

Светлой памяти  
Ф.С.Новика

## **Математические методы планирования эксперимента в химико-термической обработке.**

Протасевич Г.Ф.

Белорусский национальный технический университет  
Минск, Беларусь

«В середине XX-го столетия научно-техническая революция охватила все сферы человеческой деятельности и отразилась на методах с средствах, которые использовались в исследовательской работе. Начали применяться все более точные и объективные методы исследования, расширились контакты между специалистами разных предметных областей. Подобные контакты могли осуществляться только при использовании математического языка, обладающего высокой степенью общности и универсальности для различных отраслей знаний» [1]\*.

Во всем мире была создана практическая полезность математических методов исследования. В частности при оптимизации технологических процессов в металлургической, химической и иных отраслях промышленности применение методов математического планирования экспериментов (МПЭ) позволило повысить выход продукта, обычно на 30-300%» [2]. В 2001 г. совпали три юбилейные даты: 70-летие журнала «Заводская лаборатория», 40-летие создания секции и раздела «Математические методы исследования» в журнале и 40-летие применения методов планирования эксперимента в России (СССР)» [1].

Вспоминая историю появления МПЭ в Минске, надо указать, что в 1967-68 уч. году на факультете повышения квалификации для преподавателей металлургических специальностей вузов СССР при «Московском институте сталей и сплавов» в качестве одной из дисциплины фигурировало МПЭ, лекции по которой читал Ю.П. Адлер, а семинары вел Ф.С. Новик. Благодаря их увлеченности и умению

увлекать слушателей, вскоре в Минске зародился центр по практическому использованию методов МПЭ в химико-термической обработке (ХТО) металлов и сплавов, который возглавил профессор Л.Г. Ворошнин, во время оценивший этот новый подход к решению металлургических задач в области ХТО.

Зарождение этого центра применения МПЭ в специфической области металлургических задач может быть и не произошло бы (или произошло гораздо позже), если бы не талант Ф.С. Новика увлекать окружающих теми идеями, которыми он был сам увлечен в избытке.

Трудности внедрения МПЭ в практику, идеи которого зародились еще в первой трети XX-столетия, и столь «долго» шли до рядового инженера-исследователя, возможно в значительной мере определялись тем, что «универсальный» язык математики не всегда понятен практическому инженеру.

Этому инженеру хотя и читают в техническом вузе 4-5-ти семестров, курс математики, но к сожалению, как показывает опыт, весьма оторвано от решаемых практических инженерных задач. Это объяснимо, ибо математик, получивший университетское образование, редко, да и вряд ли может оценить то многообразие и специфичность инженерных задач, которые возникают в различных областях техники. В результате возникает ситуация, когда один знает, что делать, другой, как сделать, но разговаривают они на разных языках, а не на «универсальном». Симптоматично в этом плане рассуждение авторов уже упоминавшийся статьи в юбилейном номере «Заводской лаборатории» [3]. «Например, широко распространена вера в то, что статистические данные часто подчиняются нормальному распределению. Математики думают, что это экспериментальный факт, установленный в прикладных исследованиях. Прикладники же уверены, что математики доказали нормальность результатов наблюдений. Между тем анализ конкретных результатов наблюдений в частности погрешностей измерений приводит всегда к одному и тому же выводу - в подавляющем большинстве случаев реальные распределения существенно отличаются от нормальных». [2].

Кафедре «Металловедение» в Белорусском политехническом институте (БПИ) в этом плане повезло, благодаря тому, что сразу приобрели прекрасного консультанта - Ф.С. Новика - опытного инженера-металлурга и весьма грамотного математика. Как следствие уже в 1970г. была опубликована работа [4], выполненная уже в 1968г. автором этой статьи, при консультации Ф.С. Новика, в качестве выпускной на факультете повышения квалификации при МИ-СИСе и посвященная оптимизации процесса жидкостного силицирования.

Прежде, чем перейти к собственно обзору использования методов МПЭ в ХТО, остановимся на их преимуществах перед традиционным методом пассивного эксперимента. «До появления математической теории эксперимента поиск проводился под девизом «Изменяй только один фактор, все прочие держи постоянными». Для новой концепции характерны следующие особенности.

---

\*Автор позволил себе (здесь и далее) некоторые сокращения в цитируемых первоисточниках, надеясь, что это не пойдет в ущерб сути изложенного.

