混料试验设计

关颖男 编著

上海科学技术出版社

混料试验设计

关颖男 编著

上海科学技术出版社

混料试验设计

关颖男　编著

上海科学技术出版社出版

（上海瑞金二路450号）

新华书店上海发行所发行　常熟文化印刷厂印刷

开本 850×1156　1/32　印张 12.5　字数 327000

1990年4月第1版　1990年4月第1次印刷

印数 1—2,100

ISBN7-5323-0759-X/O·82

定价：5.45元

内 容 提 要

混料试验设计从诞生到现在仅有二十多年的历史。由于它与工农业生产及科学实验密切相关，所以发展十分迅速。本书是目前国内最早出版的关于混料试验设计的专著，系统而且较完整地介绍了混料试验的方案设计、数学模型和混料数据的分析方法，收集了混料试验设计的主要方法和一些最新的研究成果。本书侧重方法介绍，着眼于实用价值，尽量避免过多的数学推导，用一些实际应用例子和数值例子来帮助读者消化理解，具备初等微积分知识的读者都可阅读本书。

全书分成七章。前六章是：概论；无附加约束的混料问题；独立变量变换；具有附加约束的混料问题；混料数据的分析；其他类型的混料模型。第七章简单扼要地介绍了矩阵代数、最小二乘和方差分析的基本概念和结果，是为没有这些方面知识的读者准备的，用以帮助理解前几章的内容。

本书的读者对象是工程技术人员、科学工作者、大专院校师生和实验工作者。本书也可以作为"实验方法"这门课程的参考教材。

目 录

第一章 概 论

§1.1 一般混料问题

很多产品是通过混合两种或多种成份而制造出来的。某些例子如下：

1）糕点，是将面粉、油、糖、发酵粉、水及某些香料混合在一起经烘烤而成；

2）建筑楼房所用的混凝土，是将砂、碎石、水及一种或若干种型号的水泥混合在一起经搅拌而成；

3）信号闪光剂，是将镁、钠的硝酸盐、锶的硝酸盐及粘合剂混合在一起制成的；

4）烧结矿，是将矿粉、返矿粉、石灰、焦粉及水混合在一起经烧结而制成的。

在上述例子中，生产者或试验者对产品的一种或几种特性感兴趣，而这些特性都与各混合成份所占的比例有关。例如，1）的特性可以是糕点的柔软性，它与糕点配方中各种成份所占的比例有关；2）的特性是混凝土强度，它与砂、碎石、水及水泥所占的比例有关；3）的特性指标是照度及闪光持续时间；4）的特性指标是烧结矿的粒度及强度。这些特性指标都与相应各种成份在配方中所占的比例有关。对于每种特性指标来说，如何确定各种成份在配方中所占的比例，使得某项或某几项特性指标在一定的意义下达到最优，这是生产及试验中的一个重要问题。

在生产及生活中，我们经常看到这样一些现象：几种物品配合在一起使用所产生的效果比单独使用某种物品的效果要好。为取得最好的效果，我们要进行使几种物品混合在一起的混料试验。例

如，我们有三种牌号的汽油，分别用 A,B,C 表示，所要考察的特性指标是它们各自的及组合的燃爆防止比。特别地，我们希望知道三种汽油的混合，例如按 $A:B=50\%:50\%$ 或 $A:B:C=33\%:33\%:33\%$ 这样的比例混合，所得混合油的燃爆防止比是否高于纯 A 油、纯 B 油、纯 C 油的燃爆防止比。试验者希望通过试验找到一种特殊的混合比例，使得混合油有较好的燃爆防止比，而且其他的某些指标，例如，成本、有效性等，都能达到某些标准。

上面所举几个例子的共同特点是：产品的某个特性指标与产品的成份比例之间有着函数关系，混料中各种成份的比例变化时，产品的特性指标也将变化。从试验的角度看来，有必要研究产品的特性指标或响应(例如，混凝土的强度)与可控变量(在混凝土例子中是水泥相对于砂、碎石及水的比例)之间的函数关系，因为我们知道了这些函数关系就可以确定出某种意义上的最优成份组合。然而，很多产品的特性指标与配方中各种成份比例之间的函数关系，在理论上还不清楚，得不到解析表达式。我们可以通过试验来得到因素及特性指标的一套数据，找到因素与指标间的近似表达式，即使用所谓的"响应曲面法"。

在配方配比问题中，各种成份比例间要受一些特殊约束的限制，而不能象一般可控变量那样自由变化，故在混料试验中如何安排试验点，使用何种回归模型及分析计算数据的方法等，与一般的回归分析及其试验设计方法不同，需要使用后面所述的混料试验设计方法来解决。

