

QUY HOẠCH THỰC NGHIỆM TRONG CÔNG NGHỆ HÓA HỌC, CÔNG NGHỆ VẬT LIỆU VÀ CÔNG NGHỆ MÔI TRƯỜNG

Đến Tòa soạn 22-2-2001

NGUYỄN MINH TUYẾN¹, PHẠM VĂN THIÊM²

¹*Bộ môn Hóa học, Trường ĐHXD Hà Nội*

²*Khoa Công nghệ Hóa học, Trường Đại học Bách khoa Hà Nội*

SUMMARY

This article deals with the survey of certain problems of experimental optimisation in the material technology and the environment technology.

I - QUY HOẠCH THỰC NGHIỆM BƯỚC PHÁT TRIỂN CỦA KHOA HỌC THỰC NGHIỆM

Nhiều công trình nghiên cứu khoa học công nghệ thường đưa đến giải bài toán cực trị, tìm điều kiện tối ưu để tiến hành các quá trình, hoặc lựa chọn thành phần tối ưu để tiến hành các quá trình, hoặc lựa chọn thành phần tối ưu của hệ nhiều phần tử. Chẳng hạn, khi xem xét các quá trình công nghệ hóa học mới, nhiệm vụ nghiên cứu thường là thay đổi nhiệt độ, áp suất và tỷ lệ các chất phản ứng để tìm hiệu suất phản ứng cao nhất, tính toán, lựa chọn giá trị thích hợp nhất của các thông số cấu trúc và động học, nhằm đạt đến chất lượng làm việc và hiệu quả kinh tế cao nhất của quá trình. Thực tế có nhiều bài toán cực trị tương tự trong công nghệ vật liệu, công nghệ môi trường, khai thác mỏ... Những bài toán này thường được giải quyết ở các mức độ nghiên cứu các yếu tố có ảnh hưởng đến hệ, lập mô hình biểu diễn mối phụ thuộc giữa các phần tử của hệ, điều khiển hệ theo mục đích cho trước, hoặc đưa về trạng thái tối ưu theo những chỉ tiêu đánh giá đã chọn.

Có một số cách tiếp cận khác nhau khi giải các bài toán loại này. Theo quan điểm lý

thuyết, phải nghiên cứu một cách toàn diện cơ chế của quá trình, cũng như tính chất, đặc điểm tác động qua lại của các phần tử trong hệ trước khi lập mô hình giải tích. Từ các kết quả nghiên cứu này, có thể xây dựng lý thuyết của quá trình, nhờ đó giải được mọi bài toán cực trị.

Thông thường các hệ cần điều khiển và tối ưu hóa lại phức tạp đến mức không thể nghiên cứu lý thuyết trong khoảng thời gian hợp lý. Càng ngày chúng ta càng thâm nhập sâu vào nhiều lĩnh vực công nghệ và kỹ thuật khác nhau. Đối tượng nghiên cứu ngày càng đa dạng hơn, trở thành những hệ thống công kênh với tập hợp lớn các yếu tố ảnh hưởng và chỉ tiêu đánh giá. Mối liên quan giữa các thành phần trong hệ thống càng không thể mô tả một cách hoàn hảo bằng các hàm lý thuyết. Trong đa số trường hợp, bài toán cực trị được giải quyết bằng thực nghiệm.

Ngày nay chúng ta thường đề cập tới phương pháp kết hợp lý thuyết và thực nghiệm. Song điều đó không làm giảm bớt vai trò và vị trí của nghiên cứu thực nghiệm. Tùy theo mức độ hiểu biết về cơ chế của các quá trình. Ý nghĩa của nghiên cứu lý thuyết thường được giới hạn ở tác dụng định hướng ban đầu. Hỗ trợ giảm bớt khối lượng công việc, rút ngắn thời

gian cho nghiên cứu thực nghiệm. Trong khi đó thực nghiệm còn có tác dụng trở lại, bổ sung cho kết quả nghiên cứu lý thuyết, xác định rõ hơn cơ chế của hiện tượng.

