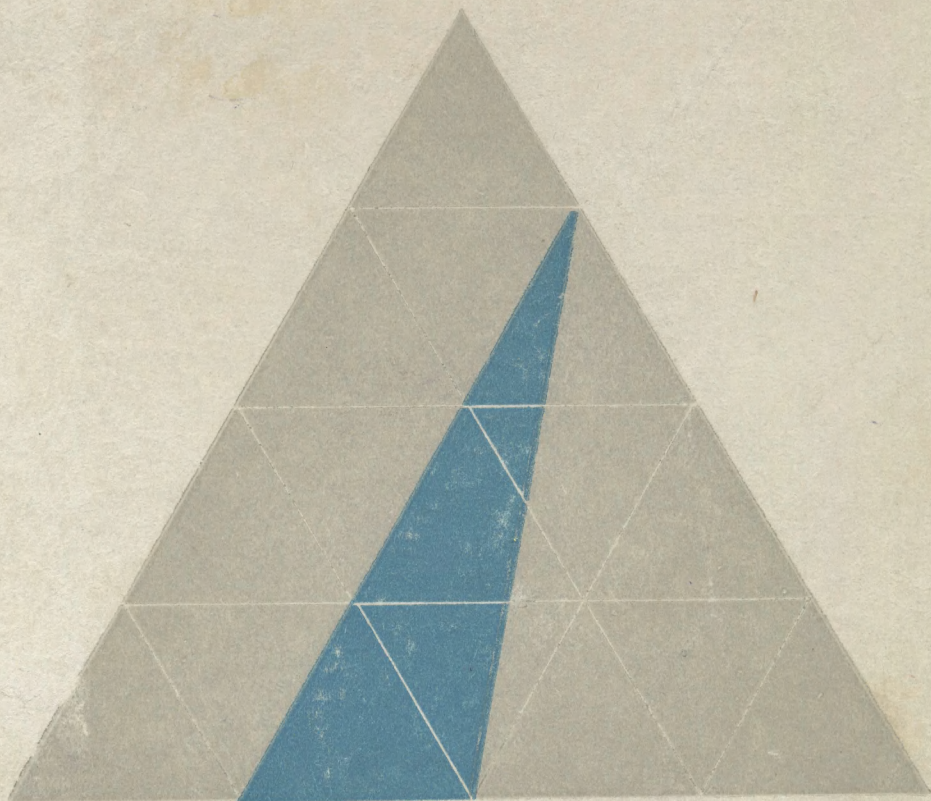


М. С. ВИНАРСКИЙ, М. В. ЛУРЬЕ



М. С. ВИНАРСКИЙ, М. В. ЛУРЬЕ

**ПЛАНИРОВАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА
В ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ
ИССЛЕДОВАНИЯХ**



М. С. ВИНАРСКИЙ, М. В. ЛУРЬЕ

**ПЛАНИРОВАНИЕ
ЭКСПЕРИМЕНТА
В ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ
ИССЛЕДОВАНИЯХ**

**Издательство «Техніка»
Киев — 1975**



Scan AAW

001+6П7.41
В48

УДК 001. 89:662. 74. 002

Планирование эксперимента в технологических исследованиях. Винарский М. С., Лурье М. В. «Техніка», 1975, 168 стр.

В книге рассмотрены основные этапы и принципы планирования эксперимента, изложена последовательность действий экспериментатора при использовании наиболее распространенных методов планирования эксперимента. Основное внимание уделено практике использования основных идей теории планирования эксперимента при анализе технологических процессов коксохимического производства. Приведенные примеры изложены в рецептурной форме, пригодной для практического применения. Книга рассчитана на инженерно-технических работников, специализирующихся в области технологических исследований, может быть полезной студентам технологических факультетов вузов.

Табл. 96, ил. 46, библи. 30.

Рецензент докт. техн. наук *К. Д. Жук*

Редакция литературы по тяжелой промышленности
Заведующий редакцией инж. *В. И. Кравец*

*Моисей Самуилович Винарский, канд. техн. наук,
Михаил Владимирович Лурье, канд. техн. наук*

ПЛАНИРОВАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА В ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЯХ

Редактор издательства инж. *М. Д. Семененко*

Переплет художника *В. М. Флакса*

Художественный редактор *М. Д. Шевченко*

Технический редактор *Е. И. Березанская*

Корректор *Т. Е. Царинская*

Сдано в набор 26/VIII 1974 г. Подписано к печати 11/II 1975 г. Формат бумаги 60 х 90^{1/16}. Бумага типографская № 2. Объем: 10,5 усл. печ. л.; 10,99 уч.-изд. л. Тираж 6700. Зак. 5-789. БФ 04344. Цена 83 коп.

Издательство «Техніка», 252601, Киев, 1, ГСП, Пушкинская, 28

Отпечатано с матриц Книжной фабрики им. М. В. Фрунзе республиканского производственного объединения «Полиграфкнига» Госкомиздата УССР, Харьков, Донец-Захаржевская, 6/8 на Харьковской книжной фабрике «Коммунист» республиканского производственного объединения «Полиграфкнига» Госкомиздата УССР, Харьков, ул. Энгельса, 11.

В $\frac{31003-138}{М\ 202(04)-75}$ 63-75

© Издательство «Техніка», 1975 г.

ПРЕДИСЛОВИЕ

В течение длительного времени авторам этой книги пришлось заниматься приложением теории планирования эксперимента к решению инженерных задач, возникающих в процессе проведения технологических исследований. Авторы были непосредственными участниками этих исследований, проводившихся в тесном контакте с технологами. При выполнении работ удалось установить основные причины, стоящие на пути повсеместного использования методов планирования эксперимента. Систематизация этих причин дала возможность сформулировать цели книги: пояснить основные принципы планирования эксперимента; ввести основные термины на конкретных примерах, чтобы по возможности полнее отразить их технологическую суть; изложить достаточно подробно последовательность действий при использовании простейших методов планирования эксперимента; проиллюстрировать возможности теории планирования эксперимента конкретными исследованиями, изложенными в форме, пригодной для практического применения.

Книга состоит из двух разделов, в разделе I изложены основные идеи и принципы планирования эксперимента, в разделе II — конкретные примеры применения методов планирования эксперимента в технологических исследованиях. Примеры систематизированы в соответствии с основными этапами исследования, рассмотренными в разделе I. В основу раздела II положены конкретные работы, выполненные в УХИНе и на коксохимических заводах с участием авторов.

Авторы считают своим долгом выразить искреннюю благодарность докт. техн. наук Л. Я. Коляндру, давшему много полезных советов при составлении второго раздела книги.

Отзывы и пожелания по книге просим направлять по адресу: 252601, Киев, 1, ГСП, Пушкинская, 28, издательство «Техніка».

ВВЕДЕНИЕ

Постановка задачи. Из множества задач, решаемых технологами при исследованиях существующих процессов и создании новых, можно выделить три весьма распространенных вида: выявление количественных зависимостей между параметрами процесса; отыскание оптимальных условий протекания процесса; выбор оптимального состава многокомпонентных смесей.

Зачастую, приступая к решению таких задач, технолог не имеет исчерпывающих сведений о механизме исследуемого процесса. Он может только назвать параметры, определяющие условия протекания процесса, и требования к его результатам. В этих условиях целесообразно использование кибернетического подхода, в основе которого лежит предложенная Н. Винером идея «черного ящика» [6]. «Черный ящик» — это объект исследования (рис. 1). Стрелками, входящими в объект, показаны входные параметры, которые могут быть управляемыми (x) и неуправляемыми (z). Работа объекта может характеризоваться несколькими выходными параметрами, которые на схеме обозначены стрелками, выходящими из прямоугольника. Необходимо научиться управлять объектом, информация об элементарных операциях внутри которого чрезвычайно мала, что по сути аналогично решению поставленных задач.

Модель. Зависимость между выходным параметром (откликом) и входными параметрами (факторами) называется функцией отклика и имеет следующий вид:

$$y = f(x_1, x_2, \dots, x_k), \quad (1)$$

где y — отклик (результат эксперимента); x_1, x_2, \dots, x_k — независимые переменные (факторы), которые можно варьировать при постановке экспериментов.

Уравнению (1) соответствует некоторая гиперповерхность в многомерном пространстве, называемая поверхностью отклика, а пространство, в котором существует указанная поверхность, — факторным пространством. В простейшем случае, когда исследуется зависимость отклика от одного фактора, поверхность отклика представляет собой линию на плоскости, т. е. в двухмерном

пространстве. В общем случае, когда рассматриваются k факторов, уравнение (1) описывает поверхность отклика в $(k + 1)$ -мерном пространстве.

При весьма ограниченных знаниях о механизме процесса аналитическое выражение функции отклика неизвестно. Поэтому приходится ограничиваться представлением ее полиномом:

$$y = b_0 + \sum_{i=1}^k b_i x_i + \sum_{i < j} b_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^k b_{ii} x_i^2 + \dots, \quad (2)$$

где $b_0, b_i, b_{ij}, b_{ii}, \dots$ — выборочные коэффициенты регрессии, которые можно получить, пользуясь результатами эксперимента.

Полученное эмпирическим путем уравнение (2) часто называют математической моделью (или просто моделью) процесса. Этот термин, используемый повсеместно в инженерной практике, у разных исследователей приобретает разный смысл. Для пояснения этого воспользуемся приемом, который применил В. В. Налимов. В своей работе [13] он понятию математической модели, существующему сейчас в кибернетике, противопоставляет понятие закона в науке. Закон однозначно, четко, строго описывает явление. Закон — это абсолютная категория. Он может быть либо верным, либо неверным. Никакого среднего, промежуточного положения закон занимать не может. В традиционном, классическом понимании модель — суть математическая формулировка закона, и поэтому она должна быть такой же абсолютной категорией.

С точки зрения кибернетики под моделью понимается не абсолютно точное описание явления, а приближенное выражение неизвестного закона, которое удовлетворительно характеризует явление в некоторой локальной области факторного пространства. Исходя из этого определения, для приближенного описания одного и того же явления может быть предложено несколько различных моделей. Применительно к модели правомерно использование таких определений, как хорошая, плохая, лучше. Правда, во всех этих случаях необходимо указывать, с помощью какого критерия произведена оценка модели, ее качества.

Так как степень полинома заранее предсказать нельзя, то пользуются идеей шагового поиска, т. е. сначала пытаются описать исследуемое явление самой простой — линейной моделью. Оценивают ее качество и, если оно оказывается неудовлетворительным, то увеличивают число членов полинома, т. е. повышают его степень. Этот процесс продолжают до тех пор, пока не будет получена модель, адекватно описывающая результаты эксперимента.

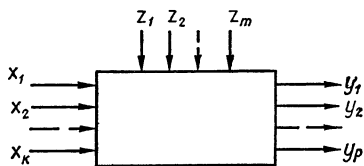


Рис. 1. Схема «черного ящика»: x_1, x_2, \dots, x_k — управляемые факторы; z_1, z_2, \dots, z_m — управляемые факторы; y_1, y_2, \dots, y_p — параметры оптимизации.

Проверка адекватности — строго формализованная статистическая процедура, выполняемая с помощью F -критерия Фишера [19]:

$$F = \frac{s_{ад}^2}{s_y^2}, \quad (3)$$

где $s_{ад}^2$ — дисперсия адекватности; s_y^2 — дисперсия, характеризующая ошибку опыта.

Модель считается адекватной в том случае, если значение F , рассчитанное по формуле (3), не превышает соответствующего табличного при некотором уровне значимости. Обычно при решении инженерных задач уровень значимости принимается равным 0,05 (5%).

Эксперимент. Для получения выборочных оценок коэффициентов регрессии можно организовать проведение эксперимента двумя принципиально различными путями. Первый, более простой путь состоит в том, что исследователь дает возможность некоторым произвольным образом изменяться условиям, в которых протекает процесс, фиксирует эти условия и соответствующий им результат. Эксперимент, организованный таким образом, обычно называют пассивным. Второй путь состоит в том, что экспериментатор изменяет условия по специально разработанной программе и фиксирует только те результаты, которые получены при этих заранее предусмотренных условиях. Эксперимент, организованный по второй схеме, называется активным.

Каждый из этих путей имеет свои преимущества и недостатки, достаточно полно рассмотренные, например, в работе [14]. Настоящая работа посвящена только активному эксперименту.

Фактор и отклик. Факторы могут быть управляемыми и неуправляемыми (см. рис. 1). В настоящей работе рассматриваются только управляемые факторы, которые позволяют задавать им некоторое конкретное значение и поддерживать это значение в течение заданного времени. Эти конкретные значения называются уровнями фактора.

Факторы могут быть качественными и количественными. В инженерной практике, как правило, встречаются количественные факторы: температура, давление, концентрация и т. п. К качественным факторам относятся: вид катализатора, тип аппарата, сырье, качество которого не может быть охарактеризовано количественно, и др.

При планировании эксперимента необходимо учитывать требования, предъявляемые к факторам. Важнейшими требованиями к факторам являются совместимость и некоррелированность. Совместимость означает, что внутри заданной области определения практически осуществимы любые сочетания уровней всех рассматриваемых факторов. При этом имеется в виду сохранение изучаемого процесса. Если, например, исследуя систему микробиологической очистки

сточных вод, попытаемся совместить такую подачу кислорода с такой нагрузкой на аэротенк, что активный ил исчезнет, то такое сочетание упомянутых факторов следует считать несовместимым, ибо изучаемый процесс при этом не сохраняется. Выход из создавшегося в приведенном выше примере положения может оказаться весьма простым — достаточно изменить область определения одного из факторов таким образом, чтобы кислородное питание при любом сочетании уровней было достаточным.

Требование некоррелированности состоит в том, чтобы имелась возможность изменять значение каждого из рассматриваемых в системе факторов независимо друг от друга. Если, например, заданы скорость движения жидкости и диаметр трубы, по которой жидкость подается, то расход жидкости установится вполне определенным. Эти три величины: скорость, расход и живое сечение коррелированы между собой. Для задания условий, в которых находится система в каждый данный момент, достаточно указать значения двух из трех перечисленных факторов. Нарушение хотя бы одного из этих требований приводит либо к невозможности применения планирования эксперимента, либо к весьма серьезным трудностям. Правильный выбор факторов позволяет четко задавать условия опыта.

Отклик — это результат опыта в соответствующих условиях. Его называют также функцией цели, критерием эффективности, критерием оптимальности, параметром оптимизации и др. Все приведенные термины являются синонимами, наиболее четким из них, по мнению авторов, является термин параметр оптимизации.

В теории планирования эксперимента к параметру оптимизации предъявляются требования, выполнение которых необходимо для успешного решения задачи. Выбор параметра оптимизации должен базироваться на четко сформулированной задаче, на ясном понимании конечной цели исследования. Г. Х. Гуд и Р. Э. Макол [9] говорят, что правильный выбор критерия эффективности по существу эквивалентен правильной формулировке задачи. Параметр оптимизации должен быть эффективным в статистическом смысле, т. е. определяться с достаточной точностью. При большой ошибке его определения необходимо увеличивать число параллельных опытов.

Желательно, чтобы параметров оптимизации было как можно меньше. Однако не следует добиваться уменьшения числа параметров оптимизации за счет полноты характеристики системы. Желательно также, чтобы система во всей полноте характеризовалась простыми параметрами оптимизации, имеющими ясный физический смысл. Естественно, что простой, с ясным физическим смыслом параметр оптимизации защищает экспериментатора от многих ошибок и избавляет его от многих трудностей, связанных с решением различных методических вопросов экспериментирования и технологической интерпретации полученных результатов.

Раздел I. ОСНОВНЫЕ ЭТАПЫ И ПРИНЦИПЫ ПЛАНИРОВАНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Началом экспериментального исследования является сбор, изучение и анализ всех имеющихся данных об объекте. Априорная информация может быть скупой или обширной, но именно она явля-

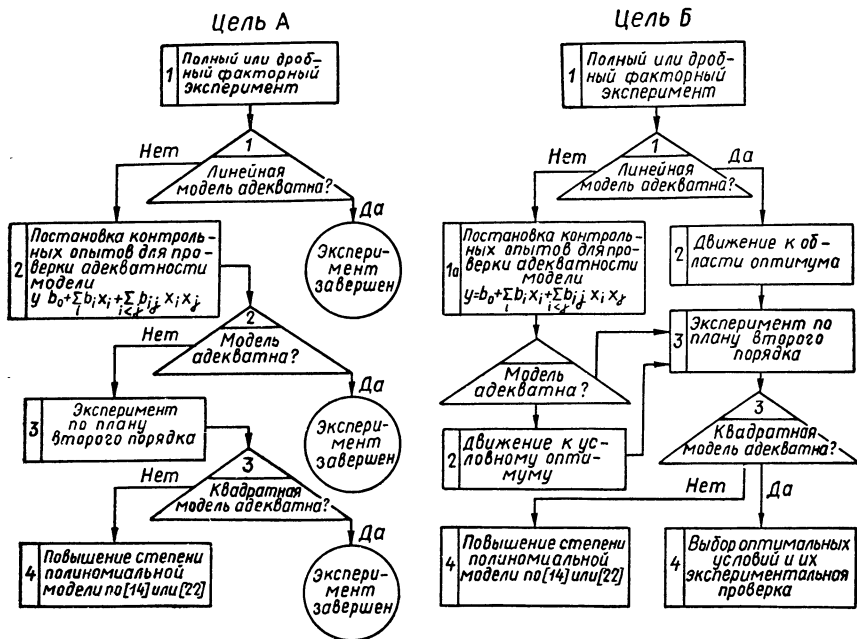


Рис. 2. Структурная схема эксперимента с целью:

А — математического описания исследуемого процесса; Б — оптимизации исследуемого процесса.

ется той базой, на которой строятся первые шаги исследования. Чем полнее знания об объекте, тем быстрее исследователь придет к окончательному решению поставленной задачи. В результате проведения этого предварительного, априорного этапа исследова-

тель должен: составить полный список факторов, исходя из того, что лучше назвать несколько малозначащих факторов, чем пропустить один существенно значимый; задать ориентировочные пределы изменения факторов с учетом требований их совместимости; выбрать параметры оптимизации в соответствии с поставленной задачей.

Если список факторов окажется большим (укажем, что это семь и более факторов), необходимо выполнить отсеивание незначимых факторов одним из методов, изложенных в работе [1]. На этом завершается предварительная подготовка к эксперименту.

В соответствии с идеей шагового поиска эксперимент проводится в несколько этапов. Число этапов и действия на каждом из них зависят от результатов предыдущего этапа и конечной цели исследования (рис. 2). Все многообразие конечных целей исследования можно обобщенно разделить на два типа: найти адекватное описание функции отклика в заданной части факторного пространства (цель *А*); найти оптимальные условия протекания процесса (цель *Б*).

В зависимости от сочетания результата предыдущего этапа и типа конечной цели принимается решение о действиях на следующих этапах исследования.

Глава 1. ПОЛНЫЙ ФАКТОРНЫЙ ЭКСПЕРИМЕНТ И ДРОБНЫЕ РЕПЛИКИ

Эксперимент типа 2^k

Полным факторным экспериментом (ПФЭ) называется такой эксперимент, при реализации которого определяется значение параметра оптимизации при всех возможных сочетаниях уровней варьирования факторов. Если мы имеем дело с k факторами, каждый из которых может устанавливаться на q уровнях, то для того, чтобы осуществить полный факторный эксперимент необходимо поставить $n = q^k$ опытов.

Наибольшее распространение получили эксперименты, в которых факторы варьируют на двух уровнях, т. е. эксперименты типа 2^k . Менее популярны эксперименты типа 3^k , так как с ростом числа уровней факторов резко возрастает количество опытов.

Планирование, проведение и обработка результатов ПФЭ состоит из следующих обязательных этапов: кодирование факторов; составление план-матрицы эксперимента; рандомизация опытов; реализация плана эксперимента; проверка воспроизводимости опытов; проверка адекватности линейной модели; оценка значимости коэффициентов регрессии.

Проиллюстрируем порядок проведения ПФЭ простым примером. Исследуется процесс дистилляции сырья в аппарате периодического действия. Цель исследования — определить зависимость выхода продукта (в процентах от загруженного в агрегат сырья) от скорости и конечной температуры нагрева сырья. Изучение имеющихся

сведений о процессе позволили установить технологически разумные пределы, в которых могут изменяться факторы: конечная температура — от 250 до 450° С; скорость нагрева — от 3 до 10° С/мин.

Кодирование факторов необходимо для перевода натуральных факторов (температуры и скорости нагрева) в безразмерные величины, чтобы иметь возможность построить стандартную ортогональную план-матрицу эксперимента. Для перевода натуральных переменных в кодовые x_i заполняют таблицу кодирования переменных на двух уровнях (табл. 1). В качестве нулевого уровня факторов обычно выбирают центр интервала, в котором предполагается вести эксперимент. В промышленных условиях нулевой уровень соответствует значениям факторов при существующем технологическом режиме.

Таблица 1
Кодирование факторов

Интервал варьирования и уровень факторов	Конечная температура, °С	Скорость нагрева, °С/мин
Нулевой уровень $x_i = 0$	350	6
Интервал варьирования δ_i	50	2
Нижний уровень $x_i = -1$	300	4
Верхний уровень $x_i = +1$	400	8
Кодовое обозначение	x_1	x_2

Таблица 2
План-матрица ПФЭ типа 2²

Опыт	x_1	x_2
1	-1	-1
2	+1	-1
3	-1	+1
4	+1	+1

При выборе интервала варьирования дело обстоит несколько сложнее. Часто, особенно при оптимизации процесса, вначале целесообразно описать его линейным уравнением, и поэтому интервал варьирования должен быть достаточно мал для получения линейного уравнения, но вместе с тем достаточно велик, чтобы не получить ошибочного вывода о незначимом влиянии какого-либо из факторов.

Связь между кодовым и натуральным выражением фактора задается формулой

$$x_i = \frac{X_i - x_{i_0}}{\delta_i}, \quad (4)$$

где X_i — натуральное значение фактора; x_{i_0} — значение i -го фактора на нулевом уровне; δ_i — интервал варьирования i -го фактора.

Составление план-матрицы эксперимента осуществляется следующим образом: например, для x_1 уровни чередуются в каждом опыте, для x_2 — через два опыта, для x_3 — через четыре и т. д. План-матрица для рассматриваемого примера приведена в табл. 2 (рис. 3).

План эксперимента, приведенный в табл. 2, называют ортогональным планом первого порядка. Основным преимуществом тако-

го плана является раздельная (независимая) оценка коэффициентов регрессии.

Рандомизация опытов. Естественно, что на процесс дистилляции оказывают влияние не только x_1 и x_2 , но еще ряд факторов, которые могут быть вообще неизвестны исследователю. Для того, чтобы внести элемент случайности влияния этих факторов на результат эксперимента, а это необходимо для обоснованного использования аппарата математической статистики, устанавливается случайный порядок постановки опытов во времени. Эта процедура и называется рандомизацией. Для ее осуществления пользуются таблицами случайных чисел [4], извлечением номеров из урны и т. п.

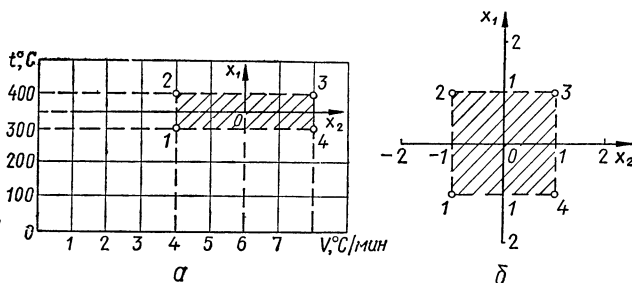


Рис. 3. Расположение опытов эксперимента типа 2^2 в системе координат:

a — натуральных; *б* — кодовых переменных.

В рассматриваемом примере получили такую последовательность проведения опытов: 2, 3, 1, 2, 4, 1, 3, 4. В этой последовательности каждое сочетание уровней (номера опытов) встречается дважды. Параллельные опыты предусматриваются для оценки воспроизводимости процесса и проведения статистических оценок.

Реализация плана эксперимента представлена в табл. 3. Приведенный план эксперимента представляет собой расширенную матрицу, так как введен столбец x_1x_2 , позволяющий оценить коэффициент регрессии при взаимодействии факторов.

Таблица 3

Условия и результаты опытов

Опыт	x_1	x_2	x_1x_2	y_{u_1}	y_{u_2}	$\bar{y}_u = \frac{y_{u_1} + y_{u_2}}{2}$
1	-1	-1	+1	27,0	28,0	27,5
2	+1	-1	-1	15,9	17,1	16,5
3	-1	+1	-1	22,1	22,9	22,5
4	+1	+1	+1	13,4	13,6	13,5

Проверка воспроизводимости опытов. При одинаковом числе параллельных опытов на каждом сочетании уровней факторов воспроизводимость процесса проверяется по критерию Кохрена [4] (см. приложение 1):

$$G = \frac{s_{u \text{ макс}}^2}{\sum_{u=1}^n s_u^2} \leq G_{(0,05; f_n; f_u)}, \quad (5)$$

где $s_u^2 = \frac{\sum_{p=1}^m (y_{up} - \bar{y}_u)^2}{m-1}$ — дисперсия, характеризующая рассеяние результатов опытов на u -м сочетании уровней факторов; $p = 1, 2, \dots, m$ — число параллельных опытов; $s_{u \text{ макс}}^2$ — наибольшая из дисперсий в строчках плана; $G_{(0,05; f_n; f_u)}$ — табличное значение критерия Кохрена при 5%-ном уровне значимости; $f_n = n$ — число независимых оценок дисперсии; $f_u = m-1$ — число степеней свободы каждой оценки.

Процесс считается воспроизводимым, если выполняется неравенство (5). При этом дисперсия воспроизводимости (ошибка опыта) определяется по формуле

$$s_y^2 = \frac{\sum_{u=1}^n s_u^2}{n}. \quad (6)$$

Если неравенство (5) не выполняется, то необходимо принять меры к уточнению измерений в опыте с максимальной дисперсией.

В рассматриваемом примере (см. табл. 3) выполняли по два определения величины y_u . Поэтому значение оценок дисперсии в каждой точке плана можно рассчитывать по формуле

$$s_u^2 = \frac{\Delta^2}{2},$$

где Δ — разность между параллельными опытами.

Таким образом,

$$s_1^2 = \frac{(27,0 - 28,0)^2}{2} = 0,50; \quad s_2^2 = \frac{(15,9 - 17,1)^2}{2} = 0,72.$$

Аналогично $s_3^2 = 0,32$ и $s_4^2 = 0,02$.

Процесс воспроизводим, так как неравенство (5) выполняется:

$$G = \frac{0,72}{0,50 + 0,72 + 0,32 + 0,02} = 0,4615 < G_{(0,05; 4; 1)} = 0,9065.$$

При этом дисперсия воспроизводимости (ошибка опыта)

$$s_y^2 = \frac{0,50 + 0,72 + 0,32 + 0,02}{4} = 0,39.$$

В случае воспроизводимого процесса рассчитывают коэффициенты регрессии

$$b_0 = \frac{\sum_{u=1}^n \bar{y}_u}{n}; \quad (7)$$

$$b_i = \frac{\sum_{u=1}^n x_{iu} \bar{y}_u}{n}; \quad (8)$$

$$b_{ij} = \frac{\sum_{u=1}^n x_{iu} x_{ju} \bar{y}_u}{n}. \quad (9)$$

Для рассматриваемого примера

$$b_0 = \frac{27,5 + 16,5 + 22,5 + 13,5}{4} = 20;$$

$$b_1 = \frac{-27,5 + 16,5 - 22,5 + 13,5}{4} = -5,$$

аналогично $b_2 = -2$ и $b_{12} = 0,5$.

Проверка адекватности линейной модели выполняется с помощью критерия Фишера [4] (см. приложение 3). Адекватность обоснована, если выполняется неравенство

$$F = \frac{s_{ад}^2}{s_y^2} \leq F_{(0,05; f_{ад}; f_y)}, \quad (10)$$

где $s_{ад}^2 = \frac{\sum_{u=1}^n (\bar{y}_u - y_u)^2}{n - k - 1}$; y_u — расчетное значение отклика в u -м опыте; $F_{(0,05; f_{ад}; f_y)}$ — критерий Фишера при 5%-ном уровне значимости; $f_{ад} = n - k - 1$ — число степеней свободы дисперсии адекватности; f_y — число степеней свободы дисперсии воспроизводимости.

Проверка адекватности для рассматриваемого примера выполняется в следующем порядке. По полученному уравнению

$$y = 20 - 5x_1 - 2x_2 \quad (11)$$

находят расчетные значения y_u . Все последующие расчеты сведены в табл. 4.

Оценка значимости коэффициента регрессии производится с помощью критерия Стьюдента [4] (см. приложение 2).

Таблица 4
Проверка адекватности
линейной модели

Опыт	\bar{y}_u	y_u	$(\bar{y}_u - y_u)^2$
1	27,5	27,0	0,25
2	16,5	17,0	0,25
3	22,5	23,0	0,25
4	13,5	13,0	0,25

Примечание. Критерий Фишера при $s_{ад}^2 = \frac{1}{4-2-1} = 1$

$F = \frac{1}{0,39} = 2,564 < F(0,05; 1; 4) = 7,7086$. Модель адекватна.

Коэффициент считается значимым, если выполняется неравенство

$$|b_i| \geq \Delta b_i = t_{(0,05; f_y)} \frac{s_y}{\sqrt{n}}, \quad (12)$$

где $t_{(0,05; f_y)}$ — 5%-ная точка распределения Стьюдента с f_y степенями свободы.

Для рассматриваемого примера

$$\Delta b_i = 2,7764 \frac{\sqrt{0,39}}{\sqrt{4}} = 0,8669.$$

Все полученные по расчету коэффициенты регрессии, кроме $b_{ij} = 0,5$, значимы.

Незначимый коэффициент при факторе означает, что данный фактор не влияет (или влияет незначимо) на параметр оптимизации. Однако на величину коэффициента регрессии влияет не только роль данного фактора, но также выбранный интервал варьирования. Это значит, что при очень узких пределах изменения фактора в эксперименте его вклад в изменение параметра оптимизации может быть действительно очень малым. Однако только по этому нельзя еще говорить о том, что фактор является незначимым. Поэтому статистический сигнал о незначимости фактора должен быть по возможности проверен или хотя бы обсужден с технологической точки зрения.

В случае неадекватности линейной модели можно попытаться проверить адекватность неполного квадратного уравнения:

$$y = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_{12}x_1x_2.$$

Однако для такой проверки нет степеней свободы, так как число опытов совпадает с числом определенных коэффициентов регрессии. В этом случае план эксперимента называют *насыщенным*.

Выход из этого положения — дополнительные опыты. Обычно дополнительные опыты ставятся в центре эксперимента, т. е. когда все факторы находятся на нулевом уровне. Это дает возможность выполнить косвенную оценку суммарного эффекта квадратичных членов.

Сумма всех коэффициентов при квадратичных членах

$$\sum b_{ii} = |b_0 - y_0|. \quad (13)$$

где y_0 — среднее значение параметра оптимизации, полученное из опытов на нулевом уровне факторов.

Если разность уравнения (13) незначима, т. е. если выполняется неравенство $|b_0 - y_0| < t_{(0,05; f_y)} \frac{s_y}{\sqrt{n}}$, то можно полагать, что суммарный вклад квадратичных эффектов равен нулю. Эта проверка не является абсолютной, так как возможен вариант, при котором сумма положительных коэффициентов при квадратичных членах будет равна (или близка) сумме отрицательных.

Приведенное описание порядка построения планов эксперимента типа 2^3 , кодирования факторов и статистических оценок не изменяется от увеличения числа факторов. Правда, несколько усложняя-

Таблица 5

Матрица планирования
полного факторного
эксперимента типа 2^3

Опыт	x_1	x_2	x_3
1	—	—	—
2	+	—	—
3	—	+	—
4	+	+	—
5	—	—	+
6	+	—	+
7	—	+	+
8	+	+	+

Таблица 6

Расширенная матрица планирования
полного факторного эксперимента типа 2^3

Опыт	x_1	x_2	x_3	x_1x_2	x_1x_3	x_2x_3	$x_1x_2x_3$
1	—	—	—	+	+	+	—
2	+	—	—	—	—	—	+
3	—	+	—	—	+	—	+
4	+	+	—	+	—	—	—
5	—	—	+	+	—	—	+
6	+	—	+	—	+	—	—
7	—	+	+	—	—	+	—
8	+	+	+	+	+	+	+

ется при этом запись, поэтому условились вместо -1 и $+1$, означающих, на каких уровнях находится в данном опыте факторы, ставить просто соответствующие знаки.

Остается только привести стандартные планы и общий вид уравнений регрессии, которые могут быть построены при их реализации.

В табл. 5 приведена матрица планирования для трех факторов ($k = 3$), варьируемых на двух уровнях ($q = 2$). Матрица планирования эксперимента типа 2^3 получена из данных табл. 2 путем повторения ее дважды: один раз при x_3 на нижнем уровне и второй раз при x_3 на верхнем уровне. Если задаться целью расширить матрицу эксперимента типа 2^3 введением вспомогательных столбцов, соответствующих взаимодействиям факторов, то она будет выглядеть так, как показано в табл. 6.

По результатам плана, представленного в табл. 6, можно определить восемь коэффициентов регрессии в уравнении

$$y = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_{12}x_1x_2 + b_{13}x_1x_3 + b_{23}x_2x_3 + b_{123}x_1x_2x_3. \quad (14)$$

Если бы пришлось проводить эксперимент с четырьмя факторами, то матрицу, приведенную в табл. 5, необходимо было бы повторить дважды: при x_4 на нижнем и на верхнем уровнях. Матрица планирования эксперимента типа 2^4 приведена в табл. 7. Пользуясь результатами

Таблица 7

Матрица
планирования
полного факторного
эксперимента
типа 2^4

Опыт	x_1	x_2	x_3	x_4
1	—	—	—	—
2	+	—	—	—
3	—	+	—	—
4	+	+	—	—
5	—	—	+	—
6	+	—	+	—
7	—	+	+	—
8	+	+	+	—
9	—	—	—	+
10	+	—	—	+
11	—	+	—	+
12	+	+	—	+
13	—	—	+	+
14	+	—	+	+
15	—	+	+	+
16	+	+	+	+

этого эксперимента, можно определить коэффициенты регрессии для уравнения:

$$y = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_4x_4 + b_{12}x_1x_2 + b_{13}x_1x_3 + b_{14}x_1x_4 + b_{23}x_2x_3 + b_{24}x_2x_4 + b_{34}x_3x_4 + b_{123}x_1x_2x_3 + b_{124}x_1x_2x_4 + b_{134}x_1x_3x_4 + b_{234}x_2x_3x_4 + b_{1234}x_1x_2x_3x_4. \quad (15)$$

Каждому столбцу в расширенной матрице планирования полного факторного эксперимента типа 2^4 соответствует один из членов урав-

Таблица 8

Планы полных факторных экспериментов типа 2^k

Опыт	Тип эксперимента			
	2^1	2^2	2^3	2^4
1	1	1	1	1
2	x_1	x_1	x_1	x_1
3	x_2	x_2	x_2	x_2
4	x_1x_2	x_1, x_2	x_1, x_2	x_1, x_2
5		x_3	x_3	x_3
6		x_1, x_3	x_1, x_3	x_1, x_3
7		x_2, x_3	x_2, x_3	x_2, x_3
8		x_1, x_2, x_3	x_1, x_2, x_3	x_1, x_2, x_3
9			x_4	x_4
10			x_1, x_4	x_1, x_4
11			x_2, x_4	x_2, x_4
12			x_1, x_2, x_4	x_1, x_2, x_4
13			x_3, x_4	x_3, x_4
14			x_1, x_3, x_4	x_1, x_3, x_4
15			x_2, x_3, x_4	x_2, x_3, x_4
16			x_1, x_2, x_3, x_4	x_1, x_2, x_3, x_4
17				x_5
18				x_1, x_5
19				x_2, x_5
20				x_1, x_2, x_5
21				x_3, x_5
22				x_1, x_3, x_5
23				x_2, x_3, x_5
24				x_1, x_2, x_3, x_5
25				x_4, x_5
26				x_1, x_4, x_5
27				x_2, x_4, x_5
28				x_1, x_2, x_4, x_5
29				x_3, x_4, x_5
30				x_1, x_3, x_4, x_5
31				x_2, x_3, x_4, x_5
32				x_1, x_2, x_3, x_4, x_5

нения (15). В уравнении (15) коэффициентов регрессии столько же, сколько опытов в матрице планирования — это насыщенный план. Для оценки адекватности нелинейной модели необходимо пренебречь каким-то из взаимодействий, например $x_1x_2x_3x_4$, и поставить опыты в центре эксперимента для проверки значимости эффекта квадратичных членов. Если модель в виде неполного квадратного уравнения неадекватна или эффект от квадратичных членов значим, то, согласно идее шагового поиска, необходимо продолжить эксперимент с целью представления функции отклика квадратным уравнением. Принципы планирования такого эксперимента изложены в гл. 3.

План факторного эксперимента может быть записан в более компактной форме, если вместо каждой строки в матрице выписывать только те факторы, которые находятся на верхнем уровне, а строчку, в которой все факторы находятся на нижнем уровне, обозначить через 1. Такая запись планов (табл. 8) часто встречается в литературе по планированию эксперимента.

При сопоставлении планов для различных значений k привлекает внимание то обстоятельство, что включение каждого нового фактора приводит к удвоению числа опытов в плане: при $k = 6$ число опытов $n = 64$, при $k = 7$ $n = 128$ и т. д. Реализация таких планов становится трудной, дорогостоящей и требующей больших затрат времени. Эффективность полного факторного эксперимента заметно снижается. Это обстоятельство привело к идее дробного факторного эксперимента.

Дробный факторный эксперимент

Даже самая скудная информация о процессе дает возможность предположить, что некоторые из взаимодействий факторов незначимы в той ограниченной части факторного пространства, в которой предполагается проведение эксперимента. В узких пределах экспериментирования поверхность отклика может быть в очень многих случаях представлена полиномом второй степени. При этом модель процесса должна иметь отличные от нуля коэффициенты при линейных членах b_i , парных взаимодействиях b_{ij} и квадратичных членах b_{ii} .

Если влияние некоторого взаимодействия признается пренебрежимо малым, то естественно, что коэффициент регрессии при таком взаимодействии не будет значимо отличаться от нуля. Это дает возможность использовать соответствующий столбец расширенной матрицы для оценки влияния дополнительного фактора.

Поясним сказанное на рассматриваемом примере. Поскольку известно, что взаимодействие конечной температуры нагрева x_1 и скорости нагрева x_2 незначимо, воспользуемся этим обстоятельством для проверки влияния на процесс дистилляции сырья еще одного, третьего фактора — изотермической выдержки при конечной температуре x_3 . План эксперимента остается таким же, как он приведен

в табл. 3, с той лишь разницей, что столбец x_1x_2 означает уровни фактора x_3 (табл. 9).

В табл. 9 приведено четыре опыта, по ним можно оценить влияние трех линейных эффектов. Если бы при $k = 3$ был поставлен полный факторный эксперимент, то в соответствии с данными табл. 6 или 8, необходимо было бы поставить восемь опытов, т. е. в два раза больше. Если расширить матрицу планирования, проведенную в табл. 9, до такой, как показано в табл. 10, то при сравнении столбцов можно сделать следующие выводы. Столбец x_2x_3 полностью повторяет столбец x_1 ; столбец x_1x_3 точно такой же, как столбец x_2 ; столбец x_1x_2 имеет те же знаки, что столбец x_3 и, наконец, столбец

Таблица 9

План дробного факторного эксперимента типа 2^{3-1}

Опыт	x_1	x_2	$x_3 = x_1x_2$
1	—	—	+
2	+	—	—
3	—	+	—
4	+	+	+

Таблица 10

Расширенная матрица планирования факторного эксперимента типа 2^{3-1} (полуреблика)

Опыт	x_1	x_2	x_3	x_1x_2	x_1x_3	x_2x_3	$x_1x_2x_3$
1	—	—	+	+	—	—	+
2	+	—	—	—	—	+	+
3	—	+	—	—	+	—	+
4	+	+	+	+	+	+	+

$x_1x_2x_3$ соответствует так называемой фиктивной переменной, которая используется для определения свободного члена b_0 .

Если коэффициенты при взаимодействиях не равны нулю, то найденные по результатам опытов выборочные коэффициенты регрессии будут оценками для совместных эффектов:

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

Таким образом, дробный факторный эксперимент, проводимый по плану, приведенному в табл. 9, не позволяет определять независимо друг от друга влияние линейных эффектов и эффектов взаимодействия факторов.

Для обозначения дробного факторного эксперимента применяется запись вида 2^{k-p} , где p — количество взаимодействий в полном факторном эксперименте типа 2^k , замененное новыми (дополнительными) факторами. Если $p=1$, то эксперимент типа 2^{k-1} называется полуребликой от полного факторного эксперимента типа 2^k . При $p=2$ имеем четверть-реплику и т. д.

При построении планов дробного факторного эксперимента очень важно знать, как будут смешаны между собой эффекты. Условия смешивания эффектов в матрице дробного факторного эксперимента задаются так называемым **определяющим контрастом**. Определяющий контраст в свою очередь зависит от того, какое

взаимодействие в матрице планирования заменено линейным эффектом. В табл. 9

$$x_3 = x_1 x_2. \quad (16)$$

Выражение (16) называется генерирующим соотношением. Умножив генерирующее соотношение на x_3 , получим

$$x_3^2 = x_1 x_2 x_3.$$

Поскольку $x_3^2 = 1$ независимо от того, на каком уровне этот фактор находится, т. е. равен он $+1$ или -1 , можно записать

$$1 = x_1 x_2 x_3. \quad (17)$$

Это выражение и называется определяющим контрастом. С его помощью можно определить, каким образом в матрице планирования смешаны различные эффекты. Для этого необходимо определяющий контраст умножить на интересующий нас эффект. Например, для полуреплики, приведенной в табл. 9, генерирующее соотношение равно $x_3 = x_1 x_2$, а определяющий контраст имеет вид $1 = x_1 x_2 x_3$. Отсюда условия смешивания:

$$\text{для } x_1 \quad x_1 = x_1^2 x_2 x_3 = x_2 x_3;$$

$$\text{для } x_2 \quad x_2 = x_1 x_2^2 x_3 = x_1 x_3;$$

$$\text{для } x_3 \quad x_3 = x_1 x_2 x_3^2 = x_1 x_2 \quad (\text{так как } x_i^2 = 1).$$

В том случае, когда при вводе третьей переменной (табл. 9) приняли бы генерирующее соотношение, равное $x_3 = -x_1 x_2$, то получили бы также полуреплику от полного факторного эксперимента типа 2^3 , но с определяющим контрастом, имеющим вид $1 = -x_1 x_2 x_3$.

Полный факторный эксперимент может быть разбит на реплики различной дробности с максимальной разрешающей способностью относительно линейных эффектов. Чем больше эффектов позволяет оценить дробный факторный эксперимент, тем большей разрешающей способностью он обладает.

Выбор степени дробности эксперимента должен производиться всякий раз в зависимости от поставленной задачи и имеющихся сведений о процессе. Бывают, например, случаи, когда важно иметь отдельные независимые оценки не линейных эффектов, а эффектов парных взаимодействий. Этого можно добиться, конструируя план дробного факторного эксперимента на основе специально подобранного генерирующего соотношения.

Интерпретация результатов факторного эксперимента

Проведя серию опытов по плану полного факторного эксперимента или дробной реплики, приходим в результате к полиномиальной модели. Если полученная модель оказывается адекватной экспериментальным данным, то ее можно использовать для

прогнозирования значения отклика при любых значениях факторов, находящихся между верхним и нижним уровнями. Для пояснения сказанного вернемся к рассматриваемому примеру.

Уравнение (11) получено по результатам опытов (табл. 3), кодирование факторов приведено в табл. 1. По данным табл. 1 видно, что конечная температура дистилляции x_1 колебалась от 300 до 400° С, а скорость нагрева x_2 — от 4 до 8° С/мин. Рассчитаем, например, выход продукта y , возможный при конечной температуре дистилляции, равной 380° С, и скорости нагрева — 5,4° С/мин. Прежде всего необходимо значения факторов перевести в кодовую форму, для чего воспользуемся формулой (4):

$$x_1 = \frac{380 - 350}{50} = 0,6; \quad x_2 = \frac{5,4 - 6}{2} = -0,3.$$

Подставляя x_1 и x_2 в уравнение (11), получаем искомое значение выхода продукта для выбранных условий дистилляции:

$$y = 20 - 5 \cdot 0,6 - 2(-0,3) = 17,6.$$

С помощью формулы (4) уравнение (11) можно привести к натуральным переменным:

$$Q = 20 - 5 \frac{t - 350}{50} - 2 \frac{v - 6}{2} = 61 - 0,1t - v. \quad (18)$$

Естественно, что выражение (18) должно давать те же результаты, что и уравнение (11). Для рассматриваемого примера

$$Q = 61 - 0,1 \cdot 380 - 5,4 = 17,6.$$

Таким образом, коэффициенты регрессии в линейной модели дают представление о том, на сколько изменится значение отклика, если фактор изменить на величину одного интервала варьирования. Исходя из уравнения (11) можно, следовательно, утверждать, что при увеличении x_1 на δ_1 выход продукта уменьшается на 5%, а при увеличении x_2 на δ_2 — на 2%. Следует отметить, что больший по абсолютной величине коэффициент перед фактором x_1 еще не дает оснований утверждать, что его влияние на отклик существеннее фактора x_2 , коэффициент перед которым меньше. Дело в том, что сами по себе единицы варьирования факторов несоизмеримы между собой.

В общем случае линейная модель вида

$$y = b_0 + \sum_{i=1}^k b_i x_i$$

представляет собой гиперплоскость в $(k + 1)$ -мерном факторном пространстве, что исключает возможность зрительного восприятия соответствующего геометрического образа кроме случая, когда $k = 2$, который иллюстрируется рис. 4. Во всех случаях гиперплоскость проходит через точку $y = b_0$. Коэффициенты регрессии при линейных членах характеризуют наклон этой гиперплоскости к соответствующим осям.

Точки 1, 2, 3 и 4 (рис. 4) соответствуют координатам опытов при постановке полного факторного эксперимента типа 2^2 . Из этих точек проведены прямые, параллельные оси y , и на них отложены отрезки, равные значению откликов в соответствующем опыте. Как видно из рисунка, свободный член b_0 в линейном уравнении регрессии численно равен значению отклика при $x_1 = x_2 = 0$.

Рассечем плоскость $ABCD$ (рис. 5) любой плоскостью, перпендикулярной оси y . В пересечении плоскостей получим прямую, каждой точке которой соответствует одно и то же значение отклика. Если плоскость $ABCD$ рассечь плоскостями, перпендикулярными оси y и расположенными на одинаковом расстоянии друг от друга, а затем все полученные при этом линии пересечения спроектировать на плоскость x_1Ox_2 , то получилось бы семейство прямых равной величины y . Проведем описанную процедуру с моделью, выраженную уравнением (11), которая характеризует выход продукта в зависимости от конечной температуры дистилляции и скорости нагрева. Можно получить множество вариантов графической

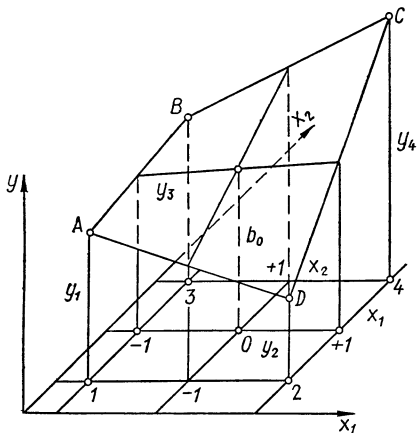


Рис. 4. Гиперплоскость в $(k+1)$ -мерном факторном пространстве, когда $k=2$.

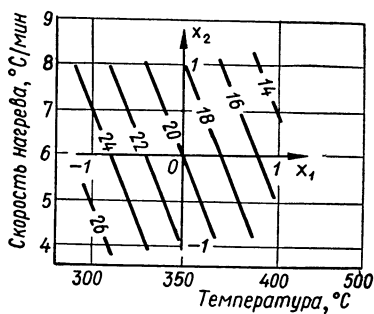


Рис. 5. Графическая интерпретация уравнения $y = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2$.

Таблица 11
Пример факторного эксперимента при значимом взаимодействии факторов

Опыт	x_1	x_2	y
1	-1	-1	28
2	+1	-1	16
3	-1	+1	22
4	+1	+1	14

интерпретации линейного уравнения при $k=2$, аналогичных рис. 5. Каждая прямая на рис. 5 соответствует одному и тому же значению выхода продукта. Каждой точке прямой соответствуют координаты x_1 и x_2 , которые определяют возможные условия получения заданного выбранной точкой выхода.

Способ интерпретации линейной модели, показанный на рис. 5, является весьма удобным. Во-первых, из графика сразу видно, что для повышения выхода продукта необходимо по возможности снизить конечную температуру дистилляции и скорость нагрева. Во-вторых, параллельно кодовым осям очень легко провести оси натуральных переменных, так как всегда известно, какому натуральному значению фактора соответствуют кодовые координаты -1 , 0 и $+1$.

По результатам факторного эксперимента можно получить неполное квадратное уравнение, в котором кроме коэффициентов

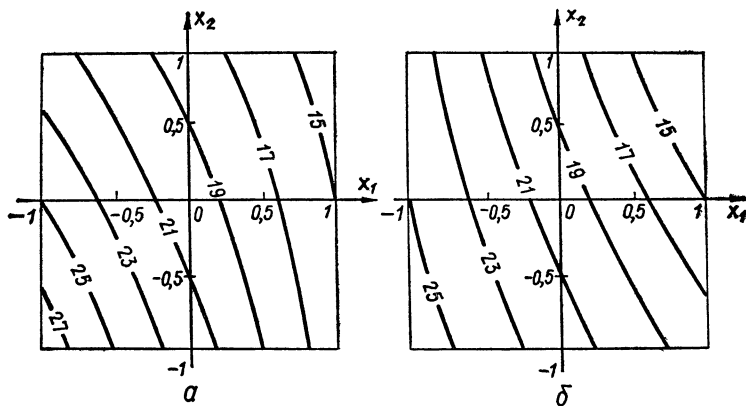


Рис. 6. Графическая интерпретация уравнения $y = 20 - 5x_1 - 2x_2 \pm x_1x_2$:
а — при $b_{12} = +1$; б — при $b_{12} = -1$.

при линейных членах могут быть значимыми коэффициенты при парных взаимодействиях факторов типа x_ix_j . При значимом взаимодействии факторов эффект каждого из них зависит от того, на каком уровне находится другой взаимодействующий фактор. Поясним это на примере.

Пусть в уравнении (11), полученном по результатам эксперимента типа 2^2 , коэффициент b_{12} оказался значимым, равным 1. Тогда уравнение имело бы вид

$$y = 20 - 5x_1 - 2x_2 + x_1x_2, \quad (19)$$

а выход продукта в каждом опыте имел бы значения, равные приведенным в табл. 11.

Сопоставляя кривые графиков, приведенных на рис. 6, можно сделать вывод о том, что в общем случае наличие положительного взаимодействия двух факторов означает усиление положительного эффекта одного из взаимодействующих факторов при переходе второго взаимодействующего фактора с нижнего на верхний уровень независимо от знака и величины коэффициента регрессии второго фактора.

Глава 2. МЕТОД ДВИЖЕНИЯ ПО ГРАДИЕНТУ (КРУТОЕ ВОСХОЖДЕНИЕ)

Принцип метода

В предыдущей главе рассмотрены вопросы постановки факторного эксперимента, в результате которого получают уравнение регрессии, описывающее функцию отклика в некоторой ограниченной области факторного пространства. Если цель эксперимента — построение интерполяционной формулы, то исследование на этом заканчивается. Однако на практике адекватная модель на первом этапе исследования необходима для выбора направления движения к области оптимума. Полученная модель представляет собой разложение аналитической функции в ряд Тейлора [13, 14]. При этом коэффициенты регрессии представляют собой частные производные функции отклика по соответствующим факторам. Поэтому, если $\vec{i}, \vec{j}, \dots, \vec{z}$ — единичные векторы в направлении координатных осей, то

$$\text{grad } y = b_1 \vec{i} + b_2 \vec{j} + \dots + b_k \vec{z}.$$

Это выражение задает кратчайшее направление движения к экстремуму. Очевидно, что для осуществления такого движения необходимо изменять факторы пропорционально соответствующим коэффициентам регрессии.

Из аналитической геометрии известно, что первая производная в геометрической интерпретации представляет собой угол наклона касательной к кривой. Если обратиться к рис. 7, то можно записать

$$b_i = \text{tg } \varphi.$$

Значение функции в точках, лежащих на градиенте, можно определить из выражения

$$y_{(d)} = y'_0 + oc \text{ tg } \varphi,$$

где $oc = \delta_i$ — интервал варьирования.

Следовательно, $y_{(d)} = y'_0 + \delta_i \text{ tg } \varphi.$

Из рис. 7 видно, что движение по градиенту в каждом конкретном случае представляет собой шаговую операцию, которая продолжается до тех пор, пока не будут получаться результаты ниже предыдущих. Значение отклика при значениях x_i , равных c , c_1 , c_2, \dots , будет меньше предсказанных линейной моделью, однако $cd < c_1 d_1 < c_2 d_2$. В точке $x_i = c_3$ результат опыта окажется не только меньше предсказываемой величины $c_3 d_3$, но меньше предыдущего значения $c_2 d_2$. В этом случае движение по градиенту прекращается. Вблизи точки $x_i = c_2$ ставится новая серия опытов с целью описания

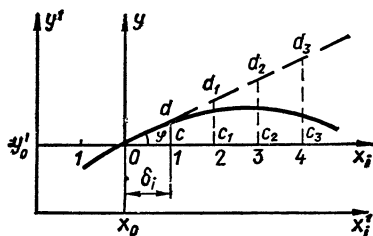


Рис. 7. График движения по градиенту при одном факторе.

функции отклика в окрестностях оптимума или отыскания нового направления движения к оптимуму.

На рис. 8 сопоставлены графики поиска оптимума методом движения с помощью однофакторного эксперимента и по градиенту. На графики нанесены кривые равного значения отклика, спроектированные на плоскость $x_1O_1x_2$. Экспериментатор находится в точке O . Локальное описание поверхности отклика в окрестностях точки O дает исследователю возможность выбрать направление, которое совпадет с градиентом, и двигаться по этому направлению до точки c . Дальнейшее движение приведет к снижению выхода.