1. Принцип многофактности - с ростом размерности факторного пространства увеличивается радиус обследуемой сферы, а также расчет точность оценок эффектов благодаря усреднению по всему ансамблю наблюдений.

2. Требование количественной оценки всех исследуемых эффектов приводит к построению математических моделей.

3. Концепция рандомизации обеспечивает беспристрастность. Способствует исключению влияния неучтенных факторов.

4. Последовательное экспериментирование приводит к стратегии шагового эксперимента, позволяет композиционно дорабатывать планы или последовательно добавлять новые факторы и их уровни, осуществлять шаговый принцип поиска.

5. Теория оптимальности планов предоставляет в распоряжение экспериментатора целый набор критериев, характеризующих хорошие свойства моделей: некоррелированность оценок эффектов, равенство их дисперсий, одинаковую точность предсказания отклика и т.д.

6. Проверка статистических гипотез позволяет формализовать процесс принятия решений.

7. Использование априорных сведений дает возможность, четко поставить задачу, выбрать факторы, отклик, модель и т.д.

Математическая теория эксперимента, по определению В.В. Налимова, объединяет ряд методов: обработку априорных сведений, планирование эксперимента, проверку гипотез, обработку экспериментальных данных, моделирование на ЭВМ» [1].

Типичные составы сред для ХТО описываются следующей обобщенной формулой:

Базовое (поставщик насыщающего элемента) вещество: +восстановитель:+ активатор.

Каждая из перечисленных составляющих может быть сложной по составу, особенно в случае получения многокомпонентных покрытий. Поэтому налицо многофакторные задачи, тем более, учитывая, что к перечисленным вещественным факторам надо добавить температурно-временные. Таким образом на 1-ом этапе мы имеем дело с типично экспериментальными задачами; на 2-ом - при исследовании области вокруг экстремума - с задачами описания, с последующим анализом результатов и поиском компромиссного решения. Такой ход решения задачи ХТО подчиняется вышеописанной логике. Но логика решения может быть с иной - вначале описание некоторой области факторного пространства, затем поиск оптимума по какой-либо характеристике диффузионного слоя (скорости образования слоя, рабочим характеристикам - твердости, износостойкости и т.д.) и на заключительном этапе -вновь задача описания области экстремума для поиска, например, наиболее технологичного состава насыщающей среды.

Описанное выше привело к тому, что первая серия задач ХТО, решенных на кафедре «Металловедение» БПИ с применением МПЭ, была целиком посвящена одному методу - методу Бокса-Уилсона. Суть, данного метода, как известно, заключается в том, что сначала изучается некоторая область факторного пространства вокруг исходной (центральной) точки эксперимента, а затем по полученной математической модели производят крутое восхождение к

области оптимума какой-то характеристики получаемого диффузионного слоя.

Вскоре метод Бокса-Уилсона стал настолько традиционен для задач ХТО, решаемых на кафедре «Металловедение», которые выполнялись сотрудниками, аспирантами, дипломниками, что счет им быстро перевалил за сотню.

При использовании метода были проверены некоторые рекомендации теоретиков МПЭ по выходу из критических ситуаций, которые иногда возникают при решении практических инженерных задач. Так, например, в работе [5] неадекватные модели, полученные на 1-ом этапе при использовании дробной реплики большой дробности  $2^{7-4}$  для разработки технологии диффузионного титанирования инструментальных сталей, были трансформированы в адекватные.

Для этого был использован, рекомендованный в работе [6], метод «перевала» исходной дробной реплики, или иначе ее зеркальное отражение, что позволило реализовать идею о взаимном гашении парных взаимодействий факторов, привело на 2-ом этапе к получению адекватных моделей, вполне прилично описывающих процесс титанирования (состав насыщающей среды, температурно-временной режим) нескольких марок инструментальных сталей для повышения их износостойкости.

С целью проверки работы взаимодействий факторов в задачах ХТО, в дипломной работе Г.А. Миронович, выполненной под руководством автора, была решена задача по оптимизации процесса жидкостного борирования углеродистой стали с использованием полного факторного эксперимента [7]. Был использован план ПФЭ  $2^5$ . В основном предсказания теоретиков МПЭ об уменьшении роли взаимодействий факторов исследования при повышении их порядка были подтверждены. Хотя и наблюдались отдельные значительные отклонения в величине коэффициентов регрессии одного порядка, но в целом при повышении их степени абсолютные средние значения коэффициентов регрессии снижались.

