

Є. Д. Пономаренко, доцент, А. М. Миронов, канд. техн. наук, доцент,
Л. В. Соловей, ст. викл., М. В. Ільченко, канд. техн. наук, доцент,
К. О. Горбунов, канд. техн. наук, професор, С. М. Биканов, канд. техн. наук, доцент,
Є. В. Краснокутський, канд. техн. наук, доцент

ІНТЕГРАЦІЯ МАТЕМАТИЧНОЇ МОДЕЛІ ТА RSM-ОПТИМІЗАЦІЇ ДО МЕТОДІВ ПЛАНУВАННЯ ЕКСПЕРИМЕНТУ У ГАЛУЗІ ХІМІЧНОЇ ІНЖЕНЕРІЇ ІЗ ЗАСТОСУВАННЯМ СУЧАСНИХ ІНФОРМАЦІЙНИХ ТЕХНОЛОГІЙ

Національний технічний університет «Харківський політехнічний інститут», Харків

Ключові слова: математичне моделювання, планування експерименту, хімічна інженерія, оптимізація, RSM, поверхні відгуку, адекватність, оптимум, чисельні методи.

Вступ. У сучасних умовах розвитку науки і техніки математичне моделювання є невід'ємним інструментом досліджень та оптимізації хіміко-технологічних процесів. Особливої актуальності воно набуває у хімічній інженерії, де дослідження кінетики реакцій, процесів тепло- і масообміну, гідродинаміки та каталітичних систем потребує комплексного аналізу впливу багатьох взаємодіючих параметрів. Математичні методи дозволяють досліджувати поведінку хімічних реакторів, випарників, ректифікаційних колон, сушарок, систем каталізу, а також оптимізувати енергоспоживання та вихід цільових продуктів без проведення експериментів на промисловому обладнанні.

Теорія планування експерименту розпочалася з робіт видатного англійського вченого Р. Фішера в 1930-ті роки. Саме він довів доцільність використання статистичних методів у проблемі визначення оптимальних умов проведення експерименту. У хіміко-технологічних системах, де одночасно діють десятки факторів – температура, тиск, концентрації реагентів, швидкість перемішування, час контакту – використання принципів планування експерименту дає змогу мінімізувати кількість лабораторних дослідів для побудови достовірної моделі процесу. Такий підхід широко застосовується під час розробки схем каталізу, оцінки ефективності нових реагентів або оптимізації параметрів полімеризації, абсорбції, екстракції. Автором перших наукових робіт з планування експерименту виступив Ф. Йетс. Надалі цей напрямок був розвинений у 1950-ті роки у США Дж. Боксом та його співробітниками. На території сучасної України ця теорія розвивається в наукових колективах, заснованих А. Г. Бондар та В. А. Вознесенським, а інженери-дослідники дедалі ширше застосовують ці методи на практиці.

Планування експерименту – це системний підхід, який дозволяє організувати проведення дослідів так, щоб отримати максимум інформації при мінімальних витратах. Це сукупність дій, які спрямовані на раціональну організацію експериментальних досліджень: оптимального вибору досліджуваних факторів, плану експерименту та методів аналізу одержаних експериментальних результатів. Основними завданнями при плануванні експерименту є виявлення значущих факторів, оцінка їх впливу та взаємодій на властивості об'єкта, побудова адекватної математичної моделі та використання її в цілях оптимізації, а також для інженерних розрахунків.

Метою цієї роботи є розробка математичної моделі за експериментальними даними, проведення статистичного аналізу результатів, аналізу впливу факторів дослі-

джуваного процесу на відгук (вихідний параметр) та виконання оптимізаційного дослідження.

Аналіз літератури. Математичне моделювання та планування експерименту забезпечують можливість отримання оптимальних режимів процесів хімічних технологій із мінімальними затратами ресурсів. У контексті хімічної інженерії методологія планування експерименту та побудови поверхонь відгуку (RSM) стала стандартним інструментом при дослідженні реакційного синтезу, процесів розділення багатокомпонентних систем, розробці каталізаторів та масштабуванні лабораторних даних до промислових умов. У хімічних реакторах і апаратах часто спостерігаються нелінійні залежності між параметрами, тому застосування поліноміальних моделей другого порядку є найбільш доцільним для відтворення складної динаміки системи.

Перші підходи до експериментального пошуку оптимуму були запропоновані Боксом і Вілсоном [1]. Це заклало основу для подальшого розвитку методології поверхонь відгуку. Розширений аналіз цього напряму подано у працях Бокса і Дрейпера [2], Монтгомері [3], а також Хартмана [4], де розглядаються сучасні методи побудови моделей відгуку та їх застосування для оптимізації технологічних процесів.

У низці сучасних досліджень демонструється широка застосовність методів планування експерименту й моделювання у хімічній інженерії. Так, у роботі [5] здійснено огляд оптимізації різноманітних хімічних процесів за допомогою RSM, зокрема у виробництві біодизеля та екстракційних технологіях, й показано, що RSM – це ефективний інструмент для зменшення кількості дослідів та врахування взаємодій факторів. У [6] застосовано CCD-план у RSM для оптимізації умов мікрохвильового піролізу сахарної тростини з метою одержання активованого вугілля, що ілюструє перехід методики на технології термохімічної обробки й матеріалів. У дослідженні [7] RSM використовується для оптимізації синтезу полімер-графенового оксидного нанокompозиту в контексті адсорбції важких металів – приклад, який прямо демонструє можливість математичного планування в матеріалознавстві та хімічній технології. Нарешті, [8] описує використання програмного пакету MathCAD у курсах реакційної інженерії для вирішення нелінійних та інтегральних рівнянь реакторів, підкреслюючи практичну корисність середовища для хімічних інженерів і підтверджуючи, що програмний аспект має важливе місце у математичному моделюванні процесів. Усі ці джерела підтверджують, що математичні методи моделювання, статистичного планування експерименту та програмні інструменти впевнено входять у арсенал фахівців, дозволяючи підвищити ефективність, зменшити експерименти та масштабувати процеси з лабораторії до промисловості.