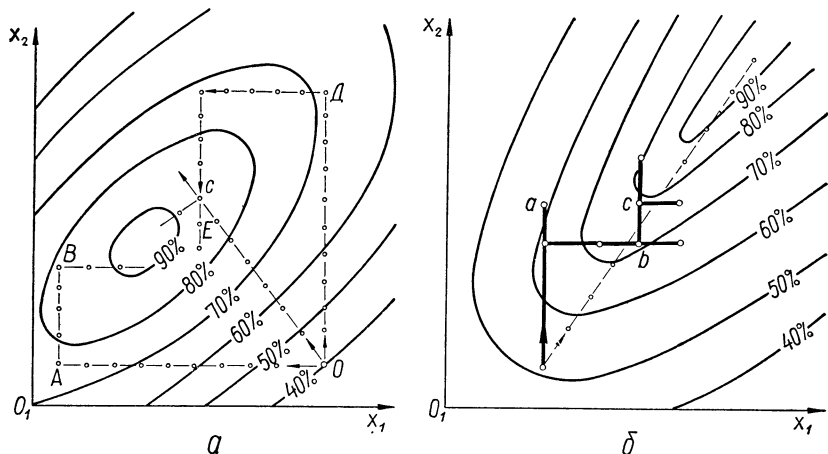


Рис. 8. Графики поиска оптимума методом движения:
а — с помощью однофакторного эксперимента; б — по градиенту.

В точке c ставится серия опытов, по которой выбирается новое направление движения к оптимуму. Можно показать, что путь к оптимуму по прямой Oc является кратчайшим. Чтобы четче показать это, на рис. 8 приведены два варианта движения традиционным методом, при котором движение к оптимуму осуществляется методом однофакторного эксперимента. При этом методе экспериментатор стабилизирует один фактор на некотором уровне и варьирует другим. Из двух путей OAB и OCE , приведенных на рисунке 8, а, рассмотрим один — OAB . Зафиксировав x_2 на некотором постоянном уровне, исследователь движется в направлении x_1 до точки A , так как дальнейшее движение в этом направлении приводит к снижению выхода. В точке A фиксируется переменная x_1 и начинается движение по x_2 , оно происходит до точки B , т. е. до тех пор, пока наблюдается прирост выхода. В этой точке фиксируется x_2 и снова происходит движение по x_1 .

Очевидно, что чем больше факторов в системе, тем сложнее становится их перебор, тем больше времени нужно для движения. С увеличением числа факторов эффективность градиентного метода

поиска оптимума по сравнению с традиционным однофакторным методом становится все больше и отчетливей. Кроме того, традиционный метод однофакторного эксперимента может привести к ошибкам в нахождении области оптимума в случаях поверхности отклика типа гребня, что иллюстрируется рис. 8, б. Движение по традиционному методу на рисунке показано сплошной линией. В этом случае точка c может быть принята оптимальной, в то время как движение по градиенту приведет к более высоким результатам.

Выше рассмотрены частные случаи использования метода крутого восхождения при одном и двух факторах. В общем случае, когда рассматривается система с k факторами, процедура не меняется, так как все эффекты независимы друг от друга. При этом, чтобы движение осуществлялось по градиенту, необходимо сохранять соотношение произведений коэффициентов регрессии на соответствующие интервалы. Процедура движения происходит шаг за шагом. Координаты каждой точки получаются последовательным алгебраическим сложением нулевого уровня с пропорциональным приращением по каждому фактору.

Расчет серии опытов при движении по градиенту

Расчеты, связанные с выбором координат точек, при движении по градиенту удобно выполнять в таблице, которая имеет стандартную форму.

Исследуем процесс получения продукта при дистилляции сырья. На выход продукта влияют три фактора: температура конца дистилляции x_1 , скорость нагрева x_2 и продолжительность изотермической выдержки x_3 . В первой серии опытов реализован полный факторный эксперимент типа 2^3 (табл. 12).

Таблица 12

Серия опытов для получения линейной модели

Интервал варьирования и уровень факторов	x_1	x_2	x_3	y
Нулевой уровень $x_i = 0$	400	6	3	
Интервал варьирования δ_i	15	1	1	
Нижний уровень $x_i = -1$	385	5	2	
Верхний уровень $x_i = +1$	415	7	4	
Опыты:				
1	—	—	—	10,5
2	+	—	—	8,3
3	—	+	—	6,8
4	+	+	—	4,6
5	—	—	+	16,4
6	+	—	+	14,2
7	—	+	+	12,7
8	+	+	+	10,5

По результатам опытов (табл. 12) получена линейная модель

$$y = 10,5 - 1,1x_1 - 1,85x_2 + 2,95x_3. \quad (20)$$

Пользуясь уравнением (20), попробуем совершить движение по градиенту в поисках оптимума. Все необходимые для этого расчеты сведены в табл. 13. Строки а, б и в заполнены сведениями, которые получены при постановке опытов для линейной аппроксимации функции отклика. В строке г осуществлен переход к натуральному масштабу интервалов варьирования.

Таблица 13

Расчеты для движения по градиенту

Индекс строки	Интервал варьирования и уровень факторов	x_1	x_2	x_3	y
а	Нулевой уровень	400	6	3	
б	Интервал варьирования δ_i	15	0,5	1	
в	Коэффициент регрессии b_i	-1,1	-1,85	2,95	
г	$b_i \delta_i$	-16,5	-0,985	2,95	
д	K_i	-1	-0,0506	0,1788	
е	δ_i^*	-10	-0,506	1,788	
ж	Округление	-10	-0,5	2,0	
з	Опыты:				
	1 (мысленный)	390	5,5	5	—
	2 (мысленный)	380	5,0	7	—
	3 (мысленный)	370	4,5	9	—
	4 (реализованный)	360	4,0	11	19
	5 (мысленный)	350	3,5	13	—
	6 (реализованный)	340	3,0	15	22
	7 (мысленный)	330	2,5	17	—
	8 (реализованный)	320	2,0	19	20

Затем выбираем фактор, для которого произведение $b_i \delta_i$ оказалось наибольшим по абсолютной величине, и находим отношение $K_i = \frac{|b_i \delta_i|}{|b_i \delta_i|_{\max}}$ для всех остальных факторов. Полученным таким образом коэффициентам пропорциональности K_i приписывают знаки, соответствующие коэффициентам регрессии, и заносят в строку д табл. 13.

Для фактора с наибольшим произведением $|b_i \delta_i|$ выбирается интервал варьирования для движения по градиенту. Интервалы всех остальных факторов δ_i^* получают, умножая величину выбранного интервала на коэффициент пропорциональности K_i (строка е). Как видно из сказанного, выбор интервала варьирования при движении по градиенту всецело зависит от интуиции исследователя. Никаких строгих правил, определяющих эту процедуру, нет. Можно только рекомендовать выбирать интервал таким образом, чтобы при первом движении оказаться либо вблизи границы исследования, либо несколько выйти за ее пределы. Если при этом окажется, что существующее оборудование не может обеспечить четкого задания

значений по некоторым факторам из-за малости получившихся интервалов, то их следует менять через два-три опыта. Для удобства интервалы округляются (строка ж).

Далее следуют условия опытов, которые получаются путем алгебраического сложения нулевого уровня с рассчитанным интервалом по каждому фактору. Опыты 1—3 мысленные. В опыте 4 был получен результат 19%, который превышал наибольшее значение при постановке факторного эксперимента. В опыте 6 получен выход смолы, равный 22%. Дальнейшее движение (опыт 8) приводит к уменьшению выхода. Эта ситуация говорит о том, что движение по градиенту необходимо прекратить. Теперь следует попытаться описать поверхность отклика вблизи точки, которой соответствует наибольший выход, равный 22%. Для этого вокруг этой точки ставится серия опытов, соответствующая полному факторному эксперименту или дробной реплике от него. По полученным результатам можно судить о том, действительно ли точка с наилучшим результатом (опыт 6) лежит в области оптимума или в этой точке необходимо изменить направление движения (см. точку *c* на рис. 8, а).

При постановке этой контрольной серии опытов интервал варьирования следует уменьшить, так как, чем ближе к экстремуму, тем сильнее проявляется кривизна поверхности отклика. Если линейное приближение при минимальных интервалах варьирования оказывается неадекватным либо движение по градиенту неэффективным, то следует считать, что достигнута область оптимума.

При движении по градиенту часто встречается ситуация, при которой движение по одному из факторов достигает некоторого предела. В этих случаях этот фактор стабилизируют и продолжают движение по оставшимся.

Глава 3. ПЛАНЫ ВТОРОГО ПОРЯДКА

Вблизи экстремума, как правило, поверхность отклика имеет значительную кривизну и не может быть адекватно описана неполным квадратным уравнением даже в весьма узкой области. В этих случаях, руководствуясь общей идеей шагового эксперимента, необходимо пытаться описать исследуемую поверхность отклика полным уравнением второй степени. Для этого надо провести эксперимент таким образом, чтобы каждый фактор варьировал хотя бы на трех уровнях. Напомним, что при постановке полного факторного эксперимента и дробных реплик от него факторы варьировали только на двух уровнях. Простейшим решением хочется назвать планирование типа 3^k , но это неверно, так как реализация такого решения приведет к необходимости постановки неоправданно большого числа опытов, если число факторов $k \geq 3$.

Г. Е. П. Бокс и К. Б. Вилсон [24] предложили использовать ортогональные планы первого порядка в качестве ядра, на котором затем достраивается конструкция плана второго порядка. Такие

планы получили название композиционных и полностью соответствуют идее шаговой процедуры. Действительно, попав в область эксперимента, экспериментатор реализует план ПФЭ, проверяя гипотезу линейной аппроксимации. Убедившись в несостоятельности этой гипотезы, он делает следующий шаг: достраивает ПФЭ до плана второго порядка, реализует его и проверяет гипотезу об адекватности уравнения второй степени. Поясним это на примере.

На первом этапе реализуют серию опытов для построения линейной модели. В задаче с двумя переменными — это опыты в четырех точках (рис. 9, а). При трех переменных (рис. 9, б) можно поставить полуреплику, например точки 2, 3, 5 и 8. Затем ставят опыт в центре для проверки гипотезы адекватности: модель оказалась

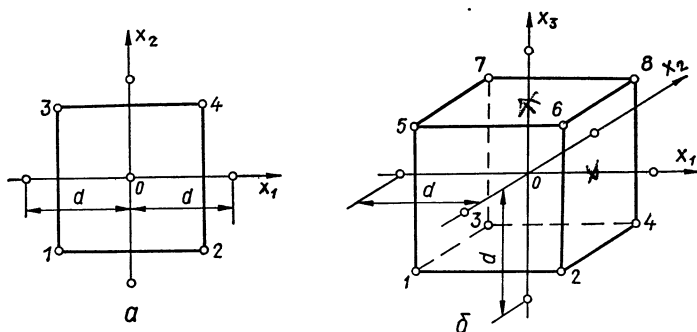


Рис. 9. Построение планов второго порядка:
а — при $k = 2$; б — при $k = 3$.

неадекватной. Следовательно, необходимо делать следующий шаг. Полуреплику достраивают до полного факторного эксперимента, т.е. реализуют опыты во всех вершинах куба. Затем ставят еще несколько опытов в точках, расположенных на расстоянии d от центра, это так называемые звездные точки. Из рис. 9 видно, что при построении плана второго порядка область эксперимента расширяется. Итак, получено два композиционных плана второго порядка при $k = 2$, содержащих девять опытов и при $k = 3$ — 15. Если бы был применен план типа 3^k , то потребовалось бы поставить соответственно 9 и 27 опытов.

В построении композиционных планов не указана одна существенная деталь: как выбирать расстояние d до звездных точек. Плечо d можно выбрать таким образом, чтобы план оставался ортогональным, т.е. чтобы скалярные произведения всех векторов-столбцов в матрице независимых переменных были равны нулю. Можно выбрать плечо d таким образом, чтобы удовлетворить критерий ротатбельности, т.е. добиться такого положения, при котором дисперсии предсказанного значения y были равны на равных расстояниях от центра плана.

В математической теории эксперимента показано, что ни ортогональность, ни ротатбельность сами по себе не могут служить ло-

гически цельными надежными критериями оптимальности плана. Поиском такого универсального критерия оптимальности планов занимается математическая теория планирования эксперимента. Несмотря на то, что до сих пор нет еще безусловно принятого единого критерия, прогресс в этом направлении очевиден. Наличие указанного прогресса теория эксперимента обязана работам Кифера и его последователей. В весьма доступной форме идеи Кифера и его школы изложены в работе Т. И. Голиковой и Н. Г. Микешиной [7].

Ортогональные планы второго порядка

Построение центрального композиционного плана при наличии ядра сводится к наращиванию точек, расположенных в центре плана (на нулевом уровне факторов) и на расстоянии d от центра.

Для того, чтобы сохранить ортогональность плана, необходимо при построении матрицы планирования второго порядка обеспечить два условия:

$$\sum_{u=1}^n x_{0u} x_{iu}^2 = 0 \quad \text{и} \quad \sum_{u=1}^n x_{iu}^2 x_{ju}^2 = 0. \quad (21)$$

Если выполняются условия (21), то матрица центрального композиционного плана ортогональна. Первое из условий (21) может быть удовлетворено путем преобразования квадратичных переменных:

$$x'_i = x_i^2 - \frac{\sum_{u=1}^n x_{iu}^2}{n} = x_i^2 - \bar{x}_i^2. \quad (22)$$

Величина \bar{x}_i^2 зависит от числа факторов k и плеча d :

$$\bar{x}_i^2 = \frac{2^k + 2d^2}{2^k + 2k + 1}. \quad (23)$$

Обозначим $\bar{x}_i^2 = \varphi$, тогда $\varphi = \frac{2^k + 2d^2}{n}$. Знаменатель уравнения (23) равен n , потому что 2^k — число точек ядра, $2k$ — число звездных точек, 1 — одна нулевая точка.

Из условия ортогональности векторов столбцов квадратичных членов запишем еще одно уравнение:

$$2^k (1 - \varphi)^2 - 4\varphi (d^2 - \varphi) + 2(k - \varphi)\varphi^2 + \varphi^2 = 0. \quad (24)$$

Решая совместно уравнения (23) и (24), получаем общие формулы для определения величин φ и d при построении ортогональных планов второго порядка:

$$\varphi = \sqrt{\frac{2^k}{n}}; \quad (25)$$

$$d = \sqrt{\frac{n\varphi - 2^k}{2}}, \quad (26)$$

если ядро плана составляет полный факторный эксперимент типа 2^k . При $k \geq 5$ в качестве ядра может использоваться полуреплика от полного факторного эксперимента, т.е. 2^{k-1} опытов. В этом случае вид формул (25) и (26) не меняется, только вместо k следует подставить величину $k - 1$.

В табл. 14 приведены величины d и φ , рассчитанные для $k \leq 7$. Пользуясь данными табл. 14, построим ортогональные планы второго порядка для двух и трех факторов (табл. 15 и 16). При $k \geq 4$ план строится аналогично. При построении ортогональных планов на число нулевых точек не накладывается какого-либо ограничения, поэтому можно принять минимум этих точек ($n_0 = 1$).

Обеспечив ортогональность плана, тем самым получим возможность определять коэффициенты регрессии по весьма простой формуле и независимо друг от друга:

$$b_i = \frac{\sum_{u=1}^n x_{iu}y_u}{\sum_{u=1}^n x_{iu}^2}, \quad (27)$$

где i — номер столбца в матрице планирования; x_{iu} — элементы i -го столбца.

Таблица 14

Параметры ортогональных планов второго порядка

Ядро плана	Общее число опытов n	φ	d
2^2	9	$2/3 \approx 0,6667$	1,0000
2^3	15	$\sqrt{\frac{8}{15}} \approx 0,7303$	1,2154
2^4	25	$4/5 = 0,8$	1,4142
2^{5-1}	27	$\frac{4\sqrt{3}}{9} \approx 0,7698$	1,5467
2^5	43	$\frac{4\sqrt{86}}{43} \approx 0,8627$	1,5960
2^{6-1}	45	$\frac{4\sqrt{10}}{15} \approx 0,8433$	1,7244
2^6	77	$8\sqrt{\frac{1}{77}} \approx 0,9117$	1,7606
2^{7-1}	79	$8\sqrt{\frac{1}{79}} \approx 0,9001$	1,8848
2^7	143	$8\sqrt{\frac{2}{143}} \approx 0,9461$	1,9095

Центральное композиционное ортогональное планирование
второго порядка для $k = 2$

Опыт	x_0	x_1	x_2	$x_1^2 - 2/3$	$x_2^2 - 2/3$	$x_1 x_2$	y
Планирование типа 2	+1	-1	-1	1/3	1/3	+1	y_1
	+1	+1	-1	1/3	1/3	-1	y_2
	+1	-1	+1	1/3	1/3	-1	y_3
	+1	+1	+1	1/3	1/3	+1	y_4
Звездные точки	+1	-1	0	1/3	-2/3	0	y_5
	+1	+1	0	1/3	-2/3	0	y_6
	+1	0	-1	-2/3	1/3	0	y_7
	+1	0	+1	-2/3	1/3	0	y_8
Нулевая точка	+1	0	0	-2/3	-2/3	0	y_9

Знаменатель в формуле (27) не зависит от результатов опытов, поэтому его можно вычислить заранее, что упрощает обработку результатов эксперимента (табл. 17).

Дисперсии коэффициентов регрессии оцениваются по формуле

$$s_{b_i}^2 = \frac{s_y^2}{\sum_{u=1}^n x_{iu}^2} \quad (28)$$

Остаточная сумма квадратов

$$S_R = \sum_{u=1}^n y_u^2 - \sum_{i=0}^{k_1} b_i \sum_{u=1}^n x_{iu} y_u \quad (29)$$

с числом степеней свободы

$$f_R = n - k_1, \quad k_1 = 0,5(k+2)(k+1). \quad (30)$$

Поскольку было проведено преобразование квадратичной переменной, то уравнение регрессии несколько отличается от привычной формы записи:

$$y = b'_0 + \sum_{1 \leq i \leq k} b_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq k} b_{ij} x_i x_j + \sum_{1 \leq i \leq k} b_{ii} (x_i^2 - \varphi). \quad (31)$$

Чтобы перейти к обычной форме записи, находят величину

$$b_0 = b'_0 - \sum_{1 \leq i \leq k} \varphi b_{ii}, \quad (32)$$

которая оценивается с дисперсией

Центральное композиционное ортогональное планирование второго порядка для $k=3$

Опыт	x_0	x_1	x_2	x_3	$x_1^2 - 11/15$	$x_2^2 - 11/15$	$x_3^2 - 11/15$	$x_1 x_2 x_3$	$x_1 x_2$	$x_1 x_3$	$x_2 x_3$	y
Планирование типа 2^3	+1	-1	-1	-1	4/15	4/15	4/15	+1	+1	+1	+1	y_1
	+1	+1	-1	-1	4/15	4/15	4/15	-1	-1	-1	+1	y_2
	+1	-1	+1	-1	4/15	4/15	4/15	-1	+1	+1	-1	y_3
	+1	+1	+1	-1	4/15	4/15	4/15	+1	+1	-1	-1	y_4
	+1	-1	-1	+1	4/15	4/15	4/15	+1	-1	-1	-1	y_5
	+1	+1	-1	+1	4/15	4/15	4/15	-1	+1	+1	-1	y_6
	+1	-1	+1	+1	4/15	4/15	4/15	-1	-1	-1	+1	y_7
	+1	+1	+1	+1	4/15	4/15	4/15	+1	+1	+1	+1	y_8
Звездные точки	+1	-1,215	0	0	23/30	-11/15	-11/15	0	0	0	0	y_9
	+1	+1,215	0	0	23/30	-11/15	-11/15	0	0	0	0	y_{10}
	+1	0	-1,215	0	-11/15	23/30	-11/15	0	0	0	0	y_{11}
	+1	0	+1,215	0	-11/15	23/30	-11/15	0	0	0	0	y_{12}
	+1	0	0	-1,215	-11/15	-11/15	23/30	0	0	0	0	y_{13}
	+1	0	0	+1,215	-11/15	-11/15	23/30	0	0	0	0	y_{14}
	+1	0	0	0	-11/15	-11/15	-11/15	0	0	0	0	y_{15}

$$s_{b_0}^2 = s_{b_0'}^2 + \sum_{1 \leq i < k} \varphi^2 s_{b_{ii}}^2. \quad (33)$$

Для того, чтобы проиллюстрировать последовательность работы при планировании второго порядка, вернемся к примеру гл. 2. В табл. 13 приведены результаты движения по градиенту. В опыте 6 получен наилучший результат — выход продукта 22%. Дальнейшее движение привело к уменьшению выхода. Было принято решение прекратить движение по градиенту и попытаться описать поверхность функции отклика вокруг точки 6. Лучший выход (22%) получен при конечной температуре дистилляции 340° С, скорости нагрева сырья 3° С/мин и изотермической выдержке 15 ч, эти условия принимаются за нулевой уровень. Составляем табл. 18, в которой содержатся сведения о варьировании факторов в новой серии опытов.

Как видно из табл. 18, 1-я серия опытов в области экстремума представляет собой полный факторный эксперимент типа 2^k , т.е. и в этом случае полностью сохраняется идея шагового поиска. Начнем процесс описания поверхности отклика с попытки линейной аппроксимации.

Результаты опытов (табл. 18) дают следующие значения коэффициентов регрессии:

$$\begin{aligned} b_0 &= \\ &= \frac{25 + 29 + 21 + 22 + 27 + 31 + 27 + 27}{8} = \\ &= 26; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} b_1 &= \\ &= \frac{-25 + 29 - 21 + 22 - 27 + 31 - 27 + 27}{8} = \\ &= 1; \end{aligned}$$

Таблица 17

Значения $\sum_{u=1}^n x_{iu}^2$ для ортогональных планов второго порядка

Столбец в матрице планирования	Значение $e \sum_{u=1}^n x_{iu}^2$ при ядре типа							
	2^3	2^4	2^{5-1}	2^6	2^{6-1}	2^7	2^{7-1}	2^7
x_0	9	15	27	43	45	77	79	143
x_i	6	10,9544	20,7846	37,0944	37,9471	70,1994	71,1049	135,2924
x_{ij}	4	8	16	32	32	64	64	128
$x_i^2 - \varphi$	2	4,364	8,241	16,767	17,684	19,217	25,241	26,589

$$b_2 = \frac{-25 - 29 + 21 + 22 - 27 - 31 + 27 + 27}{8} = -2;$$

$$b_3 = \frac{-25 - 29 - 21 - 22 + 27 + 31 + 27 + 27}{8} = 2,$$

по которым можно записать линейную модель

$$y = 26 + x_1 - 2x_2 + 2x_3. \quad (34)$$

Таблица 18

Изучение области оптимума (1-я серия опытов)

Интервал варьирования и уровень факторов	x_1	x_2	x_3	y
Нулевой уровень $x_i = 0$	340	3	15	
Интервал варьирования δ_i	10	0,5	1	
Нижний уровень $x_i = -1$	330	2,5	14	
Верхний уровень $x_i = +1$	350	3,5	16	
Опыты:				
1	—	—	—	25
2	+	—	—	29
3	—	+	—	21
4	+	+	—	22
5	—	—	+	27
6	+	—	+	31
7	—	+	+	27
8	+	+	+	27

Проверяем адекватность линейного приближения. Ошибка опыта известна: $s_y^2 = 0,39$, $f_y = 4$.

По формуле (10) вычисляем дисперсию адекватности, для чего рассчитываем значение y для условий каждого опыта (табл. 18) по уравнению (34):

$$\begin{aligned} \hat{y}_1 &= 26 - 1 + 2 - 2 = 25; & |\hat{y}_1 - y_1| &= |25 - 25| = 0; \\ \hat{y}_2 &= 26 + 1 + 2 - 2 = 27; & |\hat{y}_2 - y_2| &= |27 - 29| = 2; \\ \hat{y}_3 &= 26 - 1 - 2 - 2 = 21; & |\hat{y}_3 - y_3| &= |21 - 21| = 0; \\ \hat{y}_4 &= 26 + 1 - 2 - 2 = 23; & |\hat{y}_4 - y_4| &= |23 - 21| = 2; \\ \hat{y}_5 &= 26 - 1 + 2 + 2 = 29; & |\hat{y}_5 - y_5| &= |29 - 27| = 2; \\ \hat{y}_6 &= 26 + 1 + 2 + 2 = 31; & |\hat{y}_6 - y_6| &= |31 - 31| = 0; \\ \hat{y}_7 &= 26 - 1 - 2 + 2 = 25; & |\hat{y}_7 - y_7| &= |25 - 27| = 2; \\ \hat{y}_8 &= 26 + 1 - 2 + 2 = 27; & |\hat{y}_8 - y_8| &= |27 - 27| = 0; \end{aligned}$$

$$s_{ад}^2 = \frac{4 \cdot 2^2}{8 - 3 - 1} = 4.$$

Составляем критерий Фишера:

$$F = \frac{4}{0,39} = 10,2564.$$

Это больше табличного значения $F_{(0,05; 4; 4)} = 6,3883$, значит линейная модель неадекватна.

Следуя идее шаговой процедуры, необходимо попытаться построить модель второй степени. Воспользуемся для этого ортогональным планом второго порядка. Опыты, выполненные в табл. 18, можно использовать в качестве ядра планирования. Для того, чтобы достроить этот план до плана второго порядка, необходимо поставить опыты на расстоянии d от центра и на нулевом уровне. При этом условия опытов в общем случае должны определяться по данным табл. 19. Результаты опытов, составляющих ортогональный план второго порядка, сведены в табл. 20.

Таблица 19

Данные для определения условий опыта

Уровень факторов	x_1	x_2	x_3
Нулевая точка $x_i = 0$	340	3	15
Звездные точки: $x_i = -d$	328	2,4	13,8
$x_i = +d$	342	3,6	16,2

Таблица 20

Условия и результаты опытов по плану 2-го порядка

Опыт	x_1	x_2	x_3	$x_1^2 - \frac{x_1^2}{11/15}$	$x_2^2 - \frac{x_2^2}{11/15}$	$x_3^2 - \frac{x_3^2}{11/15}$	$x_1 x_2$	$x_1 x_3$	$x_2 x_3$	y
1	-1	-1	-1	4/15	4/15	4/15	+1	+1	+1	25
2	+1	-1	-1	4/15	4/15	4/15	-1	-1	+1	29
3	-1	+1	-1	4/15	4/15	4/15	-1	+1	-1	21
4	+1	+1	-1	4/15	4/15	4/15	+1	-1	-1	21
5	-1	-1	+1	4/15	4/15	4/15	+1	-1	-1	27
6	+1	-1	+1	4/15	4/15	4/15	-1	+1	-1	31
7	-1	+1	+1	4/15	4/15	4/15	-1	-1	+1	27
8	+1	+1	+1	4/15	4/15	4/15	+1	+1	+1	27
9	-1,215	0	0	23/30	-11/15	-11/15	0	0	0	19,3
10	+1,215	0	0	23/30	-11/15	-11/15	0	0	0	21,7
11	0	-1,215	0	-11/15	23/30	-11/15	0	0	0	27,4
12	0	+1,215	0	-11/15	23/30	-11/15	0	0	0	22,5
13	0	0	-1,215	-11/15	-11/15	23/30	0	0	0	24,0
14	0	0	+1,215	-11/15	-11/15	23/30	0	0	0	28,9
15	0	0	0	-11/15	-11/15	-11/15	0	0	0	22,0

Пользуясь формулой (27) и данными табл. 17, определим значения коэффициентов регрессии по результатам опытов (табл. 20):

$$b_0 = \frac{\sum_{u=1}^n y}{15} = 24,92;$$

$$b_1 = \frac{\sum_{u=1}^n x_{1u}y}{10,9544} = 0,9965;$$

$$b_2 = \frac{\sum_{u=1}^n x_{2u}y}{10,9544} = -2,0041;$$

$$b_3 = \frac{\sum_{u=1}^n x_{3u}y}{10,9544} = 2,0041;$$

$$b'_{11} = \frac{\sum_{u=1}^n x_{1u}^2y}{4,364} = -1,0547;$$

$$b'_{22} = \frac{\sum_{u=1}^n x_{2u}^2y}{4,364} = 2,0180;$$

$$b'_{33} = \frac{\sum_{u=1}^n x_{3u}^2y}{4,364} = 3,0324;$$

$$b_{12} = \frac{\sum_{u=1}^n x_{1u}x_{2u}y}{8} = -1,0000;$$

$$b_{13} = \frac{\sum_{u=1}^n x_{1u}x_{3u}y}{8} = 0,0000;$$

$$b_{23} = \frac{\sum_{u=1}^n x_{2u}x_{3u}y}{8} = 1,0000.$$

По этим данным уравнение может быть записано в виде

$$y = 24,92 + x_1 - 2x_2 + 2x_3 - x_1x_2 + x_2x_3 - 1,0587(x_1^2 - 11/15) + \\ + 2,0180(x_2^2 - 11/15) + 3,0324(x_3^2 - 11/15). \quad (35)$$

Для того, чтобы перейти к обычной форме записи, воспользуемся формулой (32):

$$b_0 = 24,92 - 11/15(-1,0587 + 2,018 + 3,0324) \approx 22.$$

Теперь можно записать уравнение (35) в виде

$$y = 22 + x_1 - 2x_2 + 2x_3 - x_1x_2 + x_2x_3 - 1,1x_1^2 + 2x_2^2 + 3x_3^2. \quad (36)$$

Проверим адекватность модели, соответствующей уравнению (36), для чего рассчитаем дисперсию адекватности по формуле (10):

$$\hat{y}_1 = 22 - 1 + 2 - 2 - 1 + 1 - 1,1 + 2 + 3 = 25,1;$$

$$E_1 = |y_1 - \hat{y}_1| = |25 - 25,1| = 0,1.$$

Аналогичные расчеты выполним по всем строкам табл. 20:

$$s_{\text{ад}}^2 = \frac{0,15}{5} = 0,03; \quad f_{\text{ад}} = n - \frac{(k+2)(k+1)}{2} = 15 - \frac{5 \cdot 4}{2} = 5.$$

Критерий Фишера

$$F = \frac{0,03}{0,39} \approx 0,1 < F_{(0,05; 5; 4)} = 6,256.$$

Таким образом, модель адекватна экспериментальным данным.

Ротатабельные планы второго порядка

В отличие от ортогональных ротатабельные планы дают возможность предсказывать значение функции отклика с дисперсией, одинаковой на равных расстояниях от центра плана. Эта особенность ротатабельных планов служит критерием для оценки их качества. Критерий этот может быть интерпретирован таким образом: обеспечить инвариантность плана при вращении системы координат относительно центра.

Конструирование ротатабельных планов так же, как и ортогональных второго порядка, заключается в прибавлении точек к ядру. Необходимо дополнительно выполнить определенное количество опытов в центре плана (на нулевом уровне) и на расстоянии d от центра. В этом случае звездное плечо d выбирается из условия инвариантности плана к вращению. Оно может быть вычислено по формуле $d \approx 2^{k/4}$ для ядра, содержащего полный факторный эксперимент, и по формуле $d \approx 2^{(k-1)/4}$ для ядра, содержащего полуреpliky.

При ротатабельном планировании очень важно правильно выбрать количество опытов на нулевом уровне. Данные, необходимые для построения центральных композиционных ротатабельных планов, приведены в табл. 21.

В табл. 22 приведен ротатабельный план второго порядка для двух факторов. Построение планов при $k \geq 3$ осуществляется аналогично.

По результатам опытов производится расчет коэффициентов регрессии. Обычно эта процедура выполняется на ЭВМ. В случае отсутствия соответствующих средств вычислительной техники пользуются формулами:

$$b_0 = \frac{A}{n} \left[2\lambda^2 (k+2) \sum_{u=1}^n y_u - 2\lambda c \sum_{i=1}^k \sum_{u=1}^n x_{iu}^2 y_u \right]; \quad (37)$$

Таблица 21

Данные для построения центральных композиционных
ротатбельных планов второго порядка

Число факторов k	Ядро плана	Число точек			Величина плеча a для звездных точек
		звездных n_d	на нулевом уровне n_0	общее n	
2	2^2	4	5	13	1,414
3	2^3	6	6	20	1,682
4	2^4	8	7	31	2,000
5	2^5	10	10	52	2,378
5	2^{5-1}	10	6	32	2,000
6	2^6	12	15	91	2,828
6	2^{6-1}	12	9	53	2,378
7	2^7	14	21	163	3,333
7	2^{7-1}	14	14	92	2,828

Таблица 22

Центральное композиционное ротатбельное
планирование второго порядка для $k = 2$

Опыт	x_0	x_1	x_2	x_1^2	x_2^2	$x_1 x_2$	y
Планирование типа 2^2	+1	-1	-1	+1	+1	-1	y_1
	+1	+1	-1	+1	+1	+1	y_2
	+1	-1	+1	+1	+1	+1	y_3
	+1	+1	+1	+1	+1	-1	y_4
Звездные точки	+1	-1,414	0	2	0	0	y_5
	+1	+1,414	0	2	0	0	y_6
	+1	0	-1,414	0	2	0	y_7
	+1	0	+1,414	0	2	0	y_8
Нулевые точки	+1	0	0	0	0	0	y_9
	+1	0	0	0	0	0	y_{10}
	+1	0	0	0	0	0	y_{11}
	+1	0	0	0	0	0	y_{12}
	+1	0	0	0	0	0	y_{13}

$$b_i = \frac{c}{n} \sum_{u=1}^n x_{iu} y_u; \quad (38)$$

$$b_{ij} = \frac{c^2}{n\lambda} \sum_{u=1}^n x_{iu} x_{ju} y_u; \quad (39)$$

$$b_{ii} = \frac{A}{n} \left\{ c^2 [(k+2)\lambda - k] \sum_{u=1}^n x_{iu}^2 y_u + \right. \\ \left. + c^2 (1 - \lambda) \sum_{i=1}^k \sum_{u=1}^n x_{iu}^2 y_u - 2\lambda c \sum_{u=1}^n y_u \right\}. \quad (40)$$

В этих формулах приняты следующие обозначения: $c = \frac{n}{\sum_{u=1}^n x_{iu}^2}$; $\lambda = \frac{n2^k}{\left(\sum_{u=1}^n x_{iu}\right)^2}$ — для плана, ядро которого составляет полный факторный эксперимент; $\lambda = \frac{n2^{k-1}}{\left(\sum_{u=1}^n x_{iu}\right)^2}$ — для плана, ядро которого составляет полуреплика от полного факторного эксперимента; $A = \frac{1}{2\lambda[(k+2)\lambda - k]}$.

Как видно из приведенных формул, влияние конструкции ядра плана на значение коэффициентов регрессии учитывается величиной λ . Если в формулах (37) — (40) вычислить все величины, зависящие от конструкции плана, то их можно записать в виде:

$$b_0 = \delta'_0 \sum_{u=1}^n y_u - \delta''_0 \sum_{u=1}^n \sum_{i=1}^k x_{iu}^2 y_u; \quad (41)$$

$$b_i = \delta_i \sum_{u=1}^n x_{iu} y_u; \quad (42)$$

$$b_{ij} = \delta_{ij} \sum_{u=1}^n x_{iu} x_{ju} y_u; \quad (43)$$

$$b_{ii} = \delta'_{ii} \sum_{u=1}^n x_{iu}^2 y_u + \delta''_{ii} \sum_{i=1}^k \sum_{u=1}^n x_{iu}^2 y_u - \delta'''_{ii} \sum_{u=1}^n y_u. \quad (44)$$

Если планы построены по данным табл. 21, то значения δ , входящие в формулы (41) — (44), можно брать из табл. 23. Приведенные в таблицах данные дают все для построения ротатбельных планов и сводят к минимуму расчеты, необходимые для получения коэффициентов регрессии.

Таблица 23

Данные для расчета коэффициентов регрессии при ротатбельном планировании второго порядка

Ядро плана	b_0		b_i	b_{ij}	b_{ii}		
	δ'_0	δ''_0	δ_i	δ_{ij}	δ'_{ii}	δ''_{ii}	δ'''_{ii}
2 ²	0,200 000	0,100 000	0,125 000	0,250 000	0,125 000	0,018 750	0,100 000
2 ³	0,166 338	0,056 791	0,073 224	0,125 000	0,062 500	0,006 889	0,056 791
2 ⁴	0,142 857	0,035 714	0,041 667	0,062 500	0,031 250	0,003 720	0,035 714
2 ⁵⁻¹	0,159 091	0,034 091	0,041 667	0,062 500	0,031 250	0,002 841	0,034 091
2 ⁶	0,099 982	0,019 392	0,023 088	0,031 346	0,015 666	0,001 523	0,019 392
2 ⁶⁻¹	0,110 749	0,018 738	0,023 087	0,031 250	0,015 625	0,001 217	0,018 738
2 ⁶	0,066 653	0,010 553	0,012 499	0,015 833	0,007 914	0,000 681	0,010 553
2 ⁷⁻¹	0,070 312	0,009 766	0,012 500	0,015 625	0,007 812 5	0,000 488	0,009 766
2 ⁷	0,047 611	0,006 428	0,006 656	0,008 089	0,004 044	0,000 418	0,006 428

Получив полиномиальную модель, необходимо провести статистические оценки. Процедура эта, уже описанная ранее, остается неизменной при экспериментировании по ротatableльным планам. Отличие состоит в том, что коэффициенты регрессии определяются с различными дисперсиями, для вычисления которых служат следующие формулы:

$$s_{b_0}^2 = \frac{2A\lambda^2(k+2)}{n} s_y^2; \quad (45)$$

$$s_{b_l}^2 = \frac{c}{n} s_y^2; \quad (46)$$

$$s_{b_{ii}}^2 = \frac{A[(k+2)\lambda - (k-1)]c^2}{n} s_y^2; \quad (47)$$

$$s_{b_{ij}}^2 = \frac{c^2}{n\lambda} s_y^2. \quad (48)$$

Формулы (45) — (48) можно переписать в виде:

$$s_{b_0}^2 = \gamma_0 s_y^2; \quad s_{b_{ii}}^2 = \gamma_{ii} s_y^2;$$

$$s_{b_l}^2 = \gamma_l s_y^2; \quad s_{b_{ij}}^2 = \gamma_{ij} s_y^2.$$

Соответствующие значения γ сведены в табл. 24.

Таблица 24

Данные для определения дисперсий коэффициентов регрессии при ротatableльном планировании второго порядка

Ядро плана	γ_0	γ_l	γ_{ij}	γ_{ii}
2 ³	0,2000	0,1250	0,2500	0,1250
2 ⁴	0,1663	0,0732	0,1250	0,0625
2 ⁵	0,1429	0,0417	0,0625	0,0312
2 ⁵⁻¹	0,1591	0,0417	0,0625	0,0312
2 ⁶	0,1000	0,0231	0,03125	0,0157
2 ⁶⁻¹	0,1107	0,0231	0,03125	0,0156
2 ⁷	0,0667	0,0125	0,0156	0,0079
2 ⁷⁻¹	0,0703	0,0125	0,0156	0,0078
2 ⁷	0,0476	0,0067	0,0081	0,0040

Ошибка опыта при ротatableльном планировании может определяться по экспериментам в центре плана:

$$s_0^2 = \frac{\sum_{u=1}^{n_0} (y_{0u} - \bar{y}_0)^2}{n_0 - 1}. \quad (49)$$

Числитель выражения (49) представляет собой остаточную сумму квадратов в центре плана:

$$S_0 = \sum_{u=1}^{n_0} (y_{0u} - \bar{y}_0)^2. \quad (50)$$

Из выражения (49) очевидно, что с этой суммой связано число степеней свободы $f_0 = n_0 - 1$. Общая остаточная сумма квадратов плана

$$S_{\text{общ}} = \sum_{u=1}^n (y_u - y_{u \text{ расч}})^2 \quad (51)$$

с числом степеней свободы

$$f_{\text{общ}} = n - \frac{(k+2)(k+1)}{2}.$$

Дисперсия адекватности модели характеризуется суммой

$$S_{\text{ад}} = S_{\text{общ}} - S_0 \quad (52)$$

с числом степеней свободы

$$f_{\text{ад}} = n - \frac{(k+2)(k+1)}{2} - (n_0 - 1). \quad (53)$$

Дисперсия адекватности

$$s_{\text{ад}}^2 = \frac{S_{\text{ад}}}{f_{\text{ад}}}.$$

Адекватность модели проверяется по критерию Фишера:

$$F = \frac{s_{\text{ад}}^2}{s_0^2}. \quad (54)$$

Условие адекватности: рассчитанное значение F -критерия меньше соответствующего табличного при заданном уровне значимости.

Итак, показаны методы построения ротатабельных планов, обработки результатов эксперимента и порядок проведения статистических оценок. Вернемся к рассматриваемому примеру, когда удалось получить адекватную модель [уравнение (36)] с помощью ортогонального плана второго порядка. Опишем область оптимума с помощью ротатабельного плана второго порядка. Для построения плана воспользуемся данными табл. 21.

Условия и результаты опытов в заданной табл. 25 области факторного пространства приведены в табл. 26. План (табл. 26) содержит ядро в виде полного факторного эксперимента типа 2^3 , шесть звездных точек, расположенных на расстоянии $\pm d$ от центра, и шесть точек, расположенных в центре плана.

Если сравнить приведенные в табл. 26 результаты первых восьми опытов с аналогичными результатами, приведенными в табл. 20, то можно увидеть, что они не изменились. В обоих случаях реализован полный факторный эксперимент типа 2^3 . Результаты 9—14 опытов при ротатабельном планировании отличаются от соответствующих результатов, приведенных в табл. 20, так как изменилась величина звездного плеча. В случае ротатабельного планирования

Таблица 25

Кодирование факторов при исследовании области оптимума с помощью ротатбельного плана второго порядка

Интервал варьирования и уровень факторов	x_1	x_2	x_3
Нулевой уровень $x_i = 0$	340	3	15
Интервал варьирования δ_i	10	0,5	1
Нижний уровень $x_i = -1$	330	2,5	14
Верхний уровень $x_i = +1$	350	3,5	16
Звездные точки: $x_i = -1,682$	323,2	2,16	13,32
$x_i = +1,682$	356,8	3,84	16,68

Таблица 26

Условия и результаты опытов

x_1	x_2	x_3	$x_1 x_2$	$x_1 x_3$	$x_2 x_3$	x_1^2	x_2^2	x_3^2	y
—	—	—	+	+	+	+	+	+	25
+	—	—	—	—	—	+	+	+	29
—	+	—	—	+	—	+	+	+	21
+	+	—	+	—	—	+	+	+	21
—	—	+	+	—	—	+	+	+	27
+	—	+	—	+	—	+	+	+	31
—	+	+	—	—	+	+	+	+	27
+	+	+	+	+	+	+	+	+	27
—1,682	0	0	0	0	0	2,828	0	0	17,5
+1,682	0	0	0	0	0	2,828	0	0	20,9
0	—1,682	0	0	0	0	0	2,828	0	31,0
0	+1,682	0	0	0	0	0	2,828	0	24,3
0	0	—1,682	0	0	0	0	0	2,828	27,1
0	0	+1,682	0	0	0	0	0	2,828	33,8
0	0	0	0	0	0	0	0	0	22,5
0	0	0	0	0	0	0	0	0	21,5
0	0	0	0	0	0	0	0	0	22,0
0	0	0	0	0	0	0	0	0	22,5
0	0	0	0	0	0	0	0	0	22,0
0	0	0	0	0	0	0	0	0	21,5

при сохранении неизменными интервалов варьирования расширилась область исследования.

Для расчета коэффициентов регрессии по результатам опытов (табл. 26) воспользуемся формулами (41) — (44). При x_i^2

$$b_{ii} = \delta'_{ii} \sum_{u=1}^n x_{iu}^2 y_u + \delta''_{ii} \sum_{i=1}^k \sum_{u=1}^n x_{iu}^2 y_u - \delta'''_{ii} \sum_{u=1}^n y_u.$$

Из табл. 23 выбираем значения $\delta_{ii} = 0,0625$, $\delta_{ii}'' = 0,006889$ и $\delta_{ii}''' = 0,056791$. По результатам опытов рассчитываем суммы

$$\begin{aligned}\sum_{u=1}^n x_{1u}^2 y_u &= 25 + 29 + 21 + 21 + 27 + 31 + 27 + 27 + \\ &+ 2,828(17,5 + 20,9) = 208 + 108,6 = 316,6; \\ \sum_{u=1}^n x_{2u}^2 y_u &= 208 + 2,828(31 + 24,3) = 364,388; \\ \sum_{u=1}^n x_{3u}^2 y_u &= 208 + 2,828(27,1 + 33,8) = 380,225; \\ \sum_{u=1}^n y_u &= 208 + 17,5 + 20,9 + 31 + 24,3 + 27,1 + 33,8 + \\ &+ 22,5 + 21,5 + 22 + 22,5 + 22 + 21,5 = 494,6; \\ b_{11} &= 0,0625 \cdot 316,6 + 0,006889(316,6 + 364,388 + 380,225) - \\ &- 0,056791 \cdot 494,6 = 19,7875 + 7,3107 - 28,0888 \approx -1; \\ b_{22} &= 0,0625 \cdot 364,388 + 7,3107 - 28,0888 \approx 2; \\ b_{33} &= 0,0625 \cdot 380,225 + 7,3107 - 28,0888 \approx 3.\end{aligned}$$

Аналогично рассчитываем остальные коэффициенты регрессии.

Уравнение регрессии имеет вид

$$y = 22 + x_1 - 2x_2 + 2x_3 - x_1x_2 + x_2x_3 - x_1^2 + 2x_2^2 + 3x_3^2. \quad (55)$$

Сравнивая уравнение (55) с (36), можно заметить, что величины коэффициентов практически не изменились. Это говорит о том, что с точки зрения возможности построения модели второй степени ротатабельный и ортогональный планы равнозначны. Уравнение (55) получено по результатам опытов, поэтому прежде, чем делать выводы, необходимо выполнить ряд статистических оценок.

В случаях, когда квадратное уравнение неадекватно, необходимо повышать степень полинома с помощью ортогональных полиномов Чебышева [22] либо с помощью плана третьего порядка [14]. В этой книге названные методы не рассматриваются.

Анализ нелинейной модели, каноническое преобразование

Для определения оптимальных условий протекания исследуемого процесса полученное уравнение второй степени

$$y = b_0 + \sum_{i=1}^k b_i x_i + \sum_{i < j} b_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^k b_{ii} x_i^2 \quad (56)$$

необходимо исследовать на экстремум. Для этого достаточно привести его к каноническому виду:

$$y - y_c = \sum_{i=1}^r \theta_i z_i^2 + \sum_{j=r+1}^k c_j z_j. \quad (57)$$

Каноническое преобразование содержит две процедуры: перенос начала координат в экстремальную точку C ; замену старых координатных осей x_i новыми z_i , повернутыми на некоторый угол относительно старых осей. Проведем каноническое преобразование уравнения (56) при $k=2$. В этом случае уравнение (56) принимает вид

$$y = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_{12}x_1x_2 + b_{11}x_1^2 + b_{22}x_2^2. \quad (58)$$

Условие экстремума

$$\frac{\partial y}{\partial x_1} = \frac{\partial y}{\partial x_2} = 0.$$

Перенос начала координат. Дифференцируя уравнение (58) по x_1 и x_2 , получаем систему линейных уравнений

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial y}{\partial x_1} &= 0 = b_1 + b_{12}x_2 + 2b_{11}x_1; \\ \frac{\partial y}{\partial x_2} &= 0 = b_2 + b_{12}x_1 + 2b_{22}x_2, \end{aligned} \right\}$$

решение которой дает координаты экстремальной точки — x_{1c}, x_{2c} . При подстановке этих значений в уравнение (58) получаем уравнение

$$y - y_c = b_{12}(x_1 - x_{1c})(x_2 - x_{2c}) + b_{11}(x_1 - x_{1c})^2 + b_{22}(x_2 - x_{2c})^2, \quad (59)$$

где $y_c = b_0 + b_1x_{1c} + b_2x_{2c} + b_{12}x_{1c}x_{2c} + b_{11}x_{1c}^2 + b_{22}x_{2c}^2$ — значение y в экстремальной точке c .

Замена старых координатных осей новыми. При $k=2$ каноническое уравнение (57) имеет вид

$$y - y_c = \theta_1 z_1^2 + \theta_2 z_2^2, \quad (60)$$

где θ_1, θ_2 — корни характеристического уравнения

$$\theta^2 + \alpha\theta + \beta = 0; \quad (61)$$

$$z_1 = l_1(x_1 - x_{1c}) + m_1(x_2 - x_{2c}); \quad z_2 = l_2(x_1 - x_{1c}) + m_2(x_2 - x_{2c}); \quad (62)$$

l_i, m_i — косинусы угла поворота новых координатных осей относительно старых.

Таким образом, замена координатных осей сводится к решению характеристического уравнения (61) и определению направляющих косинусов l_i, m_i . Параметры α и β определяются через коэффициенты уравнения (58):

$$\alpha = -(b_{11} + b_{22}); \quad \beta = b_{11}b_{22} - 0,25b_{12}^2, \quad (63)$$

а направляющие косинусы — из выражений

$$\frac{m_i}{l_i} = \frac{2(\theta_i - b_{11})}{b_{12}}; \quad l_i = \frac{1}{\sqrt{1 + (m_i/l_i)^2}}. \quad (64)$$

Старые координаты x_1, x_2 связаны с новыми z_1, z_2 :

$$x_1 = l_1 z_1 + l_2 z_2 + x_{1c}; \quad x_2 = m_1 z_1 + m_2 z_2 + x_{2c}. \quad (65)$$

Каноническое преобразование уравнения (19) сводится к следующему. Дифференцируя уравнение (19) по x_1 и x_2 , получаем

$$\begin{aligned} \frac{\partial y}{\partial x_1} &= -5 + x_2 = 0, \text{ откуда } x_{2c} = 5; \\ \frac{\partial y}{\partial x_2} &= -2 + x_1 = 0, \text{ откуда } x_{1c} = 2. \end{aligned}$$

При подстановке этих значений в уравнение (19) получаем

$$y_c = 20 - 5 \cdot 2 - 2 \cdot 5 + 2 \cdot 5 = 10.$$

Из уравнений (63) $\alpha = 0$, $\beta = 0,25 \cdot 1^2 = -0,25$. Подставив эти значения в уравнение (61), получим $\theta^2 - 0,25 = 0$, откуда $\theta_1 = 0,5$ и $\theta_2 = -0,5$.

Направляющие косинусы определяем из выражений (64)

$$\begin{aligned} \frac{m_1}{l_1} &= \frac{2 \cdot 0,5}{1} = 1; \quad l_1 = m_1 = \frac{1}{\sqrt{1+1^2}} = 0,7071; \\ \frac{m_2}{l_2} &= \frac{2(-0,5)}{1} = -1; \quad l_2 = 0,7071; \quad m_2 = -0,7071. \end{aligned}$$

$$\text{Окончательно } y - 10 = 0,5z_1^2 - 0,5z_2^2, \quad (66)$$

где $z_1 = 0,7071(x_1 - 2) + 0,7071(x_2 - 5)$; $z_2 = 0,7071(x_1 - 2) - 0,7071(x_2 - 5)$. При этом $x_1 = 0,7071z_1 + 0,7071z_2 + 2$; $x_2 = 0,7071z_1 - 0,7071z_2 + 5$.

Описанным выше способом возможен переход к каноническому уравнению независимо от того, сколько факторов действуют в исследованной системе. Так, при $k = 3$ каноническое уравнение имеет вид

$$y - y_c = \theta_1 z_1^2 + \theta_2 z_2^2 + \theta_3 z_3^2, \quad (67)$$

где $\theta_1, \theta_2, \theta_3$ — корни характеристического уравнения

$$\theta^3 + \alpha\theta^2 + \beta\theta + \gamma = 0. \quad (68)$$

$$\text{Здесь } \alpha = -(b_{11} + b_{22} + b_{33}); \quad (69)$$

$$\beta = b_{11}b_{22} + b_{11}b_{33} + b_{22}b_{33} - 0,25(b_{12}^2 + b_{13}^2 + b_{23}^2); \quad (70)$$

$$\gamma = 0,25(b_{11}b_{23}^2 + b_{22}b_{13}^2 + b_{33}b_{12}^2 - b_{12}b_{13}b_{23}) - b_{11}b_{22}b_{33}; \quad (71)$$

$$\left. \begin{aligned} z_1 &= l_1(x_1 - x_{1c}) + m_1(x_2 - x_{2c}) + n_1(x_3 - x_{3c}); \\ z_2 &= l_2(x_1 - x_{1c}) + m_2(x_2 - x_{2c}) + n_2(x_3 - x_{3c}); \\ z_3 &= l_3(x_1 - x_{1c}) + m_3(x_2 - x_{2c}) + n_3(x_3 - x_{3c}). \end{aligned} \right\} \quad (72)$$

Направляющие косинусы l_i , m_i , n_i определяются при решении системы уравнений

$$\left. \begin{aligned} \frac{m_i}{l_i} &= \frac{b_{23}(b_{11} - \theta_i) - 0,5b_{12}b_{13}}{b_{13}(b_{22} - \theta_i) - 0,5b_{12}b_{23}}; \\ \frac{n_i}{l_i} &= \frac{0,5b_{12}^2 - 2(b_{11} - \theta_i)(b_{22} - \theta_i)}{b_{13}(b_{22} - \theta_i) - 0,5b_{12}b_{23}}; \\ l_i &= \frac{1}{\sqrt{1 + (m_i/l_i)^2 + (n_i/l_i)^2}}. \end{aligned} \right\} \quad (73)$$

Старые координаты x_1 , x_2 , x_3 выражаются через новые:

$$\left. \begin{aligned} x_1 &= l_1 z_1 + l_2 z_2 + l_3 z_3 + x_{1c}; \\ x_2 &= m_1 z_1 + m_2 z_2 + m_3 z_3 + x_{2c}; \\ x_3 &= n_1 z_1 + n_2 z_2 + n_3 z_3 + x_{3c}. \end{aligned} \right\} \quad (74)$$

Для того, чтобы привести к каноническому виду уравнение (55), дифференцируем его по x_1 , x_2 и x_3 и получаем систему линейных уравнений

$$\begin{aligned} \frac{\partial g}{\partial x_1} &= 1 - 2x_1 - x_2 = 0; \\ \frac{\partial g}{\partial x_2} &= -2 - x_1 + 4x_2 + x_3 = 0; \\ \frac{\partial g}{\partial x_3} &= 2 + x_2 + 6x_3 = 0, \end{aligned}$$

решение которой дает координаты экстремальной точки: $x_{1c} = 0,1731$, $x_{2c} = 0,6538$, $x_{3c} = -0,4423$. Выход в этой точке составляет

$$y_c = 22 + 0,1731 - 2 \cdot 0,6538 - 2 \cdot 0,4423 - 0,1731 \cdot 0,6538 - 0,6538 \cdot 0,4423 - 0,1731^2 + 2 \cdot 0,6538^2 + 3 \cdot 0,4423^2 = 21.$$

Подставляя в уравнения (69) — (71) значения коэффициентов регрессии из выражения (55), получаем $\alpha = -4$; $\beta = 0,5$; $\gamma = 7$ и характеристическое уравнение $\theta^3 - 4\theta^2 + 0,5\theta + 7 = 0$, решение которого дает: $\theta_1 = 3,5983$, $\theta_2 = 1,6100$, $\theta_3 = -1,2083$.

