РАЗДЕЛ 3
РЕГРЕССИОННАЯ МОДЕЛЬ И КИНЕТИКА ОСАЖДЕНИЯ БУРОУГОЛЬНОГО ШЛАМА

3.1. Планирование эксперимента

Для сокращения времени проведения экспериментов по изучению процесса осаждения буроугольного шлама и получения достаточной точности регрессионной модели применялось многофакторное планирование эксперимента [10, 29, 33]. При этом предполагалось одновременное изменение всех факторов, влияющих на процесс, что позволило установить их взаимодействие и сократить число опытов.

В результате исследований получены не зависимости статистических характеристик объекта, как это имеет место в классическом однофакторном методе, а функциональная зависимость определяющего параметра объекта от всех факторов и возможность управлять им без знания условий протекания процесса, что позволяет создать регрессионную модель процесса осаждения буроугольного шлама.

На основе планирования эксперимента определялась область рациональных параметров, в которой изучалось влияние этих параметров и проводились дополнительные эксперименты, необходимые для идентификации моделей кинетики.

В качестве функции отклика был принят выход осадка H, %, как наиболее основной показательный параметр процесса осаждения.

Тогда искомую зависимость можно представить в виде

$$Y = F(X_1, X_2, X_3),$$

где Y – выход осадка, %;

X_1 – расход реагента полиакриламида (g), г/т;

X_2 – плотность пульпы (P), %;

X_3 – время осаждения (t), мин.

Применяем полный факторный эксперимент (ПФЭ) типа 2^k, обладающими такими положительными особенностями:

- симметричность относительно центра эксперимента;
- независимость численных значений всех коэффициентов уравнения регрессии, полученного экспериментально;

- изменения порядка регрессионного полинома, принятого для описания объекта (ортогональность);
- одинаковая точность показателей модели на равных расстояниях от центра в различных направлениях.

С помощью ПФЭ типа 2^k можно получить модель объекта адекватной только в том случае, если в нее не будет входить степень факторов, т. е. этот эксперимент позволяет оценить коэффициенты уравнения регрессии только при линейных членах и взаимодействиях:

$$y = a_0 + \sum_{i=1}^{k} a_i x_i + \sum_{j,i=1}^{k} a_{ij} x_j x_i + \sum_{i,j,u=1}^{k} a_{iju} x_u x_j x_i + ... \qquad (3.1)$$

На процесс осаждения буроугольного шлама влияют три основных фактора, а именно: расход реагента полиакриламида в интервале g = 20–60 г/т, плотность пульпы P = 5–15% и время осаждения t = 1,5–2,5 мин. Число возможных комбинаций из этих факторов на двух уровнях $N = 2^3 = 8$.

3.2. Уравнение регрессии процесса осаждения шлама

Для получения уравнения регрессии в виде (3.1) записываем развернутую матрицу планирования эксперимента (табл. 3.1 и 3.2), пренебрегая взаимодействиями X1, X2, X3.

Таблица 3.1

Матрица планирования эксперимента

Значение факторов в натуральном масштабе				**Значение факторов в безразмерной системе координат**			**Выход осадка, %**
№ опыта	***g*, г/т**	***P*, %**	***t*, мин**				
	X_1	**X_2**	**X_3**	**X''_1**	**X''_2**	**X''_3**	**Y**
1	**20**	**5**	**1,5**	**-1**	**-1**	**-1**	**82**
2	**60**	**5**	**1,5**	**+1**	**-1**	**-1**	**86**
3	**20**	**15**	**1,5**	**-1**	**+1**	**-1**	**84**
4	**60**	**15**	**1,5**	**+1**	**+1**	**-1**	**88**
5	**20**	**5**	**2,5**	**-1**	**-1**	**+1**	**90**
6	**60**	**5**	**2,5**	**+1**	**-1**	**+1**	**98**
7	**20**	**15**	**2,5**	**-1**	**+1**	**+1**	**88**
8	**60**	**15**	**2,5**	**+1**	**+1**	**+1**	**92**

Таблица 3.2

Развернутая матрица планирования эксперимента

№ опыта	X_0	X_1	X_2	X_3	$X_1 X_2$	$X_1 X_3$	$X_2 X_3$	$X_1 X_2 X_3$	Y
1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	82
2	+1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	86
3	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	+1	84
4	+1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	88
5	+1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	90
6	+1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	-1	98
7	+1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	-1	88
8	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	92

Последовательность проведения опытов была рандомизирована известным методом с помощью таблицы случайных чисел.