Математичні моделі об'єктів, які отримуються за допомогою методів математичного планування експерименту, називають експериментально-статистичними. Вони дозволяють кількісно визначати та прогнозувати значення відгуків об'єкта за конкретних значень вхідних факторів. Ці моделі застосовуються на практиці лише в області зміни вхідних чинників з імовірністю, яка використовувалася експериментально для побудови експериментально-статистичних моделей.

Основні типи експериментальних планів:

- факторіальні плани (2^k , 3^k) – дозволяють оцінити головні ефекти та взаємодії між факторами;
- центральньо-композиційний план (ЦКП, CCD) містить факторіальні точки, осьові точки та центр; дозволяє оцінити квадратичні ефекти;
- план Бокса-Бенкена – економний варіант квадратичного плану без крайніх точок [2], гніздові, або ієрархічні плани, факторні плани з угрупованням, та інші [3].

У хімічній технології ці типи планів активно застосовуються для пошуку оптимальних параметрів реакцій полімеризації, гідрування, сушки, ферментації та інших процесів, де складність системи не дозволяє побудувати аналітичну модель з простих або фундаментальних рівнянь. Саме експериментально-статистичні моделі, отримані за допомогою ЦКП, дозволяють передбачити поведінку системи при зміні вхідних факторів і забезпечити стабільність якості продукту.

Існує чимало робіт, де розглянуто різні аспекти застосування методів планування експериментів в різних областях науки та діяльності людини. В українській науковій літературі суттєвий внесок у розвиток методів планування експерименту для потреб хімічної технології зробили А. Г. Бондар, Г. О. Статюха та інші вчені, які показали практичні приклади постановки та аналізу експериментів з урахуванням специфіки галузі.

На практиці часто виникає така ситуація, коли дослідник не має інформації про істинний вид моделі. У такому випадку спочатку планують експеримент першого порядку (повний факторний або його репліку) та отримують лінійну модель щодо варійованих змінних. Після проведення дослідів перевіряється адекватність лінійної моделі. Якщо лінійна модель неадекватна, намагаються побудувати квадратичну модель [4].

Побудова математичних моделей. Основною метою застосування математичних методів планування експерименту є отримання математичного опису поведінки об'єкта (математичної моделі об'єкта) при зміні параметрів експерименту (вхідних факторів). Методологія поверхні відгуку RSM використовує статистичні методи для побудови емпіричної моделі, яка описує зв'язок між вхідними та вихідними змінними. Д. Бокс та К. Вілсон запропонували [1] використовувати для цього поліноміальну модель:

$$y = \beta_0 + \sum_{j=1}^k \beta_j x_j + \sum_{\substack{j=1 \\ u=1 \\ j \neq u}}^k \beta_{ju} x_j x_u + \sum_{j=1}^k \beta_{jj} x_j^2 + \dots + \varepsilon. \quad (1)$$

У практиці хімічної інженерії RSM часто використовується для моделювання залежностей між технологічними змінними – наприклад, між температурою реакції, концентрацією каталізатора і швидкістю перетворення реагентів. Це дає змогу визначити не лише оптимальні режими реакції, а й діапазони їх стійкості, що критично важливо при масштабуванні процесу з лабораторного на промисловий рівень.

Для отримання моделей другого порядку найбільш широко застосовується центральний композиційний план. Він є факторним планом типу 2^k при $k < 5$ або напівреплікою від нього при $k \geq 5$. Для того, щоб при підборі моделі другого порядку можна було оцінити її параметри, план експерименту повинен містити щонайменше три рівні кожного фактору. Додатково проводяться досліді у центрі плану (m_0 дослідів) і в $2k$ зоряних точках, розташованих на координатних осях факторного простору. Координати зоряних точок наступні: $(\pm\alpha, 0, \dots, 0)$, $(0, \pm\alpha, 0, \dots, 0)$, \dots , $(0, 0, \dots, 0, \pm\alpha)$, де α – відстань від центра плану до зоряної точки – зоряне плече.

На рис. 1 наведений центральний композиційний план (ЦКП) для $k = 2$ факторів. Для двох факторів проводять 4 основних досліді у факторних точках (1–4), 4 додаткових досліді в зоряних точках, розташованих на відстані зоряного плеча α від центра плану на координатних осях та досліді в центрі.

На рис. 2 – ЦКП для $k = 3$ факторів. Проводять 8 основних дослідів у факторних точках (1–8), додаткові досліді в зоряних точках (9 – 14), які розташовані на відстані зоряного плеча α від центра плану на координатних осях та досліді в центрі (15).

Композиційний план отримує різні властивості внаслідок вибору плеча α та точок в центрі плану – m_0 .

При вивченні поверхні відгуку переважним класом планів є клас ротатабельних планів. Для ротатабельних планів дисперсія прогнозованого значення відгуку у деякій точці x залежить тільки від відстані цієї точки до центру плану, а не від напрямку на неї. Для плану, що володіє такою властивістю, дисперсія не змінюється при обертанні плану навколо центру $(0, 0, \dots, 0)$; звідси й походить назва – ротатабельний план (rotatable – той, що допускає обертання). Необхідно, щоб точки плану були розташовані на декількох сферах. Радіус сфери, на якій лежать факторні точки ядра плану, збігається з величиною зоряного плеча α . Друга, менша сфера ротатабельного плану має нульовий радіус, співпадає з центром плану, там лежать – m_0 точок. Ротатабельність ЦКП забезпечується вибором плеча α за формулою $\alpha = \rho = 2^{(k-p)/4}$.

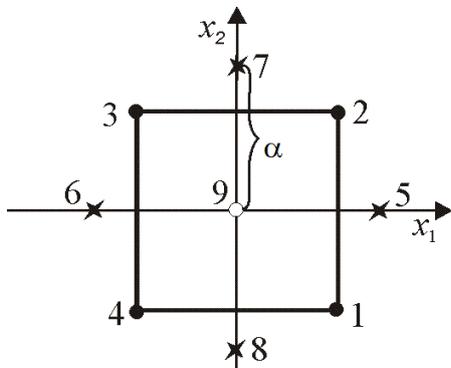


Рисунок 1 – Композиційний план другого порядку для $k=2$

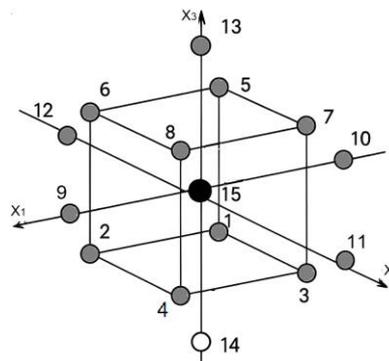


Рисунок 2 – Композиційний план другого порядку для $k=3$

Кількість точок m_0 в центрі плану визначається за умов, щоб дисперсії відгуку на початку координат і на одиничній відстані від нього були рівними. Такий план називається ротатабельним уніформ-планом [4, 9, 10].

