Ученые записки Крымского федерального университета имени В. И. Вернадского
Биология. Химия. Том 9 (75). 2023. № 2. С. 284–292.

УДК 66.001
DOI 10.29039/2413-1725-2023-9-2-284-292

СРАВНИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ДВУХ МЕТОДОВ ОПТИМИЗАЦИИ ХИМИКО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ВЫЧИСЛИТЕЛЬНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

Шейх-Заде М. И.

ГБОУВО РК «Крымский инженерно-педагогический университет имени Февзи Якубова», Симферополь, Республика Крым, Россия
E-mail: tospcrimea@gmail.com

С использованием вычислительного эксперимента решена задача по оптимизации имитационного химико-технологического процесса двумя методами: методом полного факторного эксперимента с последующим крутым восхождением по поверхности отклика (метод Бокса-Уильсона) и методом поочерёдного варьирования факторов (метод Гаусса-Зейделя). С целью визуализации результатов эксперимента рассмотрен двухфакторный химико-технологический процесс. Получена математическая модель этого процесса в виде уравнения регрессии, проведён статистический анализ данного уравнения. Показано, что для решения задач по оптимизации химико-технологических процессов первый метод является более эффективным. Указано, что эффективность первого метода тем выше, чем больше факторов, от которых зависит химико-технологический процесс.
Ключевые слова: химико-технологический процесс, оптимизация, полный факторный эксперимент, уравнение регрессии, крутое восхождение, метод Гаусса-Зейделя.

ВВЕДЕНИЕ

Любой химико-технологический процесс (ХТП) может быть охарактеризован некоторой зависимостью выхода процесса y от независимых переменных x_1, x_2,…, x_n, значения которых в каждый данный момент определяют состояние системы. На математическом языке изучение любого ХТП можно представить как исследование функции многих переменных:

$$y = f(x_1, x_2, \ldots, x_n) \quad (1)$$

Принято называть переменные x_j (j = 1, 2, …, n) факторами, пространство с координатами x_j – факторным пространством, выход процесса y – функцией отклика, а геометрическое изображение функции отклика в факторном пространстве – поверхностью отклика [1–5].

Часто при разработке ХТП ставится задача оптимизации процесса как задача поиска экстремума функции отклика: нужно найти такие значения факторов x_j, при которых реализуется максимально возможный выход процесса. Существуют два подхода [5, 6] к решению подобных экстремальных задач. В первом подходе проводится полное исследование механизма ХТП, создаётся теория этого процесса, с помощью которой решается задача оптимизации. В случае сложных ХТП такой подход не удаётся реализовать в разумные сроки. Поэтому в большинстве случаев используется второй подход, когда экстремальные задачи решаются экспериментально при неполном знании механизмов ХТП.

Целью данной работы является сравнительный анализ двух широко применяемых на практике методов оптимизации ХТП: 1 – метод полного факторного эксперимента (ПФЭ) или дробного факторного эксперимента (ДФЭ) с последующим крутым восхождением по поверхности отклика (метод Бокса-Уильсона) [3–5]; 2 – метод поочерёдного варьирования факторов (метод Гаусса-Зейделя) [4–6].

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Математической моделью произвольного ХТП, зависящего от n факторов, является функция(1). Геометрически функция(1) представляет собой гиперповерхность в (n+1)-мерном пространстве и лишена наглядности зрительного восприятия. В связи с этим в данной работе рассматривается ХТП, зависящий от двух факторов, который описывается функцией:

$$y = f(x_1, x_2) \tag{2}$$

В этом случае геометрический образ функции (2) представляет собой поверхность в трёхмерном пространстве, которая легко воспринимается зрительно. В случае двух факторов обычно применяют ещё один приём визуализации поверхности отклика: изображают проекции поверхности отклика на плоскость $x_1 0 x_2$ в виде линий равных выходов процесса [3, 5, 6]. В этом случае имеется также возможность графической демонстрации пошагового движения к экстремуму поверхности отклика.

Данная работа носит теоретический характер, в связи с этим рассматривается имитационный ХТП. Отличие имитационного ХТП от реального ХТП состоит в том, что значения x_1, x_2, y определяются не с помощью измерительных устройств, а с использованием метода вычислительного эксперимента [7].

