

Doktori (PhD) értekezés tézisei

Ipari MDI gyártás modellalapú elemzése és optimalizálása

Horváth Gergely

Pannon Egyetem
Vegyésmérnöki és Anyagtudományok
Doktori Iskola

Témavezetők:
Dr. Varga Tamás†
Dr. Kummer Alex



Folyamatmérnöki Intézeti Tanszék
Veszprém
2026.

1 Bevezetés és célok

A metiléndifenil-diizocianát (MDI) előállítása a poliuretánkémia meghatározó folyamata, mely egyre nagyobb ipari jelentőséggel bír a széleskörű alkalmazhatósága és a magas minőségű polimerek iránti növekvő igény miatt. Az MDI szintézise azonban összetett, többlépcsős folyamat, amelyet bonyolult reakcióhálózatok, érzékeny működési paraméterek és környezeti kihívások jellemeznek. A disszertáció célja az ipari MDI-gyártás komplex, modellalapú és adatvezérelt elemzése, különös tekintettel a fő intermedier, a metiléndianilin (MDA) szintézisére és viselkedésére. A kutatás kiterjed mind a kinetikai modellezésre, mind a gépi tanulási technikák alkalmazására a folyamatok megértése, előrejelzése és optimalizálása érdekében. Egy részletes kinetikai modellt dolgoztam ki az MDA képződésének leírására, amely az anilin és a formaldehid savas közegben történő reakcióján alapul. A modell kiterjesztett reakcióhálózatot tartalmaz, és lehetővé teszi a folyamat paraméterérzékenység vizsgálatát, betekintést nyújtva a molarányok, tartózkodási idők és hőmérsékleti profilok termékeloszlásra, gyűrűképződésre és izomerarányokra gyakorolt hatásába. A modell paramétereit laboratóriumi méretű kísérletek és szakirodalmi adatok segítségével identifikáltuk és validáltuk, ami igazolja annak megbízhatóságát és alkalmazhatóságát változó folyamatkörülmények között is. Ezzel párhuzamosan különböző soft szenzor modellek kerültek fejlesztésre az MDI keverékek színének, mint komplex minőségi paraméternek a becslésére. A modellek különböző gépi tanulási algoritmusokat alkalmaznak, többek között lineáris regressziót, döntési fákat, neurális hálókat, Support Vector Machine és Gauss-folyamat alapú regressziót. A legfontosabb változók azonosításához változóselektációs módszereket – például Minimális Redundancia, Maximális Relevancia algoritmust (MRMR), F-teszt módszert, ReliefF algoritmust, Korrelációalapú és Aggregált technikákat – alkalmaztam, holtidő-analízissel és Bayes-féle

optimalizációval pedig a modellek pontosságát javítottam. A modellek közül a Gauss-folyamat regresszió kiváló predikciós teljesítményt mutatott, az optimális működési paraméterek pedig a modell Genetikai Algoritmussal való kombinálásával kerültek meghatározásra. A modellezési megközelítések kombinációja lehetővé tette az optimális működési feltételek meghatározását, a melléktermékek csökkentését és ipari szinten is értelmezhető, magyarázható modellek kidolgozását. Az eredmények hozzájárulnak a fenntartható, hatékony és intelligens MDI-gyártási technológiák fejlődéséhez.

2 Tézisek

Tézis #1. A szakirodalomban elérhető, metiléndianilin szintézisére vonatkozó meglévő modellek reakciórendszerét további komponensek és reakcióútvonalak bevonásával kibővítettem, aminek eredményeként a modell pontossága javult, és az információvesztés csökkent.

- Három további komponens – N-metilbenzol, anilin és formaldehid – bevonásával kiterjesztett reakcióhálózatot hoztam létre, amely lehetővé tette az anilin/formaldehid molarány, mint ipari termelési paraméter kinetikai modellen belüli alkalmazását.
- Az N-metilbenzol beépítése, valamint a kiterjesztett reakcióhálózat lehetővé tette a páratlan számú aromás gyűrűt tartalmazó molekulák képződésének pontos leírását, ezáltal feloldva a korábbi modellek azon korlátját, hogy kizárólag páros gyűrűszámú szerkezeteket tudtak kezelni.
- Igazoltam, hogy az új reakcióútvonalakat és komponenseket tartalmazó, kiterjesztett reakcióhálózat pontosabban írja le a metiléndianilin szintézisének folyamatát, amit mind a koncentráció-idő profilokkal, mind a kulcsfontosságú teljesítménymutatókkal való javuló illeszkedés támaszt alá.

Kapcsolódó publikáció: 1, 4

Tézis #2. Igazoltam, hogy a gépi tanulási modellek hatékonyan támogatják a metiléndianilin szintézisének laboratóriumi léptékű változóinak megértését, célul tűzve ki a technológiai paraméterek metiléndianilin-minőségre gyakorolt hatásának vizsgálatát, valamint a nagyüzemi ipari termelés támogatását.