У табл. 1 наведено значення радіуса ρ сфери, на якій розташовані точки ядра плану, зоряного плеча α , число точок у центрі плану m_0 для різного числа факторів в ротатабельних уніформ-планах [10].

Таблиця 1 – Вихідні дані

	Число факторів								
	2	3	4	5	5	6	6	7	7
Ядро плану	2^2	2^3	2^4	2^5	2^{5-1}	2^6	2^{6-1}	2^7	2^{7-1}
ρ	1,41	1,73	2,00	2,24	2,24	2,45	2,45	2,64	2,64
α	1,41	1,68	2,00	2,38	2,00	2,83	2,38	3,36	2,83
m_0	5	6	7	10	6	15	9	21	14

За результатами обробки даних експерименту отримують рівняння регресії 2 порядку

$$y = b_0 + b_1x_1 + \dots + b_kx_k + b_{12}x_1x_2 + \dots + b_{k-1,k}x_{k-1}x_k + b_{11}x_1^2 + \dots + b_{kk}x_k^2. \quad (2)$$

Коефіцієнти b_j рівняння регресії (2) визначаються методом найменших квадратів і є оцінками відповідних коефіцієнтів β_j теоретичного поліному (1).

Для знаходження коефіцієнтів рівняння регресії необхідно розв'язувати систему нормальних рівнянь

$$(X^T X)b = X^T Y, \quad (3)$$

де X – розширена матриця планування, яка включає стовпці плану експерименту та стовпці для розрахунку коефіцієнтів при взаємодіях факторів та квадратах факторів.

Дисперсію відтворюваності s_{Π}^2 для ротатабельних планів другого порядку одержують за m_0 дослідями у центрі плану:

$$s_{\Pi}^2 = \frac{1}{m_0 - 1} \sum_{u=1}^{m_0} (y_{0u} - \bar{y}_0)^2, \quad \bar{y}_0 = \frac{\sum_{u=1}^{m_0} y_{0u}}{m_0}. \quad (4)$$

Число ступенів свободи дисперсії відтворюваності дорівнює $m_0 - 1$.

Значимість коефіцієнтів моделі, що постулюється, оцінюють за t -критерієм:

$$t_j = |b_j| / s_{b_j}, \quad (5)$$

де $s_{b_j} = \sqrt{s_{\Pi}^2 (\mathbf{X}^T \mathbf{X})_{jj}^{-1}}$.

Розраховане значення t_j повинне перевищувати критичне значення розподілу Стьюдента $t(1-q/2; m_0-1)$. Якщо незначимим виявляється один з коефіцієнтів при квадратичних членах, після його виключення інші коефіцієнти необхідно перерахувати, оскільки ротатабельний план не є ортогональним.

Середній залишковий квадрат із числом ступенів свободи $N-l$, де l – кількість значимих коефіцієнтів у рівнянні регресії, визначається за формулою

$$s_{\text{зал}}^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (\hat{y}_i - y_i)^2}{N-l}. \quad (6)$$

Сума квадратів неадекватності являє собою різницю залишкової суми квадратів і суми квадратів похибки, а число її ступенів свободи є різницею ступенів свободи відповідних сум квадратів. Таким чином, середній квадрат неадекватності визначається як

$$s_{\text{на}}^2 = \frac{s_{\text{зал}}^2 (N-l) - s_{\Pi}^2 (m_0 - 1)}{N-l-m_0+1}. \quad (7)$$

Отримане рівняння регресії оцінюється на адекватність за критерієм Фішера. Якщо виконується нерівність $F < F(1-q, N-l-m_0+1; m_0-1)$, де $F = s_{\text{на}}^2 / s_{\text{п}}^2$, рівняння регресії адекватно описує досліджуваний процес.

Проблема пошуку оптимальних параметрів технологічних систем нерозривно пов'язана із методами чисельної оптимізації. У класичних працях Рейвіндрана [11] та Хімельблау [12] наведені ефективні алгоритми для задач з обмеженнями та без обмежень, які можуть бути застосовані в задачах хімічної технології, при пошуку оптимуму математичної моделі, при вирішенні оптимізаційних завдань для відгуків об'єкта.

Для хімічних процесів пошук оптимуму часто означає максимізацію виходу цільового продукту або мінімізацію енерговитрат при забезпеченні необхідної селективності реакції. Використання чисельних методів оптимізації в поєднанні з експериментальною моделлю процесу дозволяє створювати цифрові двійники хімічних установок, що значно скорочує час проєктування та покращує надійність технологічних рішень. Програмне середовище MathCAD у цьому випадку є ефективним інструментом для реалізації багатопараметричної оптимізації та візуалізації поверхонь відгуку.

На практиці для оптимізації функцій, що отримані за результатами планованого експерименту другого порядку, часто використовують наступні чисельні методи:

- найскорішого спуску та Коші – ітеративні градієнтні методи пошуку мінімуму;
- алгоритми безградієнтної оптимізації Нелдера-Міда та Гауса-Зейделя.

Монтгомері [3] зазначав, що методи планування експерименту та RSM забезпечують ефективне моделювання та оптимізацію технологічних процесів, а поєднання статистичних та чисельних методів дозволяє отримати надійні моделі та визначити оптимальні режими роботи обладнання.

В роботі розглянуто процес руйнування одного з жароміцних нікелевих сплавів. За основу числових матеріалів експерименту обрані дані з літератури [4]. Ефективність процесу оцінюється за тривалістю часу до руйнування сплаву. Цей показник був обраний як вихідний параметр (відгук) y , год. За апіорною інформацією факторами, що впливають на тривалість часу до руйнування жароміцного нікелевого сплаву є температура загартовування, °С, температура старіння, °С, час старіння, год. Ці фактори незалежні між собою та сумісні. На основі апіорної інформації та попередніх дослідів були визначені області зміни факторів:

- $1010 < z_1 < 1190$ – температура загартовування, °С;
- $650 < z_2 < 850$ – температура старіння, °С;
- $0,5 < z_3 < 7,5$ – час старіння, год.