Полученные результаты обрабатывались результатов осуществлялась с помощью функции Regression приложения Microsoft Excel. Значения полученных коэффициентов и соответствующих уровней значимости приведены в табл. 3.3.

Таблица 3.3

Результаты статистической обработки даннных эксперимента

Факторы	Коэффициенты	P - значение
Y - пересечение	88,5	0,004
X_1	2,5	0,126
X_2	-0,5	0,500
X_3	3,5	0,090
$X_1 X_2$	-0,5	0,500
$X_1 X_3$	0,5	0,500
$X_2 X_3$	-1,5	0,205

Из анализа табл. 3.3 следует, что влияние фактора X_2, а также взаимодействий X_1X_2 и X_1X_3 на функцию отклика незначимо, а поэтому этими членами в уравнении регрессии можно пренебречь. Тогда

$$Y = 88,5 + 2,5X_1 + 3,5X_3 - 1,5X_2 X_3. \qquad (3.3)$$

Графическая интерпретация полученного результата представлена на рис. 3.1.

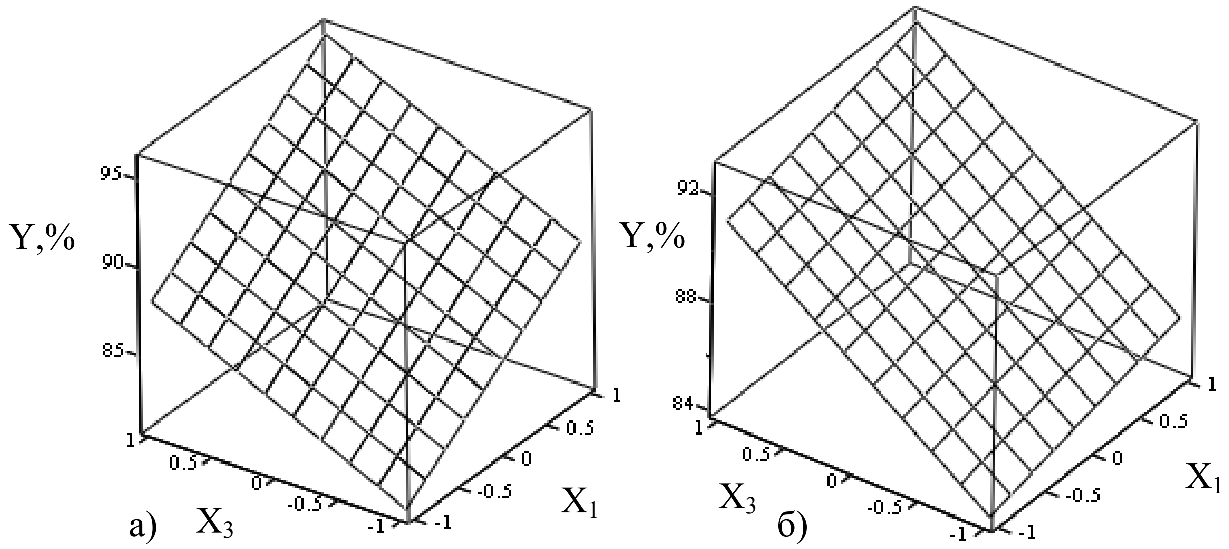

Рис. 3.1. Графическая интерпретация полученных результатов при плотности пульпы 5 (а) и 15% (б)

Результаты статистической обработки данных эксперимента приведены в табл. 3.4 и 3.5.

Таблица 3.4

Регрессионная статистика

Множественный *R*	**0,98**
R-квадрат	**0,95**
Нормированный *R*	**0,92**
Стандартная ошибка	**1,41**
Наблюдения	**8**

Значения в строках табл. 3.4 соответствуют следующим статистическим показателям:

- множественный R – коэффициент корреляции R;
- R-квадрат – коэффициент детерминации R^2;
- нормированный R – нормированное значение коэффициента корреляции;
- наблюдения – число исходных наблюдений.

Значение коэффициента множественной корреляции, равное 0,98, свидетельствует о тесной связи рассматриваемых факторов и функции отклика. Величина коэффициента детерминации (R^2) показывает, что 95% общей вариации функции отклика объясняется вариацией факторов.

Результаты дисперсионного анализа сведены в табл. 3.5.