Vai trò của thực nghiệm càng lớn trong khoa học công nghệ thì mục tiêu đề ra cho chúng càng cao. Chính thực nghiệm cũng có nhu cầu phát triển. Vì thế, nó đã trở thành đối tượng nghiên cứu, một ngành khoa học.

Đã có một thời gian dài, khi các phương pháp thí nghiệm tìm điều kiện để tối ưu các quá trình chưa được hình thức hóa. Các Nhà thực nghiệm chỉ dựa vào kinh nghiệm và trực giác để chọn hướng nghiên cứu. Các thí nghiệm được tiến hành bằng phương pháp cổ điển: lần lượt thay đổi từng thông số, trong khi giữ nguyên các yếu tố còn lại. Các phương pháp truyền thống này chỉ cho phép tìm kiếm các mối phụ thuộc giữa chỉ tiêu đánh giá và các yếu tố ảnh hưởng một cách riêng biệt khi làm thực nghiệm một cách riêng rẽ theo từng yếu tố. Khi các yếu tố ảnh hưởng tăng lên nhiều lần, khối lượng thí nghiệm bị tăng lên gấp nhiều lần. Mặc dù có trong tay một tập hợp các phương trình thực nghiệm đơn yếu tố, nhưng vì chúng chỉ là những trường hợp riêng nên không cho kết luận chặt chẽ về mức độ ảnh hưởng của từng yếu tố trong mỗi tác động qua lại giữa chúng, cũng không thể tìm kiếm phương án phối hợp tối ưu các yếu tố ảnh hưởng. Ngoài ra nhược điểm cơ bản của các phương pháp cổ điển là khi nghiên cứu không thấy được hướng chuyển dịch khi tìm các điều kiện tối ưu của quá trình. Vì vậy chúng được gọi là "thực nghiệm thụ động".

Cuối những năm 20, Fisher đưa ra cách thay đổi đồng thời một số (hoặc tất cả) các thông số thay cho phương pháp nêu trên, để nghiên cứu những hệ thống phức tạp khi các yếu tố riêng rẽ có ảnh hưởng mật thiết với nhau. Tuy nhiên cách bố trí các thí nghiệm như vậy chưa thể giải quyết được vấn đề đặt ra nếu không có những phương pháp xử lý số liệu mới. Đồng thời, nếu tiến hành thí nghiệm không đúng hoặc tùy tiện, thì dù áp dụng phương pháp xử lý số liệu nào cũng không thể cho kết quả mong muốn.

Rõ ràng cần phải xây dựng chiến lược tiến

hành thực nghiệm một cách chủ động (thực nghiệm chủ động) trên cơ sở phương pháp xử lý số liệu hiện đại.

Chiến lược tiến hành thực nghiệm một cách chủ động được Fisher đề xuất trong những năm 30 của thế kỷ trước để giải quyết các bài toán sinh học. Fisher xây dựng chiến lược này trên cơ sở xuất hiện một lĩnh vực mới trong thống kê toán học là phân tích phương sai do ông đặt nền móng. Giai đoạn đầu tiên của quy hoạch thực nghiệm được hình thành cùng với sự phát triển của phân tích phương sai, cho phép ước lượng vai trò của từng yếu tố ảnh hưởng trong tổng phương sai của hệ. Phương pháp quy hoạch thực nghiệm từ khi được đưa vào giải tích hồi quy đã mở ra những triển vọng rất mới mẻ. Sau chiến tranh thế giới thứ 2, quy hoạch thực nghiệm bắt đầu được ứng dụng sang các lĩnh vực hóa học, vật lý kỹ thuật, vật liệu và môi trường,... Giải tích hồi quy và giải tích phương sai dựa trên cơ sở quy hoạch thực nghiệm, có mối liên quan với nhau rất phức tạp, ngày càng khó phân biệt ranh giới giữa hai lĩnh vực này của thống kê toán học.