Рівні, інтервали варіювання, «зоряні» точки факторів у натуральному та кодованому значеннях наведені в табл. 2.

Для побудови математичної моделі процесу був реалізований центральний композиційний ротатабельний план другого порядку, оскільки попередні дослідження вказували на наявність нелінійності в досліджуваній області.

При проведенні центрального композиційного ротатабельного плану 8 дослідів відповідають повному факторному експерименту 2^3 , 6 паралельних дослідів проведено в центрі плану та 6 дослідів – в «зоряних» точках.

У табл. 3 наведено результати реалізації центрального композиційного ротатабельного плану (y – тривалість часу до руйнування сплаву).

Таблиця 2 – Рівні, інтервали варіювання, «зоряні» точки вхідних параметрів

Умови планування	натуральні значення			кодовані значення факторів			
	$z_1, T, ^\circ C$	$z_2, T, ^\circ C$	$z_3, \text{год}$		x_1	x_2	x_3
Основний рівень, z_j^0	1100	750	4	x_j^0	0	0	0
Інтервал варіювання, Δz_j	50	50	2	Δx_j	1	1	1
Верхній рівень, $z_{j\max}$	1150	800	6	$x_{j\max}$	1	1	1
Нижній рівень, $z_{j\min}$	1050	700	2	$x_{j\min}$	-1	-1	-1
Верхня «зоряна» точка, d	1184	834	7,364	d	1,618	1,618	1,618
Нижня «зоряна» точка, d	1016	666	0,636	d	-1,618	-1,618	-1,618

Таблиця 3 – План експерименту та результати експерименту

№ досліду	x_1	x_2	x_3	у, год.	№ досліду	x_1	x_2	x_3	у, год.
8	+1	+1	+1	30,2	11	0	+1,682	0	25,3
7	-1	+1	+1	20,2	12	0	-1,682	0	10,4
6	+1	-1	+1	7,0	13	0	0	+1,682	18,0
5	-1	-1	+1	14,1	14	0	0	-1,682	20,0
4	+1	+1	-1	43,0	15	0	0	0	29,0
3	-1	+1	-1	5,8	16	0	0	0	28,4
2	+1	-1	-1	27,9	17	0	0	0	28,6
1	-1	-1	-1	8,0	18	0	0	0	28,8
9	+1,682	0	0	36,0	19	0	0	0	28,7
10	-1,682	0	0	12,1	20	0	0	0	30,5

Розрахунок коефіцієнтів рівняння регресії другого порядку і статистичну обробку результатів експерименту виконано у MathCAD Prime. Коефіцієнти рівняння регресії b_j розраховані методом найменших квадратів за формулою (3): $b_0 = 29,008$; $b_1 = 7,337$; $b_2 = 4,925$; $b_3 = -1,213$; $b_4 = 4,3$; $b_5 = -6,775$; $b_6 = 2,05$; $b_7 = -1,802$; $b_8 = -3,994$; $b_9 = -3,558$.

Дисперсія відтворюваності розрахована за сумою квадратів похибки з дослідів у

центрі плану $ss_{\Pi} = \sum_{u=1}^{m_0} (y_{0u} - \bar{y}_0)^2 = 2,9$ та числом ступенів свободи $m_0 - 1 = 5$:

$$s_{\Pi}^2 = \frac{1}{m_0 - 1} \sum_{u=1}^{m_0} (y_{0u} - \bar{y}_0)^2 = \frac{2,9}{5} = 0,58,$$

де $\bar{y}_0 = \sum_{u=1}^{m_0} y_{0u} / m_0 = 29$ – середнє значення з дослідів в центрі плану.

Значимість коефіцієнтів моделі оцінюється за критерієм Стюдента t_j для кожного коефіцієнта моделі за формулою (5) і має наступні значення: $t_0 = 93,391$; $t_1 = 35,6$; $t_2 = 23,898$; $t_3 = 5,885$; $t_4 = 15,97$; $t_5 = 25,162$; $t_6 = 7,614$; $t_7 = 8,984$; $t_8 = 19,91$; $t_9 = 17,884$.

Розраховані значення t_j перевищують критичне значення розподілу Стюдента $t(1-q/2; m_0-1) = t(1-0,05/2; 5) = 2,571$, що свідчить про значимість всіх коефіцієнтів.

У результаті розрахунків отримано математичну модель залежності тривалості часу до руйнування нікелевого сплаву від температури загартовування, температури старіння, часу старіння в системі кодованих факторів:

$$\hat{y}(\bar{x}) = 29,008 + 7,337x_1 + 4,925x_2 - 1,213x_3 + 4,3x_1x_2 - 6,775x_1x_3 + 2,05x_2x_3 - 1,802x_1^2 - 3,994x_2^2 - 3,588x_3^2. \quad (8)$$

За рівнянням (8) для всіх дослідів визначені розрахункові значення відгуку \hat{y}_i .

Для оцінки адекватності моделі розрахована залишкова сума квадратів $ss_{\text{зал}} = \sum_{i=1}^N (\hat{y}_i - y_i)^2 = 9,674$ і середній квадрат неадекватності $s_{\text{на}}^2 = \frac{ss_{\text{зал}} - ss_{\text{п}}}{N - l - m_0 + 1} = 1,355$.