为了说明一般的混料问题，让我们首先考察一个简单的例子。考虑两种牌号的汽油 A 与 B 的混料试验，所要考察的特性指标是每加仑汽油的行驶里程。假定试验所用的卡车、司机水平及道路情况完全相同。再假定以前曾进行过试验，在完全相同的条件下，用一加仑的汽油 A 平均行驶 13 公里，用一加仑的汽油 B 平均行驶 7 公里。现在，如先用一加仑汽油 A 开动汽车，然后再用一加仑汽油 B 开动汽车，我们则可以期望用这两加仑的汽油可行驶 $13+7=20$ 公里，或者说可以期望每加仑汽油平均行驶 $20/2=10$

公里。平均期望值 10 公里/加仑是汽油 A 与 B 每加仑行驶里程数的平均值。我们很自然要提出如下的问题：将两种牌号的汽油按 $A:B=50\%:50\%$ 或 $A:B=33\%:67\%$ 的比例混合，用混合油开动同样的卡车，司机与行驶路线也完全相同，每加仑混合油的平均行驶公里数是否能高于汽油 A 与 B 的每加仑行驶公里数的平均值 10 公里/加仑？

为了回答这一问题，试验者进行了试验，并重复进行五次。每次各取汽油 A 与 B 一加仑混合在一起，并且每次都用两加仑混合油开动汽车，所用的卡车、司机及行驶路线也完全相同。五次试验所得数据如表 1.1 所示。最后所得的结果是每加仑混合汽油（$A:B=50\%:50\%$）平均行驶 12 公里。

表 1.1　五次试验的平均行驶公里数

试验号	混合油（$A:B=50\%:50\%$）的行驶公里数	每加仑平均公里数
1	24.6	12.30
2	23.3	11.65
3	24.3	12.15
4	23.1	11.55
5	24.7	12.35
		总平均　12.00

这个数值高于汽油 A 与 B 的加权平均值13公里×50%＋7公里×50%＝10 公里(/加仑)。这 12 公里可以解释为 10 公里是由汽油A与B的单独作用产生的，而其余的 2 公里是由于汽油 A 与B 的协同作用产生的。一般地，象汽油 A 与 B 这样的两种成份，对于某种特性指标说来，若混合使用的特性指标高于相应混合比例的特性指标的加权平均值，则称这两种成份有协同作用。如果对于汽油 A 与 B 所有各种比例的混合说来，每加仑各种比例混合油的行驶公里数都高于各相应比例的加权平均值，这种现象用曲线描述，则如图 1.1 的粗曲线那样。在各种比例混合的情况下，如果每加

仑各种比例混合油的行驶公里数都等于各相应混合比例的加权平均值(例如，每加仑 50%∶50% 的混合油恰好行驶了 $13\times50\%+7\times50\%=10$ 公里，每加仑 33%∶67% 的混合油恰好行驶了 $13\times33\%+7\times67\%=9$ 公里等)，则我们称这两种成份 A 与 B 的混合相对于特征指标(每加仑的行驶公里数)具有可加性。这种可加性可用一条连结 $(A=100\%, 13)$ 与 $(B=100\%, 7)$ 这两点的直线来描述，如图 1.1 的直线所示，在各种比例混合的情况下，如果每加仑各种比例混合油的行驶公里数都低于各相应比例的加权平均值，则称这两种成份的混合相对于特征指标(每加仑的行驶公里数)具有对抗作用。这种现象如用曲线来描述，则象图 1.1 的虚线那样。

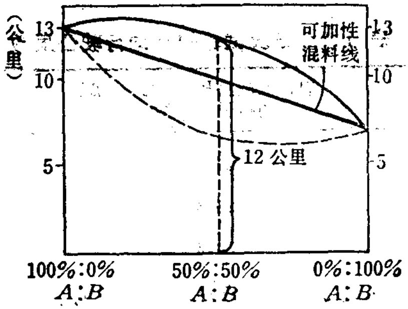

图 1.1

在上述汽油混合例子中，决定每加仑混合油行驶公里数的因素是 $A:B$ 的比值，而与 $A+B$ 的总量无关。这种性质是一般混料问题的共同特征，也就是说，所度量的响应只是出现在混料中各种成份比例的函数，而与混料的总量无关。设 $x_i (i=1, 2, \cdots, q)$ 表示 q 分量混料系统中第 i 种成份所占的比例，η 表示响应的值，则混料响应可表示为

$$\eta=\phi(x_1, x_2, \cdots, x_q) \tag{1.1}$$

有一些问题与上述由式 (1.1) 所确定的一般混料响应关系稍微有些差别。例如，考虑氮、磷、钾三种肥料混合使用对某农作物产量的影响。假定除肥料外其他条件都固定，这时不仅三种肥料在