Подставляя в уравнения (73) значения коэффициентов регрессии из выражения (55) и полученные значения θ_i , находим

$$\begin{aligned} \frac{m_1}{l_1} &= \frac{1(-1 - 3,5983) + 0,5 \cdot 1 \cdot 0}{0(2 - 3,5983) + 0,5 \cdot 1 \cdot 1} = -9,1966; \\ \frac{m_2}{l_2} &= -5,24; \quad \frac{m_3}{l_3} = 0,4166; \\ \frac{n_1}{l_1} &= \frac{0,5 \cdot 1 - 2(-1 - 3,5983)(2 - 3,5983)}{0(2 - 3,5983) + 0,5 \cdot 1 \cdot 1} = 29,8978; \\ \frac{n_2}{l_2} &= 5,0716; \quad \frac{n_3}{l_3} = -1,6732; \end{aligned}$$

$$l_1 = \frac{1}{\sqrt{1 + 9,1966^2 + 29,8972^2}} = 0,0320;$$

$$l_2 = 0,1359; l_3 = 0,5017;$$

$$m_1 = -0,2939; n_1 = 0,9553;$$

$$m_2 = -0,7119; n_2 = 0,6890;$$

$$m_3 = 0,2090; n_3 = -0,8394.$$

Наконец, подставляя значения θ_i и y_c в уравнение (67), а значения x_{ic} , l_i , m_i , n_i в систему уравнений (73), получаем

$$y - 21 = 3,5983z_1^2 + 1,6100z_2^2 - 1,2083z_3^2, \quad (75)$$

где $z_1 = 0,0320(x_1 - 0,1731) - 0,2939(x_2 - 0,6538) + 0,9553(x_3 + 0,4423)$; $z_2 = 0,1359(x_1 - 0,1731) - 0,7119(x_2 - 0,6538) + 0,6890 \times (x_3 + 0,4423)$; $z_3 = 0,5017(x_1 - 0,1731) + 0,2090(x_2 - 0,6538) - 0,8394(x_3 + 0,4423)$.

В случае четырех и более факторов переход к каноническому виду становится очень громоздким и трудоемким, поэтому следует пользоваться ЭВМ. При работе на ЭВМ удобно использовать матричную запись.

Анализ нелинейной модели. Изучение поверхности отклика

По каноническому виду уравнения второй степени можно классифицировать экстремальную точку s и поверхность отклика. Рассмотрим задачу с двумя факторами. Придавая величине y в уравнении (60) некоторые фиксированные значения, можно получить контурные кривые равного выхода. На рис. 10 приведены четыре возможных типа контурных кривых.

Гиперболы. Коэффициенты θ_1 и θ_2 имеют разные знаки. Центр фигуры называется минимаксом, или седлом. Если коэффициент ψ_1 положителен, то выход $y - y_c$ увеличивается при движении по оси z_1 в обе стороны от центра фигуры, а по оси z_2 — уменьшается. Поверхность отклика представляет собой гиперболический параболоид (рис. 10, а).

Исследователь, стремящийся к максимуму выхода, должен производить изучение поверхности отклика в направлении оси z_1 . Здесь, как и в методе крутого восхождения, намечаются мысленные опыты и часть из них реализуется. Таким образом, изучение поверхности отклика при удалении за границы области, где производились эксперименты, по сути сводится к задаче отыскания условного оптимума при ограничениях, накладываемых различными технологическими условиями. При этом вполне возможна такая ситуация, при которой исследователь, не достигнув ограничений по x_1 и x_2 , удалится от границ области экспериментирования настолько, что уравнение (60) «перестанет работать» (выход начнет падать). Поэтому

процедура изучения поверхности типа минимакса полностью аналогична движению по методу крутого восхождения в линейной части поверхности отклика.

Поверхность отклика, представляемая неполным квадратным уравнением, как видно из уравнений (61) и (63), всегда является гиперболическим параболоидом. Поэтому, если результаты ПФЭ адекватно описываются указанным уравнением, то изучение этой поверхности следует считать вторым этапом исследования (см. рис. 2, цель Б).

Эллипсы (рис. 10, б). Коэффициенты θ_1 и θ_2 имеют одинаковые знаки. Центр фигуры (экстремальная точка c) является максимумом, если коэффициенты θ_1 и θ_2 отрицательны, и минимумом,

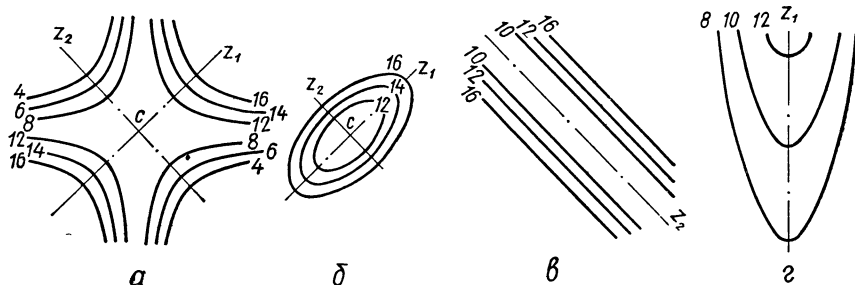


Рис. 10. Контурные кривые поверхности отклика, описываемой уравнением второго порядка при $k=2$:

а — гиперболический параболоид; б — эллиптический параболоид; в — стационарное возвышение; г — гребень.

если они положительны. Поверхность отклика представляет собой эллиптический параболоид (рис. 10, б).

Если центр фигуры находится вблизи или в области экспериментирования, то изучение поверхности отклика заканчивается каноническим преобразованием. Исследователю остается только поставить эксперименты в центре фигуры и убедиться, что значение, предсказанное моделью, достаточно хорошо совпадает с результатами эксперимента (см. рис. 2, цель Б, этап 4).

Параллельные прямые. Один из коэффициентов, например θ_2 , равен нулю; y_c — выход в любой точке на оси z_1 . Под определение центра фигуры здесь подходит любая точка на оси z_1 . Поверхность отклика представляет собой стационарное возвышение (рис. 10, в).

Параболы. Возможны случаи, когда коэффициенты уравнения (58), например $b_{12} = b_{22}$, равны нулю. Тогда каноническое уравнение принимает вид

$$y = y_c = \theta_1 z_1^2 + b_2 z_2.$$

Центр фигуры лежит на оси z_1 , но отнесен на бесконечность по оси z_2 . Локально поверхность отклика представляет собой возрастающее возвышение, — гребень, крутизна наклона которого рав-

на b_2 (рис. 10, е). Изучение этой поверхности аналогично случаю изучения поверхности отклика, представляющей собой гиперболический параболоид. Наконец, возможен случай (рис. 10, б), когда центр фигуры находится далеко от центра эксперимента. При этом может оказаться, что $y_c > 100\%$. Изучение поверхности отклика в этом случае аналогично предыдущему случаю.

При числе факторов $k > 2$ изучение поверхности отклика производится исходя из таких же соображений. Однако в отличие от поверхностей при $k = 2$, которые можно изучать графически, поверхности при $k > 2$, в общем случае, изучаются аналитически, используя уравнения типа (67), (72) и (74). В качестве примера рассмотрим задачу, в которой параметром оптимизации является выход продукта при дистилляции сырья. Поверхность отклика представлена уравнением (19), где $x_1 = (t_k - 350)/50$; $x_2 = (v - 6)/2$.

Анализ канонического уравнения (66) показывает, что поверхность отклика представляет собой гиперболический параболоид с центром фигуры в точке $x_{1c} = 2$; $x_{2c} = 5$. Подставляя в уравнение (66) фиксированные значения y (12 ... 42), получим контурные кривые равного выхода (рис. 11).

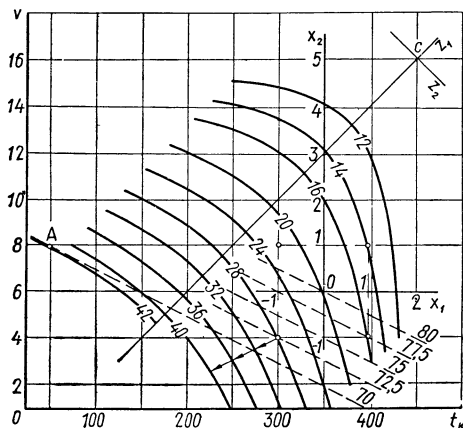


Рис. 11. Графическое изучение поверхности отклика.

Естественно, для максимизации выхода продукта необходимо удаляться от области экспериментирования в сторону z_1 , намечая мысленные опыты (на графике показаны стрелками). Выход максимален, когда скорость нагрева v и конечная температура дистилляции t_k равны 0, и равен 100% (не продукт, а сырье). Поэтому необходимы технологические ограничения, например, по качеству продукта.

Допустим, что в эксперименте (см. табл. 11) еще измерялось и качество продукта y_2 , причем зависимость качества адекватно описывается линейным уравнением

$$y_2 = 80 + 2,5x_1 + 5x_2. \quad (76)$$

Тогда задача переформулируется следующим образом. Необходимо найти условный максимум выхода продукта при ограничении по его качеству, например, не ниже 70% ключевого компонента.

Для решения этой задачи подставляем в уравнение (76) фиксированные значения y_2 (80 ... 70%) и получаем контурные линии

равного качества (рис. 11, штриховые линии). Из рис. 11 видно, что условный максимум находится в точке $A(-6; 1)$ касания линии равного качества $y_2 = 70\%$ с кривой равного выхода $y = 42\%$. Исследователю остается только поставить эксперимент в этой точке и убедиться, что предсказанное моделью [уравнениями (19) и (76)] значение выхода продукта достаточно хорошо совпадает с результатами эксперимента.

Отыскание условного экстремума

При нескольких параметрах оптимизации исследователю часто приходится отыскивать условный экстремум одной из функций отклика $y_1 = f_1(x_1, x_2, \dots, x_k)$ при ограничениях, накладываемых другой функцией — $y_2 = f_2(x_1, x_2, \dots, x_k)$.

В случае двух факторов ($k = 2$) эта задача, как было показано выше, решается графически. При $k \geq 3$ задачу приходится решать с помощью ЭВМ, пользуясь методом неопределенных множителей Лагранжа.

Метод неопределенных множителей Лагранжа сводится к решению системы уравнений:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial f_1}{\partial x_1} + \lambda \frac{\partial f_2}{\partial x_1} &= 0; \\ \frac{\partial f_1}{\partial x_2} + \lambda \frac{\partial f_2}{\partial x_2} &= 0; \\ \frac{\partial f_1}{\partial x_3} + \lambda \frac{\partial f_2}{\partial x_3} &= 0; \\ &\vdots \\ f_2(x_1, x_2, \dots, x_k) &= y_2 \end{aligned} \right\} \quad (77)$$

относительно переменных $x_1, x_2, x_3, \dots, x_k$ и λ при некотором фиксированном значении y_2 .

Рассмотрим числовой пример составления системы уравнений (77). Допустим, что первая функция отклика (выход продукта) адекватно представляется уравнением (55), а вторая (качество продукта) — уравнением

$$y_2 = 80 + 2,5x_1 + 5x_2 + 3x_3 - x_1x_3 + x_2x_3.$$

Необходимо найти условный экстремум выхода продукта при фиксированном качестве $y_2 = 70\%$.

Метод неопределенных множителей Лагранжа приводит к системе уравнений:

$$\left. \begin{aligned} 1 - x_2 - 2x_1 + \lambda(2,5 - x_3) &= 0; \\ -2 - x_1 + x_3 + 4x_2 + \lambda(5 + x_3) &= 0; \\ 2 + x_2 + 6x_3 + \lambda(3 - x_1 + x_2) &= 0; \\ 80 + 2,5x_1 + 5x_2 + 3x_3 - x_1x_3 + x_2x_3 &= 70. \end{aligned} \right\} \quad (78)$$

Решение систем нелинейных уравнений типа (78) выходит за рамки настоящей работы.

Принцип метода

Решение задачи выбора оптимального состава многокомпонентной смеси отличается от выбора оптимальных условий исследуемого процесса тем, что факторы в первом случае связаны соотношением

$$\sum_{i=1}^k x_i = 1, \quad (79)$$

которое делает невозможным использование ранее рассмотренных методов планирования эксперимента.

Так как сумма долей всех компонентов, составляющих смесь, равна единице, то факторное пространство может быть представлено правильным симплексом, для трех компонентов — правильным треугольником, для четырех — правильным тетраэдром и т. д. Свойства состава исследуются в наперед заданных точках симплекса, которые образуют так называемую симплексную решетку. Каждой решетке соответствует вполне определенная полиномиальная модель, коэффициенты в которой определяются по специальным формулам. В настоящее время разработана методика описания диаграмм состав — свойство полиномами до четвертой степени [25, 27].

Построение симплексной решетки

При использовании симплексно-решетчатого планирования используется идея шагового поиска так же, как это делалось при других методах планирования эксперимента. Повышение степени полинома на каждом шаге осуществляется после анализа адекватности модели. Чем выше степень полинома, тем больше опытов необходимо поставить для его построения. Необходимое число опытов можно рассчитать по формуле

$$n = \frac{(m + q - 1)!}{m! (q - 1)!}, \quad (80)$$

где m — степень; q — число компонентов в смеси.

Для определения необходимого числа опытов можно пользоваться данными табл. 27.

Расположение опытов в факторном пространстве можно легко проследить на примере трехкомпонентной смеси. Известно, что состав трехкомпонентной смеси может быть представлен на треугольной диаграмме. При этом каждой точке диаграммы соответствует один, вполне определенный состав, а каждому составу соответствует одна точка на диаграмме. В каждой вершине треугольной диаграммы содержание одного из компонентов составляет 100%. На

противоположной этой вершине стороне содержание этого компонента равно нулю.

Для построения линейной модели необходимо поставить три опыта (рис. 12, а). Четвертый опыт в центре ставится для проверки

Таблица 27

Минимальное количество опытов для построения различных моделей

q	Модель			
	квадратная	специальная кубическая	кубическая	четвертой степени
3	6	7	10	15
4	10	14	20	35
5	15	25	35	70
6	21	41	56	126
7	28	63	84	210
8	36	92	120	330
9	55	175	220	715

Таблица 28

План эксперимента для построения линейной модели при трехкомпонентной смеси

Опыт	Содержание компонентов			Отклик
	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	1/3	1/3	1/3	y_{123}

Таблица 29

План эксперимента для построения квадратной модели при трехкомпонентной смеси

Опыт	Содержание компонентов			Отклик
	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	1/2	1/2	0	y_{12}
5	1/2	0	1/2	y_{13}
6	0	1/2	1/2	y_{23}
7	1/3	1/3	1/3	y_{123}

адекватности полученной модели. Цифры у точек соответствуют подстрочным индексам откликов. Количество цифр в индексе означает доли компонентов в смеси. Число повторений каждой цифры равно количеству долей соответствующего компонента. При такой индексации план эксперимента для линейной модели при трех компонентах может быть задан табл. 28.

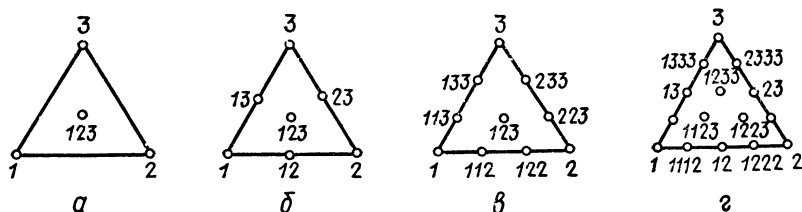


Рис. 12. Расположение опытов для разных моделей при трех компонентах: а — линейная модель; б — квадратная и специальная кубическая; в — кубическая; г — четвертой степени.

Для построения модели второй степени ставится шесть опытов (рис. 12, б). План этого эксперимента приведен в табл. 29. Опыт в центре плана со смесью, содержащей по 1/3 каждого компонента, используется для проверки адекватности модели. Табл. 29 отличается от табл. 28 тем, что в ней добавлены опыты с бинарными смесями, в которых доли компонентов равны по 1/2, т. е. по 50%. Таким образом, для перехода от линейной модели к квадратной необходи-

мо дополнить план тремя опытами с бинарными смесями с равным содержанием в них каждого компонента.

Для построения модели четвертой степени к семи опытам следует добавить еще шесть бинарных смесей, состоящих из $1/4$ одного компонента и $3/4$ другого, и три опыта со смесями, состоящими из $1/2$ одного компонента и по $1/4$ двух других (рис. 12, а).

На рис. 12, в показано распределение точек симплексной решетки для построения модели третьей степени. Всего в плане десять опытов: три с чистыми компонентами, один в центре с содержанием по $1/3$ каждого компонента и шесть опытов с бинарными смесями, содержащими $1/3$ одного компонента и $2/3$ другого. Количество различных смесей в плане в зависимости от степени модели и числа компонентов приведено в табл. 30.

Таблица 30

Структура симплексно-решетчатых планов

Модель	Узлы решетки (смеси)	Количество опытов при числе компонентов в смеси				
		3	4	5	6	7
Квадратная	i	3	4	5	6	7
	ij	3	6	10	15	21
Специальная кубическая	i	3	4	5	6	7
	ij	3	6	10	15	21
	ijl	1	4	10	20	35
Кубическая	i	3	4	5	6	7
	ij	6	12	20	30	42
	ijl	1	4	10	20	35
Четвертой степени	i	3	4	5	6	7
	ij	3	6	10	15	21
	$iii j$	6	12	20	30	42
	$ijlm$	Нет	1	5	15	35
	ijl	3	12	30	60	105

Выбор степени модели осуществляется в соответствии с принципом шагового поиска, т. е. так же, как и при выборе степени полинома при ортогональном планировании. На каждом шаге проверяется адекватность полученной модели. Если оказывается, например, что квадратная модель неадекватна, то осуществляется переход к модели более высокой степени.

Полиномиальное представление откликов

В симплексно-решетчатом планировании каждому плану соответствует вполне определенная полиномиальная модель. Общий вид модели и формулы для расчета коэффициентов при смеси из q компонентов следующие.

Линейная модель:

$$y = \sum_{1 \leq i \leq q} b_i x_i, \quad (81)$$

где $b_i = y_i$.

Квадратная модель:

$$y = \sum_{1 \leq i \leq q} b_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq q} b_{ij} x_i x_j, \quad (82)$$

где $b_i = y_i$; $b_{ij} = 4y_{ij} - 2y_i - 2y_j$.

Специальная кубическая модель:

$$y = \sum_{1 \leq i \leq q} b_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq q} b_{ij} x_i x_j + \sum_{1 \leq i < j < k \leq q} b_{ijk} x_i x_j x_k, \quad (83)$$

где $b_i = y_i$; $b_{ij} = 4y_{ij} - 2y_i - 2y_j$; $b_{ijk} = 27y_{ijk} - 12(y_{ij} + y_{ik} + y_{jk}) + 3(y_i + y_j + y_k)$.

Кубическая модель:

$$y = \sum_{1 \leq i \leq q} b_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq q} b_{ij} x_i x_j + \sum_{1 \leq i < j < k \leq q} \gamma_{ij} x_i x_j \otimes (x_i - x_j) + \sum_{1 \leq i < j < k \leq q} b_{ijk} x_i x_j x_k, \quad (84)$$

где $b_i = y_i$; $b_{ij} = 9/4(y_{ii} + y_{jj} - y_i - y_j)$; $\gamma_{ij} = 9/4(3y_{ii} - 3y_{jj} - y_i - y_j)$; $b_{ijk} = 27y_{ijk} - 27/4(y_{ii} + y_{jj} + y_{kk} + y_{jjk} + y_{iik} + y_{jkk}) + 9/2(y_i + y_j + y_k)$.

Модель четвертой степени:

$$y = \sum_{1 \leq i \leq q} b_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq q} b_{ij} x_i x_j + \sum_{1 \leq i < j < k \leq q} \gamma_{ij} x_i x_j \otimes (x_i - x_j) + \sum_{1 \leq i < j < k \leq q} \delta_{ij} x_i x_j (x_i - x_j)^2 + \sum_{1 \leq i < j < k \leq q} b_{iijk} x_i x_j x_k^2 + \sum_{1 \leq i < j < k \leq q} b_{ijjk} x_i x_j^2 x_k + \sum_{1 \leq i < j < k \leq q} b_{ijkk} x_i x_j x_k^2 + \sum_{1 \leq i < j < k \leq l \leq q} b_{ijkl} x_i x_j x_k x_l, \quad (85)$$

где $b_i = y_i$; $b_{ij} = 4y_{ij} - 2y_i - 2y_j$; $\gamma_{ij} = \frac{8}{3}(-y_i + 2y_{iij} - 2y_{ijj} + y_j)$; $\delta_{ij} = \frac{8}{3}(-y_i + 4y_{iij} - 6y_{ij} + 4y_{ijj} - y_j)$; $b_{iijk} = 32(3y_{iijk} - y_{ijjk} - y_{ijkk}) + \frac{8}{3}(6y_i - y_j - y_k) - 16(y_{ij} + y_{ik}) - \frac{16}{3}(5y_{iil} + 5y_{iil} - 3y_{ijj} - 3y_{ikk} - y_{jjk} - y_{kkk})$; $b_{ijjk} = 32(3y_{ijjk} - y_{iijk} - y_{ijkk}) + \frac{8}{3}(6y_i - y_j - y_k) - 16(y_{ij} + y_{jk}) -$

$$\begin{aligned}
& -\frac{16}{3}(5y_{ijji} + 5y_{jjjk} - 3y_{iiij} - 3y_{jjkk} - y_{iik} - y_{ikk}); \\
b_{ijkk} &= 32(3y_{ijkk} - y_{jjjk} - y_{iijk}) + \frac{8}{3}(6y_k - y_i - y_j) - \\
& -16(y_{ik} + y_{jk}) - \frac{16}{3}(5y_{ikk} + 5y_{jkk} - 3y_{iik} - 3y_{jjk} - \\
& - y_{iii} - y_{ijj}); \quad b_{ijkl} = 256y_{ijkl} - 32(y_{iijk} + y_{ijil} + \\
& + y_{ukl} + y_{ijk} + y_{ijjl} + y_{jjkl} + y_{ijkk} + y_{ikk} + \\
& + y_{ijll} + y_{jkl} + y_{jkk}) + \frac{32}{3}(y_{iii} + y_{iik} + y_{iil} + y_{ijj} + \\
& + y_{jjk} + y_{jjl} + y_{ikk} + y_{jkk} + y_{kkk} + y_{iil} + y_{jll} + y_{kll}).
\end{aligned}$$

Статистические оценки

Пользуясь симплексно-решетчатым планированием, получаем модели, число коэффициентов регрессии в которых точно соответствует числу опытов в плане. При этом не остается ни одной степени свободы для проверки адекватности модели. Это обстоятельство следует отнести к недостаткам планов Г. Шеффе. Выход из положения простой: адекватность модели проверяется в интересующей исследователя части факторного пространства по контрольным опытам.

Анализ моделей

Полученные полиномиальные модели в случае их адекватности экспериментальным данным анализируются в зависимости от поставленной задачи. Можно, например, провести исследование модели на экстремум и найти максимальное или минимальное значение отклика. Очень удобно представлять результаты в виде контурных кривых на треугольных диаграммах. Правда, если компонентов в смеси больше трех, то построение диаграммы становится невозможным. В этом случае построение треугольных диаграмм производится при некоторых дискретных значениях остальных компонентов. При этом получают так называемые сечения многомерных симплексов. Естественное, что такое представление результатов фрагментарно, но ограниченность информации в данном случае компенсируется наглядностью.

Глава 5. СИМПЛЕКС-ПЛАНИРОВАНИЕ

Симплекс-планирование и движение по градиенту

Изложенный в предыдущих разделах материал подчинен следующей стратегии. Описание поверхности отклика в некоторой локальной части факторного пространства линейной моделью —

движение по градиенту к области оптимума — математическое описание процесса в этой области.

В работе [29] описан так называемый симплексный метод планирования эксперимента, который может быть использован для отыскания области оптимума, когда нет необходимости в математической модели процесса. Весьма лаконичное и четкое описание симплексного метода планирования выполнено в работе [8]. В статье [12] проведено сопоставление симплексного планирования с методом движения по градиенту на примере химической реакции.

Принцип симплексного планирования состоит в том, что условия первой серии опытов в многомерном пространстве соответствуют координатам точек, образующих правильный симплекс.

Правильный симплекс образует $k + 1$ точки, расположенные на равном расстоянии друг от друга в k -мерном пространстве. При этом в одномерном пространстве симплекс представляет собой отрезок прямой, при двух факторах — равносторонний треугольник, при трех факторах — тетраэдр и т. д. Затем этот симплекс определенным образом перемещается (кантуется) по поверхности отклика.

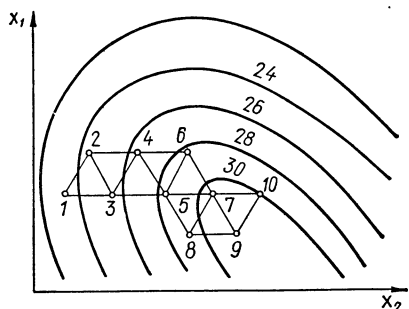


Рис. 13. Геометрическая интерпретация симплексного метода.

Перемещение симплекса по поверхности отклика выполняется в следующей последовательности. Из опытов первой серии, т. е. в вершинах правильного симплекса, выбирается точка с наихудшим результатом. Затем определяются координаты новой точки, представляющей собой зеркальное отражение точки с наихудшим результатом относительно противоположной грани симплекса. Причем грань в этом случае образуют k точек k -мерного симплекса. Если теперь этой новой точкой заменить точку с наихудшим результатом, то образуется новый правильный симплекс, смещенный (в общем случае) в сторону улучшения результата. В этой новой точке ставится опыт. Результаты снова сопоставляются. Выбирается опыт, в котором был получен наихудший результат, и находится его зеркальное отображение и т. д. Таким образом осуществляется перемещение симплекса до тех пор, пока не будет достигнута область оптимума. Пояснить процесс кантовки симплекса можно на примере с двумя факторами, симплекс при этом представляет собой правильный треугольник.

На рис. 13 изображен порядок постановки опытов при симплексном планировании. В первой серии ставится $k + 1$ опыт (точки 1, 2, 3). Последующая кантовка симплекса осуществляется путем анализа полученных результатов. При кантовке на каждом шаге реализуется один опыт. В точке 1 получен наихудший результат.

Симплекс поворачивается вокруг грани 2—3 и в точке 4 ставится опыт. Теперь анализируются результаты опытов в точках 2, 3 и 4. Поворот симплекса осуществляется вокруг грани 3—4. Определяются координаты точки 5, в которой снова ставится один опыт. Дальнейшее движение симплекса по поверхности отклика понятно из рис. 13.

Построение исходного симплекса и его перемещение

Рассмотрим процесс, в котором действует k факторов. Очевидно, что такой процесс протекает в $(k + 1)$ -мерном пространстве. При этом план первой серии опытов, или координаты точек исходного симплекса, записывается в виде следующей матрицы, содержащей k столбцов и $(k + 1)$ -строку:

$$\begin{bmatrix} a_1 & a_2 & \dots & a_{k-1} & a_k \\ -R_1 & a_2 & \dots & a_{k-1} & a_k \\ 0 & -R_2 & \dots & a_{k-1} & a_k \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & 0 & \dots & a_{k-1} & a_k \\ 0 & 0 & \dots & -R_{k-1} & a_k \\ 0 & 0 & \dots & 0 & -R_k \end{bmatrix} \quad (A)$$

В матрице (A) приняты следующие обозначения:

$$a_i = \sqrt{\frac{1}{2i(i+1)}}; \quad (86)$$

$$R_i = \sqrt{\frac{i}{2(i+1)}}, \quad (87)$$

где $i = 1, 2, 3, \dots, k$ (номер фактора).

Так как величины a_i и R_i зависят только от i , то они могут быть рассчитаны заранее, что значительно упрощает практическое исполь-

Таблица 31

Координаты исходного симплекса

Опыт	Фактор						
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6	x_7
1	0,5	0,289	0,204	0,158	0,129	0,109	0,0945
2	-0,5	0,289	0,204	0,158	0,129	0,109	0,0945
3	0	-0,578	0,204	0,158	0,129	0,109	0,0945
4	0	0	-0,612	0,158	0,129	0,109	0,0945
5	0	0	0	-0,632	0,129	0,109	0,0945
6	0	0	0	0	-0,645	0,109	0,0945
7	0	0	0	0	0	-0,655	0,0945
8	0	0	0	0	0	0	-0,661

зование метода. Матрица с коэффициентами, вычисленными для семи факторов, приведена в табл. 31. Для пользования табл. 31 необходимо выделить из нее слева k столбцов и $(k + 1)$ строку.

Факторы кодируют обычным способом. Выбирают нулевой уровень и интервалы варьирования. Затем по формулам перехода преобразовывают координаты в безразмерные переменные. Пользуясь данными табл. 31 и формулами перехода, получают матрицу исходного симплекса в натуральных переменных.

Например, в системе действуют два фактора: x_1 и x_2 . Нулевой уровень и интервалы варьирования для каждого фактора показаны в табл. 32.

Таблица 32

Нулевой уровень и интервалы варьирования для x_1 и x_2

Фактор	x_0	0
x_1 (температура, °C)	400	10
x_2 (скорость нагрева, °C/мин)	5	1

Примечание. $x_1 = \frac{t - 400}{10}$; $x_2 = \frac{v - 5}{1}$.

Из табл. 31 выделяется матрица, содержащая два столбца ($k = 2$) и три строки ($k + 1$), которые приведены в табл. 33.

Выполнив анализ результатов опытов в вершинах исходного симплекса, необходимо осуществить его кантовку. Для этого пользуются формулой

$$x_{i_n} = 2x_{i_c} - x_{ij}; \quad i = 1, 2, \dots, k, \quad (88)$$

где x_{i_n} — i -я координата искомой точки; x_{i_c} — i -я координата центра грани, относительно которой осуществляется отображение точки с наихудшим результатом; x_{ij} — i -я координата точки, в которой получен наихудший результат.

Координата центра грани

$$x_{i_c} = \frac{\sum_{i=1}^{k+1} x_i}{k}; \quad i \neq j. \quad (89)$$

Если наихудший результат получен в точке 1, то кантовку нужно осуществить относительно грани 2—3 (рис. 13). Затем надо най-

Таблица 33

Исходный симплекс для $k = 2$

Опыт	x_1	x_2	t	v
1	0,5	0,289	405	5,289
2	-0,5	0,289	395	5,289
3	0	-0,578	400	4,422

Примечание. $t_1 = 400 + 10 x_1 = 400 + 10 \cdot 0,5 = 405$; $t_2 = 400 + 10(-0,5) = 395$; $t_3 = 400 + 10 \cdot 0 = 400$; $v_1 = 5 + 1 x_2 = 5 + 1 \cdot 0,289 = 5,289$; $v_2 = 5 + 1 \times (-0,289) = 4,711$; $v_3 = 5 + 1(-0,578) = 4,422$.

ти координаты точки 4. Для этого необходимо, прежде всего, определить координаты центра грани 2—3:

$$x_{1c} = \frac{395 + 400}{2} = 397,5; \quad x_{2c} = \frac{5,289 + 4,422}{2} = 4,855.$$

Теперь можно вычислить координаты точки 4: $t_4 = 2 \cdot 397,5 - 405 = 390$; $v_4 = 2 \cdot 4,754 - 5,289 = 4,219$. В этой точке ставится опыт. Совместный анализ результатов в точках 2, 3 и 4 дает возможность выбрать направление следующего шага перемещения симплекса.

Если в результате кантовки симплекса в новой точке получен наихудший результат, то, естественно, следующее отображение приводит к предыдущему симплексу и процесс кантовки прекращается. В этом случае производится отображение относительно другой точки с худшим результатом. Например, если в точке 4 получен результат хуже, чем в точках 2 и 3, а в точке 2 результат хуже, чем в точке 3, то точка 4 отбрасывается, а отображение производится относительно точки 2 предыдущего симплекса (точки 1, 2, 3).

Раздел II. ИССЛЕДОВАНИЯ С ПРИМЕНЕНИЕМ ПЛАНИРОВАНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Глава 6. ИССЛЕДОВАНИЯ С ПРИМЕНЕНИЕМ ФАКТОРНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА, ДВИЖЕНИЯ ПО ГРАДИЕНТУ И ПЛАНОВ ВТОРОГО ПОРЯДКА

Совершенствование процесса получения стирольно-инденновых смол*

Получаемые из кубовых остатков окончательной ректификации и полимеров бензольных отделений стирольно-инденновые смолы являются эффективными мягчителями в резиновых смесях, приготовляемых для производства шин. Эти смолы легко совмещаются с синтетическими каучуками, облегчают диспергирование минеральных добавок в резиновой смеси и, придавая изделиям необходимую эластичность, не ухудшают их прочностных свойств.

Технологический процесс получения смол заключается в дистилляции, в результате которой получают кубовый остаток, представляющий собой смолу, и охлаждении последней путем разлива ее на транспортере. Физико-химические свойства и выход получаемой смолы определяются свойствами исходного сырья (кубовых остатков) и условиями процесса дистилляции [15, 16]. Для определения степени влияния обоих этих факторов на выход и качество смол необходимо установить, заключается ли процесс дистилляции только в отгон более летучих продуктов от смол или он сопровождается различными, параллельно протекающими термохимическими реакциями, вызывающими уплотнение и разложение полимеров.

Для решения этого вопроса кубовые остатки и смолы подвергали нагреву в автоклаве, условия работы в котором позволяют не выводить летучих продуктов и тем самым не вносить изменений в свойства исследуемых смесей. Исследовались кубовые остатки окончательной ректификации Макеевского коксохимзавода, являющиеся основным сырьем для получения стирольно-инденновых смол.

Кубовые остатки нагревали в автоклаве до 330—340° С и выдерживали при этой температуре в течение 8 ч. Давление паров продукта в автоклаве повышалось самопроизвольно до 130 кПа. Условия выдержки в автоклаве оказались несколько более жесткими, чем в дистилляционном кубе в промышленных условиях. Однако изменение качества кубовых остатков оказалось настолько незначительным, что был сделан вывод об отсутствии влияния термической обработки на выход и качество смол (табл. 34).

* Работа выполнялась совместно с Л. Я. Коляндром и В. С. Андреевой.

Таблица 34

Результаты испытаний кубовых остатков в автоклаве

Показатель	До опытов	После опытов			Среднее значение
		1	2	3	
Плотность кубовых остатков при 20°С, г/см ³	1,068	1,068	1,068	1,067	1,0677
Температура, °С:					
начала кипения	202	202	198	200	200
конца перегонки	340	340	340	339	339,7
Выход смолы, %	20	20	23	21	21,3
Температура размягчения, °С	59	59	57	58	58
Плотность смолы при 20°С, г/см ³	1,144	1,144	1,144	1,142	1,1433

Исходная проба смолы Донецкого коксохимзавода имела следующие показатели:

Температура размягчения, °С	78
Молекулярная масса	500
Плотность при 20°С, г/см ³	1,162

Смолу выдерживали в автоклаве при температуре 290°С в течение 5 ч при давлении 40 кПа. Качество смолы после такой термообработки не изменилось.

Полученные данные свидетельствуют о том, что в процессе дистилляции кубовых остатков значение термохимических процессов настолько невелико, что практически не сказывается на качестве стирольно-инденовых смол. Поэтому при дистилляции существенное значение имеет только отгон из кубовых остатков низкокипящих компонентов. Повышение температуры размягчения стирольно-инденовой смолы, происходящее с повышением конечной температуры дистилляции при периодическом процессе или с повышением температуры однократного испарения при непрерывном процессе, является результатом более полного отгона легкокипящих компонентов.

Температура размягчения смолы является одним из основных показателей и очень важно его постоянство. Однако связать температуру размягчения смолы с количеством отогнанного дистиллята затруднительно вследствие непостоянства качества кубовых остатков. Поэтому контроль процесса дистилляции ведется обычно по температуре размягчения смолы, отбираемой из куба. Длительность определения приводит к значительным колебаниям качества,

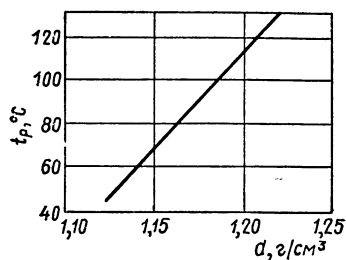


Рис. 14. Зависимость между плотностью и температурой размягчения смол.

поскольку за 1—1,5 ч дистилляции в конце операции температура размягчения смолы повышается на 5—10°C. Гораздо удобнее процесс дистилляции контролировать по показателю плотности смол, дистиллята и исходного сырья.

Между температурой t_p размягчения смол и их плотностью d существует взаимосвязь, которая позволяет ограничиться определением плотности и затем пересчетом определять температуру размягчения смолы. Для определения этой взаимосвязи были выполнены исследования, результаты которых приведены на рис. 14.

Плотность смолы определяли путем замера плотности раствора смолы в бензоле в соотношении 1 : 1 (по массе) и нахождения искомой величины по формуле [17]

$$d_{\text{смолы}}^{20} = 2d_{\text{смеси}}^{20} - d_{\text{растворителя}}^{20} \quad (90)$$

Применение этой методики возможно в тех случаях, когда отсутствует явление контракции. Выполненная проверка показала, что практически объем и плотность растворов смолы в бензоле являются аддитивными показателями.

Экспериментальные данные (рис. 14) позволили предположить, что указанная взаимосвязь может быть представлена в виде полинома первой степени. Выравнивание накопленных данных, выполненное с помощью ортогональных полиномов Чебышева [22], привело к зависимости

$$t_p = -928,5 + 866,7 d_c, \quad (91)$$

где d_c — плотность смолы при 20°C.

Уравнение (91) дает возможность определять значение температуры размягчения смолы в зависимости от ее плотности и контролировать процесс дистилляции кубовых остатков по плотности, что является более быстрым и удобным. Расхождение между расчетными и опытными данными составляет в среднем $\pm 1,14^\circ\text{C}$ (табл. 35).

Показатель плотности может быть использован не только для характеристики качества смол, но и для оценки качества кубовых остатков — для определения содержания в них смол.

Для исследования зависимости содержания в кубовых остатках смол с температурой размягчения 90°C (среднее из пределов, допускаемых техническими условиями) от плотности d_k последних и плотности d_d дистиллята был поставлен эксперимент типа 2³. Матрица планирования, результаты опытов и выбранные на основании технологического анализа интервалы варьирования факторов приведены в табл. 36.

По результатам опытов (табл. 36) можно вычислить коэффициенты регрессии, воспользовавшись для этого формулами (7) — (9):

$$b_0 = \frac{0,25 + 0,386 + 0,212 + 0,35}{4} = 0,2995;$$

$$b_1 = \frac{-0,25 + 0,386 - 0,212 + 0,35}{4} = 0,0685,$$

Таблица 35

Сопоставление расчетных и экспериментальных данных, характеризующих качество смолы

Опыт	Плотность, г/см ³	Температура размягчения, °С		Расхождение между расчетными и опытными данными	
		определенная по плотности	определенная экспериментально	°С	%
1	1,132	53,5	55,0	1,5	2,8
2	1,144	63,0	62,0	1,0	1,6
3	1,147	66,0	63,5	2,5	3,8
4	1,149	68,0	67,0	0,5	0,7
5	1,160	77,5	78,0	0,5	0,6
6	1,160	77,5	78,5	1,0	1,3
7	1,162	79,0	78,0	1,0	1,2
8	1,162	79,0	78,5	0,5	0,6
9	1,170	86,0	87,0	1,0	1,1
10	1,176	91,0	90,5	0,5	0,6
11	1,184	99,0	102,5	3,5	3,5
12	1,202	113,5	112,0	1,5	1,3
13	1,208	119,0	120,0	1,0	0,8
14	1,210	121,0	121,0	0,0	0,0

Таблица 36

Матрица планирования и результаты опытов

Уровень и интервал варьирования факторов	Плотность, г/см ³		Взаимодействие факторов	Содержание смол в кубовых остатках, доли		
	кубовых остатков	дистиллята				
Нулевой уровень $x_i = 0$	1,074	1,030				
Интервал варьирования δ_i	0,010	0,004				
Верхний уровень $x_i = 1$	1,084	1,034				
Нижний уровень $x_i = -1$	1,064	1,026				
Кодовое обозначение	x_1	x_2	$x_1 x_2$	y'	y''	y
Опыты:						
1	—	+	—	0,2495	0,2505	0,250
2	+	+	+	0,387	0,385	0,386
3	—	—	+	0,212	0,212	0,212
4	+	—	—	0,3505	0,3495	0,350

Примечание. Здесь y' и y'' — параллельные определения, y — среднее значение отклика в опыте.

аналогично $b_2 = -0,0185$ и $b_{12} = 0,0005$. Уравнение регрессии можно записать в виде

$$y = 0,2995 + 0,0685x_1 - 0,0185x_2 + 0,0005x_1x_2. \quad (92)$$

Выполним статистический анализ полученного уравнения. Прежде всего проверим воспроизводимость процесса по критерию Кохрена. Для этого находим дисперсии в точках:

$$s_1^2 = \frac{(0,2495 - 0,2505)^2}{2} = 0,5 \cdot 10^{-6},$$

аналогично $s_2^2 = 2 \cdot 10^{-6}$, $s_3^2 = 0$ и $s_4^2 = 0,5 \cdot 10^{-6}$. Критерий Кохрена [формула (5)]

$$G = \frac{2 \cdot 10^{-6}}{(0,5 + 2 + 0 + 0,5) 10^{-6}} = 0,6667.$$

Значение G найдено по четырем независимым оценкам дисперсии, каждая из которых обладает одной степенью свободы. По этим данным и по приложению 1 находим $G_{(0,05; 4; 1)} = 0,9065$. Табличное значение G превышает рассчитанное по результатам опытов, следовательно, процесс следует признать воспроизводимым. При этом лучшей оценкой дисперсии воспроизводимости считается средняя арифметическая из дисперсий в точках [формула (6)]:

$$s_y^2 = \frac{3 \cdot 10^{-6}}{4} = 0,75 \cdot 10^{-6}.$$

Эта дисперсия найдена при четырех степенях свободы $f_g = 4(2-1)$. Теперь можно с помощью критерия Стьюдента проверить значимость коэффициентов регрессии. Для этого по формуле (12) находим доверительные интервалы для коэффициентов регрессии:

$$\Delta b_i = t \sqrt{\frac{s_y^2}{n}} = 2,7764 \sqrt{\frac{0,75 \cdot 10^{-6}}{4}} = 0,0012,$$

где $t_{(0,05; 4)} = 2,7764$ — табличное значение критерия Стьюдента (см. приложение 2).

Коэффициент b_{12} в уравнении (92) по абсолютной величине оказался меньше рассчитанного доверительного интервала, значит, его можно считать незначимым. Тогда уравнение примет вид

$$y = 0,2995 + 0,0685x_1 - 0,0185x_2. \quad (93)$$

Коэффициент b_{12} можно было бы исключить и без проведенной выше проверки, исходя из того, что он по величине на порядок меньше остальных коэффициентов.

Значения y , рассчитанные по уравнению (93), будут отличаться от опытных данных не более чем на величину исключенного коэффициента b_{12} , равного 0,0005. Поэтому при проверке адекватности модели, соответствующей уравнению (93), по критерию Фишера

[уравнение (10)] будет получен утвердительный ответ. Действительно, расчетные значения y в точках равны 0,2495; 0,3865; 0,2125 и 0,3495.

Дисперсия адекватности

$$s_{ад}^2 = \frac{1}{4-2-1} [(0,2495 - 0,25)^2 + (0,3865 - 0,386)^2 + (0,2125 - 0,292)^2 + (0,3495 - 0,35)^2] = 1 \cdot 10^{-6};$$

$$f_{ад} = 1; F = \frac{s_{ад}^2}{s_y^2} = \frac{1 \cdot 10^{-6}}{0,75 \cdot 10^{-6}} = 1,3333.$$

Как и следовало ожидать, эта величина значительно меньше табличной величины $F_{(0,05; 1; 4)}$, равной 7,7086 (см. приложение 3), т.е. линейная модель адекватна экспериментальным данным. Следует отметить, что постановке факторного эксперимента предшествовала большая работа, связанная с изучением имеющихся сведений о процессе, его технологическим анализом и обоснованием.

Переведем переменные уравнения (93) к натуральному масштабу по формуле (4):

$$d_c = 0,2995 + 0,0685 \frac{d_k - 1,074}{0,01} - 0,0185 \frac{d_d - 1,03}{0,004};$$

$$d_c = -2,293 + 6,85d_k - 4,655d_d. \quad (94)$$

Перед определением содержания смол по уравнению (94) следует определить плотность дистиллята, что приводит к необходимости полной разгонки кубовых остатков. Последняя должна быть проведена таким образом, чтобы температура размягчения получаемых смол составляла 90° С. Для упрощения была установлена зависимость между плотностью дистиллята и плотностью d_{50} отгона 50%-ной загрузки. Зависимость эта представлена эмпирической формулой, рассчитанной на основании экспериментальных данных методом наименьших квадратов:

$$d_d = 0,17068 + 0,85208 d_{50}. \quad (95)$$

Сопоставление эмпирической и теоретической линий регрессии выполнено на рис. 15.

Уравнения (94) и (95) дают возможность после несложных преобразований получить зависимость содержания смол от плотности кубовых остатков и плотности первых 50% отгона:

$$d_c = 6,85d_k - 3,94 d_{50} - 3,08, \quad (96)$$

где d_c — содержание смол с температурой размягчения 90° С и при соответствующей этой температуре размягчения плотности, равной 1,176 г/см³. Содержание смол с иной температурой размягчения и при соответственно иной плотности будет другим. Полученное уравнение (96) проверено достаточно длительной практикой на

Донецком коксохимическом заводе и лабораторными исследованиями в УХИНе.

С помощью полученных зависимостей разработана номограмма, приведенная на рис. 16. Номограмма дает возможность определять содержание в кубовых остатках смол с температурой размягчения 90°C , исходя из величин плотности кубовых остатков и плотности дистиллята первых 50% загрузки. Содержание смол, характеризующее точкой P , определяется линейной интерполяцией. В примере (рис. 16) $d_k = 1,0725$ и $d_{50} = 1,0125$. Точка P лежит между прямыми, соответствующими содержанию смол 0,25 и 0,30. Линейная интерполяция дает $d_c = 0,275$ (27,5%).

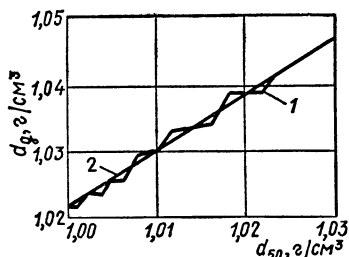


Рис. 15. Зависимости между плотностью дистиллята и плотностью первых 50% отгона:

1 — теоретическая линия регрессии $d_d = 0,1707 + 0,852d_{50}$; 2 — эмпирическая линия регрессии.

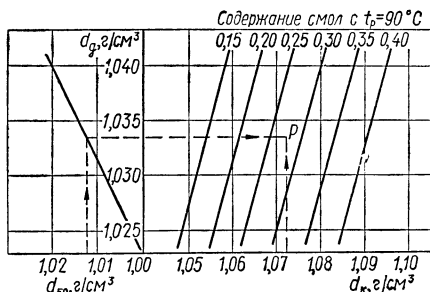


Рис. 16. Номограмма для определения содержания смол в зависимости от плотности кубовых остатков и плотности первых 50% отгона.

Сравнение теоретических данных, полученных по номограмме, исходя из плотности кубовых остатков и плотности первых 50% загрузки, с экспериментальными данными представлено в табл. 37. Среднее отклонение величины выхода смол, определенной по номограмме, от величины выхода смол, определенной экспериментально, составляет $\pm 0,75\%$.

Итак, установлено, что качество кубовых остатков как сырья для получения смол может быть оценено двумя показателями: плотностью кубовых остатков d_k и плотностью первых 50% (по объему) отгона d_{50} , замеряемых при 20°C .

Технологический процесс получения смол в аппаратах периодического действия может регулироваться скоростью нагрева сырья и конечной температурой дистилляции. В промышленных условиях регулировка скорости нагрева весьма затруднительна и возможна в ограниченных пределах. Поэтому предполагается, что она должна быть стабилизирована на некотором уровне, выбранном технологически. При этом в зависимости от характеристики сырья следует правильно выбирать конечную температуру процесса, стремясь к получению смол с заданной температурой размягчения. В настоящее время технические условия (ЧМТУ 6—21—68) предусматривают воз-

Таблица 37

Сопоставление расчетных и экспериментальных данных, характеризующих качество кубовых остатков

Плотность при 20° С, г/см³		Содержание смол с $t_p = 90^\circ \text{С}$, %		Расхождения между расчетными и опытными данными, %
кубовых остатков	первых 50% дистиллята	определенное экспериментально	полученное расчетом	
1,055	1,012	15	16,0	1,0
1,058	1,013	17	17,7	0,7
1,057	1,0048	20	20,1	0,1
1,071	1,0144	25	25,6	0,6
1,066	1,004	25	26,6	1,6
1,069	1,005	30	28,2	1,8
1,079	1,005	35	35,1	0,1
1,090	1,012	40	39,9	0,1

возможность колебаний температуры размягчения стиролюно-инденовых смол в пределах 80...100° С.

Однако столь широкие колебания величины t_p не приемлемы для основных потребителей, которым важно не только абсолютное значение температуры размягчения смол в указанных пределах, но и отклонения величины t_p от партии к партии, т.е. стабильность качества смол. Колебания величины t_p желательны в пределах $\pm 5^\circ \text{С}$.

С целью нахождения условий получения смол с температурой размягчения 90° С было проведено исследование процесса дистилляции кубовых остатков в лабораторных условиях. Выбранные факторы и интервалы их варьирования приведены в табл.38.

Таблица 38

Варьирование факторов при исследовании периодического процесса дистилляции кубовых остатков

Интервал варьирования и уровень факторов	Факторы		
	Конечная температура дистилляции t_K , °С	Плотность, г/см³	
		первых 50% отгона d_{50}	кубовых остатков d_K
Нулевой уровень $x_i = 0$	390	1,013	1,07
Интервал варьирования δ_i	15	0,005	0,01
Нижний уровень $x_i = -1$	375	1,008	1,06
Верхний уровень $x_i = +1$	405	1,018	1,08
Кодовое обозначение	x_1	x_2	x_3

Основными откликами процесса являются: выход смол Q и температура размягчения полученной смолы. Был реализован эксперимент типа 2³. Матрица планирования и результаты опытов приведены в табл. 39.

Таблица 39

Матрица планирования и результаты опытов

Опыт	x_1	x_2	x_3	t_{p_1}	t_{p_2}	\bar{t}_p	Q_1	Q_2	\bar{Q}
1	—	—	—	65	67	66	25,0	23,0	24,0
2	+	—	—	119	115	117	17,5	18,5	18,0
3	—	—	+	68	70	69	34,9	33,7	34,3
4	+	—	+	128	124	126	25,0	26,6	25,0
5	—	+	—	56	—	56	22,0	—	22,0
6	+	+	—	111	115	113	15,4	15,0	15,2
7	—	+	+	64	62	63	32,0	34,0	33,0
8	+	+	+	113	117	115	25,0	23,7	24,3

Статистический анализ данных, приведенных в табл. 39, позволил установить, что процесс воспроизводим, а дисперсии воспроизводимости, характеризующие ошибку опыта, составляют $s_{t_p}^2 = 5,00$ для температуры размягчения смолы и $s_Q^2 = 0,71$ для выхода смолы. Полный факторный эксперимент дает возможность независимо оценить как линейные эффекты, так и эффекты взаимодействия. Оценка значимости полученных выборочных коэффициентов регрессии выполнена с помощью критерия Стьюдента. Оставив только значимые коэффициенты, получили

$$t_p = 90,625 + 27,125x_1 - 3,875x_2 + 2,625x_3; \quad (97)$$

$$Q = 24,58 - 3,75x_1 + 4,775x_3. \quad (98)$$

Как показала проверка, выполненная с помощью F -критерия Фишера, линейные модели, соответствующие уравнениям (97) и (98), адекватны экспериментальным данным при уровне значимости 0,05. Уравнения (97) и (98) в натуральном масштабе переменных:

$$t_p = -110,4 + 1,808t_k - 775d_{50} + 262,5d_k; \quad (99)$$

$$Q = -388,8 - 0,25t_k + 477,5d_k. \quad (100)$$

Эти уравнения дают возможность прогнозировать температуру размягчения смолы и ее выход в зависимости от качества сырья, которое характеризуется величинами d_k , d_{50} и конечной температурой дистилляции T .

Уравнение (99) можно решить относительно t_k , тогда оно примет вид

$$t_k = 61,06 + 0,553t_p + 428,6d_{50} - 145,2d_k. \quad (101)$$

По этому уравнению можно задавать конечную температуру дистилляции, при этом получаемые смолы будут иметь заданную температуру размягчения.

Из уравнений (100) и (101) очевидно, что чем выше температура размягчения смолы, тем меньше ее выход из кубовых остатков при

постоянном качестве последних. Поэтому выполнение заказов потребителей должно производиться на заводе дифференцированно по температуре размягчения смолы.

Исследование процесса нагрева полидисперсной угольной массы

Входные параметры процесса и постановка задачи. Процесс нагрева угля исследовали до температур, близких к температуре перехода его в пластическое состояние. Особенность этого процесса обусловлена самопроизвольным слипанием частичек друг с другом — самоагрегированием, а этот процесс не должен происходить в системе нагрева. Остюда следует основное требование — необходимо жестко стабилизировать температуру нагретого угля.

Исследование проводили на пилотной установке, представляющей собой три последовательных ступени нагрева угля потоком газообразного теплоносителя. Упрощенная схема установки приведена на рис. 17.

Входными параметрами процесса (факторами) являются: количество исходного угля Q , кг/ч; гранулометрический состав угля, оцениваемый фактором крупности полидисперсного материала Φ^* ; количество циркулирующего теплоносителя V , м³/ч; температура t_1 теплоносителя на входе в III ступень нагрева, °С. Цель исследования — оценка относительной степени влияния входных параметров на режимную температуру нагрева угля. Таким образом, необходимо получить математическое описание (модель) процесса; по полученной модели определить допустимые пределы колебаний входных параметров при условии стабильности температуры нагрева в регламентированных пределах; наметить возможные каналы регулирования (стабилизации) процесса.