Адекватність отриманої математичної моделі можна визначити за критерієм Фішера: $F = s_{\text{на}}^2 / s_{\text{п}}^2 = 1,355 / 0,58 = 2,336$. Це рівняння регресії адекватно описує досліджуваний процес руйнування нікелевого сплаву в діапазоні зміни факторів, оскільки розраховане значення критерія Фішера менше за критичне значення розподілу Фішера при рівні значущості $1 - q$, $q = 0,05$ та ступенів свободи $f_1 = N - l - m_0 + 1 = 5$ та $f_2 = m_0 - 1 = 5$.

$$F = 2,336 < F(1 - q, f_1, f_2) = 5,05.$$

Рівняння регресії (8) перетворене до математичної моделі (9) в системі реальних факторів z_1, z_2, z_3 з урахуванням умов експерименту за формулами кодування факторів:

$$x_j = \frac{z_j - z_j^0}{\Delta z_j}: \quad x_1 = \frac{z_1 - 1100}{50}; \quad x_2 = \frac{z_2 - 750}{50}; \quad x_3 = \frac{z_3 - 4}{2}.$$

$$Y(\bar{z}) = -806,81 + 0,704z_1 + 0,521z_2 + 65,719z_3 + 0,002z_1z_2 - 0,068z_1z_3 + 0,021z_2z_3 - 7,209 \cdot 10^{-4}z_1^2 - 0,002z_2^2 - 0,897z_3^2, \quad (9)$$

де z_1 і z_2 – температури загартовування і старіння, відповідно, °C; z_3 – час старіння, год.

Рівняння регресії (9) дозволяє визначити тривалість часу Y до руйнування сплаву при всіх можливих комбінаціях значущих реальних чинників процесу.

Отриману математичну модель у вигляді рівняння (8) було використано для вирішення задачі оптимізації. Постановка задачі оптимізації була сформульована таким чином: визначити значення факторів, що впливають на тривалість часу до руйнування нікелевого сплаву, за якими тривалість часу до руйнування буде найбільшою.

Позначимо цільову функцію, як $R(x_1, x_2, x_3)$. Математична модель задачі оптимізації являє собою критерій оптимальності: $R(x_1, x_2, x_3) \rightarrow \max$.

$$R(x_1, x_2, x_3) = 29,008 + 7,337x_1 + 4,925x_2 - 1,213x_3 + 4,3x_1x_2 - 6,775x_1x_3 + 2,05x_2x_3 - 1,802x_1^2 - 3,994x_2^2 - 3,588x_3^2 \rightarrow \max. \quad (10)$$

Проаналізовано вплив кожного з факторів на час руйнування нікелевого сплаву \hat{y} при середніх значеннях інших факторів. Графічний аналіз отриманого кодованого

рівняння регресії (рис. 3) показує, що в області експерименту не може бути досягнутий оптимум критерія оптимальності $R(x_1, x_2, x_3)$ внаслідок характеру зміни фактору x_1 .

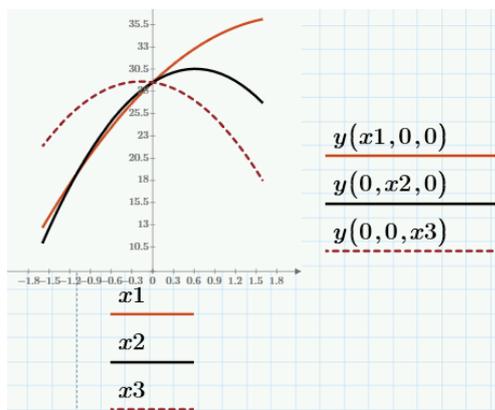


Рисунок 3 – Вплив на тривалість часу до руйнування нікелевого сплаву \hat{y} температури загартовування x_1 , температури старіння x_2 , часу старіння x_3 при середніх значеннях інших факторів

Проаналізуємо критерій оптимальності $R(x_1, x_2, x_3)$ на наявність оптимуму відносно x_1, x_2, x_3 . Запишемо цільову функцію для зручності через коефіцієнти b_j :

$$R(x_1, x_2, x_3) = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_4x_1x_2 + b_5x_1x_3 + b_6x_2x_3 + b_7x_1^2 + b_8x_2^2 + b_9x_3^2. \quad (11)$$

Визначимо і прирівняємо 0 часткові похідні від $R(x_1, x_2, x_3)$ за змінними x_1, x_2, x_3 .

$$\begin{cases} \frac{\partial R}{\partial x_1} = b_1 + b_4x_2 + b_5x_3 + 2b_7x_1 = 0; \\ \frac{\partial R}{\partial x_2} = b_2 + b_4x_1 + b_6x_3 + 2b_8x_2 = 0; \\ \frac{\partial R}{\partial x_3} = b_3 + b_5x_1 + b_6x_2 + 2b_9x_3 = 0. \end{cases} \quad (12)$$

Розв'язання системи рівнянь у матричній формі показує: отримана стаціонарна точка $x_1=1,79, x_2=-0,209, x_3=-2,168$ знаходиться за межами області експерименту (рис. 4).

$$A := \begin{bmatrix} 2 \cdot b_7 & b_4 & b_5 \\ b_4 & 2 \cdot b_8 & b_6 \\ b_5 & b_6 & 2 \cdot b_9 \end{bmatrix} \quad B := \begin{bmatrix} b_1 \\ b_2 \\ b_3 \end{bmatrix} \quad X := A^{-1} \cdot B \quad X = \begin{bmatrix} 1.79 \\ -0.209 \\ -2.168 \end{bmatrix}$$

Рисунок 4 – Розв'язання системи рівнянь (12) у матричній формі

На рисунку 5 побудована поверхня цільової функції при середньому значенні фактору $x_1=0$ ($W23 = R(0, x_2, x_3)$).

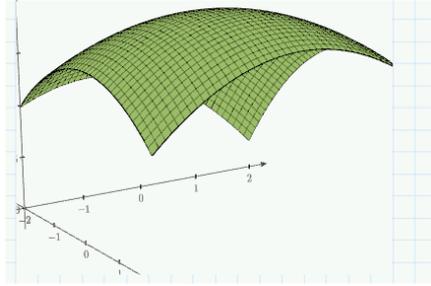


Рисунок 5 – Графік залежності критерія оптимальності від факторів x_2, x_3 при середньому значенні $x_1=0$ ($W23 = R(0, x_2, x_3)$)

Рисунок 6 показує вигляд поверхні цільової функції при середньому значенні фактору $x_3=0$ ($W12 = R(x_1, x_2, 0)$) в області експерименту.