Вскоре рамки метода Бокса-Уилсона оказались узки для решения некоторых специфических задач ХТО.

Это было связано с началом интенсивной разработки в семидесятых годах прошлого столетия многокомпонентных диффузионных покрытий. Решение задач ХТО этого класса традиционным путем «поиск исходного состава насыщающей среды - разработка технологии нанесения покрытия - исследование состава и структуры диффузионных покрытий - исследование свойств покрытий - оптимизация технологии, состава и структуры полученных покрытий» весьма трудоемко и малоэффективно даже для двух - трехкомпонентных процессов ХТО, хотя бы и с использованием метода Бокса-Уилсона. Да и ожидать, что разработанная технология действительно обеспечивает получение оптимального по составу и структуре покрытия по меньшей мере наивно, так как такие задачи наверняка имеют ряд решений (максимумов). Поэтому целесообразно подобные задачи решать по принципу «черного ящика», то есть после разработки базового состава насыщающей среды сразу строить диаграмму «Состав среды - свойство диффузионного покрытия», а уж затем исследовать структуру диффузионных покрытий. Для трехкомпонентных покрытий Ф.С. Новик предложил использовать разработанный Шеффе и опубликованный в 1958г. метод симплексных решеток [8]. «Суть этого метода заключается в том, что при изучении физико-химических диаграмм «Состав-свойство», используется то обстоятельство, что состав многокомпонентной системы дается точкой в правильном симплексе» [9].

«При планировании эксперимента на диаграммах «Состав-свойство» задачи формулируются обычно как задачи описания, т.е. целью исследования является получение некоторых математических уравнений (моделей) зависимости свойств сплавов (покрытий) от концентрации исходных компонентов (насыщающих элементов)» [10]. Предложение Ф.С. Новика было реализовано в целом ряде кандидатских диссертаций, выполненных на кафедре «Металловедение» БПИ под руководством профессоров Л.Г. Ворошнина и Л.С. Ляховича, а затем и в дипломных работах. Эти задачи ХТО для трехкомпонентных диффузионных покрытий базировались на порошковых насыщающих средах и преследовали цель получения износо-, жаро-, коррозионностойких, кавитационностойких и т.д., покрытий и были успешно решены. Многие из этих работ были

позже опубликованы в справочнике [11]. Используемые при этом планы (решетки) Шеффе хороши тем, что:

- процедура расчета моделей чрезвычайно проста и в результате легко могут быть разработаны программы для расчетов на ЭВМ, что и было реализовано;

- в случае неудачи при использовании планов (симплексных решеток) низкого порядка в решаемой задаче они легко могут быть дополнены рядом новых экспериментальных точек и трансформированы в решетки (модели) более высокой степени без потери предшествующей информации. Существенным недостатком, на наш взгляд, первых предложенных планов являлось то, что количество экспериментальных точек внутри симплексной решетки мало, хотя Ю.М. Должанский [12] в своей оригинальной статье весьма тепло относится именно к точкам в вершинах и на ребрах симплекса. Естественно, что если разрабатывается многокомпонентное покрытие, то интерес представляют именно внутренние точки симплекса, а их количество существенно мало в общем количестве экспериментальных точек. Так в трехкомпонентных системах в решетках Шеффе для получения моделей разного порядка это соотношение следующее:

- третьего порядка - 10:1,
- четвертого порядка - 15:3,
- пятого порядка - 21:6,
- шестого порядка - 28:10.

Выход из этой ситуации представляется возможным и красивым, если воспользоваться рекомендациями Ю.М. Должанского [12] об использовании так называемых неполных решеток Шеффе, в которых указанные соотношения изменяются в пользу внутренних точек симплекса соответственно: 7:1, 9:3, 12:6, 16:10.

При решении задач ХТО по поиску оптимальных многокомпонентных покрытий в некоторых случаях проблема выбора исходных компонентов достаточно очевидна. Так, например, этот выбор может быть изначально запрограммирован в разработке износостойких покрытий для высокоуглеродистых сталей путем подбора элементов, карбиды которых образуют между собой системы твердых растворов, например, TiC-TaC-WC, обеспечивающих повышенную

износостойкость. Практический опыт кафедры «Металловедение» БПИ (ныне БНТУ - Белорусский национальный технический университет) показал эффективность такого подхода при применении симплексных решеток Шеффе. Но в ряде случаев даже этот красивый метод оказался бессилён, например, при разработке коррозионно-стойких покрытий.