Планирование, проведение и результаты эксперимента. Для постановки эксперимента была принята план-матрица полного факторного эксперимента типа 2^3 с заменой тройного взаимодействия четвертым фактором (фактором крупности Φ);

$$x_4 = -x_1x_2x_3.$$

Учитывая, что фактор крупности полидисперсного материала (фактор x_4) неуправляем, т.е. для него невозможно установить какие-либо уровни в процессе постановки опытов, однако можно как-то

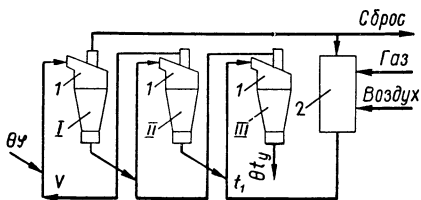


Рис. 17. Схема установки для нагрева угля:

1 — циклон; 2 — печь для получения теплоносителя.

* Лурье М. В., Новиков В. Е. Исследование системы скоростного нагрева угля.—В сб.: «Сообщения Гипрококса». Вып. 34. Харьков, «Прапор», 1968, с. 57—71.

изменить степень измельчения угля, использовали следующий прием: опыты разбивали на два блока, а между блоками изменяли степень измельчения угля. В связи с тем, что эффект от ϕ мог быть смешан с межблоковым временным дрейфом x_6 , происхождение которого обусловлено, возможно, неучтенными параметрами (температура, влажность или другие качественные показатели угля, изменение условий теплопотерь установки и др.), опыты ставили четырьмя сериями: I—II серии — параллельные опыты при одной степени измельчения угля с разделением блоков во времени; III—IV серии — параллельные опыты только блока 2 на укрупненном измельчении угля. Так как для ϕ невозможно установить нулевой уровень, то опыт на нулевом уровне остальных факторов ставили трижды: при I, II и III сериях. Всего было поставлено $16 + 8 + 3 = 27$ опытов.

Таблица 40

Результаты наблюдений за фактором ϕ в опытах

Показатель	Блок 1		Блок 2			
	I серия	II серия	I серия	II серия	III серия	IV серия
Фактор крупности ϕ	1,0556	—	1,0440	1,000	0,9063	0,8372
$s(\phi)$	0,053	—	0,067	0,065	0,065	0,0832
Количество замесов	52	—	60	48	57	50

Примечание. При ситовых анализах гранулометрического состава угля во время опытов блока 1 серии II были допущены ошибки в методике анализа и результаты этих опытов исключены из расчетов

Результаты наблюдений за фактором ϕ сведены в табл. 40 и 41, где приведены расчетные псевдоуровни и псевдоинтервалы варьирования ϕ . Дисперсионный анализ данных табл. 41 показал, что фактор ϕ блоков 1 и 2 серии I статистически одинаков, а интервал варьирования величины ϕ (δ_4) во II серии весьма мал. Поэтому результаты

Таблица 41

Псевдоуровни фактора x_4 по сериям

Показатель	I серия	II серия	III серия	IV серия	Среднее значение по III и IV сериям
Верхний уровень $x_4 = +1$	1,0556	1,0556	1,0556	1,0556	1,0556
Нижний уровень $x_4 = -1$	1,0440	1,000	0,9063	0,8372	0,8717
Нулевой уровень $x_4 = 0$	1,05	1,0278	0,9810	0,9464	0,9636
Интервал варьирования δ_4	—	0,0278	0,0747	0,1092	0,0920

Примечание. Здесь и далее обозначение серии соответствует опытам блока 2, так как в расчетах участвует только I серия блока 1.

наблюдений в опытах I и II серий были усреднены. Матрица планирования, результаты наблюдений выходного параметра y (рис. 17, температура t_y) и расчетные величины коэффициентов b_i , b_{ij} приведены в табл. 42.

Воспроизводимость процесса проверяли только по параллельным опытам I и II серий, так как III и IV серии не усреднялись из-за различных уровней варьирования величин φ . Процесс воспроизводим: $G = 0,769 < G_m = 0,841$ (для 5%-ного уровня значимости).

Анализ полученных уравнений. Адекватность линейного уравнения проверяли по критерию Фишера. Для $s_{ад. макс}^2$ (III серия)

$$F = \frac{9,27}{3,34} = 2,775 < F_m = 4,066$$

при $f = N - k - 1 = 8 - 4 - 1 = 3$ и $f_0 = 8$ для 5%-ного уровня значимости. Таким образом, линейное уравнение адекватно представляет экспериментальные данные.

Проверка значимости коэффициентов регрессии по критерию Стьюдента показала, что в I и II сериях все b_{ij} всех серий незначимы:

$$t_{ij макс} = \frac{1,394}{1,83} \sqrt{8} = 2,153 < t_m = 2,306$$

при $f_0 = 8$ для 5%-ного уровня значимости, поэтому $(b_4)_{I-II} = b_{12} = b_{13} = b_{23} = 0$. Также $\Sigma b_{ii} = 0$, так как $|b_0 - \bar{y}_0| = |433,15 - -433,6| = 0,45 < 2,306 \frac{1,83}{\sqrt{3}}$. Равенство нулю коэффициента b_4

в I и II сериях означает, что межблоковый временный дрейф отсутствует, а коэффициенты b_4 в III и IV сериях являются оценками эффекта от псевдоварьирования фактора φ .

После перехода от кодовых к натуральным переменным и усреднения коэффициентов регрессии, уравнение процесса приняло вид

$$t_y = 51,0 + 5,6V + 0,697t_1 - 14,85Q + 35,05\varphi. \quad (102)$$

Аналогичным образом были получены уравнения для температур в различных точках системы.

Анализ уравнения (102) при наложении регламентированных условий стабильности температуры нагрева позволил определить допустимые пределы колебаний входных параметров: $Q = \pm 2\%$, $\varphi = \pm 5 - 6\%$, $V = \pm 2\%$, $t_1 = \pm 0,55\%$ от режимных значений параметров.

Учитывая стабильность параметра V в допустимых пределах при довольно широком интервале изменения параметра t_1 , можно рекомендовать стабилизацию процесса нагрева угля осуществлять по каналу изменения температуры теплоносителя.

Проведенное исследование демонстрирует прием, позволяющий планировать эксперимент при одном практически неуправляемом факторе, который можно значительно изменять без нарушения процесса, если процесс описывается линейным уравнением.

Таблица 42

Условия, результаты опытов и коэффициенты регрессии

Блоки и серии опытов	Опыт	$x_1(V)$	$x_2(t_1)$	$x_3(Q)$	$x_4(\varphi) = -x_1x_2x_3$	x_0	x_1x_2	x_1x_3	x_2x_3	Выход y (t_y)		
										I и II серии	III серия	IV серия
Блок 1	1	+	+	—	+	+	+	—	—	455,6	455,6	455,6
	2	—	—	—	+	+	+	+	+	427,0	427,0	427,0
	3	+	—	+	+	+	—	+	—	422,2	422,2	422,2
	4	—	+	+	+	+	—	—	+	434,5	434,5	434,5
Блок 2	5	+	—	—	—	+	—	—	+	431,45	428,3	422,75
	6	—	+	—	—	+	—	+	—	444,0	441,2	435,5
	7	+	+	+	—	+	+	+	—	441,4	445,0	434,2
	8	—	—	+	—	+	+	—	—	412,05	408,6	409,3
I и II серии	$\Sigma x_{ij}y_{ij}$ b_i, b_{ij}	33,1 4,14	82,8 10,35	— 47,9 — 5,987	10,4 1,3	3468,2 433,5	3,3 0,41	0 0	0,5 0,06	$s^2_{ад} = 0,7$		
III серия	$\Sigma x_{ij}y_{ij}$ b_i, b_{ij}	39,8 4,975	90,2 11,275	— 41,8 — 5,225	16,2 2,025	3462,4 432,8	10,0 1,25	8,4 1,05	7,2 0,9	$s^2_{ад} = 9,27$		
IV серия	$\Sigma x_{ij}y_{ij}$ b_i, b_{ij}	28,45 3,556	78,55 9,82	— 40,65 — 5,08	37,55 4,694	3441,05 430,13	11,15 1,394	— 3,25 — 0,4	— 4,15 — 0,52	$s^2_{ад} = 6,32$		
Контрольный опыт	9	0	0	0	0	0	0	0	0	434,0	433,2	—

Примечание. Ошибка опыта (по предварительным исследованиям): $s^2_y = 3,34$, $s_y = 1,83$, $f_0 = 8$.

Очистка бензола от примесей методом кристаллизации*

В связи с развитием процессов органического синтеза требования к качеству бензола неуклонно повышаются, что делает необходимым постоянное совершенствование технологии его производства. Наиболее высокие требования к чистоте бензола предъявляет производство капролактама, причем эти требования ограничивают не только содержание серы, но также содержание насыщенных углеводородов. Насыщенные соединения, содержащиеся в бензоле, в процессе производства капролактама образуют примеси, ухудшающие качество конечного продукта и усложняющие технологию его получения. В частности, это относится к нормальному гептану, образующему гептанон-2, и метилциклогексану, подвергающемуся процессу изомеризации и также образующему гептанон. Последний способствует увеличению летучих соединений в капролактаме и, кроме того, создает взрывоопасные смеси.

Для производства капролактама по современным схемам требуется бензол с содержанием не более 0,01% *n*-гептана и не более 0,05% метилциклогексана. Эти требования приводят к тому, что температура кристаллизации бензола должна приближаться к 5,5° С. Получение бензола с показателями, не превышающими указанные характеристики, с помощью традиционного метода четкой ректификации практически невозможно. Одним из наиболее эффективных методов очистки бензола от примесей насыщенных углеводородов является процесс кристаллизации.

Относительно высокая температура кристаллизации бензола в сочетании с незначительной величиной скрытой теплоты плавления делают этот процесс несложным и недорогим.

Технологический процесс очистки бензола методом кристаллизации состоит из двух основных стадий — кристаллизации и разделения фаз (рис. 18). Первая стадия определяет выход бензола и размер кристаллов; вторая — качество бензола, поскольку последнее зависит именно от условий разделения фаз. Экспериментальное исследование было выполнено для каждой стадии отдельно.

Из общей теории кристаллизации известно, что на размер кристаллов оказывают влияние следующие основные характеристики процесса: скорость охлаждения, интенсивность перемешивания, переохлаждение раствора. В соответствии с этим для изучения совместной работы узлов эмульгирования и кристаллизации были выбраны шесть независимых факторов: соотношение в эмульгаторе бензол — охлаждающий рассол, характеризующее эмульгирование бензола; количество эмульсии, характеризующее производительность установки и продолжительность процесса кристаллизации; температура рассола, входящего в эмульгатор, характеризующая интенсивность охлаждения бензола в эмульгаторе и, косвенным образом, количество рассола, которое следует ввести в эмульгатор;

* Работа выполнялась совместно с А. И. Смородой и П. В. Зимницким.

частота вращения мешалки кристаллизатора, характеризующая турбулентность среды при кристаллизации; температура рассола, входящего в кристаллизатор, характеризующая интенсивность охлаждения суспензии в кристаллизаторе; количество рассола, поступающего в кристаллизатор, что вместе с количеством эмульсии харак-

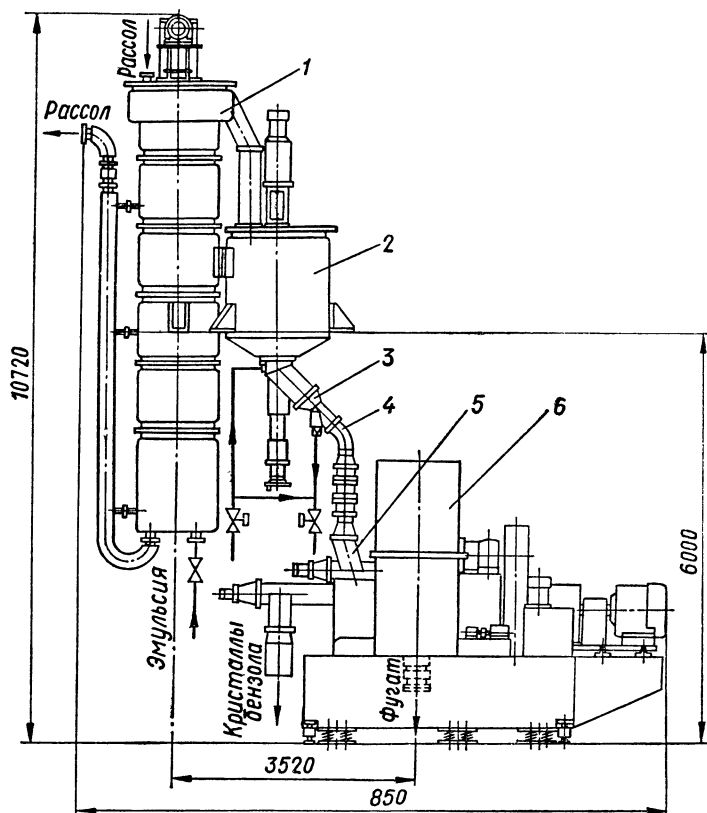


Рис. 18. Схема установки для очистки бензола методом кристаллизации:

1 — кристаллизатор; 2 — промежуточная емкость; 3 — клапан загрузки; 4 — труба загрузки центрифуги; 5 — питатель; 6 — центрифуга.

теризует продолжительность и интенсивность процесса кристаллизации (образования и роста кристаллов). Область изменения факторов задана табл. 43.

Первая серия опытов представляла собой четверть-реплику от полного факторного эксперимента типа 2^6 и состояла соответственно из $8(2^{3-3})$ опытов (табл. 44). На каждом сочетании уровней выполнялось по два параллельных опыта, обозначенные y_1 и y_2 . Все дальнейшие расчеты велись по средним арифметическим из двух опытов — y .

Таблица 43

Кодирование факторов при изучении процесса кристаллизации

Фактор	Наименование факторов	Нулевой уровень $x_i = 0$	Интервал варьирования	Верхний уровень $x_i = 1$	Нижний уровень $x_i = -1$
x_1	Соотношение бензол — рассол	2	0,2	2,2	1,8
x_2	Количество эмульсии, л/ч	70	5	75	65
x_3	Температура рассола, входящего в эмульгатор, °С	+ 3	1	+ 2	+ 4
x_4	Частота вращения мешалки кристаллизатора, об/мин	500	40	460	540
x_5	Температура рассола, входящего в кристаллизатор, °С	— 18	+ 1	— 17	— 19
x_6	Количество рассола, поступающего в кристаллизатор, л/ч	250	20	270	230

Таблица 44

Матрица планирования и результаты опытов по кристаллизации

Опыт	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	x_6	Размер кристаллов, мкм		
							y_1	y_2	y
1	—	—	—	—	—	—	63,7	64,9	64,3
2	+	+	—	—	+	+	75,9	74,3	75,1
3	+	—	+	—	+	—	63,1	61,9	62,5
4	—	+	+	—	—	+	64,2	63,2	63,7
5	+	—	—	+	—	+	60,0	61,2	60,6
6	—	+	—	+	+	—	83,8	83,0	83,4
7	—	—	+	+	+	+	68,5	69,1	68,8
8	+	+	+	+	—	—	62,8	63,6	63,2

Примечание. $x_1 = x_2x_3x_4$; $x_5 = -x_2x_3$; $x_6 = -x_2x_4$.

Полученное по данным табл. 44 линейное уравнение имеет вид $y = 67,7 - 2,35x_1 + 3,65x_2 - 3,15x_3 + 1,3x_4 + 2,25x_5 - 0,65x_6$. (103)

По результатам параллельных опытов проверена воспроизводимость процесса и рассчитана дисперсия воспроизводимости:

$$G = \frac{2,56}{9,52} = 0,269 < G_{(0,05; 8; 1)} = 0,6798;$$

$$s_y^2 = \frac{9,52}{8} = 1,19 \quad f_y = 8.$$

Вызывала сомнение значимость коэффициента b_6 . Доверительный интервал для коэффициентов регрессии

$$\Delta b_i = t_{(0,05; 8)} \sqrt{\frac{s_y^2}{n}} = 2,306 \sqrt{\frac{1,19}{8}} = 0,889.$$

Так как $|b_6| < \Delta b_i$, то его из уравнения исключили.

Адекватность линейной модели проверена по критерию Фишера:

$$F = \frac{4,56}{1,19} = 3,832 < F_{(0,05; 1; 8)} = 5,318.$$

Так как линейная модель адекватна, то знаки коэффициентов говорят о характере влияния соответствующих факторов. Теперь необходимо было, используя уравнение (103), выполнить движение по градиенту, стремясь к увеличению размеров кристаллов. Расчет серии опытов приведен в табл. 45.

Таблица 45

Движение по градиенту

Уровни факторов	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	y
Нулевой уровень	2	70	3	500	—18	
Интервал варьирования δ_i	0,2	5	0,5	40	1	
Коэффициент регрессии b_i	—2,35	3,65	—3,15	1,3	2,25	
$b_i \delta_i$	—0,47	18,25	—1,575	52	2,25	
Пропорциональный пересчет на изменение x_2 , равное 0,55	—0,26	10	—0,86	28,5	1,2	
Округление	—0,3	10	—1	30	1	
Опыты:						
1 (мысленный)	1,7	80	2	530	—17	94,2
2 (реализованный)	1,4	90	1	560	—16	107,6
3 (мысленный)	1,1	100	0	590	—15	—
4 (мысленный)	1,0	110	—1	620	—14	—
5 (реализованный)	0,8	120	—2	650	—13	173,0
6 (реализованный)	0,8	130	—3	650	—12	179,8
7 (реализованный)	0,8	140	—4	650	—11	155,1

Пропорциональный пересчет шагов выполнен по фактору x_2 , который оказывает существенное влияние на размер кристаллов. Величина шага по x_2 выбрана из технологических соображений. При этом стремились выбрать интервалы варьирования таким образом, чтобы они были достаточно большими для того, чтобы при каждой итерации система приходила в строго различимое состояние, и достаточно малыми для того, чтобы иметь исчерпывающую информацию о пройденном по градиенту пути.

Итак, можно задать условия, при которых размер кристаллов составит 180 мкм:

Соотношение бензол — рассол	0,8
Количество эмульсии, л/ч	130
Температура рассола, входящего в эмульгатор, °С	—3
Частота вращения мешалки, об/мин	650
Температура рассола, входящего в кристаллизатор, °С	—12
Количество рассола, поступающего в кристаллизатор, л/ч	250

Указанные условия дают величину кристаллов 180 мкм на установке Харьковского коксохимзавода, возможности которой ограничены конструктивными параметрами оборудования. В частности, движение по факторам x_1 и x_4 было прекращено из-за того, что возможности оборудования были исчерпаны.

Исследование стадии кристаллизации на этом было закончено, так как найдены условия, при которых получают кристаллы наибольшей величины. Переходя к исследованию стадии разделения фаз, можем исходить из того, что размер кристаллов известен и колеблется в очень малых пределах.

Одним из наиболее совершенных аппаратов для разделения фаз является центрифуга, что и послужило основанием для исследования технологических параметров ее работы. Исследования производились при постоянных условиях работы кристаллизатора, обеспечивающих получение кристаллов бензола, средний размер которых составлял 180 мкм. К процессу центрифугирования предъявлялось фактически только одно требование — четкость разделения фаз.

Процесс разделения фаз в целом складывается из следующих этапов: предварительная просушка — отделение основного количества маточного раствора; промывка осадка (кристаллов) — смывание с поверхности кристаллов маточного раствора; окончательная просушка — удаление промывной жидкости и остатков маточного раствора с поверхности кристаллов. Качество получаемого бензола, т.е. полнота отделения бензола от примесей, а в известной степени и его выход зависят от того, как проходят все три этапа процесса. Эффективность этих этапов определяется их продолжительностью, условиями проведения и разделительным фактором центрифуги. Показателями качества являлись температура кристаллизации и содержание примесей, определенное хроматографическим методом.

Для исследования была применена взрывозащищенная центрифуга ВГ-ЛГ-450 со шнековой загрузкой и с азотным наддувом. Полный объем ротора составлял 18,5 л, поверхность фильтрации — 0,29 м². Частоту вращения ротора можно было менять в пределах 1460—2200 об/мин, что соответствовало изменению фактора разделения от 530 до 1210. Кристаллизация бензола проводилась непосредственным смешением с хладагентом, представляющим собой 25%-ный водный раствор хлористого кальция. Концентрация бензола в суспензии, поступающей на центрифугу, составляла 50% при плотности 1,1 г/см³.

В процессе работы исследовалось влияние разделительного фактора центрифуги, продолжительности окончательной просушки, а также количества и температуры промывного рассола. Продолжительность предварительной просушки была принята постоянной и равной 1 мин, так как было установлено, что за это время отфильтровывается почти весь рассол и одновременно значительная часть маточного раствора.

Для изучения влияния указанных факторов на качество получаемого бензола был поставлен эксперимент типа 2^{4-1} . Однако статистический анализ показал, что эффекты парных взаимодействий

Таблица 46

Кодирование факторов и интервалы варьирования при исследовании процесса центрифугирования

Показатель	Разделительный фактор	Время просушки, мин	Количество промывной жидкости, л	Температура промывной жидкости, °C
Нулевой уровень	870	8	20	0
Интервал варьирования	340	5	10	5
Нижний уровень	530	3	10	-5
Верхний уровень	1210	13	30	5
Кодовое обозначение	x_7	x_8	x_9	x_{10}

факторов значимы. В полуреплике парные взаимодействия смешаны, что не дает возможности установить истинный источник значимости выборочных коэффициентов регрессии. Это привело к необходимости организации эксперимента по второй полуреплике.

Таблица 47

Условия и результаты опытов полученные при исследовании процесса центрифугирования

Опыт	x_7	x_8	x_9	x_{10}	$y, \%$
1	—	—	—	—	0,293
2	+	—	—	+	0,063
3	—	+	—	—	0,052
4	+	+	—	+	0,034
5	—	—	+	+	0,055
6	+	—	+	—	0,098
7	—	+	+	—	0,111
8	+	+	+	+	0,057
9	—	—	—	+	0,195
10	+	—	—	—	0,092
11	—	+	—	—	0,135
12	+	+	—	+	0,046
13	—	—	+	—	0,166
14	+	—	+	+	0,050
15	—	+	+	+	0,040
16	+	+	+	—	0,093

Таким образом, был осуществлен полный факторный эксперимент типа 2^4 . Кодирование факторов выполнено в соответствии с табл. 46, матрица планирования и результаты опытов приведены в табл. 47.

Индексы факторов x_7, x_8, \dots приняты такими для того, чтобы было легко отличать факторы, действующие на первой стадии процесса, от факторов, влияющих на результаты второй стадии. Так как на первой стадии исследовалось влияние шести факторов, то индексация факторов второй стадии начата с семи. Всего, таким образом, исследовалось влияние десяти факторов.

По результатам опытов (табл. 47) получено уравнение регрессии, адекватно описывающее экспериментальные данные при уровне значимости 0,05:

$$y = 0,099 - 0,032x_7 - 0,028x_8 - 0,015x_9 - 0,029x_{10} + 0,019x_7x_8 + 0,023x_7x_9 + 0,016x_7x_{10} + 0,019x_8x_9. \quad (104)$$

Опыт, поставленный в центре эксперимента, т. е. когда все факторы были на нулевом уровне, дал в трех параллельных определениях результаты: 0,09; 0,099 и 0,096. Такое близкое совпадение y_0 и b_0 может быть использовано для предположения, что $\Sigma b_{ii} = 0$.

Уравнение (104) дает возможность определить степень влияния каждого фактора и их взаимодействия на качество получаемого бензола. Величина коэффициентов регрессии указывает на то, что все факторы оказывают существенное влияние на качество бензола.

В промышленных условиях для большегрузных центрифуг фактор разделения x_7 находится в интервале 500—600. Увеличение его затруднительно из-за прочностных характеристик аппарата. В силу этого было принято решение выполнить анализ уравнения (104) при $x_7 = -1$, что соответствует значению разделительного фактора $F_r = 530$. При этом

$$y = 0,131 - 0,047x_8 - 0,038x_9 - 0,045x_{10} + 0,019x_8x_9. \quad (105)$$

Из уравнения (105) видно, что с увеличением x_8 (продолжительности просушки) качество бензола улучшается, однако снижается производительность установки, что, естественно, отрицательно сказывается на экономических показателях процесса.

Если принять минимально возможную по конструктивным характеристикам аппаратуры продолжительность просушки $\tau = 1$ мин, то $x_8 = \frac{1-8}{5} = -1,4$. При этом уравнение (105) примет вид

$$y = 0,1968 - 0,0646x_9 - 0,045x_{10}. \quad (106)$$

Так как допустимое содержание примесей в бензоле составляет 0,13%, то параметры x_9 и x_{10} должны выбираться соответствующим образом. Уравнение (106) после перехода к натуральному масштабу измерения переменных принимает вид

$$y = 0,326 - 0,00646Q - 0,009t. \quad (107)$$

Так как объем ротора центрифуги величина постоянная и равна 18 л (на установке Харьковского коксохимзавода), то $Q = 18q$, где q — удельный расход рассола на 1 л объема ротора центрифуги. Тогда

$$y = 0,326 - 0,116q - 0,089t. \quad (108)$$

В соответствии с принятыми изменениями Q в пределах 10—30 л величина q может варьировать в пределах 0,5 — 2 л/л.

Для выбора значений величин q и t , обеспечивающих получение бензола с содержанием не более 0,13% примесей при разделительном факторе центрифуги $F_r = 530$ и продолжительности просушки $\tau = 1$ мин, построен график, приведенный на рис. 19.

Для получения бензола заданной чистоты можно вести процесс при $t = 0 \dots -2^\circ \text{C}$, т. е. не прибегая к глубокому охлаждению. Этот вывод, подтвержденный на установке Харьковского коксохимзавода, является весьма важным, так как дает возможность резко

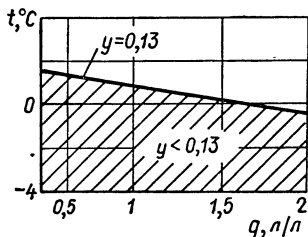


Рис. 19. Область получения чистого бензола при $F_r = 530$ и $\tau = 1$ мин.

снизить энергозатраты и увеличить производительность установки, что существенно улучшает технико-экономические показатели процесса.

Оптимизация процесса сернокислотной очистки сырого бензола*

Процесс сернокислотной очистки бензола используется в промышленности длительное время, поэтому нетрудно было назвать влияющие на него факторы: качество сырья, концентрация и расход серной кислоты, температура ведения процесса [12]. Перечисленные факторы в условиях одного и того же аппаратного оформления процесса достаточно полно отражают технологию очистки. Результаты очистки фракции бензол — толуол — ксилол (БТК) от примесей характеризуются следующими параметрами оптимизации: y_1 — бромное число мытой фракции; y_2 — содержание тиофена в бензоле после очистки, %; y_3 — потери бензолных углеводородов, %.

Итак, рассматриваемая система состоит из пяти факторов и трех параметров оптимизации. Эксперимент необходимо организовать таким образом, чтобы иметь возможность получения эмпирического описания процесса, т. е. получения статистической модели, которая, во-первых, позволит установить степень влияния каждого из рассматриваемых факторов на процесс и, во-вторых, станет основой для поиска оптимальных условий очистки. Имеющиеся априорные сведения о процессе позволили выбрать область экспериментирования и интервалы варьирования факторов (табл. 48).

Таблица 48

Кодирование факторов при исследовании процесса очистки
фракции БТК

Интервал варьирования и уровень факторов	Содержа- ние тио- фена в исход- ной фрак- ции, %	Бромное число исходной фракции, %	Концентра- ция сер- ной кис- лоты, %	Удельный расход серной кислоты, %	Темпе- ратура, °С
Нулевой уровень $x_i = 0$. . .	1,1	9,0	93,0	8,0	40
Интервал варьирования δ_i . . .	0,15	2,0	1,0	2,0	5
Нижний уровень $x_i = -1$. . .	0,95	7,0	92,0	6,0	35
Верхний уровень $x_i = +1$	1,25	11,0	94,0	10,0	45
Кодовое обозначение	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5

В соответствии с принятыми в табл. 48 интервалами варьирования факторов был реализован факторный эксперимент типа 2^{5-1} , т. е. полуреплика от полного факторного эксперимента 2^5 . Однако проверка, выполненная с помощью критерия Фишера, показала,

* Работа выполнена совместно с С. В. Кулясовой.

что полученные уравнения регрессии при уровне значимости 0,05 неадекватны экспериментальным данным. Такого результата следовало ожидать, так как при выборе области экспериментирования исходили из достаточно длительного опыта, поэтому уже эта первая серия опытов велась, по-видимому, в области оптимума.

Таблица 49
Условия и результаты опытов
по очистке фракции БТК

Опыт	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	y_1	y_2	y_3
1	—	—	—	—	+	0,51	0,23	6,3
2	+	—	—	—	—	0,80	0,35	7,3
3	—	+	—	—	—	0,32	0,14	6,9
4	+	+	—	—	+	0,52	0,24	6,8
5	—	—	+	—	—	0,31	0,14	7,4
6	+	—	+	—	+	0,48	0,23	8,9
7	—	+	+	—	+	0,14	0,07	7,2
8	+	+	+	—	—	0,28	0,13	8,3
9	—	—	—	+	—	0,24	0,13	8,1
10	+	—	—	+	+	0,54	0,25	9,4
11	—	+	—	+	+	0,15	0,08	8,1
12	+	+	—	+	—	0,34	0,15	8,8
13	—	—	+	+	+	0,12	0,05	10,6
14	+	—	+	+	—	0,32	0,15	10,0
15	—	+	+	+	—	0,05	0,03	8,5
16	+	+	+	+	+	0,11	0,05	10,8
17	—2	0	0	0	0	0,09	0,04	9,2
18	+2	0	0	0	0	0,38	0,16	9,0
19	0	—2	0	0	0	0,58	0,29	9,5
20	0	+2	0	0	0	0,14	0,06	9,6
21	0	0	—2	0	0	0,49	0,23	6,4
22	0	0	+2	0	0	0,16	0,06	8,7
23	0	0	0	—2	0	0,60	0,28	6,4
24	0	0	0	+2	0	0,13	0,05	10,2
25	0	0	0	0	—2	0,24	0,12	7,1
26	0	0	0	0	+2	0,21	0,11	8,2
27	0	0	0	0	0	0,19	0,10	9,0
28	0	0	0	0	0	0,22	0,09	8,7
29	0	0	0	0	0	0,20	0,13	8,7
30	0	0	0	0	0	0,23	0,13	8,9
31	0	0	0	0	0	0,22	0,09	9,1
32	0	0	0	0	0	0,20	0,12	8,5

Таблица 50
Значение коэффициентов
регрессии

Коэф- фици- ент регрес- сии	y_1	y_2	y_3
b_0	0,210	0,109	8,790
b_1	0,093	0,038	0,367
b_2	—0,093	—0,046	—0,100
b_3	—0,097	—0,044	0,608
b_4	—0,098	—0,046	0,950
b_5	—0,004	—0,002	0,208
b_{12}	—0,027	—0,011	0,050
b_{13}	—0,022	—0,009	0,090
b_{14}	—0,007	—0,004	0,010
b_{15}	—0,002	+0,004	0,012
b_{23}	0,011	0,004	—0,100
b_{24}	0,013	0,006	—0,075
b_{25}	0,003	0,000	—0,125
b_{34}	0,021	0,004	0,060
b_{35}	—0,012	—0,005	—0,237
b_{45}	0,003	—0,002	0,262
b_{11}	0,004	—0,002	—0,030
b_{22}	0,043	0,017	0,207
b_{33}	0,027	0,009	—0,293
b_{44}	0,035	0,014	—0,107
b_{55}	0,004	0,002	—0,268

Следующим шагом в исследовании было принято решение к осуществлению ротатбельного плана второго порядка. При этом в качестве ядра планирования сохранена полуреплика, реализованная в первой серии опытов. Результаты, полученные при реализации ротатбельного плана, приведены в табл. 49, полученные по данным опытов коэффициенты регрессии — в табл. 50. Результаты статистического анализа сведены в табл. 51. При составлении доверительных интервалов для коэффициентов регрессии были использованы данные табл. 24. Расчет велся по формулам (45) — (48).

Статистический анализ полученных уравнений регрессии

Расчетные величины	Значения расчетных величин для		
	y_1	y_2	y_3
s_{yt}^2	0,000 25	0,000 36	0,061 25
Δb_0	0,1666	0,0199	0,2600
Δb_t	0,0833	0,0100	0,1298
Δb_{ij}	0,0102	0,0122	0,1599
Δb_{ii}	0,0076	0,0091	0,1189
$\Delta s_{ад}^2$	0,0015	0,0006	0,1907
$t_{ад}$	13	20	17
s_0^2	0,000 24	0,000 36	0,0612
F	6,2500	1,6700	3,1700
Вывод об адекватности модели	Адекватна при уровне значимости 0,025	Адекватна при уровне значимости 0,05	Адекватна при уровне значимости 0,05

Итак, из трех уравнений одно оказалось адекватным только при уровне значимости 0,025. Это объясняется тем, что данные опытов в центре эксперимента (табл. 49) по y_1 представляют собой параллельные анализы на содержание тиафена, а не параллельные опыты. Из практики известно, что $s_0^2\{y_1\} \approx 0,0007$, исходя из этих соображений, будем пользоваться полученной зависимостью как адекватной моделью процесса.

После исключения незначимых коэффициентов уравнения регрессии имеют вид

$$y_1 = 0,21 + 0,093x_1 - 0,093x_2 - 0,097x_3 - 0,098x_4 + 0,043x_2^2 + 0,027x_3^2 + 0,035x_4^2 + 0,027x_1x_2 - 0,022x_1x_3 + 0,011x_2x_3 + 0,013x_2x_4 + 0,021x_3x_4 - 0,012x_3x_5; \quad (109)$$

$$y_2 = 0,109 + 0,038x_1 - 0,046x_2 - 0,044x_3 - 0,046x_4 + 0,017x_2^2 + 0,014x_4^2; \quad (110)$$

$$y_3 = 8,79 + 0,367x_1 + 0,608x_3 + 0,95x_4 + 0,208x_5 + 0,207x_2^2 - 0,293x_3^2 - 0,268x_5^2 + 0,237x_3x_5 + 0,262x_4x_5. \quad (111)$$

Даже общий вид уравнений (109) — (111) показывает, что не все факторы в одинаковой степени влияют на процесс очистки. Показательно, например, что температура процесса (x_5) в диапазоне 30—50° С практически не влияет на содержание тиафена в мытой фракции. Действительно, в уравнении (111) фактор x_5 отсутствует. Однако отсюда не следует, что температура вообще не влияет на процесс мойки. С изменением температуры существенно изменяются показатели, характеризующие потери бензола и перераспреде-

ление этих потерь между кубовыми остатками и кислой смолой.

Для того, чтобы четко судить о характере влияния каждого фактора на интересующие показатели, необходимо провести канонический анализ полученных уравнений. Выполнив ортогональные преобразования координат и обозначив переменные в новой системе соответственно через z_1, z_2, \dots, z_5 , получим для бромного числа мытой фракции

$$y_1 - 0,1906 = 0,0552z_1^2 + 0,0230z_2^2 + 0,0349z_3^2 - 0,0074z_4^2 - 0,0007z_5^2. \quad (112)$$

Новые координаты z связаны со старыми x системой уравнений:

$$\left. \begin{aligned} x_1 &= 0,0026z_1 + 0,00245z_2 - 0,0012z_3 + 0,0087z_4 - \\ &\quad - 0,0003z_5 + 0,0789; \\ x_2 &= -0,0073z_1 + 0,0019z_2 + 0,0061z_3 + 0,0021z_4 - \\ &\quad - 0,00117z_5 + 0,0344; \\ x_3 &= -0,0043z_1 - 0,0075z_2 - 0,0037z_3 + 0,0033z_4 + \\ &\quad + 0,0011z_5 + 0,000; \\ x_4 &= -0,0046z_1 + 0,0055z_2 - 0,0069z_3 - 0,0011z_4 - \\ &\quad - 0,0001z_5 + 0,0076; \\ x_5 &= 0,0005z_1 + 0,0020z_2 + 0,0006z_3 + 0,0026z_4 + \\ &\quad + 0,0094z_5 - 0,1807. \end{aligned} \right\}$$

Новое начало координат лежит в точке $x_{10} = 0,0789$, $x_{20} = 0,0344$, $x_{30} = 0,0$, $x_{40} = 0,0076$, $x_{50} = -0,1807$. Здесь $y_{10} = 0,1906$ — бромное число мытой фракции в точке $z_1 = z_2 = \dots = z_5 = 0$. Уравнение (112) описывает поверхность типа минимакс: при движении от центра по осям z_1, z_2 и z_3 показатель y_1 увеличивается, а по z_4 и z_5 — уменьшается.

Выражение (110) после канонического преобразования принимает вид:

$$y_2 - 0,043 = 0,038z_1 + 0,017z_2^2 - 0,044z_3 + 0,014z_4^2. \quad (113)$$

Новые координаты со старыми связаны системой уравнений:

$$\left. \begin{aligned} x_1 &= z_1; \quad x_2 = z_2 - 1,351; \\ x_3 &= z_3; \quad x_4 = z_4 - 1,654. \end{aligned} \right\}$$

Факторы z_1 и z_2 влияют на величину y_2 линейно, причем с увеличением z_1 содержание тиофена в мытой фракции растет, а с увеличением z_2 — снижается. По факторам z_3 и z_4 поверхность отклика в точке $x_{20} = -1,351$, $x_{40} = -1,645$ имеет экстремум — минимум. Любое движение по осям z_2 и z_4 от этой точки приводит к увеличению содержания тиофена в бензоле после очистки.

После канонического преобразования уравнения (111) имеем

$$\begin{aligned}
 y_3 - 4,566 &= 0,367z_1 + 0,207z_2^2 - 0,4197z_3^2 - \\
 &\quad - 0,2009z_4^2 + 0,0596z_5^2; \\
 \left. \begin{aligned}
 x_1 &= z_1; \quad x_2 = z_2; \quad x_3 = 0,6659z_3 - 0,7331z_4 + 0,1378z_5 - 0,4289; \\
 x_4 &= 0,2222z_3 + 0,3714z_4 + 0,9014z_5 - 7,8238; \\
 x_5 &= -0,7121z_3 - 0,5696z_4 + 0,4103z_5 - 3,6259.
 \end{aligned} \right\}
 \end{aligned} \quad (114)$$

Уравнение (114) описывает поверхность типа минимакс. Движение из центра по осям z_2 и z_5 приводит к увеличению потерь углеводородов, а движение по осям z_3 и z_4 сопровождается уменьшением y_3 .

Следует попытаться найти наилучшие условия ведения процесса очистки, т. е. провести его оптимизацию, воспользовавшись полученными уравнениями. Для этого необходимо, прежде всего, выработать критерий оптимизации. Отклики y_1 и y_2 характеризуют качество продукта и их предельные значения стандартизованы. В частности, по ГОСТ 8448—61 предельное содержание тиюфена и бромное число определяются сортом бензола:

Бензол, чистый для нитрации	I сорт	II сорт
Содержание тиюфена	0,08	0,13
Бромное число	0,12	0,30

Процесс очистки будет тем эффективнее, чем меньше потерь будут его сопровождать. В соответствии с этим можно сформулировать критерий оптимизации: получать бензол заданного качества с минимальными потерями.

Таким образом, необходимо провести оптимизацию системы из трех уравнений $y_1 = f_1(x_1, x_2, \dots, x_5)$; $y_2 = f_2(x_1, x_2, \dots, x_5)$ и $y_3 = f_3(x_1, x_2, \dots, x_5)$. Эта система может быть упрощена за счет того, что бромное число мытой фракции очень четко коррелируется с содержанием тиюфена в бензоле.

Обработка 181 пары экспериментальных данных привела к зависимости вида

$$y_1 = 2,834y_2 - 0,068. \quad (115)$$

Расчет параметров уравнения (115) сопровождался всеми необходимыми математико-статистическими оценками, которые здесь не приводятся. Укажем только, что коэффициент корреляции между y_1 и y_2 составил 0,9279. В связи с тем, что между y_1 и y_2 имеется столь тесная связь, можно вести оптимизацию только по одному показателю качества бензола, например, по содержанию тиюфена.

Пользуясь уравнением (115), можно показать, что для обеспечения выполнения требований ГОСТа необходимо при выработке бензола I сорта иметь содержание тиюфена не выше 0,066, при выработке бензола II сорта — не выше 0,13. В этом случае и бромное число не будет превышать допустимых значений. Таким образом,

задаваясь некоторым допустимым значением по y_2 , можно гарантировать качество продукта и по показателю y_1 . Если допустимое значение содержания тиафена в бензоле обозначить через $y_{2\text{доп}}$, тогда необходимо строгое выполнение условия

$$y_2 \leq y_{2\text{доп}}. \quad (116)$$

Ранее указывалось на то обстоятельство, что на степень очистки бензола от тиафена температура процесса в исследуемых пределах не оказывает влияния. Сейчас можно воспользоваться этим обстоятельством для того, чтобы выбрать наилучший температурный режим процесса. По уравнению (114) видно, что при прочих равных условиях потери минимальны в точке $z_5 = 0$, т. е. в новом начале координат. Следовательно, наилучшей является температура, соответствующая $x_5 = -3,6$, что при интервале варьирования $\delta_5 = 5^\circ \text{C}$ соответствует 22°C . Практика показывает, что ведение процесса при такой температуре весьма сложно особенно в летних условиях. Поэтому в промышленных условиях предполагается несколько повысить температуру по сравнению с расчетным оптимальным значением и принять ее равной 30°C ($x_5 = -2$). Выбор такой температуры оправдывается еще и тем, что она совпадает со среднегодовой температурой фракции бензол — толуол — ксилол — сольвент (БТКС), поступающей на очистку.

При $x_5 = -2$ уравнение для y_3 примет вид

$$y_3 = 7,302 + 0,367x_1 + 0,143x_3 + 0,426x_4 + 0,207x_2^2 - 0,293x_3^2. \quad (117)$$

Теперь в уравнениях для y_2 и y_3 независимыми переменными являются четыре фактора: x_1 , x_2 , x_3 и x_4 . К сожалению, факторы x_1 и x_2 не поддаются четкой регулировке. В частности, x_1 вообще не возможно задавать, его можно только знать заранее, а фактор x_2 можно либо увеличивать, изменяя расход присадки, либо удерживать на некотором постоянном уровне, выбрав соответствующий режим работы разделительной колонны в цехе улавливания.

Перепишем уравнения (110) и (117) в виде

$$y_2 = \Delta y_2 \{x_1\} + \Delta y_2 \{x_2\} + \Delta y_2 \{x_3, x_4\}; \quad (118)$$

$$y_3 = \Delta y_3 \{x_1\} + \Delta y_3 \{x_2\} + \Delta y_3 \{x_3, x_4\}, \quad (119)$$

где $\Delta y_2 \{x_1\} = 0,038x_1$; $\Delta y_2 \{x_2\} = -0,046x_2 + 0,017x_2^2$; $\Delta y_2 \{x_3, x_4\} = 0,109 - 0,044x_3 - 0,046x_4 + 0,014x_4^2$; $\Delta y_3 \{x_1\} = 0,367x_1$;

$\Delta y_3 \{x_2\} = 0,207x_2^2$; $\Delta y_3 \{x_3, x_4\} = 7,302 + 0,143x_3 + 0,426x_4 - 0,293x_3^2$.

Каждая из величин $\Delta y_i \{x_i\}$ показывает, как изменяется y_i в зависимости от изменений x_i при неизменных прочих факторах.

На рис. 20, а показано влияние содержания тиафена в исходной фракции БТКС на изменение его содержания в конечном продукте y_2 и на величину потерь y_3 . Зная содержание тиафена

в исходной фракции, легко определить значения приращений $\Delta y_2\{x_1\}$ и $\Delta y_3\{x_1\}$.

Кривые, приведенные на рис. 20, б, характеризуют влияние бромного числа исходной фракции на величины $\Delta y_2\{x_2\}$ и $\Delta y_3\{x_2\}$.

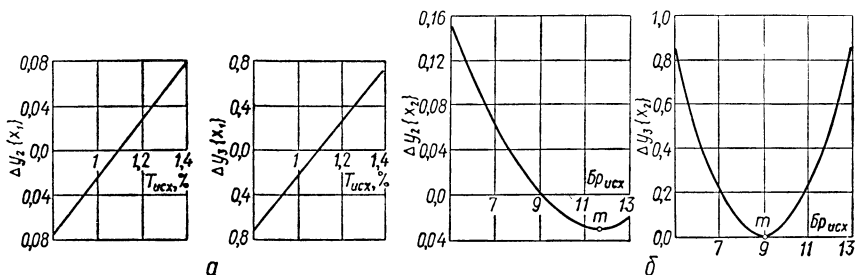


Рис. 20. Графики влияния:

а — содержания тиофена $T_{исх}$ в исходной фракции на величины $\Delta y_2\{x_1\}$ и $\Delta y_3\{x_1\}$; б — бромного числа $Br_{исх}$ исходной фракции на величины $\Delta y_2\{x_2\}$ и $\Delta y_3\{x_2\}$.

Обе кривые имеют экстремум минимум в точках m . Это значит, что минимальное содержание тиофена в мытой фракции (при прочих равных условиях) можно получить при $Br_{исх} = 11,7$, а минимум потерь — при $Br_{исх} = 9$. Очевидно, что наилучшее значение



Рис. 21. Графики изменения:

а — величины $\Delta y_2\{x_3, x_4\}$; б — величины $\Delta y_3\{x_3, x_4\}$ в зависимости от концентрации и удельного расхода серной кислоты.

бромного числа исходной фракции лежит в интервале 9—11,7, причем, чем ближе оно к 9, тем меньше потеря.

При концентрации кислоты 93% возможен минимальный ее расход при условии, что величина потерь не изменяется (рис. 21, а). Содержание тиофена в мытом продукте уменьшается с увеличением концентрации и расхода кислоты (рис. 21, б).

Пользуясь графиками (рис. 20 и 21) или уравнениями, по которым они построены, можно выбрать такие значения величин x_2 , x_3 и x_4 , при которых будет получен бензол заданного качества при минимальных потерях.

Приведем пример. $T_{исх} = 1,31\%$, концентрация кислоты равна 94%. Необходимо получать бензол для нитрации II сорта, $y_{2\text{доп}} = 0,13\%$.

По графику (рис. 20, а) находим

$$\Delta y_2 \{x_1\} = 0,052\% \text{ и } \Delta y_3 \{x_1\} = 0,51\%.$$

По кривым рис. 21, б выбираем удельный расход кислоты $q = 8\%$, при этом $\Delta y_2 \{x_3, x_4\} = 0,068$. Из графика рис. 21, а получаем $\Delta y_3 \{x_3, x_4\} = 7,0\%$, принимаем $Br_{исх} = 9$. Тогда $\Delta y_2 \{x_2\} = 0$ и $\Delta y_3 \{x_2\} = 0$ (см. рис. 20, б), при этом $y_2 = 0,052 + 0,068 + 0 = 0,12\%$ и $y_3 = 0,51 + 7,0 + 0 = 7,51\%$. Запас по качеству составляет $\frac{0,13 - 0,12}{0,13} = 0,077$, т. е. 7,7%. При хорошо организованном

процессе этот резерв по качеству можно считать достаточным.

Итак, получены условия ведения процесса: $t = 30^\circ \text{C}$, $Br_{исх} = 9$, концентрация кислоты равна 94%, удельный расход кислоты $q = 8\%$. Содержание тиофена в бензоле составляет 0,12%, что меньше $y_{2\text{доп}}$, и потери составляют 7,51%.

Если бы приняли $q = 7,5\%$, то $\Delta y_2 \{x_3, x_4\} = 0,078$, $\Delta y_3 \{x_3, x_4\} = 6,7\%$. При этом $y_2 = 0,052 + 0,078 + 0 = 0,13$ и $y_3 = 0,51 + 6,7 = 7,21\%$.

В новых условиях $y_2 = y_{2\text{доп}}$, удельный расход кислоты снижается на 0,5% и потери на 0,3% по сравнению с первым вариантом.

В общем случае число таких вариантов бесконечно. Поэтому для выбора оптимального режима работы установки разработана специальная программа для ЭВМ. Вход в программу производится по заданным значениям содержания тиофена в исходной фракции, концентрации кислоты и допустимому содержанию тиофена в мытой фракции. Машина перебирает все варианты изменения q в интервале 6—12% с шагом 0,1% и все значения $Br_{исх}$ в интервале 9—11,7% с шагом 0,1% и выбирает лучший из них.

Описанное исследование выполнялось авторами совместно с работниками Баглейского коксохимического завода. Внедрение результатов работы на этом заводе обеспечивает ежегодную экономию в размере 70 тыс. руб.

Оптимизация процесса обезвоживания углей методом центрифугирования*

На современных углеобогатительных фабриках обезвоживание флотоконцентратов осуществляется в две ступени: на вакуум-фильтрах до влажности 25—26% и затем термической сушкой, при

* Работа выполнена совместно с Е. М. Соколовой.

которой обеспечивается конечная влажность продукта 9—10%. Однако процесс термической сушки флотоконцентратов, даже на современных установках с кипящим слоем, является дорогостоящим. Он характеризуется высокими энергозатратами и большими выбросами пыли и отработанных газов в атмосферу. Одним из конкурирующих методов является обезвоживание флотоконцентратов в центрифугах различных конструкций.

Исследование процесса обезвоживания углей в центрифуге ЦЛС-2, отстойные стаканы которой были заменены на фильтрующие, показали, что основными факторами, влияющими на конечную влажность углей после фугования, являются: измельченность углей, характеризуемая величиной внешней удельной поверхности, степень метаморфизма углей, характеризуемая выходом летучих веществ на горючую массу; разделительный фактор центрифуги и продолжительность фугования.

В результате проведенных ранее исследований были получены качественные характеристики влияния отдельных факторов на степень обезвоживания углей при некоторых зафиксированных, постоянных значениях остальных факторов. Попытка выбора оптимальных параметров работы центрифуги по полученным характеристикам оказалась малоэффективной, так как процесс не был описан единой системой, связывающей все основные факторы. В связи с этим было принято решение продолжить эмпирическое исследование процесса обезвоживания углей центрифугированием с применением методов планирования эксперимента. Характеристика углей, с которыми проводился эксперимент, приведена в табл. 52.

Таблица 52

Характеристика углей

ЦОФ или шахта	Зольность A _c , %	Выход летучих веществ (на го- рючую массу) V _Г , %
Белореченская	7,4	38,7
Суходольская	8,6	33,3
Шахта «Ханженковская»	6,4	26,9
Криворожская	8,7	21,3
Колосниковская	5,7	14,9

Достаточно обширный материал предварительных исследований позволил довольно легко выбрать нулевой уровень и интервалы варьирования факторов (табл. 53). По данным табл. 53 был реализован эксперимент типа 2⁴. Однако полученная модель оказалась неадекватной. Тогда были поставлены дополнительные опыты в центре и на расстоянии звездного плеча d от центра, что соответствовало ротатбельному плану второго порядка (табл. 54).

Таблица 53

**Кодирование факторов
при изучении процесса обезвоживания углей**

Уровень факторов и интервал варьирования	Выход летучих веществ V^P , %	Внешняя удельная поверх- ность S , $\text{см}^2/\text{г}$	Раздели- тельный фактор центри- фуги, F	Продол- житель- ность фу- гования τ , мин
Нулевой уровень $x_i = 0$	27	1250	600	3
Интервал варьирования δ_i	6	375	200	1
Нижний уровень $x_i = -1$	21	875	400	2
Верхний уровень $x_i = +1$	33	1625	800	4
Кодовое обозначение	x_1	x_2	x_3	x_4

Таблица 54

Условия и результаты опытов по обезвоживанию углей в центрифуге

x_1	x_2	x_3	x_4	y	x_1	x_2	x_3	x_4	y
—	—	—	—	14,2	—2	0	0	0	13,7
+	—	—	—	14,4	+2	0	0	0	16,8
—	+	—	—	14,7	0	—2	0	0	9,4
+	+	—	—	18,0	0	+2	0	0	16,7
—	—	+	—	12,6	0	0	—2	0	17,6
+	—	+	—	12,5	0	0	+2	0	11,1
—	+	+	—	15,3	0	0	0	—2	15,1
+	+	+	—	16,0	0	0	0	+2	11,2
—	—	—	+	13,2	0	0	0	0	12,6
+	—	—	+	12,9	0	0	0	0	12,5
—	+	—	+	16,3	0	0	0	0	13,3
+	+	—	+	16,8	0	0	0	0	13,3
—	—	+	+	10,6	0	0	0	0	12,9
+	—	+	+	11,9	0	0	0	0	13,0
—	+	+	+	13,7	0	0	0	0	13,0
+	+	+	+	14,3					

Результаты опытов привели к уравнению регрессии

$$y = 13,05 + 0,39x_1 + 1,68x_2 + 1,23x_3 - 0,79x_4 + 0,65x_1^2 + 0,43x_3^2, \quad (120)$$

которое адекватно экспериментальным данным при уровне значимости 0,05. Все коэффициенты, кроме вошедших в уравнение (120), оказались меньше рассчитанного для них доверительного интервала.

В уравнении (120) отсутствуют члены вида $b_{ij}x_ix_j$, поэтому для приведения его к каноническому виду достаточно сделать только параллельный перенос осей:

$$y - y_c = 0,65X_1^2 + 0,43X_3^2, \quad (121)$$

$$\text{где } y_c = 12,11 + 1,68x_2 - 0,79x_4; \quad (122)$$

$$X_1 = x_1 - 0,3; \quad X_3 = x_3 - 1,43.$$

Зависимости (121) и (122) позволяют сделать ряд важных (с технологической точки зрения) выводов. Уравнением (121) описывается эллиптический параболоид. В точке $X_1 = X_3 = 0$ $y = y_c$. Движение от указанной точки по каждой из этих осей в любом направлении приводит к увеличению величины y . Наименьшее содержание влаги в отфугованном угле будет (при прочих равных условиях), если $X_3 = 0$, при этом $x_3 = 1,43$ и разделительный фактор равен $600 + 1,43 \cdot 200 = 890$. Это значение разделительного фактора является оптимальным независимо от того, какие значения приобретают остальные факторы, влияющие на процесс. Дальнейшее увеличение значения F не приводит к уменьшению конечной влажности шихты. С увеличением внешней удельной поверхности влажность отфугованной шихты линейно возрастает (на каждые $100 \text{ см}^2/\text{г}$ W^p увеличивается примерно на $0,45\%$).