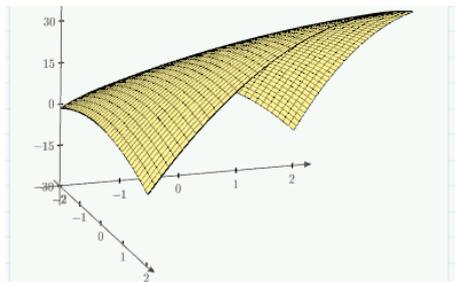


Рисунок 6 – Графік залежності критерія оптимальності від факторів x_1, x_2 при середньому значенні $x_3=0$ ($W12 = R(x_1, x_2, 0)$)

На рисунку 7 представлена поверхня цільової функції при середньому значенні фактору $x_2=0$ ($W13 = R(x_1, 0, x_3)$).

Графічний аналіз поверхні критерія оптимальності показує, що лише за заданих значень фактора $x_1=\text{const}$ (рис. 5) можна вирішити задачу оптимізації і визначити значення факторів x_2, x_3 , за яких критерій оптимальності набуває максимального значення.

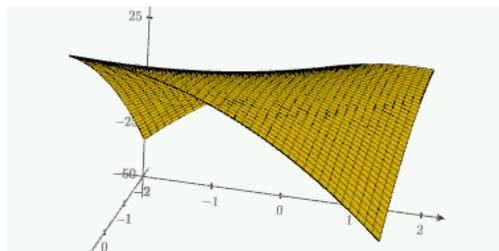


Рисунок 7 – Графік залежності критерія оптимальності від факторів x_1, x_3 при середньому значенні $x_2=0$ ($W13 = R(x_1, 0, x_3)$)

Для пошуку оптимуму цільової функції (11) за умовою $x_1=\text{const}$ обраний метод найскорішого спуску. Цей метод є градієнтним і здійснює пошук в оптимальному напрямку. Алгоритм пошуку найскорішого спуску має вигляд:

$$x_j^{(k+1)} = x_j^{(k)} \pm h^{(k)} \cdot \frac{\partial F(\bar{x}^{(p)})}{\partial x_j}, \quad j = 1, \dots, n. \quad (13)$$

де $h^{(k)}$ – значення параметра h для k -го кроку; p – номер точки, в якій останній раз визначалися координати градієнта цільової функції. У формулі (13) знак «+» відповідає пошуку максимуму, знак «-» відповідає пошуку мінімуму.

Процес руху до оптимуму починають із початкової точки $\bar{x}^{(0)}$ та виконують у два етапи: 1 – визначення напрямку, 2 – виконання кроків в обраному напрямку.

На першому етапі в поточній точці руху обчислюють координати градієнта цільової функції, які дорівнюють відповідним частинним похідним. Тим самим визначається напрям найбільшої зміни функції в цій точці, а також розраховують значення цільової функції в точці.

На другому етапі виконується крок у напрямі градієнта (при пошуку максимуму), або антиградієнта (для відшукування мінімуму). У новій точці знов обчислюється значення цільової функції. Якщо в результаті кроку значення цільової функції покращилося, то виконується ще один крок у тому ж напрямі. Такі кроки продовжуються до тих пір, поки не відбудеться погіршення функції в наступній точці руху. Після цього повертаються до попередньої точки і починають виконувати дії відповідно до першого етапу руху: визначають координати градієнта в попередній точці, тобто обирають новий напрям руху з попередньої точки. Далі переходять до другого етапу. Процес є ітераційним до виконання критерія завершення пошуку оптимуму:

$$\sqrt{\sum_{j=1}^N \left(\frac{\partial F(\bar{x}^{(k)})}{\partial x_j} \right)^2} \leq \varepsilon . \quad (14)$$

Методом найскорішого спуску задача оптимізації розв’язана для трьох різних значень фактору x_1 : середнього рівня $x_1=0$, верхнього рівня $x_1=1$ і нижнього рівня $x_1=-1$.

Для значення фактору $x_1=0$, що відповідає реальному фактору $z_1=1100$ °C, критерій оптимальності:

$$R23(0, x_2, x_3) = b_0 + b_1 \cdot 0 + b_2 x_2 + b_3 x_3 + b_4 x_1 x_2 + b_5 \cdot 0 \cdot x_3 + b_6 x_2 x_3 + b_7 \cdot 0^2 + b_8 x_2^2 + b_9 x_3^2 \rightarrow \max .$$

Оптимальне розв’язання: $R23_{\max}=30,526$ год.; $x_2=0,619$; $x_3=0,008$.

В реальному вимірі $R23_{\max}=30,529$ год.; $z_2=780,95$ °C; $z_3=4,06$ год.

На рисунку 8 наведений контурний графік з лініями рівня поверхні цільової функції та точкою максимуму при середньому значенні фактору $x_1=0$.

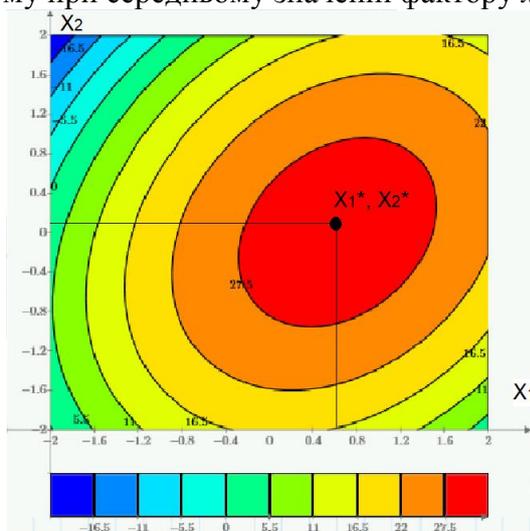


Рисунок 8 – Контурний графік залежності критерія оптимальності від факторів x_2, x_3 при середньому значенні $x_1=0$ ($R23 = R(0, x_2, x_3)$) та точка оптимуму x_2^*, x_3^*

Для значення фактору $x_1=1$, що відповідає реальному фактору $z_1=1150$ °C, критерій оптимальності:

$$R23(1, x_2, x_3) = b_0 + b_1 \cdot 1 + b_2 x_2 + b_3 x_3 + b_4 x_1 x_2 + b_5 \cdot 1 \cdot x_3 + b_6 x_2 x_3 + b_1 \cdot 1^2 + b_8 x_2^2 + b_9 x_3^2 \rightarrow \max .$$

Оптимальне розв'язання: $R23_{\max}=42,258$ год.; $x_2=0,938$; $x_3=0,846$.