Поскольку истинный вид функции (2) неизвестен, то для описания поверхности отклика используется разложение функции (2) в степенной ряд:

$$y = b_0 + b_1 \cdot x_1 + b_2 \cdot x_2 + b_{12} \cdot x_1 \cdot x_2 + b_{11} \cdot x_1^2 + b_{22} \cdot x_2^2 + \ldots \tag{3}$$

Выражение (3) называется уравнением регрессии, коэффициенты b_0, b_1, и т.д. представляют собой выборочные коэффициенты регрессии и являются оценками теоретических коэффициентов β_0, β_1 и т.д. Определив коэффициенты регрессии, можно получить стартовые условия для достижения экстремума поверхности отклика, т.е. решения задачи по оптимизации ХТП.

Условимся обозначать строчными буквами x_1, x_2 значения факторов в кодированных величинах, а заглавными буквами X_1, X_2 – в именованных величинах (в рассматриваемой задаче – в условных единицах (у.ед.)).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Так как рассматриваемый ХТП зависит только от двух факторов, то для оптимизации этого процесса можно использовать метод ПФЭ типа 2^2, который означает, что каждый из факторов варьируется на двух уровнях. Планирование такого типа позволяет определить первые четыре слагаемых в выражении (3), то есть получить уравнение регрессии, содержащие линейные эффекты и один эффект парного взаимодействия. На начальном этапе исследования мы предполагаем, что условия эксперимента находятся на каком-то отдалении от области поверхности отклика, близкой к оптимуму, которую называют «почти стационарной областью» [3–5], и рассмотрение уравнения регрессии такого вида вполне оправдано. Только для описания почти стационарной области необходимо пользоваться полиномом, содержащим члены второго, а иногда и третьего порядка. Условия проведения ПФЭ для рассматриваемого ХТП и его результаты приведены в Табл. 1, которая оформлена в стандартной форме [5].

Таблица 1

Планирование и реализация ПФЭ типа 2^2 по оптимизации рассматриваемого химико-технологического процесса

Факторы и функция отклика	X_1, у.ед.	X_2, у.ед.	y, у.ед.
Основной уровень	22,00	18,00	
Интервал варьирования, α_j	0,85	0,85	
Верхний уровень (+1)	22,85	18,85	
Нижний уровень (–1)	21,15	17,15	
Матрица планирования в кодовых обозначениях факторов			
Опыт 1	–	–	6,85
2	+	–	5,15
3	–	+	5,15
4	+	+	2,48
Опыт 5 (центр эксперимента)	22,00	18,00	5,29
b_j	–1,09	–1,09	
$b_j \cdot \lambda_j$	–0,93	–0,93	
Шаг λ_j^*	–0,85	–0,85	
Опыт 6 мысленный	21,15	17,15	6,85
7 мысленный	20,30	16,30	–
8 реализованный	19,45	15,45	8,73
9 мысленный	18,60	14,60	–
10 мысленный	17,75	13,75	–
11 реализованный	16,90	12,90	9,92
12 реализованный	16,05	12,05	10,0
13 реализованный	15,20	11,20	9,94

Данные таблицы 1 представлены в графическом виде на Рис. 1; около линий равного выхода процесса указаны значения выхода процесса в у. ед.

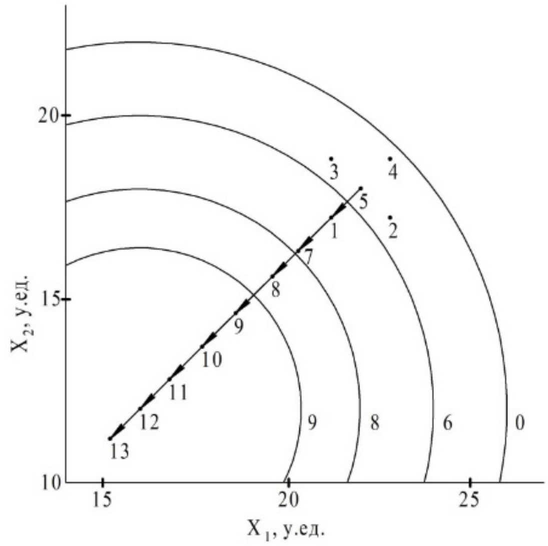

Рис. 1. Проекция траектории движения по поверхности отклика на плоскость $X_1 0 X_2$ при оптимизации рассматриваемого ХТП методом крутого восхождения.

