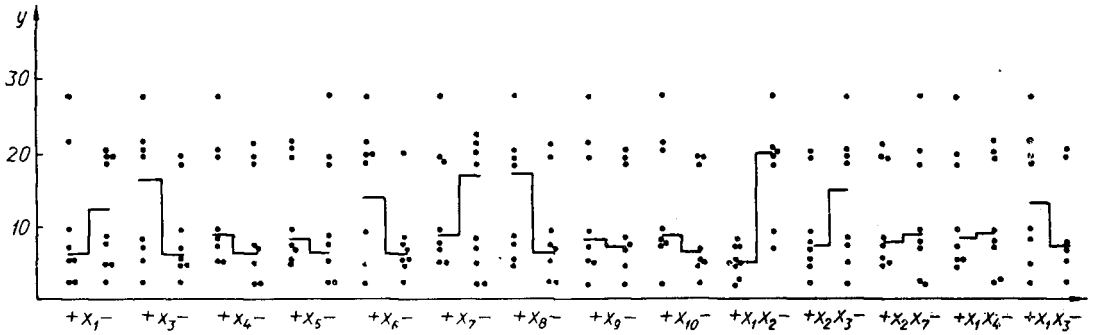


Рис. 4.3. Диаграмма рассеивания второго шага.

Таблица 4.19. **Подготовка данных для оценки линейных эффектов**

x_8	x_7 „+“		x_7 „−“		x_8	x_7 „+“		x_7 „−“	
	$x_1\ x_2$ +	$x_1\ x_2$ −	$x_1\ x_2$ +	$x_1\ x_2$ −		$x_1\ x_2$ +	$x_1\ x_2$	$x_1\ x_2$ +	$x_1\ x_2$ −
„+“	70,5 8,0	27,8 84,8	5,0 8,5	83,7 85,2	„−“	70,5	84,8 9,7 7,2	67,5 67,5	21,6 85,2
	$\bar{y}_1=39{,}25$	$\bar{y}_2=56{,}3$	$\bar{y}_5=6{,}75$	$\bar{y}_6=84{,}45$		$\bar{y}_3=70{,}5$	$\bar{y}_4=33{,}9$	$\bar{y}_7=67{,}5$	$\bar{y}_8=53{,}4$

В результате аналогичных расчетов значимым оказался эффект x_1x_2 (эффект x_1x_2 равен 11). Вновь производили корректировку данных эксперимента, при этом ко всем результатам, полученным на верхнем уровне x_1x_2, прибавляли 11. Результаты четырех корректировок представлены в табл. 4. 20.

Таблица 4.20. **Результаты корректировок по методу случайного баланса**

Номер этапа	Эффекты, выделенные на основании визуальной оценки диаграммы рассеяния	Численные значения основных эффектов и эффектов взаимодействия	Вычисленные значения t-критерия
I	x_1	—3,05	1,09
	x_2	64,90	25,75*
II	x_1x_2	—13,30	5,60*
	x_7	—0,97	0,42
	x_8	3,12	1,34
III	x_3	4,25	3,58*
	x_8	4,72	4,00*
	x_2x_3	—5,02	4,25
IV	x_3x_4	—2,75	2,93*
	x_5	—1,25	1,30
V	x_1x_3	2,0	2,28*
	x_4	1,0	1,14

* Значимо для уровня значимости 0,05; $t_{0,05(12)} = 2,18$; $t_{0,05(8)} = 2,30$..

Этот этап отсеивания факторов производили в условиях, когда первоначально рассматривались 10 линейных факторов и 45 возможных парных взаимодействий. Выделены следующие эффекты: температура (x_2); взаимосвязь отношения растворителя к основному веществу и температуры (x_1x_2); время реакции (x_3); способ окончания процесса (x_8); взаимосвязь времени реакции с температурой (x_2x_3); взаимосвязь времени реакций с отношением растворителя к основному веществу (x_1x_3).

Эффект x_2 на порядок больше всех остальных. Температура оказывает резко выраженное положительное действие. Из анализа результатов видно, что все высокие значения выхода продукта получены при высокой температуре; x_2 — единственный фактор, дающий четкое распределение точек: на уровне +1 сконцентрированы все точки с высоким выходом, на уровне —1 — все точки с

низким выходом. Из дальнейшего анализа видно, что самые высокие выходы в опытах 2, 6, 14, 15 получены при x_2^+ и x_1^-:

Из первой диаграммы рассеивания видно, что эти две переменные имеют выделяющиеся точки на уровнях с разными знаками. Эффект взаимодействия x_1x_2 занимает второе место в ранжировании. Отношение растворителя к основному веществу непосредственно не влияет на выход продукта реакции, но проявляется прежде всего в эффекте взаимодействия x_1x_2. Его отрицательное значение указывает на увеличение выхода при низком значении x_1 (отношение растворителя к основному веществу) и высоком x_2 (температура среды) или наоборот.

Аналогично можно интерпретировать и остальные выделенные эффекты взаимодействия.

Таким образом, в план эксперимента дальнейших исследований уверенно можно включить факторы x_2, x_3, x_8 и взаимодействия факторов x_1x_2, x_1x_3, x_3x_4.

4.5. Исследование свойств смесей методами планирования эксперимента

Введение. Изучением свойств систем, зависящих от соотношения компонентов, и связанных между собой условием (1.199), в настоящее время занимаются химики, металлурги, строители и другие исследователи. Цель таких исследований — построение зависимостей свойств от состава и режима обработки (температуры, давления и др.), определение оптимального состава и режима по одному или нескольким показателям эффективности системы. Ниже приведены несколько примеров исследования сложных систем и их свойств.

4.5.1. Исследование свойств трехкомпонентной смеси, применяемой для формирования лицевой пленки в производстве синтетических материалов. Полимерная смесь представляет собой систему из пигмента (x_1, мас. %), полиуретана (x_2, мас. %) и растворителя (x_3, мас. %). После приготовления смеси нужного состава и окончания процесса полимеризации изготовлялись образцы стандартных размеров, которые подвергались испытаниям. Показателями эффективности образцов являлись прочность ($y^{(1)}$, кг/см^2), относительное удлинение ($y^{(2)}$, %), остаточное удлинение ($y^{(3)}$, %), паропроницаемость

($y^{(4)}$, %), светоотражение или интенсивность окрашивания ($y^{(6)}$, %).

Для построения моделей вида (2.3) по всем пяти показателям использовался симплекс-решетчатый план второго порядка, содержащий 6 опытов и 1 проверочную точку (табл. 4.21). Проверочная точка выбиралась так, чтобы в случае неадекватности модели второго порядка ее можно было использовать при построении модели более высокого порядка. Число параллельных опытов равнялось двум.

Таблица 4.21. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная									
	x_1	x_2	x_3	$y_u^{(1)}$		$y_u^{(2)}$		$y_u^{(3)}$		$y_u^{(4)}$		$y_u^{(5)}$	
1	1	0	0	47,2	48,5	380	420	16	18	8,13	8,29	14,2	13,8
2	0	1	0	46,9	45,4	540	560	28	28	5,92	5,61	26,9	32,1
3	0	0	1	48,5	46,6	400	420	20	20	7,81	7,98	17,5	20,2
4	0,5	0,5	0	62,8	64,1	300	320	14	16	6,65	6,81	26,8	27,6
5	0,5	0	0,5	46,4	45,9	240	220	22	22	8,41	8,23	34,6	32,6
6	0	0,5	0,5	64,4	62,8	380	400	20	18	7,35	7,18	25,7	23,8
7	0,33	0,33	0,33	63,8	63,5	260	280	16	18	6,69	6,23	21,5	23,8

Коэффициенты моделей определялись по алгоритму 2. 1. 1 (формулы (1.28) и (2.11)).

Так, для переменной «прочность» математическая модель имеет вид

$$\hat{y}^{(1)} = 47{,}85x_1 + 46{,}15x_2 + 47{,}55x_3 + 65{,}80x_1x_2 - 6{,}20x_1x_3 + 67{,}00x_2x_3.$$

Аналогично для других выходных переменных

$$\hat{y}^{(2)} = 400x_1 + 550x_2 + 410x_3 - 660x_1x_2 - 700x_1x_3 - 360x_2x_3;$$

$$\hat{y}^{(3)} = 17x_1 + 28x_2 + 20x_3 - 30x_1x_2 + 14x_1x_3 - 20x_2x_3;$$

$$\hat{y}^{(4)} = 8{,}21x_1 + 5{,}77x_2 + 7{,}89x_3 - 1{,}03x_1x_2 + 1{,}07x_1x_3 + 1{,}74x_2x_3;$$

$$\hat{y}^{(5)} = 14{,}0x_1 + 29{,}5x_2 + 18{,}8x_3 + 21{,}8x_1x_2 + 68{,}7x_1x_3 + 5{,}9x_2x_3.$$

Адекватность моделей оценивалась по t-критерию (формула (2.13)) в контрольной точке (опыт 7). Прежде

всего рассчитывалась ошибка опыта по формулам (1.138)—(1.141). Она оказалась равной $s_0^2 = 1{,}19$ или $s_0 = 1{,}08$. Тогда, учитывая, что $\xi = 0{,}628$, находилось по формуле (2.15) в точке {0,33; 0,33; 0,33} $\hat{y} = 59{,}36$ или $\Delta y = 63{,}65 - 59{,}36 = 4{,}19$, получим

$$t_р = \frac{4{,}19\sqrt{2}}{1{,}08\sqrt{1 + 0{,}628}} \approx 3{,}38.$$

Табличное значение t-критерия ($f = 7$ (2—1) и $q = 0{,}05$) равно 2,36, т. е. $t_р > t_т$. Таким образом, модель оказалась неадекватной. Остальные модели (кроме $y^{(3)}$) также оказались неадекватными.

С целью получения неадекватных моделей исследователи перешли к неполному кубическому полиному (2.4) (использовался опыт 7). Для расчета недостающего коэффициента β_{123} использовалась формула (2.17)

$$\beta_{123} = 27\frac{63{,}80 + 63{,}50}{2} - 12(63{,}45 + 46{,}15 + 63{,}60) + \\ + 3(47{,}85 + 46{,}15 + 47{,}55) = 64{,}80.$$

Тогда уравнение принимает вид

$$y^{(1)} = 47{,}85x_1 + 46{,}15x_2 + 47{,}55x_3 + 65{,}80x_1x_2 + \\ + 67{,}00x_2x_3 - 6{,}20x_1x_3 + 64{,}80x_1x_2x_3.$$

Адекватность уравнения проверялась по контрольным опытам 8 {0,33; 0,67; 0,00} и 9 {0,00; 0,67; 0,33}. Модель оказалась адекватной $t_{1р} = 1{,}93$ и $t_{2р} = 1{,}89$ (против $t_т = 231$).

Адекватными оказались также модели с неполным кубическим полиномом по остальным выходным переменным:

$$y^{(2)} = 400x_1 + 550x_2 + 410x_3 - 660x_1x_2 - 700x_1x_3 - \\ - 360x_2x_3 + 210x_1x_2x_3;$$

$$y^{(4)} = 8{,}21x_1 + 5{,}77x_2 + 7{,}89x_3 - 1{,}03x_1x_2 + 1{,}07x_1x_3 + \\ + 1{,}74x_2x_3 - 27{,}7x_1x_2x_3;$$

$$y^{(5)} = 14{,}0x_1 + 29{,}5x_2 + 18{,}8x_3 + 21{,}8x_1x_2 + 68{,}7x_1x_3 + \\ + 5{,}9x_2x_3 - 238x_1x_2x_3.$$

Дальнейший анализ проводился с целью определения оптимального состава по каждой модели и нахождения некоторой компромиссной области свойств.

4. 5. 2. Исследование свойств смеси поверхностно-активных веществ при получении моющих средств. Исследовалась композиция, включающая три поверхностно-активных вещества (ПАВ), с целью получения моющего средства для автоматических стиральных машин. Факторами являлись содержание ПАВ—X_1, X_2 и X_3, выходной переменной — моющая способность смеси y (в условных единицах). План эксперимента для получения модели второго порядка с четырьмя проверочными точками приведен в табл. 4. 22.

Таблица 4.22. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная			Расчеты	
	x_1	x_2	x_3	y	y_1	y_2	$\hat{y}$	s_u^2
1	1	0	0	y_1	24,0	24,4	24,20	0,080
2	0	1	0	y_2	26,3	25,0	25,65	0,245
3	0	0	1	y_3	17,8	17,3	17,55	0,125
4	0,5	0,5	0	y_{12}	17,4	16,99	17,20	0,080
5	0,5	0	0,5	y_{13}	19,07	18,02	18,55	0,540
6	0	0,5	0,5	y_{23}	19,47	18,06	18,77	0,980
7	0,5	0,25	0,25	y_{1123}	14,7	18,46	16,58	7,069
8	0,25	0,5	0,25	y_{1223}	15,56	17,9	16,73	2,738
9	0,25	0,25	0,5	y_{1233}	17,5	17,1	17,30	0,080
10	0,33	0,33	0,33	y_{123}	15,3	18,3	16,80	4,500

Проводилось по два параллельных опыта в каждой точке плана. Однородность дисперсий проверялась по критерию Кохрена (формулы (1.18) ((1.19)). Получено: $G_р=0{,}420$; $G_т=0{,}602$ ($f_1=2-1=1$, $f_2=10$, $q=0{,}05$), т. е. дисперсии однородны. Тогда ошибка опыта $s_0^2=1{,}7$ получалась усреднением всех s_0^2 и число степеней свободы $f_0=10(2-1)=10$. Табличное значение критерия Стьюдента для $q=0{,}05$ $t_т=2{,}23$. Значение ξ может быть получено по формуле (2.15) или снято с контурных карт (изолиний) для данного примера ($\xi=0{,}6$). Находим расчетное $\hat{y}_{1123}$:

$$\hat{y}_{1123} = 24{,}2\cdot 0{,}5 + 25{,}65\cdot 0{,}25 + 17{,}55\cdot 0{,}25 - 30{,}9\cdot 0{,}5\cdot 0{,}25 - \\ -9{,}3\cdot 0{,}5\cdot 0{,}25 - 11{,}32\cdot 0{.}25\cdot 0{,}25 = 17{,}17.$$

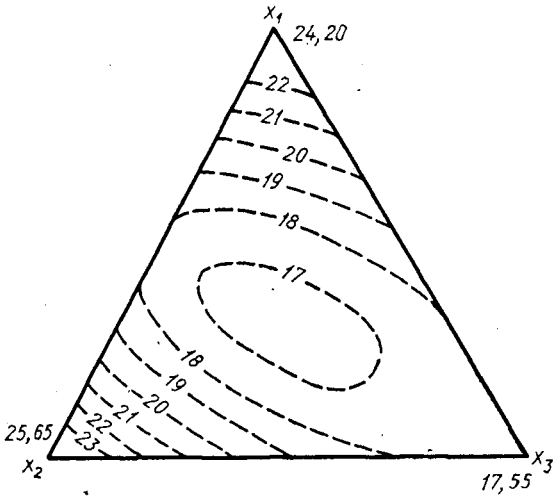


Рис. 4.4. Кривые равного выхода на плоскости правильного симплекса к задаче 4.5.2.

Проверяем неадекватность модели по формуле (2.13) для опыта 7

$$t_{1123} = \frac{(\hat{y}_{1123} - y_{1123})\sqrt{2}}{1{,}7\sqrt{1 + 0{,}6}} \approx 0{,}506 < t_т,$$

т. е. модель адекватна в проверяемой точке плана. Аналогичные результаты получаем и в других проверочных точках 8, 9, 10:

$$t_{1223} = 0{,}578; \qquad t_{1233} = 0{,}489; \qquad t_{123} = 0{,}057.$$

Поскольку во всех проверочных точках $t_р < t_т$, то гипотеза об адекватности модели принимается.

Полученную модель можно представить набором кривых равного выхода на плоскости правильного симплекса (рис. 4.4). В центральной части диаграммы моющее действие смеси минимально.

4.5.3. Пример оптимизации состава смеси по диаграммам состав — свойство. Приведенные выше кривые равного выхода позволяют решить и более сложную задачу оптимизации, когда выходных переменных (свойств) смеси несколько. В работе [30] приводится пример исследования моющей смеси, включающей три фактора —

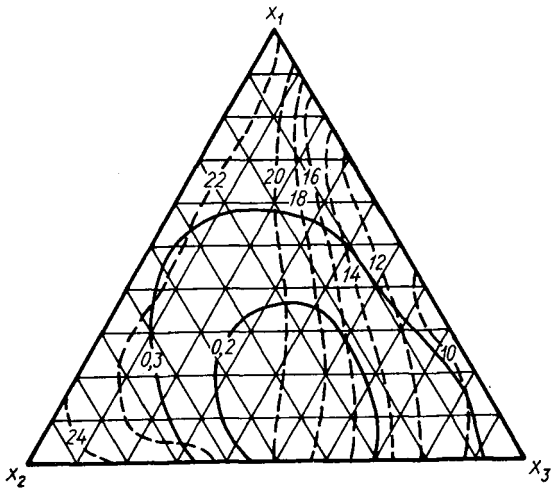


Рис. 4.5. Кривые равного выхода на плоскости правильного симплекса к задаче 4.5.3.

X_1 (сульфанол), X_2 (ситонол ДС-10) и X_3 (мыло СЖК C_{17-20}). Исследовались свойства: моющая способность — (y_1) и пенообразование (y_2). Цель исследования — получить максимальное моющее действие при значении пенообразования, не превышающем 0,3.

В результате постановки эксперимента и обработки его результатов по алгоритмам 2.1.2 и 2.1.3 получены адекватные уравнения пенообразования:

$$\hat{y}_2 = 0{,}843x_1 + 0{,}751x_2 + 0{,}40x_3 - 1{,}964x_1x_2 - 0{,}666x_1x_3 - \\ -1{,}522x_2x_3 - 0{,}684x_1x_2x_3$$

и моющей способности

$$\hat{y}_1 = 23{,}1x_1 + 25{,}5x_2 + 7{,}6x_3 - 7{,}8x_1x_2 - 31{,}8x_1x_3 + 16{,}0x_2x_3 + \\ + 268{,}0x_1^2x_2x_3 - 248{,}8x_1x_2^2x_3 + 336{,}8x_1x_2x_3^2.$$

Кривые равного выхода, построенные по этим уравнениям, представлены на рис. 4. 5. Если «двигаться» по кривой пенообразующей способности со значением 0,3, можно пересечь кривые моющей способности со значениями от 10 до 22, т. е. в простейшем случае оптимизацию можно осуществить графически.

Таблица 4.23. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная (октановое число)		
	Факторы (состав смеси в долях)					
	x_1	x_2	x_3	y_{u_1}	y_{u_2}	$\overline{y}_u$
1	1,0	0	0	100,8	100,9	100,85
2	0	1,0	0	85,2	85,6	85,40
3	0	0	1,0	86,0	85,0	85,50
4	0,5	0,5	0	88,8	89,3	89,05
5	0,5	0	0,5	90,3	90,7	90,50
6	0	0,5	0,5	85,5	85,4	85,45
7	0,33	0,33	0,33	88,3	88,8	88,55
8	0,150	0,595	0,255	86,6	86,8	86,70
9	0,300	0,490	210	87,6	88,1	87,85

С учетом технологических ограничений на содержание мыла и синтанола оптимальной выбрана область, обеспечивающая достаточно сильное моющее действие смеси при низком пенообразовании в следующем диапазоне изменений состава: сульфанол — 6—9, синтанол ДС-10 3—4, мыло 3—4,5 %.

4. 5. 4. Исследование свойств трехкомпонентной смеси бензинов. При исследовании свойств (октанового числа) трехкомпонентной смеси бензинов использовалось симплекс-решетчатое планирование. На первом этапе для получения математической модели использовался план, позволяющий получить полином второго порядка (2.3) (табл. 4.23, первые шесть опытов). В каждой точке плана были реализованы по два параллельных опыта. Средние значения октановых чисел приведены в последнем столбце таблицы. По формулам (2.10) и (2.11) получены коэффициенты модели:

$$\beta_1 = 100{,}85; \quad \beta_2 = 85{,}40; \quad \beta_3 = 85{,}50;$$

$$\beta_{12} = -16{,}30; \quad \beta_{13} = -10{,}70; \quad \beta_{23} \approx 0.$$

Таким образом, модель выглядит так:

$$\hat{y} = 100{,}85x_1 + 85{,}40x_2 + 85{,}50x_3 - 16{,}30x_1x_2 - 10{,}70x_1x_3.$$

Для проверки адекватности полученной математической модели реализовано по два параллельных опыта в

трех проверочных точках (опыты 7, 8, 9), одна из которых (точка 7) расположена в центре симплекса. В случае неадекватности модели эта точка может использоваться для построения неполной кубической модели.

Подстановкой условий опытов 7, 8, 9 в полученную модель получим $\hat{y}_7$, $\hat{y}_8$, $\hat{y}_9$ и определим по формуле (2.14) разности

$$\Delta 7 = 88{,}55 - 87{,}58 = 0{,}97;$$

$$\Delta 8 = 86{,}70 - 85{,}88 = 0{,}82;$$

$$\Delta 9 = 87{,}85 - 86{,}99 = 0{,}86.$$

Согласно (2.13), с учетом $m=2$, $s_0=0{,}34$ и $\xi=0{,}628$ (по формуле (2.15)), вычислим значение t-критерия

$$t_p = \frac{0{,}97\sqrt{2}}{0{,}34\sqrt{1+0{,}628}} = 3{,}16.$$

Расчетное значение t-критерия превосходит табличное $t_т=2{,}26$ ($f_0=9$, $q=0{,}05$), т. е. модель второго порядка неадекватна.

Используя значение y_{123}, в центре симплекса рассчитаем по (2.17) $\beta_{123} = 26{,}10$.

Получим модель вида

$$\hat{y} = 100{,}85x_1 + 85{,}40x_2 + 85{,}50x_3 - 16{,}30x_1x_2 - $$

$$- 10{,}70x_1x_3 + 26{,}10x_1x_2x_3.$$

При проверке адекватности полученной неполной кубической модели использовались данные проверочных опытов в точках 8, 9. Проверка показала адекватность этой модели. Таким образом, для оптимизации процесса можно использовать неполный кубический полином.

4.6. Методы идентификации при получении математических моделей химико-технологических процессов

Методы идентификации требуют обязательного применения ЭВМ в силу трудоемкости расчетов как самих статистических характеристик (корреляционных функций), так и неизвестных параметров дифференциальных уравнений. В приведенных ниже примерах исходная чис-

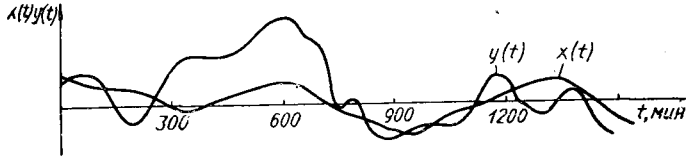


Рис. 4.6. Запись концентраций хлороводорода на входе $x(t)$ и на выходе $y(t)$ абсорбера.

ловая информация не приводится из-за громоздкости, цифровые результаты расчетов иллюстрируются рисунками.

4. 6. 1. Исследование гидродинамической структуры потоков в изотермическом абсорбере. Исследовалась структура потоков в изотермическом абсорбере, где водой абсорбировался хлороводород. Структура потоков определялась по статистическим характеристикам (моментам) весовой функции.

Последовательность оценки гидродинамической структуры потоков объекта следующая: 1) проведение эксперимента на действующем объекте; 2) сглаживание экспериментальных данных; 3) расчет корреляционных функций; 4) определение весовой функции и ее вероятностных характеристик (моментов); 5) оценка гидродинамической структуры потоков по рассчитанным моментам.

Эксперимент проводился на действующих абсорберах. Содержание хлороводорода измерялось во входном и выходном потоках (после поглощения основной части хлороводорода водой).

Сглаживание экспериментальных данных проводилось по алгоритму скользящего среднего 2. 5. 2. Интервал усреднения $(2l+1)=5$. Запись (сглаженная) концентраций хлороводорода на входе $x(t)$ и выходе $y(t)$ представлена на рис. 4. 6.

Корреляционные функции рассчитывались по уравнениям (2.73) и (2.74) на ЭВМ «Мир-2». На рис. 4.7 приведены нормированные автокорреляционная и взаимнокорреляционная функции, отличающиеся от расчетных:

$$R^*_{xx}(\tau) = R_{xx}(\tau)/s^2_x;$$

$$R_{yx}(\tau) = R_{yx}(\tau)/s_x s_y,$$

где s^2_x — оценка дисперсии входной переменной: s_x и s_y — оценки среднеквадратичных отклонений соответственно входной и выходной переменных.

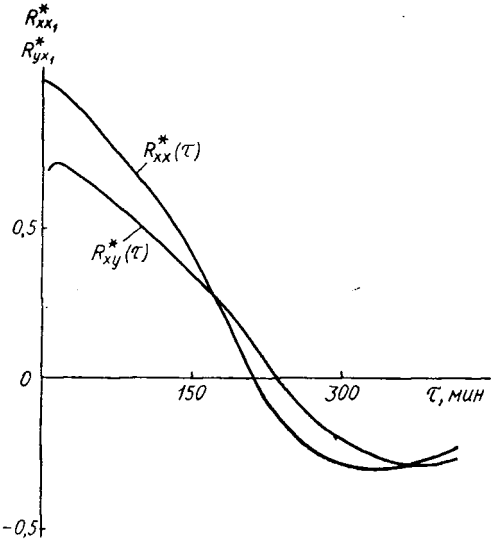


Рис. 4.7. Расчетные корреляционные функции к примеру 4.6.1.

Выборка данных, по которой считались корреляционные функции, равнялась 120 точкам, снятым с интервалом 30 мин.

Расчет весовой функции в соответствии с уравнением (2.75) проводился по алгоритму 2.5.4 на ЭВМ «Мир-2». Результаты расчета приведены на рис. 4.8. Расчеты проводились несколько раз с различными корреляционными функциями. Решение практически не менялось, что свидетельствует о его устойчивости.

С целью оценки гидродинамической структуры абсорбера использовался метод моментов и связь моментов с числами Пекле — алгоритм 2.5.5. По весовой функции рассчитывались ее моменты нулевого, первого, второго, третьего и четвертого порядков. Программа на языке АЛМИР для ЭВМ «Мир-2» и результаты расчета приведены в приложении 8. Для расчета значений критерия Пекле Ре использовалась система уравнений (2.92), Критерий Ре рассчитывался по моменту μ_2, а с помощью старших моментов проверялась адекватность принятой модели; уравнения системы (2.92) решались по стандартной программе — решение трансцендентных уравнений.

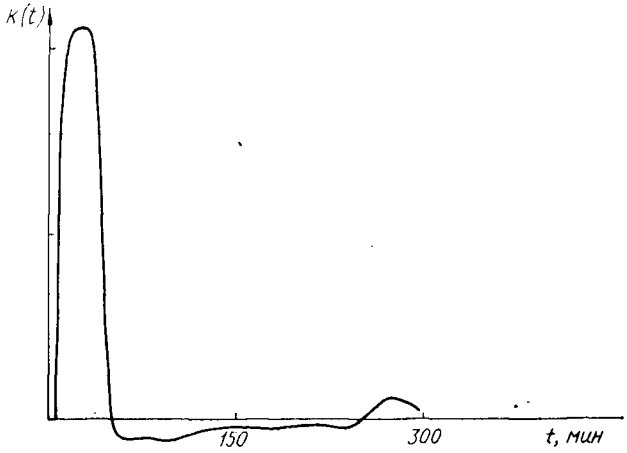


Рис. 4.8. Расчетная функция веса к примеру 4.6.1.

Использовался метод половинного деления. Расчеты проводились на ЭЦВМ «Мир-2». Программа расчета критерия Ре и результаты расчета приведены в приложении. Получены близкие значения Ре: 63,45; 62,97 и 63,99.

Поскольку значение Ре более 30, можно считать, что гидродинамическая структура потоков в абсорбере соответствует режиму идеального вытеснения.

4. 6. 2. Исследование динамических характеристик объекта управления методом идентификации. Исследовался объект управления, имеющий одну входную $u(t)$ и одну выходную $y(t)$ переменные. Известно, что объект характеризуется высоким уровнем помех, и детерминированные методы исследования неприемлемы. Их применение также осложнялось жесткими требованиями технологического регламента.

Исследователи собрали информацию, не нарушая режима работы объекта (т. е. в режиме нормальной эксплуатации объекта). Предварительные исследования показали, что для получения достоверных динамических характеристик объекта достаточно иметь реализацию «длиной» $T=3000$ мин с интервалом между измерениями $\Delta t=5$ мин.

Получено четыре реализации, по которым рассчитаны автокорреляционные и взаимно-корреляционные функции в соответствии с алгоритмами 2.5.3. Параметры рас-

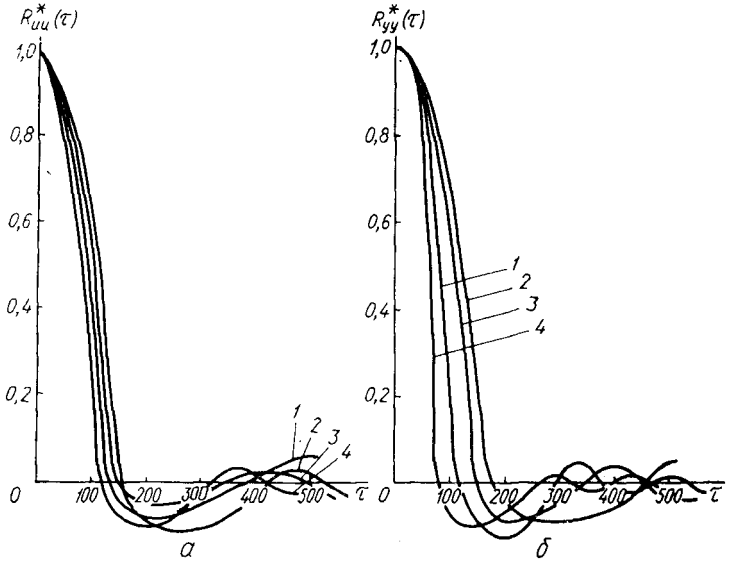


Рис. 4.9. Автокорреляционные функции входа и выхода к примеру 4.6.2.

чета корреляционных функций $\Delta\tau = 15$ мин и $\tau_{max} = 500$ мин. На рис. 4.9 представлены автокорреляционные функции входной и выходной переменных исследуемого объекта по четырем реализациям. Анализ показывает, что время спада корреляционных функций примерно одинаково и равно 300 мин. Таким образом, можно сказать, что объект с течением времени не изменяется (реализации получены, естественно, в различное время). Необходимости в сглаживании реализации нет.

Взаимно-корреляционные функции по всем четырем реализациям представлены на рис. 4.10.

Из анализа кривых можно сделать следующие выводы: 1. Объект является инерционным, поскольку максимальные значения $R^*_{uy}(\tau)$ сдвинуты относительно начала координат. 2. Между входной и выходной переменными существует значительная корреляционная связь $(R^*_{uy}(\tau) \approx 0{,}6 \div 0{,}7)$.