混合肥料中所占的百分比影响产量，而且单位面积所用混合肥料的总量也影响产量，这与上述的一般混料问题有差别。但是，如果我们将问题限定为单位面积所用混合肥料总量是固定的话，则将成为前述的一般混料问题。

混料问题中的可控变量，即每种成份在混料总量中所占的百分比，是不能任意变化的，要受某些约束的限制。这些百分比必须都是非负的，而且相加之和必须是1。故 q 分量混料系统各种成份所占的百分比 $x_i(i=1,2,\cdots,q)$ 必须服从约束条件

$$x_i \geqslant 0, \quad i=1,2,\cdots,q, \tag{1.2}$$

$$\sum_{i=1}^{q} x_i = x_1 + x_2 + \cdots + x_q = 1. \tag{1.3}$$

今后把满足约束条件(1.2)和(1.3)的变量 $x_i(i=1,2,\cdots,q)$ 称为混料变量或混料分量。约束条件(1.2)和(1.3)是混料问题的最基本的约束条件。在有的混料问题中，由于实际问题的要求，除了受约束条件(1.2)和(1.3)的限制之外，还要附加上一些其他的约束条件。

在某些混料问题中，由于实际问题的限制，某些成份所占的比例必须固定，而另外一些成份所占的比例可以变化。可变化成份所占比例之和等于一个小于1的正数，这时约束(1.3)不满足。对于这种情况，我们可采用变化尺度的办法将问题变化一下，使约束(1.3)能够满足。例如，要炼制具有某种性能的合金，合金的成份为铁、镍、锰、铬、钴。按要求，铁的含量要固定为90%，其余四种元素的含量可以变化。设 x_1, x_2, x_3 及 x_4 分别表示镍、锰、铬及钴在合金中所占的百分比，则此混料问题的约束条件是

$$\begin{cases} x_i \geqslant 0, \quad i=1,2,3,4, \\ x_1+x_2+x_3+x_4=0.1. \end{cases} \tag{1.4}$$

为使基本混料条件(1.3)得到满足，可做线性变换

$$x_i' = 10x_i, \quad i=1,2,3,4,$$

则在 (x_1', x_2', x_3', x_4') 坐标系统下，有

$$\begin{cases}x_i'\geqslant 0, & i=1,2,3,4,\\ x_1'+x_2'+x_3'+x_4'=1.\end{cases}$$

§1.2 混料区域的几何解释

混料约束条件(1.2)和(1.3)是混料问题的基本约束条件。在某些混料问题中，由于实际问题的限制，对各分量 $x_1,x_2,\cdots,x_q$，除有约束条件(1.2)和(1.3)限制之外，还要加上另外一些约束条件，其中最常遇到的是各分量（或某些分量）x_i 不允许从 0 变化到 1，只能在[0,1]内的一个子区间里变化，形成有上、下界约束的混料问题

$$\begin{cases}0\leqslant a_i\leqslant x_i\leqslant b_i\leqslant 1, & i=1,2,\cdots,q,\\ x_1+x_2+\cdots+x_q=1,\end{cases}\tag{1.5}$$

这里，a_i 和 b_i 分别是分量 x_i 的下界和上界，它们是由实际问题给定的。例如，在漂白粉生产中，为使漂白粉能除掉衣物上墨水的污染，在漂白粉的成份中要含有溴(x_1)，稀HCl(x_2)和次氯粉末(x_3)，为了更有效地漂白，漂白粉中必须同时含有这三种成份，这意味着 $a_i>0$，及 $b_i<1.0(i=1,2,3)$。如果要求 x_2 在[0.05,0.09]之内，那么 $a_2=0.05$，$b_2=0.09$。对于分量 x_1 及 x_3 也可以同样地按照工艺要求分别给出上、下界。这种在混料中所有分量都出现的混料称为完全混料。

在各种混料问题中，每个分量 $x_i(i=1,2,\cdots,q)$的变化范围都要受约束条件(1.2)及(1.3)的限制，在几何上可以解释为：混料试验要在 $(q-1)$ 维正规单纯形内安排试验点。正规单纯形的顶点表示单一成份组成的混料，称为纯混料。纯混料主要用作为比较标准，与多种成份组成的混料相对照。一维棱上的点表示两种成份组成的混料，…，k 维边界面的点表示由 $k+1$ 种成份组成的混料；而 $(q-1)$ 维正规单纯形的内点则表示由全部 q 种成份组成的混料。当混料分量 x_i 除受基本约束条件(1.2)及(1.3)的限制之外还要受其他约束条件限制时，因子空间的形状变得更复杂，它是$(q-$