В диссертационной работе Н.Г. Девойно [13], посвященной поиску таких покрытий был решен ряд задач по поиску «оптимальных» одно- и двухкомпонентных покрытий для группы сталей с применением метода Бокса-Уилсона. При переходе на более высокий уровень - поиск составов многокомпонентных покрытий с числом компонентов 4 и более стало очевидно, что надо искать новый подход. Выход был предложен Ф.С. Новиком, который посоветовал использовать описанные в работе Е.В. Марковой и А.Н. Лисенкова методы, основанные на идеях комбинаторной математики [14].

Была поставлена задача по отысканию оптимального сочетания элементов покрытия при поверхностном легировании стали У8 с целью получения ее максимальной коррозионной стойкости в 10% растворе азотной кислоты. В качестве независимых переменных выбраны:

$X_1$	количество вводимого в насыщающую смесь	Cr
$X_2$	— " —	Ni
A	— " —	Ti
B	— " —	Si
C	— " —	B
D	— " —	Al
E	— " —	Cu

Таким образом базовыми элементами являлись хром и никель, и их количество варьировали на 5-ти уровнях, остальные элементы были дополнительными и их добавляли в шихту в одинаковых количествах - 10%. План эксперимента, представляющей собой латинский квадрат 5x5, представлен ниже:



Таблица

## Составы насыщающих сред

Массовая доля никеля, %	Массовая доля хрома, %				
	10	15	20	25	30
10	АВСД	АВСЕ	АВДЕ	ВСДЕ	АСДЕ
15	АВСЕ	АВДЕ	ВСДЕ	АСДЕ	АВСД
20	АВДЕ	ВСДЕ	АСДЕ	АВСД	АВСЕ
25	ВСДЕ	АСДЕ	АВСД	АВСЕ	АВДЕ
30	АСДЕ	АВСД	АВСЕ	АВДЕ	ВСДЕ

Этот план содержит всего 25 опытов, но полученные с его помощью результаты позволяют оценить эффекты влияния хрома и никеля и всех остальных добавок по 4, 3, 2 и 1 и, как следствие, был установлен для данной задачи следующий ряд перспективных элементов и их сочетаний в порядке уменьшения влияния: алюминий, алюминий-медь, кремний-алюминий, кремний-алюминий-медь, бор-алюминий, бор-алюминий-медь, кремний-бор-алюминий, титан, т.е. сталь У8 следует насыщать прежде всего хромом, никелем и алюминием; далее - смотри приведенный ряд. К сожалению этот подход к решению задач ХТО, не получил дальнейшего продолжения.

Среди задач ХТО встречается сравнительно редкий класс задач по разработке декоративных диффузионных покрытий. Специфика таких задач заключается в том, что весьма трудно оценить качество полученного покрытия количественными методами. Но существует оригинальный метод МПЭ, позволяющий производить оценку параметра оптимизации по принципу «лучше-хуже», т.е. количественно. Этот метод носит название последовательного симплекс-планирования [15]. Попытка использования этого метода была предпринята автором в одной из дипломных работ, выполненных под его руководством. Задачу решали при использовании процесса жидкостного силицирования, процесса вообще то не предназначенного для получения декоративных диффузионных покрытий. Была выбрана двухфакторная задача (температура и время процесса), которая позволяла использовать симплекс в виде равностороннего треугольника, что было удобно при поиске новых экспериментальных точек.

В этом случае поиск отраженной (новой) экспериментальной точки может быть сделан чисто геометрически и задача (для начинающего исследователя) становится весьма наглядной, так как вся последовательность решения представляется на простом чертеже в системе двух координат « $X_1$ - $X_2$ ». Задача была решена за 16 опытов и получено серебристое блестящее покрытие, что вообще-то нетипично для силицированных покрытий. Указанная работа не была опубликована и возможно является единственной в области ХТО, но, на наш взгляд, этот метод заслуживает внимания для решения данного класса задач.