Для нахождения математической модели в классе линейных систем воспользуемся уравнением Винера — Хоп-

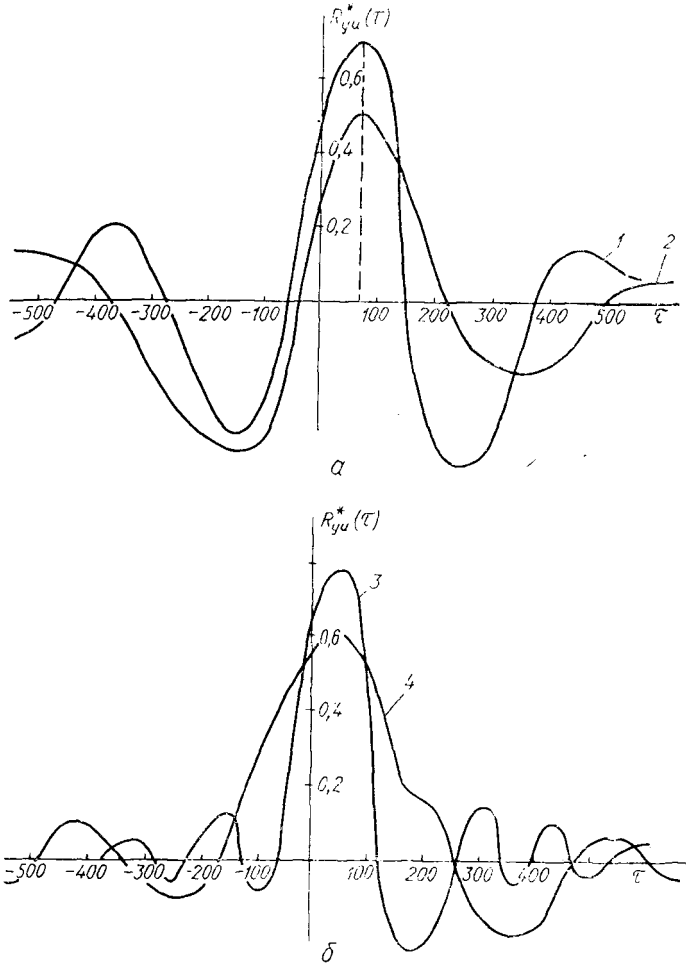


Рис. 4.10. Взаимно-корреляционные функции входа и выхода к примеру 4.6.2.

фа (2.75). Однако для облегчения его решения предлагается выбрать из четырех компонентов корреляционных функций по одной для входа и выхода, аппроксимировать их аналитическими выражениями и только потом приступать к решению уравнения (2.75).

Приближенное аналитическое выражение для нормированной автокорреляционной функции входа $R^*_{uu}(\tau)$

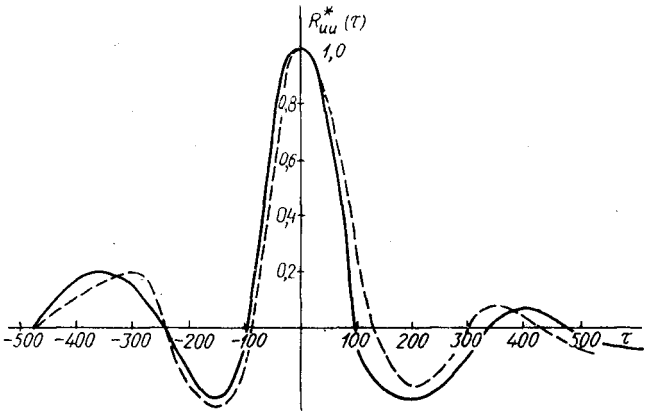


Рис. 4.11. Аппроксимация автокорреляционной функции.

имеет вид

$$R^*_{uu}(\tau) = e^{-0,008\tau}\cos\frac{\pi\tau}{200}, \qquad \tau \geqslant 0,$$

а ее среднеквадратическое отклонение $s_u^2 = 0,33$. На рис. 4.11 приведена расчетная нормированная автокорреляционная функция и ее аппроксимация приведенным выше уравнением. Совпадение достаточно удовлетворительно.

Приближенное уравнение для нормированной взаимно-корреляционной функции имеет вид ($s_y = 0,005$)

$$R^*_{uy}(\tau) = 0,45e^{-0,0056\tau}\left(\cos\frac{\pi\tau}{200} + 1,376\sin\frac{\pi\tau}{200}\right), \quad \tau \geqslant 0;$$

$$R^*_{uy}(\tau) = 0,45e^{-0,008\tau}\left(\cos\frac{\pi\tau}{200} + 1,376\sin\frac{\pi\tau}{200}\right), \quad \tau < 0.$$

Из рис. 4.12 видна удовлетворительная аппроксимация указанными уравнениями.

Как известно, уравнение Винера — Хопфа связывает натуральные автокорреляционные и взаимно-корреляционные функции, поэтому перейдем от нормированных функций к реальным

$$R_{uy}(\tau) = R^*_{uy}(\tau)s_u s_y;$$

$$R_{uu}(\tau) = R^*_{uu}(\tau)s_u^2,$$

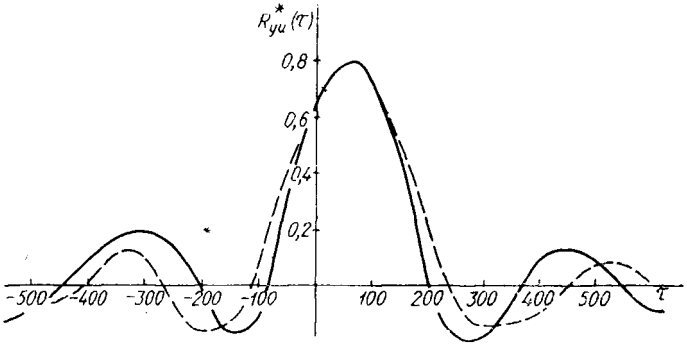


Рис. 4.12. Аппроксимация взаимно-корреляционной функции.

вследствие чего получим

$$R_{uy}(\tau) = \begin{cases} 0{,}74 \cdot 10^{-3} e^{-0{,}0056\tau}\left(\cos\dfrac{\pi\tau}{200} + 1{,}376\sin\dfrac{\pi\tau}{200}\right), & \tau \geqslant 0; \\ 0{,}74 \cdot 10^{-3} e^{-0{,}008\tau}\left(\cos\dfrac{\pi\tau}{200} + 1{,}376\sin\dfrac{\pi\tau}{200}\right), & \tau < 0. \end{cases}$$

Таким образом, согласно уравнению Винера — Хопфа имеем

$$0{,}74 \cdot 10^{-3} e^{-0{,}0056\tau}\left(\cos\frac{\pi\tau}{200} + 1{,}376\sin\frac{\pi\tau}{200}\right) =$$

$$= \int_0^\infty k(t) e^{-0{,}008(\tau - t)} \cos\frac{\pi(\tau - t)}{200}\, dt.$$

Отсюда, решив это уравнение известными методами, можно получить следующее уравнение импульсной функции:

$$k(t) = 8{,}5 \cdot 10^{-3}[0{,}74\delta(t) + 0{,}7e^{-0{,}0176t} -$$

$$- 2 \cdot 10^{-6}\cos 0{,}5te^{-0{,}0056t} - 1{,}3\sin 0{,}05te^{-0{,}0056t}],$$

где $\delta(t)$ — дельта-функция.

Графически импульсная (весовая) функция представлена на рис. 4.13 без $\delta(t)$. Если применить к полученному

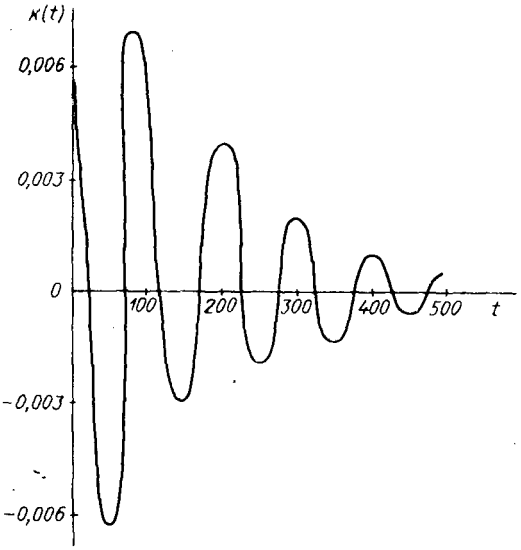


Рис. 4.13. Рассчитанная функция веса к примеру 4.6.2.

уравнению импульсной функции преобразование Лапласа, можно получить следующую передаточную функцию:

$$W_p = 8{,}5\cdot 10^{-3}\,\frac{0{,}74p + 0{,}04}{p + 0{,}0176}\cdot\frac{(p + 0{,}008)^2 + 0{,}0026}{(p + 0{,}0056)^2 + 0{,}0026}.$$

Дифференциальное уравнение, описывающее объект исследования, имеет вид

$$\frac{d^3y}{dt^3} + 0{,}0288\frac{d^2y}{dt^2} + 0{,}0028\frac{dy}{dt} + 4\cdot 10^{-5}y =$$

$$= 8{,}5\cdot 10^{-3}\left(0{,}74\frac{d^3x}{dt^3} + 0{,}0518\frac{d^2x}{dt^2} + 0{,}0026\frac{dx}{dt} + 0{,}0001x\right).$$

Полученную передаточную функцию или дифференциальное уравнение, т. е. математическую модель динамических свойств объекта, можно использовать для синтеза системы автоматического регулирования.

4.7. Примеры исследования формальной кинетики химических процессов

В этом разделе приведено несколько примеров исследования кинетических зависимостей химических процессов в соответствии с алгоритмами 2.3. Примеры достаточно просты, а расчеты по ним доступны на ЭКВМ.

4. 7. 1. Исследование процесса сополимеризации с использованием алгоритма линеаризации кинетических зависимостей. Исследовалась кинетика процесса сополимеризации α, β, β-трифторстирола с метакриловой кислотой при небольших степенях превращения исходных мономеров в полимер. Было предложено следующее уравнение формальной кинетики:

$$W = k[C_1 + C_2]^{n_1}[C_3]^{n_2}, \qquad k = k_0 e^{-\frac{E}{RT}},$$

где $[C_1]$, $[C_2]$ — концентрации исходных мономеров; $[C_3]$ — концентрация инициатора (перекиси бензоила); n_1, n_2 — порядок реакции по суммарной концентрации мономеров и инициатору; E — энергия активации; k — суммарная константа реакции; k_0 — предэкспоненциальный множитель; R — универсальная газовая постоянная; T — абсолютная температура.

Приведенное уравнение справедливо (по априорным сведениям) в диапазонах изменения концентрации и температур: $[C_1]+[C_2]$—8,08÷11,18 моль/л, $[C_3]$—0,0504÷÷0,1512 моль/л, при 60—80°С. Ставится задача определения всех констант уравнения формальной кинетики.

Решение. Логарифмируя уравнение кинетики, получим

$$\lg W = \lg k_0 + n_1 \lg[C_1 + C_2] + n_2 \lg [C_3] - \frac{E}{R} \lg e \frac{1}{T},$$

или в общем виде

$$\hat{y} = b'_0 + b'_1 X_1 + b'_2 X_2 - b'_3 X_3,$$

где

$$\hat{y} = \lg W, \; b'_0 = \lg k_0, \; b'_1 = n_1, \; b'_2 = n_2, \; b'_3 = \frac{E}{R} \lg e,$$

$$X_1 = \lg [C_1 + C_2], \; X_2 = \lg [C_3], \; X_3 = \frac{1}{T}.$$

Таблица 4.24. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Наименование	$\lg [C_1+C_2]$	$\lg [C_3]$	$\frac{1}{T}$
Интервал варьирования	0,0703	0,2380	0,00008
Нулевой уровень	0,9777	—1,0591	0,00292

Таблица 4.25. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	Условия опыта в натуральном масштабе			Скорость сополимеризации $W \cdot 10^3$, моль/(л·с)	Факторы				Логарифм начальной скорости (средний по двум опытам) $\lg W_0$
	$[C_1+C_2]$, моль/л	$[C_3]$, моль/л	T, °C		X_0	X_1	X_2	X_3	
1	11,18	0,0504	60	1,11	+	+	—	—	$\bar{3}$,0453
2	8,08	0,0504	60	0,76	+	—	—	—	$\bar{4}$,8808
3	11,18	0,0504	80	6,60	+	+	—	+	$\bar{3}$,8195
4	8,08	0,0504	80	4,46	+	—	—	+	$\bar{3}$,6776
5	11,18	0,1512	60	1,85	+	+	+	—	$\bar{3}$,2672
6	8,08	0,1512	60	1,29	+	—	+	—	$\bar{3}$,1106
7	11,18	0,1512	80	11,30	+	+	+	+	$\bar{2}$,0531
8	8,08	0,1512	80	8,17	+	—	+	+	$\bar{3}$,9122

Воспользуемся планом ПФЭ 2^4. Для получения кодированных переменных x_i выберем приведенные выше диапазоны изменения концентраций и температур. Пересчитаем интервалы варьирования факторов и координаты центра плана (табл. 4.24). План эксперимента (табл. 4.25) реализован. Для получения $y = \lg W$ в процессе проведения каждого опыта получены кинетические кривые зависимости степени превращения вещества q от времени. Кривые аппроксимировали линейным уравнением регрессии

$$q = d_0 + d_1 t,$$

коэффициенты d_0, d_1 которого определяли методом наименьших квадратов. Это уравнение использовалось для расчета начальной скорости реакции — W_0 было получено как произведение коэффициента d_1 на исходную сум-

марную концентрацию мономеров. В плане эксперимента приведен расчетный столбец $y = \lg W_0$.

По результатам эксперимента (проводились два параллельных опыта по каждой строке матрицы планирования) в соответствии с уравнениями (1.138), (1.140) получена дисперсия $s_0^2 = 0{,}0296$ ($s_0 = 5{,}43 \cdot 10^{-2}$) при $f_0 = 8$. Коэффициенты линейного уравнения

$$\hat{y} = b_0 + b_1 x_1 + b_2 x_2 + b_3 x_3,$$

определяли в соответствии с алгоритмами 1.5.1

$$b_0 = -2{,}5292; \quad b_1 = 0{,}075; \quad b_2 = 0{,}115; \quad b_3 = 0{,}3948.$$

Ошибка коэффициентов b_i определялась по формуле (1.141a)

$$s_{b_i} = \sqrt{s_{b_i}^2} = \frac{5{,}43 \cdot 10^{-2}}{8 \cdot 2} = 1{,}35 \cdot 10^{-2}.$$

Проверка значимости по t-критерию ($t_т = 2{,}31$) показала, что все коэффициенты значимы ($t_{pi} > t_т$). Проверка адекватности уравнения регрессии

$$s_{ад}^2 = \frac{2 \sum_{u=1}^{8} (\lg W_{0u} - \lg \hat{W}_{0u})^2}{8 - 4} = 0{,}09;$$

$$F_р = \frac{s_{ад}^2}{s_0^2} = \frac{0{,}09}{0{,}0296} = 3{,}04;$$

$F_р < F_т = 3{,}84$ ($f_{ад} = 4$, $f_0 = 8$, $q = 0{,}05$, см. приложение 5).

Таким образом, уравнение регрессии адекватно эксперименту. Учитывая замечание к 2.3.1, перейдем от кодированных факторов к натуральным (2.37)

$$b'_1 = n_1 = \frac{b_1}{\Delta X_1} = \frac{0{,}075}{0{,}0703} = 1{,}05 \approx 1;$$

$$b'_2 = n_2 = \frac{b_2}{\Delta X_2} = \frac{0{,}115}{0{,}238} = 0{,}49 \approx 0{,}5;$$

$$b'_3 \approx E/R = \frac{b_3 \cdot 1}{\Delta X_3 \lg e} = \frac{0{,}3948 \cdot 1{,}987 \cdot 10^{-3} \cdot 2{,}3 \cdot 4{,}186}{8 \cdot 10^{-5}} = 94{,}41.$$

$$b'_0 = b_0 + b_1 \frac{X_{10}}{\Delta X_1} + b_2 \frac{X_{20}}{\Delta X_2} + b_3 \frac{X_{30}}{\Delta X_3} = 10{,}5123,$$

т. е. $k_0 = 0{,}3253 \cdot 10^{11}$.

Окончательный вид уравнения формальной кинетики следующий:

$$W = 0{,}3253 \cdot 10^{11} \; [C_1 + C_2]^1 [C_3]^{0{,}5} e^{-\frac{89{,}67}{T}}.$$

Легко доказать, что ошибки констант можно уменьшить, расширив интервалы варьирования факторов.

4. 7. 2. Исследование кинетики сушки волокнистых материалов методами планирования эксперимента. Процесс сушки исследовался на лабораторном сушильном стенде, состоящем из горизонтальной и вертикальной сушильных камер, калорифера, паровых котлов и вентиляционной установки. Стенд предусматривает варьирование в достаточно широких пределах основных параметров процесса сушки, их контроль и регулирование. В эксперименте использовалась моченцовая льнотреста, полученная методом тепловой мочки. Льняная солома выдерживалась в течение трех суток в емкости с водой, температура которой поддерживалась в пределах 36—38°С. Перед экспериментом льнотреста отжималась с целью достижения необходимой исходной влажности (около 200%).

Выходной переменной процесса сушки принято влагосодержание материала y (%), определяемое по классической методике. В качестве варьируемых (режимных) переменных выбраны: температура сушильного агента x_1 (нагретый воздух) — возможные пределы варьирования — 80—150°С; скорость подачи сушильного агента x_2 — возможные пределы варьирования 1—10 м/с; влагосодержание сушильного агента x_3 — возможные пределы варьирования 10—120 г/кг сухого воздуха; плотность загрузки льнотресты на ленту конвейера x_4 — возможные пределы варьирования 0,5—3,5 кг/м^2.

При построении математической модели процесса сушки использован план типа ПФЭ 2^4 с числом опытов $N=16$. Для расчета ошибки опыта в центре плана реализованы три параллельных опыта. Влагосодержание материала измеряли в фиксированные моменты времени с интервалом 1,5 мин, начиная с $\tau=3$ мин. Матрица планирования с указанием выбранных нулевых уровней и интервалов варьирования представлена в табл. 4.26.

Для каждого момента времени получены математические модели процесса сушки в виде полиномов, включающих линейные факторы x_i и их взаимодействие $x_i\, x_j$.

Таблица 4.26. **План и результаты эксперимента**

Наименование	Факторы				Результаты эксперимента						
	X_1	X_2	X_3	X_4							
Основной уровень	110	3,5	85	225	$\tau=3$	$\tau=4{,}5$	$\tau=6$	$\tau=7{,}5$	$\tau=9$		
Интервал варьирования	10	0,5	15	25							
Верхний уровень	120	4	100	250							
Нижний уровень	100	3	70	200							

Номер опыта	x_0	План					y_1	y_2	y_3	y_4	y_5	y^x	k
		x_1	x_2	x_3	x_4	x_5							
1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	94,5	59,4	37,2	27,1	6,5	94,5	0,42558
2	+1	−1	+1	+1	+1	+1	98,0	65,4	40,0	30,9	8,6	8,6	0,40506
3	+1	+1	−1	+1	+1	+1	108,0	72,2	47,0	33,0	13,0	13,0	0,34622
4	+1	−1	−1	+1	+1	−1	110,0	78,7	52,0	37,6	21,5	110,0	0,26872
5	+1	+1	+1	−1	+1	−1	82,3	56,5	36,0	28,0	7,2	82,3	0,43872
6	+1	−1	+1	−1	+1	+1	84,6	63,5	39,4	31,5	14,4	14,4	0,40822
7	+1	+1	−1	−1	+1	+1	93,3	72,4	41,2	33,0	15,1	15,1	0,3117
8	+1	−1	−1	−1	+1	−1	102,0	76,6	45,0	34,0	16,0	102,0	0,30856
9	+1	+1	+1	+1	−1	−1	79,5	47,0	27,0	13,7	5,6	79,5	0,44161
10	+1	−1	+1	+1	−1	+1	89,9	59,7	34,0	19,0	7,8	7,8	0,40711
11	+1	+1	−1	+1	−1	+1	94,0	63,5	36,0	24,5	10,3	10,3	0 36810
12	+1	−1	−1	+1	−1	−1	102,5	69,0	44,0	30,0	16,6	102,5	0,30310
13	+1	+1	+1	+1	−1	−1	64,0	34,0	14,15	8,7	3,6	64,0	0,47910
14	+1	−1	+1	−1	−1	+1	78,4	42,0	17,5	9,8	5,6	5,6	0,43930
15	+1	+1	−1	−1	−1	+1	88,0	53,0	33,0	17,5	18,6	18,6	0,38720
16	+1	−1	−1	−1	−1	−1	98,0	58,5	39,0	22,5	12,5	98,0	0,37560
17	+1	0	0	0	0	0	93,5	56,2	36,0	19,5	10,0		
18	+1	0	0	0	0	0	91,5	55,2	35,0	19,0	9,4		
19	+1	0	0	0	0	0	93,0	56,0	36,5	20,2	9,8		

Расчеты проводились на ЭВМ «Мир-1» по алгоритму 2.3.4. Модели для фиксированных моментов времени оказались адекватными, но использовать их невозможно, поскольку определенной закономерности в изменении коэффициентов от одного момента времени к другому не установлено (табл. 4.27).

Таблица 4.27. **Коэффициенты математических моделей процесса сушки для фиксирования моментов времени (подчеркнуты незначимые коэффициенты)**

Коэффициенты	Моменты времени τ, мин				
	3,0	4,5	6,0	7,5	9,0
b_0	91,31	60,71	35,94	28,28	10,225
b_1	−3,88	−3,46	−2,62	2,20	−1,74
b_2	−7,44	−7,28	−5,98	−4,26	−3,88
b_3	4,99	3,65	3,84	2,44	1,08
b_4	4,53	7,37	5,19	6,32	4,93
b_{12}	0,04	−0,95	0,46	0,26	0,79
b_{13}	−1,56	−0,38	−0,106	−0,75	−0,64
b_{14}	1,55	1,17	0,26	−0,05	0,06
b_{23}	1,59	0,98	1,10	0,78	0,23
b_{24}	1,39	0,39	1,27	1,12	−0,91
b_{34}	0,30	−2,81	0,92	2,53	−0,24

Тогда в математическую модель включили время с нулевым уровнем $X_{50}=6$ мин, верхним уровнем $X_{5в}=9$ мин и нижним уровнем $X_{5н}=3$ мин; выбранные из столбцов y_1—y_5 значения y^* приведены в предпоследнем столбце табл. 4.26 ($x_5=-x_1x_2$).

Выполненные по тем же алгоритмам расчеты и статистический анализ показали неадекватность как линейной, так и неполной квадратичной модели. Для получения адекватной модели привлечена априорная информация, на основе которой можно предположить, что процесс сушки можно описать кинетическим уравнением первого порядка вида (2.38)

$$\frac{dy}{d\tau} = -ky,$$

где τ — время (x_5); k — константа скорости реакции. Решением уравнения будет

$$y = y_0 e^{-k\tau} \qquad (А)$$

или после логарифмирования

$$\ln y = \ln y_0 - k\tau, \qquad (Б)$$

где y_0 — исходная влажность льнотресты.

Используя метод наименьших квадратов и рекомендации алгоритма 2.3.2, оценены значения константы скорости k для каждого опыта. Эти значения приведены в последнем столбце табл. 4.27.

Получено следующее уравнение регрессии

$$k = 0{,}3829 + 0{,}01932x_1 + 0{,}04681x_2 - 0{,}01447x_3 -$$

$$- 0{,}0191x_4 + 0{,}00706x_2x_4 + 0{,}0063x_3x_4.$$

Коэффициенты при взаимодействиях x_1x_2, x_1x_3, x_1x_4 и x_2x_3 оказались незначимыми (проверка производилась по t-критерию), а само уравнение — адекватным ($F_p = 18{,}40$, $F_т = 19{,}40$ при $f_1 = 8$, $f_2 = 2$).

Для использования приведенного выше уравнения в расчетах необходимо перевести переменные x_i из кодированной формы в натуральную по уравнению (2.37). Полученное уравнение, описывающее зависимость константы скорости k от режимных параметров X_i, имеет вид

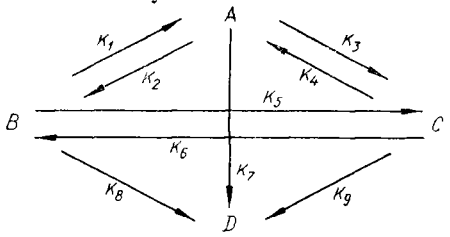
$$k = 0{,}11782 + 0{,}00193X_1 - 0{,}07686X_2 - 0{,}006527X_3 -$$

$$- 1{,}6675X_4 + 0{,}00051X_1X_3 + 0{,}22592X_2X_4 + 0{,}00672X_3X_4.$$

Используя это уравнение и уравнения (А) и (Б), можно вычислять продолжительность сушки льнотресты в зависимости от выбранных режимных факторов X_i (температуры и скорости подачи сушильного агента, его влагосодержания и плотности загрузки льнотресты на ленте конвейера). Полученные уравнения также можно использовать при решении задачи оптимизации процесса сушки льнотресты.

4. 7. 3. Исследование кинетики реакций каталитического окислительного дегидрирования бутенов в дивинил. На основании априорных сведений принят механизм реакций, в котором исключена возможность обратных пре-

вращений дивинила в бутилены:



где A, B, C, D — соответственно бутен-1, *транс*-бутен-2, *цис*-бутен-2, дивинил.

При изучении кинетики реакций окислительного дегидрирования установлен нулевой порядок по кислороду и первый порядок по бутиленам; специальными опытами доказано отсутствие тормозящего влияния продуктов реакции. Кинетика реакций представлена системой дифференциальных уравнений

$$\frac{dC_A}{dt} = -(k_1 + k_3 + k_7)C_A + k_2C_B + k_4C_C;$$

$$\frac{dC_B}{dt} = -(k_1 + k_5 + k_8)C_B + k_1C_A + k_6C_C;$$

$$\frac{dC_C}{dt} = -(k_4 + k_6 + k_9)C_C + k_3C_A + k_5C_B;$$

$$\frac{dC_D}{dt} = k_7C_A + k_8C_B + k_9C_C,$$

где k_i, $i=1, 2, \ldots, 9$ — константы скоростей псевдомолекулярных реакций; C_A, C_B, C_C, C_D — концентрации реагентов в газовой фазе.

Ставится задача определить по экспериментальным данным константы скоростей реакций и показать адекватность предложенного механизма реакций.

Воспользуемся рекомендациями и определениями алгоритма 2.3.4. Обозначим начальные концентрации веществ A_0, B_0, C_0 соответственно через X_1, X_2, X_3. Рассматривая скорости накопления веществ как отклики y_k, а начальные концентрации как зависимые факторы, получим систему уравнений

$$\hat{y}_1 = b_{01} + b_{11}x_1 + b_{21}x_2 + b_{31}x_3;$$

$$\hat{y}_2 = b_{02} + b_{12}x_1 + b_{22}x_2 + b_{32}x_3;$$

$$\hat{y}_3 = b_{03} + b_{13}x_1 + b_{23}x_2 + b_{33}x_3;$$

$$\hat{y}_4 = b_{04} + b_{14}x_1 + b_{24}x_2 + b_{34}x_3,$$

где x_i связаны с X_i обычным кодированием.

Кинетику дегидрирования бутенов исследовали при различных температурах. Для каждой температуры составлялась своя матрица планирования эксперимента. Ниже приведены результаты для $T=669$ К. Исходные данные для планирования эксперимента приведены в табл. 4,28, а план эксперимента — в табл. 4.29. Учитывая линейность системы уравнений, достаточно использовать факторный план первого порядка ДФЭ 2^{3-1} или, для большей точности, ПФЭ 2^3 (см. табл. 4.29).

Таблица 4.28. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Наименование	X_1	X_2	X_3
Интервал варьирования ΔX_i	0,00500	0,00386	0,00331
Нулевой уровень X_{i0}	0,01500	0,01158	0,00993

Таблица 4.29. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	План			Выходная переменная			
	x_1	x_2	x_3	y_1	y_2	y_3	y_4
1	−1	−1	−1	−0,288	0,046	0,003	0,272
2	−1	−1	+1	−0,263	0,077	−0,102	0,255
3	−1	+1	−1	−0,286	−0,124	0,041	0,257
4	+1	−1	−1	−0,737	0,068	0,033	0,370
5	+1	+1	+1	−0,678	−0,063	−0,060	0,426
6	+1	+1	−1	−0,725	−0,043	0,058	0,342
7	+1	−1	+1	−0,705	0,124	−0,130	0,356
8	−1	+1	+1	−0,276	−0,139	−0,180	0,262

Ошибку опыта определяли по параллельным опытам в некоторых точках факторного пространства. Скорость накопления веществ y (мол. доли/с) определяли по формулам

$$\hat{y}_1 = \frac{C_A(t) - C_{A_0}}{t}; \qquad y_2 = \frac{C_B(t) - C_{B_0}}{t};$$

$$\hat{y}_3 = \frac{C_C(t) - C_{C_0}}{t}; \qquad y_4 = \frac{C_D(t) - C_{D_0}}{t}.$$

В этих формулах индекс 0 относится к начальным концентрациям бутенов, а t — к концентрациям, соответствующим времени t. Из приведенных формул ясно, что начальные участки кинетических кривых аппроксимированы прямой линией. Очевидно, что вычисленные оценки скоростей накопления реагентов не будут точно соответствовать экспериментальным данным, причем, чем реагирующее вещество более химически активно, тем большая возникает погрешность. В табл. 4.30 приведены константы скоростей реакций, полученных из расчетных значений коэффициентов b_i, системы линейных уравнений, а также их среднеквадратические ошибки.

Таблица 4.30. **Расчетные значения констант скоростей**

	Константы скоростей, c^{-1}								
	k_1	k_2	k_3	k_4	k_5	k_6	k_7	k_8	k_9
По плану	7,128	0,74	6,62	5.60	3,47	2,57	10,80	1,08	2,90
Ошибка $s(k_i)$	1,8	2,6	1,8	3,5	2,6	3,5	1,8	2,6	3,5

В работе [2, с. 248] исследователи не были удовлетворены полученными ошибками коэффициентов (последняя строка табл. 30) и провели поиск констант методом нелинейных оценок, используя критерии (2.42) и (2.43). Оценки констант были уточнены и была доказана адекватность предполагаемого механизма реакций.

Глава 5

ПРИМЕРЫ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ МЕТОДОВ ПЛАНИРОВАНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА ДЛЯ РЕШЕНИЯ ЗАДАЧ ИССЛЕДОВАНИЯ СЛОЖНЫХ ОБЪЕКТОВ В ХИМИЧЕСКОЙ ТЕХНОЛОГИИ

Введение. В этой главе рассмотрены задачи, иллюстрирующие особенности применения методов планирования эксперимента при исследовании сложных объектов

химической технологии. Задачи подобраны так, чтобы отразить эти особенности для основных типов соединений процессов — последовательного, параллельного и с рециклом, а также продемонстрировать применение системы методов планирования эксперимента для достижения различных целей.

Следует отметить, что работ, где решаются системные задачи химической технологии, еще очень мало. Еще меньше таких работ, в которых удачно сочетаются научные и методические аспекты.

5.1. Планирование эксперимента при оптимизации комплекса параллельно протекающих технологических процессов

Введение. В химической и смежных отраслях промышленности нередко возникает задача оптимизации комплекса технологических процессов. Подобная задача, как правило, требует постановки экспериментальных исследований, особенно в тех случаях, когда информация о процессах недостаточна или вообще отсутствует. Вполне понятно, что при этом целесообразно использовать методы планирования эксперимента с точки зрения сокращения объема опытов, удобства математической обработки получаемой информации, повышения точности и надежности расчетов и по другим причинам.

В качестве объекта исследования и оптимизации в данном случае рассматривается комплекс процессов очистки от ртути промышленных растворов и отходов производства едкой щелочи и хлора методом ртутного электролиза.