Таблица 3.5

Результаты дисперсионного анализа

Наименование	SS	MS	F	Значимость F
Регрессия	**166**	**55,33**	**27,67**	**0,0039**
Остаток	**8**	**2,00**	**-**	**-**
Итого	**174**	**-**	**-**	**-**

В табл. 3.5 приведены: SS – сумма квадратов отклонений; MS – значения дисперсий; F – расчетное значение F-критерия Фишера; Значимость F – значение уровня значимости, соответствующее вычисленному значению F. Уровень значимости очень высокий и составляет менее 1%. Строка регрессия – это факторная дисперсия, а строка остаток – остаточная дисперсия.

В табл. 3.6 приведены итоговые результаты статистической обработки основных параметров процесса осаждения.

Таблица 3.6

Итоговые результаты обработки основных параметров процесса осаждения

Фактор	Коэффициент	t - статистика	P - значение
Y - пересечение	**88,5**	**177,0**	**6,11175E-09**
X_1	**2,5**	**5,0**	**0,007490434**
X_3	**3,5**	**7,0**	**0,00219213**
$X_2 X_3$	**-1,5**	**-3,0**	**0,039941968**

Из табл. 3.6 следует, что значимость коэффициентов регрессии очень высокая и в сочетании с вышеизложенным является свидетельством адекватности полученной регрессионной модели.

Как видно из уравнения регрессии, увеличение значения факторов X_1, X_3 приводит к соответствующему росту функции отклика Y. Наиболее значимыми факторами являются расход реагента и время осаждения (рис. 3.1).

3.3. Восстановление эмпирической функции регрессии

При определении основных параметров осаждения, в частности, необходимой удельной площади сгущения, скорости осаждения, эффективности действия реагентов и разрыхления осадка, за основу принята методика Телмеджа и Фитча, где определение указанных показателей связано с анализом кинетики осаждения твердой фазы пульпы.

Для этого тщательно перемешанную пульпу заливали в цилиндр, после некоторого отстаивания из него, с целью постоянства объема исследуемой пульпы, пипеткой удаляли объем дисперсной среды, равный объему вводимого раствора реагента.

Для осаждения частиц буроугольного шлама могут быть применены коагулянты типа полиакриламида (ПАА) [14-16]. Перед и после введения реагента пульпу перемешивали. Уровень осветления фиксировали через определенные промежутки времени до прекращения осаждения твердой фазы с установлением критической точки.

Выбор уравнения кинетики сводится к подбору математического выражения, которое лучшим образом (наименьшая остаточная дисперсия, большой индекс аппроксимации) описывало бы экспериментальную кривую. При этом необходимо, чтобы уравнение было, по возможности, простым, удобным для последующих расчетов и определения по экспериментальным данным входящих в него коэффициентов. Таким уравнением для определения высоты осветленного слоя жидкости будет [45]:

$$H=\Delta H\,exp(-kt^n),$$

где $\Delta H=H_0–H_t$;

H_0 – первоначальная высота слоя пульпы;

H_t – высота осевшего слоя пульпы;

k, n – коэффициенты кинетики.

Содержание твердой фазы находится в обратной зависимости от высоты слоя пульпы H_t, а коэффициенты k и n определяют форму и положение кривой кинетики. При изменении условий протекания процесса, например, масштабных и технологических факторов, эти коэффициенты также изменяются.

Коэффициент k характеризует технологические параметры – размер частиц, концентрацию твердого в пульпе, расход реагента и др. Чем больше значение k, тем более вогнута кривая осаждения.

Для повышения точности расчета в уравнение введен дополнительный коэффициент n. Таким образом, эти коэффициенты кинетики достаточно полно характеризуют технологические параметры процесса осаждения, его эффективность и др.

Корректировать коэффициенты k и n по отдельности нельзя, поскольку они взаимосвязаны. Поэтому необходимо использовать единый обобщенный параметр, который отражал бы значения обоих коэффициентов. Такими параметрами могут быть математическое ожидание, дисперсия, энтропия.

Задача восстановления нелинейных многомерных зависимостей появляется тогда, когда необходимо определить причинно-следственные связи объекта наблюдения и его характеристик

$$\overline{\eta} = \Theta(\overline{\xi}) ,$$

где $\overline{\xi} = \{\xi_1, \xi_2, \ldots, \xi_k\}$ – входные показатели;

$\overline{\eta} = \{\eta_1, \eta_2, \ldots, \eta_m\}$ – выходные показатели.