1)维正规单纯形内的一个几何体。例如，兼有上、下界约束的 q 分量混料问题(1.5)的因子空间是 $(q-1)$ 维正规单纯形内的一个不规则的凸多面体。

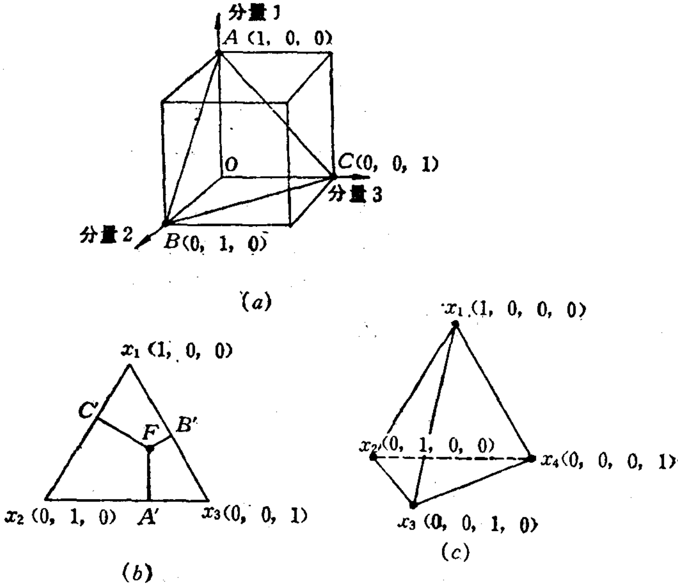

图 1.2 平面及三维空间中的正规单纯形

平面上的正规单纯形是等边三角形(图 1.2(b))，三维空间的正规单纯形是正四面体(图 1.2(c))，当维数高于三时，正规单纯形不能用图画出。下面，我们以分量数 $q=3$ 的情况为例，说明为什么满足约束(1.2)及(1.3)的点只能取在正规单纯形上。取空间直角坐标系 $O-x_1x_2x_3$ (图 1.2(a))，分别在三个坐标轴上取 $A(1,0,0)$、$B(0,1,0)$、$C(0,0,1)$三点。由于约束条件(1.2)及(1.3)的限制，各分量 x_i 只能在 $\triangle ABC$ 上取值，也就是说，三分量混料系统的试验点只能取在二维正规单纯形——等边三角形上。

为使用方便，将不再画出三个坐标轴，只画出一个等边三角形就可以了。进一步，我们引出正规单纯形坐标系，这种坐标系使用起来更为方便。取高为 1 的等边三角形，则此等边三角形内任意

一点 F(图 1.2(b))到三边距离之和是 1。即

$$FA'+FB'+FC'=1。$$

这样，我们可以把 FA' 的长度看成是 F 点的 x_1 坐标值，把FB'与 FC' 的长度分别看成是 F 点的 x_2 坐标值与 x_3 坐标值，在等边三角形上建立起"二维正规单纯形坐标系"或"二维重心坐标系"。试验点 $F(x_1, x_2, x_3)$的三个分量 x_1, x_2 及 x_3 分别看成是 F 点到三个边的距离。同样地，我们也可以在三维(或多维)空间内取一个高为 1 的正规单纯形，则此正规单纯形内任何一点到各个边界面距离之和是1，我们可以把该点到各个边界面的距离看成是该点的各个单纯形坐标，建立起三维(或多维)正规单纯形坐标系或重心坐标系。试验点 $F(x_1, x_2, \cdots, x_q)$的 q 个分量 $x_1, x_2, \cdots, x_q$ 分别看成是 F 点到 q 个边界面的距离。

§1.3 响应曲面方法

多分量混料试验中，大多数是强调研究所考察的响应曲面的自然特征，如曲面的形状、最高(低)点等。例如，用桔汁(x_1)、菠萝汁 (x_2)、葡萄汁(x_3)混合在一起制成合成饮料。试验者感兴趣的是合成饮料的水果味道。采用打分的办法来评价合成饮料的好坏，共分 10 个等级，没水果味道的混料给 1 分，水果味道最好的混料给 10 分。在这种情况下，对于果汁的某个混料，都可以在正三角形的边界或内部找到一个对应点(x_1, x_2, x_3)。如果响应或水果味道的得分用过此点的垂直高度来表示，则各种混料水果味道的得分的轨迹就是一个位于正三角形上面的曲面。对于此混料问题来说，可以假定此曲面是连续的，则它将如图 1.3 所示，所估计的味道曲面的等值线如图 1.4 所示。