Отличительная особенность ртутного метода получения щелочи и хлора состоит в том, что технологический процесс протекает в двух взаимосвязанных аппаратах — электролизере и разлагателе амальгамы, в связи с чем производственные потоки условно разделяются на два независимых цикла: рассольно-анолитный и амальгамно-щелочный.

В электролизер с ртутным катодом непрерывно подается свежий водный раствор поваренной соли (305—310 г/л NaCl) в результате чего образуется газообразный хлор и амальгама натрия

$$2NaCl + 2nHg \longrightarrow Cl_2 + 2Na[Hg]n. \qquad (5.1)$$

Отработанный электролит (анолит), содержащий 260—270 г/л NaCl, вытекает из электролизера; газообразный хлор также удаляется в сборные коллекторы через специальные прорези. Ртуть по мере протекания по наклонному дну электролизера в результате электролиза хлорида натрия превращается в амальгаму натрия и через ртутный затвор поступает в разлагатель амальгамы, куда также подается вода и где происходит вторая стадия процесса

$$2Na[Hg]_n + 2H_2O \longrightarrow 2NaOH + H_2 + 2nHg. \qquad (5.2)$$

Образовавшийся концентрированный раствор едкого натра является товарным продуктом, который направляется в специальные сборники; обедненная амальгама (практически чистая ртуть) перекачивается насосом в электролизер.

Следует отметить, что в производстве хлора и каустика ртутным электролизом, ртуть практически полностью регенерируется при разложении амальгамы и ее потери, главным образом, обусловлены уносом с технологическими потоками и механическими потерями. Составить баланс потерь ртути обычно не удается, поскольку часть потерь может быть оценена лишь приближенно. Анализ так называемого условного баланса потерь ртути в производстве щелочи и хлора ртутным электролизом показывает, что наибольшее количество (более одной трети) ртути теряется со шламами, пятая часть уносится с анолитом, около двух процентов — со сточными водами и столько же с газами; унос ртути с раствором едкого натра наименьший — около 0,5%.

Очистка всех ртутьсодержащих потоков производства щелочи и хлора (независимо от ее содержания в потоке) — важнейшая технологическая и народнохозяйственная задача, решение которой позволит сохранить дефицитную и дорогостоящую ртуть, использовать отходы производства для получения удобрений и других веществ, повысить качество основных продуктов (особенно щелочи, потребляемой в производстве искусственного волокна), создать требуемые санитарными нормами условия труда и внести существенный вклад в дело охраны окружающей среды от загрязнений ртутью.

Перечень основных ртутьсодержащих промышленных растворов и отходов рассматриваемого производства и

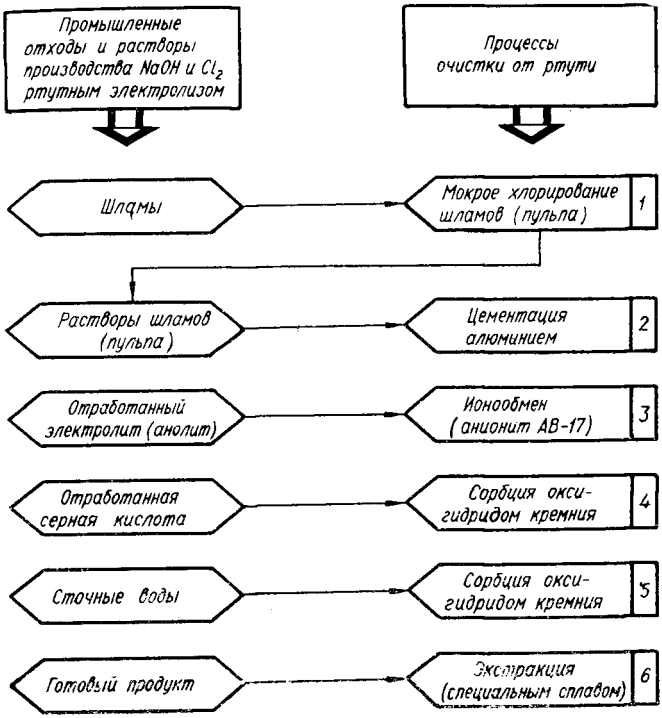


Рис. 5.1. Схема процессов очистки ртутьсодержащих потоков.

соответствующих процессов очистки от ртути представлен на рис. 5.1.

Отмеченное многообразие ртутьсодержащих потоков, связанных единой технологией производства, характеризуется особенностями, главными из которых являются:

а) наличие всех агрегатных состояний в ртутьсодержащих потоках;

б) разнообразие форм ртути в технологических средах; в частности, в продукционном каустике ртуть находится в мелкодисперсном металлическом состоянии, в хлор-газе в виде паров сулемы, в шламах — в металлической форме и в составе нерастворимых соединений, в остальных технологических растворах — в катионной или анионной формах, в сточных водах — практически во всех вышеперечисленных формах;

в) крупнотоннажность технологических потоков с регламентированным содержанием ртути во всех потоках;

г) малая концентрация ртути в технологических средах на фоне больших количеств других веществ (например, в анолите содержится 5—10 мг/л ртути и 260—270 г/л хлорида натрия, в 50%-ных растворах едкого натра обычно содержится $5 \cdot 10^{-4}$ мас. % ртути, в шламах на 98% твердого вещества приходится 1,5—2% ртути и т. д.);

д) значительная реакционная и коррозионная способность технологических потоков и высокая токсичность ртути.

Перечисленные особенности создают существенные затруднения при разработке достаточно эффективных и экономически выгодных методов очистки технологических потоков от ртути в промышленных условиях и, разумеется, не дают возможности найти универсальный способ очистки, пригодный для всех ртутьсодержащих потоков данного производства. На рис. 5.1 указаны процессы очистки потоков от ртути, которые по мнению технологов являются наиболее эффективными на современном этапе.

Учитывая малую изученность процессов извлечения ртути из растворов и отходов производства щелочи и хлора, наличие большого количества определенных факторов и высокую токсичность ртути, для решения задачи исследования и оптимизации выбранного объекта целесообразно применять методы математического планирования эксперимента, обладающие, как правило, определенными преимуществами. При этом требуется минимальное количество экспериментов, и как следствие, наименьший контакт экспериментатора со ртутью, а также имеются реальные условия снизить стоимость эксперимента и получить интересующую информацию о процессах для установления оптимальных режимов их протекания.

5. 1. 1. Постановка задачи оптимизации комплекса потоков ртутьсодержащих сред. Проблема выделения ртути из промышленных растворов и отходов производства хлора вначале решалась технологами эмпирически, непосредственно на производстве вследствие его особенностей, сложности и малой изученности процессов очистки. Такая постановка исследований, кроме решения частных задач, позволяла: установить агрегатные состояния ртути в производственных потоках, составы и физико-химические характеристики растворов и отходов; определить наи-

более рациональные способы технологии извлечения ртути из различных технологических потоков; получить равновесные и кинетические характеристики процессов выделения ртути из промышленных растворов и отходов.

Все это является результатом решения технологической задачи, которая в данном случае состоит в получении необходимой информации о протекании процессов очистки ртутьсодержащих сред и предшествует решению задачи математического моделирования и оптимизации на основе методов планирования эксперимента. В свою очередь задача оптимизации определяется той очевидной целью, которая предполагает обеспечение максимального извлечения ртути из всех технологических сред предлагаемыми методами утилизации ртути.

Как видно из рис. 5.1, объект исследования представляет собой сложную систему, составными звеньями которой являются различные процессы очистки. Для удобства математической формулировки задачи оптимизации исследуемый объект можно представить блочной схемой, изображающей потоки ртутьсодержащих сред, участвующих в производстве каустической соды и хлора (рис. 5.2).

На этой схеме блоки 1, 2, ..., k представляют собой разработанные технологами методы и установки, позволяющие осуществить утилизацию ртути, содержащейся в технологических потоках.

В производственных условиях извлеченная ртуть возвращается в технологический цикл через так называемую буферную емкость (E), куда она поступает из всех блоков в результате реализации процессов очистки, вследствие чего возвращаемый в производство поток ртути в количестве y_0 является разомкнутым. Поэтому в целом рассматриваемую систему извлечения ртути из различных технологических сред можно представить параллельными блоками без обратной связи. Входные величины блоков X_j ($j=1, 2, ..., k$) связаны между собой, неуправляемы и определяются технологическим режимом производства хлора и едкого натра. Выходные величины каждого блока $y_j (j=1, 2, \ldots, k)$ объединяются в суммарную выходную переменную объекта. Технологические блоки (процессы очистки) имеют управляющие воздействия.

$$X_{ji} \quad (j = 1, 2, ..., k, \ i = 1, 2, ..., n),$$

где k — количество блоков; n — количество управляющих воздействий.

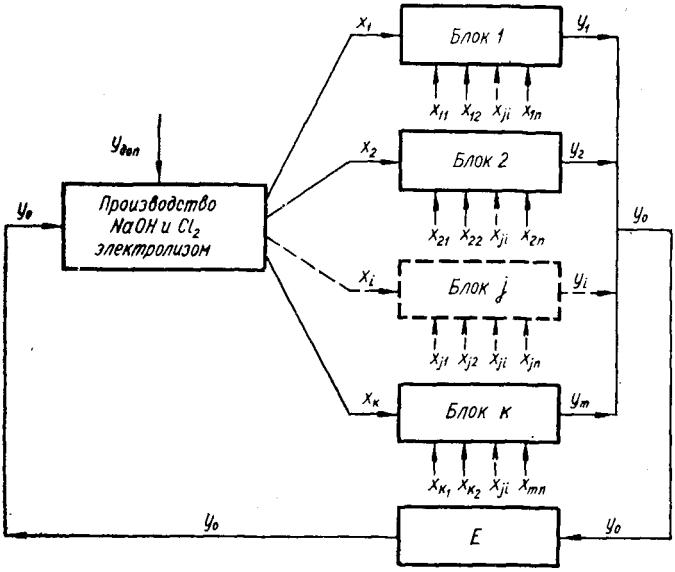


Рис. 5.2. Блок-схема потоков ртутьсодержащих сред в производстве едкого натра.

Таким образом, задача оптимизации рассматриваемого технологического комплекса сводится к задаче оптимизации системы с параллельным соединением процессов (см. гл. 3, задачу 3.1.2).

Применительно к рассматриваемой технологической системе задача оптимизации (максимальное извлечение ртути) может быть несколько изменена вследствие двух обстоятельств. Во-первых, в данном случае функция цели блоков системы совпадает с выходной переменной y_j, оценивающей количество извлеченной ртути. Во-вторых, исходя из технологических требований, которые определяются высокой токсичностью ртути и методами измерения ее содержания, предпочтителен вариант измерения содержания не извлеченной, а остаточной ртути в каждой из ртутьсодержащих сред. При этом следует также учесть, что методы измерения малых количеств ртути хорошо отработаны и отличаются высокой точностью.

Таким образом, задачу оптимизации в данном случае более целесообразно формулировать как задачу минимизации содержания остаточной ртути. Исследования также показали, что изменение X_j в реальных промышлен-

ных процессах очистки от ртути технологических сред производства едкого натра и хлора практически не влияет на степень очистки, т. е. на выходную переменную.

Изложенное выше позволяет сделать вывод о том, что оптимизация системы (см. рис. 5.2) может быть проведена на нижнем уровне решением частных задач оптимизации каждого блока (определение $x_{j\text{опт}}$) при регламентированных технологией производства содержаниях ртути $X_{j\text{техн}} \approx \text{const}$ в ртутьсодержащих потоках, поступающих в блоки 1, 2, 3, ..., k. Следовательно, оптимизация изучаемой системы заключается в поиске оптимальных режимов каждого технологического блока (или процесса очистки) на основе методов планирования эксперимента. Решение указанных задач оптимизации проводится в последующих параграфах данной главы в порядке, обозначенном на рис. 5.1. При этом каждой задаче присваивается номер блока (например, задача Б1, задача Б2 и т. д.).

5. 1. 2. Задача Б1. Мокрое хлорирование ртутьсодержащих шламов. *Информация о процессе.* Проблема регенерации ртути из бедных ртутьсодержащих шламов до сих пор еще не удовлетворительно решена в основном из-за существенных трудностей реализации технологического процесса извлечения ртути при малых ее количествах в исходном сырье, невысокой экономичности этого процесса (мало ртути регенерируется) и беспечности по отношению к отходам, содержащим хотя и небольшие, но опасные количества сильнотоксичного вещества. В результате происходит недопустимое накопление бедных шламов, особенно в крупнотоннажном производстве едкой щелочи и хлора ртутным электролизом. Поэтому их переработка приобретает первостепенное значение.

В условиях производства хлора по утверждению технологов наилучшим методом перевода ртути из бедных шламов в растворимые соединения является мокрое хлорирование, которое отличается высоким коэффициентом извлечения ртути ($\eta = 90\%$), если хлором обрабатываются солянокислые суспензии. Следует подчеркнуть рентабельность приготовления именно таких суспензий, поскольку в производстве хлора имеется для этой цели достаточное количество абгазной соляной кислоты.

Предварительные исследования процесса хлорирования солянокислых суспензий проводились на лабораторной установке, основным элементом которой был реактор,

снабженный пропеллерной мешалкой, которая приводилась во вращение электродвигателем. Результаты этих исследований позволяют сделать следующие выводы:

а) процесс хлорирования существенно зависит от скорости перемешивания суспензии; при увеличении числа оборотов мешалки от 400 до 1000 об./мин степень извлечения ртути из шламов возрастает до 90%;

б) зависимость степени извлечения ртути из шламов от расхода хлора, являясь практически линейной, показывает, что с увеличением расхода хлора степень извлечения ртути возрастает; в ходе эксперимента также установлено, что большой избыток хлора нерационален, поскольку приводит к значительным проскокам хлора;

в) с увеличением температуры от 20 до 60°С степень извлечения ртути уменьшается; это обусловлено снижением растворимости хлора с ростом температуры при прочих равных условиях эксперимента;

г) с увеличением концентрации соляной кислоты степень извлечения ртути возрастает, в частности, при постепенном переходе от 50 до 150 г/л соляной кислоты степень извлечения ртути увеличивается более чем в два раза.

Построение математической модели. Выбор выходной переменной и факторов. В качестве выходной переменной y целесообразно в данном случае принять извлечение ртути из шламовой суспензии, поскольку эта переменная является количественной характеристикой процесса и ее достаточно точно можно измерить анализом проб растворов на ртуть.

Специальные кинетические исследования процесса мокрого хлорирования позволяют считать, что существенно влияют на y следующие факторы: интенсивность перемешивания (X_1 об./мин), расход хлора (X_2, л/ч), температура (X_3, °С), количество соляной кислоты, необходимой для приготовления шламовой суспензии (X_4, г/л).

Оценка области изменения выбранных факторов проведена по результатам тех же специальных опытов, с учетом особенностей кинетики процесса, технологических условий, возможного аппаратурного оформления. При этом установлена следующая область определения факторов:

$$400 \leqslant X_1 \leqslant 1000 \text{ (об./мин)}; \quad 10 \leqslant X_3 \leqslant 60 \text{ (°С)};$$
$$0{,}5 \leqslant X_2 \leqslant 3{,}5 \text{ (л/ч)}; \quad 75 \leqslant X_4 \leqslant 150 \text{ (г/л)}.$$

Выбор центра плана, интервалов варьирования и кодирование факторов проведены согласно рекомендациям

и при использовании зависимостей (1. 129). Все условия (выбранные и рассчитанные), необходимые для постановки эксперимента, приведены в табл. 5.1. В нижней строке этой таблицы записан общий вид уравнения регрессии с учетом парных взаимодействий (факторы X_i — кодированные).

Таблица 5.1. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Условия опыта	Обозначение	Факторы			
		X_1, об./мин	X_2, л/ч	X_3, °С	X_4, г/л
Нулевой уровень	X_{i_0}	735	2	30	120
Интервал варьирования	ΔX_i	155	1	10	10
Верхний уровень $x_{i_в} = +1$	$X_{i_в}$	890	3	40	130
Нижний уровень $x_{i_н} = -1$	$X_{i_н}$	580	1	20	110
Общий вид уравнения регрессии	$\hat{y} = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_4x_4 + b_{12}x_1x_2 + b_{13}x_1x_3 + b_{14}x_1x_4 + b_{23}x_2x_3 + b_{24}x_2x_4 + b_{34}x_3x_4$				

План эксперимента (матрица планирования), соответствующий ПФЭ типа 2^n (число факторов $n=4$), представлен в табл. 5.2. В этой же таблице приведены экспериментальные значения выходной переменной в параллельных опытах ($m=2$): y_{u1}, y_{u2} и $\bar{y}_u$, расчетные значения построчных дисперсий s_u^2 и значения $\hat{y}_u$, предсказанные по уравнению регрессии со значимыми коэффициентами.

Матрица планирования реализовалась на установке, описанной в [32] в полном соответствии с требованиями, изложенными в гл. 1.

Расчет коэффициентов и статистический анализ уравнения регрессии (математическая обработка экспериментальных данных) проведены по алгоритму 1.5.1 и программе вычислений на ЦВМ «Мир-1». Результаты расчета приведены в табл. 5.3.

Таким образом, полученная адекватная математическая модель исследуемого процесса имеет вид

$$\hat{y} = 81{,}9430 + 3{,}2219x_1 + 2{,}9969x_2 - 6{,}8093x_3 + 8{,}8906x_4 - 0{,}7219x_1x_4 + 1{,}1406x_2x_3 - 0{,}7469x_2x_4 + 2{,}3719x_3x_4.$$

Таблица 5.2. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	x_0	План				Выходная переменная			Расчеты	
		x_1	x_2	x_3	x_4	y_{u_1}	y_{u_2}	$\overline{y_u}$	s_u^2	$\hat{y}_u$
1	+1	+1	+1	+1	+1	90,2	93,5	91,85	5,445	92,285
2	+1	−1	+1	+1	+1	86,0	87,5	86,75	1,125	87,285
3	+1	+1	−1	+1	+1	85,0	86,0	85,50	0,5	85,505
4	+1	−1	−1	+1	+1	81,0	82,0	81,50	0,5	80,505
5	+1	+1	+1	−1	+1	99,0	98,5	98,75	0,125	98,880
6	+1	−1	+1	−1	+1	96,0	94,0	95,00	2,00	93,881
7	+1	+1	−1	−1	+1	97,0	97,5	97,25	0,125	96,661
8	+1	−1	−1	−1	+1	90,2	90,0	90,10	0,02	91,661
9	+1	+1	+1	+1	−1	71,0	73,0	72,00	2,00	72,697
10	+1	−1	+1	+1	−1	66,0	67,5	66,75	0,5	64,813
11	+1	+1	−1	+1	−1	64,5	63,5	64,00	0,5	62,933
12	+1	−1	−1	+1	−1	52,0	54 0	53,00	2,00	55,049
13	+1	+1	+1	−1	−1	89,0	88,0	88,50	0,5	88,777
14	+1	−1	+1	−1	−1	80,4	80,0	80,20	0,08	80,893
15	+1	+1	−1	−1	−1	85,0	82 0	83,50	4,5	83,573
16	+1	−1	−1	−1	−1	76,5	77,0	76,75	0,125	75,689

В уравнении регрессии переменные представлены в кодированной форме. Чтобы получить уравнение регрессии с переменными в натуральном масштабе, необходимо в это уравнение подставить x_i по формуле кодирования (2.37) с использованием информации табл. 5.1. В данном случае будет

$$\hat{y} = 81{,}9430 + 3{,}2219\frac{X_1 - 735}{155} + 2{,}9969\frac{X_2 - 2}{1} -$$

$$- 6{,}8093\frac{X_3 - 30}{10} + 8{,}8906\frac{X_4 - 120}{10} - 0{,}7219\frac{X_1 - 375}{155}\cdot\frac{X_4 - 120}{10} +$$

$$+ 1{,}1406\frac{X_2 - 2}{1}\cdot\frac{X_3 - 30}{10} - 0{,}7469\frac{X_2 - 2}{1}\cdot\frac{X_4 - 120}{10} +$$

$$+ 2{,}3719\frac{X_3 - 30}{10}\cdot\frac{X_4 - 120}{10};$$

Окончательно, математическая модель в натуральных переменных примет следующий вид:

$$\hat{y} = 7{,}63 + 0{,}0767X_1 + 8{,}5372X_2 - 3{,}7552X_3 + 0{,}6692X_4 -$$
$$- 0{,}0005X_1X_4 - 0{,}0747X_2X_4 + 0{,}0237X_3X_4.$$

Таблица 5.3. **Результаты расчета коэффициентов и статистический анализ уравнения регрессии**

№ п/п	Наименование	Расчетные значения
1	Коэффициенты регрессии	$b_0 = 81{,}9430$; $b_4 = 8{,}8906$; $b_{23} = 1{,}1406$ $b_1 = 3{,}2219$; $b_{12} = -0{,}3906$; $b_{24} = 0{,}7469$ $b_2 = 2{,}9969$; $b_{13} = -0{,}219$; $b_3 = 6{,}8093$; $b_{14} = -0{,}7219$; $b_{34} = 2{,}3719$
2	Построчные дисперсии	приведены в табл. 5.2; $\sum_{u=1}^{N} s_u^2 = 20{,}045$
3	Критерий Кохрена (расчетное значение)	$G_р = \frac{5{,}445}{20{,}045} = 0{,}27$
4	Критерий Кохрена (табличное значение)	$G_т = 0{,}47$ ($q = 5\%$, $f_1 = m - 1 = 1$, $f_2 = N = 16$)
5	Условие однородности	выполняется, s_u^2 — однородны
6	Дисперсия воспроизводимости (ошибка опыта)	$s_0^2 = \frac{1}{16} \cdot 20{,}045 = 1{,}2528$
7	Дисперсия коэффициентов регрессии	$s_{b_i}^2 = \frac{1{,}2528}{16 \cdot 2} = 3{,}9 \cdot 10^{-3}$ $s_{b_i} = 19{,}75 \cdot 10^{-3}$
8	Критерий Стьюдента (расчетное значение)	$t_{b_0} = 414{,}3$; $t_{b_3} = 34{,}414$; $t_{b_{14}} = 3{,}648$ $t_{b_1} = 16{,}282$; $t_{b_4} = 44{,}932$; $t_{b_{23}} = 5{,}764$ $t_{b_2} = 15{,}145$; $t_{b_{12}} = 1{,}974$; $t_{b_{24}} = 3{,}775$ $t_{b_{13}} = 0{,}111$; $t_{b_{34}} = 11{,}989$
9	Критерий Стьюдента (табличное значение)	$t_т = 2{,}12$ ($q = 5\%$, $f = N(m-1) = 16$)
10	Условие значимости	выполняется, кроме $t_{b_{12}} < t_т$, $t_{b_{13}} < t_т$ (b_{12} и b_{13} — незначимы, из уравнения регрессии исключаются)
11	Дисперсия адекватности	$s_{ад}^2 = 1{,}1733$; $m = 2$; $N = 16$; $f_{ад} = N - l = 7$; $\hat{y}_u$ вычисляется по уравнению регрессии со значимыми коэффициентами ($l = 9$)
12	Критерий Фишера (расчетное значение)	$F_р = \frac{1{,}1733}{1{,}2528} 0{,}94$
13	Критерий Фишера (табличное значение)	$F_т = 2{,}26$ ($q = 5\%$, $f_1 = f_{ад} = N - l = 7$, $f_2 = N(m-1) = 16$)
14	Условие адекватности	выполняется, уравнение регрессии адекватно процессу

Краткие выводы. Полученная математическая модель позволяет оценить степень как самостоятельного, так и совместного влияния основных параметров процесса извлечения ртути из шламов мокрым хлорированием на выходной параметр этого процесса. С ее помощью можно рассчитать степень извлечения ртути из шламов $(\hat{y})$ для случаев изменения значения одного из факторов в исследуемой области при условии фиксирования всех остальных на нулевом уровне. Таким образом, составленная математическая модель позволяет получить количественную характеристику влияния каждого из факторов в многофакторном процессе.

По значению и знаку коэффициента, стоящего перед соответствующей независимой переменной, можно оценить степень и характер самостоятельного влияния этого параметра на выходную переменную процесса. Как видно из уравнений регрессии, наиболее влияют на процесс извлечения ртути из шламов расход хлора и содержание соляной кислоты. Это подтверждает высказанное технологами предположение о том, что наличие в пульпе растворенного хлора и соляной кислоты значительно увеличивает окислительный потенциал системы вследствие возрастания скорости процесса и образования растворимых хлоридных комплексов ртути.

Достоинство полиноминальной математической модели состоит в том, что она, хотя и не отражает физической стороны процесса, но дает возможность находить оптимальные условия его протекания. В данном случае полученная математическая модель может быть положена в основу оптимизации процесса хлорирования ртутьсодержащих шламов.

Задачу оптимизации можно уточнить так: необходимо найти оптимальный режим в пределах изученной области факторного пространства, обеспечивающий максимальную степень перевода ртути из шламов в растворимые соединения (y_{max}) при заданном исходном содержании ее в шламе. Для решения задачи был реализован алгоритм оптимизации 26.1 (рис. 5.3) применительно к ЦВМ «Мир-1».

В результате выполненных расчетов определены оптимальные значения основных факторов ($X_1 = 890$ об./мин — скорость вращения мешалки; $X_2 = 3$ л/ч — расход хлора; $X_3 = 20°C$ — температура; $X_4 = 130$ г/л — количество соляной кислоты, которому со-

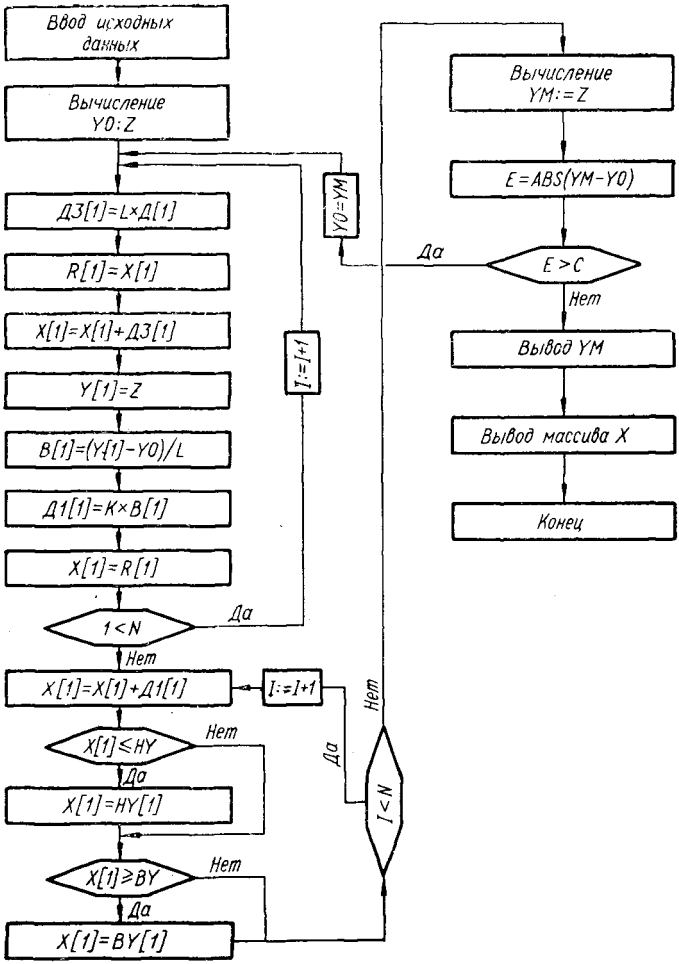


Рис. 5.3. Блок-схема алгоритма метода градиента.

ответствует максимальная степень извлечения ртути ($y_{max}=99\%$) — установлены оптимальные условия процесса перевода ртути из шламов в раствор хлорированием.

Контрольные опыты, поставленные при соблюдении найденных оптимальных условий, показали, что степень перевода ртути из шламов составляет 98,6%.

5.1.3. Задача Б2. Цементация ртути из солянокислых растворов алюминием. *Информация о процессе.* Солянокислые растворы (или пульпа), полученные в результате «вскрытия» бедных шламов мокрым хлорированием, обычно содержит 4—5 г/л ртути. Выделение ртути из таких растворов по мнению технологов наиболее целесообразно проводить методами цементации или сорбции. В рассматриваемой задаче объектом исследования является процесс цементации, который основан на вытеснении ртути из раствора менее благородным металлом. Этот процесс, отличающийся эффективностью и простотой аппаратурно-технологического оформления, в последнее время широко применяется в промышленности, особенно в гидрометаллургии. Тем не менее физико-химическая сущность и механизм цементации (одновременное протекание электрохимических и массообменных процессов) до сих пор еще недостаточно изучены.

Технологические исследования показали, что для осуществления цементации ртути из солянокислых растворов наиболее подходящим металлом-восстановителем является доступный и дешевый металл — алюминий.

Результаты изучения кинетики рассматриваемого процесса позволяют сделать вывод о том, что цементацию ртути из солянокислых растворов рационально осуществлять в непрерывном реакторе; при этом существенно влияют на процесс температура раствора, скорость протекания последнего через реактор и количество загруженного алюминия.

Кинетическими исследованиями установлено, что минимальное количество ртути остается в растворе при более низкой температуре раствора. Однако снижение температуры приводит к уменьшению скорости реакции цементации (влияние изменения температуры изучалось в интервале 50—100°С). Большáя скорость движения раствора через реактор повышает производительность реактора, но не обеспечивает достаточно полной очистки раствора от ртути. По данным того же кинетического исследования влияние этого фактора ощутимо в пределах 300—3000 мл/ч. Установлено также, что интенсивность процесса цементации существенно зависит от содержания алюминия. Область изменения этого параметра в основном определяется экономическими соображениями. В упомянутых выше кинетических исследованиях она принималась равной 6—16 г.

Следует отметить, что на процесс цементации существенно влияет исходная концентрация ртути выше 20 г/л. Поскольку в солянокислых растворах, получаемых после «вскрытия» бедных шламов, концентрация ртути значительно ниже, то этот параметр практически можно не учитывать.

Построение математической модели. Выбор выходной переменной и факторов. Эффективность процесса оценивается степенью очистки раствора от ртути, следовательно, выходной переменной целесообразно выбрать концентрацию ртути в растворе после очистки. Эту выходную переменную можно достаточно точно измерить, что даст количественную характеристику протекающему процессу. Из приведенной выше информации следует, что на процесс цементации в данном случае существенно влияет температура раствора (X_1, °С), скорость его протекания через реактор (X_2, мл/ч) и количество загруженного алюминия (X_3, г).

Область изменения факторов можно оценить по результатам тех же кинетических исследований; при этом по совету технологов приняты следующие ограничения:

$$50 \leqslant X_1 \leqslant 100 \ (°C); \quad 300 \leqslant X_2 \leqslant 3000 \ (мл/ч);$$

$$6 \leqslant X_3 \leqslant 16 \ (г).$$

Центр плана и интервал варьирования факторов выбраны также по совету технологов:

$$X_{10} = 80 \text{ и } \Delta X_1 = 10°C; \quad X_{20} = 750 \text{ и } \Delta X_2 = 300 \text{ мл/ч};$$

$$X_{30} = 12{,}66 \text{ и } \Delta X_3 = 2 \ (г).$$

Исходные условия, верхний и нижний уровни факторов и кодирование приведены в табл. 5.4.