В задачах кинетики осаждения входными показателями являются средний размер частиц буроугольного шлама и расход ПАА, а выходными – только *n* (или *k*). Поэтому k=2, m=1.

При проведении эксперимента регистрируется массив данных $\{\eta_i, \xi_i^1, \xi_i^2\}$, $i = \overline{1, n}$, по которому необходимо оценить причинно-следственную связь.

В такой постановке – это задача многомерного регрессионного анализа. Для ее решения необходимо каким-либо методом восстановить эмпирическую функцию регрессии, оценить точность параметров и построить доверительный интервал для линии регрессии [2, 10]

$$Y = \begin{pmatrix} \eta_1 \\ \eta_2 \\ \vdots \\ \eta_n \end{pmatrix}, \qquad X = \begin{pmatrix} \xi_1^1 & \xi_1^2 \\ \xi_2^1 & \xi_2^2 \\ \vdots & \vdots \\ \xi_n^1 & \xi_n^2 \end{pmatrix}.$$

Общего метода (а значит и вычислительной схемы) восстановления нелинейной многомерной регрессии не существует. Исследованы только типы кривых регрессии, которые путем некоторых преобразований сводятся к линейным.

Однако в данном случае общий вид зависимостей по усредненным результатам измерений коэффициентов позволяет надеяться, что их можно будет описать с помощью полиномов третьего порядка

$$\Theta(\overline{\xi}) = a_0 + \sum_{i=1}^{2} a_i\xi_i + \sum_{i=1}^{2} b_i\xi_i^2 + \sum_{i \neq j} c_{ij}\xi_i\xi_j + \sum_{i \neq j} d_{ij}\xi_i^2\xi_j + \sum_{i=1}^{2} e_i\xi_i^3 .$$

Данная задача с введением фиктивных переменных

$$z_i = \xi_i\xi_j, \ \ u_i = \xi_i^2\xi_j, \quad t_i = \xi_i^3, \ \ s_i = \xi_i^2$$

приводится к линейному виду

$$\Theta(\overline{V}) = a_0 + \sum_{i=1}^{2} a_i \xi_i + \sum_{i=1}^{2} b_i s_i + \sum_{i \neq j} c_{ij} z_i + \sum_{i \neq j} d_{ij} u_i + \sum_{i=1}^{2} e_i t_i = a_0 + \sum_{i=1}^{M} a_i v_i \cdot,$$

где $v_i = \{z_i, s_i, u_i, t_i\}$; $M = 2 + 2 + 2C_2^2 + 2 = 8$.

Следовательно, задача сводится к восстановлению 8-мерной линейной регрессии. Для ее решения нормализуем случайные переменные:

$$\eta_i^* = \frac{\eta_i - \overline{\eta}}{\hat{\sigma}_\eta};$$

$$v_{ij}^* = \frac{v_{ij} - \overline{v_j}}{\hat{\sigma}_j};$$

$$i = \overline{1, n}, \quad j = \overline{1, 8}.$$

Здесь $\overline{\eta}$ обозначает математическое ожидание, а σ – дисперсию случайной величины.

Для нормализованных случайных переменных вычисляем и формируем матрицу R – парных коэффициентов корреляции:

$$R_{kl} = \frac{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} v_{ik}^* v_{il}^* - \overline{v_k^*}\,\overline{v_l^*}}{\sigma_k \sigma_l}; \qquad R_{k0} = \frac{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} v_{ik}^* \eta_i^* - \overline{v_k^*}\,\overline{\eta^*}}{\sigma_k \sigma_\eta}.$$

Несмещенное значение множественного коэффициента корреляции приводим к виду

$$\widetilde{R} = \sqrt{1 - \frac{|R|}{|R_{00}|}\left(\frac{n}{n-k-1}\right)}.$$

Существенность коэффициетнта $\tilde{R}$ проверяем по F-критерию [32], т. е. путем вычисления

$$F_1 = \frac{\widetilde{R}^2 (n - k - 1)}{\left(1 - \widetilde{R}^2\right) k}$$

для последующего сравнения с критическим значением F_{α, ν_1, ν_2}, где

$\nu_1 = n,\ \nu_2 = n - k - 1$ (табличные значения F-критерия).

Если $F_1 \geq F_{\alpha,\nu_1,\nu_2}$, то связь является существенной и подлежит восстановлению.