Одним из «узких» вопросов ХТО является поиск компонентов составов для получения конкретных видов покрытий, особенно на стадии начальной разработки процесса. Для примера укажем, что в проведенном Л.Г. Ворошниним и автором анализа изобретательской работы в области ХТО за период 1956-1983 [16] среди 1125 а.с. фигурирует 165 изобретений, посвященных борированию. При этом в качестве поставщиков бора предлагается использовать 9 веществ, в качестве активаторов - свыше 20-ти. Выбор того или иного активатора авторами изобретений обычно никак не аргументируется или аргументируется зачастую примерно так, как о таком «выборе» говорилось в знаменитой книге «Физики шутят» - «другого у нас просто не было». Поэтому возникает проблема отсеивания малозначащих факторов, которую можно решать с помощью мало используемых, вообще, и в ХТО в частности, методов МПЭ. Нами была сделана попытка применить для этой цели метод «случайного» баланса [9]. Для этого из рекомендуемых активаторов выбрано 11, наиболее часто используемых для процесса борирования и поставлен отсеивающий эксперимент. Работа была выполнена на углеродистых сталях, а в качестве параметров оптимизации использовали несколько структурных характеристик боридного слоя, фиксируя их толщину. Для решения задачи использовали насыщенный линейный план, включающий 16 опытов. Оценку влияния отдельных активаторов проводили по нескольким параметрам оптимизации - скорости формирования отдельных структурных зон боридного слоя.

Суммарный анализ результатов позволил выявить 4-5 наиболее перспективных активаторов для борирования в порошковых средах. Как и предыдущая работа она не была опубликована, но дала толчок к разработке нескольких новых борлирующих сред.

Автор надеется, что указанная статья немного дополнит работы [1, 2, 17], опубликованные в связи с вышеуказанными юбилейными событиями.

#### Литература

1. Е.В. Маркова, Е.П. Никитина. Математическая теория эксперимента: история, развитие, будущее. -Заводская лаборатория. №1, 2002, т. 68.
2. В.Г. Горский, А.И. Орлов. Математические методы исследования: итоги и перспективы. - ЗЛ. - Т1, 2002, том 68.
3. Заводская лаборатория. №1, 2002, т.68.
4. Ф.С. Новик. Л.Г. Ворошнин, Г.Ф. Протасевич. Применение математических методов планирования экспериментов при решении задач химико-термической обработки. Сб. «Металлургия», серия «Металловедение и термическая обработка металлов», в.1, Минск, 1970.
5. Протасевич В.Ф., Исследование закономерностей формирования и свойств диффузионных титанированных слоев на сталях. Канд. дисс. БПИ, Минск, 1981.
6. Ф.С. Новик. Metallovedenie cvetnykh, redkikh i radioaktivnykh metallorv. Razd. Matematicheskie metody planirovaniya eksperimentorv v metallovedenii. - M., MiSiC, 1976.
7. Г.Ф. Протасевич, Г.А. Миронович. Применение полного факторного эксперимента для описания и оптимизации процессов ХТО. Сб. защитные покрытия на металлах. Киев, 1986.
8. Scheffe H. J. of Royal Statistical Society, 1958, Series B, v.20, №2, p. 344.
9. Адлер Ю.П. Введение в планирование эксперимента. - М., Metallургия, 1968.
10. Ю.М. Должанский, Ф.С. Новик, Т.А. Чемлева. Планирование эксперимента при исследовании и оптимизации свойств сплавов. М., ОНТИЭ, 1974.

11. Химико-термическая обработка металлов и сплавов. Справочник. Под ред. Л.С. Ляховича. М., Metallurgy, 1981.
12. Ю.М. Должанский. Об одном подходе к обобщенному представлению множества планов эксперимента на симплексе. - Заводская лаборатория. №7, 2002, том 68.
13. Н.Г. Девойно. Оптимизация процессов получения коррозионно-стойких диффузионных покрытий. - Канд. дисс, БПИ, Минск, 1973.
14. Е.В. Маркова, А.Н. Лисенков. Планирование эксперимента в условиях неоднородностей. - М., Наука, 1973.
15. В.Г. Горский, Ю.П. Адлер. Планирование промышленных экспериментов. - М., Metallurgy, 1974.
16. Л.Г. Ворошнин, Г.Ф. Протасевич. Изобретательская работа в области химико-термической обработки металлов. М., МИТОМ, №5, 1988.
17. В.Г. Горский. Инженерно-химическая наука для передовых технологий. -Сб. Международная школа повышения квалификации. - Казань, 1997.