В результате реализации матрицы планирования ПФЭ 2^3 и математической обработки данных по алгоритму 1.5.1, получено линейное уравнение регрессии

$$\hat{y} = 0.2993 - 0{,}0829x_1 + 0{,}0738x_2 - 0{,}149x_3,$$

которое оказалось неадекватным. Поскольку центр плана и интервалы варьирования были выбраны правильно, то логичной казалась гипотеза о существовании кривизны поверхности отклика в области эксперимента. Для проверки этой гипотезы потребовались дополнительные

Таблица 5.4. **Исходные данные для планирования эксперимента**

	Условия опыта	Обозначение	Факторы		
			X_1	X_2	X_3
ПФЭ 2^n	Нулевой уровень	X_{i_0}	80	750	12,86
	Интервал варьирования	ΔX_i	10	300	2
	Верхний уровень ($x_{i\text{в}}=+1$)	$X_{i\text{в}}$	90	1050	14,66
	Нижний уровень ($x_{i\text{н}}=-1$)	$X_{i\text{н}}$	70	450	10,66
Дополнение	Звездное плечо (+1,682)	$+\alpha$	96,82	1254,6	16,02
	Звездное плечо (—1,682)	$-\alpha$	69,18	145,4	9,3

параллельные опыты в центре плана, по которым было вычислено $\bar{y}_0=0{,}1097$ ($\bar{y}_0$ — оценка свободного члена линейного уравнения теоретической регрессии, т. е. $\bar{y}_0 \to \beta_0$).

Если уравнение теоретической регрессии — полином второго порядка, то коэффициент b_0 должен быть совместной оценкой для свободного члена и суммы квадратичных членов или $b_0 \to \beta_0 + \sum_{i=1}^{n} \beta_{ii}$. Вследствие этого разница $b_0 - \bar{y}_0 = \sum_{i=1}^{n} \beta_{ii}$ может служить некоторой мерой кривизны поверхности. В данном случае эта разность составляет

$$b_0 - \bar{y}_0 = \sum_{i=1}^{n} \beta_{ii} = 0{,}2993 - 0{,}1097 = 0{,}1896$$

(см. (1.154) и (1.156)).

Наличие существенного значения $\Sigma\beta_{ii}=1{,}1895$ указывает на значительную кривизну поверхности отклика и поэтому общим видом искомой математической модели может быть выбран квадратичный полином. Для использования уже проведенных опытов целесообразно применять метод центрального композиционного ротатабельного планирования (ЦКРП).

План эксперимента — матрица планирования, соответствующая ЦКРП, имеет в основе план ПФЭ 2^3 (ядро матрицы планирования) и дополняется определенными точками факторного пространства: звездными точками и опытами в центре плана (последние в данном случае уже реализованы). Для данного случая при $n=3$ звездное плечо $\alpha=\pm 1{,}682$ (см. табл. 1.12), количество опытов ядра матрицы $2^3=8$, число звездных точек $N_\alpha=6$, число нулевых точек $N_0=6$. Таким образом, матрица ротата-

бельного плана второго порядка (табл. 5.5) состоит из $N=20$ опытов.

Реализация матрицы планирования осуществлялась на опытной установке. Все наблюдения и измерения проводились в соответствии с требованиями.

Расчет коэффициентов и статистический анализ уравнения регрессии (математическая обработка экспериментальных данных) проведены по соответствующим формулам алгоритма 1.6.2. При этом:

а) рассчитаны коэффициенты уравнения регрессии

$$b_0 = 0{,}10975; \quad b_3 = -0{,}1483; \quad b_{23} = -0{,}02295;$$
$$b_1 = 0{,}0816; \quad b_{12} = -0{,}604325; \quad b_{11} = 0{,}0359;$$
$$b_2 = 0{,}0753; \quad b_{13} = 0{,}0345; \quad b_{22} = 0{,}0321;$$
$$b_{33} = 0{,}1224;$$

б) рассчитана дисперсия воспроизводимости (ошибка опыта) по $N_0=6$ опытам в центре плана

$$s_0^2 = 5{,}9436 \cdot 10^{-4}; \qquad f_0 = N_0 - 1 = 5;$$

при использовании ротатабельных планов 2-го порядка отпадает необходимость в постановке параллельных опытов для оценки однородности построчных дисперсий;

в) проведена проверка значимости коэффициентов уравнения регрессии в следующем порядке:

1) рассчитаны дисперсии коэффициентов регрессии

$$s^2_{b_0} = 0{,}98907 \cdot 10^{-4} \text{ или } s_{b_0} = 0{,}99452 \cdot 10^{-2};$$
$$s^2_{b_i} = 0{,}43888 \cdot 10^{-4} \text{ или } s_{b_i} = 0{,}6587 \cdot 10^{-2};$$
$$s^2_{b_{ij}} = 0{,}73659 \cdot 10^{-4} \text{ или } s_{b_{ij}} = 0{,}85825 \cdot 10^{-2};$$
$$s^2_{b_{ii}} = 0{,}41049 \cdot 10^{-4} \text{ или } s_{b_{ii}} = 0{,}64069 \cdot 10^{-2};$$

2) рассчитаны значения критерия Стьюдента

$$t_{b_0} = 16{,}662; \quad t_{b_3} = 22{,}544; \quad t_{b_{23}} = 2{,}674;$$
$$t_{b_1} = 12{,}388; \quad t_{b_{12}} = 5{,}0393; \quad t_{b_{11}} = 5{,}6033;$$
$$t_{b_2} = 11{,}432; \quad t_{b_{13}} = 4{,}019; \quad t_{b_{22}} = 5{,}0102;$$
$$t_{b_{33}} = 19{,}104;$$

Таблица 5.5. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	x_0	План			Взаимодействия факторов			Квадратичные члены			Выходная переменная	
											Эксперимент	Расчет
		x_1	x_2	x_3	x_1x_2	x_2x_3	x_1x_3	x_1^2	x_2^2	x_3^2	y_u	$\hat{y}_u$
1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	0,1082	0,11385
2	+1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	0,294	0,29455
3	+1	+1	−1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	+1	0,0956	0,09564
4	+1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	0,1034	0,10685
5	+1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	0,3855	0,38734
6	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	+1	0,7045	0,70604
7	+1	+1	−1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	0,2761	0,27734
8	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	0,4271	0,42304
9	+1	+1,682	0	0	0	0	0	2,829	0	0	0,0783	0,07405
10	+1	−1,682	0	0	0	0	0	2,829	0	0	0,3464	0,34855
11	+1	0	+1,682	0	0	0	0	0	2,829	0	0,3321	0,32721
12	+1	0	−1,682	0	0	0	0	0	2,829	0	0,0714	0,0739
13	+1	0	0	+1,682	0	0	0	0	0	2,829	0,2094	0,2066
14	+1	0	0	−1,682	0	0	0	0	0	2,829	0,7048	0,7054
15	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,1224	0,10974
16	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,1382	0,10974
17	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,1204	0,10974
18	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,0943	0,10974
19	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,0698	0,10974
20	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,1135	0,10974

Общий вид уравнения регрессии $\hat{y} = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_{12}x_1x_2 + b_{23}x_2x_3 + b_{13}x_1x_3 + b_{11}x_1^2 + b_{22}x_2^2 + b_{33}x_3^2$,

3) определено табличное значение критерия Стьюдента

$$t_т = 2{,}571 \text{ при } q = 5\%,\ f_0 = 5;$$

проверено условие $t_р > t_т$, поскольку это условие в рассматриваемом случае удовлетворяется, то все коэффициенты значимы.

Следовательно, искомое уравнение регрессии примет вид

$$\hat{y} = 0{,}10975 - 0{,}0816x_1 + 0{,}0753x_2 - 0{,}1483x_3 - 0{,}04325x_1x_2 +$$
$$+ 0{,}0345x_1x_3 - 0{,}02295x_2x_3 + 0{,}0359x_1^2 + 0{,}0321x_2^2 + 0{,}1224x_3^2;$$

г) проведена проверка адекватности уравнения регрессии, с этой целью:

1) вычислены значения выходного параметра $\hat{y}$ по уравнению регрессии (приведены в табл. 5.5);

2) определена остаточная дисперсия

$$s^2_{ост} = 3{,}089 \cdot 10^{-4}; \qquad f_{ост} = N - l = 20 - 10 = 10;$$

3) вычислены дисперсия адекватности и число ее степеней свободы

$$s^2_{ад} = \frac{s^2_{ост} f_{ост} - s^2_0 f_0}{f_{ад}} = \frac{3{,}089 \cdot 10^{-4} \cdot 10 - 5{,}9436 \cdot 10^{-4} \cdot 5}{5} =$$
$$= 0{,}2344 \cdot 10^{-4},$$

где $f_{ад} = f_{ост} - f_0 = 10 - 5 = 5$;

4) рассчитано значение критерия Фишера

$$F_р = \frac{s^2_{ад}}{s^2_0} = \frac{0{,}2344 \cdot 10^{-4}}{5{,}9436 \cdot 10^{-4}} = 0{,}03937;$$

5) определено табличное значение критерия Фишера $F_т = 5{,}1$ при $q = 5\%$, $f_{ад} = 5$, $f_0 = 5$;

6) проверено условие $F_р < F_т$; условие выполняется.

Следовательно, найденное уравнение регрессии адекватно реальному процессу цементации ртути алюминием из солянокислых растворов (пульпы), полученных в результате мокрого хлорирования бедных шламов.

В результате пересчета с использованием формулы кодирования и учетом условий эксперимента уравнение регрессии в натуральном масштабе примет вид

$$\hat{y} = 9{,}4346 - 0{,}0766X_1 + 0{,}00135X_2 - 0{,}9583X_3 -$$

$$- 0{,}1442 \cdot 10^{-4}X_1X_2 + 17{,}25 \cdot 10^{-4}X_1X_3 - 0{,}3825 \cdot 10^{-4}X_2X_3 +$$

$$+ 3{,}59 \cdot 10^{-4}X_1^2 + 0{,}3567 \cdot 10^{-6}X_2^2 + 0{,}0306X_3^2.$$

Полученное адекватное уравнение регрессии положено в основу решения задачи оптимизации.

Задачу оптимизации процесса извлечения ртути из растворов иодидного комплекса можно сформулировать так: найти значение факторов процесса цементации, минимизирующих значение концентрации ртути на выходе из реактора.

Определение минимального значения выходного параметра по уравнению регрессии — задача нелинейного программирования. В связи с этим, для нахождения оптимальных условий процесса очистки использован симплексный метод (алгоритм 2.6.2).

На основании этого метода составлен алгоритм поиска оптимального режима процесса цементации ртути из растворов и произведена его реализация на ЦВМ «Мир-1» (рис. 5.4).

В результате выполненных расчетов определены оптимальные значения основных факторов $X_{1опт}=89{,}5°C$, $X_{2опт}=590{,}4$ мл/ч, $X_{3опт}=13{,}69$ г, которым соответствует минимальное содержание ртути в растворе после очистки, равное $y_{min} = 0{,}0294$ г/л, т. е. найдены оптимальные условия процесса цементации. В полученных оптимальных условиях поставлены контрольные опыты; при этом минимальное содержание ртути в растворе после очистки составляло $y_{min}=0{,}0290$ г/л.

5.1.4. Задача Б3. Выделение ртути из отработанного электролита (анолита). *Информация о процессе.* Важной стадией промышленной схемы производства едкого натра и хлора ртутным методом является очистка отработанного рассола — электролита (анолита) от ртути с целью регенерации рассола, возврата дорогостоящего металла и предотвращения загрязнения атмосферы произ-

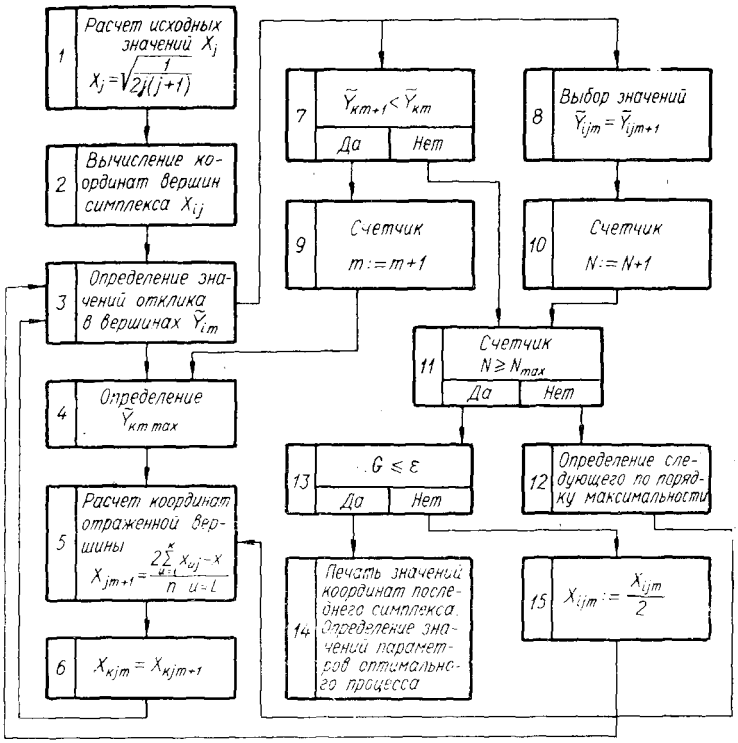


Рис. 5.4. Блок-схема программы поиска оптимального режима методом симплексов.

водственных помещений токсичными парами ртути. В технологической литературе описываются различные способы выделения ртути из солевого раствора, среди которых наиболее эффективными считают ионообменный и сорбционный. В данной задаче рассматривается извлечение ртути из отработанного анолита ионообменной смолой.

Ионообмен как способ выделения веществ из растворов, содержащихся в них, позволяет утилизировать ценные продукты или очищать растворы от нежелательных примесей. Этот процесс осуществляется с помощью ионитов (катионитов или анионитов). Применительно к процессу очистки анолита от ртути чаще всего в качестве ионитов (анионитов) используются сильноосновные ио-

нообменные смолы потому, что в присутствии больших количеств хлорида натрия ртуть находится в виде хлоридных анионных комплексов.

Исследования различных типов ионообменных смол для извлечения ртути из анолита позволяют сделать вывод о том, что хорошими сорбционными свойствами обладает смола АВ-17, относящаяся к высокоосновным монофункциональным анионитам полимеризационной части данной задачи.

Построение математической модели. Выбор выходного параметра и факторов. Процесс ионообменного поглощения и концентрирования ртути из анолита на аниоците АВ-17 определяется степенью очистки раствора от ртути; эту количественную характеристику целесообразно принять в качестве выходной переменной y.

Кинетические исследования рассматриваемого процесса показали, что на выходную переменную y существенно влияют следующие факторы: время контакта (X_1, ч), количество смолы, загружаемой в аппарат (X_2, г), расход анолита (X_3, л/ч).

Область изменения указанных факторов оценивалась, исходя из технологических условий проведения процесса и исследований его кинетики. При этом приняты такие ограничения: $4{,}4 \leqslant X_1 \leqslant 8$; $5 \leqslant X_2 \leqslant 15$; $0{,}8 \leqslant X_3 \leqslant 2$.

Выбор центра плана и интервалов варьирования. Данные предварительных опытов показали, что центр плана (нулевые уровни факторов) целесообразно поместить в точку с координатами $X_{10}=5$ ч, $X_{20}=11$ г, $X_{30}=1{,}25$ л/ч и принять следующие интервалы варьирования: $\Delta X_1=0{,}5$ ч, $\Delta X_2=1{,}5$ г, $\Delta X_3=0{,}25$ л/ч. Эти условия, а также значения верхнего и нижнего факторов и кодированные значения x_i сведены в табл. 5.6.

План эксперимента (матрица планирования), соответствующий ПФЭ типа 2^3, представлен в табл. 5.7, в которую также занесены экспериментальные значения выходного параметра в параллельных опытах ($m=2$): y_{u1}, y_{u2} и $\bar{y}_u$, построчные дисперсии s_u^2 и значения $\hat{\bar{y}}_u$, представленные по уравнению регрессии со значимыми коэффициентами.

Реализация матрицы планирования осуществлялась на опытной установке, на которой проводились предварительные исследования; точность измерения y_u и факторов соответствовала предъявленным требованиям.

Таблица 5.6. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Условия опыта	Обозначение	Факторы		
		X_1, ч	X_2, г	X_3, л/ч
Нулевой уровень	X_{i_0}	5	11	1,25
Интервал варьирования	ΔX_i	0,5	1,5	0,25
Верхний уровень $x_{i\text{в}} = +1$	$X_{i\text{в}}$	5,5	12,5	1,5
Нижний уровень $x_{i\text{н}} = -1$	$X_{i\text{н}}$	4,5	9,5	1,0

Таблица 5.7. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	x_0	План			Выходная переменная			Расчет	
		x_1	x_2	x_3	y_{u_1}	y_{u_2}	y_u	s_u^2	$\hat{y}_u$
1	+1	+1	+1	+1	93,18	92,62	92,9	0,16	80,94
2	+1	−1	+1	+1	94,43	96,4	95,35	1,89	94,66
3	+1	+1	−1	+1	80,99	77,61	79,3	5,72	80,36
4	+1	−1	−1	+1	84,20	82,8	83,5	1,00	84,10
5	+1	+1	+1	−1	96,65	94,95	95,8	1,14	96,10
6	+1	−1	+1	−1	99,07	97,93	98,5	0,64	99,84
7	+1	+1	−1	−1	89,25	92,75	86,0	21,16	85,60
8	+1	−1	−1	−1	92,91	90,09	91,5	4,00	89,50

Расчет коэффициентов уравнения регрессии и его статистический анализ проводились по алгоритму 1.5.1 и программе вычислений на ЦВМ «Мир-1». Результаты расчета приведены в табл. 5.8. В последних строчках этой таблицы записаны адекватные уравнения регрессии с переменными в кодированной форме и в натуральном масштабе.

Краткие выводы. Математическая модель — линейное уравнение регрессии — пригодна для оценки влияния каждого фактора на y (по величине и знаку коэффициента), а также для определения оптимального режима процесса поглощения и концентрирования ртути из анолита на анионите АВ-17 (ионообменный способ).

5.1.5. Задача Б4. Извлечение ртути из отработанной серной кислоты. *Информация о процессе.* Согласно технологии производства хлора и едкого натра, получаемый

Таблица 5.8. **Результаты расчета коэффициентов и статистический анализ уравнения регрессии**

№ п/п	Наименование	Расчетные значения
1	Коэффициенты регрессии	$b_0 = 90{,}96$; $b_2 = 5{,}28$; $b_{12} = 0{,}57$ $b_1 = -1{,}86$; $b_3 = 2{,}59$; $b_{13} = 0{,}19$ $b_{23} = 1{,}08$
2	Построчные дисперсии	приведены в табл. 5.7 $\sum_{u=1}^{N} s_u^2 = 35{,}74$
3	Критерий Кохрена (расчетное значение)	$G_p = \frac{21{,}16}{35{,}74} = 0{,}59$
4	Критерий Кохрена (табличное значение)	$G_т = 0{,}68$ ($q = 5\%$, $f_1 = m - 1$, $f_2 = N = 8$)
5	Условие однородности	выполняется; s_u^2 — однородны
6	Дисперсия воспроизводимости (ошибка опыта)	$S_0^2 = \frac{1}{8} \cdot 35{,}74 = 4{,}47$
7	Дисперсия коэффициентов регрессии	$s_{b_i}^2 = \frac{4{,}47}{8{,}2} = 0{,}28$ или $s_{b_i} = 0{,}53$
8	Критерий Стьюдента (расчетное значение)	$t_{b_0} = 170$; $t_{b_3} = 4{,}89$ $t_{b_1} = 3{,}5$; $t_{b_{12}} = 1{,}08$ $t_{b_2} = 9{,}96$ $t_{b_{13}} = 0{,}36$ $t_{b_{23}} = 2{,}04$
9	Критерий Стьюдента (табличное значение)	$t_т = 2{,}306$ ($q = 5\%$, $f = N(m - 1) = 8$)
10	Условие значимости	выполняется, кроме $t_{b_{12}} < t_т$, $t_{b_{13}} < t_т$, $t_{b_{23}} < t_т$; b_{12}, b_{13}, b_{23} — незначимы (из уравнения регрессии исключаются)
11	Дисперсия адекватности	$s_{ад}^2 = 6{,}48$; $m = 2$; $N = 8$; $f_{ад} = N - l = 4$; $\hat{y}$ вычисляется по уравнению регрессии со значимыми коэффициентами ($l = 4$)
12	Критерий Фишера (расчетное значение)	$F_p = \frac{6{,}48}{4{,}47} = 1{,}45$
13	Критерий Фишера (табличное значение)	$F_т = 3{,}84$ ($q = 5\%$, $f_1 = f_{ад} = N - l = 45$, $f_2 = N(m - 1) = 8$)
14	Условие адекватности	выполняется; уравнение регрессии адекватно процессу

Продолжение табл. 5.8

№ п/п	Наименование	Расчетные значения
15	Адекватное уравнение регрессии (факторы в кодированной форме)	$\hat{y} = 90{,}36 - 1{,}86x_1 + 5{,}28x_2 - 2{,}59x_3$
16	Статистическая математическая модель (факторы в натуральных единицах)	$\hat{y} = 83{,}19 - 3{,}72X_1 + 3{,}52X_2 - 10{,}36X_3$

хлор-газ содержит влагу и ртуть в виде паров сулемы. Этот продукт перед поступлением потребителям подвергается осушке орошением серной кислотой, которая разбавляется и загрязняется ртутью (в кислоту переходит не только влага, но и сулема). Поэтому, отработанную разбавленную серную кислоту нужно обязательно очищать от ртути, особенно в случае использования ее для получения удобрения (сульфата аммония). Многие описанные в литературе способы очистки серной кислоты от ртути практически не применяются из-за существенных недостатков (низкая степень очистки — не более 90%, многостадийность, сложность аппаратурного оформления).

Экспериментальные исследования предложенного в 1973 г. сорбционного способа извлечения ртути из отработанной серной кислоты оксигидридом кремния показали, что разбавленная (15—20%-ная) серная кислота полностью очищается от ртути; с увеличением ее концентрации до 70% степень очистки уменьшается, а 70%-ная серная кислота практически не очищается от ртути этим способом. Из анализа результатов указанных исследований вытекает также, что на степень очистки разбавленной серной кислоты существенно влияет расход кислоты на входе в адсорбер (при изменении расхода 20%-ной кислоты от 5 до 12,5 мл/мин степень очистки составляет соответственно 98—92%) и количество адсорбента — оксигидрида кремния в аппарате (при увеличении содержания адсорбента от 3,5 до 13 г степень очистки возрастает от 88 до 99%). Изменение начальной концентрации ртути от 2 до 16 мг/л приводит к незначительному колебанию степени очистки.

Построение математической модели. Выбор выходного параметра и факторов. Анализ априорной информации и результаты кинетических исследований показывают, что в данном случае логично выбрать в качестве выходной переменной y — степень очистки серной кислоты от ртути, и факторами, существенно влияющими на процесс очистки, расход отработанной кислоты в проточном адсорбере (X_1, мл/мин), количество оксигидрида кремния в аппарате (X_2, г) и концентрацию серной кислоты (X_3, %).

Область изменения этих факторов можно определить на основе имеющейся информации о процессе; для решения рассматриваемой задачи выбраны следующие пределы: $4 \leqslant X_1 \leqslant 16$; $3 \leqslant X_2 \leqslant 14$; $15 \leqslant X_3 \leqslant 40$.

Последующие этапы решения этой задачи выполнялись аналогично задачам Б1 и Б3. Поэтому эти этапы целесообразно представить соответствующими таблицами.

Условия эксперимента приведены в табл. 5.9.

Таблица 5.9. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Условия эксперимента	Обозначение	Факторы		
		X_1	X_2	X_3
Нулевой уровень	X_{i_0}	10	8,25	25
Интервал варьирования	ΔX_i	5	4,75	10
Верхний уровень $x_{i\text{в}} = +1$	$X_{i\text{в}}$	15	13	35
Нижний уровень $x_{i\text{н}} = -1$	$X_{i\text{н}}$	5	3,5	15

Матрица планирования ПФЭ 2^3 приведена в табл. 5.10.

Результаты обработки эксперимента приведены в табл. 5.11.

Краткие выводы. Найденные уравнения регрессии показывают, что эффективность процесса очистки уменьшается с возрастанием концентрации серной кислоты и ее расхода. В то же время степень очистки возрастает с увеличением количества оксигидрида кремния. Эти выводы полностью совпадают с наблюдениями реально протекающего процесса.

Полученная статистическая математическая модель может быть использована как основа для решения зада-

Таблица 5.10. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	x_0	План			Эксперимент			Расчет	
		x_1	x_2	x_3	y_{u_1}	y_{u_2}	$\overline{y_u}$	s_u^2	$\widehat{y_u}$
1	+1	+1	+1	+1	77,18	78,92	78,05	1,514	77,883
2	+1	−1	+1	+1	82,23	82,71	82,47	0,115	83,013
3	+1	+1	−1	+1	76,01	76,45	76,23	0,097	75,883
4	+1	−1	−1	+1	80,94	81,14	80,94	0,08	80,963
5	+1	+1	+1	−1	92,33	92,77	92,55	0,097	93,073
6	+1	−1	+1	−1	98,88	99,32	99,10	0,097	98,203
7	+1	+1	−1	−1	90,69	91,27	90,98	0,168	91,023
8	+1	−1	−1	−1	95,54	96,10	95,82	0,157	96,153

чи оптимизации с целью определения параметров оптимального режима проведения процесса.

5. 1. 6. Задача Б5. Очистка сточных вод от ртути. *Информация о процессе.* В производстве хлора и едкого натра ртутным электролизом весьма существенным каналом потерь ртути являются потоки загрязненных ртутью сточных вод, которые образуются при промывке электролизеров и аппаратуры, при ремонтах и других технологических операциях. Сточные воды пополняются также за счет конденсата холодильников и стоков гидрозатворов водорода и хлора. Спуск таких вод в канализацию категорически запрещен.

Среди различных способов извлечения ртути из сточных вод технологи отдают предпочтение восстановительной сорбции, которая обеспечивает высокую степень очистки. Адсорбционно-восстановительный способ обладает достоинствами и является весьма перспективным для промышленной реализации очистки сточных вод от ртути, которая содержится в них как в ионной, так и в металлической формах. При этом рекомендуется использовать в качестве сорбента оксигидрид кремния, который обладает высокой сорбционно-восстановительной емкостью и устойчивостью.

С целью сбора информации о процессе проведены специальные кинетические исследования основные результаты которых заключаются в следующем:

а) высокая степень очистки (99,8%) достигнута при скорости подачи сточной воды в адсорбер 75 мл/мин, содержании ртути в ней на входе в аппарат 1 мг/л и коли-

Таблица 5.11. **Результаты расчета коэффициентов и статистический анализ уравнения регрессии**

№ п/п	Наименование	Расчетные значения
1	Коэффициенты регрессии	$b_0 = 87{,}018$; $b_2 = 1{,}025$ $b_1 = -2{,}565$; $b_3 = -7{,}595$
2	Построчные дисперсии	приведены в табл. 5.10 $\sum_{u=1}^{N} s_u^2 = 2{,}325$
3	Критерий Кохрена (расчетное значение)	$G_р = \frac{1{,}514}{2{,}325} = 0{,}65$
4	Критерий Кохрена (табличное значение)	$G_т = 0{,}68$ ($q = 5\%$, $f_1 = N - 1 = 1$, $f_2 = N = 8$)
5	Условие однородности	выполняется; s_u^2 — однородны
6	Дисперсия воспроизводимости (ошибка опыта)	$s_0^2 = \frac{1}{8} \cdot 2{,}325 = 0{,}29$
7	Дисперсия коэффициентов регрессии	$s^2_{b_i} = \frac{0{,}29}{8 \cdot 2} = 0{,}018$ или $s_{b_i} = 0{,}135$
8	Критерий Стьюдента (расчетное значение)	$t_{b_0} = 644{,}58$; $t_{b_2} = 7{,}59$ $t_{b_1} = 19{,}0$; $t_{b_3} = 59{,}22$
9	Критерий Стьюдента (табличное значение)	$t_т = 2{,}306$ ($q = 5\%$, $f = N(m - 1) = 8$)
10	Условие значимости	выполняется; все коэффициенты значимы
11	Дисперсия адекватности	$s^2_{ад} = 0{,}836$; $m = 2$, $N = 8$; $f_{ад} = N - l = 4$; $\hat{y}_u$ — вычисляется по уравнению регрессии со значимыми коэффициентами ($l = 4$)
12	Критерий Фишера (расчетное значение)	$F_р = \frac{0{,}836}{0{,}29} = 2{,}88$
13	Критерий Фишера (табличное значение)	$F_т = 3{,}84$; ($q = 5\%$, $f_1 = f_{ад} = N - l = 4$, $f_2 = N(m - 1) = 8$)
14	Условие адекватности	выполняется; уравнение регрессии адекватно процессу
15	Адекватное уравнение регрессии (факторы в кодированной форме)	$\hat{y} = 87{,}018 - 2{,}565x_1 + 1{,}025x_2 - 7{,}595x_3$
16	Статистическая математическая модель (факторы в натуральных единицах)	$\hat{y} = 188{,}216 - 0{,}513X_1 + 0{,}216X_2 - 1{,}013X_3$

честве оксигидрида кремния 7 г; однако увеличение исходного содержания ртути до 5 мг/л привело к снижению степени очистки до 82% (при той же скорости и количестве сорбента);

б) сточная вода очищается почти полностью при расходе воды 50 мл/мин, но при увеличении скорости подачи степень очистки уменьшается и при 250 мл/мин составляет всего 80%;

в) степень очистки сточных вод растет от 82 до 98% при увеличении содержания оксигидрида кремния в реакторе от 3 до 7 г; однако дальнейший рост количества сорбента не влияет на степень очистки.

Построение математической модели. Выбор исходного параметра и факторов. Результаты предварительных исследований послужили основанием для выбора выходным параметром y — степени очистки сточной воды от ртути, и факторами, существенно влияющими на процесс, исходную концентрацию ртути в сточной воде (X_1, мг/л), ее расход (X_2, мл/ч) и количество адсорбента — оксигидрида кремния (X_3, г).

Область изменения выбранных факторов также определяли исходя из результатов предварительных опытов: $0{,}5 \leqslant X_1 \leqslant 5$; $30 \leqslant X_2 \leqslant 300$; $2 \leqslant X_3 \leqslant 9$.

Таблица 5.12. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Условия эксперимента	Обозначение	Факторы		
		X_1	X_2	X_3
Нулевой уровень	X_{i_0}	2	150	5
Интервал варьирования	ΔX_i	1,2	100	2
Верхний уровень	$X_{i\text{в}}$	3,2	250	7
Нижний уровень	$X_{i\text{н}}$	0,8	50	3

Последующие этапы построения математической модели, как и в задаче Б4, представлены в таблицах 5.12—5.14.

Краткие выводы. Уравнение регрессии позволяет по значению и знаку коэффициентов регрессии (b_0, b_1, b_2, b_3) оценить интенсивность и направление влияния каждой переменной на степень очистки сточных вод от ртути оксигидридом кремния. Так, например, эффективно влияет на процесс очистки увеличение количества окси-

Таблица 5.13. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	x_0	План			Эксперимент			Расчет	
		x_1	x_2	x_3	y_{u_1}	y_{u_2}	$\bar{y}_u$	s_u^2	$\hat{y}_u$
1	+1	+1	+1	+1	89,76	91,68	90,72	1,837	91,358
2	+1	−1	+1	+1	95,95	97,31	96,63	0,925	95,104
3	+1	+1	−1	+1	94,11	95,51	94,81	0,98	95,728
4	+1	−1	−1	+1	99,98	99,02	99,5	0,461	99,474
5	+1	+1	+1	−1	82,94	81,56	82,25	0,952	81,763
6	+1	−1	+1	−1	83,35	84,91	84,13	1,220	85,509
7	+1	+1	−1	−1	86,43	87,97	87,2	1,186	86,133
8	+1	−1	−1	−1	88,79	90,61	89,7	1,654	89,879

гидрида кремния; степень очистки снижается при возрастании концентрации ртути в сточной воде и увеличении расхода последней. Модель можно использовать для определения оптимального режима очистки методом крутого восхождения.