Будем считать, что ошибки в отдельных экспериментах некоррелированы и нормально распределены. Поэтому для оценивания параметров регрессии применим метод максимального правдоподобия [33], функция которого для вектора ошибок имеет вид

$$L\left(E, V, \sigma^2\right) = \frac{1}{\left(2\pi\sigma^2\right)^{\frac{n}{2}}} e^{-\frac{E^T E}{2\sigma^2}} = \frac{1}{\left(2\pi\sigma^2\right)^{\frac{n}{2}}} e^{-\frac{1}{2\sigma^2}(\eta - VA)^T(\eta - VA)},$$

где $E = \eta - VA$;

σ^2 – дисперсия случайной величины.

Прологарифмировав обе части, получим

$$\ln L\left(E, V, \sigma^2\right) = -\frac{n}{2}\ln(2\pi) - \frac{n}{2}\ln\sigma^2 - \frac{1}{\sigma^2}(\eta - VA)^T(\eta - VA).$$

Для оценки параметров A и σ^2 продифференцируем последнее уравнение:

$$\frac{\partial}{\partial \mathrm{A}}\ln \mathrm{L}\left(\mathrm{E}, \mathrm{V}, \sigma^2\right) = \frac{1}{2\sigma^2}\left(2\mathrm{V}^\mathrm{T}\eta - 2\mathrm{V}^\mathrm{T}\mathrm{VA}\right);$$

$$\frac{\partial}{\partial \sigma^2}\ln \mathrm{L}\left(\mathrm{E}, \mathrm{V}, \sigma^2\right) = -\frac{\mathrm{n}}{2\sigma^2} + \frac{1}{\sigma^4}(\eta - \mathrm{VA})^\mathrm{T}(\eta - \mathrm{VA}).$$

Условие регулярности получим, приравняв производные к нулю. При точечной оценке параметров линейной регрессионной зависимости нормализованных переменных необходима система алгебраических уравнений

$$V^T VA = V^T \eta.$$

Определитель данных уравнений представляет собой матрицу парных коэффициентов корреляции R, т. е.

$$B = V^T V = \begin{bmatrix} 1 & R_{12} & \cdots & R_{18} \\ R_{21} & 1 & \cdots & R_{28} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ R_{81} & R_{82} & \cdots & 1 \end{bmatrix}.$$

Поэтому оценить коэффициенты линеаризованной регрессии можно по формуле

$$A = B^{-1}V^T\eta.$$

Эти преобразования можно выполнить с помощью стандартных методов линейной алгебры [2, 10].

Параметр σ^2 находим из условия регулярности

$$\frac{1}{n} = \frac{1}{\sigma^2}(\eta - VA)^T(\eta - VA)$$

по формуле

$$\sigma^2 = \frac{1}{n}(\eta - VA)^T(\eta - VA).$$

В качестве исходных данных для построенния модели были приняты усредненные результаты изменений значений коэффициентов n и k (табл. 3.7).

Таблица 3.7

Результаты изменений значений коэффициентов k и n

Средний размер буроугольных частиц d, мм	**Удельный расход реагента ПАА, г/т, в точках сечения регрессионной поверхности**		
	q_1	q_2	q_3
0,15	**0,55/0,08**	**0,53/0,21**	**0,44/0,22**
0,20	**0,45/0,27**	**0,40/0,37**	**0,33/0,41**
0,30	**0,37/0,43**	**0,33/0,50**	**0,27/0,57**
0,40	**0,52/0,41**	**0,40/0,48**	**0,33/0,55**
0,50	**0,75/0,29**	**0,63/37**	**0,48/0,42**
0,60	**0,68/0,27**	**0,63/0,35**	**0,50/0,40**
0,70	**0,56/0,40**	**0,49/0,45**	**0,39/0,51**
0,80	**0,35/0,61**	**0,30/0,62**	**0,25/0,66**

Примечание. В числителе приведены результаты изменений значений коэффициента k, в знаменателе – n.

На рис. 3.2 и 3.3 изображены восстановленные регрессионные поверхности соответственно для коэффициентов k и n.