- A Shapley-értékek alkalmazásával meghatároztam a kulcsfontosságú szintézis paramétereket és azok hatását valamennyi metiléndianilin minőségi paraméter esetén. Kimutattam, hogy a HCl/anilin, illetve a víz/anilin mólarány emelése növeli a melléktermékek és a P–P izomer képződését, míg a magasabb anilin/formaldehid mólarány jelentős mértékben csökkenti azok mennyiségét. A kétgyűrűs komponensek aránya és az O–P izomer tartalom növelhető magasabb anilin/formaldehid mólarány, valamint rövidebb kondenzációs reakcióidő és alacsonyabb hőmérséklet alkalmazásával; e paraméterek ellentétes irányú módosítása ugyanakkor a polimer jellegű termékek mennyiségének növekedéséhez vezet.
- Egy új, háromszintű hierarchikus módszert dolgoztam ki és alkalmaztam a kiugró adatok, vagyis outlierok azonosítására, amely a laboratóriumi mérések potenciálisan hibás adatpontjainak hatékony és célzott azonosítását teszi lehetővé

Kapcsolódó publikáció: 2, 5, 6

Tézis #3. A javasolt beavatkozási stratégiák alkalmazásával igazoltam, hogy a soft-szenzor modellek magyarázható módon, valós ipari adatok alapján hatékonyan alkalmazhatók a metiléndifenil-diizocianát színének predikciójára. A vizsgálatok feltárták a rendszer nemlineáris viselkedését, valamint azonosítottam az ipari metiléndifenil-diizocianát-gyártó üzem optimális üzemeltetési paramétereit.

- Az ipari termelési környezet keretein belül három kritikus beavatkozási stratégiát javasoltam a mellékreakciók csökkentésére: a karbamid jellegű vegyületek képződésének elkerülését, a kloroformamidin-N-karbonil-klorid vegyületek képződésének korlátozását, valamint ezen kloroformamidin-N-karbonil-klorid vegyületek dikloridokká történő bomlásának megelőzését.
- Bizonyítottam, hogy a gépi tanulási modellek pontossága javítható az egyes ipari üzemeltetési paraméterekhez rendelt időbeli késleltetések, holtidők bevezetésével, amelyeket a bemeneti és kimeneti adatok közötti korrelációelemzés segítségével határoztam meg.
- A rendszer erős nemlinearitását és komplexitását az egyes jellemzők közötti kapcsolatok részleges függőségi diagramokon történő vizualizálásával igazoltam. Az eredményekkel bizonyítottam, hogy minden egyes paraméter lokális optimumokkal rendelkezik a többi vizsgált üzemeltetési paraméter értékeitől függően, továbbá a paraméterek egymással erősen keresztkorrelálnak.
- Az ipari rendszer számára egy magyarázható és optimális üzemeltetési paraméterhalmazt azonosítottam, amely a korábban vizsgált tartományt meghaladó, normalizált értéken megközelítőleg 1,06-os metiléndifenil-diizocianát színérték elérését tette lehetővé

Kapcsolódó publikáció: 3, 7, 8

3 Összefoglaló

A disszertáció a metiléndifenil-diizocianát (MDI) ipari gyártásának átfogó, modellalapú és adatvezérelt vizsgálatát mutatja be, különös hangsúlyt fektetve a metiléndianilin (MDA) szintézisére és mechanisztikus megértésére, mint az MDI elsődleges prekursorára. A kinetikai modellezés, a gépi tanulási módszerek és az optimalizációs technikák integrálásával olyan kinetikán alapuló és adatvezérelt megközelítések kerültek kidolgozásra, amelyek hozzájárulnak az MDI gyártási folyamatainak jobb előrejelezhetőségéhez, hatékonyságához és szabályozhatóságához.

Az MDA szintézisének komplex reakcióhálózatát leíró részletes kinetikai modell készült, amely figyelembe veszi a kritikus köztitermékeket, így az orto- és para-aminobenzililineket (ABAKat), valamint azok MDA-izomerekké történő átalakulását. A modell kiterjesztett reakcióútvonalakat foglal magában, és validálása laboratóriumi léptékű kísérletek, valamint a szakirodalomban rendelkezésre álló adatok felhasználásával történt.

A gépi tanulási modellek alkalmazása érzékenységvizsgálatok révén igazolta, hogy a szintézisparaméterek – beleértve a molarányokat, tartózkodási időket és hőmérsékleti profilokat – jelentős hatással vannak mind az izomeroszlásra, mind a gyűrűszerkezet alakulására. Ezen eredmények lehetővé teszik azon üzemeltetési feltételek pontos azonosítását, amelyek elősegítik az értékes izomerek, például a 4,4'-MDA képződését, valamint a melléktermékek mennyiségének szabályozását, ezáltal javítva a későbbi MDI-termékek minőségét.