5.1.7. Задача Б6. Извлечение ртути из продукционного едкого натра. *Информация о процессе.* В производстве хлора и едкого натра ртутным электролизом унос ртути с потоком продукционного едкого натра небольшой по сравнению с другими технологическими средами (составляет около 0,5% в условном балансе ртути). Однако очистка от ртути этого потока имеет значение, главным образом, с точки зрения обеспечения высокого качества едкого натра (особенно при использовании его в производстве искусственного волокна) и сохранения нормального санитарного состояния производственных помещений заводов-изготовителей и потребителей едкого натра. Указанные обстоятельства вынуждают применять наиболее эффективные способы извлечения ртути из растворов едкого натра.

Рассмотрение известных способов очистки растворов щелочи от ртути показывает, что большинство из них не обеспечивают требуемой степени очистки и применимы для выделения лишь одной из форм ртути. В связи с этим заслуживает особого внимания предложенный в 1972 г. способ очистки едкого натра от ртути экстракцией жидким спецсплавом (ЖСС). Этот способ основан на свойстве ртути растворяться во многих металлах с образованием амальгам. Следует отметить, что ЖСС одно-

Таблица 5.14. **Результаты расчета коэффициентов и статистический анализ уравнения регрессии**

№ п/п	Наименование	Расчетные значения
1	Коэффициенты регрессии	$b_0 = 90{,}618$; $b_2 = -2{,}185$ $b_1 = -1{,}873$ $b_3 = 4{,}798$; $b_{12} = -0{,}075$ $b_{13} = -0{,}778$ $b_{23} = 0{,}445$
2	Построчные дисперсии	приведены в табл. 5.13 $\sum_{u=1}^{N} s_u^2 = 9{,}215$
3	Критерий Кохрена (расчетное значение)	$G_p = \frac{1{,}837}{9{,}215} = 0{,}2$
4	Критерий Кохрена (табличное значение)	$G_т = 0{,}68$ ($q = 5\%$, $f_1 = m - 1 = 1$, $f_2 = N = 8$)
5	Условие однородности	выполняется; s_u^2 — однородны
6	Дисперсия воспроизводимости (ошибка опыта)	$s_0^2 = \frac{1}{8} \cdot 9{,}125 = 1{,}152$
7	Дисперсия коэффициентов регрессии	$s^2_{b_i} = \frac{1{,}152}{8 \cdot 2^2} = 0{,}072$ или $s_{b_i} = 0{,}268$
8	Критерий Стьюдента (расчетное значение)	$t_{b_0} = 338$; $t_{b_2} = 8{,}15$; $t_{b_{12}} = 0{,}28$ $t_{b_1} = 6{,}99$ $t_{b_3} = 17{,}9$; $t_{b_{13}} = 2{,}2$ $t_{b_{23}} = 1{,}66$
9	Критерий Стьюдента (табличное значение)	$t_т = 2{,}306$ ($q = 5\%$, $f = N(m - 1) = 8$)
10	Условие значимости	выполняется, кроме $t_{b_{12}} < t_т$, $t_{b_{13}} < t_т$ и $t_{b_{23}} < t_т$; b_{12}, b_{13}, b_{23} — незначимы (из уравнения регрессии исключаются)
11	Дисперсия адекватности	$s^2_{ад} = 3{,}445$; $m = 2$, $N = 8$; $f_{ад} = N - l = 4$; $\hat{y}$ вычисляется по уравнению регрессии со значимыми коэффициентами ($l = 4$)
12	Критерий Фишера (расчетное значение)	$F_p = \frac{3{,}445}{1{,}152} = 2{,}99$
13	Критерий Фишера (табличное значение)	$F_т = 3{,}84$ ($q = 5\%$, $f_1 = f_{ад} = N - l = 4$, $f_2 = N(m - 1) = 8$)
14	Условие адекватности	выполняется; уравнение регрессии адекватно процессу

Продолжение табл. 5.14

№ п/п	Наименование	Расчетные значения
15	Адекватное уравнение регрессии (факторы в кодированной форме)	$\hat{y} = 90{,}618 - 1{,}873\ x_1 - 2{,}185\ x_2 + 4{,}798\ x_3$
16	Статистическая математическая модель (факторы в натуральных единицах)	$\hat{y} = 85{,}024 - 1{,}561X_1 - 0{,}022X_2 + 2{,}399X_3$

временно способствует протеканию цементационного процесса извлечения ионной ртути. Поэтому такой метод можно назвать экстракционно-цементационным способом извлечения металлической и ионной форм ртути из растворов щелочи.

Исследования процесса извлечения ртути из растворов продукционного едкого натра экстракцией жидким специальным сплавом показали, что этот экстрагент обеспечивает высокую степень очистки от металлической и ионной форм ртути и является устойчивым в сильно агрессивной щелочной среде. В опубликованной литературе имеется мало сведений о процессе извлечения ртути из растворов едкого натра экстракционно-цементационным способом. Для характеристики объекта исследования можно лишь воспользоваться информацией, полученной в экспериментальном исследовании. Основные результаты этих исследований заключаются в следующем.

1. Повышение температуры раствора едкого натра от 80 до 120°С приводит к увеличению степени очистки. Если учесть, что при температуре 70°С вязкость экстрагента ЖСС существенно повышается и он может затвердевать ($t_{пл}$=68°С), то область изменения температуры следует ограничить интервалом 75—120°С.

2. Интенсивность перемешивания обеих жидких фаз исследуемой гетерогенной системы ЖСС — раствор едкого натра мешалкой в значительной степени определяет кинетику процесса очистки. При вращении мешалки со скоростью около 400 об./мин исходная концентрация ртути в щелочи уменьшается незначительно, при

1800 об./мин — содержание ртути уменьшается более чем в 2,5 раза. Однако скорость вращения мешалки 2500 об./мин способствует ускоренному диспергированию сплава ЖСС в каустике и переходу его компонентов в раствор едкого натра (при скорости вращения мешалки более 3500 об./мин отмечено превышение допустимых ГОСТом норм на содержание тяжелых металлов в готовом продукте). Следовательно, число оборотов мешалки имеет ограничения, и изменение этого фактора можно определить интервалом 500—300 об./мин.

3. Количество экстрагента ЖСС существенно влияет на скорость и полноту извлечения ртути из раствора каустика. Согласно проведенным исследованиям для лабораторного реактора область изменения этого фактора следует ограничить интервалом 100—400 г.

4. Увеличение расхода щелочи интенсифицирует процесс, но уменьшает степень очистки. Поэтому областью определения этого фактора будет расход 0,01—0,09 л/ч.

5. Опыты показали, что с ростом концентрации ртути в экстрагенте ЖСС существенно увеличивается время экстрагирования ее из раствора. При этом установлено, что эффективная очистка раствора едкого натра обеспечивается лишь в том случае, если содержание ртути в ЖСС не превышает 1—2 мас. %; при большей концентрации ртути в ЖСС скорость и полнота извлечения ее из раствора заметно понижается. В лабораторном реакторе количество ртути в ЖСС практически не превышает 1 мас. %, поскольку объем потока мал и в сплав из исходного раствора каустика переходит небольшое количество ртути, которое не может составить заметной доли от общей массы экстрагента ЖСС. По этим соображениям в лабораторных условиях можно не учитывать влияния рассматриваемого фактора. Однако в промышленных непрерывных проточных установках, когда перерабатываются большие объемы щелочи, фактор накопления ртути нужно обязательно учитывать, а в технологической схеме очистки каустика необходимо предусмотреть процесс регенерации экстрагента ЖСС.

6. Повышение концентрации ртути в исходном едком натре от $2 \cdot 10^{-4}$ до $12 \cdot 10^{-4}$ мас. % мало сказывается на процессе очистки. Поскольку в продукционном едком натре содержание ртути практически постоянно и ниже меньшего предела, то влияние на процесс этого фактора можно не учитывать.

Построение математической модели. Выбор выходного параметра и факторов. В данном случае выходным параметром целесообразно выбрать степень очистки продукционного раствора едкого натра, а независимыми переменными — четыре фактора: температуру раствора едкого натра (X_1, °С) интенсивность перемешивания (X_2, об./мин), количество экстрагента ЖСС (X_3, г), расход едкого натра (X_4, л/ч). При этом, ограничивая число факторов, преследовалась цель обойтись как можно меньшим количеством опытов в планируемом эксперименте (при $n=4$ $N=64$, а при $n'=6$ $N'=64$).

Область изменения факторов имеет следующие ограничения:

$$70 \leqslant X_1 \leqslant 120; \qquad 100 \leqslant X_3 \leqslant 300;$$

$$120 \leqslant X_2 \leqslant 2600; \qquad 0{,}05 \leqslant X_4 \leqslant 0{,}15.$$

Последующие этапы построения СММ, аналогично предыдущим задачам, представлены в таблицах 5.15—5.17.

Таблица 5.15. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Условия эксперимента	Обозначение	Факторы			
		X_1	X_2	X_3	X_4
Основной уровень	X_{i0}	95	2000	173	0,09
Интервал варьирования	ΔX_i	15	400	25	0,01
Верхний уровень	$X_{i\text{в}}$	110	2100	200	0,10
Нижний уровень	$X_{i\text{н}}$	80	1600	150	0,08

Выполненные расчеты позволили записать искомую математическую модель процесса очистки от ртути продукционного едкого натра в виде следующего полинома:

$$\hat{y} = 6{,}29 \cdot 10^{-1} - 0{,}35 \cdot 10^{-5} x_1 - 0{,}86 \cdot 10^{-5} x_2 - 0{,}50 \cdot 10^{-5} x_3 +$$

$$+ 1{,}05 \cdot 10^{-3} x_4 - 0{,}10 \cdot 10^{-5} x_2 x_3 - 0{,}42 \cdot 10^{-5} x_2 x_4 - 0{,}14 \cdot 10^{-5} x_3 x_4.$$

Краткие выводы. По полученному уравнению регрессии можно рассчитать содержание ртути в каустике на выходе после очистки при любом сочетании независимых переменных в изученном интервале их изменения и

Таблица 5.16. **План и результаты эксперимента**

Номер опыта	x_0	План				Эксперимент			Расчет	
		x_1	x_2	x_3	x_4	$y_{u_1}\cdot 10^3$	$y_{u_2}\cdot 10^3$	$\bar{y}_u\cdot 10^3$	$s_u^2\cdot 10^{11}$	$\bar{y}_u\cdot 10^3$
1	+1	+1	+1	+1	+1	5,10	5,35	5,225	0,3125	4,9708
2	+1	−1	+1	+1	+1	5,53	5,71	5,620	0,1620	5,9684
3	+1	+1	−1	+1	+1	7,46	7,03	7,245	0,9245	7,5360
4	+1	−1	−1	+1	+1	8,60	8,83	8,720	0,2880	8,4536
5	+1	+1	+1	−1	+1	6,39	6,05	6,220	0,5780	6,2458
6	+1	−1	+1	−1	+1	7,26	7,05	7,165	0,1805	7,1441
7	+1	+1	−1	−1	+1	8,75	9,02	8,875	0,4205	8,8136
8	+1	−1	−1	−1	+1	10,05	9,26	9,685	3,1201	9,7166
9	+1	+1	+1	+1	−1	4,31	3,99	4,055	1,3005	4,1798
10	+1	−1	+1	+1	−1	4,56	4,48	4,520	0,0320	4,6748
11	+1	+1	−1	+1	−1	6,03	5,18	5,120	0,0720	5,0748
12	+1	−1	−1	+1	−1	5,91	5,70	5,805	0,2205	5,5698
13	+1	+1	+1	−1	−1	4,96	5,11	5,035	0,1125	4,9172
14	+1	−1	+1	−1	−1	5,25	5,61	5,565	0,0405	5,4072
15	+1	+1	−1	−1	−1	5,83	5,70	5,765	0,0845	5,8072
16	+1	−1	−1	−1	−1	6,00	6,13	6,065	0,0845	6,3022

Таблица 5.17. **Результаты расчета коэффициентов и статистический анализ уравнения регрессии**

№ п/п	Наименование	Расчетные значения
1	Коэффициенты регрессии	$b_0 = 6{,}29\cdot 10^{-3}$; $b_{12} = 0{,}06\cdot 10^{-3}$ $b_1 = -0{,}35\cdot 10^{-3}$; $b_{13} = 0{,}03\cdot 10^{-3}$ $b_2 = -0{,}86\cdot 10^{-3}$; $b_{14} = -0{,}10\cdot 10^{-3}$ $b_3 = -0{,}50\cdot 10^{-3}$; $b_{23} = -0{,}07\cdot 10^{-3}$ $b_4 = 1{,}05\cdot 10^{-3}$; $b_{24} = -0{,}42\cdot 10^{-3}$ $b_{34} = -0{,}14\cdot 10^{-3}$
2	Построчные дисперсии	приведены в табл. 5.16 $\sum_{u=1}^{N} s_u^2 = 7{,}93\cdot 10^{-11}$
3	Критерий Кохрена (расчетное значение)	$G_p = \dfrac{3{,}12\cdot 10^{-11}}{7{,}93\cdot 10^{-11}} = 0{,}39$
4	Критерий Кохрена (табличное значение)	$G_T = 0{,}47$ ($q = 5\%$, $f_1 = m - 1 = 1$, $f_2 = N = 16$)
5	Условие однородности	выполняется; s_u^2 — однородны
6	Дисперсия воспроизводимости (ошибка опыта)	$s_0^2 = \dfrac{1}{16}\cdot 7{,}93\cdot 10^{-11} = 4{,}96\cdot 10^{-12}$

Продолжение табл. 5.17.

№ п/п	Наименование	Расчетные значения
7	Дисперсия коэффициентов регрессии	$s^2_{b_i} = \frac{4{,}96 \cdot 10^{-12}}{16 \cdot 2} = 0{,}155 \cdot 10^{-12}$ или $s_{b_i} = 0{,}39 \cdot 10^{-5}$
8	Критерий Стьюдента (расчетное значение)	$t_{b_0} = 159{,}8$; $t_{b_4} = 26{,}66$; $t_{b_{23}} = 1{,}47$; $t_{b_1} = 8{,}85$; $t_{b_{12}} = 1{,}44$; $t_{b_{24}} = 10{,}61$; $t_{b_2} = 21{,}98$; $t_{b_{13}} = 0{,}74$; $t_{b_{34}} = 3{,}45$; $t_{b_3} = 12{,}76$; $t_{b_{14}} = 2{,}56$
9	Критерий Стьюдента (табличное значение)	$t_т = 2{,}12$ ($q = 5\%$, $f_1 = N(m-1) = 16$)
10	Условие значимости	выполняется, кроме $t_{b_{12}} < t_т$, $t_{b_{13}} < t_т$ и $t_{b_{23}} < t_т$; b_{12}, b_{13}, b_{23} — незначимы (из уравнения регрессии исключаются)
11	Дисперсия адекватности	$s^2_{ад} = 3{,}67 \cdot 10^{-12}$; $m = 2$, $N = 16$; $f_{ад} = N - l = 8$; $\hat{y}$ вычисляется по уравнению регрессии со значимыми коэффициентами ($l = 8$)
12	Критерий Фишера (расчетное значение)	$F_р = \frac{3{,}67 \cdot 10^{-12}}{4{,}96 \cdot 10^{-12}} = 0{,}74$
13	Критерий Фишера (табличное значение)	$F_т = 2{,}59$ ($q = 5\%$, $f_1 = f_{ад} = N - l = 8$, $f_2 = N(m-1) = 16$)
14	Условие адекватности	выполняется; уравнение регрессии адекватно процессу

получить количественную характеристику влияния различных факторов. Наличие эффектов взаимодействия между какими-либо параметрами процесса (например, X_1 и X_2; X_2 и X_4; X_3 и X_4) свидетельствует об изменении интенсивности влияния одного из них в зависимости от значения другого.

Из уравнения регрессии также видно, что наибольше влияет на выходную переменную расход каустика. Этот фактор входит во все эффекты взаимодействия, что усиливает влияние на ход процесса.

Полученную адекватную математическую модель в виде уравнения регрессии можно использовать для ре-

шения задачи оптимизации, и следовательно, нахождения оптимальных условий протекания процесса экстракции ртути из растворов едкого натра.

5.2. Планирование эксперимента при оптимизации трехстадийного процесса извлечения скандия из многокомпонентного сырья

Введение. Данный раздел посвящен результатам решения задачи оптимизации многостадийного процесса с применением методов планирования эксперимента. Стадии в процессе соединены последовательно. Поэтому постановка задач моделирования и оптимизации данного процесса соответствует постановке задачи в разделе 3.2. Применяемые в данной задаче методы отличаются от описанных в теоретической части пособия. Поэтому ниже даны пояснения по их использованию.

Описание процесса. Процесс извлечения скандия из бедного многокомпонентного сырья (содержание скандия — 0,02% в расчете на оксид представляет собой последовательное соединение трех стадий (рис. 5.5).

I стадия — фракционное осаждение гидроксидов, в результате которого отделяется основное количество железа. Помимо скандиевого концентрата, получаются еще два товарных продукта — железо-титановый и магниевый концентраты. Независимые переменные (факторы): X_1 — значение pH; X_2 — продолжительность выдерживания осадка при данном pH, мин. Параметры оптимизации: y_1 — доля отделяемой примеси (железа), переходящей в концентрат, %; y_2 — доля скандия, переходящего в концентрат, %; y_3 — критерий экономической эффективности стадии, характеризующий прибыль от обогащения. Значение y_3 определяется по формуле

$$y_3 = m_{\mathrm{Sc}} c_{\mathrm{Sc}} + \Sigma\, m_i \mathrm{C}_i - \Sigma\, L,$$

где m — количество скандия; C_i — стоимость целевого продукта (скандия) или товарных продуктов на стадии; L — затраты.

В сумму затрат на единицу перерабатываемой продукции включаются стоимости реагентов, электроэнергии, воды, а также амортизационные, транспортные и прочие расходы. Индекс суммирования означает, что выбранная функция обладает свойствами аддитивности,

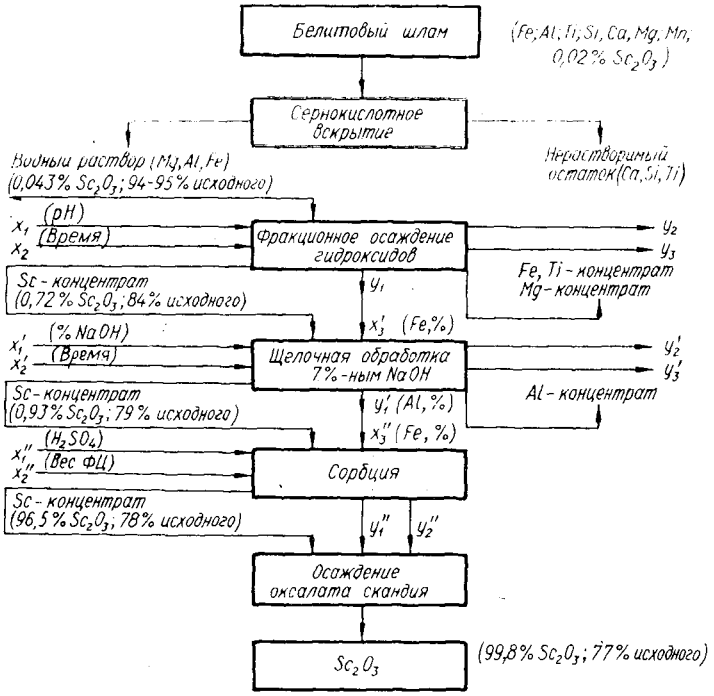


Рис. 5.5. Схема технологического процесса извлечения скандия.

т. е. при получении нескольких товарных продуктов (помимо скандиевого концентрата) их стоимостные функции складываются.

II стадия — щелочное отделение алюминия, в результате которого выделяются скандиевый (целевой) и алюминиевый концентраты. Независимые переменные: X'_1 — концентрация исходного раствора NaOH, %; X'_2 — продолжительность перемешивания, мин; X'_3 — содержание железа в исходном продукте, %. Параметрами оптимизации выбраны ранее принятые показатели: y'_1 — доля отделяемой примеси (алюминия), переходящей в концентрат, %; y'_2 — доля скандия, переходящего в концентрат, %; y'_3 — критерий экономической эффективности стадии.

III стадия — селективная сорбция на фосфорсодержащем сорбенте, в результате которой после дополни-

тельной очистки выделяется чистый оксид скандия — целевой продукт. Независимые переменные: X''_1 — концентрация исходного раствора H_2SO_4, н; X''_2 — количество сорбента, мг; X''_3 — содержание алюминия в исходном продукте, %. Параметры оптимизации: y''_1 — содержание скандия в конечном продукте, %; y''_2 — доля скандия, переходящего в концентрат, %.

Экономический критерий на последней стадии пропорционален параметру оптимизации y''_2, поэтому не рассматривается.

Исследователи по результатам серии предварительных опытов убедились в том, что стадии процесса находятся в условиях «почти стационарной области». Поэтому для каждой стадии процесса извлечения скандия математическую модель целесообразно получать в виде регрессионного уравнения второй степени по каждому y_j.

Для всех стадий процесса выбраны насыщенные или близкие к насыщенным планы, как известно, экономичные по числу опытов. К их числу относятся планы Хартли и пентагональные планы.

Пояснение к планам Хартли. Планы Хартли являются центральными композиционными ортогональными планами второго порядка. Их можно выгодно использовать вместо ЦКОП, когда априори известно, что часть коэффициентов b_i и b_{ij} в модели отсутствует и имеются жесткие требования к числу опытов. Коэффициенты b_i и b_{ij} рассчитываются так:

$$b_i = \frac{-y_\alpha + y_\alpha}{2\alpha}; \qquad \text{(А)}$$

$$b_{ij} = \frac{\sum_{u=1}^{2^{n-p}} x_{iu}x_{ju}y_u}{\sum_{u=1}^{2^{n-p}} x_{iu}^2 x_{ju}^2} - \frac{-y_\alpha + y_\alpha}{2\alpha}. \qquad \text{(Б)}$$

где y_α — значения выхода в соответствующих звездных точках; 2^{n-p} — количество опытов в центре композиционного плана (обычно — это регулярная реплика от ПФЭ); α — величина плеча звездных точек (здесь $\alpha = \pm 1$).

Коэффициенты b_0 и b_{ii} рассчитываются по формулам ЦКОП (1.162), (1.165).

Таблица 5.18. **План и результаты эксперимента**

Наименование		Факторы		Расчетные столбцы факторов			Выходная переменная		
		X_1	X_2	x_1^2	x_2^2	x_1x_2	y_1	y_2	y_3
Основной уровень		3,50	45						
Интервал варьирования		0,25	15						
Номер опыта	x_0	План x_1	x_2						
1	+1	0,588	0,809	0,3457	0,6544	0,4756	5,26	88,48	0,313
2	+1	0,951	−0.309	0,9044	0,0954	−0,2938	31,78	89,02	0,361
3	+1	0	−1.00	0	1	0	43.69	87,03	0,287
4	+1	−0,951	−0,309	0,9044	0 0954	0.2938	61,08	96,25	0,293
5	+1	−0,588	0,809	0,3457	0,6544	−0,4756	93,94	96,00	0,302
6	+1	0	0	0	0	0	37,78	88,88	0,291
7	+1	0	0	0	0	0	39,18	88,46	0,297

Пояснение к пентагональным планам. Пентагональные планы принадлежат к классу центральных композиционных ротатабельных планов второго порядка, поэтому коэффициенты уравнения регрессии можно рассчитать по алгоритму 1.6.2 (формула (1.103)). Дисперсия воспроизводимости рассчитывается по двум опытам в центре плана (один опыт входит в план, другой — ставится дополнительно).

5.2.1. Получение математической модели стадии фракционированного осаждения гидроксидов. Для получения математической модели I стадии процесса используется пентагональный план, обладающий, как уже отмечалось, одним преимуществом перед ЦКРП — меньшим числом опытов. Модель ищем в виде регрессионного уравнения второго порядка.

Матрица планирования и результаты эксперимента представлены в табл. 5.18. Коэффициенты регрессии будем искать в матричной форме согласно выражению

$B = (X^{\mathrm{T}}X)^{-1}X^{\mathrm{T}}Y$:

$$X = \begin{bmatrix} 1 & 588 & 0{,}809 & 0{,}346 & 0{,}654 & 0{,}476 \\ 1 & 0{,}951 & -0{,}309 & 0{,}904 & 0{,}096 & -0{,}294 \\ 1 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 \\ 1 & -0{,}951 & -0{,}309 & 0{,}904 & 0{,}095 & 0{,}294 \\ 1 & -0{,}588 & 0{,}809 & 0{,}346 & 0{,}654 & -0{,}476 \end{bmatrix};$$

$$X^{\mathrm{T}} = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0{,}588 & 0{,}951 & 0 & 0{,}951 & -0{,}588 \\ 0{,}809 & -0{,}309 & -1 & -0{,}309 & 0{,}809 \\ 0{,}346 & 0{,}904 & 0 & +0{,}904 & 0{,}346 \\ 0{,}654 & 0{,}095 & 1 & 0{,}095 & 0{,}654 \\ 0{,}476 & -0{,}294 & 0 & 0{,}294 & -0{,}476 \end{bmatrix};$$

$$X^{\mathrm{T}}X = \begin{bmatrix} 5 & 0 & 0 & 2{,}5 & 2{,}5 & 0 \\ 0 & 2{,}5 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2{,}5 & 0 & 0{,}5 & 0 \\ 2{,}5 & 0 & 0 & 1{,}875 & 0{,}539 & 0 \\ 2{,}5 & 0 & 0{,}5 & 0{,}539 & 1{,}875 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0{,}625 \end{bmatrix}.$$

Матрицу $(X^{\mathrm{T}}X)^{-1}$ находим одним из стандартных методов (поиск определителя матрицы, присоединенной матрицы и получение обратной матрицы):

$$(X^{\mathrm{T}}X)^{-1} = \begin{bmatrix} -0{,}208 & 0 & 0 & 0{,}212 & 0{,}225 & 0 \\ 0 & 0{,}0157 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0{,}0157 & 0 & 0{,}0429 & 0 \\ 0{,}212 & 0 & 0 & -0{,}180 & -0{,}243 & 0 \\ 0{,}229 & 0 & 0{,}0429 & -0{,}243 & -0{,}1804 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0{,}0429 \end{bmatrix}.$$

Матрица $(X^{\mathrm{T}}X)^{-1}$ является общей для всех выходных переменных этой стадии. Элементы матрицы $X^{\mathrm{T}}Y$ различны. Поэтому дальнейшее вычисление целесообразно вести по каждой выходной переменной y_1, y_2, y_3.

Расчет коэффициентов модели по переменной y_1 и ее статистический анализ. Предварительно находим столбец

$$X^{\mathrm{T}}Y_1 = \begin{bmatrix} 255{,}43 \\ -98{,}87 \\ 1{,}45 \\ 136{,}24 \\ 119{,}18 \\ -27{,}54 \end{bmatrix}$$

и в соответствии с приведенным ранее выражением находим B

$$B = (X^{\mathrm{T}}X)^{-1}X^{\mathrm{T}}Y_1 = \begin{bmatrix} 38{,}82 \\ -38{,}41 \\ 0{,}87 \\ 21{,}31 \\ 5{,}17 \\ -42{,}17 \end{bmatrix}.$$

Ошибку опыта вычисляем по двум параллельным опытам в центре плана и согласно формуле (1.140) $s_0^2 = 0{,}98$, а дисперсии коэффициентов регрессии приближенно вычисляются по диагональным элементам обратной матрицы

$$s^2_{b_0} = 0{,}208 \cdot 0{,}98 = 0{,}204; \qquad s_{b_i} = 0{,}0157 \cdot 0{,}98 = 0{,}0154;$$

$$s^2_{b_{ii}} = 0{,}1804 \cdot 0{,}98 = 0{,}177; \qquad s^2_{b_{ij}} = 0{,}0429 \cdot 0{,}98 = 0{,}0420.$$

Значимость коэффициентов определялась по t-критерию ($t_т = 12{,}71$, $f_0 = 2-1=1$, $q = 0{,}05$)

$$t_{b_0} = \frac{38{,}82}{0{,}204} = 89{,}948; \quad t_{b_1} = 309{,}52; \quad t_{b_2} = 7{,}016;$$

$$t_{b_{11}} = 50{,}65; \quad t_{b_{22}} = 12{,}31; \quad t_{b_{12}} = 205{,}768.$$

Можно считать незначимым коэффициент b_2 (b_{22} допустимо считать значимым, поскольку $t_{b_{22}} = 12{,}31$ близко к $t_т = 12{,}71$). Окончательно уравнение регрессии имеет вид

$$\hat{y}_1 = 38{,}82 - 38{,}41x_1 + 21{,}31x_1^2 + 5{,}17x_2^2 - 42{,}17x_1x_2.$$

Адекватность модели проверяется по формулам (1.194) — (1.198) (алгоритм ЦКРП)

$$S_{ад} = S_{ост} - S_0 = 13{,}824 - 0{,}98 = 12{,}844;$$

$$f_{ост} = 7 - 5 = 2, \quad f_0 = 1; \quad f_{ад} = 2 - 1 = 1;$$

$$F_р = \frac{12{,}844/1}{0{,}98/1} = 13{,}106 < F_т = 161{,}4 \quad (q = 0{,}05).$$

Таким образом, математическая модель, описывающая первую стадию, адекватна и может быть использована для оптимизации.

Расчет коэффициентов модели по переменной y_2 и ее статистический анализ. Как и в предыдущем случае, находим

$$X^т Y_2 = \begin{bmatrix} 456{,}78 \\ -11{,}30 \\ 4{,}82 \\ 231{,}34 \\ 225{,}42 \\ -1{,}45 \end{bmatrix}; \qquad B = \begin{bmatrix} 88{,}54 \\ -4{,}51 \\ 1{,}99 \\ -4{,}78 \\ 0{,}15 \\ -2{,}31 \end{bmatrix}.$$

Рассчитанная по двум параллельным опытам в центре плана дисперсия воспроизводимости $s_0^2 = 0{,}0882$ и тогда

$$s_{b_0}^2 = 0{,}0183; \qquad s_{b_i}^2 = 0{,}0138; \qquad s_{b_{ii}}^2 = 0{,}0159; \qquad s_{b_{ij}}^2 = 0{,}00378.$$

По расчетным значениям t-критерия ($t_{b_0} = 654{,}501$, $t_{b_1} = 121{,}6$, $t_{b_2} = 53{,}64$, $t_{b_{11}} = 37{,}90$, $t_{b_{22}} = 1{,}18$, $t_{b_{12}} = 37{,}57$) определяем значимые коэффициенты b_0, b_1, b_2, b_{11}, b_{12} и тогда модель имеет вид

$$\hat{y}_2 = 88{,}54 - 4{,}51x_1 + 1{,}99x_2 - 4{,}78x_1^2 - 2{,}31x_1x_2.$$

Оценка адекватности осуществляется как и ранее

$$S_{\text{ад}} = 5{,}1504 - 0{,}0882 = 5{,}062;$$

$$f_{\text{ост}} = 7 - 5 = 2; \qquad f_0 = 2 - 1 = 1; \qquad f_{\text{ад}} = 2 - 1 = 1;$$

$$F_{\text{р}} = \frac{5{,}062/1}{0{,}0882/1} = 57{,}39 < F_{\text{т}} = 161{,}7 \quad (q = 0{,}05).$$

Таким образом, полученная модель адекватна.