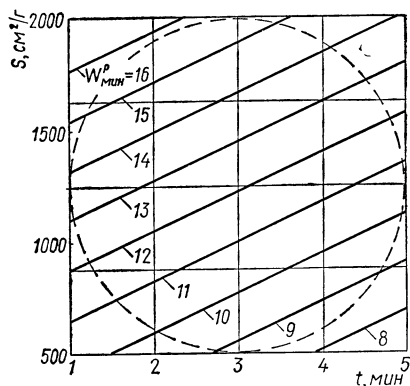


Рис. 22. Контурные кривые $W^p_{мин}$.

Увеличение продолжительности фугования в исследованных пределах линейно уменьшает конечную влажность примерно на $0,8\%$ в минуту. Однако следует ожидать, что увеличение продолжительности фугования (свыше 5 мин) приведет к нарушению линейной зависимости вплоть до того момента, когда дальнейшее увеличение τ не будет влиять на W^p .

Поскольку W^p зависит от S и τ линейно, то контурные линии $W^p_{мин}$ (рис. 22) представляют собой семейство прямых. Окружностью выделена область экспериментирования. Конечная влажность будет равна $W^p_{мин}$ только в том случае, если $V^r = 25,2\%$ и $F = 890$ (рис. 23). Во всех других случаях

$$W^p = W^p_{мин} + \Delta W^p, \quad (123)$$

где $W^p_{мин}$ — влажность, соответствующая величинам S и τ (рис. 22); ΔW^p — дополнительная влажность, зависящая от V^r и разделительного фактора центрифуги (рис. 23).

Определим, например, конечную влажность, соответствующую условиям первого опыта. Для $S = 875 \text{ см}^2/\text{г}$ ($x_2 = -1$) и $\tau = 2 \text{ мин}$ ($x_4 = -1$) путем интерполяции находим $W^p_{мин} = 11,25\%$ (рис. 22). Затем по $V^r = 21\%$ ($x_3 = -1$) и $F = 400$ ($x_5 = -1$) на рис. 23 определяем величину $\Delta W^p = 2,85$. В соответствии с уравнением (123) конечная влажность

$$W^p = 11,25 + 2,85 = 14,1\%.$$

В первом опыте получена конечная влажность, равная 14,2%, что отличается от предсказанного значения на величину, не превышающую ошибку опыта.

Известно, что выход летучих веществ зависит от степени метаморфизма углей и поэтому изменять эту величину в производственных условиях весьма сложно. Весьма сложной для регулировки является и величина удельной внешней поверхности. Поэтому на рис. 24 приведены кривые, характеризующие зависимость W^p от V^r и S при оптимальных условиях работы центрифуги, т. е. при $F = 890$ и $\tau = 5$ мин.

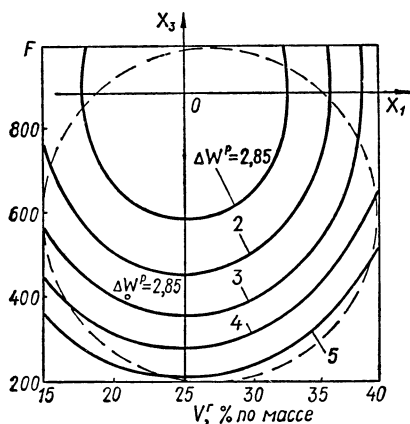


Рис. 23. Контурные кривые $\Delta W^p \times (\Delta W^p = W^p - W_{\min}^p)$.

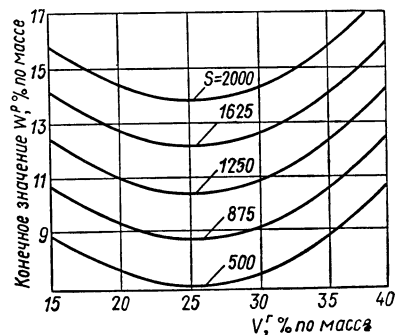


Рис. 24. Кривые зависимости конечного значения W^p от S и V^r при $\tau = 5$ мин и $F_2 = 890$.

Исследование процесса измельчения углей в лабораторной молотковой дробилке *

Для проведения исследований разработана экспериментальная установка с лабораторной молотковой дробилкой. Установка для измельчения углей (рис. 25) состоит из приемного бункера 1, тарельчатого питателя 2, желоба 3, молотковой дробилки 4 и приемника 6. Вал ротора дробилки соединен муфтой 9 с валом ротора двигателя 8 постоянного тока. Дробилка установлена на раме 7. Электроаппаратура управления двигателем дробилки, приборы и самозаписывающий ваттметр смонтированы в шкафу 5.

Установка работает следующим образом: порция угля загружается в приемный бункер и питателем выдается по желобу в молотковую дробилку. Измельченный в дробилке уголь собирается в приемнике. Молотковая дробилка (рис. 26) состоит из корпуса 1, ротора 2 с молотками 3, решеток 4, крепящихся на рамах 5 и 6, защитных листов 7. Ротор установлен консольно, что обеспечивает свободный доступ к внутренним частям дробилки при проведении

* Работа выполнялась совместно с Б. Н. Попельником.

исследований. Длина решетки подбирается компоновкой различных рам (рис. 26), защитных листов 7 и листа 8, перекрывающего на 12,5% решетку по длине.

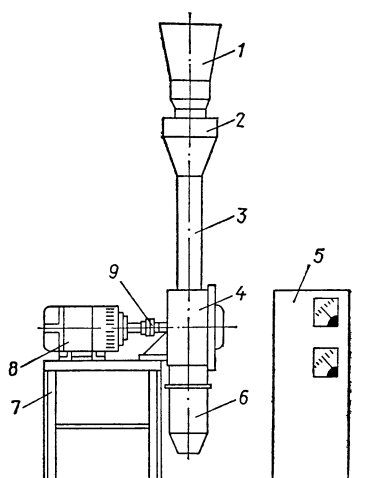


Рис. 25. Схема лабораторной установки для измельчения углей.

Исследовалась работа дробилки при измельчении обогащенных донецких углей марки Ж шахты им. Дзержинского и марки Г Добропольской ЦОФ крупностью ниже 25 мм. Более крупные куски додрабливались до размера ниже 25 мм и затем присоединялись к основной массе угля. Независимыми переменными (факторами процесса) были приняты: x_1 — длина решетки (по дуге), % к максимально возможной длине решетки, равной 840 мм; x_2 — ширина щели решетки, мм; x_3 — производительность дробилки, кг/ч; x_4 — влажность измельчаемого угля, %; x_5 — частота вращения ротора, об/мин. Интервалы варьирования

факторов процесса приведены в табл. 55. Схемы возможного изменения длины решетки в дробилке в соответствии с интервалами

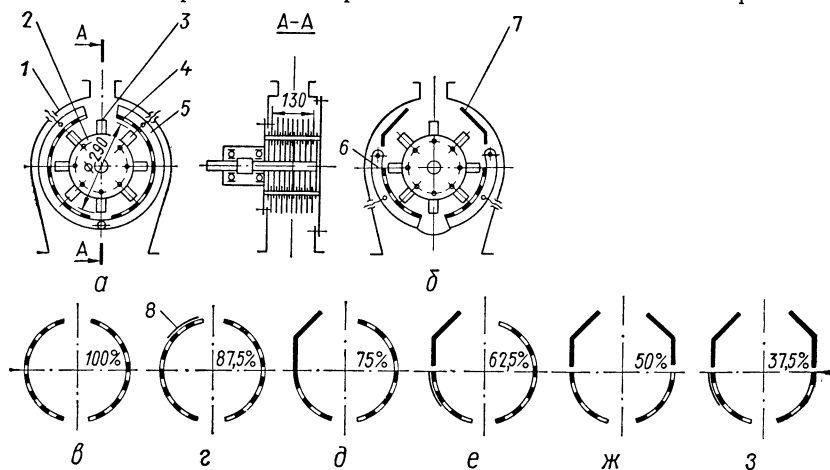


Рис. 26. Схема лабораторной молотковой дробилки:

а, б — основные возможные варианты сборки; в — з — схемы изменения длины решетки в дробилке.

варьирования изображены на рис. 26. Секции решетки устанавливались с необходимыми ширинами щелей.

Требуемую для эксперимента влажность измельчаемого угля достигали следующим образом: уголь высушивали до 4% и затем

в порцию его, отбираемую для эксперимента, добавляли воду и всю порцию тщательно перемешивали. Отклонение от задаваемой влажности составляло $\pm 0,5\%$. Частоту вращения ротора дробилки изменяли регулятором скорости вращения (установлен двигатель электропривода с плавным регулированием

Таблица 55
Кодирование факторов

Интервал варьирования и уровень факторов	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5
Нулевой уровень $x_i = 0$	62,5	13	700	6	800
Интервал варьирования δ_i	12,5	3	100	1	200
Верхний уровень $x_i = +1$	75,0	16	800	7	1000
Нижний уровень $x_i = -1$	50,0	10	600	5	600

Таблица 56
Матрица планирования и результаты экспериментов при изучении процесса измельчения углей в лабораторной молотковой дробилке

x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	Уголь марки Ж			Уголь марки Г		
					y_1^*	y_2^*	y_3^*	y_1^*	y_2^*	y_3^*
—	—	—	+	—	69,85	25,05	0,1085	53,35	13,85	0,303
+	—	—	—	—	75,90	35,05	0,103	52,85	15,26	0,208
—	+	—	—	—	75,10	34,25	0,1455	47,80	13,40	0,197
+	+	—	+	—	69,30	29,40	0,075	44,25	10,85	0,170
—	—	+	—	—	70,70	30,60	0,246	48,75	14,95	0,361
+	—	+	+	—	75,65	32,15	0,150	46,65	10,95	0,440
—	+	+	+	—	75,15	30,85	0,137	36,25	8,15	0,288
+	+	+	—	—	73,60	33,90	0,099	43,20	10,55	0,161
—	—	—	—	+	87,20	38,70	0,250	63,25	16,15	0,270
+	—	—	+	+	82,75	35,15	0,252	53,25	10,30	0,326
—	+	—	+	+	81,90	35,50	0,2345	56,95	14,95	0,249
+	+	—	—	+	84,15	38,30	0,195	54,90	14,90	0,201
—	—	+	+	+	80,55	30,10	0,3975	61,70	16,50	0,450
+	—	+	—	+	85,10	37,85	0,265	71,45	17,20	0,439
—	+	+	—	+	76,90	30,3	0,2685	52,50	14,65	0,371
+	+	+	+	+	78,45	31,2	0,332	56,00	14,05	0,313
2	0	0	0	0	77,40	31,5	0,115	49,60	12,50	0,210
—2	0	0	0	0	76,50	31,6	0,198	47,60	16,00	0,278
0	2	0	0	0	75,40	30,6	0,109	53,40	17,90	0,149
0	—2	0	0	0	80,30	34,7	0,222	67,50	22,70	0,334
0	0	2	0	0	77,90	33,6	0,260	60,70	16,90	0,610
0	0	—2	0	0	70,30	31,0	0,167	56,10	15,20	0,225
0	0	0	2	0	78,80	31,3	0,280	55,80	8,60	0,438
0	0	0	—2	0	81,90	36,8	0,186	59,90	16,80	0,311
0	0	0	0	2	91,90	42,7	0,565	73,70	23,00	0,512
0	0	0	0	—2	71,60	32,2	0,135	48,10	16,00	0,397
0	0	0	0	0	79,55	34,0	0,1797	55,90	18,68	0,399
0	0	0	0	0	79,40	34,0	0,167	54,70	17,00	0,343
0	0	0	0	0	79,10	32,5	0,156	53,40	16,90	0,339
0	0	0	0	0	78,80	33,3	0,253	58,40	19,80	0,454
0	0	0	0	0	83,40	38,4	0,216	57,60	18,30	0,427
0	0	0	0	0	83,80	38,0	0,314	55,00	18,40	0,370

* Среднее из двух параллельных опытов.

скорости ПМУ-5) и измеряли тахометром типа ИО-10. Количество угля, подаваемого в дробилку, дозировали тарельчатым питателем.

В качестве выходных параметров (откликов) процесса измерялись: y_1 , y_2 — содержание в измельченном угле классов ниже 3 и 0,5 мм, %; y_3 — расход электроэнергии на измельчение, кВт · ч.

Исследования проводились в два этапа. На первом этапе, с целью описания процесса линейной моделью, была реализована двумя рандомизированными сериями полуреплики полного факторного эксперимента типа 2^{5-1} (и опыт в центре) с генерирующим соотношением $x_4 = x_1 x_2 x_3 x_5$. Регрессионный анализ показал неадекватность линейной модели. На втором этапе были поставлены опыты, достраивающие план до ротatableльного, т. е. десять звездных точек и четыре опыта в центре эксперимента. Итого, было поставлено 16 опытов полуреплики от полного факторного эксперимента типа $2^5 + 10$ звездных точек с $d = 2,0$ и шесть опытов в центре эксперимента. Матрица планирования и результаты экспериментов для углей марок Ж и Г приведены в табл. 56.

Полученные по результатам опытов коэффициенты регрессии приведены в табл. 57, а расчет доверительных интервалов для них выполнен в табл. 58.

Коэффициенты

Коэффициент регрессии		Для угля марки Ж относительно отклика						
		y_1 при $b_0=80,8$	y_2 при $b_0=3,96$	y_3 при $b_0=16,75$	y_4 при $b_0=20,0$	y_5 при $b_0=12,4$	y_6 при $b_0=12,64$	y_7 при $b_0=35,0$
b_i	b_1	0,389	0,329	0,675	—0,381	0,154	—0,133	0,727
	b_2	—0,956	0,600	0,396	—0,281	—0,196	—0,117	—0,381
	b_3	0,215	—0,042	—0,296	0,623	0,0375	0,0792	—0,406
	b_4	—0,885	0,254	0,546	0,194	0,208	0,467	—1,689
	b_5	4,681	—2,071	—2,608	1,181	0,963	0,646	1,952
b_{ii}	b_{11}	—0,962	0,303	0,644	0,467	—0,324	—0,163	—0,990
	b_{22}	—0,734	0,468	0,252	0,0878	—0,0707	—0,0863	—0,668
	b_{33}	—1,682	0,480	1,188	—0,646	—0,096	—0,187	—0,756
	b_{44}	—0,100	0,0636	0,0249	0,252	0,0178	—0,061	—0,314
	b_{55}	0,250	0,544	—0,810	—0,342	0,0936	—0,0484	0,546
b_{ij}	b_{12}	—0,926	0,4424	0,544	—0,0789	0,0126	—0,139	—0,875
	b_{13}	0,724	—0,152	—0,505	—0,269	0,0758	0,196	0,559
	b_{14}	—0,641	0,284	0,354	0,174	—0,183	—0,228	—0,307
	b_{15}	0,0158	0,133	—0,0189	—0,174	0	0,145	—0,117
	b_{23}	—0,168	0,145	0,0821	0,224	0,0253	—0,0695	—0,502
	b_{24}	0,325	0,114	—0,436	—0,218	—0,0948	0,101	0,629
	b_{25}	—0,964	—0,101	1,188	0,180	—0,265	—0,272	—0,762
	b_{34}	1,393	—0,379	—1,144	—0,243	0,5245	0,5245	0,812
	b_{35}	—1,260	0,152	1,112	0,3823	—0,0126	—0,278	—1,387
	b_{45}	—0,275	—0,199	0,428	—0,168	—0,145	—0,0695	0,199

Регрессионный анализ полученных уравнений показан на примере обработки результатов эксперимента для класса ниже 3 мм угля марки Ж (табл. 59). Анализ показал адекватность модели второй степени. Большинство коэффициентов регрессии (табл. 57 и 58) незначимо (накрываются доверительными интервалами и, следовательно, равны нулю). Поскольку коэффициенты регрессии при квадратичных членах b_{ii} коррелированы с b_0 , то адекватность упрощенных моделей (без указанных коэффициентов) проверялась анализом вычетов, в результате чего скорректированы некоторые коэффициенты b_0 . Таким образом, процесс адекватно описывается системой уравнений регрессии:

для угля марки Ж

$$y_1 = 80,8 - 0,956x_2 - 0,885x_4 + 4,681x_5 - 0,962x_1^2 - 0,734x_2^2 - 1,682x_3^2 + 1,393x_3x_4 - 1,26x_3x_5; \quad (124)$$

$$y_2 = 35,0 + 0,727x_1 - 1,689x_4 + 1,952x_5 - 0,99x_1^2 - 0,756x_3^2 - 1,387x_3x_5; \quad (125)$$

$$y_3 = 0,215 - 0,0201x_1 - 0,0213x_2 + 0,0299x_3 + 0,0829x_5 - 0,091x_1^2 - 0,017x_2^2 + 0,0301x_5^2 + 0,02278x_4x_5; \quad (126)$$

Таблица 57

регрессии

Для угля марки Г относительно отклика								
y_8 при $b_0=0,215$	y_1 при $b_0=56,78$	y_2 при $b_0=15,97$	y_3 при $b_0=28,37$	y_4 при $b_0=16,8$	y_5 при $b_0=10,28$	y_6 при $b_0=10,37$	y_7 при $b_0=18,72$	y_8 при $b_0=0,397$
-0,0201	0,250	0,319	-0,775	0,502	0,227	0,377	-0,650	-0,0156
-0,0213	-3,650	2,898	0,546	-1,244	-0,665	-0,569	-0,967	-0,0507
0,0299	-0,0375	-0,552	0,379	0,123	-0,073	0,0896	0,033	0,0695
0,0126	-1,438	0,610	0,621	0,402	-0,119	0,106	-1,408	0,0244
0,0829	6,171	-5,015	-0,950	2,206	1,165	1,144	1,450	0,030
-0,019	-2,757	2,320	0,494	-0,463	-0,366	-0,472	-1,518	-0,045
-0,017	0,239	0,665	-0,847	0,207	-0,088	0,0467	0,0119	-0,046
-0,0077	-0,278	-0,144	0,480	1,067	-0,088	-0,257	-1,063	-0,0008
0,000 55	-0,418	-0,094	0,569	0,889	0,506	0,034	-1,910	-0,012
0,0301	0,353	0,273	-0,569	0,827	-0,290	-0,0544	-0,191	0,0086
0,009 32	0,487	-0,951	0,784	0,155	0,0158	-0,446	0,442	-0,0183
-0,005 66	2,161	-2,00	0,152	0,749	0,572	0,174	0,354	-0,000 19
0,0113	-1,150	1,393	0,0758	-0,622	-0,231	-0,237	-0,379	0,0094
0,006 54	0,0253	-0,599	0,246	0,180	-0,0032	0,357	-0,190	0,0069
-0,010	-1,378	1,356	0,335	-1,065	-0,022	0,0789	-0,682	-0,017
0,001 67	1,036	-0,749	0,0316	0,104	0,161	0,0474	0,404	-0,0095
0,001 04	0,050	-0,433	0,0632	0,0727	-0,041	-0,319	0,657	0,0092
0,0102	-0,272	0,288	0,297	-0,174	-0,142	-0,395	0,126	-0,000 82
0,008 31	2,319	-2,215	-0,411	0,995	0,376	0,325	0,935	0,0098
0,022 78	-0,133	-0,199	0,0126	0,205	-0,0727	-0,148	0,202	-0,0137

Оценки ошибок эксперимента

Марка угля	Отклик	Дисперсия ошибки опыта	Дисперсии ошибок определения коэффициентов регрессии				95%-ные доверительные интер- валы коэффициентов регрессии		
		$S^2 \{y\}$	$s^2 \{b_i\}$	$s^2 \{b_{ii}\}$	$s^2 \{b_{ij}\}$		$s \{b_i\} \times$ $\times t(2,5\%;$ 21)	$s \{b_{ii}\} \times$ $\times t(2,5\%;$ 21)	$s \{b_{ij}\} \times$ $\times t(2,5\%;$ 21)
Ж	y_1	3,444	0,144	0,1202	0,218		0,788	0,721	0,970
	y_2	0,7112	0,0296	0,0248	0,0449		0,358	0,328	0,441
	y_3	1,953	0,0814	0,0682	0,1234		0,593	0,543	0,731
	y_4	0,549	0,0228	0,0192	0,0347		0,314	0,288	0,387
	y_5	0,312	0,013	0,0108	0,0197		0,237	0,216	0,292
	y_6	0,459	0,0192	0,0160	0,0290		0,288	0,263	0,354
	y_7	4,248	0,177	0,148	0,268		0,875	0,800	1,0776
	y_8	0,001 314	0,000 055	0,000 046	0,000 083		0,0154	0,0141	0,0189
Г	y_1	5,355	0,223	0,187	0,338		0,982	0,899	1,210
	y_2	4,350	0,182	0,152	0,275		0,886	0,811	1,091
	y_3	2,300	0,095	0,080	0,145		0,644	0,589	0,792
	y_4	1,630	0,068	0,057	0,103		0,542	0,496	0,668
	y_5	0,920	0,038	0,032	0,058		0,407	0,373	0,502
	y_6	1,023	0,043	0,036	0,065		0,429	0,393	0,529
	y_7	4,490	0,187	0,157	0,284		0,900	0,824	1,108
	y_8	0,0015	0,00006	0,00005	0,0001		0,016	0,015	0,020

для угля марки Г

$$y_1 = 56,78 - 3,65x_2 - 1,438x_4 + 6,171x_5 - 2,757x_1^2 + 2,161x_1x_3 - \\ - 1,378x_2x_3 + 2,319x_3x_5; \quad (127)$$

$$y_2 = 18,72 - 0,967x_2 - 1,408x_4 + 1,45x_5 - 1,518x_1^2 - \\ - 1,063x_3^2 - 1,91x_4^2; \quad (128)$$

$$y_3 = 0,397 - 0,0156x_1 - 0,0507x_2 + 0,0695x_3 + 0,0244x_4 + \\ + 0,03x_5 - 0,045x_1^2 - 0,046x_2^2; \quad (129)$$

Поскольку поверхности, описываемые уравнениями (124) — (129), многомерны и не могут интерпретироваться геометрическими образами, то их анализ проводился по двум группам факторов: технологических x_3 и x_4 (рис. 27 и 28) и конструктивных x_1 , x_2 и x_5 (рис. 29). Определены также зависимости откликов от конструктивных факторов при разных влажностях на основном уровне производительности 700 кг/ч (рис. 30 и 31).

Задаваясь значениями конструктивных факторов x_1 , x_2 и x_5 , равными +2, 0, -2 в координатах x_3 и x_4 , приведем уравнения (124) — (129) в каноническую форму.

1. Для угля марки Ж:

$$y_1 - y_{1\text{ц}} = 0,252x_3^2 - 1,934x_4^2. \quad (130)$$

Координаты центра и значения выходов класса ниже 3 мм в центре ($y_{1\text{ц}}$) приведены в табл. 60.

Результаты регрессионного анализа уравнения (129) для определения выхода класса 3—0 мм при измельчении угля марки Ж

Показатель	Сумма квадратов	Число степеней свободы	Дисперсия	Дисперсионные отношения
Сумма квадратов результатов наблюдений $\sum y^2$	197 459,58	32	—	—
Корректирующий фактор $(Oy)^2 N$	196 611,52	1	—	—
Сумма квадратов, связанная с b_i , $\sum_{i=1}^k b_i(iy)$	571,4	5	114,28	33,22
Сумма квадратов, связанная с b_{ii} и b_{ij} , $b_0(Og) + \sum b_{ii}(i iy) + \sum b_{ij} \times (ijy) - (Og)^2/N$	205,52	15	13,7	3,98*
Остаточная сумма квадратов S_R	71,14	11	—	—
Сумма квадратов, связанная с повторением нулевых точек, S_E	26,08	5	—	—
Сумма квадратов для проверки гипотезы адекватности $S_{ад} = S_R - S_E$	45,06	6	7,51	2,18
Сумма квадратов для оценки ошибки опытов (среднего из двух параллельных определений) с учетом информации от нулевых точек и параллельных определений	72,3	21	3,44	$F(5\%; 6; 21) = 2,573$

* Значимо для уровня значимости 0,5%.

Уравнение (130) определяет гиперболический параболоид. Центр этой фигуры является минимаксом, координаты которого изменяются в зависимости от сочетания величин конструктивных факторов (в табл. 60 величины откликов приведены в минимаксе). При движении по оси x_4 в обоих направлениях выход класса ниже 3 мм растет, а при движении по оси x_3 в обоих направлениях — падает. Локально поверхность отклика

$$y_2 - (35,0 + 0,727x_1 - 0,99x_1^2 + 1,952x_5) = -1,387x_3x_5 - 0,756x_3^2 - 1,689x_4 \quad (131)$$

представляет собой линейно возрастающее при движении по оси — x_4 возвышение (гребень) с крутизной наклона, равной 1,689. Центр фигуры удален в бесконечность по оси x_4 . Координата центра по оси x_3 зависит от x_5 : при $x_5 = +2; 0; -2$ равна соответственно —1,83; 0; +1,83. Значение уровня отклика находится в зависимости от сочетания конструктивных факторов.

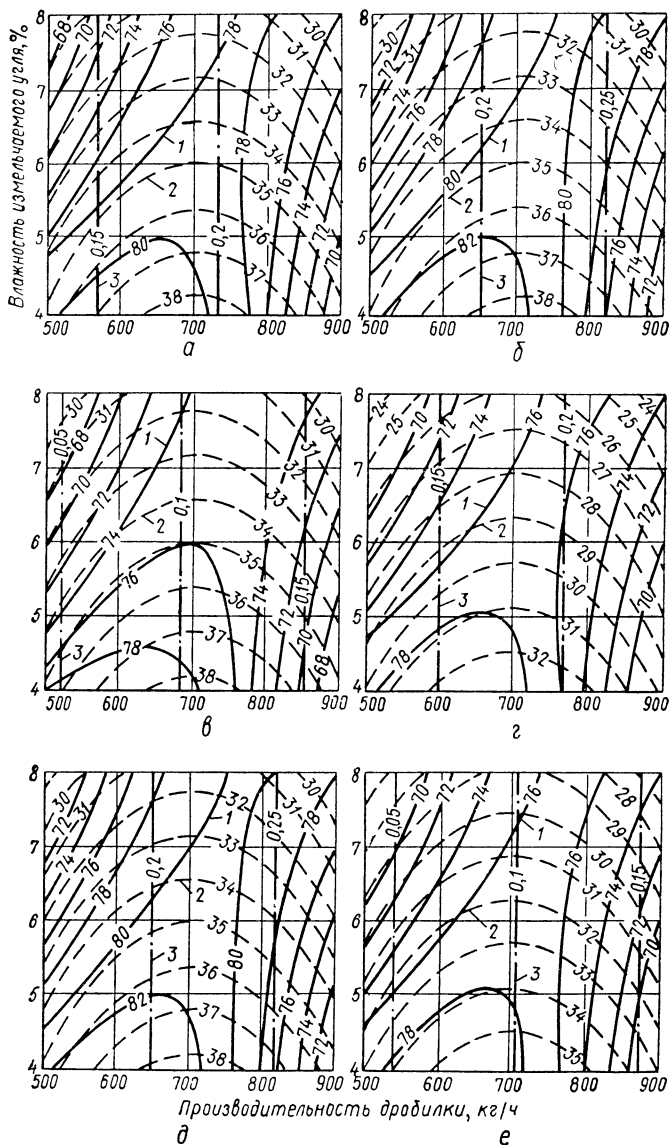


Рис. 27. Контурные кривые для угля марки Ж равных значений:

1 — выходов классов 3—0 мм, %; 2 — выходов классов 0,5—0 мм, %; 3 — расхода электроэнергии на измельчение, кВт·ч; а — при $x_1 = x_5 = 0$ и ширине щели решетки 7 мм; б — то же, 13 мм; в — то же, 19 мм; г — при $x_2 = x_5 = 0$ и длине решетки 37,5%; д — то же, 62,5%; е — то же, 87,5%.

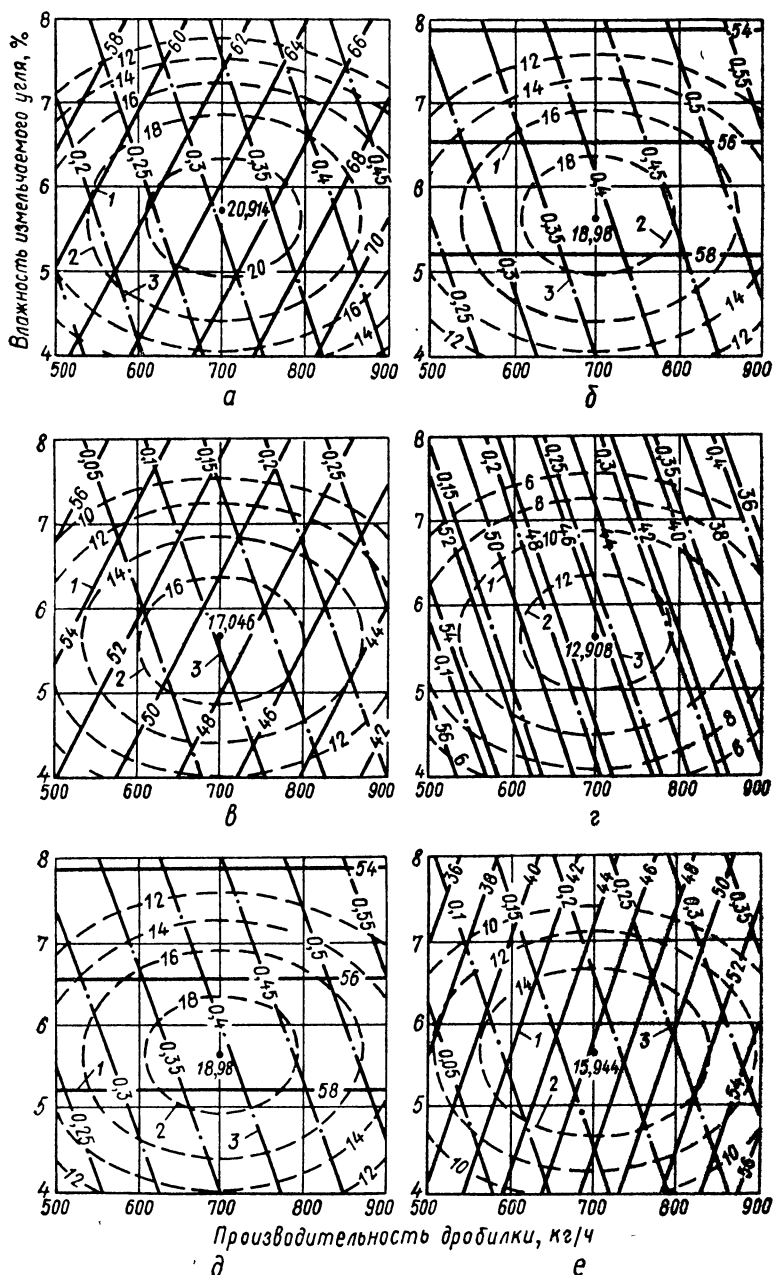


Рис. 28. Контурные кривые для угля марки Г равных значений:
 1 — выходов классов 3—0 мм, %; 2 — выходов классов 0,5—0 мм, %; 3 — расхода электро-
 энергии на измельчение, кВт · ч; а — при $x_1 = x_5 = 0$ и ширине щели решетки 7 мм; б —
 то же, 13 мм; в — то же, 19 мм; г — при $x_2 = x_6 = 0$ и длине решетки 37,5%; д — то же,
 62,5%; е — то же, 87,5%.

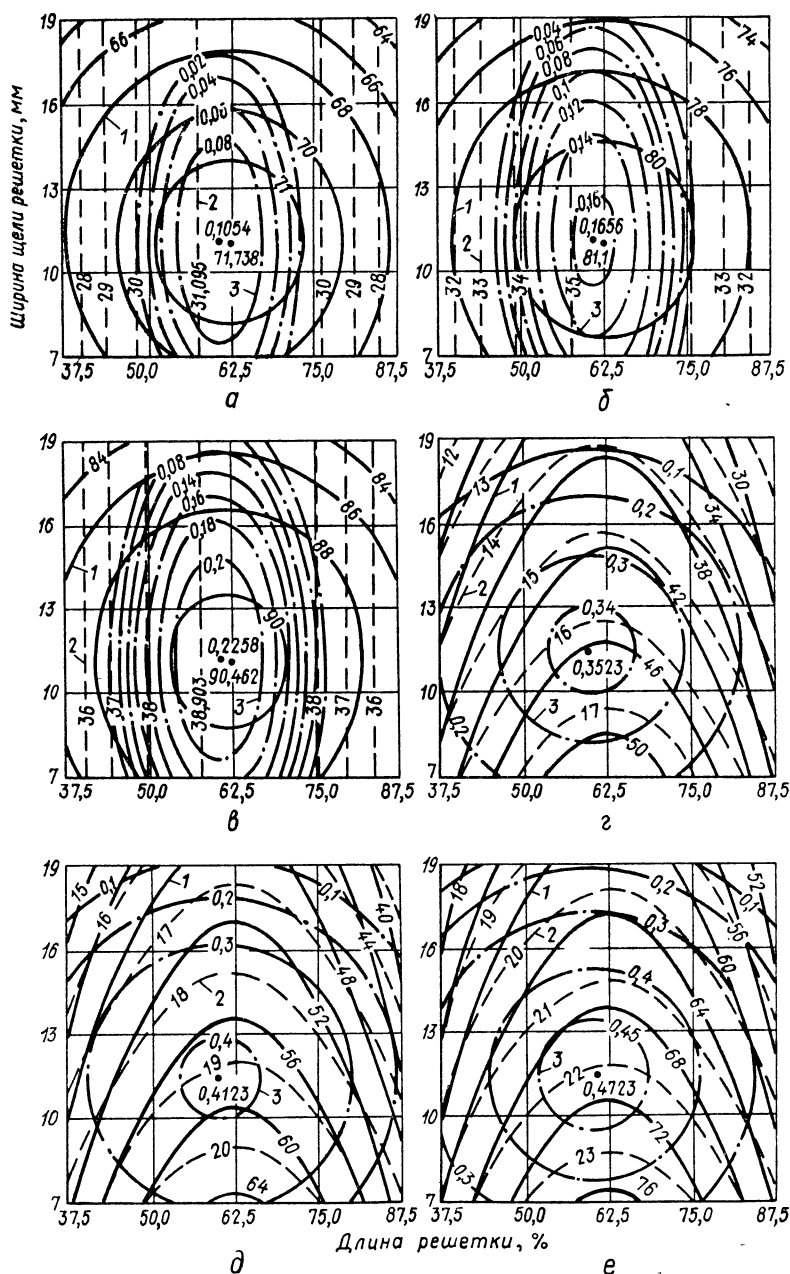


Рис. 29. Контурные кривые равных значений:

1 — выходов классов 3—0 мм, %; 2 — выходов классов 0,5—0 мм, %; 3 — расхода электроэнергии на измельчение, кВт · ч; *a* — угля марки Ж при $x_3 = x_4 = 0$ и частоте вращения ротора 400 об/мин; *б* — то же, 800 об/мин; *в* — то же, 1200 об/мин; *г* — угля марки Г при $x_3 = x_4 = 0$ и частоте вращения ротора 400 об/мин; *д* — то же, 800 об/мин; *е* — то же, 1200 об/мин.

Поверхность отклика

$$y_3 = (0,215 - 0,0201x_1 - 0,0213x_2 + 0,0829x_5 - 0,019x_1^2 - 0,017x_2^2 + 0,0301x_5^2) = 0,0299x_3 + 0,02278x_4x_5 \quad (132)$$

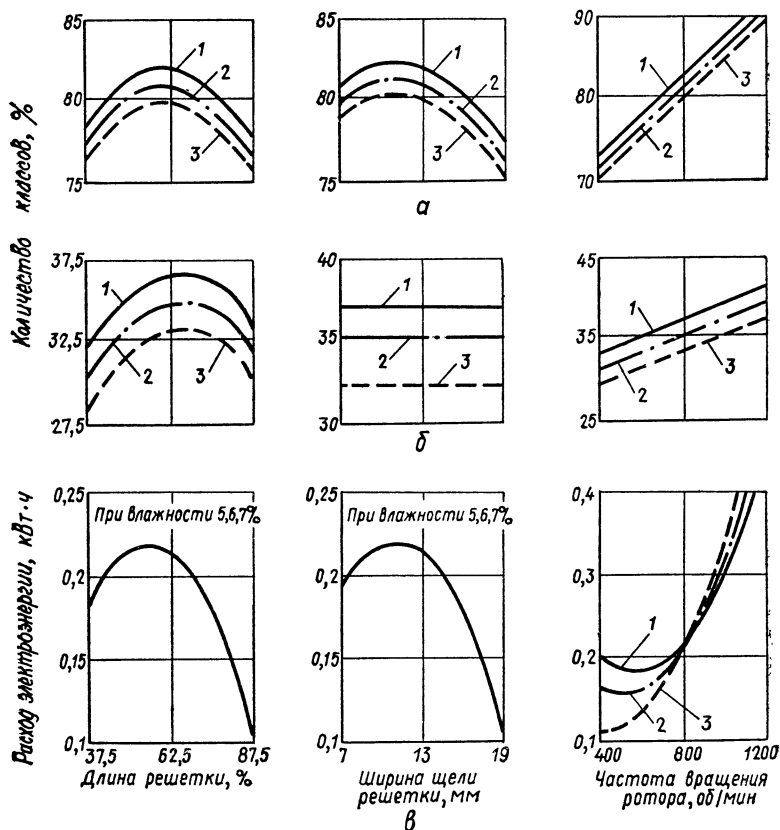


Рис. 30. Графики зависимостей при измельчении угля марки Ж от длины решетки, ширины ее щелей и частоты вращения ротора дробилки при производительности 700 кг/ч:

а — количества классов 3—0 мм; б — количества классов 0,5—0 мм; в — расхода электроэнергии; 1 — при влажности измельчаемого угля 5%; 2 — 6%; 3 — 7%.

представляет собой плоскость — стационарное возвышение с постоянной крутизной относительно оси x_3 . Крутизна относительно оси x_4 зависит от x_5 и меняет свой знак при $x_5 = 0$.

2. Для угля марки Г:

$$y_1 = (56,78 - 3,65x_2 + 6,171x_5 - 2,757x_1^2) = (2,161x_1 - 1,378x_2 + 2,319x_5)x_3 - 1,438x_4. \quad (133)$$

Поверхность отклика представляет собой плоскость — стационарное возвышение с крутизной относительно осей x_3 и x_4 , зависящей от x_1 , x_2 и x_5 .

Поверхность отклика

$$y_2 - y_{2н} = -1,063X_3^2 - 1,91(x_4 + 0,369)^2 \quad (134)$$

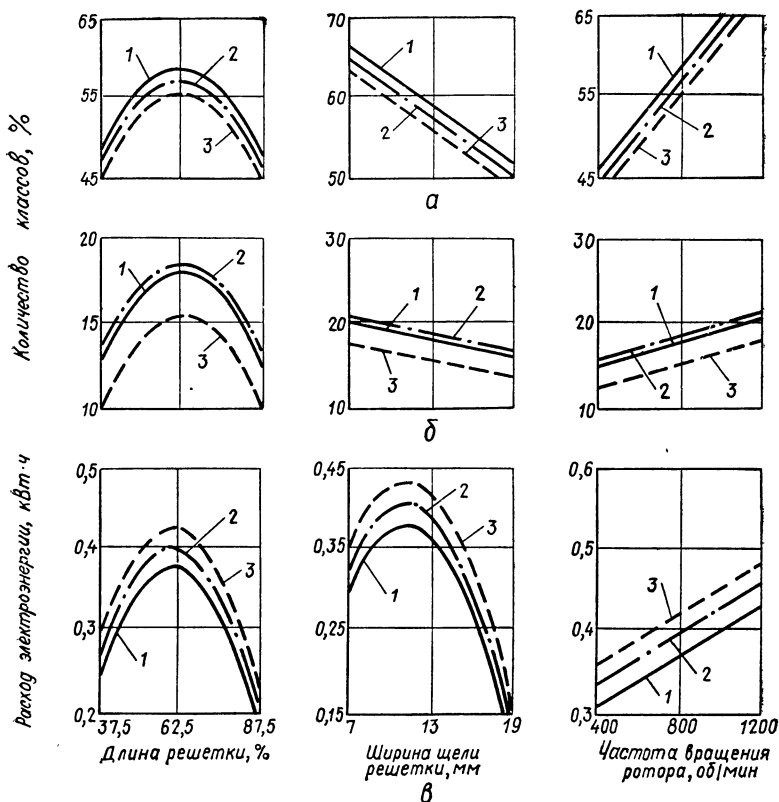


Рис. 31. Графики зависимостей при измельчении угля марки Г от длины решетки, ширины ее щелей и частоты вращения ротора дробилки при производительности 700 кг/ч:

а — количества классов 3—0 мм; б — количества классов 0,5—0 мм; в — расхода электроэнергии; 1 — при влажности измельчаемого угля 5%; 2 — 6%; 3 — 7%.

представляет собой эллиптический параболоид, вытянутый по оси x_3 , с координатами центра $x_{3ц} = 0$ и $x_{4ц} = -0,369$. Центр фигуры является максимумом.

Поверхность отклика

$$y_3 - (0,397 - 0,0156x_1 - 0,0507x_2 + 0,03x_5 - 0,045x_1^2 - 0,046x_2^2) = 0,0695x_3 + 0,0244x_4 \quad (135)$$

Таблица 60

Значения величины $y_{1ц}$ при дискретных значениях факторов

Факторы	$x_1 = x_2 = 0;$ $x_5 = 2$	$x_1 = x_2 = 0;$ $x_5 = -2$	$x_1 = x_2 =$ $= x_5 = 0$	$x_1 = x_5 = 0;$ $x_2 = -2$	$x_1 = x_5 = 0;$ $x_2 = 2$	$x_1 = \pm 2;$ $x_2 = x_5 = 0$
$y_{1ц}$	87,88	72,362	80,12	78,096	75,272	76,272
$x_{4ц}$	3,55	—0,276	1,53			
$x_{3ц}$	0,635					

представляет собой плоскость — стационарное возвышение с постоянной крутизной относительно осей x_3 и x_4 , равной соответственно 0,0695 и 0,0244.

По полученным зависимостям построены графики контурных кривых равных значений выходов классов ниже 3 и 0,5 мм и расходов электроэнергии на измельчение при различных значениях конструктивных факторов (рис. 27 и 28). Для удобства сравнения графики, построенные в нулевых уровнях конструктивных факторов (рис. 27, б и д и 28, б и д) для каждой марки угля повторяются.

Исследование уравнений регрессии относительно конструктивных факторов выполнялось при значениях влажности и производительности на нулевом уровне. В канонической форме уравнения регрессии представляются в следующем виде.

1. Для угля марки Ж:

$$y_1 - 81,1 = 4,681x_5 - 0,962x_1^2 - 0,734(x_2 + 0,652)^2. \quad (136)$$

Центр фигуры имеет координаты: $x_{1ц} = 0$; $x_{2ц} = -0,652$; $x_{5ц} = \infty$.

Правая часть уравнения (136) представляет собой эллиптический параболоид, сечение которого $x_5 = \text{const}$ является эллипсом, вытянутым по оси x_2 . Максимум фигуры расположен в бесконечности на оси x_5 , т. е. при движении по оси $+x_5$ выход класса ниже 3 мм увеличивается, а при движении в любые стороны осей x_1 и x_2 при $x_5 = \text{const}$ содержание класса ниже 3 мм в измельченном угле уменьшается. Это значит, при увеличении частоты вращения ротора выход класса ниже 3 мм повышается до 100%, при увеличении длины решетки и ширины ее щелей — проходит через максимум (при $x_5 = \text{const}$) в точке центра фигуры с указанными координатами.

Поверхность отклика

$$y_2 - 35,133 = 1,952x_5 - 0,99(x_1 + 0,367)^2 \quad (137)$$

представляет собой гребень с возрастающим возвышением при движении по оси x_5 ; крутизна наклона равна 1,952. Центр фигуры с координатой $x_{1ц} = -0,367$ удален в бесконечность по оси x_5 .

Тенденция роста класса ниже 0,5 мм такая же, как и в предыдущем случае класса ниже 3 мм. Однако при увеличении частоты вращения ротора выход класса ниже 0,5 мм пропорционален 1,952, а класса ниже 3 мм — 4,681. Выход класса ниже 0,5 мм не зависит от x_2 , при движении по оси x_1 проходит через максимум при $x_1 = -0,367$.

Поверхность

$$y_3 - 0,1656 = -0,091X_1^2 + 0,0301X_5^2 - 0,017X_2^2 \quad (138)$$

имеет центр с координатами $x_{1ц} = -0,11$; $x_{2ц} = -0,626$; $x_{5ц} = -1,38$, являющийся минимаксом, в котором расход электроэнергии равен $y_{3ц} = 0,1656$ кВт · ч. При движении в направлении осей X_1 и X_2 расход электроэнергии будет уменьшаться, а в направлении оси X_5 — увеличиваться.

2. Для угля марки Г:

$$y_1 - 56,78 = -3,65x_2 + 6,171x_5 - 2,757X_1^2. \quad (139)$$

Центр фигуры имеет координаты $x_{1ц} = 0$; $x_{2ц} = \infty$; $x_{5ц} = \infty$. Поверхность отклика представляет собой гребень с возрастающим возвышением при движении по осям $+x_5$ и $-x_2$, равным 3,65 и 6,171, т. е. количество класса ниже 3 мм увеличивается при повышении x_5 пропорционально 6,171, а при увеличении x_2 уменьшается пропорционально 3,65. При движении по оси x_1 проходит через максимум при $x_1 = 0$.

$$y_2 - 18,72 = -0,967x_2 + 1,45x_5 - 1,518x_1^2 \quad (140)$$

аналогична предыдущей и имеет центр с координатами $x_{1ц} = 0$; $x_{2ц} = \infty$; $x_{5ц} = \infty$.

Тенденция роста класса ниже 0,5 мм такая же, как и в предыдущем случае класса ниже 3 мм. Однако с увеличением x_5 рост класса ниже 0,5 мм отстает от роста класса ниже 3 мм в 4,25 раза.

Поверхность

$$y_3 - 0,4123 = 0,03x_5 - 0,045X_1^2 - 0,046X_2^2 \quad (141)$$

имеет центр с координатами $x_{1ц} = -0,173$; $x_{2ц} = -0,551$; $x_{5ц} = \infty$. Правая часть уравнения представляет собой эллиптический параболоид, сечение которого $x_5 = \text{const}$ близко к окружности. Максимум фигуры расположен в бесконечности на оси x_5 , т. е. при движении по оси $+x_5$ расход электроэнергии увеличивается, а при движении в любые стороны осей X_1 и X_2 от центра сечения (при $x_5 = \text{const}$) — уменьшается.

Попытаемся дать конкретную технологическую интерпретацию результатов исследований.

Технологические факторы влияют на показатели работы молотковой дробилки следующим образом:

1. Повышение производительности дробилки, измельчающей уголь марки Ж (см. рис. 27), при прочих равных условиях приводит сначала к повышению содержания классов ниже 3 и 0,5 мм,

а затем к снижению. Такой характер зависимости указывает на существование оптимума по производительности, зависящего от конструктивных факторов. Следовательно, для каждой конструкции молотковой дробилки в каждом отдельном случае необходимо определить оптимальную производительность по соотношению выходов классов ниже 3 и 0,5 мм и затем, с целью получения стабильного уровня помола, строго ее выдерживать.

При измельчении угля марки Г (см. рис. 28) влияние производительности на выход класса ниже 3 мм обусловлено значениями конструктивных факторов. Так, при минимальных частоте вращения ротора, ширине щели и длине решетки выход класса ниже 3 мм снижается при повышении производительности. Объясняется это следующим:

а) уменьшение частоты вращения ротора ухудшает эффект ударного измельчения молотками, а процесс просеивания через решетку улучшается благодаря уменьшению скорости транспортирования угля по решетке;

б) увеличение ширины щелей решетки способствует улучшению процесса входа частиц угля в щели, что приводит к снижению содержания класса ниже 3 мм в измельченном угле;

в) уменьшение длины решетки приводит к уменьшению живого сечения ее и увеличению, таким образом, высоты слоя угля, транспортируемого молотками по решетке, что увеличивает относительное давление угля на молоток, влияющее на более интенсивный вход частиц угля в щели решетки.

Выход класса ниже 0,5 мм при измельчении угля марки Г при повышении производительности сначала увеличивается, а затем снижается — это дает возможность установить оптимальные соотношения выходов классов ниже 3 и 0,5 мм. Расход электроэнергии на измельчение изменяется пропорционально производительности, но для газового угля он в 2,32 раза больше, чем для жирного.

2. Содержание влаги в измельчаемом угле по-разному сказывается на показателях работы дробилки. При измельчении угля марки Ж (см. рис. 27) содержание влаги в нем влияет на выход класса ниже 3 мм, но в зависимости от производительности дробилки. При определенных значениях производительности повышение влажности угля приводит и к уменьшению выхода класса ниже 3 мм и к его увеличению. Это явление объясняет противоречие результатов исследований, которые встречаются в литературе*. Выход класса ниже 0,5 мм снижается при увеличении влажности угля.

Таким образом, существует тесная связь между влажностью измельчаемого угля, производительностью дробилки, ее конструктивными параметрами и выходом классов ниже 3 и 0,5 мм.

* Например, Барабашкин В. П. Молотковые и роторные дробилки. М., Госгортехиздат, 1973 г. и Лазовский И. М. Влияние изменения различных параметров работы молотковых дробилок на степень измельчения углей. — В кн.: «Подготовка и коксование углей». Свердловск, Metallургиздат, 1963 г.

При измельчении угля марки Г (см. рис. 28) увеличение влажности его приводит к снижению выхода класса ниже 3 мм; выход же класса ниже 0,5 мм сначала повышается, а затем снижается. Расход электроэнергии на измельчение угля марки Ж не зависит от его влажности и повышается только при увеличении частоты вращения ротора, а при измельчении угля марки Г повышается с увеличением влажности.

3. Прочность измельчаемого угля заметно сказывается на показателях работы дробилки (см. рис. 27 и 28). Так, выход классов ниже 3 и 0,5 мм (по соотношению) после измельчения угля марки Ж примерно на 50—60% больше, чем в газовом, а расход электроэнергии на измельчение газового угля на 50—60% больше, чем жирного.

Конструктивные факторы влияют на показатели работы дробилки следующим образом:

1. Увеличение ширины щели решетки до 10 мм при измельчении угля марки Ж (см. рис. 27, а, 29, а и 30) приводит сначала к некоторому увеличению выхода класса ниже 3 мм, а затем к его снижению. Расход электроэнергии при этом несколько увеличивается, а затем резко снижается. Выход класса ниже 0,5 мм не зависит от ширины щели.

При измельчении газового угля выход классов ниже 3 и 0,5 мм снижается с увеличением ширины щелей решетки; расход электроэнергии сначала несколько повышается, а затем резко падает. Повышение влажности углей от 5 до 7% уменьшает выход классов ниже 3 и 0,5 мм в среднем на 2,5% (см. рис. 30 и 31).

Учитывая то, что скорость выхода из дробилки отделяемых частиц угля пропорциональна их концентрации в исходной смеси, целесообразно в начале решетки устанавливать секции с более широкими щелями. Это приведет к быстрейшему удалению из дробилки класса ниже 3 мм и снижению расхода электроэнергии.

2. При измельчении углей марок Ж и Г (см. рис. 29—31) увеличение длины решетки приводит сначала к увеличению выхода классов ниже 3 и 0,5 мм, а затем к снижению, но расход электроэнергии при этом резко падает, особенно при измельчении угля марки Ж. Резкое снижение расхода электроэнергии позволяет увеличить производительность дробилки, что в сочетании с размерами ширины щелей решетки будет способствовать повышению выхода класса ниже 3 мм. Соотношение классов ниже 3 и 0,5 мм при изменении длины решетки остается почти постоянным.

3. Частота вращения ротора существенно влияет на показатели работы дробилки — при увеличении частоты повышается выход классов ниже 3 и 0,5 мм. Однако выход класса ниже 0,5 мм несколько меньше выхода класса ниже 3 мм. Так, при измельчении жирного угля (см. рис. 29 и 30) увеличение частоты вращения ротора в три раза (с 400 до 1200 об/мин) приводит к повышению выхода класса ниже 3 мм в 1,26, а класса ниже 0,5 мм — в 1,25 раза; при измельчении же газового угля (см. рис. 29, б и 31) — соответствен-

но в 1,52 и 1,37 раза. Таким образом, увеличение частоты вращения ротора не является основной причиной образования класса ниже 0,5 мм особенно при измельчении газового угля и поэтому целесообразным является применение максимальной частоты вращения роторов, но в пределах обеспечения нормальной работы дробилки и ее эксплуатации. На практике установлено, что приемлемой частотой вращения роторов может быть частота, равная 1000 об/мин.

Увеличение частоты вращения ротора приводит к увеличению расхода электроэнергии (см. рис. 29—31). При увеличении частоты вращения ротора в три раза (с 400 до 1200 об/мин) расход электроэнергии увеличивается в 2,14 раза при измельчении жирного угля и в 1,34 раза при измельчении газового угля. Увеличение же длины решетки способствует резкому снижению расхода электроэнергии (см. рис. 29) и при увеличении частоты вращения ротора приводит к повышению выхода класса ниже 3 мм.

Таким образом, всесторонние лабораторные исследования процесса измельчения углей в молотковой дробилке позволили установить закономерности влияния основных технологических и конструктивных факторов на показатели работы дробилки и использовать их как при разработке новых конструкций дробилки, так и при установлении более рациональных режимов работы дробилок при эксплуатации. В частности, полученные результаты положены в основу новой дробилки. Установка только одной такой дробилки на Нижне-Тагильском металлургическом комбинате дала экономический эффект в сумме 25 тыс. руб. в год.

Глава 7. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ СИМПЛЕКСНО-РЕШЕТЧАТОГО ПЛАНИРОВАНИЯ

Исследование зависимости насыпной массы угля от его гранулометрического состава*

В связи с внедрением на большинстве коксохимических заводов технологических схем раздельного измельчения углей и шихт имеется возможность укрупнения гранулометрического состава шихты с учетом технологических свойств углей. Это необходимо для дальнейшего увеличения насыпной массы загрузки в коксовые камеры и совершенствования и интенсификации работы дробильных агрегатов. Оптимальное укрупнение помола углей и шихт на действующих заводах является наиболее реальным путем повышения производительности коксовых печей.

При обычной влажности шихты уплотнение ее без существенных затрат может быть достигнуто оптимальным сочетанием крупных и мелких фракций, обеспечивающим получение максимальной

* Работа велась совместно с А. Г. Дюкановым.