Giai đoạn phát triển thứ hai của quy hoạch thực nghiệm được đánh dấu bởi sự xuất hiện của quy hoạch thực nghiệm cực trị, dựa trên cơ sở lý thuyết thực nghiệm cực trị toán học phát triển trong những năm 1950. Đi tiên phong trong lĩnh vực này là Boks, Wilson, Hunter, Kiefer,... Lý thuyết thực nghiệm mới cho phép lựa chọn chiến lược nghiên cứu tối ưu trong điều kiện chưa hiểu biết quá trình một cách toàn diện. Đối tượng càng phức tạp, hiệu quả của phương pháp mới càng cao. Người nghiên cứu tìm được mô hình toán học của quá trình để giải bài toán cực trị theo quan điểm mới, đồng thời có thể sử dụng mô hình đó khi xem xét điều kiện quá trình.

Ở Việt Nam, quy hoạch thực nghiệm được bắt đầu ứng dụng từ những năm 70.

Có thể nói, lý thuyết quy hoạch thực nghiệm từ khi ra đời đã thu hút sự quan tâm và nhận được nhiều đóng góp hoàn thiện của nhiều nhà khoa học. Những ưu điểm rõ rệt của phương pháp này so với các thực nghiệm cổ điển là:

1) Giảm đáng kể số lượng thí nghiệm cần thiết. Giảm thời gian tiến hành thí nghiệm và chi phí phương tiện vật chất.

2) Hàm lượng thông tin nhiều hơn rõ rệt nhờ đánh giá được vai trò của tác động qua lại giữa các yếu tố và ảnh hưởng của chúng đến hàm mục tiêu. Nhận được mô hình toán học thống kê thực nghiệm, đánh giá được sai số bức tranh thí nghiệm theo các tiêu chuẩn thống kê cho phép xét ảnh hưởng của các thông số với mức độ tin cậy cần thiết.

3) Cho phép xác định được điều kiện tối ưu đa yếu tố của đối tượng nghiên cứu một cách khá chính xác bằng các công cụ toán học, thay cho cách giải gần đúng, tìm tối ưu cục bộ như ở các thực nghiệm thụ động.

Cho đến nay, trên cơ sở lý thuyết đã xây dựng, phương pháp quy hoạch thực nghiệm ngày càng được hoàn thiện. Theo quan điểm ứng dụng, người thực nghiệm muốn giảm bớt càng nhiều càng tốt khối lượng thí nghiệm, trong khi vẫn bảo đảm chất lượng của mô hình toán học của hệ theo những chuẩn tối ưu cần thiết. Ở đây không đơn thuần chỉ là hiệu quả kinh tế của phương pháp, mà ở một số trường hợp, yêu cầu này là điều kiện quyết định cho phép sử dụng một cách tin cậy vũ khí sắc bén đó. Đặc biệt, đối với những thực nghiệm mà khoảng thời gian tiến hành bị giới hạn nghiêm ngặt, nên kéo dài (vì phải làm nhiều thí nghiệm) điều kiện thực nghiệm bị thay đổi không kiểm tra được, nhiều từ các yếu tố không được nghiên cứu, không điều khiển được sẽ làm giảm độ tin cậy của số liệu, mô hình hồi quy mất đi khả năng làm việc. Đây chính là một trong những lý do khiến chiến lược bố trí thực nghiệm ngày càng phong phú. Các loại kế hoạch thực nghiệm ngày càng đa dạng. Nhờ đó, phương pháp quy hoạch thực nghiệm ngày càng được phổ cập rộng rãi trong nhiều lĩnh vực rất

khác nhau tương chừng không áp dụng nổi của khoa học và công nghệ.

II - XÁC LẬP CÁC MÔ TẢ THỐNG KÊ TRONG CÔNG NGHỆ HÓA HỌC, CÔNG NGHỆ VẬT LIỆU VÀ CÔNG NGHỆ MÔI TRƯỜNG

1. Xác định các yếu tố ảnh hưởng

Quá trình ở trong công nghệ hóa học, công nghệ vật liệu và công nghệ môi trường là quá trình hóa lý.