探索单纯形区域上响应曲面的主要思考方法是：(1)选择一个适当的模型近似表达利益区域上的响应曲面；(2) 检验模型是否合适；(3) 做出试验设计，拟合试验数据及检验拟合良度。在理论上，我们假定存在着一个函数表示式

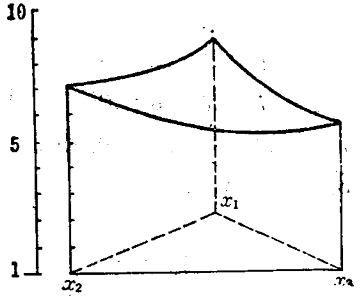

图 1.3 合成饮料的味道曲面

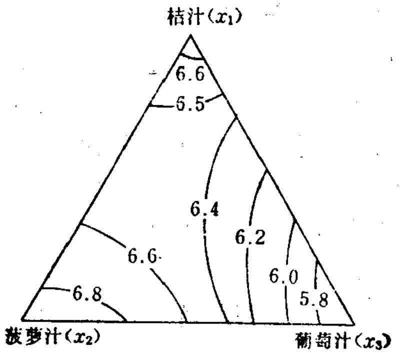

图 1.4 合成饮料味道的等值线图

$$\eta=\phi(x_1, x_2, \cdots, x_q),$$

它精确地描述了响应曲面，这里，我们用 η 来表示响应的值，它依赖于各个分量比例 $x_1, x_2, \cdots, x_q$。同时，我们也做了一个基本的假定：函数 $\phi(x_1, x_2, \cdots, x_q)$所表达的响应曲面是连续的，即 $\phi(x_1, x_2, \cdots, x_q)$是 $x_i(i=1, 2, \cdots, q)$的连续函数。对于某些系统来说，这一假定正确与否是值得怀疑的。例如，进行催化反应的气体系统，会随着加进或减除某些分量而将此系统破坏。对于此系统，连续性假定是不成立的，不能使用多项式数学模型，而要用其他形式的模型。多项式数学模型将在第二章中介绍，而其他形式的模型将在第六章介绍。

关于响应曲面方法的问题，是围绕着确定一个能够适当表示函数 $\phi(x_1, x_2, \cdots, x_q)$ 的数学表达式而展开的。一般地，之所以能够用多项式来近似地表示响应函数 $\phi(x_1, x_2, \cdots, x_q)$，是因为在连续性假设之下（严格说应为各阶导数存在）可用 Taylor 级数将 $\phi(x_1, x_2, \cdots, x_q)$展开成幂级数，而且可以用前几项来近似表示响应函数。一般说来，一阶多项式模型

$$\eta=\beta_0+\sum_{i=1}^{q}\beta_i x_i \tag{1.6}$$

及二阶多项式模型

$$\eta=\beta_0+\sum_{i=1}^{q}\beta_i x_i+\sum_{i<j}^{q}\beta_{ij} x_i x_j \tag{1.7}$$

这类低阶多项式模型是能够较好地近似表示响应曲面的。低阶多项式模型比高阶多项式模型使用起来方便。低阶多项式所含项数少，从而为了估计模型中未知参数所需要的响应观测值的数目也较少。但是，当我们研究一个很复杂的系统时，为了很好地近似表示响应曲面，需要使用三阶多项式模型或某些特殊的三阶多项式模型或四阶多项式模型等（特别是在即使变换数据值也不能简化数据的情况下）。然而，在多数情况下至多使用二阶多项式模型就足够了。

图 1.5 是 $Pb(Co_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-$PbTiO_3$-$PbZrO_3$ 系统等介电常数的等值线图，它是用三阶多项式模型近似表示响应曲面而得到的。由此等值线图我们可以看到：此系统的介电常数随 $Pb(Co_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ 增加而增加，直至 $Pb(Co_{1/3}Nb_{2/3})O_3$:$PbTiO_3$ 大约达到 80%:20%。在系统中心附近，曲面很陡峭，沿着纯 $PbTiO_3$ 与纯 $PbZrO_3$ 方向下降。当考察某个系统时，使用象图 1.4 及图 1.5 这样的等值线图是很有效的。

设试验计划由 N 个试验组成，η 表示响应，y_u 表示第 u 个试验的响应观测值。很自然，可以假定观测值 y_u 将围绕平均值 η_u 变化，而且对所有的 $u=1, 2, \cdots, N$, y_u 的方差相同，都为 σ^2。观测值中包含着可加性误差 ε_u，观测值 y_u 与平均值 η_u 之间的关系为