насыпной массы шихты. Как известно, при коксовании уплотненной угольной загрузки образуется кокс повышенной плотности и меньшей истираемости, что является одним из основных требований к качеству кокса. Однако верхний предел крупности зерен шихты для улучшения качества кокса необходимо ограничить. Следовательно, назрела необходимость количественного определения сочетания разных классов крупности угля в шихте, которая обеспечила бы ее максимальную насыпную массу.

В зарубежных исследованиях большое внимание уделяется оптимизации гранулометрического состава шихты с целью получения максимальной насыпной массы загрузки и улучшения качества кокса [29, 30]. Считается, например, что содержание в шихте пылевидной фракции должно быть на уровне 34,1%. В этом случае обеспечивается наилучшее качество кокса по показателям M_{40} и M_{10} [20].

Из исследований УХИНа следует, что кокс из донецких углей имеет наилучшие показатели по качеству при содержании в шихте 38—45% фракции ниже 0,5 мм. Учитывая необходимость ограничения верхнего предела крупности шихты, а также то обстоятельство, что промышленная шихта состоит, в основном, из зерен угля размером ниже 6 мм, ее гранулометрический состав оценили пятью классами. Для опытов использовали газовый уголь Добропольской ЦОФ в воздушно-сухом состоянии с размерами частиц, указанными в табл. 61. Зависимость показателя насыпной массы от сочетания классов крупности, принятых для газового угля, практически такова же и для шихты.

Таблица 61

Гранулометрический состав испытываемого угля

Размер зерен угля, мм	6—3	3—1	1—0,5	0,5—0,25	0,25—0
Обозначение долевого участия . . .	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5

Определение показателя насыпной массы загрузки проводилось в аппарате А. А. Агроскина. Из работ ВУХИНа известно, что в коксовой камере наблюдается та же зависимость показателя насыпной массы загрузки от технологических факторов, что и в аппарате А. А. Агроскина. По абсолютной величине показатель насыпной массы шихты в коксовой камере на 6—8% выше.

Измельченный газовый уголь разделили на классы крупности, из которых составляли экспериментальные смеси (табл. 62). Среднюю величину насыпной массы загрузки определяли из пяти параллельных измерений. При этом факторное пространство представляет собой правильный симплекс: $\sum_{i=1}^q x_i = 1$, $x_i \geq 0$, $i = 1, 2, \dots, q$ с q вершинами в $(q - 1)$ -мерном пространстве. Здесь x_i — долевое

Результаты основного эксперимента

Обозначение (подстрочный индекс) отклика	Доля компонента в смеси					Среднее значение \bar{y}	Дисперсия* $s^2 \{y\}$
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5		
1	1	0	0	0	0	658,29	9,25
2	0	1	0	0	0	674,36	7,84
3	0	0	1	0	0	627,78	11,51
4	0	0	0	1	0	616,13	4,88
5	0	0	0	0	1	639,58	2,49
123	0,333	0,333	0,333	0	0	741,13	46,76
124	0,333	0,333	0	0,333	0	782,77	16,49
125	0,333	0,333	0	0	0,333	828,21	17,43
134	0,333	0	0,333	0,333	0	739,48	43,63
135	0,333	0	0,333	0	0,333	820,64	12,80
145	0,333	0	0	0,333	0,333	788,90	15,80
234	0	0,333	0,333	0,333	0	706,15	8,97
235	0	0,333	0,333	0	0,333	787,33	1,45
245	0	0,333	0	0,333	0,333	760,49	5,75
345	0	0	0,333	0,333	0,333	716,00	1,03
112	0,666	0,333	0	0	0	702,12	3,87
113	0,666	0	0,333	0	0	765,56	8,95
114	0,666	0	0	0,333	0	797,59	44,10
115	0,666	0	0	0	0,333	842,17	16,76
223	0	0,666	0,333	0	0	700,86	3,54
224	0	0,666	0	0,333	0	750,24	0,93
225	0	0,666	0	0	0,333	811,95	3,15
334	0	0	0,666	0,333	0	650,80	36,92
335	0	0	0,666	0	0,333	739,27	7,62
445	0	0	0	0,666	0,333	680,92	25,60
122	0,333	0,666	0	0	0	696,18	22,69
133	0,333	0	0,666	0	0	712,30	34,87
144	0,333	0	0	0,666	0	721,83	5,94
155	0,333	0	0	0	0,666	756,11	1,23
233	0	0,333	0,666	0	0	672,56	59,38
244	0	0,333	0	0,666	0	695,89	0,98
255	0	0,333	0	0	0,666	732,35	11,47
344	0	0	0,333	0,666	0	640,23	23,33
355	0	0	0,333	0	0,666	694,34	10,04
455	0	0	0	0,333	0,666	665,77	3,56

* Дисперсия ошибки эксперимента $s^2 \{\bar{y}\} = 15,17$; $f = 140$.

участие i -го компонента смеси, а q — число компонентов. При $q = 3$ симплекс представляет собой правильный треугольник, при $q = 4$ — правильный четырехгранник.

Таким образом, если при прочих равных условиях насыпная масса газового угля зависит от его гранулометрического состава, задача эксперимента состоит в том, чтобы наилучшим образом выбрать оптимальное число точек гранулометрического состава, принадлежащих симплексу, провести в них измерения и по значению

функции (насыпной массы) в этих точках получить уравнение зависимости:

$$y = f(x_1, x_2, \dots, x_q).$$

Для представления указанной зависимости полиномами низшего порядка используют метод симплексно-решетчатого планирования эксперимента. Идея метода заключается в том, что опыты проводятся со смесями определенного состава, представляющими узлы симплексной решетки $\{q, n\}$. Представляет собой $\{q, n\}$ -решетка набор точек вида

$$(x_1, x_2, \dots, x_q); x_i = 0, \frac{1}{n}, \frac{2}{n}, \dots, 1 \text{ и } \sum_{i=1}^q x_i = 1,$$

где n — степень полинома.

Результаты реализации симплексно-решетчатого плана эксперимента ($\{5, 3\}$ -решетки) для описания зависимости полиномом степени $n = 3$ приведены в табл. 63.

Таблица 63

Результаты критического эксперимента

Обозначение (подстроичный индекс) от- клика	Доля компонента в смеси					Значение \bar{y}		Диспер- сия*
	x_1	x_2	x_3	x_4	x_5	среднее	пред- сказанное	
1234	0,25	0,25	0,25	0,25	0	748,40	755,33	2,34
1235	0,25	0,25	0,25	0	0,25	825,78	825,64	2,34
1245	0,25	0,25	0	0,25	0,25	817,31	816,12	2,34
1345	0,25	0	0,25	0,25	0,25	782,12	782,95	2,34
2245	0	0,25	0,25	0,25	0,25	757,09	759,77	2,34
2345	0,20	0,20	0,20	0,20	0,20	797,65	800,33	1,77
1111	0,15	0,25	0,15	0,20	0,25	798,80	799,44	1,74
1112	0,10	0,20	0,20	0,25	0,25	783,33	777,08	1,78

* Дисперсия предсказанных значений \bar{y} определялась по формулам работы [25].

Построение модели. Коэффициенты регрессии полиномиальной модели третьего порядка определяли по формуле (84). После подстановки расчетных значений коэффициентов регрессии уравнение принимает вид

$$\begin{aligned} \bar{y} = & 658,3x_1 + 674,4x_2 + 627,8x_3 + 616,1x_4 + 639,6x_5 + 147,7 \times \\ & \times x_1x_2 + 431,5x_1x_3 + 551,2x_1x_4 + 675,9x_1x_5 + 160,4x_2x_3 + 350,2 \times \\ & \times x_2x_4 + 518,3x_2x_5 + 106,0x_3x_4 + 374,0x_3x_5 + 204,7x_4x_5 + 76,3 \times \\ & \times x_1x_2(x_1 - x_2) + 129,3x_1x_3(x_1 - x_3) + 416,5x_1x_4(x_1 - x_4) + 538,8 \times \\ & \times x_1x_5(x_1 - x_5) + 86,2x_2x_3(x_2 - x_3) + 235,8x_2x_4(x_2 - x_4) + 459,0 \times \\ & \times x_2x_5(x_2 - x_5) + 45,1x_3x_4(x_3 - x_4) + 329,8x_3x_5(x_3 - x_5) + 155,0 \times \\ & \times x_4x_5(x_4 - x_5) + 147,8x_1x_2x_3 + 448,3x_1x_2x_4 + 855,8x_1x_4x_5 - 420,2 \times \\ & \times x_1x_3x_4 + 381,9x_1x_3x_5 - 221,3x_1x_4x_5 - 48,2x_2x_3x_4 + 624,2 \times \\ & \times x_2x_3x_5 - 57,0x_2x_4x_5 + 326,2x_3x_4x_5. \end{aligned} \quad (142)$$

Проверка адекватности уравнения (142). Так как $\{q, n\}$ -решетка (в нашем случае $\{5, 3\}$ -решетка) представляет собой насыщенный план для полинома степени $n = 3$ (по 35 опытам решетки определяется 35 коэффициентов полинома), то проверку адекватности проводили по специально поставленным критическим опытам (проверочным точкам). Результаты критических опытов, а также предсказанные по уравнению (142) величины отклика (насыпной массы) в этих точках и оценки дисперсий отклика $s^2\{y\}$ представлены в табл. 63.

Проверка адекватности по критерию Стьюдента:

$$t = \frac{\Delta y \sqrt{r}}{\sqrt{s^2\{\bar{y}\} + s^2\{\tilde{y}\}}} \leq t_{(d/2k; n)}, \quad (143)$$

где $\Delta y = |\bar{y} - \tilde{y}|$, \bar{y} — среднее значение насыпной массы по z наблюдениям в данной точке; $d/2k$ — уровень значимости; k — число контрольных точек.

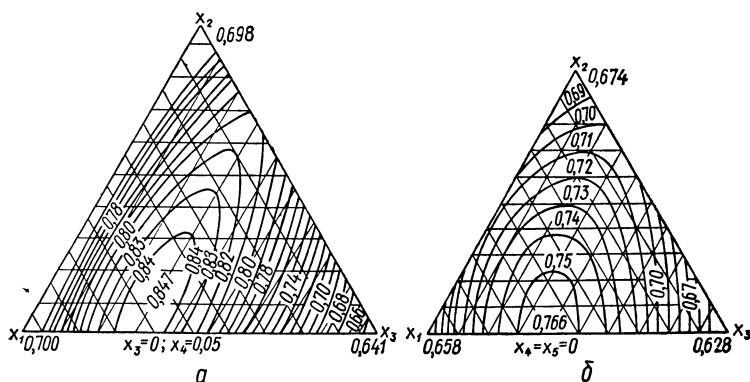


Рис. 32. Проекция линий равной насыпной массы на трехкомпонентный симплекс:

а — при $x_4 = 0$ и $x_5 = 0,05$; б — при $x_4 = x_5 = 0$.

Проверкой установлено, что полученное кубическое уравнение (142) адекватно описывает зависимость насыпной массы газового угля от его гранулометрического состава.

Исследование поверхности отклика заключалось в определении на ЭВМ «Минск-22» экстремумов функции отклика и расположения поверхностей равных значений отклика в факторном пространстве. Проведенные расчеты показали, что максимальная величина насыпной массы газового угля $y_{\text{макс}} = 847,4 \text{ кг/м}^3$ соответствует гранулометрическому составу: $x_1 = 0,55$; $x_2 = 0,10$; $x_3 = 0$; $x_4 = 0,05$; $x_5 = 0,30$, а минимум приходится на частицы класса крупности $0,5-0,25 \text{ мм}$ ($x_4 = 1,0$). Графически это показано на рис. 32.

В точке $y_{\text{макс}}$ были поставлены дополнительные опыты, которые дали значения показателя максимальной насыпной массы газового

угля в пределах 847—865 кг/м³. В промышленных условиях величина \bar{y} на 6—8% выше и, следовательно, превышает 900 кг/м³.

Поскольку поверхность отклика 5-компонентной системы четырехмерна, то графически она может быть представлена большим числом трехкомпонентных сечений в виде проекций линий равной насыпной массы на симплекс (рис. 32).

Проведенное исследование позволило сделать ряд выводов:

1. Максимальная насыпная масса газового угля соответствует гранулометрическому составу, приведенному в табл. 64. Чем менее однороден гранулометрический состав угля (чем меньше количество частиц средних классов крупности), тем выше насыпная масса угля.

2. Оптимальное содержание в угле (шихте) мелких частиц (ниже 0,5 мм) находится в пределах 35—40%. Чем дальше от этого диапазона, тем более резко уменьшается величина насыпной массы угля (шихты).

Таблица 64

Гранулометрический состав при максимальной насыпной массе угля

Классы крупности, мм	6—3	3—1	0,5—0,25	0,25
Содержание класса, %	55	10	5	30

При полном отсутствии пыли в шихте ее насыпная масса должна уменьшиться на 6—8%: с $y_{1, 2, 3, 4, 5} = 0,80$ до $y_{1, 2, 3} = 0,74$.

3. Требуемый гранулометрический состав шихты максимальной насыпной массы приблизительно может быть достигнут применением схем раздельного дифференцированного измельчения предварительно подсушенных углей (шихты). Для этого угли (шихту) необходимо измельчать, отсеивать частицы размером более 6 мм и путем их доизмельчения регулировать гранулометрический состав шихты.

4. Для определения зависимости между гранулометрическим составом шихты, который обеспечивает получение ее максимальной массы, и качеством кокса необходимо провести опытные коксования на 200-килограммовой печи.

Зависимость между петрографическим составом углей и их спекаемостью*

Известно, что основные группы микрокомпонентов в угле обладают различными свойствами, в том числе и различной спекаемостью. В усредненных пробах углей, представляющих собой смеси микрокомпонентов в различных соотношениях, каждый из видов петрографических составляющих оказывает на свойства углей определенное влияние, которое зависит от характера их взаимодействия в протекающих процессах. Однако взаимодействие микрокомпонентов

* Исследование проведено совместно с А. М. Мирошниченко.

Характеристика изучаемых концентратов Таблица 65

Показатель	Концентраты								
	витринита			фюзинита			лейптинита		
	I*	II	III	I	II	III	I	II	III
Отражательная способность R^a , % Петрографический состав концентратов (по основным группам), %: ut F L	0,56 94 3 3 37,61	0,63 95 1 4 39,99	0,72 93 4 3 41,68	2,55 13 85 2 24,01	2,91 4 94 2 18,28	2,55 13 85 2 24,01	0,33 17 12 71 59,47	0,43 8 8 84 67,39	0,43 17 12 71 60,5
Выход летучих веществ V^r , % Элементарный состав на органическую массу, %: C H N O S	80,64 5,32 1,53 11,73 0,68	82,64 5,20 1,67 10,09 0,40	83,30 5,83 1,68 8,15 1,04	86,29 4,07 0,88 8,31 0,45	89,06 3,76 0,87 6,05 0,26	86,29 4,07 0,88 8,31 0,45	82,98 6,70 1,20 8,36 0,76	83,94 7,19 1,07 6,99 0,81	84,01 6,89 1,20 6,51 1,31
Плотность ρ^o , г/см ³ Теплота сгорания Q^o , МДж/кг Толщина пластического слоя Y , мм Индекс $Roga$ R Индекс вспучивания по ИГИ-ДМети I_B , мм	— 32,39 0 16 0	1,328 32,9 13 57 82	1,329 34,48 22 77 108	— 33,128 — 0 0	1,484 34,153 — 0 0	— 33,128 — 0 0	— 34,6 — 41 89	1,224 35,998 — 54 86	1,223 36,03 — 48 89

* I, II, III — серии опытов.

углей при спекании изучено мало, не выяснено также взаимовлияние петрографических составляющих при термических превращениях.

Авторы провели экспериментальное изучение степени и характера взаимодействия основных групп петрографических составляющих углей в процессах спекания. Были исследованы нижнекарбоновые угли шахты № 4 (пласт c_8^H), шахты № 20—23 (пласт c_4) и шахты № 3 (пласт c_6^{lb}). Первый из углей — малометаморфизованный слабо-спекающийся (длиннопламенный) с $R^a \approx 7,2\%$, два других — малометаморфизованные спекающиеся (газовые), различающиеся степенью метаморфизма с $R^a \approx 7,5$ и $7,8\%$. Из каждой пробы были выделены концентраты основных групп микрокомпонентов: витринита, фюзинита и лейптинита. Основные свойства изучаемых концентратов приведены в табл. 65.

Смеси микрокомпонентов, подвергающиеся испытаниям, были составлены из трех компонентов: концентрата витринита, концентрата лейптинита и третьего компонента, состоящего на 50% из концентрата витринита и на 50% из фюзинита, поскольку угли с более высоким содержанием фюзинита встречаются в природе редко. Для испытания исследованных смесей был принят метод Рога (ГОСТ 9318—70), характеризующий спекаемость углей и позволяющий производить определения в малых навесках.

При изучении свойств трехкомпонентных смесей факторное пространство определяет собой правильный треугольник, задача эксперимента заключается в том, чтобы наилучшим образом выбрать оптимальное количество точек состава, принадлежащих этому треугольнику, провести в них измерения свойств (индекса Рога) и представить зависимость $R = f(x_1, x_2, x_3)$, где R — показатель индекса Рога, а $x_{1,2,3}$ — долевое участие каждого компонента в смеси, полиномом низшего порядка. Для решения поставленной задачи был использован метод симплексно-решающего планирования. Поскольку степень полинома заранее неизвестна, то для малометаморфизованного угля ($R^a = 7,5\%$) средней спекаемости опыты ставились отдельными сериями с последовательной проверкой пригодности степени полинома от $n = 2$ до $n = 4$. Результаты эксперимента со смесями концентратов микрокомпонентов указанного угля приведены в табл. 66.

Результаты расчетов показали, что исследуемая зависимость $R = f(x_1, x_2, x_3)$ адекватно описывается полиномом четвертой степени:

$$\begin{aligned} R = & 57,18x_1 + 54,5x_2 + 18,0x_3 + 15,44x_1x_2 + 7,64x_1x_3 + \\ & + 28,8x_2x_3 + 7,95x_1x_2(x_1 - x_2) + 36,53x_1x_3(x_1 - x_3) - \\ & - 32,0x_2x_3(x_2 - x_3) - 41,39x_1x_2(x_1 - x_2)^2 - 68,96x_1x_3 \times \\ & \times (x_1 - x_3)^2 - 6,83x_2x_3(x_2 - x_3)^2 - 474,72x_1^2x_2x_3 + \\ & + 593,17x_1x_2^2x_3 + 402,61x_1x_2x_3^2. \end{aligned} \quad (144)$$

Таблица 66

**Спекаемость смесей концентратов
петрографических микрокомпонентов угля ($R^a = 7,5\%$)**

Серия опы- тов	Номер опыта	Обоз- наче- ние от- клика смеси	Доля компонента в смеси			Индекс $R_{\text{ог}}$				Сред- нее значе- ние
			x_1	x_2	x_3	1	2	3	4	
I	1	R_1	1	0	0	57,05	57,31	—	—	57,18
	2	R_2	0	1	0	52,09	55,14	56,27	—	54,50
	3	R_3	0	0	1	20,00	16,65	17,46	17,82	18,00
	4	R_{12}	0,5	0,5	0	63,81	58,01	57,54	59,46	59,70
	5	R_{13}	0,5	0	0,5	41,42	39,43	38,50	38,63	39,50
	6	R_{23}	0	0,5	0,5	43,49	44,96	41,90	—	43,45
II	7	R_{112}	0,666	0,333	0	61,78	65,13	64,74	—	63,88
	8	R_{113}	0,666	0	0,333	48,76	46,50	45,51	—	46,92
	9	R_{122}	0,333	0,666	0	55,19	62,89	59,20	—	59,09
	10	R_{133}	0,333	0	0,666	29,66	65,13	64,74	—	30,75
	11	R_{233}	0	0,333	0,666	32,89	35,72	37,18	—	35,26
	12	R_{223}	0	0,666	0,333	53,67	47,31	51,01	—	50,66
	13	R_{123}	0,333	0,333	0,333	52,86	51,14	54,45	—	52,82
III	14	R_{1112}	0,75	0,25	0	58,45	54,61	61,58	—	58,21
	15	R_{1113}	0,75	0	0,25	51,75	48,36	46,91	—	49,01
	16	R_{2223}	0	0,75	0,25	50,83	46,60	44,70	—	47,38
	17	R_{2333}	0	0,25	0,75	36,10	36,36	32,92	—	35,13
	18	R_{1333}	0,25	0	0,75	24,23	22,29	21,18	—	22,57
	19	R_{1222}	0,25	0,75	0	51,22	59,38	55,55	—	55,38
	20	R_{1123}	0,50	0,25	0,25	55,18	49,66	52,02	—	52,29
	21	R_{1223}	0,25	0,50	0,25	57,60	61,75	58,00	—	59,12
	22	R_{1233}	0,25	0,25	0,50	47,54	50,91	48,23	—	48,91
	23	R_{ij}	0,133	0,237	0,63	46,36	48,20	47,30	—	47,29

Примечание. $\sigma^2 \{R\} = 6,235$; $f = 48$.

Адекватность определяли по результатам опытов серии II и опыту № 23, которые не учитывались при расчетах коэффициентов полинома по уравнению (144)*. Предполагая, что и для остальных углей показатель степени $n = 4$, авторы ограничили эксперимент только опытами I и III серий. Результаты измерений приведены в табл. 67.

Аналогичные расчеты показали, что исследованные зависимости адекватно описываются следующими уравнениями:

для малометаморфизованного слабоспекающегося (длиннопламенного) угля ($R^a = 7,2\%$)

$$R = 16,02x_1 + 41,35x_2 + 11,39x_3 + 53,78x_1x_2 + 3,22x_1x_3 - \\ - 14,36x_2x_3 + 13,57x_1x_2(x_1 - x_2) - 6,96x_1x_3(x_1 - x_3) -$$

* Эти опыты не являются узлами решетки {3, 4}.

Спекаемость смесей концентратов групп петрографических микрокомпонентов
слабоспекающегося ($R^a=7,2\%$) и хорошо спекающегося ($R^a=7,8\%$) углей

Номер опыта	Обозна- чение отклоня смеси	Доля компонента в смеси			Метаморфизованный слабоспекающийся уголь ($R^a=7,2\%$) о индексом R^a				Малометаморфизованный хорошо спекающийся уголь ($R^a=7,8\%$) о индексом R^a			
		x_1	x_2	x_3	1	2	3	Среднее значение индекса	1	2	3	Среднее значение индекса
1	R_1	1	0	0	16,58	15,45	16,02	16,02	73,90	77,30	70,00	76,73
2	R_2	0	1	0	44,17	40,32	39,56	41,35	51,56	44,46	48,27	48,10
3	R_3	0	0	1	11,77	11,00	11,43	11,39	34,08	33,45	36,58	34,70
4	R_{12}	0,5	0,5	0	45,56	38,93	41,90	42,13	65,43	62,80	64,16	64,13
5	R_{13}	0,5	0	0,5	14,06	14,38	15,08	14,51	65,30	63,67	63,55	64,17
6	R_{23}	0	0,5	0,5	21,39	23,05	23,90	22,78	42,18	49,12	50,26	47,19
7	R_{1112}	0,75	0,25	0	29,48	33,92	30,64	31,35	63,01	53,68	57,55	58,08
8	R_{1113}	0,75	0	0,25	14,90	15,05	14,31	14,75	67,98	66,76	69,33	68,02
9	R_{2223}	0	0,75	0,25	25,60	29,50	28,93	28,34	48,27	43,21	45,13	45,54
10	R_{2333}	0	0,75	0,25	16,43	16,35	16,35	16,38	41,12	32,50	40,93	38,18
11	R_{1333}	0,25	0	0,75	14,24	14,05	12,92	13,74	50,26	54,09	48,75	51,03
12	R_{1222}	0,25	0,75	0	40,32	42,11	41,98	41,47	53,24	47,10	53,61	51,32
13	R_{1123}	0,25	0,25	0,25	25,47	20,44	21,88	22,60	54,56	52,35	56,70	54,54
14	R_{1223}	0,25	0,5	0,25	27,01	28,57	31,86	29,15	50,23	47,17	55,05	50,82
15	R_{1233}	0,25	0,5	0,25	18,87	17,39	17,42	17,89	50,24	52,96	50,05	51,42
16	R_{1233}	0,333	0,333	0,333	22,72	21,00	23,32	22,35	51,60	54,21	58,77	54,86
17	R_y	0,216	0,317	0,467	20,06	20,76	22,43	21,08	—	—	—	—

Примечание. $\sigma^2 \{R\} = 2,658$; $f = 34$; $\sigma^2 \{R\} = 9,828$; $f = 32$.

$$\begin{aligned}
 & -16,11x_2x_3(x_2-x_3)-50,32x_1x_2(x_1-x_2)^2-28,11 \times \\
 & \times x_2x_3(x_2-x_3)^2-233,71x_1^2x_2x_3+106,69x_1x_2^2x_3-231,33 \times \\
 & \times x_1x_2x_3^2;
 \end{aligned} \tag{145}$$

для хорошо спекающегося угля ($R^a = 7,8\%$)

$$\begin{aligned}
 R = & 76,53x_1 + 48,10x_2 + 34,70x_3 + 6,86x_1x_2 + 33,82x_1x_3 + \\
 & + 23,16x_2x_3 - 40,29x_1x_2(x_1-x_2) - 21,47x_1x_3(x_1-x_3) - \\
 & - 192,03x_1x_2(x_1-x_2)^2 - 54,0x_1x_3(x_1-x_3)^2 - 82,83 \times \\
 & \times x_2x_3(x_2-x_3)^2 - 360,32x_1^2x_2x_3 - 228,51x_1x_2^2x_3 + \\
 & + 26,85x_1x_2x_3^2.
 \end{aligned} \tag{146}$$

Адекватность проверяли по результатам опытов 16 и 17 (табл. 67).

Поскольку интерес представляет зависимость величины индекса Рога от микрокомпонентного состава смеси, а преобразование переменных x_i в vt , L , F приводит к еще более сложным зависимостям, чем уравнения (144) — (146), результаты исследования поверхности отклика [зависимостей $R = f(vt, L, F)$] представлены

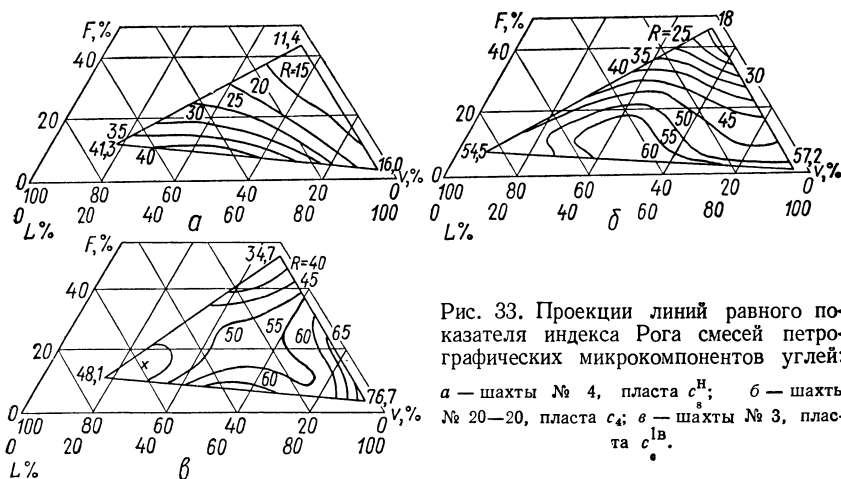


Рис. 33. Проекция линий равного показателя индекса Рога смесей петрографических микрокомпонентов углей:

а — шахты № 4, пласта c^H ; б — шахты № 20—20, пласта c_4 ; в — шахты № 3, пласта c^{Ib} .

графически в виде проекций линий равного показателя индекса Рога на плоскость факторного треугольника (рис. 33). Расчет линий равного показателя R производили на ЭВМ «Искра»*.

На рис. 34 аналогичным образом представлены зависимости величины эффекта взаимодействия микрокомпонентов; за эффект взаимодействия принималось отклонение показателя индекса Рога от аддитивности. Показатель индекса Рога фюзинита и эффекты взаимодействия микрокомпонентов в концентратах витринита и лейптинита принимали равными нулю.

* При участии Л. И. Скляр.

Анализ данных табл. 65 показывает, что с повышением степени метаморфизма в начале ряда нижнекарбонových углей (увеличение R^a от 7,2 до 7,8%) спекаемость витринита заметно увеличивается (от 16 до 77), в то время как у лейптинита она мало изменяется ($R = 41; 54; 48$). Некоторое различие величины индекса Рога в последнем случае можно, по-видимому, объяснить разным содержанием лейптинита в его концентрате ($L = 71; 84; 71$) и различием показателя индекса Рога, присутствовавшего в этом концентрате витринита. Наблюдаемое явление подтверждается и результатами исследования концентратов петрографических составляющих углей по методу ИГИ — ДМетИ. Для витринита индекс вспучивания

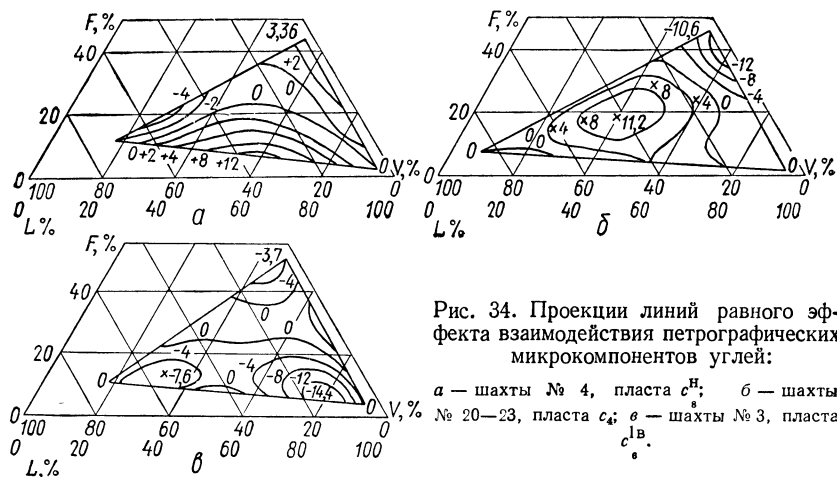


Рис. 34. Проекция линий равного эффекта взаимодействия петрографических микрокомпонентов углей:

а — шахты № 4, пласта c_8^H ; б — шахты № 20—23, пласта c_6 ; в — шахты № 3, пласта c_{1B}^B .

изменяется от 0 до 108, а для лейптинита практически остается постоянным (86 и 89).

В малометаморфизованных углях типа длиннопламенных ($R^a = 7,2\%$) спекаемость и вспучиваемость витринита ниже, чем лейптинита ($R = 16$ и 41 ; $I_b = 0$ и 82). То же наблюдалось и при испытании этих микрокомпонентов в смесях с фюзинитом (рис. 33, а). При исследовании газового угля средней спекаемости ($R^a = 7,5\%$; $y = 13$ мм) установлено, что у лейптинита и витринита данного угля спекаемость почти одинакова ($R = 57$ и 54). В сочетании с фюзинитом лейптинит проявляет несколько более высокую спекаемость, чем витринит (рис. 33, б). Это, по-видимому, объясняется избыточной спекаемостью лейптинита, которая не может проявляться при определении стандартным методом Рога из-за недостаточного количества отошающей присадки. Спекаемость витринита более метаморфизованного угля ($R^a = 7,8\%$) значительно выше, чем лейптинита того же угля. Это относится и к витриниту в смесях с фюзинитом (рис. 33, в).

Для малометаморфизованного неспекающегося угля (длиннопламенный $R^a = 7,2\%$) характерно монотонное падение индекса

Рога при росте фюзинита и витринита (рис. 33, а), поскольку последний в этом же угле так же слабо спекается, как и фюзинит. Интересно отметить, что при содержании в смеси 10—15% фюзинита увеличение содержания витринита до 50—60% не изменяет величину показателя индекса Рога. Это объясняется ростом положительного эффекта взаимодействия витринита и лейптинита, причем максимум эффекта взаимодействия приходится на смесь, содержащую примерно 55% витринита (рис. 34, а). В смесях с небольшим содержанием фюзинита (ниже 20%) наблюдается положительный эффект взаимодействия микрокомпонентов, если при этом содержание лейптинита не превышает 65%. Величина индекса Рога становится аддитивной в области смесей, содержащих от 20—25 до 35% фюзинита при условии, что содержание витринита больше 30%.

Большие изменения показателя индекса Рога наблюдаются при изменении петрографического состава малометаморфизованных спекающихся (газовых) углей ($R^a = 7,5 - 7,8\%$), что обусловлено несколькими ярко выраженными пиками эффекта взаимодействия (рис. 34, б, и в). Для угля средней спекаемости ($R^a = 7,5\%$) наибольшая величина индекса Рога наблюдается в области смесей, ограниченных содержанием витринита 30—70% при содержании фюзинита не более 20% (рис. 33, б). При дальнейшем повышении количества витринита величина индекса Рога снижается. При содержании фюзинита менее 35%, а витринита в пределах 35—80% имеет место положительный эффект взаимодействия микрокомпонентов, который достигает наибольшей величины для смесей с содержанием витринита 30—55% (рис. 34, б).

Область аддитивных свойств ограничена содержанием 10—20% лейптинита и расширяется при содержании фюзинита менее 15% до содержания 0—30% лейптинита.

При исследовании газового угля более высокой степени метаморфизма ($R^a = 7,8\%$) выясняется сложная картина взаимодействия петрографических составляющих угля. Для этого угля обнаружена сравнительно большая область аддитивных свойств смесей (рис. 34, в), которая находится в границах содержания 30—70% витринита при содержании 20—40% фюзинита. При уменьшении количества фюзинита до 10% область сужается до содержания 40—60% витринита. Следует обратить внимание на то, что совершенно незначительное количество смесей петрографических составляющих этого угля дает положительный эффект взаимодействия. Смесей петрографических составляющих, давшие отрицательный эффект взаимодействия, находятся на диаграмме в двух областях: в нижней ее части, ограниченной содержанием менее 25% фюзинита, и на небольшом участке в верхней части (рис. 34, в).

Расположение внизу диаграммы смесей, давшей отрицательный эффект взаимодействия, свидетельствует о том, что эти смеси характеризуются избыточной спекаемостью; при сравнительно высокой спекаемости витринита и лейптинита они содержат небольшое (ниже

15%) количество отошающего компонента — фюзинита. Аддитивность для исследованного угля практически соблюдается у бинарных смесей витринит — фюзинит.

Исследование газопроницаемости насыпных масс кокса

Известно, что роль кокса как разрыхлителя, создающего требуемую газопроницаемость столба плавильных материалов, чрезвычайно важна. Газопроницаемость кокса в каждый данный момент зависит от его ситового состава и может быть рассчитана по методу К. И. Сыскова или определена экспериментально по методу А. С. Брука. Необходимость оценки аэродинамических характеристик насыпной массы кокса не вызывает сомнений.

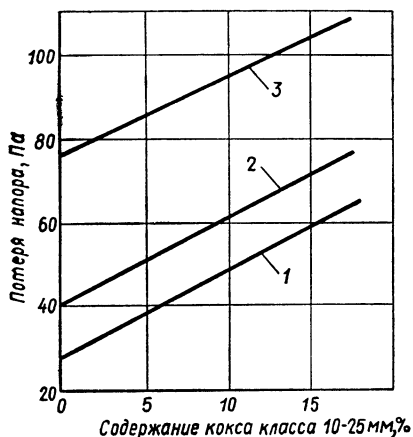


Рис. 35. Сопротивление узких классов кокса в зависимости от величины добавки класса 10—25 мм:

1 — класс 60—80 мм; 2 — 40—60 мм; 3 — 25—40 мм.

Стремление к снижению сопротивления движению газов заставляет многих исследователей искать оптимальный состав кокса по крупности. В работе [20], в частности, говорится, что крупный кокс нежелательно загружать в доменную печь... потому, что он менее прочный и более трещиноватый и при опускании от коловника в горн образует много мелочи и мелкого кокса. Известно, что чем мельче кокс, тем большим сопротивлением движению газов он обла-

дает. Поэтому предположение о введении верхнего предела крупности для металлургического кокса с целью уменьшения образования мелких классов кокса в доменной печи на первый взгляд кажется правомерным.

По экспериментальным данным о сопротивлении различных классов крупности кокса построены графики, приведенные на рис. 35. Наименьшее сопротивление газовому потоку оказывает кокс крупностью 60—80 мм. Добавка к пробе кокса класса 10—25 мм приводит к увеличению аэродинамического сопротивления испытуемых классов. Особенно важным является тот факт, что все зависимости практически параллельны. Это позволяет сделать вывод о том, что относительное увеличение сопротивления из-за наличия мелких классов (в данном случае класса 10—25 мм) очень мало зависит от соотношения размеров наиболее крупных и мелких кусков, а зависит, в основном от количества мелочи. Во всяком случае этот

вывод справедлив при добавке к коксу до 15% (свыше 100%) класса 10—25 мм.

Вывод настолько не совпадает с высказанным в 1966 г. [2] и вновь сформулированным в 1970 г. [20] требованием о необходимости выдержки соотношения между линейными размерами наибольших и наименьших кусков не более двух, что авторы сделали попытку установить зависимость между газопроницаемостью насыпной массы кокса и соотношением различных классов крупности в нем и наличием, кроме того, класса 10—25 мм. Для опытов использовали кокс, поступающий на ждановский металлургический завод им. Ильича, рассеянный на классы крупности, указанные в табл. 68.

Таблица 68

Классы крупности используемого кокса

Класс крупности, мм	80—60	60—40	40—25
Обозначение долевого участия	x_1	x_2	x_3

Таблица 69

Результаты испытаний аэродинамических свойств кокса

Содержание классов, %			Сопротивление пробы при добавке класса 25—10 мм (сверх 100%)			
80—60 мм	60—40 мм	40—25 мм	0%	5%	10%	15%
100	0	0	2,8	3,75	4,7	5,85
0	100	0	4,6	5,05	6,0	7,10
0	0	100	7,7	8,50	9,5	10,30
50	50	0	3,7	4,95	5,85	6,55
50	0	50	6,4	7,65	7,9	8,95
0	50	50	6,5	7,20	7,9	8,75
0,33	0,33	0,33	5,7	6,30	7,2	8,10
Дисперсия воспроизводимости			0,3	0,20	0,1	0,10
Число степеней свободы			6	6	6	6

Таблица 70

Коэффициенты полиномиальных моделей

Обозначение коэффициента модели	Величины коэффициентов при добавке класса 25—10 мм			
	0%	5%	10%	15%
b_1	2,75	3,75	4,70	5,85
b_2	4,60	5,05	6,00	7,10
b_3	7,65	8,50	9,50	10,30
b_{12}	0,00	2,20	2,00	0,30
b_{13}	4,80	6,10	3,20	3,50
b_{23}	1,30	1,70	0,00	0,00

О сопротивлении смеси газовому потоку судили по результату испытания в аппарате А. С. Брука. Опыты проводились при условии $x_1 + x_2 + x_3 = 1$. Кроме того, исследовалось сопротивление смеси, к которой добавляли от 0 до 15% (свыше 100%) класс 25—10 мм. Условия и результаты опытов приведены в табл. 69. Последний опыт (табл. 69), выполнялся для проверки адекватности полученных моделей.

Сопротивление кокса воздушному потоку в зависимости от гранулометрического состава описывалось полиномом второй степени

$$P = \sum_{1 \leq i \leq q} b_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq q} b_{ij} x_i x_j$$

для каждого значения добавки класса 25—10 мм. Полученные по формуле (82) величины коэффициентов регрессии приведены в табл. 70.

Проверка показала, что уравнение второй степени адекватно описывает зависимость между величиной сопротивления насыпной массы кокса и ее ситовым составом.

На основании полученных моделей построены графики (рис. 36), которые дают возможность четко представить влияние соотношения

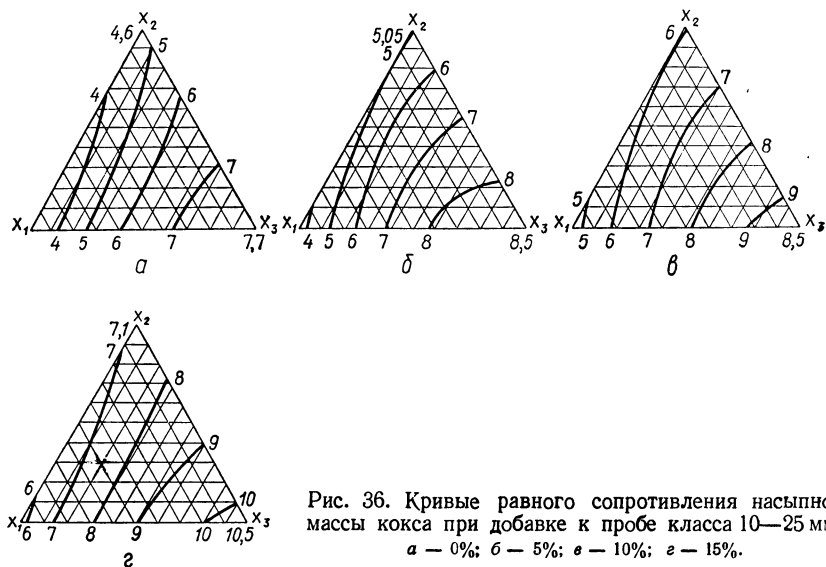


Рис. 36. Кривые равного сопротивления насыпной массы кокса при добавке к пробе класса 10—25 мм: а — 0%; б — 5%; в — 10%; г — 15%.

классов крупности в коксе на сопротивление насыпной массы прохождению газов (в эксперименте — воздуха).

Наиболее существенное влияние на газопроницаемость насыпной массы кокса оказывает не соотношение размеров наиболее крупных и наиболее мелких кусков, а соотношение количеств различных классов. Это, в свою очередь, позволяет сделать вывод о том, что повсеместное исключение крупных классов кокса (более 80 мм) может оказаться нецелесообразным, так как приведет к неоправданным потерям металлургического кокса.

Очистка бензола от *n*-гептана методами экстракции и экстрактивной ректификации*

Насыщенные углеводороды, присутствующие в чистом бензоле, в целом ряде процессов органического синтеза являются вредными примесями, ухудшающими качество конечного продукта и усложняющими технологию его получения. Необходимость очистки бензола от этих примесей привела к развитию ряда процессов, которые могут быть разбиты на три группы: кристаллизация, азеотропная ректификация и экстракция с экстрактивной ректификацией. Метод кристаллизации требует применения сложной и специальной аппаратуры и неудобен для переработки больших масс бензола, а процесс азеотропной ректификации не позволяет вывести из бензола гептан и метилциклогексан. Поэтому преимущественное распространение получили процессы экстракционной очистки и экстрактивной ректификации.

Длительное время основным видом экстрагента являлся диэтиленгликоль, содержащий 8—10% воды (процесс удекс). Постепенно диэтиленгликоль заменялся более эффективными экстрагентами — *N*-метилпирролидоном, тетрагидротиофеном (сульфоланом), диметилформамидом и некоторыми другими. Широкое распространение находят также смеси растворителей, например, *N*-метилпирролидон, содержащий 10% этиленгликоля (процесс аросольван).

Применение новых экстрагентов вызывается как экономическими причинами, так и повышением требований потребителя к качеству бензола. В частности, согласно этим требованиям содержание такой примеси, как *n*-гептан, не должно превышать 0,01%.

Система бензол — гептан не подчинена закону Рауля и при содержании легкокипящего компонента свыше 99% коэффициент относительной летучести настолько мал, что получение свободного от *n*-гептана бензола методом обычной даже очень четкой ректификации практически невозможно. Вместе с тем в литературе отсутствует описание влияния различных технологических факторов на процесс удаления примесей из бензола при экстракции и экстрактивной ректификации. В связи с этим была исследована возможность и условия очистки бензола от *n*-гептана методами экстракции и экстрактивной ректификации с *N*-метилпирролидоном.

При изучении процесса экстракции определялись растворимость *n*-гептана в экстракционной фазе и влияние на процесс состава экстракционной фазы. Последний характеризуется содержанием бензола, *N*-метилпирролидона и воды, прибавляемой для большей селективности экстрагента, т.е. для уменьшения растворимости в нем *n*-гептана. Содержание *n*-гептана в экстракционной фазе пересчитывалось на его содержание в бензоле. В итоге определялась предельно возможная чистота бензола.

* Работа выполнена совместно с Л. Я. Коляндром и А. И. Смородой.

Работа проводилась путем титрования *n*-гептаном смеси заданного состава до появления мути, свидетельствующей о состоянии насыщения. С целью определения влияния температуры титрование производилось при 20,30 и 40° С. Качество исходных продуктов указано в табл. 71.

n-Гептан в *N*-метилпирролидоне не растворяется, его растворимость в системе *N*-метилпирролидон — бензол — вода зависит от содержания последних двух компонентов и температуры. Влияние содержания воды и бензола является взаимосвязанным, что привело к необходимости провести исследование с планированием эксперимента, чтобы получить уравнение регрессии, описывающее влияние факторов в их взаимосвязи.

Таблица 71

Качество исходных продуктов

Показатель	Бензол (ГОСТ 5955—68)	<i>n</i> -Гептан (ГОСТ 4375—48)	<i>N</i> -Метил- пирро- лидон (МРТУ 42—67— 15)
Плотность при 20° С, г/см³ . . .	0,8790	0,6840	1,0305
Показатель преломления	1,5011	1,3877	1,4681
Температура кристаллизации, °С	5,51	—	—

Таблица 72

Факторы и составы триангулированных смесей

Фактор (компонент)	Состав смеси (компонента), %		
	<i>N</i> -Метил- пирро- лидон	Бензол	Вода
x_1	85	10	5
x_2	57	24	19
x_3	46	50	4

В качестве факторов были приняты составы смесей (*N*-метилпирролидон — бензол — вода), ограничивающие область экспериментирования условием гомогенности растворов, а также технологически приемлемым соотношением компонентов (табл. 72). Применительно к факторам x_1 , x_2 и x_3 или, что то же самое, к составам предельных смесей был применен метод симплексно-решетчатого планирования эксперимента. Условия опытов и их результаты, по которым получена адекватная модель, приведены в табл. 73. Для удобства технологического анализа в табл. 73 приводится содержание *n*-гептана в бензоле, которое получается расчетным путем из растворимости *n*-гептана в смеси. Это не составляет затруднения, так как *n*-гептан, растворившийся в смеси, полностью переходит в бензол.

По результатам опытов (табл. 73) получены уравнения, характеризующие содержание *n*-гептана в бензоле в зависимости от состава смеси при температурах 20, 30 и 40° С:

$$\begin{aligned} \eta_{20} = & 4,865x_1 + 0,16x_2 + 15,925x_3 - 1,67x_1x_2 - 6,76 \times \\ & \times x_1x_3 - 22,75x_2x_3 - 5,24x_1x_2(x_1 - x_2) + 2,507x_1x_3 \times \\ & \times (x_1 - x_3) + 14,093x_2x_3(x_2 - x_3) - 5,213x_1x_2(x_1 - x_2)^2 - 14,24 \times \\ & \times x_1x_3(x_1 - x_3)^2 - 14,653x_2x_3(x_2 - x_3)^2 - 11,13x_1^2x_2x_3 - \\ & - 14,48x_1x_2^2x_3 + 81,24x_1x_2x_3^2; \end{aligned} \quad (147)$$

Таблица 73

Содержание *n*-гептана в бензоле при разном составе смеси

Опыт	Индекс откли-ка	Содержание компо- нентов			Состав смеси, %			Содержание <i>n</i> -гептана в бен- золе, %, при температуре		
		x_1	x_2	x_3	<i>N</i> -ме- тилпи- роли- дон	Бен- зол	Вода	20° С	30° С	40° С
1	1	1	0	0	85,0	10,0	5,0	4,865	5,790	7,065
2	2	0	1	0	57,0	24,0	19,0	0,160	0,415	0,705
3	3	0	0	1	46,0	50,0	4,0	15,925	18,205	19,630
4	12	0,5	0,5	0	71,0	17,0	12,0	2,095	2,450	3,110
5	13	0,5	0	0,5	65,5	30,0	4,5	8,705	10,155	11,760
6	23	0	0,5	0,5	51,5	37,0	11,5	2,355	2,835	3,575
7	1112	0,75	0,25	0	78,0	13,5	8,5	2,640	3,360	4,270
8	1222	0,25	0,75	0	64,0	20,5	15,5	1,270	1,640	1,830
9	1113	0,75	0	0,25	75,25	20,0	4,75	5,930	6,860	8,140
10	1333	0,25	0	0,75	55,75	40,0	4,25	10,990	12,490	14,870
11	2223	0	0,75	0,25	54,25	30,5	15,25	0,440	0,800	0,980
12	2333	0	0,25	0,75	48,75	43,5	7,75	5,710	7,150	9,060
13	1123	0,5	0,25	0,25	68,25	23,5	8,25	4,100	4,920	5,500
14	1223	0,25	0,5	0,25	61,25	27,0	11,75	2,580	3,390	3,940
15	1233	0,25	0,25	0,5	58,50	33,5	8,0	5,760	6,480	7,350
16	123	0,33	0,33	0,33	62,67	28,0	9,33	3,775	4,320	5,265

$$\begin{aligned} \eta_{30} = & 5,79x_1 + 0,415x_2 + 18,205x_3 - 2,61x_1x_2 - 7,37x_1x_3 - 25,9 \times \\ & \times x_2x_3 - 5,16x_1x_2(x_1 - x_2) + 3,08x_1x_3(x_1 - x_3) + \\ & + 13,893x_2x_3(x_2 - x_3) - 2,413x_1x_2(x_1 - x_2)^2 - 20,067 \times \\ & \times x_1x_3(x_1 - x_3)^2 - 9,573x_2x_3(x_2 - x_3)^2 - 5,947x_1^2x_2x_3 + \\ & + 23,427x_1x_2^2x_3 + 49,507x_1x_2x_3^2; \end{aligned} \quad (148)$$

$$\begin{aligned} \eta_{40} = & 7,065x_1 + 0,705x_2 + 19,63x_3 - 3,1x_1x_2 - 6,35x_1x_3 - \\ & - 26,37x_2x_3 - 3,947x_1x_2(x_1 - x_2) - 2,387x_1x_3(x_1 - x_3) + \\ & + 8,28x_2x_3(x_2 - x_3) - 5,413x_1x_2(x_1 - x_2)^2 - \\ & - 13,907x_1x_3(x_1 - x_3)^2 - 2,52x_2x_3(x_2 - x_3)^2 - 21,667 \times \\ & \times x_1^2x_2x_3 + 56,707x_1x_2^2x_3 - 5,44x_1x_2x_3^2. \end{aligned} \quad (149)$$

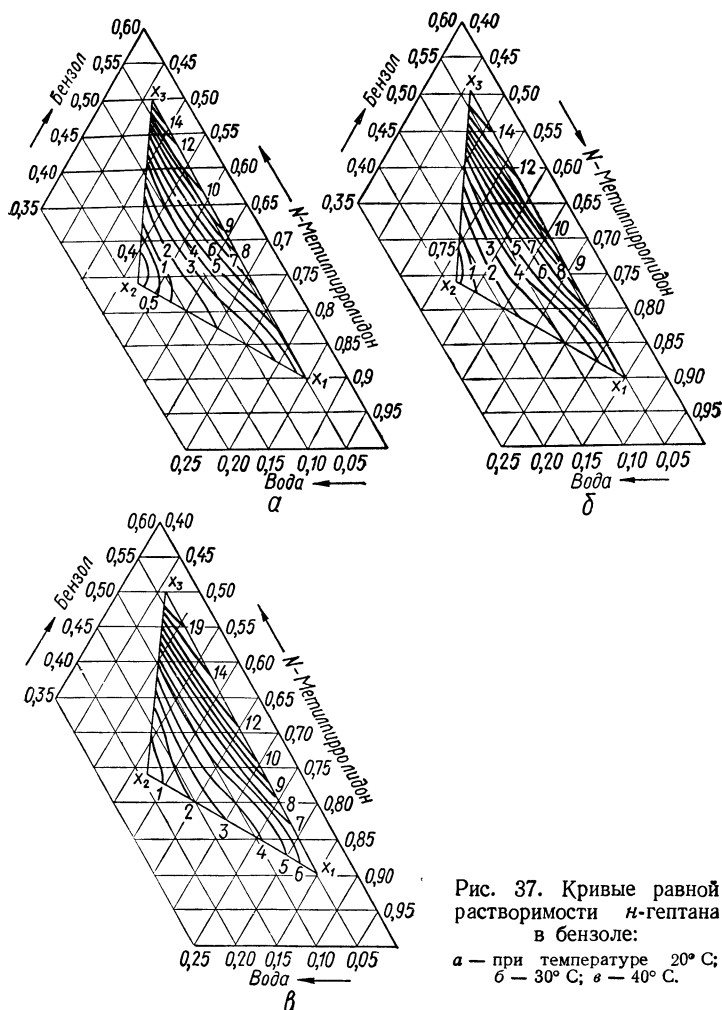
Каждому сочетанию переменных x_1 , x_2 и x_3 соответствует вполне определенный состав смеси, который определяется из системы уравнений:

$$\left. \begin{aligned} Q_b &= 0,05x_1 + 0,19x_2 + 0,04x_3; \\ Q_n &= 0,85x_1 + 0,57x_2 + 0,46x_3; \\ Q_6 &= 0,10x_1 + 0,24x_2 + 0,50x_3. \end{aligned} \right\} \quad (150)$$

Задаваясь содержанием в смеси воды Q_b , метилпиirroлидона Q_n и бензола Q_6 , из системы уравнений (150) находят соответствующие значения x_1 , x_2 и x_3 , по которым вычисляют растворимость *n*-гептана в зависимости от температуры, пользуясь уравнениями (147)—

(149). Для пользования полученными зависимостями на рис. 37 выполнена их графическая интерпретация, причем концентрация *n*-гептана приведена непосредственно в бензоле.

Во всех случаях, т.е. при любом составе смеси, невозможно получить свободный от *n*-гептана бензол, поскольку последний растворяется в смеси любого состава. Наименьшее содержание *n*-гептана в бензоле достигается при 20° С и составляет 0,14 %, при 30° С оно



увеличивается до 0,36 % и при 40° С достигает 0,65 %. Анализ полученных данных устанавливает, что увеличение отношения экстрагент — бензол и увеличение содержания воды в экстрагенте способствует уменьшению содержания *n*-гептана в бензоле.

В целом можно сказать, что минимальное содержание *n*-гептана в бензоле достигается при следующем составе смеси, %:

<i>N</i> -метилпирролидон	40—50
Вода	20—25
Бензол	20—30

В этом случае содержание *n*-гептана в бензоле составит около 0,2% при 20° С, около 0,5% при 30° С и до 1% при 40° С.