A hagyományos modellezési megközelítések korlátainak kezelése érdekében – különösen az olyan paraméterek esetében, mint az MDI-termék színe – fejlett gépi tanulási algoritmusokra épülő szoft-szenzor modellek kerültek kidolgozásra. Az alkalmazott módszerek között szerepelt a lineáris regresszió, a regressziós fák, a neurális hálózatok, a Support Vector Machine (SVM) modell, valamint a Gauss-folyamat regresszió (GPR). A legerősebb hatású folyamat paraméterek azonosítása érdekében MRMR, ReliefF, F-teszt, korreláció alapú és aggregált jellemző kiválasztási módszerek

kerültek alkalmazásra, holtidők hozzáadásával és alkalmazásával kombinálva. A GPR bizonyult a legpontosabb és leginkább értelmezhető modellezési technikának, amely komplex, nemlineáris körülmények között is robusztus teljesítményt mutatott.

Az ipari üzemeltetési paraméterek optimalizálása a legjobban teljesítő, betanított és validált Gauss-folyamat regressziós modell genetikus algoritmusokkal történő integrálásával valósult meg. A genetikus algoritmusok alkalmazása – a kiválasztott GPR-modell kiemelkedő előrejelző képességére alapozva – lehetővé tette egy valós ipari létesítmény optimális üzemeltetési paramétereinek meghatározását az MDI-termékkeverékek színminőségének javítása érdekében.

Összességében a munka példázza a mechanisztikus és adatvezérelt modellezési megközelítések közötti szinergiát, és hozzájárul a vegyipari folyamattervezés és -irányítás jelenlegi tudásállományának bővítéséhez azáltal, hogy validált, magyarázható és skálázható eszközöket biztosít a valós idejű folyamatoptimalizáláshoz az ipari MDI-gyártásban. Az itt kidolgozott módszertan adaptálható, és ígéretes alkalmazási lehetőségeket kínál más, összetett, többlépcsős reakciórendszerek esetében is a vegyipari gyártás területén, valamint a kutatás eredményei nem csak a termékminőség javításához és a folyamatok fenntarthatóságának növeléséhez járulnak hozzá, hanem összhangban állnak a vegyipar digitális átalakulásának és az Ipar 4.0 stratégiáinak célkitűzéseivel is.

4 Tézishez kapcsolódó publikációk

Cikkek nemzetközi folyóiratban

1. Horváth, G., Kummer, A., Kozár, Z., & Varga, T. (2023). Exploration and model-based analysis of reaction mechanisms related to the formation of methylenedianiline. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 62(10), 4297-4311.

Scimago Journal Ranking: Q1, Impact Factor: 4.009

2. Horváth, G., Trujillo, V. J., Réti, J., Kozár, Z., Kummer, A., & Varga, T. (2024). Exploring the essential features influencing the synthesis of methylenedianiline to support industrial processes. *Chemical Engineering Research and Design*, 208, 626-647.

Scimago Journal Ranking: Q2, Impact Factor: 4.345

3. Horváth, G., Trujillo, V. J., Réti, J., Kozár, Z., Varga, T., & Kummer, A. (2025). Soft-sensor development for product quality estimation with time delay and feature selection in industrial MDI production. *Chemical Engineering Journal Advances*, 22, 100751.

Scimago Journal Ranking: Q1, Impact Factor: 8.093

Konferencia kivonatok

4. Horváth, G., Varga, T., & Kummer, A. (2022). Exploration and model-based analysis of reaction mechanisms related to the formation of methylenedianiline, 50. *Műszaki Kémiai Napok*

- Jubileumi Konferencia: 50th Engineering Chemistry Jubilee Conference*, Veszprém, Hungary, pp. 30
5. Horváth, G., Trujillo, V. J., Réti, J., Kozár, Z., Varga, T., & Kummer, A. (2023). Development and comparison of machine learning models to analyse the synthesis of methylenedianiline, *PhD hallgatók anyagtudományi napja XXIII: Materials science day XXIII*, Veszprém, Hungary, pp. 5
 6. Horváth, G., Varga, T., & Kummer, A. (2023). Data-driven modeling of methylenedianiline (MDA) synthesis, *Műszaki Kémiai Napok 2023: Engineering Chemistry Conference 2023*, Veszprém, Hungary, pp. 43
 7. Horváth, G., Varga, T., & Kummer, A. (2024). Identification and model-based analysis of color problems in the synthesis of methylenediphenyl diisocyanate products, *Műszaki Kémiai Napok 2024: Engineering Chemistry Conference 2024*, Veszprém, Hungary, pp. 41
 8. Horváth, G., Trujillo, V. J., Réti, J., Kozár, Z., Varga, T., & Kummer, A. (2024). Machine learning-based product quality estimation with time delay-based feature selection in industrial MDI production, *PhD hallgatók anyagtudományi napja XXIV: Materials science day XXIV*, Veszprém, Hungary, pp. 13