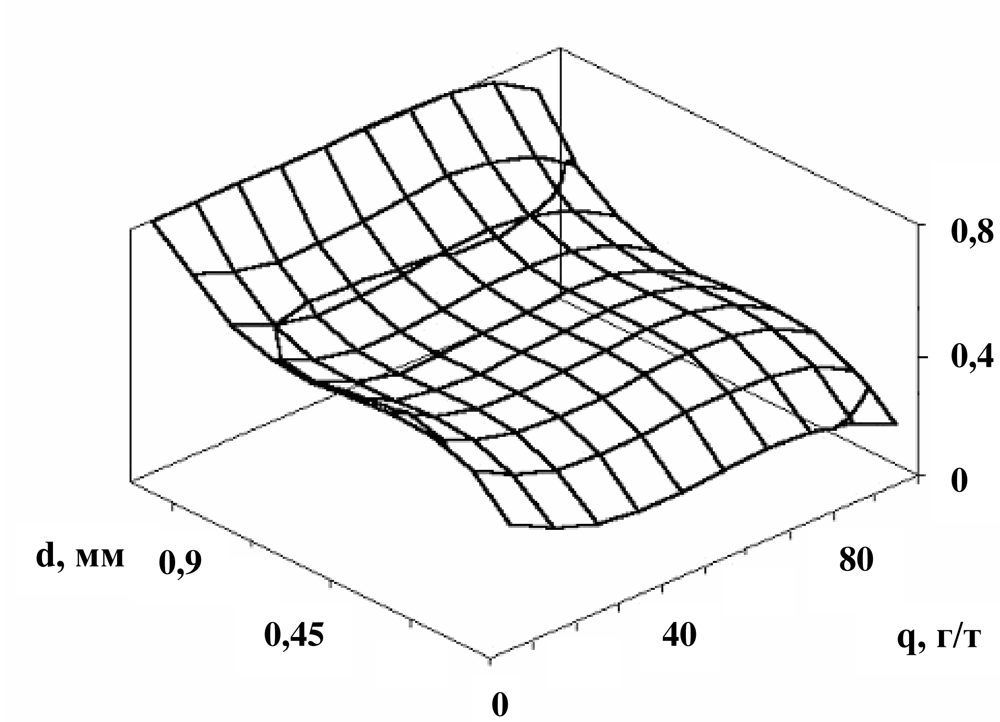

Рис. 3.2. Восстановленная регрессионная поверхность для коэффициента k в зависимости от среднего размера частиц буроугольного шлама и расхода ПАА

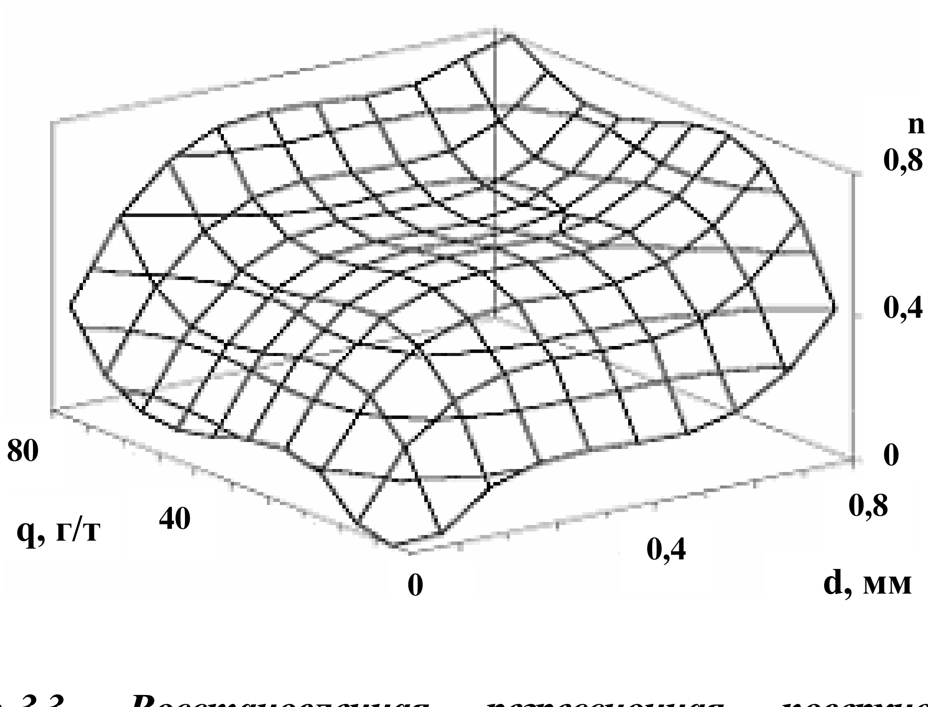

Рис. 3.3. Восстановленная регрессионная поверхность для коэффициента n в зависимости от среднего размера частиц буроугольного шлама и расхода ПАА

Из анализа табл. 3.7 следует, что коэффициенты (k=0,75–0,25 и n=0,08–0,66) при расходах ПАА q_1=60, q_2=40 и q_3=20 г/т определяют форму и положение кривой кинетики. Чем больше значение k, тем более вогнута кривая осаждения.