Матрица планирования была реализована в опытах 1–4 без повторностей. Были получены значения функции отклика, на основе которых рассчитаны коэффициенты регрессии: $b_0 = 4{,}91$; $b_1 = -1{,}09$; $b_2 = -1{,}09$; $b_{12} = -0{,}24$.

Для оценки дисперсии воспроизводимости и значимости коэффициентов регрессии был проведён в центре эксперимента опыт 5 с двумя повторностями. В табл. 1 приведено среднее значение функции отклика из двух повторностей. По данным опыта 5 получено значение дисперсии коэффициентов регрессии $S^2(b_j)=5\cdot 10^{-3}$. Для доверительной вероятности p=0,95 и числа степеней свободы дисперсии воспроизводимости f_B=1 по таблице из [8] найдено табличное значение критерия Стьюдента $t_T(0{,}95;1)=12{,}7$ и рассчитана доверительная ошибка коэффициентов регрессии $\varepsilon(b_j)=0{,}9$. Сравнение значений модулей коэффициентов b_1, b_2, b_3, b_{12} со значением $\varepsilon(b_j)$ показывает, что коэффициент b_{12} является незначимым, остальные коэффициенты являются значимыми. Таким образом, поверхность отклика в окрестности центра эксперимента описывается линейным уравнением регрессии:

$$y = 4{,}91 - 1{,}09 \cdot x_1 - 10{,}9 \cdot x_2 \qquad (4)$$

Выясним, правильно ли наше предположение о том, что в уравнении регрессии можно не учитывать квадратичные члены. Результаты опытов 1-5 позволяют получить ответ на 'вопрос. Среднее значение функции отклика $\overline{y_0}$ в центре эксперимента является оценкой для свободного члена β_0 теоретической регрессии: $\overline{y_0} \to \beta_0$. Коэффициент регрессии b_0 является совместной оценкой для свободного члена β_0 и суммы коэффициентов β_{jj} при квадратичных членах теоретической регрессии: $b_0 \to \beta_0 + b_{11} + b_{22}$ [3, 5, 9]. Поэтому оценка разности $\left|b_0 - \overline{y_0}\right|$ будет одновременно и оценкой значимости суммы коэффициентов b_{11}, b_{22}. По результатам опытов 1–5 получено расчётное значение критерия Стьюдента t_p=5,4. Для доверительной вероятности p=0,95 и числа степеней свободы дисперсии воспроизводимости f_B=1 по таблице из [8] найдено табличное значение критерия Стьюдента t_T(0,95;1)=12,7. Так как $t_p<t_T$, то квадратичные члены в уравнении регрессии незначимы и их можно не учитывать.

Далее проведена проверка адекватности уравнения регрессии (4) экспериментальным данным по критерию Фишера. С этой целью найдено значение дисперсии адекватности S^2_{ad}=0,237 и расчётное значение критерия Фишера F_p=11,84. Для доверительной вероятности p=0,95, числа степеней свободы дисперсии адекватности f_{ad}=1 и дисперсии воспроизводимости f_B=1 по таблице из [8] найдено табличное значение критерия Фишера F_T=161,4. Так как $F_p<F_T$, то уравнение регрессии (4) адекватно описывает экспериментальные данные в реализованном интервале изменения факторов.