Số yếu tố độc lập tới đã ảnh hưởng lên quá trình hóa lý xác định theo công thức:

$$F = F_{dk} + F_H$$

Trong đó: F_{dk} - bậc tự do đối lưu; F_H - bậc tự do hình học. Tùy theo yêu cầu của người nghiên cứu ta chỉ cần chọn ra một số yếu tố ($k < F$) ảnh hưởng lên một hàm mục tiêu hay nhiều hàm mục tiêu y_q . Hàm mục tiêu có thể là các chỉ tiêu công nghệ: như động học, hiệu suất hoặc năng suất quá trình, độ bền vật liệu,... cũng có thể là chỉ tiêu kinh tế như giá thành sản phẩm, lợi nhuận thu được...

2. Xác định cấu trúc hệ thực hiện quá trình hóa lý

Hệ chỉ là một hộp đen không biết rõ bản chất bên trong mà chỉ có mối liên hệ bên ngoài giữa hàm mục tiêu và các yếu tố ảnh hưởng.

3. Xác định các hàm toán mô tả hệ

Hàm mô tả hệ là hàm nhiều biến $y = \varphi(x_1, x_2, \dots, x_k)$ được phân tích thành dãy Taylor tức hàm hồi quy lý thuyết (1).

Muốn xác định được các hệ số hồi quy lý thuyết β phải cần vô số thí nghiệm. Trong thực tế số thí nghiệm N là hữu hạn và vì vậy mô hình thống kê thực nghiệm có dạng (2).

$$y_q = \beta_o + \sum_{j=1}^k \beta_j x_j + \sum_{\substack{j,u=1 \\ j \neq u}}^k \beta_{ju} x_j x_u + \dots + \sum_{j=1}^k \beta_{jj} x_j^2 \quad (1)$$

$$\hat{y}_q = b_o + \sum_{j=1}^k b_j x_j + \sum_{\substack{j,u=1 \\ j \neq u}}^k b_{ju} x_j x_u + \dots + \sum_{j=1}^k b_{jj} x_j^2 \quad (2)$$

Các hệ số b là các tham số của mô tả thống kê.

4. Xác định các tham số mô tả thống kê được xác định từ N thực nghiệm nhờ các kế hoạch thực nghiệm theo phương pháp bình phương cực tiểu, nghĩa là

$$\Phi = \sum_{i=1}^N (y_i - \hat{y}_i)^2 \rightarrow \min \quad (3)$$

Muốn vậy thì:

$$\frac{\partial \Phi}{\partial b} = 0 \quad \text{với mọi hệ số } b \quad (4)$$

Sau khi tính được các hệ số b theo hệ phương trình (4) ta phải kiểm tra tính có nghĩa của chúng theo tiêu chuẩn Student:

$$t_b = \frac{|b|}{S_b} < t_{pf2} \quad (5)$$

Trong đó: t_{pf2} tiêu chuẩn Student tra bảng ở mức có nghĩa p và bậc tự do lặp f_2 ; S_b - độ lệch của phân bố b được xác định theo công thức:

$$S_b = \left(\frac{S_1^2}{N} \right)^{0.5} \quad (6)$$

Phương sai lặp được xác định theo công thức:

$$S_1^2 = \frac{1}{m-1} \sum_{a=1}^m (y_a^0 - \bar{y}_0)^2 \quad (7)$$

Trong đó:

m - số thực nghiệm lặp lại tâm

y_a^0 - giá trị của thực nghiệm lặp thứ a

\bar{y}_0 - giá trị trung bình cộng của các thực nghiệm lặp.

Sau khi loại bỏ các hệ số không có nghĩa nếu kế hoạch thực nghiệm không trực giao ta cần phải tính lại các hệ số có nghĩa cho đến khi tất cả các hệ số đều có nghĩa, rồi sau đó chuyển sang kiểm tra tính tương hợp của mô tả được ký hiệu là \hat{y} chỉ chứa các hệ số có nghĩa và các biến kèm theo nó.