Точность предложенной модели определяем с помощью восстановления зависимостей в классе полиномиальных функций. Из рис. 3.4, на котором видна разность между восстановленными и эмпирическими значениями для кривой, соответствующей параметру q_1 = 60 г/т, следует, что максимальное отклонение не превышает 0,05. Общепризнано, что точность считается удовлетворительной.

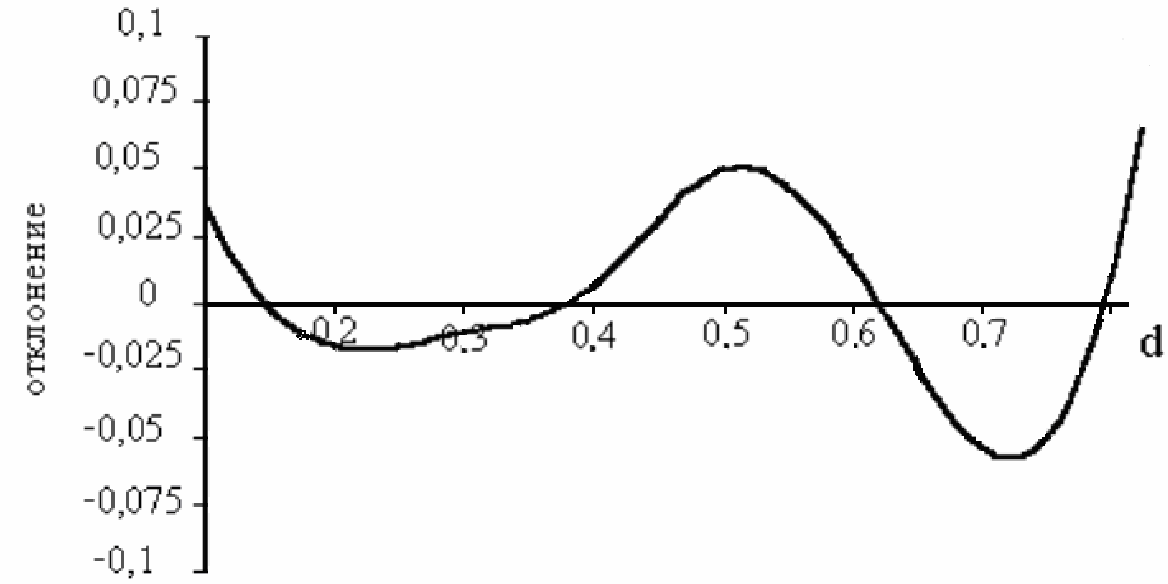

***Рис. 3.4. Кривая отклонения восстановленной поверхности для коэффициента n в зависимости от эмпирических значений в точке q_1 = 60* г/т**

3.4. Восстановление сплайн-регрессий

Более точные результаты можно получить, если использовать методы восстановления сплайн-регрессий [33]. Однако их достаточно сложно применять на нерегулярных малоинформативных выборках.

Поэтому в настоящей работе был предложен следующий эвристический подход к сглаживанию полученных эмпирических данных. При каждом фиксированном размере минеральной частицы будем считать, что коэффициент k (или n) изменяется по линейному закону относительно изменения расхода реагента q. Это можно утверждать только после большого числа измерений. Поэтому, используя вышеизложенный подход, можно точечно оценить эти регрессионные зависимости и в дальнейшем значения коэффициентов k

и n определить с помощью сплайн-интерполяционной методики [35].

Применение предложенного подхода для кинетики осаждения твердой фазы пульпы позволяет достаточно приблизить аналитические и эмпирические данные, т.е. найти разность между аналитическими и эмпирическими значениями, которую получим, нанеся на рис. 3.3 соответствующие значения коэффициента k. На рис. 3.5 показано их отклонение (восстановленных значений от полученных при наблюдении).