Полученное уравнение регрессии (4) можно использовать для поиска оптимума рассматриваемого ХТП методом крутого восхождения по поверхности отклика в направлении градиента линейного приближения [10]. Краткое изложение этого метода приведено в [11]. Авторы работы [10] показали, что если поставить серию опытов, в которой в каждом последующем опыте значения факторов X_j (X_j, y, λ_j должны быть выражены в именованных величинах) изменять пропорциональную произведению $b_j \cdot \lambda_j$, то такое движение по поверхности отклика будет кратчайшим путём к зоне оптимума. Для рассматриваемого случая $b_1 \cdot \lambda_1 = b_2 \cdot \lambda_2 = -0{,}93$ у.ед. Рассчитанные по этим данным значения интервалов варьирования (шагов) λ_1^*, λ_2^* факторов X_1, X_2 для крутого восхождения оказались равными $\lambda_1^* = \lambda_2^* = -0{,}85$ у.ед. Результаты крутого восхождения приведены в табл.1. Восхождение начинается из точки с наибольшим выходом процесса по данным ПФЭ (опыт 1). Опыты 6, 7, 9, 10 – мысленные (терминология, принятая в теории планирования эксперимента). Опыт 6 совпадает с опытом 1 в матрице планирования. Как видно из табл. 1, наибольшее значение выхода процесса получено в опыте 12.

Таким образом, реализовав 10 опытов (4 опыта из матрицы планирования, опыт 5 с двумя повторностями и четыре опыта при крутом восхождении), получены условия X_1=16,05 у.ед., X_2=12,05 у.ед., при которых выход рассматриваемого ХТП является наибольшим: y=10 у.ед., т.е. решена задача оптимизации этого ХТП первым методом (методом Бокса-Уильсона). Выход процесса увеличился практически в 2 раза по сравнению с выходом в начале эксперимента.

Рассмотрим теперь задачу оптимизации данного ХТП методом поочерёдного варьирования факторов (метод Гаусса-Зейделя) [4, 6]. Этот метод является традиционным и представляет собой постановку пассивных экспериментов. Реализация этого метода для рассматриваемого ХТП и его результаты представлены в табл. 2, а в графическом виде – на рис. 2; около линий равного выхода процесса указаны значения выхода процесса в у.ед.

Таблица 2

Реализация метода Гаусса-Зейделя по оптимизации рассматриваемого химико-технологического процесса

Номер опыта	X_1, у.ед.	X_2, у.ед.	y, у.ед.	Номер опыта	X_1, у.ед.	X_2, у.ед.	y, у.ед.
1	22,00	18	5,29	11	16,05	18,85	7,29
2	22,85	18	4,13	12	16,05	17,15	8,57
3	21,15	18	6,12	13	16,05	16,30	9,03
4	20,30	18	6,75	14	16,05	15,45	9,39
5	19,45	18	7,22	15	16,05	14,60	9,66
6	18,60	18	7,57	16	16,05	13,75	9,85
7	17,75	18	7,81	17	16,05	12,90	9,96
8	16,90	18	7,95	18	16,05	12,05	10,0
9	16,05	18	8,00	19	16,05	11,20	9,97
10	15,20	18	7,96				

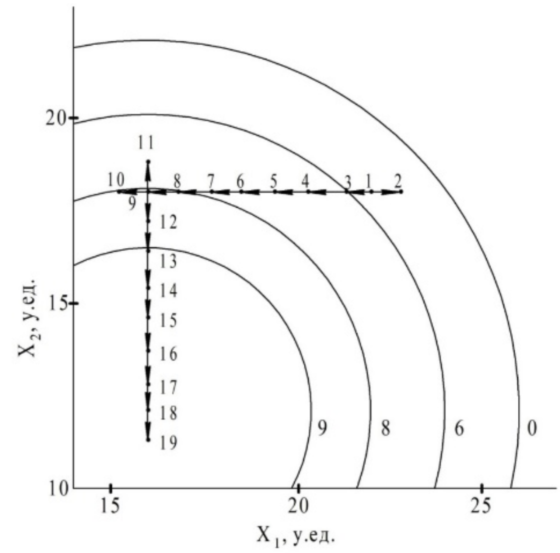

Рис. 2. Проекция траектории движения по поверхности отклика на плоскость $X_1 0 X_2$ при оптимизации рассматриваемого ХТП по методу Гаусса-Зейделя.