В реальному вимірі $R23_{\max}=42,258$ год.; $z_2=796,9$ °C; $z_3=2,308$ год.

Для значення фактору $x_1=-1$, що відповідає реальному фактору $z_1=1050$ °C, критерій оптимальності:

$$R23(-1, x_2, x_3) = b_0 + b_1 \cdot (-1) + b_2 x_2 + b_3 x_3 + b_4 x_1 x_2 + b_5 \cdot (-1) \cdot x_3 + b_6 x_2 x_3 + b_1 \cdot (-1)^2 + b_8 x_2^2 + b_9 x_3^2 \rightarrow \max .$$

Оптимальне розв'язання: $R23_{\max}=22,362$ год.; $x_2=0,3$; $x_3=0,863$.

В реальному вимірі $R23_{\max}=22,362$ год.; $z_2=765$ °C; $z_3=5,726$ год.

Висновки. Під час дослідження було отримано математичну модель, яка відображає вплив факторів на тривалість часу до руйнування жароміцного нікелевого сплаву. Адекватність моделі встановлена за критерієм Фішера. Усі коефіцієнти моделі перевірені на значимість за критерієм Стьюдента, й встановлено, що усі є значимими. Таким чином, математична модель другого порядку адекватно описує вплив температури загартовування, температури старіння, часу старіння на тривалість часу до руйнування одного з жароміцних нікелевих сплавів. За отриманою адекватною моделлю можна проводити обчислювальний експеримент, варіюючи значення вхідних факторів, кількісно отримувати значення вихідного параметру. Але визначення та прогноз відгуку за моделлю є справедливими лише у області зміни вхідних чинників. Метою оптимізації було визначення оптимальних значень факторів, за яких досягається максимальна тривалість часу до руйнування сплаву. Було виявлено, що критерій оптимальності не має оптимуму у системі трьох факторів в області їхньої зміни. Але характер зміни факторів x_2, x_3 – температури та часу старіння – дозволяє вирішити задачу оптимізації лише для конкретних значень фактору $x_1=\text{const}$ – температури загартовування. Методом найскорішого спуску задача оптимізації була розв'язана для значень фактору $x_1=0, x_1=1, x_1=-1$. Так, за температури загартовування $z_1=1150$ °C оптимальне рішення становить $R23_{\max}=42,258$ год.; $z_2=796,9$ °C; $z_3=2,308$ год. Застосування розробленої математичної моделі в задачах хімічної інженерії дозволяє підвищити ефективність технологічних процесів за рахунок прогнозування оптимальних параметрів без проведення надлишкових експериментів. Розроблена методика може бути інтегрована в системи автоматизованого проектування та управління хімічними реакторами і процесами термічної обробки матеріалів.

Література

1. Box G. E. P., Wilson K. B. On the Experimental Attainment of Optimum Conditions. *Journal of the Royal Statistical Society. Series B.* 1951.
2. Box G. E. P., Draper N. R. Response Surfaces, Mixtures, and Ridge Analyses. *Wiley.* 2007.
3. Montgomery D. C. Design and Analysis of Experiments. *Wiley.* 2017.

4. Hartmann K. Statistische Versuchsplanung und-auswertung in der Stoffwirtschaft. *Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie*. 1974.
5. Zaid H., Al-Sharify Z. T., Hamzah M. H., Rushdi S. Optimization of Different Chemical Processes Using Response Surface Methodology. A Review. *Journal of Engineering and Sustainable Development*. 2022. Vol. 26, No. 6. P. 1-12.
6. Chen X., Pei Y., Wang X., Zhou W., Jiang L. Response Surface Methodology – Central Composite Design Optimization Sugarcane Bagasse Activated Carbon under Varying Microwave-Assisted Pyrolysis Conditions. *Processes*. 2024. Vol. 12, No. 3. Art. 497.
7. Perez J. V. D., Nadres E. T., Nguyen H. N. Response surface methodology as a powerful tool to optimize the synthesis of polymer-based graphene oxide nanocomposites for simultaneous removal of cationic and anionic heavy metal contaminants. *RSC Advances*. 2017. Vol. 7(30). P. 18480-18490.
8. Parulekar S. J. Numerical problem solving using Mathcad in undergraduate reaction engineering. *Chemical Engineering Education*. 2006. Vol. 40, No. 1. P. 14-23.
9. Статюха Г. О. Вступ до планування оптимального експерименту: навч. посіб. Київ : ІВЦ «Політехніка», 2011. 117 с.
10. Товажнянський Л. Л. Комп'ютерне моделювання у хімічній технології. Харків : НТУ «ХП», 2011. 606 с.
11. Ravindran A., Ragsdell K. M., Reklaitis G. V. Engineering optimization: methods and applications. 2nd ed., 2006. 681 p.
12. Хімельблау Д. Прикладне нелінійне програмування. Пер. з англ. 1975. 534 с.

Bibliography (transliterated)

1. Box G. E. P., Wilson K. B. On the Experimental Attainment of Optimum Conditions. *Journal of the Royal Statistical Society. Series B*. 1951.
2. Box G. E. P., Draper N. R. Response Surfaces, Mixtures, and Ridge Analyses. *Wiley*. 2007.
3. Montgomery D. C. Design and Analysis of Experiments. *Wiley*. 2017.
4. Hartmann K. Statistische Versuchsplanung und-auswertung in der Stoffwirtschaft. *Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie*. 1974.
5. Zaid H., Al-Sharify Z. T., Hamzah M. H., Rushdi S. Optimization of Different Chemical Processes Using Response Surface Methodology. A Review. *Journal of Engineering and Sustainable Development*. 2022. Vol. 26, No. 6. P. 1-12.
6. Chen X., Pei Y., Wang X., Zhou W., Jiang L. Response Surface Methodology – Central Composite Design Optimization Sugarcane Bagasse Activated Carbon under Varying Microwave-Assisted Pyrolysis Conditions. *Processes*. 2024. Vol. 12, No. 3. Art. 497.
7. Perez J. V. D., Nadres E. T., Nguyen H. N. Response surface methodology as a powerful tool to optimize the synthesis of polymer-based graphene oxide nanocomposites for simultaneous removal of cationic and anionic heavy metal contaminants. *RSC Advances*. 2017. Vol. 7(30). P. 18480-18490.
8. Parulekar S. J. Numerical problem solving using Mathcad in undergraduate reaction engineering. *Chemical Engineering Education*. 2006. Vol. 40, No. 1. P. 14-23.
9. Statiukha H. O. Vstup do planuvannia optymalnoho eksperymentu: navch. posib. Kyiv : IVTs «Politekhnika», 2011. 117 p.
10. Tovazhniansky L. L. Kompiuterne modeliuвання u khimichnii tekhnolohii. Kharkiv : NTU «KhPI», 2011. 606 p.