Таким образом, жидкостная экстракция в чистом виде не позволяет получать высококачественный бензол, в связи с этим было поставлено исследование возможностей экстрактивной ректификации с *N*-метилпирролидоном. Эффективность применения *N*-метилпирролидона в качестве компонента для экстрактивной ректификации изучалась путем определения относительной летучести *n*-гептана в системе бензол — гептан. Определение величины α производилось обычным циркуляционным методом в видоизмененном приборе Кортюма*. При исследовании изучалось влияние состава смеси на значение α . Одним из компонентов являлся бензол, содержащий 0,1% *n*-гептана. Предварительными опытами было установлено, что колебания в содержании *n*-гептана в пределах 0,05 — 0,3% в присутствии *N*-метилпирролидона практически не влияют на значение α . Другими компонентами были *N*-метилпирролидон и вода. Исследования проводились с применением симплексно-решетчатого метода планирования. Область факторного пространства (область составов), в котором производились исследования, определяется вершинами симплекса x_1 , x_2 и x_3 , состав которых приведен в табл. 74. План эксперимента и полученные результаты приведены в табл. 75.

Таблица 74

Факторы и составы предельных смесей при исследовании процесса экстрактивной ректификации

Факторы (компоненты)	Состав смеси, %		
	Бензол и 0,1% <i>n</i> -гептана <i>B</i>	<i>N</i> -Метилпирролидон <i>П</i>	Вода <i>В</i>
x_1	10	80	10
x_2	10	45	45
x_3	45	45	10

Таблица 75

Условия и результаты опытов по определению α системы *n*-гептан—бензол

Опыт	Индекс отклика	Состав смеси, % по объему			
		<i>B</i>	<i>П</i>	<i>В</i>	α
1	1	10	80	10	3,70
2	2	45	45	10	2,92
3	3	10	45	45	8,00
4	12	27,5	62,5	10	4,10
5	13	10	62,5	27,5	8,69
6	23	27,5	45	27,5	3,03
7	123	21,7	56,6	21,7	5,42

* Получение чистых β - и γ -пиколинов азеотропной ректификацией β -пиколиновой фракции. — «Кокс и химия», 1970, № 5, с. 38—42. Авт.: В. Е. Привалов, Л. Д. Глузман, М. М. Ефименко, Ю. А. Слачинский.

По данным табл. 75 составлена модель процесса, которая адекватна экспериментальным данным при уровне значимости 0,05:

$$\alpha = 3,7x_1 + 2,92x_2 + 8x_3 + 3,16x_1x_2 + 11,36x_1x_3 - 9,72x_2x_3. \quad (151)$$

Переход от кодовых переменных к натуральным производится через систему уравнений

$$\left. \begin{aligned} B &= 0,1x_1 + 0,1x_2 + 0,45x_3; \\ \Pi &= 0,8x_1 + 0,45x_2 + 0,45x_3; \\ B &= 0,1x_1 + 0,45x_2 + 0,1x_3. \end{aligned} \right\} \quad (152)$$

Геометрическая интерпретация полученных результатов представлена на рис. 38 в виде кривых равных значений α , во всех случаях значение α получается достаточно высоким. Коэффициент летучести *n*-гептана относительно бензола обычно несколько меньше единицы, но в присутствии метилпирролидона с водой он значительно превышает единицу. Значит, *n*-гептан при экстрактивной ректификации будет выводиться в головную фракцию, что облег-

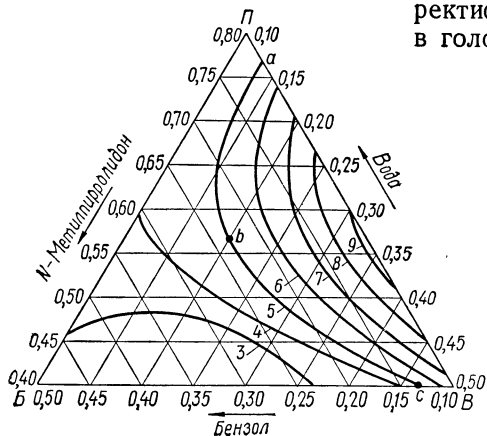


Рис. 38. Кривые значений коэффициента относительной летучести *n*-гептана в системе бензол — *N*-метилпирролидон — вода.

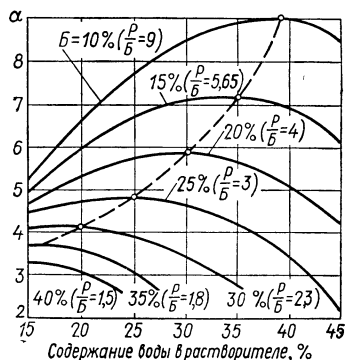


Рис. 39. Кривые влияния содержания воды в растворителе на значение α .

чает процесс его выделения. Однако следует учитывать, что требования к процессу ректификации предъявляются очень жесткие, так как остаточное содержание *n*-гептана в бензоле не должно превышать 0,01 %.

В исследованной области факторного пространства α изменяется в широких пределах (от 2 до 9). Одно и то же значение α может быть получено при разном составе смесей. Если это проследить по кривой, соответствующей $\alpha = 5$, то, например, составы смесей, характеризующиеся точками *a*, *b* и *c*, заметно различаются между собой.

Расположение кривых равного значения α соответствует известным представлениям о том, что с увеличением содержания бензола в системе (или, что то же самое, с уменьшением отношения растворитель/бензол) относительная летучесть *n*-гептана падает. В частности, при содержании в системе свыше 25% бензола (отношение растворитель/бензол меньше трех) невозможно достичь значения $\alpha \geq 5$.

При содержании в системе свыше 25% воды, изменяя соотношение метилпирролидон/бензол, можно достичь любого значения α в интервале от 2 до 9. Это значит, что влияние воды на селективность растворителя зависит от ее содержания в системе. Для того чтобы нагляднее представить найденные зависимости, построены кривые (рис. 39). При одном и том же содержании бензола в системе наибольшее значение α достигается при определенном содержании воды в растворителе. Штриховой линией соединены экстремальные значения α . Естественно, что при прочих равных условиях наилучшие результаты работы достигаются при составах смеси, соответствующих этой экстремальной кривой.

Если стремиться к получению очень больших значений α (8—9), то отношение растворитель/бензол должно быть свыше семи и содержание воды в растворителе должно составлять 35—40%, что, конечно, связано со снижением производительности установки. Если ограничиться значением $\alpha = 4 \dots 5$, то отношение растворитель/бензол может быть уменьшено до 2—3, а содержание воды в растворителе снижено до 15—28%, что соответственно, приводит к увеличению производительности установки. Положение о том, что увеличение отношения растворителя к бензолу приводит к увеличению значения α иллюстрируется данными табл. 76.

Таблица 76

Изменение значения α в зависимости от величины отношения растворителя к бензолу

Содержание бензола в смеси	0,32—0,46	0,24—0,45	0,16—0,31	0,14—0,24	0,12—0,19
Отношение $\frac{П + В}{В}$	1,2—2,0	1,3—3,0	2,2—5,0	3,0—6,0	4,2—7,2
Значение α	2	3	4	5	6

В заключение была проведена серия опытов по экстрактивной ректификации на лабораторной колонне непрерывного действия, заполненной металлической спиральной насадкой. Высота насадочной части колонны равна 2 м, эффективность эквивалентна 65 теоретическим тарелкам. Подлежащий очистке бензол подавался в колонну на расстоянии 0,65 м от низа колонны, растворитель (смесь метил-

пирролидона и 25% воды) — на верх колонны. Исходный бензол имел температуру кристаллизации 4,48° С и содержал следующие примеси, %:

Насыщенные углеводороды C ₅	0,37
<i>n</i> -Гептан	0,22
Циклогексан	0,83
Метилциклогексан	0,48
В с е г о	1,90

В табл. 77 приведены условия и результаты проведенных опытов по экстрактивной ректификации. При рассмотрении результатов следует иметь в виду, что каждая из примесей бензола ведет себя при экстрактивной ректификации независимо от остальных. Значения α определены по кривым рис. 39.

Таблица 77

Условия и результаты экстрактивной ректификации

Отноше- ние раствори- теля к сырью	Содержание примеси в полученном бензоле, %				Темпе- ратура кристал- лизации бензола, ° С	Удалено примесей, %			
	Всего	Цикло- гексан	<i>n</i> -Геп- тан	Метил- цикло- гексан		Всего	Цикло- гексан	<i>n</i> -Геп- тан	Метил- цикло- гексан
1,5	0,44	0,160	0,050	0,230	5,31	76,9	80,7	77,3	52,1
2,5	0,10	0,044	0,005	0,051	5,48	94,8	94,7	97,7	89,4
4,0	0,061	0,022	0,004	0,035	5,51	96,8	97,4	98,2	92,7

Легче всего удаляются углеводороды, в очищенном бензоле даже при отношении растворителя к сырью, равном 1,5, они полностью отсутствуют. Из всех примесей труднее удаляется метилциклогексан: при отношении растворителя к сырью, равном 4, и $\alpha = 5,75$ удаляется 92,7%, в то время как циклогексан и *n*-гептан удаляются на 97,4 и 98,2%. В целом путем экстрактивной ректификации удастся достичь глубокой очистки бензола от *n*-гептана, а также и от других насыщенных углеводородов. Кроме этого, была проведена ректификация бензола, содержащего 1,8% *n*-гептана. В результате при отношении растворителя к сырью, равном 4, был получен бензол с температурой кристаллизации 5,51° С с содержанием 0,03% *n*-гептана. Степень извлечения *n*-гептана составляла 98,4%, т.е. являлась очень высокой, что свидетельствует об эффективности применения экстрактивной ректификации даже в случае высокого содержания *n*-гептана.

Таким образом, с помощью экстрактивной ректификации с *N*-метилпирролидоном возможно получение бензола очень высокого качества. Условия же процесса определяются составом исходного сырья и качеством конечного продукта.

Зависимость плотности и вязкости кубовых остатков окончательной ректификации сырого бензола от содержания воды и минеральных примесей*

Известно, что с изменением технологических параметров процесса очистки сырого бензола состав кубовых остатков изменяется. При этом должны претерпевать некоторые изменения и их свойства. В частности, кубовые остатки, используемые в качестве сырья для производства дорожных вяжущих материалов, характеризуются, прежде всего, плотностью и вязкостью. В данном случае авторов интересовал макросостав кубовых остатков, т.е. содержание в них таких компонентов, как вода и зола.

Наблюдения, проводившиеся длительное время на Баглейском и других коксохимических заводах, показали, что содержание воды в кубовых остатках колеблется от 0 до 15%, а зольность не превышает 10%. Задача состояла в том, чтобы оценить влияние содержания воды и золы в кубовых остатках (в указанных пределах) на физические свойства последних. Так как при этом органическая часть кубовых остатков рассматривается как единое целое, т.е. как отдельный компонент смеси, то

$$O + B + Z = 100\%,$$

где O — содержание органических соединений, %, B — содержание воды, %, Z — содержание золы, %.

В этих условиях для эмпирического исследования естественно применение теории планирования эксперимента, в частности, метода симплексно-решетчатого планирования. Так как сумма долей компонентов, составляющих смесь, равна единице, то факторное пространство представляет собой правильный симплекс, в частности, для трех компонентов — треугольник.

Экспериментирование по симплексно-решетчатым планам возможно не только на всей диаграмме, но и на триангулированных ее частях (после соответствующей перенормировки компонентов, чтобы выполнялось условие равенства единице суммы концентраций). В рассматриваемом случае проведение триангулирования необходимо. Поэтому вводим кодовые переменные, которые сами по себе представляют уже не отдельные компоненты, а специально подобранные смеси (табл. 78). Область эксперимента четко видна на рис. 40. Условия и результаты опытов, выполненных для модели второй степени, приведены в табл. 79.

Получены уравнения

$$\rho = 1,127x_1 + 1,071x_2 + 1,138x_3 + 0,046x_1x_2 - 0,002x_1x_3 + 0,058x_2x_3; \quad (153)$$

$$\nu = 16,85x_1 + 4,5x_2 + 20,05x_3 + 8,1x_1x_2 + 9,7x_1x_3 - 0,8x_2x_3. \quad (154)$$

* Работа проводилась совместно с Е. А. Войтковской.

Проверка, выполненная с помощью критерия Кохрена, показала, что процесс воспроизводим. Известно, что в этом случае наилучшей оценкой дисперсии воспроизводимости является средняя арифметическая из дисперсий в точках. Соответствующие расчеты дали следующие результаты: $s_p^2 = 3,6 \cdot 10^{-6}$ и $s_z^2 = 0,422$ при числе степеней свободы $f = 7$.

При проверке адекватности полученных моделей [уравнения (153) и (154)] по критерию Стьюдента используем в качестве контрольной точку ($x_1 = x_2 = x_3 = 1/3$)

$$t = \frac{d_{123}}{1,276s/\sqrt{r}},$$

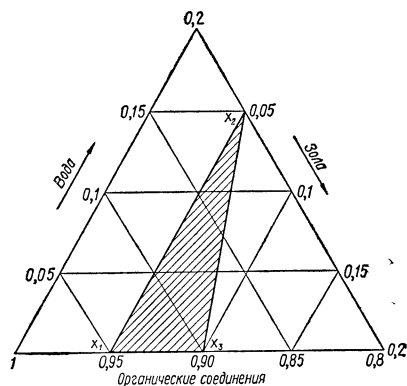


Рис. 40. Расположение триангулированных компонентов x_1 , x_2 и x_3 и область экспериментирования (заштрихованный участок).

Таблица 78
Триангулированные компоненты

Факторы (компоненты)	Концентрация в смеси, % по массе		
	О	В	З
x_1	95	0	5
x_2	80	15	5
x_3	90	0	10

где d_{123} — разность между опытным и предсказанным значениями отклика в центральной точке; s — среднее квадратическое отклонение; r — число параллельных определений.

Таблица 79
Условия и результаты опытов

Индекс отклика	Матрица планирования			Плотность ρ , г/см ³			Условная вязкость, ν		
	x_1	x_2	x_3	ρ_1	ρ_2	ρ_3	ν_1	ν_2	ν_3
1	1	0	0	1,128	1,126	1,127	17,1	16,6	16,85
2	0	1	0	1,070	1,072	1,071	4,0	5,0	4,50
3	0	0	1	1,139	1,136	1,1375	21,0	19,1	20,05
12	0,5	0,5	0	1,112	1,114	1,113	12,6	12,8	12,70
13	0,5	0	0,5	1,135	1,130	1,1325	18,6	17,9	18,25
23	0	0,5	0,5	1,118	1,120	1,119	14,6	14,8	14,70
123	1/3	1/3	1/3	1,122	1,123	1,1225	15,0	15,6	15,30

Расчетное значение плотности по уравнению (153) $\hat{\rho}_{123} = 1,123$. Вязкость в этой точке, рассчитанная по уравнению (154), $\hat{\nu}_{123} = 15,3$. Остальные величины

$$d_{123} = |\bar{p}_{123} - \hat{p}_{123}| = |1,1225 - 1,1230| = 0,0005;$$

$$d_{123} = |\bar{v}_{123} - \hat{v}_{123}| = |15,3 - 15,69| = 0,39;$$

$$t(p) = \frac{0,0005 \sqrt{2}}{1,276 \sqrt{3,6 \cdot 10^{-6}}} = 0,292;$$

$$t(v) = \frac{0,39 \sqrt{2}}{1,276 \sqrt{0,422}} = 0,655.$$

Табличное значение $t_{(0,025; 7)} = 2,3646$ значительно больше рассчитанных величин $t(p)$ и $t(v)$, поэтому полученные уравнения можно считать адекватными. По полученным уравнениям построе-

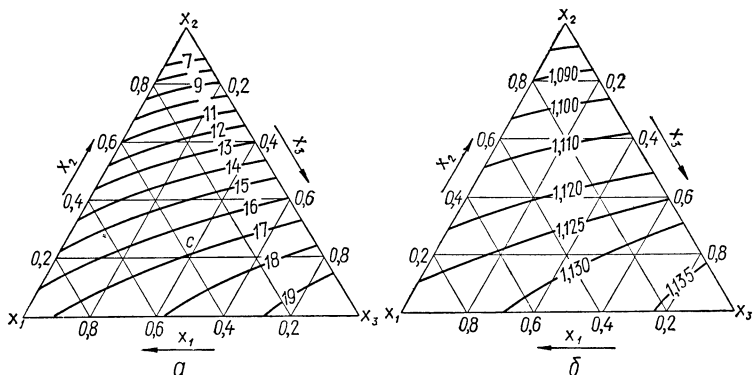


Рис. 41. Кривые равных значений:
а — вязкости кубовых остатков; б — плотности.

ны графики (рис. 41), которые позволяют определять значения p и v в зависимости от содержания воды и золы в кубовых остатках.

Переменные в уравнениях (153) и (154) записаны в кодовой форме. Переход от натуральных переменных к кодовым производится путем решения системы уравнений:

$$\left. \begin{aligned} O &= 0,95x_1 + 0,8x_2 + 0,9x_3; \\ B &= 0,15x_2; \\ Z &= 0,05x_1 + 0,05x_2 + 0,1x_3. \end{aligned} \right\} \quad (155)$$

Кривые равных значений плотности и вязкости кубовых остатков (рис. 41) построены в зависимости от состава смеси, заданного в кодовых переменных x_1, x_2, x_3 . Для перехода к натуральным переменным используют систему уравнений (155). Например, точка c (0,4; 0,2; 0,4) соответствует условной вязкости, равной 17. Состав смеси

$$\begin{aligned} O &= 0,95 \cdot 0,4 + 0,8 \cdot 0,2 + 0,9 \cdot 0,4 = 0,9; \\ B &= 0,15 \cdot 0,2 = 0,03; \\ Z &= 0,05 \cdot 0,4 + 0,05 \cdot 0,2 + 0,1 \cdot 0,4 = 0,07; \\ O + B + Z &= 0,9 + 0,03 + 0,07 = 1. \end{aligned}$$

Известно, что состав кубовых остатков в полной мере определяется принятой технологией переработки сырого бензола. Поэтому можно заранее знать макросостав кубовых остатков, а следовательно, и такие важные их характеристики, как плотность и вязкость. Это дает возможность соответствующим образом планировать процесс переработки кубовых остатков.

Глава 8. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ СИМПЛЕКСНОГО МЕТОДА ПЛАНИРОВАНИЯ ЭКСТРЕМАЛЬНЫХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Оптимизация работы поверхностного механического аэратора*

На коксохимических заводах эксплуатируются установки для биохимической очистки сточных вод. Метод биохимической очистки основан на окислении органических загрязнений сточной воды при каталитическом действии ферментов, выделяемых микроорганизмами в процессе их жизнедеятельности. В связи с этим эффективность процесса биологической очистки зависит от способа внесения кислорода в очищаемую воду и его абсолютного количества.

На биохимических установках применяются пневматическая и пневмомеханическая системы аэрации (внесения кислорода). Наиболее существенным недостатком этих систем аэрации является их низкая эффективность, выражаемая количеством внесенного кислорода в пересчете на единицу полезной мощности. В связи с этим в последние годы все большее применение находят механические поверхностные аэраторы, которые обладают самой высокой эффективностью.

Среди различных типов механических поверхностных аэраторов наиболее распространены турбинные аэраторы, представляющие собой конус, вершина которого погружена в аэрируемую жидкость, а плоскость основания находится вблизи ее поверхности. На образующей конуса укреплены прямые либо криволинейные лопасти, которые при вращении аэратора вокруг вертикальной оси вызывают выбрасывание потоков жидкости над ее поверхностью и интенсивное перемешивание всего объема жидкости в биологическом бассейне — аэротенке. Благодаря непрерывному обновлению поверхности жидкости, происходит ее контакт с атмосферным воздухом и тем самым ускоряются процессы диффузии кислорода воздуха в очищаемую воду.

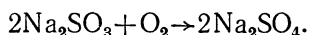
Количество вносимого аэратором кислорода и величина эффективности аэрации зависят от конструкции аэратора, его размеров и размеров аэротенка, а также режима его эксплуатации. При эксплуатации аэратора определенной конструкции и размеров, установленного в данном аэротенке, количество вносимого кислорода и эффективность аэрации зависят только от технологических фак-

* Работа проведена совместно с Г. И. Папковым.

торов, среди которых основными являются частота вращения аэратора и глубина его погружения в аэрируемую жидкость.

Поскольку в литературе не встречается материалов, посвященных определению совместного влияния этих факторов на эффективность аэрации, авторы провели исследования на опытном аэротенке, смонтированном на Харьковском коксохимическом заводе.

Опытный аэротенк представляет собой цилиндрический резервуар диаметром 3 м с коническим днищем, четырьмя рассекателями для предотвращения завихрения потоков жидкости и брызгоотбойником. Объем аэрируемой жидкости при ее общей глубине около 1,2 м составляет примерно 8 м³. В центре аэротенка на вертикальном валу расположен конический турбинный аэратор диаметром 0,6 м, приводимый в движение электродвигателем через клиноременную передачу и зубчатый редуктор. Изменение частоты вращения аэратора производится с помощью сменных шкивов, изменение глубины погружения аэратора — путем добавления или откачивания воды в аэротенке. Определение количества вносимого в аэротенк кислорода производилось сульфитным методом [26], основанным на окислении кислородом раствора сульфита натрия:



В аэротенк помещали раствор сульфита натрия с исходной концентрацией не менее 2 г/л и 2,5—3,0 кг медного купороса (катализатор процесса окисления). После включения аэратора для работы на определенном режиме и перемешивания содержимого аэротенка в течение 1—2 мин отбирали по две параллельные пробы раствора через 3, 6, 9, 12 мин после начала опыта, в которых определяли концентрацию сульфита натрия. Для этого пробу анализируемого раствора выливали в коническую колбу с определенным объемом титрованного 0,1 н. раствора иода, а избыток иода оттитровывали в кислой среде 0,1 н. раствором тиосульфата натрия.

Концентрацию раствора сульфита натрия в каждый момент времени рассчитывали по формуле

$$C_{\text{Na}_2\text{SO}_3} = \frac{(k_{\text{J}_2} V_{\text{J}_2} - k_{\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3} V_{\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3}) 0,0063 \cdot 1000}{V_{\text{пр}}},$$

где V_{J_2} — объем исходного титрованного раствора иода, мл; $V_{\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3}$ — объем раствора тиосульфата, пошедшего на титрование избытка иода, мл; k_{J_2} и $k_{\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3}$ — поправочные коэффициенты соответственно 0,1 н. растворов иода и тиосульфата; 0,0063 — титр 0,1 н. раствора по сульфиту натрия, г/мл; 1000 — переводной коэффициент; $V_{\text{пр}}$ — объем анализируемой пробы, мл.

Исходя из изменения концентрации сульфита натрия за промежуток времени Δt , количество внесенного кислорода для его окисления

$$g_{\text{O}_2} = \Delta C \frac{16}{126},$$

где ΔC — изменение концентрации сульфита за Δt мин; 16 и 126 — эквивалентные количества реагирующих между собой кислорода и сульфита натрия.

Количество внесенного кислорода за каждый промежуток времени пересчитывали на часовое количество, причем для последующих расчетов использовали среднюю величину за все промежутки времени.

Эффективность аэрации

$$\mathcal{E} = \frac{\bar{O}V}{P\eta_1\eta_2},$$

где O — среднее часовое количество вносимого кислорода, $\text{кг/м}^3 \cdot \text{ч}$; V — объем аэрируемой жидкости в данном опыте, м^3 ; P — потребляемая мощность, кВт; η_1 и η_2 — к.п.д. электродвигателя и передачи.

Движение к области оптимума было решено выполнить с помощью симплексного метода. Координаты исходной точки — центр начального симплекса и интервалы варьирования факторов приведены в табл. 80.

Таблица 80
Нулевой уровень и интервалы варьирования

Фактор	Нулевой уровень	Интервалы варьирования
Частота вращения аэратора $V(x_1)$, об/мин . . .	130	10
Глубина погружения аэратора $h(x_2)$, см	7	2

По формуле (4) выполнено преобразование координат:

$$x_1 = \frac{V - 130}{10}; \quad x_2 = \frac{h - 7}{2}.$$

Из матрицы, приведенной в табл. 31, выделили часть, состоящую из двух столбцов и трех строк, и, пользуясь приведенным выше преобразованием, нашли матрицу исходного симплекса в натуральных переменных:

$$\begin{vmatrix} 0,5 & 0,289 \\ -0,5 & 0,289 \\ 0 & -0,578 \end{vmatrix}$$

$$0,5 = \frac{V - 130}{10},$$

откуда $V = 135$ об/мин,

$$0,289 = \frac{h - 7}{2},$$

откуда $h = 7,58$ см и т. д. для первых трех опытов (табл. 81).

В каждой вершине симплекса поставлен опыт. Наихудшим из трех опытов, поставленных в вершинах начального симплекса, оказался результат опыта 2. В соответствии с идеей симплексного метода планирования эксперимента точка 2 должна быть заменена новой

точкой 4 таким образом, чтобы симплекс 143 был зеркальным отображением симплекса 123 относительно грани 13.

Координаты точки 4 нашли по формулам (88), (89). Сначала определили координаты центра грани, образованной точками 1 и 3:

$$V_c = \frac{135 + 130}{2} = 132,5;$$

$$h_c = \frac{7,58 + 5,84}{2} = 6,71.$$

Координаты четвертой точки (условия опыта 4)

$$V_1 = 2 \cdot 132,5 - 125 = 140;$$

$$h_4 = 2 \cdot 6,71 - 7,58 = 5,84.$$

В этой точке получена эффективность, равная 1,92 кг/(кВт · ч). Теперь необходимо рассмотреть результаты опытов в вершинах симплекса, образованного точками 1, 3, 4. Наихудший результат в опыте 3, равный 1,71 кг/(кВт · ч). В симплексе 1, 3, 4 должна быть заменена вершина 3, т. е. симплекс должен быть скантован относительно грани 14. Для этого необходимо проделать процедуру, аналогичную той, которая приведена для опыта 4.

Движение к области оптимума наглядно показано на рис. 42. В опыте 13 получен результат, наихудший для симплекса 10, 12, 13. Дальнейшее движение (кантовка) приводит обратно в точку 11. Таким образом, оптимальными следует считать условия опыта 10, так как достаточное количество кислорода в этих условиях вносится с минимальной затратой энергии. Опыт 14 был поставлен для контроля и для того, чтобы четко ограничить область оптимума. Дело в том, что полученные в опытах 10, 11, 12 и 14 результаты (в табл. 81 и на рис. 42 проставлены средние значения из

Таблица 81
Результаты опытов в вершинах симплекса

Опыт	Уровни факторов		Эффективность аэротатора η , кг/(кВт · ч)
	V , об/мин	h , см	
Начальный симплекс	1	135	7,58
	2	125	7,58
	3	130	5,84
	4	140	5,84
	5	145	7,58
	6	140	9,31
	7	150	9,31
	8	145	11,04
	9	155	11,04
	10	150	12,77
	11	160	12,77
	12	155	14,50
	13	145	14,50

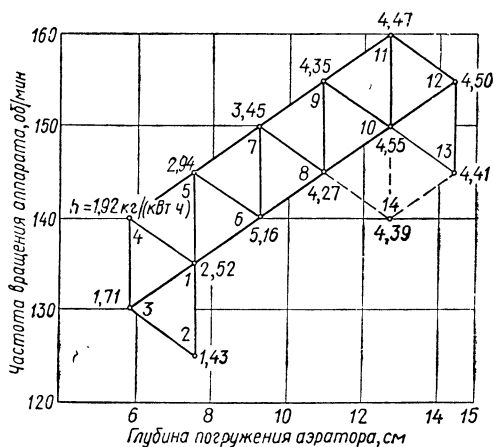


Рис. 42. График оптимизации работы поверхностного механического аэротатора (цифры у точек — номера опытов).

трех параллельных опытов) значимо не отличаются друг от друга, так как ошибка опыта $s^2 = 0,005 \text{ кг/(кВт} \cdot \text{ч)}$. Это значит, что при работе аэратора в точке *II* условия по количеству внесенного кислорода будут близки к оптимальным. В то же время при работе на повышенной частоте вращения аэратора обеспечивается лучшее перемешивание воды и активный ил поддерживается во взвешенном состоянии.

По результатам исследований был внедрен режим работы на Криворожском коксохимическом заводе, что обеспечило получение экономического эффекта в сумме 140 тыс. руб. в год.

Глава 9. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МЕТОДОВ ПЛАНИРОВАНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА ДЛЯ ПРОВЕРКИ ГИПОТЕЗ

Адаптация модели

В предыдущих главах рассматривалось применение методов планирования эксперимента при исследовании таких процессов, о которых так мало известно, что при их изучении приходится идти сугубо эмпирическим путем, имея представления о функции процесса (соотношении между входными и выходными параметрами процесса) как локально гладкой. При таких обстоятельствах ничего больше не остается, как описывать процесс степенной, например, полиномиальной моделью. Такая степенная модель ни в коей мере не может претендовать на функциональное выражение соотношения между параметрами изучаемого процесса.

При другой крайности могут встречаться ситуации, в которых известна теоретическая модель, основанная на точном знании механизма процесса. В таком случае функциональное соотношение часто определяется дифференциальными уравнениями, описывающими процесс во времени и в пространстве, и задачей исследователя является определение оценок констант в дифференциальных уравнениях. Последняя ситуация встречается весьма редко, а наиболее часто имеет место ситуация где-то между этими двумя крайними случаями, когда у исследователя имеется некоторая теоретическая информация, позволяющая априори представить вид функции процесса в одном или нескольких вариантах. При этом задача исследования сводится к экспериментальной проверке вариантов с целью получения адекватной модели.

В такой ситуации, как показали Бокс и Хантер [23], применение методов планирования эксперимента, в частности, планов полного факторного эксперимента или его дробных реплик наиболее эффективно. Боксом и Хантером предложен итерационный метод построения или нахождения соответствующей модели процесса, основная идея которого заключается в том, что на основании теоретических представлений о процессе сначала временно принимают определенную модель, испытывают ее в области применения

и находят в ней дефекты. Природа дефектов и теоретические знания экспериментатора могут указать направление изменений и исправлений, ведущих к получению новой модели, которую, в свою очередь, временно принимают и подвергают такой же операции испытания. При этом расчетные константы модели трактуются как результаты наблюдений.

Описанный метод иллюстрируется примером [23]. Исследуется процесс получения вещества F путем осуществления химической реакции между реагентами A и B на катализаторе C . Предположено, что основными факторами, влияющими на процесс, являются начальные концентрации реагентов $[A]_0$ и $[B]_0$, нагрузка на катализатор, которая измеряется концентрацией катализатора в реакционной смеси и обозначается через $[C]$, и температура D . Важно установить, как в зависимости от уровня названных факторов изменяется выход (концентрация) целевого продукта F во времени. Анализ априорных сведений о процессе позволил выбрать технологически приемлемую область экспериментирования, которая задана табл. 82.

Таблица 82
Кодирование факторов

Интервал варьирования и уровень факторов	$[A]_0$, моль/л	$[B]_0$, моль/л	$[C]$, моль/л	D , °C
Нулевой уровень	30	1,5	0,75	170
Интервал варьирования	10	0,5	0,25	5
Верхний уровень	40	2,0	1,00	175
Нижний уровень	20	1,0	0,50	165

В выбранной области факторного пространства реализован полный факторный эксперимент типа 2^4 , причем на каждом сочетании уровней ставился не один, а серия опытов. Внутри серии опыты отличались только продолжительностью, т. е. временем, которое проходило от начала реакции до отбора контрольной пробы (табл. 83).

Обработка результатов эксперимента выполнялась с помощью факторного анализа, терминология и методика которого имеет некоторые отличия от изложенного выше регрессионного анализа.

В факторном анализе изучаемые факторы обозначают буквами A, B, C, D, \dots , а эффекты взаимодействия — символами AB, BC, ABC и т. д. Оценку основных эффектов и эффектов взаимодействия производят по формулам

$$A = \frac{2 \sum_{u=1}^n a_u y_u}{n}, \quad (156)$$

$$s^2 \{A\} = \frac{4s^2 \{y\}}{n} \quad (157)$$

и т. д., где элементы столбца A обозначены символом a_u .

Из сравнения формулы (156) с уравнениями (8) и (9) следует, что между коэффициентами регрессии и основными эффектами и

Условия и результаты опытов

Серия	Матрица планирования				Концентрация F , г/моль/л, при продолжительности процесса, мин				
	A	B	C	D	80	160	320	640	1280
1	—	—	—	—	3,17	5,39	8,66	15,19	22,60
2	+	—	—	—	14,70	23,40	34,30	34,60	20,30
3	—	+	—	—	4,80	10,80	22,50	34,60	42,00
4	+	+	—	—	23,20	39,00	55,60	63,40	41,60
5	—	—	+	—	3,72	3,81	17,20	20,00	23,90
6	+	—	+	—	17,90	23,80	40,50	34,20	21,60
7	—	+	+	—	8,60	13,30	25,90	39,80	50,80
8	+	+	+	—	30,90	51,40	72,20	76,40	38,90
9	—	—	—	+	7,48	9,93	20,00	30,90	24,90
10	+	—	—	+	25,30	35,30	39,10	28,40	7,50
11	—	+	—	+	13,30	27,10	43,00	58,00	49,40
12	+	+	—	+	50,80	75,60	84,20	57,00	11,50
13	—	—	+	+	9,15	16,80	27,50	33,90	23,00
14	+	—	+	+	30,80	44,40	46,70	24,90	2,94
15	—	+	+	+	22,80	37,20	57,90	69,10	53,90
16	+	+	+	+	62,60	88,00	89,50	43,40	5,80

эффектами взаимодействия существуют простые соотношения: $b_1 = A/2$, $b_2 = B/2$, $b_{12} = AB/2$ и т. д. Переход от коэффициентов регрессии к основным эффектам связан с изменением начала отсчета: в первом случае началом отсчета служит нулевой уровень, во втором — нижний уровень соответствующего фактора. Поэтому основные эффекты A , B , C ,... — это эффекты, обусловленные переходом соответствующих факторов с нижнего уровня на верхний. Указанные выше соотношения имеют смысл только для непрерывно изменяющихся величин. Если факторы A , B , C ,... принимают только дискретные значения, то результаты исследования можно представлять только с помощью терминов факторного анализа.

Так как техника вычислений при выполнении факторного анализа практически не отличается от рассмотренных методов регрессионного анализа, то сделанных замечаний достаточно для понимания дальнейшего анализа результатов, полученных в рассматриваемом примере. Результаты расчетов относительно выхода целевого продукта приведены в табл. 84.

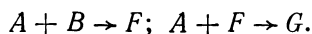
Анализ приведенных в табл. 84 данных показывает, что выход целевого продукта весьма сложно зависит от рассматриваемых факторов. Значимыми оказались не только основные эффекты, но и эффекты взаимодействия двух, трех и четырех факторов. Кроме того, основные эффекты и эффекты взаимодействия заметно и довольно сложным путем изменяются во времени. Например, эффект A принимает значения от 32,08 до — 17,54. При попытке ввести время в качестве пятого фактора столкнулись со значимым

**Факторный анализ результатов наблюдений,
приведенных в табл. 83**

Эффект	Значения эффектов, гмоль/л. при продолжительности процесса, мин				
	80	160	320	640	1280
<i>A</i>	22,90	32,08	30,00	7,60	—17,54
<i>B</i>	13,05	22,44	27,10	27,45	18,40
<i>C</i>	5,46	6,62	8,76	2,44	0,13
<i>D</i>	14,40	20,42	16,40	3,42	—10,34
<i>AB</i>	6,60	9,32	8,12	2,08	—7,03
<i>AC</i>	1,58	2,06	0,17	—3,78	—3,04
<i>BC</i>	2,74	2,82	1,30	1,48	1,10
<i>AD</i>	6,30	6,00	—2,15	—17,14	—13,32
<i>BD</i>	6,10	8,00	8,22	—0,10	—2,83
<i>CD</i>	1,66	3,10	0,07	—3,20	—2,04
<i>ABC</i>	—0,04	1,00	0,72	—0,64	—2,37
<i>ABD</i>	2,86	2,25	0,50	—5,86	—5,10
<i>ACD</i>	—0,06	—0,92	—2,54	—4,22	—0,17
<i>BCD</i>	0,80	—1,20	—0,02	—2,00	0,22
<i>ABCD</i>	—0,34	—1,00	—3,15	—3,90	0,50
Среднее значение	20,58	31,58	42,80	41,49	27,54

взаимодействием с пятью факторами. Таким образом, решение поставленной задачи путем построения полиномиальных моделей весьма затруднительно и малоэффективно. Поэтому, используя идею шагового поиска, попытаемся построить модель процесса, но применив при этом изложенный выше метод построения полутеоретических моделей.

Предположим, что при исследовании экспериментатор был в состоянии представить себе теоретическую модель процесса, которая могла бы служить, по крайней мере, первым приближением в объяснении изменения выхода целевого продукта во времени. Исследуемый процесс представляется в виде двух последовательных реакций



Концентрация реагента *A* превышала концентрацию реагента *B* примерно в 20 раз. Таким образом, в ходе реакции расходовалась небольшая доля реагента *A* и, следовательно, в первом приближении его концентрацию можно считать постоянной для каждой серии опытов.

Наиболее простой возможной кинетической моделью, описывающей поведение системы, была бы такая модель, которая предполагала реакцию первого порядка по отношению к концентрациям *B* и *F*. Тогда для данной начальной концентрации реагента *A*, данной концентрации катализатора *C* и заданной температуры *D*

можно было бы описать ход реакции дифференциальными уравнениями:

$$\left. \begin{aligned} -\frac{d[A]}{d\tau} &= k_1[B] + k_2[F]; \\ -\frac{d[B]}{d\tau} &= k_1[B]; \\ \frac{d[F]}{d\tau} &= k_1[B] - k_2[F]; \\ \frac{d[G]}{d\tau} &= k_2[F], \end{aligned} \right\} \quad (158)$$

где $[A]$, $[B]$, $[F]$ и $[G]$ обозначают концентрации во времени.

Интегрируя систему (158) относительно $[F]$, получим

$$[F] = \frac{[B]_0 k_1}{k_1 - k_2} (e^{-k_2 \tau} - e^{-k_1 \tau}). \quad (159)$$

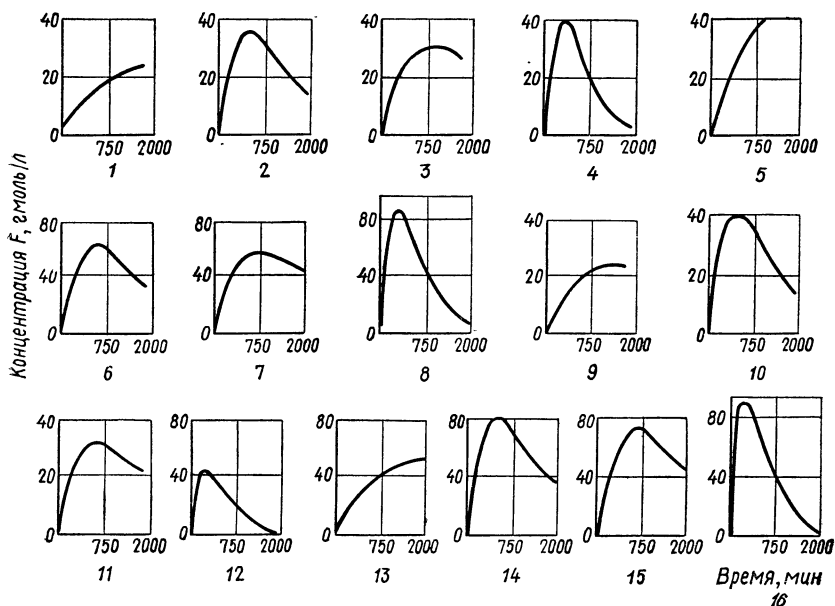


Рис. 43. Сглаженные кривые выхода продукта F в опытах 16 серий.

Если предположить, что константы k_1 и k_2 скоростей зависят от температуры по закону Аррениуса и не зависят от $[B]_0$ (в соответствии с принятой схемой), то можно ожидать, что $k_1 = k_1 \times ([A]_0; [C]; D)$ и $k_2 = k_2 ([A]_0; [C]; D)$ будут функциями экспериментальных переменных $[A]_0$, $[C]$ и D , но не $[B]_0$, если модель адекватна.

В каждой серии опытов (табл. 83) имеется пять значений концентрации F , полученных в разные моменты времени. Можно воспользо-

зоваться этими данными для того, чтобы с помощью метода наименьших квадратов оценить константы k_1 и k_2 . Сглаженные кривые изменения выхода целевого продукта F для каждой из 16 серий опытов (табл. 83) приведены на рис. 43.

В табл. 85 выполнено сопоставление результатов опытов с данными расчета, полученными после подстановки в соответствующие уравнения значений констант, определенных методом наименьших квадратов. Полученная точность приближения вполне достаточна, что может также служить доказательством правильности принятых допущений.

Таблица 85

Сопоставление выхода целевого продукта F
в опытах с результатами расчета

Серия опытов	$[y_\tau - \eta_\tau(\hat{k}_1; \hat{k}_2)] \cdot 100 \quad \left\{ \begin{array}{l} \tau = 80, 160, \dots, 1280 \text{ мин} \\ j = 1, 2, \dots, 16 \end{array} \right.$				
	80 мин	160 мин	320 мин	640 мин	1280 мин
1	0,45	0,32	—0,68	0,08	—0,23
2	0,90	—0,08	0,31	—1,01	0,76
3	—1,68	—1,38	0,84	0,72	—0,36
4	1,38	1,20	—1,12	—0,58	0,70
5	—0,49	—4,03	3,57	—0,66	—0,07
6	1,21	0,40	1,47	—4,04	3,13
7	1,04	—0,96	0,64	—0,38	0,10
8	0,48	0,12	—1,18	1,26	—0,68
9	0,52	—2,70	—0,73	2,71	—1,22
10	2,12	—0,01	—1,91	0,64	1,04
11	1,58	0,42	—0,40	0,88	—0,44
12	0,78	0,28	—1,40	1,22	—0,76
13	—0,72	—1,60	0,48	1,27	—0,87
14	—0,45	0,18	0,92	—0,12	—1,31
15	—1,92	0,28	0,22	—1,56	0,92
16	—0,56	—0,56	1,84	—1,12	—0,64

С точки зрения техники проведения всех вычислений, гораздо лучше оперировать не с самими константами скоростей, а с их логарифмами. В табл. 86 приведены значения $-10\ln\hat{k}_1$ и $-10\ln\hat{k}_2$ для каждой из 16 серий опытов, а в табл. 87 — факторный анализ применительно к этим величинам.

Рассмотрим вероятную природу зависимости k_1 и k_2 от факторов концентрации реагента A , концентрации катализатора C и температуры процесса D . Ранее уже высказывалось предположение того, что температурная зависимость констант скорости реакций подчинена закону Аррениуса, т. е. что $\ln k_i$ ($i = 1, 2$) зависит линейно от величины обратной абсолютной температуры. Следовательно, результаты опытов, подкрепленные, по крайней мере, частично теорией химической кинетики, дают повод предполагать, что искомые константы будут пропорциональны некоторому

Таблица 86

Оценки констант k_1 и k_2 , полученные методом наименьших квадратов

Серия опытов	$-10 \ln \hat{k}_1$	$-10 \ln \hat{k}_2$	Серия опытов	$-10 \ln \hat{k}_1$	$-10 \ln \hat{k}_2$	Серия опытов	$-10 \ln \hat{k}_1$	$-10 \ln \hat{k}_2$
1	79,74	72,68	7	75,99	69,35	12	54,82	58,19
2	61,99	62,09	8	61,01	62,40	13	65,71	63,42
3	77,49	68,03	9	69,48	65,09	14	52,04	57,86
4	64,36	62,04	10	55,70	58,05	15	65,22	64,44
5	74,80	67,25	11	68,78	64,31	16	51,76	57,01
6	59,91	62,19						

Таблица 87

Факторный анализ $\ln \hat{k}_1$ и $\ln \hat{k}_2$

Эффект	В отношении $10 \ln \hat{k}_1$	В отношении $10 \ln \hat{k}_2$	Эффект	В отношении $10 \ln \hat{k}_1$	В отношении $10 \ln \hat{k}_2$	Эффект	В отношении $10 \ln \hat{k}_1$	В отношении $10 \ln \hat{k}_2$
A	14,43	6,84	BC	-0,36	-0,98	ACД	0,02	0,55
B	-0,03	0,36	AD	-0,71	-0,30	BCД	0,14	0,78
C	3,26	0,82	BD	0,64	-0,24	ABCD	-0,67	-0,46
D	9,00	4,71	CD	0,25	-0,09	Среднее значение	-64,94	-63,40
AB	-0,60	-0,22	ABC	0,56	1,16			
AC	-0,18	-0,59	ABD	0,59	0,46			

показателю степени концентрации A и некоторому показателю степени концентрации катализатора. Таким образом, временно принимаются уравнения

$$k_1 = k_1([A]_0; [C]; T) = [A]_0^{p_1} [C]^{q_1} \alpha_1 e^{-\beta_1/T};$$

$$k_2 = k_2([A]_0; [C]; T) = [A]_0^{p_2} [C]^{q_2} \alpha_2 e^{-\beta_2/T},$$

как описывающие зависимость констант скорости от переменных. Эквивалентно

$$\left. \begin{aligned} \ln k_1 &= p_1 \ln [A]_0 + q_1 \ln [C] + \ln \alpha_1 - \beta_1/T; \\ \ln k_2 &= p_2 \ln [A]_0 + q_2 \ln [C] + \ln \alpha_2 - \beta_2/T; \end{aligned} \right\} \quad (160)$$

где $p_i, q_i, \alpha_i, \beta_i$ — независимые переменные.

Так как уравнения (160) линейны относительно $\ln[A]_0$, $\ln[C]$ и T^{-1} , то все взаимодействия с $[A]_0$, $[C]$ и T в случае верности принятых допущений должны быть равны нулю. Это значит, что появление эффектов взаимодействия в табл. 87 связано с ошибкой эксперимента.

Сопоставление с результатами факторного анализа показывает, что для всех эффектов взаимодействия можно принять гипотезу об их незначимости; для эффекта B можно принять гипотезу о его незначимости, исходя из сравнения его величины с незначимыми эффектами взаимодействия.

После подтверждения статистическим анализом адекватности априорной модели можно приступить к численной оценке параметров уравнений. Для этого найдем срединное значение логарифма константы скорости, соответствующее средним значениям преобразованных независимых переменных:

$$\overline{\ln k_i} = p_i \overline{\ln [A]_0} + q_i \overline{\ln [C]} + \ln \alpha_i - \beta_i / \bar{T}.$$

$$(i = 1, 2).$$

После вычитания из уравнений (160) получаем

$$\ln k_1 = \overline{\ln k_1} + p_1 (\ln [A]_0 - \overline{\ln [A]_0}) + q_1 (\ln [C] - \overline{\ln [C]}) - \beta_1 (T^{-1} - \bar{T}^{-1});$$

$$\ln k_2 = \overline{\ln k_2} + p_2 (\ln [A]_0 - \overline{\ln [A]_0}) + q_2 (\ln [C] - \overline{\ln [C]}) - \beta_2 (T^{-1} - \bar{T}^{-1}).$$

Отсюда следует, что значения констант в исходных уравнениях (160) оцениваются выражениями

$$\hat{p}_i = \frac{\text{Эффект } A_i}{\ln [A]_0^+ - \ln [A]_0^-}, \quad (i = 1, 2);$$

$$\hat{q}_i = \frac{\text{Эффект } C_i}{\ln [C]^+ - \ln [C]^-}, \quad (i = 1, 2);$$

$$\beta_i = \frac{\text{Эффект } D_i}{\frac{1}{T^-} - \frac{1}{T^+}}, \quad (i = 1, 2),$$

где эффекты A_i , C_i и D_i — линейные эффекты, подсчитанные методом факторного анализа (табл. 87) для вектора выхода, представленного значениями $\ln \hat{k}_i$.

95 %-ные доверительные границы для параметров задаются соотношениями

$$\hat{p}_i = \pm \frac{2,201 s_i}{\ln [A]_0^+ - \ln [A]_0^-};$$

$$\hat{q}_i = \pm \frac{2,201 s_i}{\ln [C]^+ - \ln [C]^-};$$

$$\hat{\beta}_i = \pm \frac{2,201 s_i}{\frac{1}{T^-} - \frac{1}{T^+}}.$$

Здесь в числителе дано произведение t -критерия Стьюдента, равное 2,201 при $f = 11$ и выбранном уровне значимости, на среднеквадратическую ошибку s_i . Дисперсия s_i^2 определяется суммой квадратов случайных величин, полученных при оценке незначимых эффектов взаимодействия. Например, для первого столбца табл. 87 находим

$$s_1^2 = \frac{(-0,060)^2 + (-0,018)^2 + \dots + (-0,067)^2}{11} = 0,00236,$$

откуда $s_1 = 0,049$. Таким образом, получаем

$$\begin{aligned}\hat{p}_1 &= 2,08 \pm 0,16; & \hat{\beta}_1 &= (17,7 \pm 2,1) 10^3; \\ \hat{p}_2 &= 0,99 \pm 0,20; & \hat{\beta}_2 &= (9,2 \pm 2,7) 10^3; \\ \hat{q}_1 &= 0,47 \pm 0,16; & \ln \alpha_1 &= 26,59 \pm 4,70; \\ \hat{q}_2 &= 0,12 \pm 0,20; & \ln \alpha_2 &= 11,26 \pm 0,65.\end{aligned}$$

Энергия E активации связана с β соотношением $E = R\beta$, где $R = 8,1$ Дж/(моль \cdot К) — универсальная газовая постоянная. Используя это соотношение, находим

$$E_1 = (144,3 \pm 17,2) \text{ кДж/моль}; E_2 = (79,8 \pm 22,1) \text{ кДж/моль}.$$

Итак, в соответствии с общими представлениями химической кинетики можно утверждать, что реакция $A + B \rightarrow F$ имеет второй порядок по отношению к $[A]$, первый — по отношению к $[B]$ и кажущийся порядок 0,5 для катализатора $[C]$. Реакция $A + F \rightarrow G$ первого порядка для $[A]$ и $[B]$; эффект катализатора выражен весьма слабо.

Для определения $[F]$ в любой момент времени при различных условиях эксперимента подставим выражения для k_1 и k_2 в уравнение (159):

$$[F] = \frac{[B]_0 [A]_0^2 [C]^{0,5} l_1}{[A]_0^2 [C]^{0,5} l_1 - [A]_0 l_2} (e^{-[A]_0 l_1 \tau} - e^{-[A]_0^2 [C]^{0,5} l_1 \tau}).$$

Здесь $l_1 = 3,518 \cdot 10^{11} e^{-35200/RT}$; $l_2 = 7,795 \cdot 10^4 e^{-183007/R}$.

Выше уже указывалось на то, что рассмотренный пример был синтезирован с помощью математической модели с параметрами:

$$\begin{aligned}p_1 &= 2,0; p_2 = 1,0; q_1 = 0,5; q_2 = 0,0; l_1 = 9,28 \cdot 10^{11} \times \\ &\times e^{-355807/R} \text{ и } l_2 = 3,99 \cdot 10^3 e^{-157407/R}.\end{aligned}$$

Экспериментальные значения были получены путем сложения нормально распределенной случайной величины с расчетными величинами. Ошибка в пределах серии имела среднее квадратичное отклонение 0,020, а ошибка между сериями — среднее квадратичное отклонение 0,015. При решении реальных задач для получения удовлетворительной модели может потребоваться не один, а несколько итерационных циклов. Конечно, после завершения итерационного процесса желательно произвести серию критических экспериментов для проверки полученной модели.

Описанная методика не является единственно возможной для проверки и построения полупирических моделей. Однако многократное использование ее с положительным результатом позволяет говорить о ее эффективности и целесообразности. Кроме того, в представленном виде эта методика применима для решения многих задач в химии, машиностроении, физике, биологии и других областях науки и техники.

Рассмотрим методику оценки констант k_1 и k_2 с помощью метода наименьших квадратов.

Константы находят итерационным методом с помощью приближенной линеаризации функции, выраженной уравнением (159). Часто бывают случаи, когда более близкую линейную аппроксимацию можно получить, оперируя не с самими переменными, а с их преобразованными формами. В частности, в рассмотренном примере показано, что задача поиска параметров $\ln k_1$ и $\ln k_2$ существенно проще, чем непосредственный поиск k_1 и k_2 .

Если допустить, что $\theta_1 = 4 + \log k_1$ и $\theta_2 = 4 + \log k_2$, и обозначить функцию через $\eta(\theta_1, \theta_2)$, то

$$\begin{aligned} \eta(\theta_1; \theta_2) = \eta(\theta_1^*; \theta_2^*) + (\theta_1 - \theta_1^*) \left[\frac{\partial \eta}{\partial \theta} \right]_{\theta=\theta^*} + \\ + (\theta_2 - \theta_2^*) \left[\frac{\partial \eta}{\partial \theta} \right]_{\theta=\theta^*} + \epsilon, \end{aligned} \quad (161)$$

если отбросить в разложении члены $(\theta - \theta^*)$ со степенями больше первой. В общем случае, в котором временная функция точно неизвестна, а дана, например, лишь в виде дифференциальных уравнений, которые можно решить численным методом, производная может быть задана в виде $\frac{\Delta \eta}{\Delta \theta}$.

Обозначив символом θ^* первую оценку истинного значения θ_i ($i = 1, 2$) и записав

$$\begin{aligned} x_1 &= \eta(\theta_1^* + \delta_1; \theta_2^*) - \eta(\theta_1^*; \theta_2^*); \\ x_2 &= \eta(\theta_1^*; \theta_2^* + \delta_2) - \eta(\theta_1^*; \theta_2^*); \\ y &= y - \eta(\theta_1^*; \theta_2^*), \end{aligned}$$

превратим уравнение (161) в простое уравнение регрессии:

$$y = \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \epsilon,$$

где $\beta_i = (\theta_i - \theta_i^*)/\delta_i$.

Оценки b_1 и b_2 для β_1 и β_2 можно получить с помощью метода наименьших квадратов и использовать их для получения новых оценок $\theta_1^{\times \times}$ и $\theta_2^{\times \times}$ для θ_1 и θ_2 по уравнениям

$$\theta_1^{\times \times} = \theta_1^* + \delta_1 b_1; \quad \theta_2^{\times \times} = \theta_2^* + \delta_2 b_2.$$

Описанный итерационный процесс должен повторяться до тех пор, пока остаточная сумма квадратов не перестанет уменьшаться.