Для того, чтобы корректно провести сравнительный анализ двух методов оптимизации ХТП, опыт 1 в методе Гаусса-Зейделя был поставлен при значениях факторов X_1, X_2, которые соответствуют центру эксперимента в ПФЭ и интервалы варьирования факторов X_1, X_2 выбраны такими же как в методе ПФЭ: $\lambda_1=\lambda_2=0{,}85$ у.ед. Таким образом, стартовые условия двух методов были одинаковыми. Далее фиксировалось значение X_2 на уровне опыта 1 и варьировалось значение X_1. Как видно из табл. 2 (опыт 2), увеличение X_1 приводит к уменьшению значения функции отклика и движение в этом направлении является бесперспективным. Последовательно уменьшая значение X_1 на величину шага варьирования, продолжалась постановка опытов до тех пор, пока не прекратится прирост функции отклика (опыт 9, 10). Результат опыта 10 показывает, что движение в этом направлении после опыта 9 приводит к уменьшению значения функции отклика. В точке с наибольшим значением функции отклика (опыт 9) фиксировалось значение X_1 и варьировалось значение X_2. Как видно из табл. 2 (опыт 11), увеличение X_2 приводит к уменьшению значения функции отклика и движение в этом направлении бесперспективно. Последовательно уменьшая значение X_2 на величину шага варьирования, продолжалась постановка опытов до тех пор, пока не прекратится прирост функции отклика (опыты 18, 19). Результат опыта 19 показывает, что движение в этом направлении после опыта 18 приводит к уменьшению значения функции отклика. Таким образом, реализовав 19 опытов, получены условия X_1=16,05 у.ед., X_2=12,05 у.ед., при которых выход рассматриваемого ХТП является наибольшим (y=10 у.ед.) и совпадает с результатом первого метода.

Сравнение применения метода ПФЭ (или ДФЭ) с последующим крутым восхождением и метода поочерёдного варьирования факторов для оптимизации двухфакторного ХТП показывает, что для достижения одинаковых результатов при использовании второго метода потребовалось проведение практически в два раза большего числа опытов. Следует отметить, что при увеличении числа факторов процедура поиска оптимума функции отклика методом поочерёдного варьирования факторов сильно усложняется [5] и преимущества первого методом проявляются ещё более заметно.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Проведён вычислительный эксперимент по оптимизации двухфакторного имитационного химико-технологического процесса двумя методами: методом полного факторного эксперимента с последующим крутым восхождением по поверхности отклика и метода поочерёдного варьирования факторов.
2. Показано, что для решения задач по оптимизации химико-технологических процессов первый метод является более эффективным, причём эффективность этого метода тем выше, чем больше число факторов, от которых зависит химико-технологический процесс.

Список литературы

1. Рузинов Л. П. Планирование эксперимента в химии и химической технологии / Л. П. Рузинов, Р. И. Слободчикова. – М.: Химия, 1980. – 280 с.
2. Ушаева Н. В. Математическое моделирование химико-технологических процессов / Н. В. Ушаева, О. Е. Мойзес, О. Е. Митянина, Е. А. Кузьменко. – Томск: Изд-во ТПУ, 2014. – 135 с.
3. Ахназарова С. Л. Оптимизация эксперимента в химии и химической технологии / С. Л. Ахназарова, В. В. Кафаров. – М.: Высшая школа, 1978. – 319 с.
4. Тихомиров В. Б. Планирование и анализ эксперимента / В. Б. Тихомиров. – М.: Лёгкая индустрия, 1974. – 263 с.
5. Налимов В. В. Статистические методы планирования экстремальных экспериментов / В. В. Налимов, Н. А. Чернова. – М.: Наука, 1965. – 340 с.

6. Закгейм А. Ю. Введение в моделирование химико-технологических процессов / А. Ю. Закгейм. – М.: Химия, 1982. – 288 с.
7. Основы научных исследований / Под ред. В. И. Крутова и В. В. Попова. – М.: Высшая школа, 1989. – 400 с.
8. Поллард Дж. Справочник по вычислительным методам статистики / Дж. Поллард. – М.: Финансы и статистика, 1982. – 344 с.
9. Бондарь А. Г. Планирование эксперимента при оптимизации процессов химической технологии / А. Г. Бондарь, Г. А. Статюха, И. А. Потяженко. – Киев: Вища школа, 1980. – 264 с.
10. Box G. E. P. On the experimental attainment of optimum conditions / G. E. P. Box, K. B. Wilson // J. Roy. Stat. Soc. Ser. B. – 1951. – Vol. 13, №1. – P. 1–4.
11. Гумеров А. М. Математическое моделирование химико-технологических процессов / А. М. Гумеров. – СПб.: Лань, 2014. – 176 с.