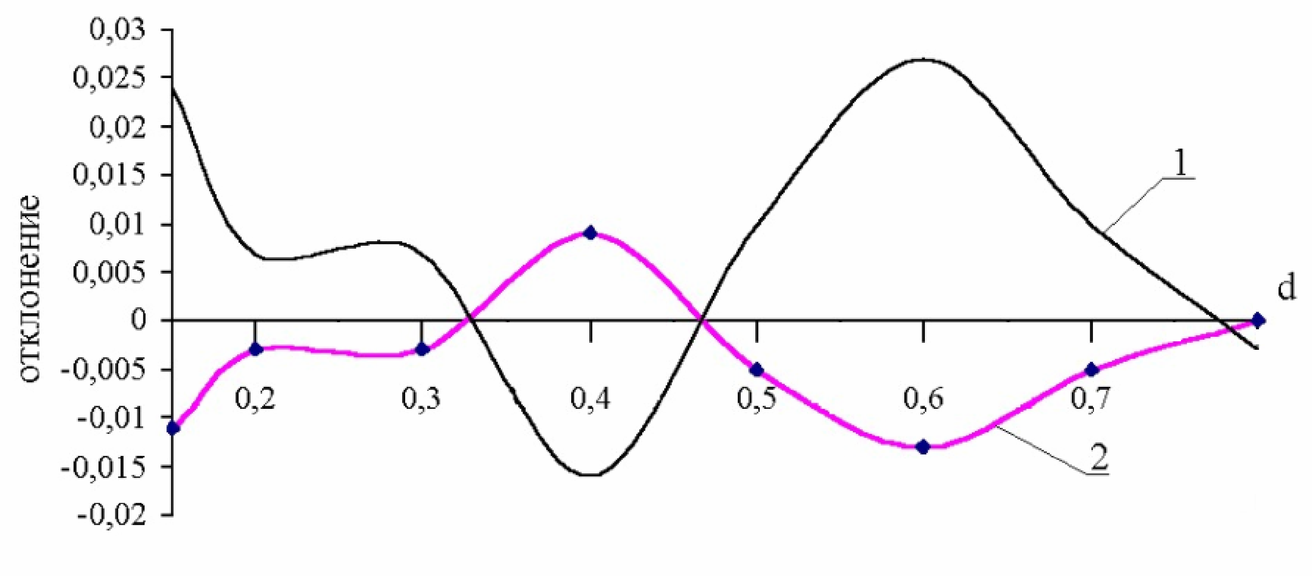

Рис. 3.5. Кривые отклонения восстановленных значений коэффициента k от полученных аналитически (1) и эмпирически (2)

Аналогично получены зависимости для коэффициента n.

Таким образом, величина отклонения восстановленных значений от данных наблюдений показывает, что линейная зависимость достаточно хорошо описывает изменения значений коэффициентов k и n от параметра q при фиксированном размере минеральной частицы, а с помощью полученных точечных оценок регрессионных коэффициентов можно восстановить коэффициенты k и n для значений q, отличных от наблюдаемых.

Выводы

1. По экспериментальным результатам и их статистической обработки получено уравнение регрессии, из которого следует, что наиболее значимыми факторами, влияющими на процесс осаждения буроугольного шлама, являются расход реагента, время осаждения и взаимосвязь плотности пульпы со временем осаждения; показана

тесная связь рассматриваемых факторов с функцией отклика: значение коэффициента множественной корреляции составляет 0,98, а величина коэффициента детерминации указывает, что 95% общей вариации функции отклика объясняется вариацией факторов.

2. Из результатов дисперсионного анализа следует, что уровень значимости, соответствующий значению критерия Фишера, очень высокий и составляет менее 1%, а это является следствием адекватности полученной регрессионной модели.

3. Рассчитанные параметры полученной регрессионной модели процесса осаждения буроугольного шлама в исследованном диапазоне изменения факторов могут быть использованы при разработке его технологического регламента.

4. Методами восстановленных эмпирических функций и сплайн–регрессией для буроугольного шлама и его узких классов крупности из уравнения кинетики получены коэффициенты, характеризующие вероятность и изменение осаждения в зависимости от условий процесса.

5. Метод восстановления сплайн–регресией позволил достаточно приблизить аналитические и эмпирические данные при определении значений коэффициентов k и n из уравнения кинетики осаждения буроугольного шлама при различном расходе полиакриламида.

6. Величина отклонения между восстановленными и эмпирическими значениями процесса осаждения буроугольного шлама от среднего размера частиц при расходе реагента ПАА 20, 40 и 60 г/т не превышает 0,05; такая точность является удовлетворительной.

7. Для интенсификации процесса осаждения буроугольного шлама рациональный расход ПАА составляет 40 г/т при концентрации твердой фазы 50 г/л. Аналогичные результаты получены и при использовании флокулянта KAT–FLOC 3840.