5. Kiểm tra sự tương hợp của mô tả

Sự tương hợp của mô tả thống kê với bức

tranh thực nghiệm được kiểm chứng theo tiêu chuẩn Fisher nhờ điều kiện:

$$F = \frac{S_{du}^2}{S_1^2} \leq F_{pf2f1} \quad (8)$$

Trong đó: F_{pf2f1} - tiêu chuẩn Fisher tra bảng ở mức có nghĩa p, bậc tự do lặp $f_2=m-1$; bậc tự do dư $f_1=N-1$

1 - số hệ số có nghĩa trong mô tả thống kê

S_{du}^2 - phương sai dư; được tính theo công thức:

$$S_{du}^2 = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (y_i - \hat{y}_i)^2 \quad (9)$$

III - CÁC PHƯƠNG PHÁP KẾ HOẠCH HÓA THỰC NGHIỆM CHỦ YẾU

1. Kế hoạch bậc một hai mức tối ưu

Nếu không có thông tin tiên nghiệm cho biết hệ đang ở vùng dừng (vùng phi tuyến, vùng cực trị) thì để mô tả quá trình trong hệ ta nên dùng hàm tuyến tính và không có các số hạng bình phương. Để xác định các tham số của nó ta nên dùng kế hoạch bậc một hai mức tối ưu của Box-Wilson còn được gọi là kế hoạch 2^k (toàn phần), hoặc trong trường hợp cần tiết kiệm thời gian dùng kế hoạch bán phần 2^{k-1} .

Nếu không có gì lưu ý thì quan hệ phát sinh trong kế hoạch bán phần sẽ là tương tác cao nhất $\left(x_k = \prod_{i=1}^{k-1} x_i \right)$, nếu có sự lưu ý đặc biệt thì cần chọn theo lưu ý đó.

Các kế hoạch bậc một hai mức tối ưu có cả ba ưu điểm rất cơ bản sau:

- Kế hoạch trực giao, vì vậy tính toán rất đơn giản, các thông số đều tính độc lập với nhau, nên khi loại bỏ các hệ số không có nghĩa sẽ không phải tính lại các hệ số có nghĩa.

- Kế hoạch tối ưu D, nghĩa là định thức của ma trận thông tin của kế hoạch (X^*X) là cực đại, nên các thông số đều tính với độ chính xác cao nhất và theo cả N thực nghiệm.

- Kế hoạch có tính tâm xoay (rotatable), ở

tâm kế hoạch thông tin đặc nhất, càng xa tâm thông tin càng loãng, lượng thông tin tỷ lệ nghịch với bình phương bán kính; vì vậy chỉ cần làm thí nghiệm lặp lại tâm.

Ngoài ra nó còn có một ưu điểm nữa là nếu mô tả thống kê bậc một không tương hợp thì khi chuyển sang bậc 2 ta vẫn dùng được nó làm nhân kế hoạch bậc hai.

2. Kế hoạch bậc hai

Khi mô hình tuyến tính (bậc một) không tương hợp (điều kiện (8) không thỏa mãn) và độ cong có nghĩa tức là:

$$|b_0 - \bar{y}_0| \geq S_b \cdot t_{pf2} \quad (10)$$

thì chúng ta là vùng thực nghiệm đã ở vùng phi tuyến (vùng dừng) và ta phải dùng hàm phi tuyến (phải có các số hạng bình phương) để mô tả.

Để xác định các tham số của mô hình phi tuyến ta phải sử dụng các kế hoạch phi tuyến. Loại kế hoạch này chỉ có một trong ba ưu điểm cơ bản trên: hoặc trực giao, hoặc tâm xoay, hoặc tối ưu D.