Расчет коэффициентов модели переменной y_3 и ее статистический анализ. Аналогично предыдущим случаям находим

$$\boldsymbol{X}^{\text{т}}\boldsymbol{Y}_3 = \begin{bmatrix} 1{,}556 \\ 0{,}077 \\ 0{,}0085 \\ 0{,}804 \\ 0{,}752 \\ -0{,}015 \end{bmatrix}; \qquad \boldsymbol{B} = \begin{bmatrix} 0{,}29 \\ 0{,}028 \\ 0{,}021 \\ -0{,}041 \\ -0{,}0019 \\ -0{,}019 \end{bmatrix}.$$

$$s_0^2 = 0{,}18 \cdot 10^{-4}; \qquad s_{b_0}^2 = 0{,}37 \cdot 10^{-5}; \qquad s_{b_i}^2 = 0{,}28 \cdot 10^{-6};$$

$$s_{b_{ii}}^2 = 0{,}32 \cdot 10^{-5}; \qquad s_{b_{ij}}^2 = 0{,}77 \cdot 10^{-6};$$

$$t_{b_0} = 150{,}76; \qquad t_{b_1} = 52{,}72; \qquad t_{b_2} = 3{,}95;$$

$$t_{b_{11}} = 22{,}77; \qquad t_{b_{22}} = 1{,}05; \qquad t_{b_{12}} = 21{,}6.$$

Таким образом значимы коэффициенты b_0, b_1, b_{11}, b_{12}. Уравнение регрессии имеет вид

$$\hat{y}_3 = 0{,}29 + 0{,}028x_1 - 0{,}041x_1^2 - 0{,}019x_1x_2.$$

Для оценки адекватности рассчитаны

$$S_{ад} = 0{,}182 \cdot 10^{-2} - 0{,}18 \cdot 10^{-4} = 0{,}0018 \cdot 10^{-2};$$

$$f_{ост} = 7 - 4 = 3; \qquad f_{ад} = 3 - 1 = 2; \qquad f_0 = 1;$$

$$F_р = \frac{0{,}18 \cdot 10^{-2}/2}{0{,}18 \cdot 10^{-4}/1} = 50{,}8 < F_т = 199{,}5 \quad (q = 0{,}005).$$

Модель адекватна.

5.2.2. Получение математической модели стадии щелочного отделения алюминия. Для получения математической модели II стадии процесса используется план Хартли — план второго порядка с меньшим числом опытов в центре плана и плечом звездных точек, равным (± 1).

Как видно из матрицы планирования, в качестве ядра плана используется 1/2 дробная реплика от ПФЭ 2^3 (табл. 5.19) с общим числом опытов $N = 11$. Еще один опыт ставится в центре плана для расчета дисперсии воспроизводимости. В соответствии со свойством дробного факторного эксперимента система смешения оценок имеет вид

$$b_1 \rightarrow \beta_1 + \beta_{23};$$
$$b_2 \rightarrow \beta_2 + \beta_{13};$$
$$b_3 \rightarrow \beta_3 + \beta_{12};$$

Интервалы варьирования фактора X'_3 определялись по результатам нахождения условного экстремума для y_2 при заданном наборе ограничений y_1 и y_2 на I стадии. Фактор x'_3, связывающий две стадии, варьировался на трех уровнях ($+1$, 0, -1), соответствующих различным вариантам условного экстремума. Например, экспериментальное значение $y_1 = 2{,}96$ соответствует нижнему уровню фактора x'_3 на II стадии, а значение y_1, равное 7,56, — верхнему (см. табл. 5.19).

Расчет коэффициентов модели по переменной y'_1 и ее статистический анализ. Коэффициенты b_0 и b_{ij} рассчитывали по формулам (А) и (Б), приведенным в начале этого раздела

$$b_1 = \frac{0{,}33 - 0{,}64}{2} = -0{,}155; \qquad b_2 = -0{,}335; \qquad b_3 = 0{,}360;$$

$$b_{12} = \frac{2{,}26 - 0{,}41 - 0{,}42 + 1{,}68}{4} - b_3 = 0{,}418;$$

$$b_{13} = 0{,}483; \qquad b_{23} = 0{,}29.$$

Таблица 5.19. **План и результаты эксперимента**

Наименование	Факторы			Расчетные столбцы факторов						Выходные переменные		
	x'_1	x'_2	x'_3									
Основной уровень	10	30	1,03									
Интервал варьирования	5	15	0,51									

Номер опыта	x_0	План			$x'_1x'_2$	$x'_1x'_3$	$x'_2x'_3$	$(x'_2)^2$	$(x'_2)^2$	$(x'_3)^2$	y'_1	y'_2	y'_3
		x'_1	x'_2	x'_3									
1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	2,26	89,95	0,368
2	+1	+1	—1	—1	—1	—1	+1	+1	+1	+1	0,41	87,60	0,199
3	+1	—1	+1	—1	—1	+1	—1	+1	+1	+1	0,42	86,54	0,313
4	+1	—1	—1	+1	+1	—1	—1	+1	+1	+1	1,68	89,60	0,189
5	+1	+1	0	0	0	0	0	+1	0	0	0,33	88,58	0,284
6	+1	—1	0	0	0	0	0	+1	0	0	0,64	92,75	0,182
7	+1	0	+1	0	0	0	0	0	+1	0	0,30	86,72	0,370
8	+1	0	—1	0	0	0	0	0	+1	0	0,97	90,44	0,187
9	+1	0	0	+1	0	0	0	0	0	+1	1.97	90,76	0,250
10	+1	0	0	—1	0	0	0	0	0	+1	1,25	89.04	0,231
11	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,37	90,69	0,233
12	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,41	90,59	0,237

Коэффициенты b_0 и b_{ij} рассчитывались по формулам (1.162), (1.165) алгоритма 1;6.1 с учетом того, что $x'_i = 1—6/11 = 0{,}45$ или $x'_i = 0—6/11 = —0{,}55$;

$$b_{11} = —0{,}24; \qquad b_{22} = —0{,}08; \qquad b_{33} = 0{,}89;$$

$$b'_0 = 0{,}93; \qquad b_0 = 0{,}65.$$

Все расчеты по оценке значимости коэффициентов регрессии можно представить так (два опыта в центре плана):

$$s_0^2 = 0{,}8\cdot 10^{-3}; \quad s^2_{b'_0} = 0{,}8\cdot 10^{-4}; \quad s^2_{b_i} = 0{,}13\cdot 10^{-3};$$

$$s^2_{b_{ij}} = 0{,}2\cdot 10^{-3}; \quad s^2_{b_{ii}} = 0{,}33\cdot 10^{-3};$$

$$t_{b_0} = 26{,}3; \quad t_{b_1} = 13{,}4; \quad t_{b_2} = 29{,}1; \quad t_{b_3} = 31{,}2;$$

$$t_{b_{12}} = 29{,}5; \quad t_{b_{13}} = 34{,}5; \quad t_{b_{23}} = 21{,}0; \quad t_{b_{11}} = 9{,}17;$$

$$t_{b_{22}} = 2{,}25; \quad t_{b_{33}} = 42{,}6;$$

$$t_т = 12{,}71 \quad (f_0 = 1, \quad q = 0{,}05).$$

Таким образом, значимыми оказались коэффициенты b_0, b_1, b_2, b_3, b_{12}, b_{13}, b_{23}, b_{33}; сюда же можно отнести и коэффициент b_{11}, который находится на границе оценки значимости по t-критерию. Окончательно уравнение регрессии по доле отделяемой примеси (алюминию) имеет вид

$$\hat{y}'_1 = 0{,}65 — 0{,}16x'_1 — 0{,}33x'_2 + 0{,}36x'_3 — 0{,}24(x'_1)^2 + \\ + 0{,}42x'_1x'_2 + 0{,}48x'_1x'_3 + 0{,}29x'_2x'_3 + 0{,}89(x'_3)^2.$$

Адекватность модели проверяли по F-критерию

$$F_р = 37{,}7 \quad (f_{ад} = 11 — 9 = 2, \quad f_0 = 1, \quad F_т = 199{,}5),$$

т. е. модель адекватна экспериментальным данным и может быть использована для оптимизации процесса.

Результаты расчета и анализа математических моделей по переменным y'_2 и y'_3. Аналогично получены остальные уравнения регрессии II стадии, оказавшиеся адекватными

$$y'_2 = 90{,}5 — 2{,}08x'_1 — 1{,}86x'_2 + 1{,}10x'_3 + 0{,}25x'_1x'_2 + 1{,}68x'_1x'_3 — \\ — 1{,}93(x'_3)^2 + 2{,}44x'_2x'_3 — 0{,}37(x'_3)^2;$$

$$y_3 = 0{,}25 — 0{,}05x'_1 — 0{,}09x'_2 — 0{,}022x'_2x'_3 — 0{,}019x'_1x'_3 — 0{,}032(x'_2)^2.$$

Таблица 5.20. **План и результаты эксперимента**

Наименование	Факторы			Расчетные столбцы факторов							Выходная переменная	
	X''_1	X''_2	X''_3									
Основной уровень	1,0	500	26,0									
Интервал варьирования	0,5	100	1,0									

Номер опыта	x_0	План			$x''_1x''_2$	$x''_1x''_3$	$x''_2x''_3$	$(x''_1)^2$	$(x''_2)^2$	$(x''_3)^2$	y''_1	y''_2
		x''_1	x''_2	x''_3								
1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	66,90	95,00
2	+1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	+1	32,49	70,40
3	+1	−1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	32,49	85,85
4	+1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	33,84	66,01
5	+1	+1	0	0	0	0	0	+1	0	0	49,46	86,97
6	+1	−1	0	0	0	0	0	+1	0	0	47,12	80,21
7	+1	0	+1	0	0	0	0	0	+1	0	56,56	85,78
8	+1	0	−1	0	0	0	0	0	+1	0	37,80	80,00
9	+1	0	0	+1	0	0	0	0	0	+1	62,82	92,98
10	+1	0	0	−1	0	0	0	0	0	+1	67,38	89,75
11	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	54,25	86,14
12	+1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	54,65	86,54

5.2.3. Получение математической модели стадии селективной сорбции. Для получения модели III стадии исследуемого процесса используется план Хартли, с теми же характеристиками, что и на предыдущей стадии (табл. 5.20). Получены уравнения регрессии

$$\hat{y}''_1 = 57{,}90 + 1{,}17x''_1 + 9{,}38x''_2 - 2{,}27x''_3 - 10{,}58(x''_1)^2 + $$

$$+ 11{,}21x''_1x''_2 - 11{,}60(x''_2)^2 + 7{,}09x''_2x''_3;$$

$$\hat{y}''_2 = 88{,}23 + 3{,}38x''_1 + 2{,}89x''_2 + 1{,}57x''_3 - 5{,}24(x''_1)^2 + $$

$$+ 8{,}22x''_1x''_3 - 5{,}94(x''_2)^2,$$

которые оказались адекватными.

5.2.4. Оптимизация трехстадийного процесса извлечения скандия. Полученные на каждой стадии модели использовались для оптимизации процесса в целом в соответствии с постановкой задачи 3.1.1. Ниже приведены только конечные результаты решения этой задачи.

После проверки адекватности полученных на I стадии уравнений решалась задача нахождения условного экстремума: определяли максимум функции y_2 при заданном наборе ограничений по y_1 и y_3. Из полученных 10-ти вариантов выбраны два решения, определяющие область варьирования x'_3 для следующей стадии. При полученных значениях факторов поставлены опыты, результаты которых приведены в табл. 5.21.

Таблица 5.21. **Результаты решения задачи на условный экстремум по стадиям**

Стадия	Вариант	Оптимальные условия стадии (кодированные значения факторов)			Расчетные данные			Экспериментальные		
		x_1	x_2		$\hat{y}_1$	$\hat{y}_2$	$\hat{y}_3$	y_1	y_2	y_3
I	1	0,71	0,63		5,00	88,30	0,29	2,96	89,02	0,29
	2	0,67	0,46		10,00	88,95	0,29	7,56	89,70	0,29
		x'_1	x'_2	x'_3	$\hat{y}'_1$	$\hat{y}'_2$	$\hat{y}'_3$	y'_1	y'_2	y'_3
II	1	−0,75	0,06	−0,15	0,61	93,00	0,19	0,69	92,60	0,19
	2	−0,54	−0,19	−0,04	0,87	95,00	0,20	0,77	93,68	0,20
		x''_1	x''_2	x''_3	$\hat{y}''_1$		$\hat{y}''_2$	y''_1		y''_2
III	1	0,40	0,99	−0,50	66,50		97,00	66,23		96,51

После решения задачи моделирования на II стадии, решалась задача поиска условного экстремума. Найдена область оптимальных значений параметров оптимизации: извлечение скандия в концентрат (y'_2) достигало 92—94% при минимальных затратах (y'_3), причем 99% алюминия (y'_1) отделялось (табл. 5.22).

Таблица 5.22. **Результаты уточняющего расчета оптимальных условий процесса**

Стадия	Оптимальное значение факторов			Выходная переменная		
III	x''_1	x''_2	x''_3	y''_1	y''_2	
	0,40 (1,2)*	0,99 (599)	—0,50 (25,5)	65,00	97,00	
II	x'_1	x'_2	x'_3	y'_1	y'_2	y'_3
	—0,50 (7,10)	—0,13 (28.05)	—0 08 (0,99)	0,75	93,02	0,20
I	x_1	x_2		y_1	y_2	y_3
	0,76 (3,69)	0,53 (52,95)		7,49	88,61	0,29

* В скобках приведены натуральные значения факторов.

Оптимальные показатели последней стадии совпадают с конечным оптимумом всего процесса в целом: максимальное извлечение скандия при максимально возможной чистоте концентрата.

После этого, задав значения параметров на последней стадии (y''_1 и y''_2), полученные по результатам условного экстремума, определяли соответствующие входные факторы x''_1, x''_2, x''_3 (см. табл. 5.21).

Получив необходимое значение y'_1 (после пересчета x''_3), с помощью уравнений регрессии, описывающих процессы II стадии, рассчитывали значения входных факторов для этой стадии x'_1, x'_2, x'_3. Аналогично находили значения факторов, оптимальные для I стадии.

Таким образом, двигаясь от конца процесса к его началу, определяли режим проведения каждой операции, необходимой для получения оптимальных показателей всего процесса в целом. Окончательные результаты расчета приведены в табл. 5.22.

При проведении укрупненного опыта по всей технологической схеме в целом в рассчитанном оптимальном режиме получены показатели процесса, хорошо совпадающие с рассчитанными. Извлечение скандия в концентрат на последней стадии составило 97,2% (табличное значение $y_2'' = 97{,}00$).

После дополнительной очистки концентрата чистота продукта достигла 99,8%. Таким образом, удалось в значительной мере повысить степень извлечения скандия по сравнению с известной ранее схемой переработки такого же сырья, сократив при этом число операций и упростив процесс.

5.3. Планирование эксперимента при исследовании и оптимизации процесса получения 2-бензимидазомилметилкарбоната (БМК)

Введение. В этом разделе рассматривается задача, к решению которой применяется последовательность методов планирования эксперимента (см. 3.2).

Для увеличения выхода продукта используются: метод Плакетта — Бермана, как средство отсеивания незначимых факторов (достижение цели *4*); метод ДФЭ, как средство получения математической модели процесса; метод крутого восхождения, как средство достижения оптимума (цели *5*).

Исследовался процесс получения БМК на основе цианамида кальция (ЦК), метилхлороформита (МХФ) и *о*-фенилендиамина (ОФДА). При воспроизведении патентных данных выход целевого продукта составлял 67%. Поставлена задача достижения максимального выхода продукта. Реакцию проводили на лабораторной установке, включающей реактор с мешалкой, терморегуляторы и дозаторы. Полученный после реакции водный раствор отфильтровывали и осадок промывали на фильтре водой. Смесь фильтрата и промывной воды подавали на II стадию реакции, которая протекала уже в кислой среде. Получаемый осадок целевого продукта БМК отфильтровывали, промывали горячей водой и сушили до постоянной массы.

Параметром оптимизации выбран выход целевого продукта y, %, факторами первоначально были выбраны: X_1 — мольное отношение ЦК и МХФ; X_2 — мольное отношение МХФ и ОФДА; X_3 — концентрация ЦК в ис-

Таблица 5.23. **Насыщенный ортогональный план и результаты эксперимента**

Наименование	Факторы											
	X_1	X_2	X_3	X_4	X_5	X_6	X_7	X_8	X_9	X_{10}	X_{11}	
Основной уровень	0,9	2,0	10	5,0	90	40	3,5	45	60	40	10	
Интервал варьирования	0,3	0,6	2	2,0	10	10	1,0	15	10	15	2	
Верхний уровень	1,2	2,6	12	7,0	100	50	4,5	60	70	55	12	
Нижний уровень	0,6	1,4	8	3,0	80	30	2,5	30	50	25	8	
Номер опыта	План											
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6	x_7	x_8	x_9	x_{10}	x_{11}	$\bar{y}$
1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	59
2	+1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	58
3	−1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	65
4	+1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	49
5	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	68
6	+1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	63
7	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	73
8	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	24
9	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	56
10	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	35
11	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	64
12	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	32

ходной смеси, %; X_4 — скорость подачи МХФ, г/мин; X_5 — температура протекания II стадии реакции, °С; X_6 — продолжительность II стадии, мин; X_7 — pH среды на II стадии; X_8 — температура протекания I стадии реакции, °С; X_9 — продолжительность I стадии, мин; X_{10} — скорость подачи фильтрата, г/мин; X_{11} — pH среды на I стадии.

На I этапе проведен отсеивающий эксперимент по плану Плакетта — Бермана (алгоритм 2.2.2). Выбранные интервалы варьирования факторов и их нулевые уровни, а также насыщенный план приведены в табл. 5.23. План строился в соответствии с табл. 2.4 и замечанием 1 к алгоритму 2.2.2.

Коэффициенты регрессии рассчитывались по алгоритму 1.5.1.:

$b_0 = 53{,}83;$ $b_6 = 2{,}83;$
$b_1 = 1{,}50;$ $b_7 = 0{,}00;$
$b_2 = 11{,}33;$ $b_8 = 0{,}17;$
$b_3 = 1{,}67;$ $b_9 = 3{,}83;$
$b_4 = 0{,}83;$ $b_{10} = -4{,}67;$
$b_5 = -2{,}00;$ $b_{11} = 6{,}33.$

Дисперсию воспроизводимости находили по четырем параллельным опытам в центре плана ($f_0=3$), она равнялась $s_0^2 = 8{,}83$. Тогда $s_{b_i}^2 = 8{,}83/12 = 0{,}736$ и $s_{b_i} = \sqrt{0{,}736}=0{,}85$. Проверяя значимость коэффициентов по формуле (1.90), получили следующие значимые коэффициенты (см. приложение 4, $q=10\%$, $t_т=2{,}35$): b_2, b_5, b_6, b_9, b_{10}, b_{11}. Таким образом, в план основного эксперимента после отсеивания включали факторы X_2, X_5, X_6, X_9, X_{10}, X_{11} (табл. 5.24).

Таблица 5.24. **План и результаты эксперимента**

Наименование	Факторы							
	X_2	X_5	X_6	X_9	X_{10}	X_{11}		
Основной уровень	0,2	5	10	10	11	1,5		
Интервал варьирования	2,0	90	40	60	40	10,0		
Номер опыта	План						$\bar{y}$	$\hat{y}$
	x_2	x_5	x_6	x_9	x_{10}	x_{11}		
1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	67	67,0
2	+1	+1	+1	−1	−1	−1	67	67,0
3	+1	−1	−1	+1	+1	−1	68	65 5
4	−1	−1	+1	+1	−1	+1	74	72,5
5	−1	+1	−1	−1	+1	+1	66	66,0
6	+1	−1	+1	−1	+1	+1	66	66,0
7	+1	+1	−1	+1	−1	+1	71	72,5
8	−1	+1	+1	+1	+1	−1	63	65,5

Основной эксперимент проводился по плану дробного факторного эксперимента типа 2^{6-3} (см. 1.5.5).

Определяющий контраст имеет вид

$$1 = -x_2x_6x_9 = -x_2x_5x_{10} = -x_5x_6x_{11} = x_2x_6x_{10}x_{11} = x_5x_6x_9x_{10}.$$

Выбранная 1/8 реплики оценивает линейные эффекты совместно с парными взаимодействиями.

Коэффициенты линейной модели рассчитывали по алгоритму 1.5.1, поскольку вся матрица планирования реализовалась дважды (два параллельных опыта, $f_0 = 8(2-1) = 8$, $s_0^2 = 4{,}44$). Получены следующие значения коэффициентов:

$b_0 = 67{,}75;$ $b_9 = 1{,}25;$

$b_2 = 0{,}25;$ $b_{10} = -2{,}00;$

$b_5 = -1{,}00;$ $b_{11} = 1{,}50.$

$b_6 = -0{,}25;$

Рассчитывая значимость коэффициентов, как и на предыдущем шаге алгоритма, получим

$t_{b_2} + 0{,}472;$ $t_{b_5} = 1{,}887;$ $t_{b_6} = 0{,}472;$

$t_{b_9} = 2{,}358;$ $t_{b_{10}} = 3{,}774;$ $t_{b_{11}} = 2{,}830.$

Сравнением с $t_т = 2{,}31$ ($f_0 = 8$ и $q = 0{,}05$, см. приложение 4) выясняем, что значимыми являются коэффициенты регрессии b_9, b_{10}, b_{11}.

Оценку адекватности полученного уравнения регрессии

$$\hat{y} = 67{,}75 + 1{,}25x_9 - 2{,}00x_{10} + 1{,}50x_{11}$$

осуществляем по формуле (1.141, *б*)

$$s^2_{ад} = \frac{2}{8-4}(68{,}0 - 65{,}5)^2 + (74{,}0 - 72{,}5)^2 + (72{,}5 - 71{,}0)^2 + (65{,}5 - 63{,}0)^2 = 8{,}50,$$

и окончательно

$$F_р = \frac{8{,}50}{4{,}44} \approx 1{,}9 < F_т = 3{,}84 \quad (f_{ад} = 4,\ f_0 = 8,\ q = 0{,}05).$$

Таким образом, линейное уравнение адекватно. Принимаем решение осуществить крутое восхождение по факторам x_9, x_{10}, x_{11} (алгоритм 2.6.1), представленное в табл. 5.25.

Значения $\hat{y}$, рассчитанные по уравнению регрессии, не соответствуют экспериментальным данным: расчет

Таблица 5.25. **Крутое восхождение по уравнению регрессии**

Факторы и выходная переменная	Коэффициент b_i	ΔX_i	$h_i = b_i \Delta X_i \cdot 0{,}5$	Округление h_i	Шаги крутого восхождения		
					1	2	3
X_9	1,25	16	12,5·0,5	6,0	66	72	78
X_{10}	—2,00	11	—22,0·0,5	11,0	29	18	7
X_{11}	1,50	1,0	2,25·0,5	1,1	11,1	12,2	13,3
$y_{эксп}$					76,0	71,0	43,0
$\hat{y}$					71,5	75,4	79,3

свидетельствует о росте выхода продукта, а эксперимент — о его уменьшении. И тем не менее крутое восхождение можно признать эффективным — на первом же шаге получено значение выхода $y_{эксп}=76{,}0\%$, которое на 2% выше максимального выхода целевого продукта, достигнутого при постановке экспериментов по плану. Принимается решение реализовать новый план эксперимента с центром в точке первого шага крутого восхождения ($X_9=66$ мин, $X_{10}=29$ г/мин, $X_{11}(\text{pH})=11{,}1$) с добавлением ранее отсеянного фактора $X_3=10\%$. В качестве плана принимается ДФЭ типа 2^{4-1} (табл. 5.26) с генерирующим соотношением $x_{11}=x_3x_9x_{10}$ и определяющим контрастом $1'=x_3x_9x_{10}x_{11}$. Система смешения оценок имеет вид

$$x_3 = x_9x_{10}x_{11}; \qquad b_3 \longrightarrow \beta_3 + \beta_{9,\,10,\,11};$$
$$x_9 = x_3x_{10}x_{11}; \qquad b_9 \longrightarrow \beta_9 + \beta_{3,\,10,\,11};$$
$$x_{10} = x_3x_9x_{11}; \qquad b_{10} \longrightarrow \beta_{10} + \beta_{3,\,9,\,11};$$
$$x_{11} = x_3x_9x_{10}; \qquad b_{11} \longrightarrow \beta_{11} + \beta_{3,\,9,\,10};$$
$$x_3x_9 = x_{10}x_{11}; \qquad b_{3,\,9} \longrightarrow \beta_{3,\,9} + \beta_{10,\,11};$$
$$x_3x_{10} = x_9x_{11}; \qquad b_{3,\,10} \longrightarrow \beta_{3,\,10} + \beta_{9,\,11};$$
$$x_3x_{11} = x_{10}x_9; \qquad b_{3,\,11} \longrightarrow \beta_{3,\,11} + \beta_{10,\,9}.$$

Считая априори, что тройные взаимодействия незначимы, можно принять, что линейные эффекты оцениваются раздельно.

Рассчитанное значение дисперсии воспроизводимости для двух параллельных опытов по всей матрице планирования оказалось равным $s_0^2 = 3{,}00$. Тогда $s_b^2 =$

Таблица 5.26. **План и результаты эксперимента**

Наименование	Факторы			
	X_3	X_9	X_{10}	X_{11}
Нулевой уровень	10	66	29	11,1
Интервал варьирования	2,5	8	5	0,5

Номер опыта	План							$\bar{y}$	
	x_3	x_9	x_{10}	x_{11}	x_3x_9	x_9x_{10}	x_3x_{11}		
1	−1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	72	
2	+1	−1	−1	+1	−1	−1	+1	80	
3	+1	−1	+1	−1	−1	+1	−1	54	
4	+1	+1	−1	−1	+1	−1	−1	53	
5	−1	−1	+1	+1	+1	−1	−1	75	
6	−1	+1	−1	+1	−1	+1	−1	79	
7	−1	+1	+1	−1	−1	−1	+1	77	
8	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	83	
Коэффициенты регрессии	−4,125	1,375	0,625	7,625	−0,875	0,375	6,375	$y_{эксп}$	$\hat{y}$
Опыты крутого восхождения									
9	7,0	88	29	11,4				78	84,93
10	7,0	121	29	11,4				87	90,60
11	7,0	154	29	11,4				87	96,27

$= 3{,}00/8 \cdot 2 = 0{,}187$, $s_{b_i} = 0{,}43$. По таблице t-критерия $t_т = 2{,}31$ ($f_0 = 8$).

Учитывая условие значимости коэффициентов

$$\Delta b_i = \pm t_т s_{b_i} \approx 1{,}00 \text{ и } |b_i| > |\Delta b_i|,$$

выясняем, что значимы линейные коэффициенты b_3, b_9, b_{11} (они рассчитывались как обычно и приведены в табл. 5.26) и коэффициент взаимодействия факторов x_3x_{11}, т. е. b_3b_{11}.

Линейная модель, таким образом, оказалась неадекватной (значим коэффициент при взаимодействии фак-

торов). Однако принято решение осуществить крутое восхождение в соответствии со значениями и знаками факторов. Для этого фактор X_3 был уменьшен с 10 до 7% и далее оставлен на этом уровне; фактор X_{11} был изменен с 11,1 до 11,4 и далее также застабилизирован. Продолжительность реакции менялась от 28 до 154 мин (результаты крутого восхождения приведены в нижней части табл. 5.26).

В итоге достигнут выход целевого продукта равный 87%, что значительно превышает исходный — 67%. Окончательно можно констатировать: используя последовательность методов планирования эксперимента к процессу получения 2-БМК (отсеивание факторов, получение математической модели и оптимизация), установлено, что при уменьшении концентрации цианамида кальция в исходной смеси до 7%, снижение скорости подачи фильтрата до 29 г/мин, увеличении продолжительности I стадии реакции до 154 мин и увеличении pH среды на I стадии до 11,4 достигается увеличение выхода продукта на 20%.

5.4. Планирование эксперимента при моделировании и оптимизации процесса каталитического синтеза пиперазина

Введение. В этом разделе рассматривается решение задачи, иллюстрирующей применение системы методов планирования эксперимента для достижения ряда целей (см. раздел 3.2, рис. 3.9). Для повышения оптимального выхода продукта используются: метод ПФЭ, как средство получения линейной математической модели (достижение цели *5а*); метод крутого восхождения, как средство получения локального оптимума по линейной модели (цель *5г*); метод центрального композиционного ортогонального планирования, как средство получения нелинейной модели и последующий поиск оптимума с помощью канонических преобразований (достижение целей *5б* и *5в*).

Исследовался процесс каталитического синтеза пиперазина циклизацией диэтилентриамина (ДЭТА) на никелевом гидрирующем катализаторе в присутствии аммиака. В эксперименте использовалась установка проточного типа с трубчатым реактором диаметром 20 и высотой 1000 мм, снабженным электронагревателем и

термопарой, обеспечивающей замеры температуры в трех точках по высоте слоя катализатора. Объем слоя катализатора составлял 100 см^3. Исходная смесь подавалась в реактор сверху. Составы исходного сырья и реакционной смеси анализировались методами газожидкостной хроматографии.

На I этапе исследования проведена серия предварительных опытов, по результатам которых выделены четыре основных фактора процесса, а также определена область, в которой можно начать эксперимент. Выходной переменной принято содержание целевого продукта (пиперазина) по окончании реакции. Условные обозначения факторов и возможные диапазоны их изменения приведены в табл. 5.27.

Таблица 5.27. **Факторы и диапазоны их изменения**

Факторы	Обозначение	Диапазон изменения
Температура, °С	X_1	100—300
Давление, МПа	X_2	0,1—10
Время пребывания в реакторе, ч	X_3	0,5—12
Отношение $\frac{NH_3}{ДЭТА}$	X_4	0—10

В предварительных опытах наибольший выход пиперазина $y=12{,}9\%$ получен при условиях $X_1=140$°С, $X_2=2{,}5$ МПа, $X_3=1{,}5$ ч, $X_4=2$.

На I этапе поставлен многофакторный эксперимент типа 2^4 с условиями, приведенными в табл. 5.28.

Таблица 5.28. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Условия эксперимента	Факторы			
	X_1, °С	X_2, МПа	X_3, ч	X_4
Нулевой уровень	140	2,5	1,5	2
Интервал варьирования	20	1,5	0,5	2

Таблица 5.29. **План и реализация эксперимента**

Номер опыта	Факторы					Значения выхода пиперазина, %				
						опытные				расчетные
	X_0	X_1	X_2	X_3	X_4	y_1	y_2	y_3	$\bar{y}$	$\hat{y}$
1	+1	−1	−1	−1	−1	0,2	0,1	0,1	0,13	−0,11
2	+1	+1	−1	−1	−1	7,0	7,4	8,9	7,77	7,39
3	+1	−1	+1	−1	−1	0,2	0,4	0,2	0,27	0,45
4	+1	+1	+1	−1	−1	15,8	15,0	17,2	16,0	15,87
5	+1	−1	−1	+1	−1	0,4	0,8	0,6	0,60	0,90
6	+1	+1	−1	+1	−1	10,5	12,1	10,9	11,17	10,85
7	+1	−1	+1	+1	−1	0,6	0,2	0,4	0,40	0,11
8	+1	+1	+1	+1	−1	45,8	47,9	46,8	46,83	47,73
9	+1	−1	−1	−1	+1	0,6	0,2	0,4	0,40	0,63
10	+1	+1	−1	−1	+1	10,3	10,8	12,8	11,3	11,69
11	+1	−1	+1	−1	+1	0,6	0,2	0,4	0,40	0,19
12	+1	+1	+1	−1	+1	17,8	18,5	20,7	19,0	19,7
13	+1	−1	−1	+1	+1	0,8	0,8	1,3	0,97	0,65
14	+1	+1	−1	+1	+1	12,3	14,2	14,9	13,8	14,15
15	+1	−1	+1	+1	+1	0,4	0,6	0,8	0,60	0,85
16	+1	+1	+1	+1	+1	51,1	54,1	53,5	52,9	52,02

Опыты плана (табл. 5.29) реализовались с учетом рандомизации. Число параллельных опытов равнялось трем.