Рассмотрим, как оценивались величины k_1 и k_2 в первой серии опытов. Так как скорость сходимости этого итерационного процесса в значительной степени зависит от выбора первых оценок k_1^* и k_2^* , то следует начать именно с выбора этих величин.

При $\tau = 0$ уравнение (159) принимает вид

$$\left(\frac{d[F]}{d\tau}\right)_{\tau=0} = k_1 [B]_0,$$

$$\text{откуда } k_1 = \left(\frac{d[F]}{d\tau}\right)_{\tau=0} / [B]_0. \quad (162)$$

Следовательно, если $\tau_{\text{макс}}$ — момент времени, в который $[F]$ приобретает максимальное значение, то после дифференцирования

$$\tau_{\text{макс}} = \frac{\ln k_1 - \ln k_2}{k_1 - k_2}. \quad (163)$$

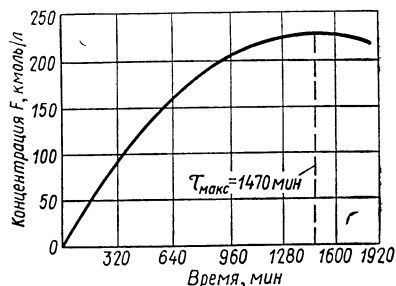


Рис. 44. График для определения первых оценок k_1 и k_2 (первая серия опытов).

Таблица 88

Вычисление функции $\eta(\theta_1, \theta_2)$

τ , мин	Значение y в опыте	$\eta(0,61; 1,02)$	$\eta(0,66; 1,02)$	$\eta(0,61; 1,04)$
80	0,0317	0,0307	0,0345	0,0306
160	0,0539	0,0579	0,0648	0,0577
320	0,0866	0,1032	0,1149	0,1024
640	0,1590	0,1643	0,1815	0,1618
1280	0,2260	0,2104	0,2281	0,2047
Обозначение	(1)	(2)	(3)	(4)

Можно построить приближенную кривую, характеризующую изменение выхода продукта F во времени. По этой кривой можно оценить величины $\left(\frac{d[F]}{d\tau}\right)_{\tau=0}$ и $\tau_{\text{макс}}$ и, подставляя эти оценки в уравнения (162) и (163), найти исходные значения k_1^* и k_2^* для k_1 и k_2 . В качестве иллюстрации на рис. 44 приведен график кривой для первой серии опытов. По этой кривой получены следующие значения величин: $\left(\frac{d[F]}{d\tau}\right)_{\tau=0} = 4,06$ ммоль \cdot мин/л и $\tau_{\text{макс}} = 1470$ мин, что дает предварительные оценки $k_1 = 0,406$ мин $^{-1}$ и $k_2 = 1,052$ мин $^{-1}$. Пользуясь этими оценками, как исходными значениями, можно провести более точную оценку величин k_1 и k_2 методом наименьших квадратов.

Для рассматриваемого примера $\theta_1^* = 0,6090$ и $\theta_2^* = 1,0220$. Принимая $\delta_1 = 0,05$ и $\delta_2 = 0,02$, получаем значения, приведенные в табл. 88. Таким образом, по данным табл. 88 имеем

(1) — (2)	(3) — (2)	(4) — (2)
y	x_1	x_2
0,0010	0,0038	0,0001
0,0040	0,0069	0,0002
0,0166	0,0117	0,0008
0,0053	0,0172	0,0025
0,0156	0,0177	0,0057

Кроме того,

$$\begin{aligned}\sum x_1^2 &= 80,807 \cdot 10^{-5}; & \sum x_2^2 &= 3,943 \cdot 10^{-5}; \\ \sum x_1 x_2 &= -15,501 \cdot 10^{-5}; & \sum y x_1 &= -3,306 \cdot 10^{-5}; \\ & & \sum y x_2 &= -6,169 \cdot 10^{-5}.\end{aligned}$$

Система нормальных уравнений принимает вид

$$\left. \begin{aligned}80,807b_1 - 15,501b_2 &= -3,306; \\ -15,501b_1 + 3,943b_2 &= -6,169,\end{aligned} \right\}$$

откуда $b_1 = -1,388$, $b_2 = -7,021$ и

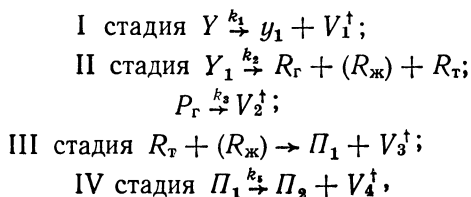
$$\begin{aligned}\theta_1^{**} &= 0,6090 + (0,05)(-1,388) = 0,5396; \\ \theta_2^{**} &= 1,0220 + (0,02)(-7,021) = 0,8816.\end{aligned}$$

Эти новые оценки используются затем как исходные значения для последующей итерации.

Проверка гипотезы о механизме термохимических превращений веществ углей*

При ограниченном знании химического строения веществ углей единственным источником достоверной информации о процессе являются кинетические кривые, получаемые в различных условиях (при варьировании различных факторов). Однако непосредственная интерпретация кинетических кривых невозможна, и поэтому обычно принимают некоторые предположения относительно механизма, на основании которых сначала выводят гипотетическое уравнение (или систему уравнений) кинетики, а затем проверяют, насколько рассчитанные по гипотетическому уравнению кривые соответствуют экспериментальным кинетическим кривым.

Исходя из современных представлений о высокомолекулярности веществ углей и радикальном механизме их деструкции, механизм термохимических превращений веществ углей при изотермическом нагреве их без доступа воздуха был представлен в виде следующих грунто-реакций:



* Работа выполнялась совместно с М. Г. Скляром и В. И. Шустиковым.

где Y, Y_1 — уголь исходный и после стадии низкотемпературных превращений; $R_r, R_{ж}, R_t$ — свободные радикалы, образующие при данной температуре газообразные, жидкие и твердые продукты деструкции; P_1, P_2 — твердые остатки (полукокс, кокс); V_1, V_2, V_3 — летучие при данной температуре вещества; $k_1 - k_5$ — константы скорости соответствующих реакций.

На основании этих стехиометрических уравнений и вида термогравиметрической кривой (рис. 45) выведены уравнения:

$$V = V_1 + V_2 + V_3 + V_4 = [V_1]_{\infty} \{1 - \exp(-k_1\tau)\} + [V_2]_{\infty} \left\{1 - \frac{k_3}{k_3 - k_2} \exp[-k_2(\tau - \tau_1)] + \frac{k_2}{k_3 - k_2} \times \exp[-k_3(\tau - \tau_1)]\right\} + [V_3]_{\infty} \{1 - \exp[-k_4(\tau - \tau_2)]\} + k_5(\tau - \tau_2) \quad (164)$$

при $k_3 \neq k_2$;

$$V = [V_1]_{\infty} \{1 - \exp(-k_1\tau)\} + [V_2]_{\infty} \{1 - [k_2(\tau - \tau_1) + 1] \exp(-k_2(\tau - \tau_1))\} + [V_3]_{\infty} \{1 - \exp[-k_4(\tau - \tau_2)]\} + k_5(\tau - \tau_2) \quad (165)$$

при $k_3 = k_2$ с ограничениями $V_2 = V_3 = V_4 = 0$ в случае $\tau < \tau_1$ и $V_3 = V_4 = 0$ в случае $\tau < \tau_2$, где τ_1 — время начала II стадии; τ_2 — время начала III и IV стадий; индекс ∞ означает конечное состояние.

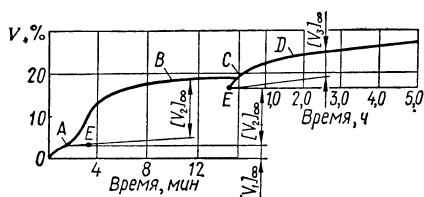


Рис. 45. Гравиметрическая кривая изотермической деструкции газового угля.

Таблица 89

Уровни варьирования факторов				
Уровень	Факторы			
	A, %	B, °C	C, °C	D, г
Верхний	45,24	500	275	0,6
Нижний	35,69	420	105 (суш-ка)	0,3

Уравнения (164) и (165) временно принимаются в качестве кинетической модели процесса изотермической деструкции углей. Испытание временно принятой модели выливается в экспериментальное определение зависимостей констант уравнений (164) и (165) от различных факторов — начальных условий термической деструкции. В качестве последних были выбраны: A — природа угля; B — температура деструкции; C — условия предварительной термической подготовки углей; D — величина навески угля (G).

Модель испытывалась на примере деструкции двух газовых углей, значительно отличающихся по выходу летучих веществ: угли обогатительной фабрики шахты «Пионер» ($V_r = 35,69\%$) и угли шахты № 5—12-бис ($V_r = 45,24\%$). Уровни варьирования факторов приведены в табл. 89.

Результаты эксперимента

Опыт	Природа угля	Температура деструкции	Предварительная термическая подготовка	Навеска, г	I стадия k_1 , мин ⁻¹	II стадия		III стадия k_4 , мин ⁻¹	IV стадия k_5 , мин ⁻¹
						k_2 , мин ⁻¹	k_3 , мин ⁻¹		
1	—	—	—	—	1,00 1,21	0,077 0,100	1,22 1,00	— —	0,0325 0,0236
2	—	—	—	+	1,18 1,00	0,070 0,090	1,00 1,35	0,0223 —	0,0133 0,0159
3	—	—	+	—	0,400 —	0,120 0,120	1,35 1,00	— 0,0250	0,0263 0,0233
4	—	—	+	+	0,455 —	0,090 0,100	1,00 1,00	0,0358 0,0210	0,0167 0,0150
5	—	+	—	—	2,00 1,82	1,20 1,10	1,20 1,10	0,0715 0,0500	0,0208 0,0279
6	—	+	—	+	2,00 1,67	1,00 1,00	1,00 1,00	0,0550 0,0313	0,0202 0,0159
7	—	+	+	—	0,278 0,380	1,00 1,20	1,275 1,20	0,0667 —	0,0292 —
8	—	+	+	+	0,278 0,445	0,90 1,15	0,90 1,15	0,0358 0,0455	0,0172 0,0156
9	+	—	—	—	1,75 0,95	0,170 0,160	1,00 1,20	— 0,0300	0,0222 0,0227
10	+	—	—	+	0,667 0,742	0,120 0,150	1,20 1,35	0,0245 0,0270	0,0141 0,0126

Опыт	Природа угля	Температура деструкции	Предварительная термическая подготовка	Навеска, г	I стадия k_1 , мин ⁻¹	II стадия		III стадия k_4 , мин ⁻¹	IV стадия k_5 , мин ⁻¹
						k_2 , мин ⁻¹	k_3 , мин ⁻¹		
11	+	—	+	—	0,476 0,270	0,145 0,145	1,20 1,00	— —	0,0260 0,0325
12	+	—	+	+	0,238 0,250	0,145 0,130	1,20 1,10	0,0244 0,0264	0,0172 0,0153
13	+	+	—	—	1,18 1,18	1,00 1,60	1,54 1,60	0,0667 0,0625	0,0208 0,0406
14	+	+	—	+	2,00 1,18	1,50 1,40	1,50 1,40	0,0586 0,0625	0,0161 0,0188
15	+	+	+	—	0,208 0,222	1,60 1,50	1,60 1,50	0,0590 0,0715	0,0297 0,0312
16	+	+	+	+	0,208 0,358	1,10 1,10	1,10 1,10	0,0500 0,0476	0,0169 0,0150

Примечание. Рамками выделены данные, полученные при обработке термогравиметрических кривых предварительного нагрева; при деструкции углей после предварительного нагрева I стадия отсутствует.

В экспериментальной части исследования был реализован план полного факторного эксперимента типа 2^4 двумя рандомизированными сериями. При этом константы кинетической модели (k_1 — k_5) определялись при обработке термогравиметрических кривых по методике, приведенной в работе [18]. Результаты определений сведены в табл. 90.

Как и следовало ожидать, все константы (исключая k_3 для угля обогатительной фабрики шахты «Пионер») изменяются при варьировании факторов. Поэтому рассмотрим вероятную природу зависимости константы скорости k_i ($i = 1, 2, \dots, 5$) от факторов A , B , C и D .

В соответствии с теорией можно ожидать, что k_i^* не будут зави-

* Исключение может составить константа k_5 реакции нулевого порядка, так как большинство реакций нулевого порядка представляют собой гетерогенные процессы, протекающие на поверхности [3], а при разной навеске следует ожидать различную удельную поверхность.

сеть от величины навески образца, если определяющим (наиболее медленным) процессом выделения летучих веществ будет химическая реакция (не диффузия их из реакционной зоны), а температурная зависимость констант скоростей реакций будет описываться законом Аррениуса.

Выход летучих веществ V^r можно представить как концентрацию гипотетического исходного продукта и предположить, что константы скорости будут пропорциональны некоторым показателям степени от V^r . Для упрощения будем считать, что константы скоростей пропорциональны некоторым показателям степени от фактора C . Последние допущения могут быть приемлемы, если при предварительной термической подготовке не происходит существенного изменения химического строения веществ углей и если различия в строении веществ исходных исследованных углей также несут незначительный вклад. Таким образом, временно принимаются уравнения

$$k_i = (V^r)^{p_i} (C)^{q_i} \alpha_i \exp(-\beta_i/T), \quad i = 1, 2, 3, 4;$$

$$k_5 = (V^r)^{p_5} (C)^{q_5} \alpha_5 \exp(-\beta_5/T) (G)^{r_5},$$

как описывающие зависимость констант скорости от исследованных факторов. Эквивалентно

$$\left. \begin{aligned} \ln k_i &= p_i \ln V^r + q_i \ln C + \ln \alpha_i - \beta_i/T; \\ \ln k_5 &= p_5 \ln V^r + q_5 \ln C + \ln \alpha_5 - \beta_5/T + r_5 \ln G, \end{aligned} \right\} \quad (166)$$

где $p_i, q_i, \alpha_i, \beta_i, r_5$ — неизвестные параметры, определяемые по результатам эксперимента; T — температура, К.

Полученные выражения линейны относительно $\ln V^r, \ln C, T^{-1}, \ln G$ и, следовательно, адекватность линейных уравнений (166) экспериментальным данным является единственным условием правильности временно принятой модели [уравнения (164) и (165)].

Поскольку в уравнениях (166) отклики (константы) выражены в натуральных логарифмах, то в табл. 91 сведены средние (по параллельным опытам) значения $\ln k_i$, рассчитанные по данным табл. 90*, и оценки дисперсий этих значений, однородность которых между опытами проверялась по критерию Кохрена, что позволило получить несмещенную оценку дисперсии, характеризующую ошибку эксперимента $s^2\{y\}$. Результаты факторного анализа сведены в табл. 92. При этом 95%-ные доверительные интервалы для истинных эффектов рассчитывались с помощью критерия Стьюдента по формуле

$$\pm t_{(0,025; n)} \sqrt{s^2\{A\}} = \pm t_{(0,025; n)} \frac{2s\{y\}}{\sqrt{n}}. \quad (167)$$

* Поскольку в опытах 1 и 11 выход летучих веществ $[V_3]_\infty$ на III стадии был настолько мал, что невозможно было рассчитать константу скорости k_4 , при определении $\ln k_4$ было принято допущение: в опытах 1 и 11 величина $k_4 = 0,0223$ (по опыту 2).

Таблица 91

Исходные данные факторного анализа

Опыт	План эксперимента				Результаты наблюдений				
	A	B	C	D	$\ln k_1$	$\ln k_2$	$\ln k_3$	$\ln k_4$	$\ln k_5$
1	—	—	—	—	0,0953	—2,4333	0,0945	—3,8032	—3,5865
2	—	—	—	+	0,0827	—2,5336	0,1500	—3,8032	—4,2307
3	—	—	+	—	—0,9163	—2,1203	0,1500	—3,6889	—3,6987
4	—	—	+	+	—0,7875	—2,3553	0,0000	—3,5965	—4,1460
5	—	+	—	—	0,6459	0,1388	0,1388	—2,8170	—3,7260
6	—	+	—	+	0,6030	0,0000	0,0000	—3,1823	—4,0218
7	—	+	+	—	—1,1238	0,0911	0,2127	—2,7076	—3,5336
8	—	+	+	+	—1,0460	0,0172	0,0172	—3,2100	—4,1117
9	+	—	—	—	0,2541	—1,8023	0,0911	—3,5063	—3,7965
10	+	—	—	+	—0,3517	—2,0087	0,2412	—3,6505	—4,2178
11	+	—	+	—	—1,0259	—1,9310	0,0911	—3,8032	—3,5381
12	+	—	+	+	—1,4109	—1,9856	0,1388	—3,6738	—4,1214
13	+	+	—	—	0,1655	0,2350	0,4509	—2,7401	—3,5459
14	+	+	—	+	0,4293	0,3710	0,3710	—2,8048	—4,0515
15	+	+	+	—	—1,5376	0,4378	0,4378	—2,7341	—3,4920
16	+	+	+	+	—1,2987	0,0953	0,0953	—3,0204	—4,1401
Дисперсии					0,0610	0,0168	0,0054	0,0425	0,0286
Степени свободы					14	16	16	10	15

Таблица 92

Результаты факторного анализа

Эффект	В отношении				
	$\ln k_1^*$	$\ln k_2$	$\ln k_3$	$\ln k_4$	$\ln k_5$
A	—0,3384	0,3258	0,1437	0,1162	0,0065
B	1,6042	2,3195	0,0959	0,7887	0,1016
C	—	0,0353	—0,0493	—0,0158	0,0619
D	0,0628	—0,1269	—0,0589	—0,1426	—0,5280
AB	0,0114	—0,1029	0,1023	—0,0450	0,0344
AC	—	—0,0799	—0,0485	—0,1165	0,0431
BC	—	—0,0611	—0,0001	—0,0161	—0,0450
AD	0,0326	0,0100	0,0483	0,0512	—0,0366
BD	0,0477	0,0221	—0,1075	—0,1556	0,0211
CD	—	—0,0496	—0,0784	0,0009	—0,0362
ABC	—	0,0693	—0,0463	0,0437	0,0124
ABD	0,1207	—0,0085	—0,0476	0,0779	—0,0333
ACD	—	—0,0321	—0,0129	0,0120	—0,0149
BCD	—	0,0538	0,0142	0,0217	—0,0700
ABCD	—	—0,1037	—0,0386	—0,0332	0,0498
Среднее значение	—0,3412	—0,9865	0,1678	—3,2964	—3,8786
95%-ные доверительные интервалы	$\pm 0,3746$	$\pm 0,1374$	$\pm 0,0779$	$\pm 0,2297$	$\pm 0,1802$
Линейная модель адекватна	Да	Да	Нет	Да	Да

* Анализ проводился по данным наблюдений при температурах $T^- = 275^\circ \text{C}$ и $T^+ = 500^\circ \text{C}$.

Проведенный анализ показал адекватность линейных уравнений (166), так как полученные оценки эффектов взаимодействия накрываются доверительными интервалами и, следовательно, истинные эффекты взаимодействия правомерно считать равными нулю. Исключение составляет уравнение константы k_3 , поскольку эффекты взаимодействия AB и BD значимы даже при 2%-ном уровне значимости. Поэтому был проведен факторный анализ указанного уравнения для каждого угля в отдельности (табл. 93), который показал неадекватность уравнений (166) для k_3 угля шахты № 5—12-бис также из-за неадекватности температурной зависимости.

Таким образом, результаты эксперимента подтвердили правильность временно принятых уравнений, за исключением уравнений (166) для k_3 , которое отвергается. Однако это обстоятельство не опровергает, а подтверждает правильность общей модели процесса термической деструкции, так как обусловлено альтернативностью уравнений (164) и (165). Поясним это положение.

Из данных табл. 93 видно, что константа k_3 для угля обогащательной фабрики шахты «Пионер» не зависит от переменных факторов, в том числе и от температуры деструкции. Поскольку для угля шахты № 5—12-бис величина $(\ln k_3)_{420^\circ\text{C}}$, равная 0,1405, незначимо отличается от средней величины $\ln k_3$ угля шахты «Пионер», можно сделать вывод: константа скорости k_3 постоянна и не зависит от температуры, а возрастает только в случае $k_3 = k_2$ по температурной зависимости константы скорости k_2 , как и предполагается уравнением (165).

Проверив принятые допущения, оценен неизвестные в уравнениях (166). Для средних логарифмических констант скорости имеем

$$\overline{\ln k_i} = p_i \overline{\ln V^r} + q_i \overline{\ln C} + \ln a_i - \beta_i / \overline{T}, \quad (i = 1, 2, 3, 4);$$

$$\overline{\ln k_5} = p_5 \ln V^r + q_5 \overline{\ln C} + \ln a_5 - \beta_5 / T + r_5 \overline{\ln G}.$$

После вычитания из уравнений (164) получаем

$$\left. \begin{aligned} \ln k_i &= \overline{\ln k_i} + p_i (\ln V^r - \overline{\ln V^r}) + q_i (\ln C - \overline{\ln C}) - \\ &\quad - \beta_i (T^{-1} - \overline{T}^{-1}); \\ \ln k_5 &= \overline{\ln k_5} + p_5 (\ln V^r - \overline{\ln V^r}) + q_5 (\ln C - \overline{\ln C}) - \\ &\quad - \beta_5 (T^{-1} - \overline{T}^{-1}) + r_5 (\ln G - \overline{\ln G}). \end{aligned} \right\} \quad (168)$$

Таблица 93
Результаты факторного анализа
относительно константы k_3

Эффект	В отношении $\ln k_3$	
	Уголь обогащательной фабрики шахты «Пионер»	Уголь шахты № 5—12-бис
B	—0,006 45	0,198 20
C	—0,000 85	—0,097 80
D	—0,107 20	—0,056 15
BC	0,046 40	—0,046 60
BD	—0,059 95	—0,155 05
CD	—0,065 55	—0,091 25
BCD	0,037 720	—0,040 05
Среднее значение	0,095 40	0,239 65
95%-ные доверительные интервалы	$\pm 0,110 10$	$\pm 0,110 10$
Линейная модель адекватна	Да	Нет

Оценки неизвестных обеспечиваются:

$$\left. \begin{aligned} \rho_i &= \frac{\text{Эффект } A_i}{(\ln V^+)^+ - (\ln V^+)^-}; & q_i &= \frac{\text{Эффект } C_i}{(\ln C)^+ - (\ln C)^-}; \\ \beta_i &= \frac{\text{Эффект } B_i}{\frac{1}{T^-} - \frac{1}{T^+}}; & r_i &= \frac{\text{Эффект } D_i}{(\ln G)^+ - (\ln G)^-}, \end{aligned} \right\} \quad (169)$$

где эффект A_i относится к эффекту A , найденному по $\ln k_i$, и т.д.
95%-ные интервалы надежности этих неизвестных

$$\Delta \rho_i = \pm \frac{t_{(0,025; n)} 2s \{y_i\}/n}{(\ln V^+)^+ - (\ln V^+)^-}; \quad \Delta q_i = \pm \frac{t_{(0,025; n)} 2s \{y_i\}/n}{(\ln C)^+ - (\ln C)^-} \quad (170)$$

и т. д. аналогично уравнениям (169).

После подстановки в уравнения (169) и (170) данных таблиц 90 и 91 получаем оценки неизвестных:

$$\begin{aligned} \rho_1 &= -1,43 \pm 1,58 = 0; & \beta_1 &= (3,02 \pm 0,70) 10^3; & q_1 &= 0; \\ \rho_2 &= 1,37 \pm 0,58; & \beta_2 &= (15,54 \pm 0,92) 10^3; & q_2 &= 0,04 \pm 0,14 \approx 0; \\ & & \rho_3 &= 0; & \beta_3 &= 0; & q_3 &= 0; \\ \rho_4 &= 0,49 \pm 0,97 \approx 0; & \beta_4 &= (5,28 \pm 1,54) 10^3; & q_4 &= -0,02 \pm 0,24 \approx 0; \\ \rho_5 &= 0,27 \pm 0,76 \approx 0; & \beta_5 &= (0,68 \pm 1,21) 10^3 = 0; & q_5 &= 0,06 \pm 0,18 \approx 0; \\ r_1 &= 0,09 \pm 0,54 \approx 0; & \ln \alpha_1 &= 4,368 \pm 1,466; \\ r_2 &= -0,18 \pm 0,20 \approx 0; & \ln \alpha_2 &= 15,206 \pm 3,536; \\ r_3 &= 0; & \ln \alpha_3 &= 0,1104 \pm 0,1101; \\ r_4 &= -0,21 \pm 0,32 \approx 0; & \ln \alpha_4 &= 3,932 \pm 2,335; \\ r_5 &= -0,76 \pm 0,26; & \ln \alpha_5 &= -4,532 \pm 0,403. \end{aligned}$$

Энергии активизации стадий процесса термической деструкции углей определяются из выражения

$$E_i = R\beta_i.$$

Таким образом,

$$\begin{aligned} E_1 &= (24,6 \pm 5,7) \text{ кДж/моль}; & E_4 &= (43 \pm 12,3) \text{ кДж/моль}; \\ E_2 &= (126,7 \pm 7,4) \text{ кДж/моль}; & E_5 &= 0; & E_3 &= 0. \end{aligned}$$

При подстановке общих оценок неизвестных в уравнения (166) получаем логарифмические зависимости констант:

$$\begin{aligned} \ln \tilde{k}_1 &= 4,3676 - 3020T^{-1}; \\ \ln \tilde{k}_2 &= 15,2060 + 1,3716 \ln V^+ - 15\,536 T^{-1}; \\ \ln \tilde{k}_3 &= 0,1104; \\ \ln \tilde{k}_4 &= 3,9323 - 5283 T^{-1}; \\ \ln \tilde{k}_5 &= -4,5319 - 0,7620 \ln G. \end{aligned}$$

Таким образом, с помощью серии планируемых экспериментов получена рабочая модель, учитывающая основные теоретические аспекты проблемы деструкции углей. Строго говоря, модель никогда не может дать точного описания процесса, однако рабочая

теоретическая модель дает сведения о процессе в важном диапазоне переменных посредством уравнений, которые отражают, по крайней мере, главные особенности механизма.

Исследование кинетики газификации формованного кокса в области температур 800—900° С*

В связи с увеличением объема доменных печей и совершенствованием технологии доменного производства ведутся интенсивные исследования по созданию новых методов коксования, позволяющих за счет коренного изменения классической схемы слоевого процесса коксования получать металлургический кокс из недефицитных углей. Современный технический уровень разработки новых методов коксования характеризуется наличием установок опытно-промышленного масштаба, на которых по разной технологии и при различном аппаратурном оформлении нарабатываются опытные партии формованного кокса. Уже проведены первые доменные плавки, которые дали положительные результаты.

Отличительной особенностью отечественного метода непрерывного коксования, принципиальные основы которого предложены и разработаны чл.-корр. АН СССР Л. М. Сапожниковым, является максимальное использование спекаемости углей путем принудительного формирования пластической угольной массы с определенными свойствами, обеспечивающее получение прочного и термостойкового кокса из газовых и слабоспекающихся углей. Для схемы характерно разделение процесса коксования на последовательно протекающие стадии, осуществляемые в отдельных технологических аппаратах: быстрый нагрев полидисперсной массы угля в потоке газообразного теплоносителя до температур перехода в пластическое состояние; изотермическая выдержка нагретого до режимной температуры угля; формирование под действием внешнего давления из сыпучего угля отдельностей заданных форм и размеров; спекание и прокаливание пластических угольных формовок. В процессе получения формованного кокса наименее отработана стадия термической обработки угольных формовок, между тем как эта стадия оказывает существенное влияние на качество формованного кокса.

Для получения формованного металлургического кокса наиболее целесообразно применение коксовых печей непрерывного действия. В зависимости от способа подвода тепла к коксуемому материалу печи непрерывного действия разделяются на печи с внешним обогревом — теплопередача через стенку; печи с внутренним обогревом — тепло непосредственно подводится к коксуемой засыпи с помощью газового теплоносителя; печи с комбинированным обогревом.

Применение внутреннего газообразного теплоносителя позволяет проектировать коксовые печи непрерывного действия с

* Работа проведена совместно с М. Шептовицким.

большой производительностью. Благодаря тесному контакту между газообразным теплоносителем и коксуемым материалом достигается значительная интенсификация процесса теплообмена, более равномерно происходит прогрев всей коксуемой засыпи по ширине камеры, что способствует получению более прочного и однородного по физико-механическим свойствам кокса. В качестве газообразного теплоносителя могут быть использованы: продукты сжигания коксового газа; нагретый коксовый газ; смесь из коксового газа и продуктов его сжигания.

В случае применения в качестве теплоносителя продуктов сжигания коксового газа или смеси их с коксовым газом возможен угар кокса за счет восстановления CO_2 . Прочный формованный кокс может быть получен при конечных температурах коксования $700\text{—}750^\circ\text{C}$. Для достижения указанных температур достаточно применение теплоносителя с температурой $800\text{—}900^\circ\text{C}$.

В промышленных условиях определить степень газификации углерода кокса весьма затруднительно и поэтому определенный интерес представляет изучение кинетики процесса газификации формованного кокса в лабораторных условиях при использовании газообразного теплоносителя в области температур $800\text{—}900^\circ\text{C}$. Настоящее исследование было проведено на лабораторной установке и посвящено изучению кинетики газификации формованного кокса двуокисью углерода по данным гравиметрического анализа в изотермических условиях.

Методика исследования заключалась в следующем. Пластическая угольная формовка диаметром 50 мм, полученная из бинарной угольной смеси из 60% угля марки Г шахты им. 7 Ноября и 40% угля марки СС Бачатского карьера, помещалась в электропечь и нагревалась в инертной среде с постоянной скоростью $3,0^\circ\text{C}/\text{мин}$ до заданной конечной температуры. Затем формовка быстро опускалась в модернизированную установку Ю. Л. Тихомирова, где она продувалась двуокисью углерода в изотермических условиях.

Механизм процесса взаимодействия двуокиси углерода с коксом формально может быть представлен в виде брутто-реакции



а зависимость скорости реакции от концентрации реагирующих веществ в виде

$$-\frac{dC}{d\tau} = k [\text{CO}_2]^m [\text{C}]^n. \quad (171)$$

Исходя из того, что двуокись углерода подавалась в избыточном количестве, концентрацию ее можно считать постоянной на протяжении всего опыта, тогда

$$-\frac{dC}{d\tau} = k' [\text{C}]^n, \quad (172)$$

$$\text{где } k' = k [\text{CO}_2]^m; \quad (173)$$

k — константа скорости реакции; n — порядок реакции по компоненту С.

На основании дифференциального уравнения (172) кинетическое уравнение убыли массы W принимает вид

$$-\frac{1}{n-1} \left[1 - \left(\frac{W_{\infty} - W}{W_{\infty}} \right)^{1-n} \right] = k' \tau. \quad (174)$$

Вид полученных экспериментальных кинетических кривых (прямые, наклонные к оси времени) указывают на то, что скорость убыли массы постоянна и, следовательно, порядок реакции $n = 0$. При этом уравнение (174) принимает вид

$$\frac{W}{W_{\infty}} = k' \tau, \text{ откуда } k' = \frac{W}{\tau} \frac{1}{W_{\infty}},$$

Таблица 94

Кодирование факторов		
Интервал варьирования и уровень факторов	Температура, °C	Расход CO ₂ , м ³ /ч*
Нулевой уровень $x_i = 0$	850	0,76
Интервал варьирования δ_i	50	0,38
Верхний уровень $x_i = +1$	900	1,14
Нижний уровень $x_i = -1$	800	0,38

* При выборе уровней варьирования расхода CO₂ учитывалось (по аналогии), что при сухом тушении кокса удельный расход теплоносителя составляет 15000 м³/(ч·т).

Таблица 95

Условия и результаты опытов

Опыт	x_1	x_2	Отклик	
			k' , %/мин	$\ln k'$
1	—	—	0,0435	—3,1350
2	—	+	0,0520	—2,9565
3	+	—	0,1070	—2,2349
4	+	+	0,1520	—1,8839
5	0	0	0,0530	—2,9375

(Ошибка опыта $s^2 \{ \ln k' \} = 0,000337$; $f = 4$)

6	0	—	0,0430	—3,1466
7	0	+	0,0560	—2,8824

где $\frac{W}{\tau}$ — тангенс угла наклона прямой убыли массы во времени (с учетом масштабов координатных осей); W_{∞} — величина, численно равная начальной массе формовки.

В ходе исследования был реализован двумя рандомизированными сериями план полного факторного эксперимента типа 2². Матрица планирования и расчетные значения k' приведены в табл. 94 и 95. При экспериментировании было принято, что расход CO₂ эквивалентен [CO₂].

В соответствии с теорией химической кинетики температурная зависимость константы скорости k в узком диапазоне температур должна описываться уравнением Аррениуса:

$$k = k_0 e^{-\frac{E}{RT}}, \quad (175)$$

где k_0 — частотный фактор (предэкспонент); E — энергия активации, Дж/моль; R — газовая постоянная, Дж/(моль · °C); T — абсолютная температура, К. Тогда

$$k' = k_0 e^{-\frac{E}{RT}} [\text{CO}_2]^m.$$

Эквивалентно

$$\ln k' = \ln k_0 - \frac{E}{R} \frac{1}{T} + m \ln [\text{CO}_2]. \quad (176)$$

Из уравнения (176) следует, что величина $\ln k'$ должна линейно зависеть от $1/T$ и $\ln [\text{CO}_2]$.

Факторный анализ результатов эксперимента следующий:

Эффекты

A	0,9863
B	0,2647
AB	0,0862
Среднее значение	—2,5526

$$95\% \text{-ный доверительный интервал эффектов} \dots \pm t \frac{2s}{\sqrt{4}} = \pm 0,0510$$

Таблица 96

Результаты факторного анализа относительно $\ln k'$ для двух температурных интервалов

Эффекты	Температурный интервал	
	800—850	850—900
A	0,0312	0,9551
B	0,2213	0,3076
AB	0,0428	0,0434
Среднее значение	—3,0301	—2,5370
Линейная модель адекватна	Да*	Да*

* Так как эффекты AB накрываются доверительным интервалом $\pm 0,0510$.

Анализ показал неадекватность линейной зависимости $\ln k'$ от исследованных факторов. Последнее указывает на то, что в области температур 800—900° С возможно изменение механизма процесса газификации. Для выяснения этого предположения были поставлены дополнительные опыты (6 и 7), что позволило провести факторный анализ результатов эксперимента для двух температурных диапазонов: 800—850 и 850—900° С (табл. 96).

Проверив принятые допущения, т.е. доказав адекватность уравнения (176), оценим неизвестность этого уравнения:

$$\frac{E}{R} = \frac{\text{Эффект } A}{\frac{1}{T^-} - \frac{1}{T^+}}; \quad m = \frac{\text{Эффект } B}{\ln Q^+ - \ln Q^-};$$

$$\ln k_0 = \text{Среднее значение} + \frac{E}{R} \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T^-} + \frac{1}{T^+} \right) - m \ln Q.$$

Для интервала температур 800—850° С:

$$E = R \frac{0,0312 \pm 0,0510}{\frac{1}{1/(800 + 273)} - \frac{1}{1/(850 + 273)}} = (6,1 \pm 10) \text{ кДж/моль};$$

$$m = \frac{0,2213 \pm 0,0510}{\ln 1,14 - \ln 0,38} = 0,20 \pm 0,04;$$

$$\begin{aligned} \ln k_0 = & -3,0301 \pm 0,0510 + \frac{6,1 \pm 10}{R} \frac{1098}{1073 \cdot 1123} - \\ & - (0,20 \pm 0,04) \frac{\ln 1,14 + \ln 0,38}{2} = -2,26 \pm 1,17. \end{aligned}$$

Для интервала температур 850—900°С:

$$E = R \frac{0,9551 \pm 0,0510}{1/1123 - 1/1173} = (205 \pm 10,9) \text{ кДж/моль};$$

$$m = \frac{0,3076 \pm 0,0510}{\ln 1,14 - \ln 0,38} = 0,28 \pm 0,04;$$

$$\ln k_0 = -2,5370 \pm 0,0510 + \frac{205 \pm 10,9}{R} \frac{1148}{1123 \cdot 1173} - \\ - (0,28 \pm 0,04) \frac{\ln 1,14 + \ln 0,38}{2} = 19,51 \pm 1,25.$$

Таким образом, получены следующие уравнения, адекватно описывающие зависимость скорости газификации формованного кокса от исследованных факторов:

в области температур 800—850°С

$$\frac{dW}{d\tau} = 0,104 Q^{0,2e} e^{-\frac{6100}{RT}}; \quad (177)$$

в области температур 850—900°С

$$\frac{dW}{d\tau} = 2,97 \cdot 10^8 Q^{0,28} e^{-\frac{205000}{RT}}. \quad (178)$$

Из сопоставления уравнений (177) и (178) следует, что при температуре 850°С механизм газификации формованного кокса изменяется. Нулевой порядок процесса и высокая величина эффективной энергии активации ($E=205$ кДж/моль) указывает на то, что процесс газификации кокса в интервале температур 850—

900°С протекает на поверхности кокса и определяющим процессом является химическая реакция восстановления CO_2 . Низкая величина энергии активации ($E = 6,15$ кДж/моль) не позволяет дать объяснение механизма газификации в области температур до 850°С.

Уравнения (177) и (178) позволили количественно оценить влияние температуры и расхода углекислоты на скорость газификации кокса. Полученные результаты представлены на рис. 46. Процесс газификации формованного кокса в области температур до 850°С протекает очень медленно, при повышении температур до 900°С реакция начинает протекать более интенсивно и особенно значительный подъем наблюдается при температуре свыше 900°С.

Полученные результаты позволили рекомендовать для термической обработки пластических угольных формовок в промышленных условиях коксовые печи непрерывного действия с внутренним газообразным теплоносителем, который перед подачей в печь должен иметь температуру порядка 850°С.

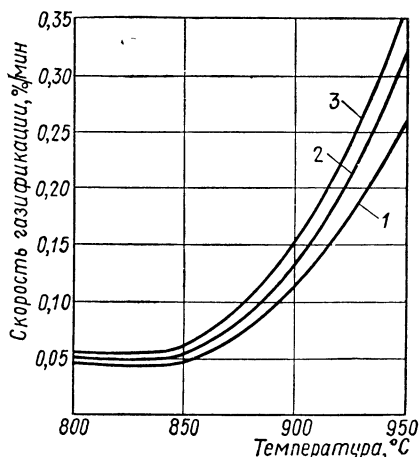


Рис. 46. Кривые влияния температуры теплоносителя на скорость газификации кокса при расходе углекислоты: 1 — 0,38 м³/ч; 2 — 0,76 м³/ч; 3 — 1,14 м³/ч.

ПРИЛО

Значе

n	f						
	1	2	3	4	5	6	7
2	0,9985	0,9750	0,9392	0,9057	0,8772	0,8534	0,8332
3	9669	8709	7977	7457	7071	6771	6530
4	9065	7679	6841	6287	5895	5598	5365
5	0,8412	0,6838	0,5981	0,5440	0,5063	0,4783	0,4564
6	7808	6161	5321	4803	4447	4184	3980
7	7271	5612	4800	4307	3974	3726	3535
8	0,6798	0,5157	0,4377	0,3910	0,3595	0,3362	0,3185
9	6385	4775	4027	3584	3286	3067	2901
10	6020	4450	3733	3311	3029	2823	2666
12	0,5410	0,3924	0,3264	0,2880	0,2624	0,2439	0,2299
15	4709	3346	2758	2419	2195	2034	1911
20	3894	2705	2205	1921	1735	1602	1501
24	0,3434	0,2354	0,1907	0,1656	0,1493	0,1374	0,1286
30	2929	1980	1593	1377	1237	1137	1061
40	2370	1576	1259	1082	0968	0887	0827
60	0,1737	0,1131	0,0895	0,0765	0,0682	0,0623	0,0583
120	0998	0632	0495	0419	0371	0337	0312

Приложение 2

Значения $t_{(0,05; f)}$

f	t	f	t	f	t	f	t
1	12,71	6	2,45	11	2,20	16	2,12
2	4,30	7	2,36	12	2,18	17	2,11
3	3,18	8	2,31	13	2,16	18	2,10
4	2,78	9	2,26	14	2,14	19	2,09
5	2,57	10	2,23	15	2,13	20	2,09

ЖЕНИЯ

Приложение 1

ния $G_{(0,05; n; D)}$

8	9	10	16	36	144	∞
0,8159	0,8010	0,7880	0,7341	0,6602	0,5813	0,5000
6333	6167	6025	5466	4748	4031	3333
5175	5017	4884	4366	3720	3093	2500
0,4387	0,4241	0,4118	0,3645	0,3066	0,2513	0,2000
3817	3682	3568	3135	2612	2119	1667
3384	3259	3154	2756	2278	1833	1429
0,3043	0,2926	0,2829	0,2462	0,2022	0,1616	0,1250
2768	2659	2568	2226	1820	1446	1111
2541	2439	2353	2032	1655	1308	1000
0,2187	0,2098	0,2020	0,1737	0,1403	0,1100	0,0833
1815	1736	1671	1429	1144	0889	0667
1422	1357	1303	1108	0879	0675	0500
0,1216	0,1160	0,1113	0,0942	0,0743	0,0567	0,0417
1002	0958	0921	0771	0604	0457	0333
0780	0745	0713	0595	0462	0347	0250
0,0552	0,0520	0,0497	0,0411	0,0316	0,0234	0,0167
0292	0279	0266	0218	0165	0120	0083

Продолжение прилож. 2

\bar{t}	t	\bar{f}	t	\bar{f}	t	\bar{f}	t
21	2,08	26	2,06	40	2,02	200	1,97
22	2,07	27	2,05	50	2,01	500	1,96
23	2,07	28	2,05	60	2,00	∞	1,95
24	2,06	29	2,04	80	1,99		
25	2,06	30	2,04	100	1,98		

i_2	f_1								
	1	2	3	4	5	6	7	8	9
1	161,45	199,50	215,71	224,58	230,16	233,99	236,77	238,88	240,54
2	18,513	19,000	19,164	19,247	19,296	19,330	19,353	19,371	19,385
8	10,128	9,5521	9,2766	9,1172	9,0135	8,9406	8,8868	8,8452	8,8123
4	7,7086	6,9443	6,5914	6,3883	6,2560	6,1631	6,0942	6,0410	5,9988
5	6,6079	5,7861	5,4095	5,1922	5,0503	4,9503	4,8759	4,8183	4,7725
6	5,9874	5,1433	4,7571	4,5337	4,3874	4,2839	4,2066	4,1468	4,0990
7	5,5914	4,7374	4,3468	4,1203	3,9715	3,8660	3,7870	3,7257	3,6767
8	5,3177	4,4590	4,0662	3,8378	3,6875	3,5806	3,5005	3,4381	3,3881
9	5,1174	4,2565	3,8626	3,6331	3,4817	3,3738	3,2927	3,2296	3,1789
10	4,9646	4,1028	3,7083	3,4780	3,3258	3,2172	3,1355	3,0717	2,0204
11	4,8443	3,9823	3,5874	3,3567	3,2039	3,0946	3,0123	2,9480	2,8962
12	4,7472	3,8853	3,4903	3,2592	3,1059	2,9961	2,9134	2,8486	2,7964
13	4,6672	2,8056	3,4105	3,1791	3,0254	2,9153	2,8321	2,7669	2,7144
14	4,6001	3,7389	3,3439	3,1122	2,9582	2,8477	2,7642	2,6987	2,6458
15	4,5431	3,6823	3,2874	3,0556	2,9013	2,7905	2,7066	2,6408	2,5876
16	4,4940	3,6337	3,2389	3,0069	2,8524	2,7413	2,6572	2,5911	2,5377
17	4,4513	3,5915	3,1968	2,9647	2,8100	2,6987	2,6143	2,5480	2,4943
18	4,4139	3,5546	3,1599	2,9277	2,7729	2,6613	2,5767	2,5102	2,4563
19	4,3808	3,5219	3,1274	2,8951	2,7401	2,6283	2,5435	2,4768	2,4227
20	4,3513	3,4928	3,0984	2,8661	2,7109	2,5990	2,5140	2,4471	2,3928
21	4,3248	3,4668	3,0725	2,8401	2,6848	2,5727	2,4876	2,4205	2,3661
22	4,3009	3,4434	3,0491	2,8167	2,6613	2,5491	2,4638	2,3965	2,3419
23	4,2793	3,4221	3,0280	2,7955	2,6400	2,5277	2,4422	2,3748	2,3201
24	4,2597	3,4028	3,0088	2,7763	2,6207	2,5082	2,4226	2,3551	2,3002
25	4,2417	3,3852	2,9912	2,7587	2,6030	2,4904	2,4047	2,3371	2,2821
26	4,2252	3,3690	2,9751	2,7426	2,5868	2,4741	2,3883	2,3205	2,2655
27	4,2100	3,3541	2,9604	2,7278	2,5719	2,4591	2,3732	2,3053	2,2501
28	4,1960	3,3404	2,9467	2,7141	2,5581	2,4453	2,3593	2,2913	2,2360
29	4,1830	3,3277	2,9340	2,7014	2,5454	2,4324	2,3463	2,2782	2,2229
30	4,1709	3,3158	2,9223	2,6896	2,5336	2,4205	2,3343	2,2662	2,2107
40	4,0848	3,2317	2,8387	2,6060	2,4495	2,3359	2,2490	1,1802	2,1240
60	4,0012	3,1504	2,7581	2,5252	2,3683	2,2540	2,1665	2,0970	2,0401
120	3,9201	3,0718	2,6802	2,4472	2,2900	2,1750	2,0867	2,0164	1,9588
∞	3,8415	2,9957	2,6049	2,3719	2,2141	2,0986	2,0096	1,9384	1,8799

$F_{(0,05; f_1; f_2)}$

10	12	15	20	24	30	40	60	120	∞
241,88	243,91	245,95	248,01	249,05	250,09	251,14	252,20	253,25	254,32
19,396	19,413	19,429	19,446	19,454	19,462	19,471	19,479	19,487	19,496
8,7855	8,7446	8,7029	8,6602	8,6385	8,6166	8,5944	8,5720	8,5494	8,5265
5,9644	5,9117	5,8578	5,8025	5,7744	5,7459	5,7170	5,6878	5,6581	5,6281
4,7351	4,6777	4,6188	4,5581	4,5272	4,4957	4,4638	4,4314	4,3984	4,3650
4,0600	3,9999	3,9381	3,8742	3,8415	3,8082	3,7743	3,7398	3,7047	3,6688
3,6365	3,5747	3,5108	3,4445	3,4105	3,3758	3,3404	3,3043	3,2674	3,2298
3,3472	3,2840	3,2184	3,1503	3,1152	3,0794	3,0428	3,0053	2,9669	2,9276
3,1373	3,0729	3,0061	2,9365	2,9005	2,8637	2,8259	2,7872	2,7475	2,7067
2,9782	2,9130	2,8450	2,7740	2,7372	2,6996	2,6609	2,6211	2,5801	2,5379
2,8536	2,7876	2,7186	2,6464	2,6090	2,5705	2,5309	2,4901	2,4480	2,4045
2,7534	2,6866	2,6169	2,5436	2,5055	2,4663	2,4259	2,3942	2,3410	2,2962
2,6710	2,6037	2,5331	2,4589	2,4202	2,3803	2,3392	2,2966	2,2524	2,2064
2,6021	2,5342	2,4630	2,3879	2,3487	2,3082	2,2664	2,2230	2,1778	2,1307
2,5437	2,4753	2,4035	2,3275	2,2878	2,2468	2,2043	2,1601	2,1141	2,0658
2,4935	2,4247	2,3522	2,2756	2,2354	2,1938	2,1507	2,1058	2,0589	2,0096
2,4499	2,3807	2,3077	2,2304	2,1898	2,1477	2,1040	2,0584	2,0107	1,9604
2,4117	2,3421	2,2686	2,1906	2,1497	2,1071	2,0629	2,0166	1,9681	1,9168
2,3779	2,3080	2,2341	2,1555	2,1141	2,0712	2,0264	1,9796	1,9302	1,8780
2,3479	2,2776	2,2033	2,1242	2,0825	2,0391	1,9938	1,9464	1,8963	1,8432
2,3210	2,2504	2,1757	2,0960	2,0540	2,0102	1,9645	1,9165	1,8657	1,8117
2,2967	2,2258	2,1508	2,0707	2,0283	1,9842	1,9380	1,8895	1,8380	1,7831
2,2747	2,2036	2,1282	2,0476	2,0050	1,9605	1,9139	1,8649	1,8128	1,7570
2,2547	2,1834	2,1077	2,0267	1,9838	1,9390	1,8920	1,8424	1,7897	1,7331
2,2365	2,1649	2,0889	2,0075	1,9643	1,9192	1,8718	1,8217	1,7684	1,7110
2,2197	2,1479	2,0716	1,9898	1,9464	1,9010	1,8533	1,8027	1,7488	1,6906
2,2043	2,1323	2,0558	1,9736	1,9299	1,8842	1,8361	1,7851	1,7307	1,6717
2,1900	2,1179	2,0411	1,9586	1,9147	1,8687	1,8203	1,7689	1,7138	1,6541
2,1768	2,1045	2,0275	1,9446	1,9005	1,8543	1,8055	1,7537	1,6981	1,6377
2,1646	2,0921	2,0148	1,9317	1,8874	1,8409	1,7918	1,7396	1,6835	1,6223
2,0772	2,0035	1,9245	1,8389	1,7929	1,7444	1,6928	1,6373	1,5766	1,5089
1,9926	1,9174	1,8364	1,7480	1,7001	1,6491	1,5943	1,5343	1,4673	1,3893
1,9105	1,8337	1,7505	1,6587	1,6084	1,5543	1,4952	1,4290	1,3519	1,2539
1,8307	1,7522	1,6664	1,5705	1,5173	1,4591	1,3940	1,3180	1,2214	1,0000

ЛИТЕРАТУРА

1. Адлер Ю. П. Введение в планирование эксперимента. М., «Металлургия», 1968, 155 с.
2. Балон И. Д. К вопросу об оптимальной крупности кокса. — «Металлург», 1966, № 11, с. 2—4.
3. Бенсон С. В. Основы химической кинетики. М., «Мир», 1964, 603 с.
4. Большев Л. Н., Смирнов Н. В. Таблицы математической статистики. М., «Наука», 1965, 465 с.
5. Винарский М. С., Жадан В. Т., Кулак Ю. Е. Математическая статистика в черной металлургии. Киев, «Техніка», 1973, 218 с.
6. Винер Н. Кибернетика или управление и связь в животном и машине. М., «Советское радио», 1958, 214 с.
7. Голикова Т. И., Микешина Н. Г. Свойства D -оптимальных планов и методы их построения. — В сб.: «Новые идеи в планировании эксперимента». М., «Наука», 1969, с. 21—58.
8. Горский В. Г., Бродский В. З. Симплексный метод планирования экстремальных экспериментов. — «Заводская лаборатория», 1965, № 7, с. 831—836.
9. Гуд Г. Х., Макол Р. Э. Системотехника. М., «Советское радио», 1962, 383 с.
10. Демидович Б. П., Марон И. А. Основы вычислительной математики. М., «Наука», 1970, 665 с.
11. Коляндр Л. Я. Получение чистого бензола для синтеза. М., «Металлургия», 1966, 172 с.
12. Маркова Е. В. Сравнение симплексного планирования с методом Бокса—Уилсона на примере химической реакции. — «Заводская лаборатория», 1965, № 7, с. 836—840.
13. Налимов В. В. Теория эксперимента. М., «Наука», 1971, 207 с.
14. Налимов В. В., Чернова Н. А. Статистические методы планирования экстремальных экспериментов. М., «Наука», 1965, 340 с.
15. Переработка кубовых остатков. — «Кокс и химия», 1968, № 11, с. 34—38. Авт.: Л. Я. Коляндр, В. С. Андреева, И. Д. Дивенко, В. А. Кузьмин, Ю. М. Хейфец.
16. Полимеры бензольного отделения — сырье для стирольно-ндреновых смол. — «Кокс и химия», 1969, № 9, с. 34—36. Авт.: Л. Я. Коляндр, В. С. Андреева, И. Д. Дивенко, В. А. Кузьмин, Ю. М. Хейфец.
17. Рыбак Б. М. Анализ нефти и нефтепродуктов. М., Гостоптехиздат, 1962, 887 с.
18. Скляр М. Г., Шустиков В. И., Лурье М. В. Математическое моделирование кинетики термического разложения углей по данным ТГА. — «Химия твердого топлива», 1970, № 4, с. 7—21.
19. Смирнов Н. В., Дунин-Бирковский И. В. Курс теории вероятностей и математической статистики. М., «Наука», 1969, 511 с.

20. Требования к качеству кокса. — «Кокс и химия», 1970, № 3, с. 10 — 14.
Авт.: И. Д. Балон, Г. В. Журавлев, Н. И. Красавцев, В. И. Литвиненко, Н. М. Мищенко, Г. А. Панев, С. А. Плискановский, А. Н. Царицын.
21. Хикс Ч. Р. Основные принципы планирования эксперимента. М., «Мир». 1967, 408, с.
22. Хотимский В. М. Выравнивание статистических рядов по методу наименьших квадратов (способ Чебышева). М., Госстатиздат, 1959, 85 с.
23. Box G. E. P., Hunter W. G. A Useful Method for Model Building. — «Technometrics», 1962, 4, № 3, 301 — 318 p.
24. Box G. E. P., Wilson K. B. On the Experimental Attainment of Optimum Conditions. — «Journal of the Royal Statistical Society», Series B, 1951, 13, № 1, p. 1 — 45.
25. Gorman J. W., Hinman J. E. Simplex Lattice Designs for Multicomponent Systems. — «Technometrics», 1962, 4, № 4, p. 463 — 487.
26. Mangold K. H. Verfahrenstechnische Probleme bei der biologischen Aufarbeitung von Braunkohlen — Kokereiabwässern unter besonderer Berücksichtigung des Sauerstoffeintrages mittels Rührturbinen. — «Chemische Technik», 1964, № 3, s. 153 — 164.
27. Scheffe H. Experiments with Mixtures. — «Journal of Royal Statistical Society», Series B, 1958, 20, № 2, p. 344 — 350.
28. Simonis W., Rubrecht E. Optimaler Körnungsaufbau von Kokskohle. — «Glückauf — Forschungshefte», 1965, № 6, s. 301 — 308.
29. Spendley W., Hext G. R., Himsworth F. R. Sequential Application of Simplex Designs in Optimization and Evolutionary Operations. — «Technometrics», 1962, 4, № 4, p. 441 — 462.
30. Szwejda F. Wzorcowe uziarnienie wegla wsadowego. — «Koks, smola, gaz», 1960, 5, № 2, s. 58 — 61.

83 коп.