11. Ravindran A., Ragsdell K. M., Reklaitis G. V. Engineering optimization: methods and applications. 2nd ed., 2006. 681 p.

12. Khimelblau D. Prykladne nelineiine prohramuvannia. Per. z anhl. 1975. 534 p.

УДК 62-93:66.08+519.6

Є. Д. Пономаренко, доцент, А. М. Миронов, канд. техн. наук, доцент,

Л. В. Соловей, ст. викл., М. В. Ільченко, канд. техн. наук, доцент,

К. О. Горбунов, канд. техн. наук, професор, С. М. Биканов, канд. техн. наук, доцент,

Є. В. Краснокутський, канд. техн. наук, доцент

ІНТЕГРАЦІЯ МАТЕМАТИЧНОЇ МОДЕЛІ ТА RSM-ОПТИМІЗАЦІЇ ДО МЕТОДІВ ПЛАНУВАННЯ ЕКСПЕРИМЕНТУ У ГАЛУЗІ ХІМІЧНОЇ ІНЖЕНЕРІЇ ІЗ ЗАСТОСУВАННЯМ СУЧАСНИХ ІНФОРМАЦІЙНИХ ТЕХНОЛОГІЙ

У статті представлено результати дослідження, присвяченого інтеграції методів математичного моделювання та методології оптимізації поверхні відгуку (RSM) у систему планування експерименту для задач хімічної інженерії із використанням сучасних програмних засобів. Розглянуто теоретичні засади побудови математичних моделей технологічних процесів і принципи реалізації статистичного планування експериментів для виявлення закономірностей між технологічними параметрами у хімічній інженерії. Обґрунтовано доцільність використання центрально-композиційних планів (ЦКП) для формування адекватних моделей другого порядку, що забезпечують можливість аналізу нелінійних взаємодій між факторами та прогнозування відгуку системи в широкому діапазоні умов.

Запропоновано методику інтеграції аналітичних моделей та RSM-оптимізації із застосуванням програмного середовища MathCAD Prime для проведення чисельних розрахунків, статистичної обробки результатів та побудови поверхонь відгуку. Наведено приклад моделювання процесу руйнування жароміцного нікелевого сплаву під впливом трьох технологічних параметрів термічної обробки: температури загартовування, температури старіння та часу старіння. Для аналізу даних реалізовано центрально-композиційний ротатабельний план другого порядку, який дозволив визначити значимі фактори, оцінити їх вплив за критерієм Стьюдента та перевірити адекватність моделі за критерієм Фішера. Проведений аналіз показав, що в області зміни факторів цільова функція не має оптимуму. Однак аналіз характеру впливу факторів на вихідний параметр, показав, що можливо знайти оптимальне значення функції для фіксованих значень фактору $x_1 = \text{const}$. Отримано рівняння регресії, яке адекватно описує залежність тривалості до руйнування сплаву від досліджуваних параметрів. Оптимізацію розв'язку проведено за методом найскорішого спуску.

Показано, що одночасне використання статистичних та чисельних підходів забезпечує побудову достовірних моделей технологічних процесів, скорочує обсяг експериментальних робіт та створює підґрунтя для розробки цифрових двійників хіміко-технологічних систем. Розглянута методика може бути інтегрована у системи автоматизованого проектування та керування хіміко-технологічними процесами, що дасть змогу підвищити їхню ефективність та надійність.

Ключові слова: математичне моделювання, планування експерименту, хімічна інженерія, оптимізація, RSM, поверхні відгуку, адекватність, оптимум, чисельні методи.

Ye. D. Ponomarenko, A. M. Myronov, L. V. Solovei, M. V. Ilchenko, K. O. Gorbunov,
S. M. Bykanov, Ye. V. Krasnokutsky

**INTEGRATION OF MATHEMATICAL MODELS AND RSM-OPTIMIZATION
INTO EXPERIMENT PLANNING METHODS IN THE FIELD OF CHEMICAL
ENGINEERING USING MODERN INFORMATION TECHNOLOGIES**

The article presents research results on integrating mathematical modeling and Response Surface Methodology (RSM) optimization into experimental design methods for chemical engineering applications using modern computational tools. The theoretical background of mathematical modeling of technological systems and the principles of statistical experiment planning are analyzed to identify the interrelations among process parameters. The use of central composite design (CCD) schemes for constructing second-order models is substantiated as an effective approach to account for nonlinear interactions of factors and to predict system response over wide operational ranges.

A unified methodology combining analytical modeling and RSM-optimization was developed with implementation in the MathCAD Prime software environment, enabling statistical processing, regression analysis, and visualization of response surfaces. The methodology was applied to model the durability of a heat-resistant nickel alloy depending on quenching temperature, aging temperature and aging time. A rotatable central composite plan was used to assess factor significance via the Student criterion and model adequacy using the Fisher criterion. The analysis showed that in the area of changing factors, the objective function does not have an optimum. However, an analysis of the nature of the influence of factors on the output parameter showed that it is possible to find the optimal value of the function for fixed values $x_1 = \text{const}$. The resulting second-order regression equation accurately represents the relationship between process variables and material failure time, allowing numerical optimization through the steepest descent algorithm.

The study demonstrates that combining mathematical modeling with statistical optimization ensures reliable prediction of technological behavior, reduces experimental effort, and supports digital twin creation for chemical-and-technological systems. The proposed approach enhances process design accuracy and can be effectively implemented in computer-aided engineering and control systems for chemical-and-technological processes, which will allow to increase their efficiency and reliability.

Keywords: mathematical modeling, experiment planning, chemical engineering, optimization, RSM, response surfaces, adequacy, optimum, numerical methods.