В соответствии с алгоритмом 1.5.1 рассчитаны коэффициенты уравнения регрессии

$b_0 = 11{,}41$; $b_{12} = 5{,}70$; $b_{34} = 0{,}146$;

$b_1 = 10{,}95$; $b_{13} = 4{,}33$; $b_{123} = 3{,}72$;

$b_2 = 5{,}64$; $b_{14} = 0{,}89$; $b_{234} = 0{,}25$;

$b_3 = 4{,}50$; $b_{23} = 3{,}63$; $b_{134} = 0{,}125$;

$b_4 = 1{,}01$; $b_{24} = 0{,}163$; $b_{124} = 0{,}201$;

и построчные дисперсии s^2_u, на основе которых найдено $G_р = 2{,}52/12{,}71 = 0{,}198$. Учитывая, что $f_1 = 2$, $f_2 = 16$ по таблице (см. приложение 7) находим $G_т = 0{,}322$ и убеждаемся, что дисперсии однородны ($G_р < G_т$). Рассчетное значение дисперсии воспроизводимости $s^2_0 = 12{,}71/16 = 0{,}794$.

Дисперсию коэффициентов регрессии находим по формуле (1.14, *а*) — $s^2_{b_i} = 0{,}01654$ или $s_{b_i} \approx 0{,}13$.

Проверяя значимость коэффициентов в соответствии с формулой (1.90), после отбрасывания незначимых ко-

эффициентов b_{34}, b_{24}, b_{234}, b_{134}, b_{124} получим следующее уравнение регрессии:

$$\hat{y} = 11{,}41 + 10{,}95x_1 + 5{,}64x_2 + 4{,}50x_3 + 1{,}01x_4 + 5{,}70x_1x_2 + \\ + 4{,}33x_1x_3 + 0{,}89x_1x_4 + 3{,}63x_2x_3 + 3{,}72x_1x_2x_3.$$

Принятие решения. Линейная модель оказалась неадекватной, что свидетельствует о существенной кривизне функции отклика. Также легко заметить, что наилучшее значение y в матрице планирования эксперимента дал опыт, где все факторы находились на верхнем уровне (это подтверждается положительными знаками коэффициентов уравнения регрессии). Принимаем решение осуществить движение в область оптимума, используя только линейные члены уравнения и в соответствии с алгоритмом крутого восхождения (2.6.1). Шаги крутого восхождения, расчетные и экспериментальные значения выхода пиперазина приведены в табл. 5.30.

Таблица **5.30. Реализация крутого восхождения**

Факторы и выходные переменные	Коэффициент b_i	ΔX_i	Составляющая градиента $\lambda_i = 0{,}1 b_i \Delta X_i$	Округление h_i	Шаги крутого восхождения				
					1	2	3	4	5
X_1	10,95	20	21,9	22	140	162	184	205	227
X_2	5,64	15	8,46	8,5	25	83,5	42,0	50,5	59,0
X_3	4,50	0,5	0,22	0,2	1,5	1,7	1,9	2,1	2,3
X_4	1,01	2	0,2	0,2	2,0	2,2	2,4	2,6	2,8
$y_{эксп}$	—	—	—	—	11,3	39,0	85,0	74,0	62,0
$\hat{y}$	—	—	—	—	11,41	33,09	54,57	77,88	99,48

Значения $\hat{y}$, вычисленные из уравнения регрессии, не соответствуют экспериментальным. Это подтверждает то положение, что использовать неадекватную линейную модель для крутого восхождения некорректно. Однако принятое ранее решение было правильным — крутое восхождение оказалось эффективным: на втором шаге выход целевого продукта достиг 85%, что на 30% выше наибольшего выхода, достигнутого при постановке ПФЭ

(однако крутое восхождение не всегда бывает столь эффективным). Таким образом, полученная точка $X_1 = 184°C$, $X_2 = 4{,}2$ МПа, $X_3 = 2$ ч, $X_4 = 2{,}4$ использовалась для построения и реализации нового плана ПФЭ 2^4 с условиями, приведенными в табл. 5.31.

Таблица 5.31. **Исходные данные для планирования эксперимента**

Условия эксперимента	Факторы			
	X_1	X_2	X_3	X_4
Нулевой уровень	180	4,0	2	2,5
Интервал варьирования	10	1,0	1	1,5

Матрица планирования второго плана ПФЭ и результаты первых 16-ти опытов приведены в первой части табл. 5.32.

Проведенные расчеты некоторых коэффициентов при взаимодействиях факторов и их статистический анализ показали, что влияние нелинейности стало еще заметнее (b_{ij} и b_{ijk} оказались значимыми). Поэтому было принято решение перейти к плану второго порядка типа ЦКОП. ПФЭ был достроен в соответствии с требованиями алгоритма 1.6.1 (см. табл. 5.32, опыты 17—25).

По формулам (1.162)—(1.165) рассчитаны коэффициенты модели

$$b_0' = 58{,}61; \quad b_{12} = -0{,}85; \quad b_{34} = 0{,}30;$$
$$b_1 = 5{,}60; \quad b_{23} = -0{,}04; \quad b_{11} = -9{,}46;$$
$$b_2 = 3{,}60; \quad b_{14} = 0{,}19; \quad b_{22} = -5{,}40;$$
$$b_3 = 16{,}92; \quad b_{13} = -7{,}30; \quad b_{33} = -10{,}90;$$
$$b_4 = 1{,}84; \quad b_{24} = 0{,}09; \quad b_{44} = -0{,}88.$$

Отметим, что знаменатели в указанных выше формулах соответственно равны: 25, 20, 16 и 8.

По формулам (1.166)—(1.169) рассчитаны дисперсии коэффициентов регрессии ($s_0^2 = 7{,}123$ рассчитана по трем опытам в центре плана):

$$s^2_{b_0'} = 0{,}285; \quad s^2_{b_i} = 0{,}356; \quad s^2_{b_{ij}} = 0{,}445; \quad s^2_{b_{ii}} = 0{,}89.$$

Таблица 5.32. **Матрица центрального композиционного планирования**

Номер опыта	Факторы					Значения выхода пиперазина, %				
						опытные			расчетные	
	X_0	X_1	X_2	X_3	X_4	y_1	y_2	y_3	$\bar{y}$	$\hat{y}$
1	+1	−1	−1	−1	−1	20,4	22,2	18,7	20,43	17,30
2	+1	+1	−1	−1	−1	46,9	44,2	45,0	45,37	44,72
3	+1	−1	+1	−1	−1	24,0	24,5	26,1	24,87	26,18
4	+1	+1	+1	−1	−1	51,8	48,9	50,6	50,43	50,21
5	+1	−1	−1	+1	−1	67,2	65,6	67,7	66,83	65,65
6	+1	+1	−1	+1	−1	68,3	67,2	66,1	67,2	64,02
7	+1	−1	+1	+1	−1	76,4	73,2	75,0	74,87	74,56
8	+1	+1	+1	+1	−1	69,1	68,9	66,9	68,3	69,52
9	+1	−1	−1	−1	+1	20,7	21,0	22,7	21,47	20,95
10	+1	+1	−1	−1	+1	46,9	48,7	48,2	47,93	48,40
11	+1	−1	+1	−1	+1	26,8	26,7	25,1	26,2	29,86
12	+1	+1	+1	−1	+1	54,2	53,1	53,0	53,43	53,89
13	+1	−1	−1	+1	+1	70,8	68,8	69,1	69,57	69,33
14	+1	+1	−1	+1	+1	72,1	70,6	68,6	70,43	67,70
15	+1	−1	+1	+1	+1	80,1	77,4	78,2	78,57	78,24
16	+1	+1	+1	+1	+1	74,7	71,3	68,0	71,33	73,19
17	+1	−1,414	0	0	0	52,3	52,1	53,3	52,57	53,18
18	+1	+1,414	0	0	0	67,8	66,0	67,5	67,10	69,02
19	+1	0	−1,414	0	0	54,1	56,2	58,3	56,20	64,24
20	+1	0	+1,414	0	0	84,3	86,0	68,8	79,7	74,16
21	+1	0	0	−1,414	0	35,7	37,8	32,1	35,2	34,20
22	+1	0	0	+1,414	0	79,9	78,0	78,2	78,7	82,20
23	+1	0	0	0	−1,414	71,2	72,0	70,4	71,2	75,63
24	+1	0	0	0	+1,414	82,8	83,6	81,9	82,77	80,83
25	+1	0	0	0	0	85,0	87,1	81,8	84,63	80,00

Соответственно найдены среднеквадратические отклонения коэффициентов регрессии

$$s_{b_i} = 0{,}597; \qquad s_{b_{ij}} = 0{,}667; \qquad s_{b_{ii}} = 0{,}93;$$

и по формуле (1.90) рассчитаны значения t-критерия. Оценка значимости для $t_т = 2{,}01$ ($f_0 = 50$, $q = 0{,}05$) показала, что коэффициенты b_{12}, b_{23}, b_{14}, b_{24}, b_{34}, b_{44} незначимы. Дисперсия $s^2_{b_0} = 3{,}133$ найдена по формуле (1.170), а $b_0 = 79{,}93$ — по формуле (1.173). Свободный член оказался, естественно, значимым.

Учитывая, что расчетные значения t-критерия для коэффициентов b_{12} и b_{44} мало отличаются от $t_т$, принимаем решение считать их значимыми коэффициентами. Тогда уравнение регрессии примет окончательный вид

$$\hat{y} = 79{,}93 + 5{,}6x_1 + 3{,}6x_2 + 16{,}92x_3 + 1{,}84x_4 - 0{,}853x_1x_2 - \\ - 7{,}30x_1x_3 - 9{,}46x_1^2 - 5{,}40x_2^2 - 10{,}90x_3^2 - 0{,}884x_4^2.$$

Адекватность проверяется в соответствии с формулами (1.92), (1.93), (1.94) (расчетное $s^2_{ад} = 18{,}14$). В соответствии с формулой (1.95)

$$F_р = \frac{18{,}14}{7{,}123} = 2{,}55.$$

Учитывая, что $f_{ад} = 25 - 4 = 21$, $f_0 = 3 - 1 = 2$, находим по таблице (см. приложение 5) для $q = 0{,}05$ $F_т = 19{,}45$, т. е. $F_р < F_т$, а значит уравнение регрессии адекватно экспериментальным данным.

Для окончательного решения основной задачи — достижения оптимума — воспользуемся каноническим преобразованием уравнения регрессии и, в зависимости от вида поверхности отклика, решим, какой метод поиска оптимума использовать.

Воспользуемся алгоритмом 2.6.3. Перенесем начало координат в новую точку факторного пространства S. Для этого продифференцируем уравнение регрессии и решим систему относительно X_{iS}:

$$\frac{\partial y}{\partial x_1} = 5{,}6 - 0{,}853x_2 - 7{,}30x_3 - 9{,}46 \cdot 2x_1 = 0;$$

$$\frac{\partial y}{\partial x_2} = 0{,}36 - 0{,}853x_1 - 5{,}4 \cdot 2x_2 = 0;$$

$$\frac{\partial y}{\partial x_3} = 16{,}92 - 7{,}30x_1 - 10{,}9 \cdot 2x_3 = 0;$$

$$\frac{\partial y}{\partial x_4} = 1{,}84 - 0{,}884 \cdot 2x_4 = 0;$$

$$X_{1S} = -0{,}0163; \quad X_{2S} = 0{,}334; \quad X_{3S} = 0{,}781; \quad X_{4S} = 1{,}04.$$

Расчетное значение выхода пиперазина в новом центре координат $y_S = 88{,}06\%$.

Оси в новом центре необходимо повернуть до совмещения с главными осями поверхности функции отклика. Для этого составим характеристический детерминант

$$\begin{vmatrix} b_{11} - B & 0{,}5b_{12} & 0{,}5b_{13} & 0{,}5b_{14} \\ 0{,}5b_{21} & b_{22} - B & 0{,}5b_{23} & 0{,}5b_{24} \\ 0{,}5b_{31} & 0{,}5b_{32} & b_{33} - B & 0{,}5b_{34} \\ 0{,}5b_{41} & 0{,}5b_{42} & 0{,}5b_{43} & b_{44} - B \end{vmatrix} = 0$$

и из него найдем значение коэффициентов B_{11}, B_{22}, B_{33}, B_{44}

$$\begin{vmatrix} (-9{,}46 - B) & -0{,}426 & -3{,}635 & 0 \\ -0{,}426 & (-5{,}40 - B) & 0 & 0 \\ -3{,}635 & 0 & (-10{,}90 - B) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & (-0{,}884 - B) \end{vmatrix} = 0;$$

$$(-0{,}884 - B) \begin{vmatrix} (-9{,}46 - B) & -0{,}426 & -3{,}635 \\ -0{,}426 & (-5{,}4 - B) & 0 \\ -3{,}635 & 0 & (-10{,}9 - B) \end{vmatrix} = 0;$$

$$B_{44} = -0{,}884.$$

$$(-9{,}46 - B)(-5{,}4 - B)(-10{,}9 - B) - 3{,}635^2(-5{,}4 - B) - - 0{,}426^2(-10{,}9 - B) = 0;$$

$$B^3 + 25{,}76B^2 + 199{,}72B + 483{,}72 = 0.$$

Корнями этого уравнения будут

$$B_{11} = -13{,}97; \quad B_{22} = -6{,}15; \quad B_{33} = -5{,}64.$$

Таким образом, уравнение поверхности отклика приводится к такой канонической форме:

$$\hat{y} - 88{,}06 = -13{,}97X_1^2 - 6{,}15X_2^2 - 5{,}64X_3^2 - 0{,}884X_4^2.$$

В соответствии с классификацией (см. табл. 2.9) поверхность отклика представляет собой действительный гиперэллипсоид и, следовательно, выход продукта в его центре максимальный ($y_{max}=88{,}06\%$). Отсюда следует, что каноническое преобразование уравнения регрессии позволило определить оптимум процесса, не прибегая к методам оптимизации.

Экспериментальное определение выхода пиперазина в условиях, заданных координатами центра, показало совпадение опытных и расчетных данных (опытное значение выхода пиперазина составляет 85,2%).

Таким образом, оптимальный режим процесса каталитического синтеза пиперазина в экспериментальном реакторе, при котором был достигнут выход $y_{max}=85{,}2\%$, определяется следующими значениями факторов: температура — 180°С, давление 4,5 МПа, время пребывания — 2,7 ч, мольное отношение аммиака к ДЭТА — 3,5.

Приложение 1

Некоторые сведения по математической статистике

Величина X, которая при повторяющихся условиях опыта принимает то или иное значение, заранее не известное, называется случайной величиной. Случайная величина называется *дискретной*, если между любыми двумя ее значениями лишь конечное число других случайных величин. *Непрерывные* случайные величины представляют совокупность случайных величин, которые плотно заполняют некоторый промежуток.

Совокупность всех возможных значений случайной величины для всех возможных условий опыта называется генеральной совокупностью. Совокупность ограниченного числа значений случайной величины, полученных в результате эксперимента, называется выборкой из генеральной совокупности. Если N выборочных значений x_1, x_2, ..., x_N случайной величины X получены для N независимо изменявшихся условий опыта, то x_1, x_2, ..., x_N можно рассматривать как N независимых случайных величин.

Всякое соотношение, устанавливающее связь между возможными значениями случайной величины и соответствующими им вероятностями, называется законом распределения.

Для количественной характеристики свойств генеральной совокупности используется функция распределения случайной величины X, которая равна вероятности принятия случайной величиной значения, меньшего чем X

$$F(x) = P(X < x).$$

Общие свойства функции распределения:

1. Функция распределения $F(x)$ есть неубывающая функция своего аргумента, т. е. при $x_2 > x_1$ $F(x_2) \geqslant F(x_1)$.

2. $F(-\infty) = 0$.

3. $F(+\infty) = 1$.

Производная функция распределения непрерывной случайной величины X называется плотностью распределения

$$f(x) = F'(x).$$

Вероятность нахождения величины X в интервале от a до b выражается через плотность распределения

$$P(a < x < b) = \int_a^b f(x)dx$$

или через функцию распределения

$$\int_a^b f(x)dx = F(b) - F(a).$$

Основные свойства плотности распределения:

1. Плотность распределения есть неотрицательная функция

$$f(x) \geqslant 0.$$

2. Интеграл в бесконечных пределах от плотности распределения равен единице:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} f(x)dx = 1.$$

Центр группирования значений случайной величины X характеризуется числовой характеристикой — математическим ожиданием $M[X]$), которая определяется выражением

$$M[X] = \sum_{i=1}^{N\to\infty} p_i x_i$$

для дискретной случайной величины и

$$M[X] = \int_{-\infty}^{+\infty} xf(x)dx$$

для непрерывной случайной величины.

Свойства математического ожидания:

1) $M[c] = c$, если $c = \text{const}$;

2) $M[cX] = cM[X]$;

3) $M[X + Y] = M[X] + M[Y]$;

4) $M[a + bY] = a + bM[Y]$;

5) $M[XY] = M[X]M[Y]$,

если X и Y — независимые случайные величины.

Степень рассеивания значений случайной величины вокруг центра группирования характеризуется дисперсией. Для непрерывной случайной величины дисперсия равна

$$D[X] = \int_{-\infty}^{+\infty} (x - M[X])^2 f(x)dx,$$

для дискретной

$$D[X] = \sum_{i=1}^{N\to\infty} (x_i - M[X])^2 p_i.$$

Дисперсию можно рассматривать как математическое ожидание квадратов отклонений

$$D[X] = M(X - M[X])^2.$$

Свойства дисперсии:

1) $D[c] = 0$, если $c = \text{const}$;

2) $D[cX] = c^2 D[X]$;

3) $D[X] = M[X^2] - (M[X])^2$;

4) $D[X + Y] = D[X] + D[Y]$,

если X и Y — независимые случайные величины.

Величина, равная квадратному корню из дисперсии, называется средним квадратическим отклонением.

Если значение случайной величины есть результат действия многочисленных независимых и примерно одинаково малых факторов, то случайная величина характеризуется нормальным законом распределения. Плотность вероятности нормального распределения имеет вид

$$f(x) = \frac{1}{\sigma_x \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x-m_x)^2}{2\sigma_x^2}},$$

где m_x — математическое ожидание генеральной совокупности; σ_x^2 — ее дисперсия.

Численные параметры m_x и σ_x^2 полностью характеризуют генеральную совокупность нормально распределенной случайной величины. Многие технологические переменные, определяющие работу химико-технологических объектов, имеют распределение, близкое к нормальному.

Характеристики распределения, полученные по данным выборки, называются выборочными оценками. Выборочные оценки a_N являются случайными величинами и зависят от распределения случайных величин X, числа опытов N. Выборочная оценка обладает практической ценностью, если она характеризуется свойствами: несмещенностью, состоятельностью, эффективностью.

Оценка a называется *несмещенной,* если при любом N ее математическое ожидание равно истинному значению параметра a:

$$M[a_N] = a.$$

Оценка a_N параметра a называется *состоятельной,* если при неограниченном увеличении N ее значение с вероятностью, равной единице, стремится к истинному значению параметра a:

$$\lim P\{[a_N - a] < \varepsilon\} = 1.$$

Оценка a_N называется *эффективной,* если среди прочих оценок того же параметра она обладает наименьшей дисперсией

$$D[a_N] = D_{\min}.$$

Оценка математического ожидания (средняя) для дискретной случайности величины определяется по формуле

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{u=1}^{N} x_u.$$

Оценка дисперсии вычисляется по формуле

$$s_x^2 = \frac{1}{N-1} \sum_{u=1}^{N} (x_u - \bar{x})^2,$$

или

$$s_x^2 = \frac{1}{N-1} \left[\sum_{u=1}^{N} x_u^2 - \frac{1}{N} \left(\sum_{u=1}^{N} x_u \right)^2 \right].$$

Знаменатель выборочной дисперсии равен разности между объемом выборки и числом связей, наложенных на эту выборку. Эта разность f называется числом степеней свободы выборки.

Для определения точности оценки a_N пользуются доверительным интервалом $a_N \pm \varepsilon$, а для определения надежности — доверительной вероятностью

$$P(a_N - \varepsilon < a < a_N + \varepsilon) = p_\varepsilon,$$

т. е. неизвестное значение параметра a с вероятностью p_ε попадает в доверительный интервал $a_N \pm \varepsilon$. В технических расчетах обычно $p_\varepsilon = 0{,}95$.

Функцией распределения системы двух случайных величин (X, Y) называется функция двух аргументов $F(x, y)$, равная вероятности совместного выполнения двух неравенств:

$$(X < x, \quad (Y < y),$$

т. е.

$$F(x, y) = P[(X < x)(Y < y)].$$

Вторая смешанная частная производная функция $F(x, y)$ по x и y называется плотностью распределения системы

$$f(x, y) = F''_{xy}(x, y).$$

Случайные величины X и Y называются *независимыми*, если закон распределения каждой из них не зависит от того, какое значение приняла другая. В противном случае величины X и Y называются *зависимыми*. Для характеристики системы случайных величин, описывающей связь между ними, используется корреляционный момент. Для дискретных случайных величин корреляционный момент выражается формулой

$$R_{xy} = \sum_i \sum_j (x_i - m_x)(y_j - m_y) p_{ij},$$

а для непрерывных случайных величин

$$R_{xy} = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} (x - m_x)(y - m_y) f(x, y) dx dy,$$

где m_x, m_y — математические ожидания соответственно случайных величин X и Y. Характеристика

$$r_{yx} = \frac{R_{xy}}{\sigma_x \sigma_y} = \frac{M\{(x - m_x)(y - m_y)\}}{\sigma_x \sigma_y}$$

где σ_x, σ_y — средние квадратические отклонения, называется коэффициентом корреляции величин X и Y. Для независимых случайных величин коэффициент корреляции равен нулю.

Свойства коэффициента корреляции:

1) коэффициент корреляции изменяется от -1 до $+1$

$$-1 \leqslant r_{yx} \leqslant 1;$$

2) коэффициент корреляции симметричен относительно исследуемых случайных величин

$$r_{yx} = r_{xy};$$

3) если $r_{xy} > 0$, то случайные величины X и Y с точностью до случайных погрешностей одновременно убывают или возрастают; если $r_{xy} < 0$, то величины X и Y одновременно изменяются в противоположных направлениях;

4) коэффициент корреляции характеризует степень тесноты линейной зависимости между случайными величинами.

Некоторые сведения по теории случайных функций

Функция, значение которой при каждом значении аргумента (или нескольких аргументов) является случайной величиной, называется случайной функцией. Конкретный вид, принимаемый случайной функцией в результате опыта, называется реализацией случайной функции. Случайные функции принято обозначать так: $X(t)$, $Y(t)$, $Z(t)$ и т. д., где t — аргумент случайной функции (в частности, время).

Полное описание случайной функции $X(t)$ при фиксированных значениях аргумента t дает одномерный закон распределения возможных значений случайной функции при этом значении аргумента, описываемый функцией распределения $F_1(x, t)$ или плотностью распределения $f_1(x, t)$.

Значения случайной функции $X(t)$ для двух фиксированных значений аргумента t_1 и t_2 образуют систему двух случайных величин $\{X[t_1], X[t_2]\}$ с двумерной плотностью распределения $f_2(x_1, x_2, t_1, t_2)$. Ее знание достаточно для нужд так называемой корреляционной теории случайных функций, хотя можно рассматривать и N-мерные плотности распределения.

Математическим ожиданием случайной функции $X(t)$ называется случайная функция $m_x(t)$ аргумета t, которая при каждом данном значении аргумента равна математическому ожиданию значения случайной функции при том же значении аргумента

$$m_x(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} x f_1(x, t)\,dx.$$

Дисперсией случайной функции $X(t)$ называется неслучайная функция $D_x(t)$ аргумента t, которая при каждом данном значении аргумента равна дисперсии значения случайной функции при том же значении аргумента

$$D_x(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} [X - m_x(t)]^2 f_1(x, t)\,dx.$$

Для учета связи между значениями случайной функции при различных значениях аргумента используется корреляционная функция — это неслучайная функция двух аргументов t_1 и t_2 $k_x(t_1, t_2)$, которая при каждой паре значений t_1 и t_2 равна корреляционному моменту соответствующих значений случайной функции

$$R_x(t_1, t_2) = \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} [X_1 - m_x(t_1)]\,[X_2 - m_x(t_2)]\,f_2(x_1, x_2, t_1, t_2)\,dx_1 dx_2.$$

Аналогично можно найти корреляционную функцию связи или взаимную корреляционную функцию двух случайных функций $X(t_1)$ и $Y(t_2)$

$$R_{xy}(t_1, t_2) = \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} [X - m_x(t_1)]\,[Y - m_y(t_2)]\,f(x, y, t_1, t_2)\,dx dy.$$

В теории случайных функций широко распространена теория стационарных процессов — принимается, что ее математическое ожидание и дисперсия зависят только от разности аргументов

$$m_x(t) = \text{const}, \qquad D_x(t) = \text{const};$$
$$R_{xx}(t_1, t_2) = R_{xx}(t_2 - t_1) = R_{xx}(\tau), \qquad t_2 - t_1 = \tau.$$

Основные свойства корреляционной функции стационарной случайной функции:

1) дисперсия стационарной случайной функции постоянна и равна значению корреляционной функции в начале координат

$$R_{xx}(0) = D_x(t),$$

2) корреляционная функция стационарной случайной функции является четной

$$R_{xx}(-\tau) = R_{xx}(\tau);$$

3) на практике широко используется нормированная корреляционная функция

$$R^*_{xx}(\tau) = \frac{R_{xx}(\tau)}{D_x(t)};$$

4) $R^*_{xx}(\tau)$ является коэффициентом корреляции для случайных величин, разделенных временем

$$R^*_{xx}(0) = 1.$$

Основные свойства взаимной корреляционной функции:

1) $\sqrt{R_{xx}(0)} \cdot \sqrt{R_{yy}(0)} \geqslant |R_{xy}(\tau)|$;

2) $R_{yx}(\tau) \neq R_{yx}(-\tau)$;

3) $R^*_{yx}(\tau) = \dfrac{R_{yx}(\tau)}{\sqrt{D_{x(t)}} \cdot \sqrt{D_{y(t)}}}$;

4) $R^*_{yx}(0) = 1.$

Большинство стационарных случайных функций обладает важным для практики эргодическим свойством, сущность которого заключается в том, что по достаточно длинной одной реализации $x(t)$ можно судить о всех свойствах случайной функции, не прибегая к анализу всех ее реализаций. Тогда все характеристики случайной функции можно получить в соответствии с формулами

$$m_x(t) = \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^{T} x(t)\,dt;$$

$$D_x(t) = \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^{T} [x(t) - m_x(t)]^2 dt;$$

$$R_{xx}(\tau) = \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^{T} [x(t) - m_x(t)]\,[x(t+\tau) - m_x(t)]\,dt;$$

$$R_{yx}(\tau) = \lim_{T\to\infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^{T} [x(t) - m_x(t)]\,[y(t+\tau) - m_y(t)]\,dt,$$

где $x(t)$, $y(t)$ — реализации случайных функций.