Kế hoạch bậc hai trực giao của Box-Wilson được hình thành với nhân kế hoạch là kế hoạch 2^k hoặc 2^{k-1} có số thực nghiệm là:

$$\left. \begin{aligned} N &= 2^k + 2k + n_0 && \text{(khi nhân kế hoạch là } 2^k) \\ N &= 2^{k-1} + 2k + n_0 && \text{(khi nhân kế hoạch là } 2^{k-1}) \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Trong đó số thực nghiệm ở cánh tay đòn sao α là $2k$, số thực nghiệm ở tâm thường là $n_0 = 1$. Giá trị của cánh tay đòn sao xác định theo công thức:

$$\left. \begin{aligned} \alpha^4 + 2^k \alpha^2 - 2^{k-1} (k + 0,5n_0) &= 0 \\ \text{(khi nhân kế hoạch là } 2^k) \\ \alpha^4 + 2^{k-1} \alpha^2 - 2^{k-2} (k + 0,5n_0) &= 0 \\ \text{(khi nhân kế hoạch là } 2^{k-1}) \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

Ngoài ra muốn kế hoạch trực giao ta cần đưa các biến bình phương về các biến x_j' theo công thức:

$$x_j' = x_j^2 - \frac{\sum x_{ji}^2}{N} \quad (13)$$

Kế hoạch bậc hai tâm xoay của Box-Hunter cũng có số thực nghiệm xác định theo công thức (11) nhưng số thực nghiệm ở tâm lớn hơn 1 và phụ thuộc vào số biến và tính riêng phần của kế hoạch. Giá trị của cánh tay đòn sao xác định theo công thức:

$$\left. \begin{aligned} \alpha &= 2^{\frac{k}{4}} && \text{(khi nhân kế hoạch là } 2^k) \\ \alpha &= 2^{\frac{k-1}{4}} && \text{(khi nhân kế hoạch là } 2^{k-1}) \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Kế hoạch bậc hai tối ưu D của Kiefer ít được dùng trong công nghệ hóa học nói chung, công nghệ vật liệu và công nghệ môi trường nói riêng.

IV - XÁC ĐỊNH CÁC GIÁ TRỊ TỐI ƯU CỦA HÀM MỤC TIÊU

Các giá trị tối ưu của hàm mục tiêu được xác định nhờ các phương pháp tối ưu hóa thường dùng trong công nghệ hóa học, công nghệ vật liệu và công nghệ môi trường như phương pháp tìm cực trị cổ điển, phương pháp quy hoạch hình học, quy hoạch tuyến tính hoặc phi tuyến,...

V - KẾT LUẬN

Phương pháp kế hoạch hóa thực nghiệm là phương pháp thực nghiệm rất khoa học để tổ chức, xử lý các thực nghiệm và các số liệu thực nghiệm. Nó cho phép chúng ta làm một số lượng thí nghiệm ít nhưng lại đạt được độ tin cậy cao và đưa ra được các kết quả tối ưu nhất.

Nếu không có thông tin tiên nghiệm đầy đủ nên dùng mô hình tuyến tính và sử dụng kế hoạch bậc một hai mức tối ưu để xác định các thông số. Khi ở vùng dừng nên dùng kế hoạch bậc hai trực giao của Box-Wilson (khi $k < 5$) hoặc kế hoạch bậc hai tâm xoay của Box-Hunter để xác định các tham số của mô hình.

Công trình được sự hỗ trợ của Chương trình khoa học tự nhiên.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Nguyễn Minh Tuyền, Phạm Văn Thiêm.

- Kỹ thuật hệ thống công nghệ hóa học, tập I, NXB Khoa học và kỹ thuật, Hà Nội (2001).
2. Nguyễn Minh Tuyển, Phạm Văn Thiêm. Kỹ thuật hệ thống công nghệ hóa học, tập II, NXB Khoa học và kỹ thuật, Hà Nội (2001).
 3. Kafarov. Các phương pháp điều khiển học trong hóa học và công nghệ hóa học, NXB hóa học, Moskva (1985) (tiếng Nga).
 4. Bondar. Kế hoạch hóa thực nghiệm trong công nghệ hóa học, NXB Đại học Kiev (1976) (tiếng Nga).
 5. Akhnazarova, Kafarov; Tối ưu hóa thực nghiệm trong hóa học và công nghệ hóa học, NXB Hóa học, Moskva (1978) (tiếng Nga).