COMPARATIVE ANALYSIS OF TWO METHODS OF OPTIMIZATION OF CHEMICAL-TECHNOLOGICAL PROCESSES USING COMPUTATIONAL EXPERIMENT

Sheikh-Zade M.-I.

Fevzi Yakubov Crimean Engineering and Pedagogical University, Simferopol, Crimea, Russia Federation
E-mail: tospcrimea@gmail.com

An arbitrary chemical-technological process is considered, depending on two factors x_1, x_2, which can be characterized by the function:

$$y = f\,(x_1, x_2), \tag{1}$$

the geometric image of which is a certain surface in three-dimensional space. the task of optimizing such a chemical-technological process is usually posed as the task of finding the extremum of function (1): it is necessary to find such values of factors x_1, x_2, at which the maximum possible output of the process is realized. Since the explicit form of function (1) is most often unknown, but the search for the extremum of function (1) is solved experimentally.

In this paper, the search for the extremum of function (1) is performed using a computational experiment on the example of a simulated chemical-technological process by two methods: the method of a complete factor experiment of type 2^2 followed by a steep ascent along the response surface (the Box-Wilson method) and the method of alternating variation of factors (the Gauss-Seidel method). When implementing the first method, a mathematical model of the chemical-technological process under consideration was obtained in the form of a regression equation, and a statistical analysis of this equation was carried out. A comparative analysis of the effectiveness of these two methods for optimizing this chemical-technological process is carried out. It is shown that the first method is more effective for solving problems of optimization of chemical and technological processes. It is indicated that the effectiveness of the first method is higher, the more factors on which the chemical-technological process depends.

Keywords**:** chemical-technological process, optimization, full factorial experiment, regression equation, steep ascent, Gauss-Seidel method.

References

1. Ruzinov L. P., Slobodchikova R. I., *Designs of experiments in chemistry and chemical technology*, 280 p. (Chemistry, Moscow, 1980). (in Russ.).
2. Ushaeva N. V., Mojzes O. E., Mitjanina O. E., Kuzmenko E. A., *Mathematical modeling of chemical and technological processes*, 135 p. (TPUPress, Tomsk, 2014). (in Russ.).
3. Akhnazarova S. L., Kafarov V. V., *Optimization of experiments in chemistry and chemical technology*, 319p. (Higher school, Moscow, 1978). (in Russ.).
4. Tikhomirov V. B., *Designs and analysis of experiments*, 263 p. (Light industry, Moscow, 1974). (in Russ.).
5. Nalimov V. V., Chernova N. A., *Statistical methods designs of extremal experiments*, 340 p. (Nauka, Moscow, 1965). (in Russ.).
6. Zakgejm A. Yu., *Introduction in modelling of chemical and technological processes*, 288 p. (Chemistry, Moscow, 1982). (in Russ.).
7. *Principles of scientific research*. Ed. Krutov V. I. and Popov V. V., 400 p. (Higher school, Moscow, 1989). (in Russ.).
8. Pollard J. H., *A handbook of numerical and statistical techniques*, 344 p. (Finances and statistics, Moscow, 1982). (in Russ.).
9. Bondar A. G., Statyukha G. A., Potyazhenko I. A., *Designs of experiments by optimization of chemical technology processes*, 264 p. (Higher school, Kiev, 1980). (in Russ.).
10. Box G. E. P., Wilson K. B., On the experimental attainment of optimum conditions, *J. Roy.Stat.Soc. Ser.B.*, **13**(1), 1(1951).
11. Gumerov A. M., *Mathematical modelling of chemical and technological processes*, 176 p. (Lan', SPb, 2014). (in Russ.).