Приложение 3

Процентные точки распределения χ^2

f \ q	99.5 %	97,5 %	95 %	5 %	2,5 %	0,5 %
1	$0{,}39\cdot10^{-4}$	$0{,}98\cdot10^{-3}$	$0{,}39\cdot10^{-2}$	3,841	5,024	7,879
2	0,110	0,050	0,103	5,991	7,378	10,597
3	0,072	0,216	0,352	7,815	9,348	12,838
4	0,207	0,484	0,711	9,488	11,143	14,860
5	0,412	0,831	1,145	11,070	12,832	16,750
6	0,676	1,237	1,635	12,592	14,449	18,548
7	0,989	1,690	2,167	14,067	16,013	20,278
8	1,344	2,180	2,733	15,507	17,535	21,955
9	1,735	2,700	3,325	16,919	19,023	23,589
10	2,156	3,247	3,940	18,307	20,483	25,188
11	2,630	3,816	4,575	19,575	21,920	26,757
12	3,074	4,404	5,226	21,026	23,336	28,300
13	3,565	5,009	5,892	22,362	24,736	29,819
14	4,075	5,629	6,571	23,685	26,119	31,319
15	4,601	6,262	7,261	24,996	27,448	32,801
16	5,142	6,908	7,962	26,296	28,845	34,267
17	5,697	7,564	8,672	27,587	30,191	35,718
18	6,256	8,231	9,390	28,869	31,526	37,156
19	6,844	8,907	10,117	30,144	32,852	38,582
20	7,434	9,591	10,851	31,410	34,170	39,997
21	8,034	10,283	11,591	32,671	35,479	41,401
22	8,643	10,982	12,338	33,924	36,781	42,796
23	9,260	11,688	13,091	35,172	38,076	44,181
24	9,886	12,401	13,848	36,145	39,364	45,558
25	10,520	13,120	14,611	37,652	40,646	46,928
26	11,160	13,844	15,379	38,885	41,923	48,290
27	11,808	14,573	16,151	40,113	43,194	49,645
28	12.461	15,308	16,928	41,337	44,461	50,993
29	13,121	16,047	17,708	42,557	45,722	52,336
30	13,787	16,791	18,493	43,763	46,979	53,672

Приложение 4

Процентные точки распределения Стьюдента

f \ q	10 %	5 %	2 %	1 %	f \ q	10 %	5 %	2 %	1 %
1	6,31	12,71	31,82	63,66	6	1,94	2,45	3,14	3,71
2	2,92	4,30	6,97	9,92	7	1,89	2,36	3,00	3,50
3	2,35	3,18	4,54	5,84	8	1,86	2,31	2,90	3,36
4	2,13	2,78	3,75	4,60	9	1,83	2,26	2,82	3,25
5	2,02	2,57	3,37	4,03	10	1.81	2,23	2,76	3,17
11	1,80	2,20	2,72	3,11	23	1,71	2,07	2.50	2,81
12	1,78	2,18	2,68	3,05	24	1,71	2,06	2,49	2,80
13	1,77	2,16	2,65	3,01	25	1,71	2,06	2,49	2,79
14	1,76	2,15	2,62	2,98	26	1,71	2,06	2,48	2,78

Продолжение приложения 4

f \ q	10 %	5 %	2 %	1 %	f \ q	10 %	5 %	2 %	1 %
15	1,75	2,13	2,60	2,95	27	1,70	2,05	2,47	2,77
16	1.75	2,12	2,58	2,92	28	1.70	2.05	2,47	2 76
17	1,74	2,11	2,57	2,90	29	1,70	2,04	2,46	2,76
18	1.73	2,10	2,55	2,88	30	1,70	2,04	2,46	2.75
19	1,73	2,09	2,54	2.86	40	1.68	2,02	2,42	2,70
20	1,73	2,09	2,53	2,85	60	1,67	2,(0	2,39	2,66
21	1,72	2,08	2,52	2,83	120	1,66	1,98	2,36	2,62
22	1,72	2,07	2,51	2,82	∞	1,64	1,96	2,33	2,58

Приложение 5

Критерий Фишера при $q=0{,}05$

f \ q	1	2	3	4	5	6	8	12	24	∞
1	164,40	199.50	215,70	224,60	230,20	234 00	238,90	243,90	249,00	254,30
2	18,51	19,00	19,16	19,25	19,30	19,33	19,37	19.41	19,45	19,50
3	10,13	9,55	9,28	9,12	9,01	8,94	8,84	8,74	8,64	8,53
4	7,71	6,94	6,59	6,39	6,26	6,16	6,04	5,91	5,77	5,63
5	6,61	5,79	5,41	5,19	5,05	4,95	4,82	4,68	4,53	4,36
6	5,99	5,14	4,76	4,53	4,39	4,28	4,15	4,00	3,84	3,67
7	5,50	4,74	4,35	4.12	3,97	3,87	3,73	3,57	3,41	3,23
8	5,32	4.46	4,07	3,84	3,69	3,58	3,44	3,28	3,12	2,93
9	5,12	4,26	3,86	3,63	3,48	3,37	3.23	3.07	2,90	2,71
10	4,96	4,10	3,71	3.48	3,33	3,22	3,07	2.91	2.74	2,54
11	4,84	3,98	3,59	3,36	3,20	3,09	2,95	2,79	2,61	2.40
12	4,75	3,88	3,49	3,26	3,11	3.00	2,85	3,69	2 50	2,30
13	4,67	3,80	3,41	3,18	3,02	2.92	2,77	2.60	2,42	2,21
14	4,60	3,74	3,34	3.11	2.96	2,85	2,70	2,53	2,35	2,13
15	4,54	3,68	3,29	3,06	2,90	2.79	2.64	2,48	2,29	2,07
16	4.49	3,63	3,24	3,01	2,85	2,74	2.59	2,42	2,24	2,01
17	4,45	3,59	3,20	2.96	2,81	2.70	2 55	2,38	2,19	1,96
18	4,41	3,55	3,16	2,93	2.77	2.66	2.51	2 34	2,15	1,92
19	4,38	3,52	3,13	2,90	2,74	2,63	2,48	2,31	2,11	1,88
20	4,35	3,49	3,10	2,87	2,71	2,60	2,45	2,28	2,08	1,84
21	4,32	3,47	3,07	2,84	2,68	2,57	2,42	2,25	2,05	1,81
22	4,30	3,44	3.05	2,82	2,66	2,55	2,40	2,23	2,03	1,78
23	4.28	3,42	3,03	2,80	2 64	2,53	2,38	2,20	2,00	1,76
24	4.26	3,40	3,01	2.78	2,62	2,51	2,36	2,18	1,98	1,73
25	4,24	3,38	2,99	2,76	2,60	2,49	2,34	2,16	1,96	1,71
26	4,22	3,37	2,98	2,74	2,59	2,47	2,32	2,15	1,95	1,69
27	4,21	3,35	2,96	2 73	2,57	2,46	2,30	2,13	1,93	1,67
28	4,20	3,34	2,95	2,71	2,56	2,44	2.29	2,12	1.91	1,65
29	4,18	3,33	2,93	2,70	2,54	2,43	2,28	2,10	1,90	1,64
30	4,17	3,32	2,92	2,69	2,53	2,42	2,27	2.09	1,89	1,62
40	4,08	3,23	2,84	2,61	2,45	2,34	2,18	2,00	1,79	1,52
60	4,00	3,15	2,76	2,52	2,37	2,25	2 10	1,92	1,70	1.39
120	3,92	3,07	2,68	2,45	2,29	2,17	2,02	1,83	1,61	1,25
∞	3,84	2,99	2,60	2,37	2,21	2,09	1,94	1,75	1,52	1,00

Равномерно распределенные случайные числа

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25
10	09	73	25	33	76	52	01	35	86	34	67	35	48	76	80	95	90	91	17	39	29	27	49	45
37	54	20	48	05	64	89	47	42	96	24	80	52	40	37	20	63	61	04	02	00	82	29	16	65
08	42	26	89	53	19	64	50	93	03	23	20	90	25	60	15	95	33	47	64	35	08	03	36	06
99	01	90	25	29	09	37	67	07	15	38	31	13	11	65	88	67	67	43	97	04	43	62	76	59
12	80	79	99	70	80	15	73	61	47	64	03	23	66	53	98	95	11	68	77	12	17	17	68	33
66	06	57	47	17	34	07	27	68	50	36	69	73	61	70	65	81	33	98	85	11	19	92	91	70
31	06	01	08	05	45	57	18	24	06	35	30	34	26	14	86	79	90	74	39	23	40	30	97	32
85	26	97	76	02	02	05	16	56	92	68	66	57	48	18	73	05	38	52	47	18	62	38	85	79
63	57	33	21	35	05	32	54	70	48	90	55	35	75	48	28	46	82	87	09	83	49	12	56	24
73	79	64	57	53	03	52	96	47	78	35	80	83	42	82	60	93	52	03	44	35	27	38	84	35
98	52	01	77	67	14	90	56	86	07	22	10	94	05	58	60	97	09	34	33	50	50	07	37	98
11	80	50	54	31	39	80	82	77	32	50	72	56	82	48	29	40	52	42	01	52	77	56	78	51
83	45	29	96	34	06	28	89	80	83	13	74	67	00	78	18	47	54	06	10	58	71	17	78	17
88	68	54	02	00	86	50	75	84	01	36	76	66	79	51	90	36	47	64	93	29	60	91	10	62
99	59	46	73	48	87	51	76	49	69	91	82	60	89	28	93	78	56	13	68	23	47	83	41	13
65	48	11	76	74	17	46	85	09	50	58	04	77	69	74	73	03	95	71	86	40	21	81	65	44
80	12	43	56	35	17	72	70	80	15	45	31	82	23	74	21	11	57	82	53	14	38	55	37	63
74	35	09	98	17	77	45	27	72	14	43	23	60	02	10	45	52	16	42	37	96	28	60	26	55
69	91	62	68	03	66	25	22	91	48	36	93	68	72	03	76	62	11	39	90	94	40	05	64	18
09	89	32	05	05	14	22	56	85	14	46	42	75	67	88	96	29	77	88	22	54	38	21	45	98
91	49	91	45	23	68	47	92	76	86	46	16	28	35	54	94	75	08	99	23	37	08	92	00	48
80	33	69	45	98	26	94	03	68	58	70	29	73	41	35	53	14	03	33	40	42	05	08	23	41
44	10	48	19	49	85	15	74	79	54	32	97	92	65	75	57	60	04	08	81	22	22	20	64	13
12	55	07	37	42	11	10	00	20	40	12	86	07	46	97	96	64	48	94	39	28	70	72	58	15
63	60	64	93	29	16	50	53	44	84	40	21	95	25	63	43	65	17	70	82	07	20	73	17	90

Критерий Кохрена при $q=0{,}05$

q / f	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	16	36	144	∞
2	0,9985	0,9750	0,9392	0,9057	0,8772	0,8534	0,8332	0,8159	0,8010	0,7880	0,7341	0,6602	0,5813	0,5000
3	0,9669	0,8709	0,7977	0,7457	0,7071	0,6771	0,6530	0,6333	0,6167	0,6025	0,5466	0,4748	0,4031	0,3333
4	0,9065	0,7679	0,6841	0,6287	0,5895	0,5598	0,5365	0,5175	0,5017	0,4884	0,4366	0,3720	0,3093	0,2500
5	0,8412	0,6838	0,5981	0,5441	0,5065	0,4783	0,4564	0,4387	0,4241	0,4118	0,3645	0,3066	0,2513	0,2000
6	0,7808	0,6161	0,5321	0,4803	0,4447	0,4184	0,3980	0,3817	0,3682	0,3568	0,3135	0,2612	0,2119	0,1667
7	0,7271	0,5612	0,4800	0,4307	0,3974	0,3726	0,3535	0,3384	0,3259	0,3154	0,2756	0,2278	0,1833	0,1429
8	0,6798	0,5157	0,4377	0,3910	0,3595	0,3362	0,3185	0,3043	0,2926	0,2829	0,2462	0,2022	0,1616	0,1250
9	0,6385	0,4775	0,4027	0,3584	0,3286	0,3067	0,2901	0,2768	0,2659	0,2568	0,2226	0,1820	0,1446	0,1111
10	0,6020	0,4450	0,3733	0,3311	0,3029	0,2823	0,2666	0,2541	0,2439	0,2353	0,2032	0,1655	0,1308	0,1000
12	0,5410	0,3924	0,3264	0,2880	0,2624	0,2439	0,2299	0,2187	0,2098	0,2020	0,1737	0,1403	0,1100	0,0833
15	0,4709	0,3346	0,2758	0,2419	0,2195	0,2034	0,1911	0,1815	0,1736	0,1671	0,1429	0,1144	0,0889	0,0667
20	0,3894	0,2705	0,2205	0,1921	0,1735	0,1602	0,1501	0,1422	0,1357	0,1303	0,1108	0,0879	0,0675	0,0500
24	0,3434	0,2354	0,1907	0,1656	0,1493	0,1374	0,1286	0,1216	0,1160	0,1113	0,0942	0,0743	0,0567	0,0417
30	0,2929	0,1980	0,1593	0,1377	0,1237	0,1137	0,1061	0,1002	0,0958	0,0921	0,0771	0,0604	0,0457	0,0333
40	0,2370	0,1576	0,1259	0,1082	0,0968	0,0887	0,0827	0,0780	0,0745	0,0713	0,0595	0,0462	0,0347	0,0250
60	0,1737	0,1131	0,0895	0,0765	0,0682	0,0623	0,0583	0,0552	0,0520	0,0497	0,0411	0,0316	0,0234	0,0167
120	0,0998	0,0632	0,0495	0,0419	0,0371	0,0337	0,0312	0,0292	0,0279	0,0266	0,0218	0,0165	0,0120	0,0083
∞	0000	0000	0000	0000	0000	0000	0000	0000	0000	0000	0000	0000	0000	0000

Приложение 8.1

Программа расчета моментов весовой функции

```
''РАЗ''6.H=(B—A)/N;MO=0;L=0;U=0;''ДЛ''J=1''Ш''1''ДО''N+1''ВЫП''F[I]=
=У[I]I.J=F[1]+F[N+1];''ДЛ''1=2''Ш''1''ДО''N''БЫП''(K=J/2;''ЕС''К—E;(K+.5)''ТО''
(J=J+2×F[I])''ИНА''(J=J+4×F[I]));J=H/3×J;''ЕС''MO=0''ТО''(MO=J;''ВЫВ
''MO,''СТРО'';''ДЛ''I=1''Ш''1''ДО''N+1''ВЫП''(F[I]=(H×(I—1)+A)×У[I]);''Н
A'');''ЕС''U=0''ТО''(U=J;TK=U/MO;''ВЫВ''TK,''СТРО'';A=A/TK;B=B/TK;H=(
B—A)/N;''ДЛ''I=1''Ш''1''ДО''N+1''ВЫП''(F[I]=У[I]/MO));''ЕС''L>0''ТО''(M[L
]=J×TK);L=L+1;''ДЛ''I=1''Ш''1''ДО''N+1''ВЫП''F[I]=(H×(I—1)+A)×F[I];''ЕС
''L<T''ТО''(''НА''1);''ВЫВ''''МАСС''M''ГДЕ''A=1;B=22;N=21;T=5;У[22]=.00,
.09,.24,.47,.63,.80,.93,1.01,1.21,1.38,1.40,1.43,1.41,1.25,1.
05,.94,.81,.58,.36,.22,.10,.00;M[5];F[22]''КОН''
```

Результаты расчета (к примеру 4.6.1)

$M[5]=.999978_{10}0,.103165_{10}1,.139472_{10}1,.182934_{10}1,.251638_{10}1$

Программа расчета числа Пекле (к примеру 4.6.1)

```
''РАЗ''4.X0=A;X1=B;P.X=(X0+X1)/2;''ЕСЛ''ABS(F(X))<EPS''ТО''(''НА''D);
''ЕСЛ
''F(X)<0''ТО''(''ЕСЛ''F(X0)<0''ТО''(X0=X)''ИНА''(X1=X))''ИНА''(''ЕСЛ''F(X0)
<0
''ТО''(X1=X)''ИНА''(X0=X));''НА''P;D.''ВЫВ''X''ГДЕ''
A=10;B=100;EPS=.1000;F(У)=—394+2/У—2/(У↑2)+2×(EXP(—У))/(У↑2)''КОН''
A=10;B=100;EPS=.1000;F(У)=—.82900+6/У+6/(У↑2)—24/(У↑3)+18×(EXP(—
У))/(У↑3)''КОН''
A=10;B=100;EPS=.1000;F(У)=—1.5160+12/У+48/(У↑2)—336/(У↑4)+108×(E
XP(—У))/(У↑2)+360×(EXP(—У))/(У↑3)+312×(EXP(—У))/(У↑4)+24(×(EXP(—
У))/(У↑4)''КОН''
```

Результаты расчета (к примеру 4.6.1)

$$x = .6345_{10}2$$

$$x = .6297_{10}2$$

$$x = .6399_{01}2$$

Приложение 8.2

Программа вычислений на ЦВМ «Мир-1» (к задаче Б1)

```
''РАЗРЯДНОСТЬ''5.''ВЫВОД''[НАХОЖДЕНИЕ МАКСИМУМА ФУНКЦИИ],
''СТРОКА''
;У0=Z;1.''ДЛЯ''I=1''ШАГ''1''ДО''N''ВЫПОЛНИТЬ''(R[I]=X[I];X[I]=X[I]+Д;
У[I]
=Z;B[I]=(У[I]—У0)/Д;Д1[I]=B[I]×Д;X[I]=R[I]);''ДЛЯ''I=1''ШАГ''1''ДО''N''В
ЫПОЛНИТЬ''(X[I]=X[I]+Д1[I];''ЕСЛИ''X[I]<НУ[I]''ТО''(X[I]=НУ[I]);''ЕСЛИ''
X[I]>ВУ[I]''ТО''(X[I]=ВУ[I]));УМ=Z;E=ABS(УМ—У0);''ЕСЛИ''E>C''ТО''
(У0=УМ
;''НА''1);''ВЫВОД''[МАКСИМУМ],''СТРОКА'',УМ,''СТРОКА'',[ЗНАЧЕНИЯ
ФАКТОР
```

```
ОВ];"ВЫВОД""МАССИВА"X"ГДЕ"N=4;Д=100;С=.0001;X[4]=740,2,30,120;НУ[
4]=580,1,20,110;ВУ[4]=890,3,40,130;У[4];В[4];Д1[4];R[4];Z=7.63+.0
76672×X[1]+8.5372×X"[2]—3.7552×X[3]+.66924×X[4]—.0004657×X[1]×X[4]
—.074687×X[2]×X[4]+.0237187×X[3]×X[4]"КОН"
```

Приложение 8.3

Программа алгоритма оптимизации симплексного метода на ЦВМ «Мир-1»

```
""4."ВЫВ"[МИНИМУМ],"СТР";NП=1.65×N+.05× N↑2;ST=1;"ДЛ"J=1"Ш"1
"ДО"N"
ВЫП"(X[1,J]=V(1/(2×J×(J+1))));C[J]=0);"ДЛ"I=2"ПП"1"ДО"N+1"ВЫП"
"ДЛ"J
=1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"("Е"I=J+1"ТО"(X[I,J]=(—J)×X[1,J]);"Е"1>J+1
"ТО"(X[
I,J]=0);"Е"I<J+1"ТО"(X[I,J]=X[1,J]));1."ВЫВ""МАСС"X;"ДЛ"I=1"Ш"1"Д
О"N+1"ВЫП"(У[I]=Z;S[I]=0);"ВЫВ""МАСС"У;2.А=0;"ДЛ"I=1"Ш"1"ДО"
N+1"В
ЫП"("ДЛ"J=1"Ш"1"ДО"N"ВЫП""Е"I=C[J]"ТО"("НА"3);"Е"А=0"ТО"
(А=У[I]);
"Е"А<У[I]"ТО"(А=У[I];IM=I);3.);"ДЛ"J=1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"(XR[J]=X[
IM,J
];X[IM,J]=2×(∑(I=1,N+1,X[I,J])—X[IM,J])/N—X[IM,J]);1=1M;У[I]=Z;"В
ЫВ"IM,"ПР"3,У[IM],"СТР";"Е"У[IM]<А"ТО"("НА"4)"ИН"("НА"5);4."ДЛ"
I=
1"Ш"1"ДО"N+1"ВЫП"(S[I]=S[I]+1;"Е"I=IM"ТО"(S[I]=0);"Е"S[I]>NП"ТО"(
IM=I;"НА"6));"ДЛ"J=1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"("Е"X[IM,J]<ХП[1,J]"ТО"("НА"
5);
"Е"X[IM,J]>ХП[2,J]"ТО"("НА"5)); "ДЛ"J=1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"(C[J]=0;
"ВЫВ"
X[IM,J],"ПР"3);"ВЫВ""СТР";К=0;"НА"2;5."ВЫВ"[НЕУДАЧА],"ПР"2;"ДЛ"
J=
1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"("ВЫВ"X[IM,J],"ПР"2);"ВЫВ""СТР";К=К+1;"Е"К=
N+1"ТО"
("ВЫВ"К,"СТР")"ИН"(C[K]=IM),"ДЛ"J=1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"X[IM,J]=XR
[J];У[
IM]=A;"Е"К=N+1"ТО"("НА"6)"ИН"("НА"2);6."ДЛ"J=1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"
C[J]=
0;"Е"ST<Е"ТО"("НА"7);ST=ST/2;"ВЫВ"[ДЕЛЕНИЕ.СИМПЛЕКСА],"ПР"4,
ST,"С
ТР";"ДЛ"I=1"Ш"1"ДО"N+1"ВЫП""ДЛ"J=1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"X[I,J]=(X
[IM,J]+X
[I,J]/2;"НА"1);7."ВЫВ"[МИНИМУМ],"СТР",У[IM],"ПР"4,ST,"СТР";"ДЛ"J=
1"Ш"1"ДО"N"ВЫП"XR[J]=X[IM,J];"ВЫВ""МАСС"XR"ГДЕ"N=3;Е=.1;Z=
.10975—
.0816×X[1,1]+.0753×X[1,2]—.1483×X[1,3]—.04325×X[1,1]×X[1,2]+.0345
×X[1,1]×X[1,3]—.02295×X[1,2]×X[1,3]—.02295×X[1,2]×X[1,3]+.0359×X[
1,1]+2+.0321×X[1,2]+2+.1224×X[1,3]+2;ХП[3,3]=—1.682,—1.682,—1.682
,1.682,1.682,1.682;XR[3];У[4];S[4];X[4,3]"КОН"
```

Приложение 9

Матрица планирования для метода случайного баланса

Номер опыта	X_1	X_2	X_3	X_4	X_5	X_6	X_7	X_8	X_9	X_{10}	X_{11}	X_{12}	X_{13}	X_{14}	X_{15}	X_{16}	X_{17}	X_{18}	X_{19}
1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1
2	+1	−1	−1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	+1	−1
3	−1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1
4	+1	+1	+1	+1	+1	−1	+1	−1	+1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	+1	−1
5	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	+1	−1	+1
6	+1	−1	+1	−1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	+1
7	−1	+1	+1	−1	+1	−1	+1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	−1
8	+1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	−1
9	−1	−1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	+1
10	+1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	−1	+1
11	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	−1
12	+1	+1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	−1
13	−1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	−1	+1	+1
14	+1	−1	+1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	+1	−1	−1
15	−1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	+1	+1
16	+1	+1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	−1	+1

Продолжение прил. 9

Номер опыта	X_1	X_2	X_3	X_4	X_5	X_6	X_7	X_8	X_9	X_{10}	X_{11}	X_{12}	X_{13}	X_{14}	X_{15}	X_{16}	X_{17}	X_{18}	X_{19}
17	−1	−1	−1	+1	−1	+1	−1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	−1	−1
18	+1	−1	−1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	−1	−1	−1	−1
19	−1	+1	−1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	+1
20	+1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	−1	−1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	−1
21	−1	−1	−1	−1	−1	−1	+1	−1	−1	−1	−1	−1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	−1
22	+1	−1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	−1	−1	+1	−1	+1	−1	+1	−1
23	−1	+1	+1	−1	−1	+1	−1	−1	−1	+1	−1	−1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	+1
24	+1	+1	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	−1
25	−1	−1	+1	−1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	−1	−1
26	+1	−1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	−1	+1
27	−1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	+1
28	+1	+1	+1	−1	+1	−1	+1	−1	−1	−1	−1	−1	+1	+1	−1	−1	−1	+1	+1
29	−1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	+1	+1	−1	−1	−1	−1	−1	+1
30	+1	−1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	+1	−1	−1	+1	+1	−1	+1	−1	−1	+1
31	−1	+1	+1	+1	+1	−1	−1	−1	+1	−1	−1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	+1	−1
32	+1	+1	−1	+1	+1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	+1	−1	+1	+1	+1	−1	+1

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Бондарь А. Г., Статюха Г. А.* Планирование эксперимента в химической технологии. Киев, Вища школа. Головное изд-во, 1976.
2. *Ахназарова С. Л., Кафаров В. В.* Оптимизация эксперимента в химии и химической технологии. М., Высшая школа, 1978.
3. *Макаров И. М., Озерной В. М., Ястребов А. П.* Выбор принципа строения сложной системы автоматического управления на основе экспертных оценок. — Автоматика и телемеханика, 1971, № 1.
4. *Налимов В. В., Чернова Н. А.* Статистические методы планирования экстремальных экспериментов. М., Наука, 1965.
5. *Зедгенидзе И. Г.* Планирование эксперимента для исследования многокомпонентных систем. М., Наука, 1976.
6. Планирование эксперимента в исследовании технологических процессов /Под ред. Э. К. Лецкого. М., Мир, 1977.
7. *Писаренко В. Н., Погорелов А. Г.* Планирование кинетических исследований. М.—Л., Наука, 1969.
8. *Федоров В. В.* Теория оптимального эксперимента. М., Наука, 1971.
9. *Безденежных А. А.* Инженерные методы составления уравнений скоростей реакций и расчета кинетических констант. М., Химия, 1973.
10. *Налимов В. В., Голикова Т. И.* Логические основания планирования эксперимента. М., Металлургия, 1976.
11. *Баласанов Г. Н.* Моделирование и оптимизация в АСУ. М., Атомиздат, 1972.
12. *Кафаров В. В., Дорохов И. Н.* Системный анализ процессов химической технологии. М., Наука, 1976.
13. *Бендат Дж., Пирсол А.* Измерение и анализ случайных процессов. М., Мир, 1974.
14. *Бояринов А. И., Кафаров В. В.* Методы оптимизации в химической технологии. М., Химия, 1969.
15. Применение метода экспертных оценок для решения задач выбора технологических объектов /*Бондарь А. Г., Статюха Г. А., Тарасенко Ю. А., Ванеева В. В.* — Химическое машиностроение. Киев, Техніка, 1976, № 24, с. 81.
16. *Маркова Е. В., Векслер М. А.* Планирование эксперимента при оптимизации процесса изомеризации сульфаниламидного соединения. — В кн.: Планирование эксперимента, М., Наука, 1966.
17. *Дильман В. В., Айзенбуд М. Б., Шульц Э. З.* — Хим. пром., 1966, № 2, с. 123—131.
18. *Химмельблау Д.* Анализ процессов статистическими методами. М., Мир, 1973.
19. Исследование кинетики сушки волокнистых материалов с использованием методов планирования эксперимента /*Бондарь А. Г.,*

Грабов Л. Н., Лашина Л. Н., Ляшкова С. — Хим. машиностр., Киев, Техніка, 1974, № 28, с. 74—77.
20. *Безносик Ю. А., Бондарь А. Г., Статюха Г. А., Григорьев Е. А.* — Хим. технол., 1980, № 2.
21. *Бондарь А. Г., Жук К. Д., Статюха Г. А.* Вопросы создания интегрированных АСУ в химической технологии. — Хим. технол., 1978, № 5.
22. *Бондарь А. Г., Статюха Г. А., Фельдман И. Н.* Принципы анализа технологических схем. — Хим. технол., 1980, № 6, с. 52.
23. *Статюха Г. А., Ладиев Р. Я.* Байесов подход к анализу сложных ХТС. — Хим. технол., 1973, № 4, с. 43.
24. *Вознесенский В. А., Ковальчук А. Ф.* Принятие решений по статистическим моделям. М., Статистика, 1979.
25. *Адлер Ю. П., Маркова Е. В., Грановский Ю. В.* Планирование эксперимента при поиске оптимальных условий. М., Наука, 1976.
26. *Адлер Ю. П.* Введение в планирование эксперимента. М., Металлургия, 1969.
27. *Рузинов Л. П.* Статистические методы оптимизации химических процессов. М., Химия, 1972.
28. *Бондарь А. Г.* Математическое моделирование в химической технологии. Киев, Вища школа, 1973.
29. Применение метода симплексных решеток при исследовании свойств полимерной смеси в производстве синтетических материалов /*Бондарь А. Г., Куненко А. С., Калинина Е. Е., Тэрман Э. А.* — В кн.: Применение статистических методов при исследовании, проектировании и управлении технологическими процессами. Киев, Знание, 1976.
30. *Горюшко В. Е.* Планирование эксперимента в бытовой химии. М., ВНИИхимпроект, 1974.
31. *Египко В. М.* Организация и проектирование систем автоматизации научно-технических экспериментов. Киев, Наукова думка, 1978.
32. Оптимизация процесса обогащения ртутьсодержащего шлама кислотным способом /*Бондарь А. Г., Тарасенко Ю. А., Потяженко И. А., Бойко З.* — Хим. машиностр. Киев, Техніка, 1977, № 26.
33. Исследование кинетики цементации ртути из растворов /*Бондарь А. Г., Тарасенко Ю. А., Потяженко И. А., Сиренко И. И.* — Вестник КПИ, серия хим. машиностр. технол., 1975, № 12.
34. Исследование процессов очистки отработанных растворов на основе планирования эксперимента /*Бондарь А. Г., Тарасенко Ю. А., Потяженко И. А., Статюха Г. А.* — Тезисы докладов IX Всесоюзной научно-технической конференции по технологии неорганических веществ и минеральных удобрений. Пермь, 1974.
35. *Бондарь А. Г., Тарасенко Ю. А., Потяженко И. А.* Статистическое исследование и оптимизация процесса очистки анолита от ртути. — Хим. машиностр. Киев, 1975, № 21.
36. Выделение ртути из промышленных отходов /*Бондарь А. Г., Потяженко И. А., Тарасенко Ю. А., Статюха Г. А.* — Теорет. основы хим. технол., 1975, № 5.
37. *Потяженко И. А.* Канд. диссерт., КПИ, 1975.
38. *Кафаров В. В., Перов В. Л., Мешалкин В. П.* Принципы математического моделирования химико-технологических систем. М., Химия, 1974.
39. *Островский Г. М., Бережинский Т. А., Беляева А. Р.* Алгоритмы оптимизации химико-технологических процессов. М., Химия, 1978.

40. *Михайлов Т. А., Трукшин И. Г., Безденежных А. А., Кротова В. К., Завельский Д. З.* — Журн. прикл. хим., 1974, № 8.
41. *Гурский Е. И.* Теория вероятностей с элементами математической статистики. М., Высшая школа, 1971.
42. *Кафаров В. В., Перов В. М., Медведев Э. А., Попов В. Б.* — Хим. пром., 1974, № 1.
43. *Комиссарова А. Н., Шацкий В. М., Грановский Ю. В., Кривенко С. В., Игошина И. В., Николаева Л. С.* — Теорет. основы хим. технол., 1973, т. VII, № 1.

ОГЛАВЛЕНИЕ

Предисловие 3
Введение 5

Глава 1. **Основные алгоритмы планирования экстремального эксперимента** 11

1.1. Дисперсионный анализ 11
1.2. Ранговая корреляция 22
1.3. Регрессионный анализ 25
1.4. Регрессионный анализ и МНК в матричной форме . . 30
1.5. Полный и дробный факторные эксперименты (ПФЭ и ДФЭ) первого порядка 36
1.6. Факторный эксперимент второго порядка 50

Глава 2. **Специальные алгоритмы планирования эксперимента для задач физико-химического характера** 60

2.1. Факторный эксперимент при изучении смесевых систем . 60
2.2. Насыщенный и сверхнасыщенный планы факторного эксперимента 69
2.3. Алгоритм исследования формальной кинетики химических процессов 76
2.4. Методы выбора моделей химических процессов . . . 79
2.5. Алгоритмы идентификации математических моделей . . 83
2.6. Алгоритмы оптимизации в планировании эксперимента . 93

Глава 3. **Особенности применения методов планирования эксперимента при исследовании сложных объектов химической технологии** 104

3.1. Постановка задач исследования сложных объектов химической технологии 106
3.2. Основные цели и задачи процесса исследования химико-технологических систем 111

Глава 4. **Примеры использования планов эксперимента для решения отдельных задач химической технологии** 132

4.1. Применение плана однофакторного дисперсионного анализа 132
4.2. Применение плана двухфакторного дисперсионного анализа 134

4.3. Применение дисперсионного анализа с использованием схемы латинского квадрата 135
4.4. Использование алгоритмов отсеивания для выделения существенных факторов 137
4.5. Исследование свойств смесей методами планирования эксперимента 155
4.6. Методы идентификации при получении математических моделей химико-технологических процессов 162
4.7. Примеры исследования формальной кинетики химических процессов 171

Глава 5. **Примеры использования методов планирования эксперимента для решения задач исследования сложных объектов в химической технологии** 180

5.1. Планирование эксперимента при оптимизации комплекса параллельно протекающих технологических процессов 181
5.2. Планирование эксперимента при оптимизации трехстадийного процесса извлечения скандия из многокомпонентного сырья 217
5.3. Планирование эксперимента при исследовании и оптимизации процесса получения 2-бензимидазолилметилкарбоната (БМК) 230
5.4. Планирование эксперимента при моделировании и оптимизации процесса каталитического синтеза пиперазина . 236

Приложения 245
Список литературы 259

Алла Григорьевна Бондарь,
Геннадий Алексеевич Статюха,
Иван Александрович Потяженко

ПЛАНИРОВАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА ПРИ ОПТИМИЗАЦИИ ПРОЦЕССА ХИМИЧЕСКОЙ ТЕХНОЛОГИИ

(Алгоритмы и примеры)

Редактор *Н. А. Микитюк*
Переплет художника *А. К. Косупы*
Художественный редактор *Г. Т. Конев*
Технический редактор *Л. Ф. Волкова*
Корректор *Р. П. Киевская*

Информ. бланк № 4512.

Сдано в набор 30.11.79. Подп. в печать 19.05.80. БФ 06088. Формат 84×108$^{1}/_{32}$. Бумага типогр. № 3. Лит. гарн. Выс. печать. 13,86 усл. печ. л. 12,76 уч.-изд. л. Тираж 2500 экз. Изд. № 4390. Цена 70 к.

Головное издательство издательского объединения «Вища школа», 252054, Киев-54, ул. Гоголевская, 7.

Белоцерковская книжная фабрика республиканского производственного объединения «Поліграфкнига» Государственного комитета Украинской ССР по делам издательств, полиграфии и книжной торговли, 256400, г. Белая Церковь, ул. Карла Маркса, 4.