TPOs 研究中的多赫勒均匀网法案例分析

姚钟尧

（ 华南理工大学高分子系　　广州 ）

摘要　[西班牙研究者]M.A.Lopez-Manchado 和 M.Arroyo，在聚烯烃热塑性弹性体(TPOs) 研究中应用多赫勒均匀网法（an Uniform Net of Doehlert）。这种 TPOs 是一种以共混物 PP/（乙烯-辛烯共聚物）为基质、用 PET 短纤维补强的三元复合物。多赫勒均匀网法是一种国内未见应用的试验设计方法。他们应用多赫勒均匀网法设计试验方案，求得复合物的拉伸模量等 4 项力学性能与组分变量 PP 和 PET 纤维用量之间关系的响应方程式。本文从研究者的论文提取一个二变量的多赫勒均匀网法在 TPOs 研究中应用的案例，并说明和评议多赫勒均匀网法和试验设计的全过程；特别是利用原著提供的基本试验数据进行逐步回归分析，讨论应用回归方程式应注意的几个基本问题和指出原著响应方程式存在的问题。

关键词　试验设计，　多赫勒均匀网法，　逐步回归分析，　失拟检验，　异常点诊断，　SAS,　　PP/乙烯-辛烯共聚物，　PET 短纤维

1　引言

著名的美国橡胶专业期刊《RUBBER CHEMISTRY AND TECHNOLOGY》(《橡胶化学与工艺》）发表的[西班牙] M.A.Lopez-Manchado 和 M.Arroyo（下文简称为研究者）的一篇论文[1]（下文简称为原著）引起著者的关注，因为：

①这是一篇新颖的聚烯烃热塑性弹性体(TPOs)研究论文。这种 TPOs 的基质不是比较常见的聚丙烯/乙丙橡胶、而是聚丙烯/乙烯-辛烯共聚物的共混物，乙烯-辛烯共聚物是用金属茂合物催化剂生产的新型聚烯烃弹性体；而且用聚对苯二甲酸乙二醇酯（PET）短纤维补强基质，得到好效果，是一项值得注意的三元复合物热塑性弹性体研究。然而，令著者更感兴趣的是研究者在研究中使用了一种新的试验设计方法。

②这是在高分子材料研究中应用试验设计法的一个难得案例。基本数据齐全，他人可利用和检验；试验方案设计——试验方案测试数据——试验数据分析——分析结果应用（预测，控制，验证，讨论等)，试验设计法应用过程全面完整。这种含有试验设计法的原创性研究论文，在《RUBBER CHEMISTRY AND TECHNOLOGY》中可谓难得一见。

③研究中应用的试验设计法叫“ an Uniform Net of Doehlert ”(暂译为“ 多

赫勒均匀网法”，下文也使用此称谓），是一种新试验设计方法。

橡胶、塑料、涂料、油墨等配方试验，特别是橡胶配方试验，是典型的多因素试验，试验因素是可控制的，在物理或力学性能（指标或响应）和组分（变量或刺激）之间的关系一般可用二次多项式拟合和描述，因此，常见的多因素试验的试验设计方法有：正交设计法、正交组合设计法、具有旋转性的正交设计法[2~4]和我国数学家发明的均匀设计法[5~7]。著者在橡胶配方试验中尝试过这些方法，而多赫勒均匀网法却是前所未闻，因此，当时（时在 2002 年 8 月）便上中国期刊网检索一番，结果是——涉及它的文章是个空白；再到国内馆藏外文期刊网检索，则只能检索到有限的几篇应用这种方法的论文。从检索结果看，在国内外都可算是一种新试验设计方法。多赫勒均匀网法可能是 1970 年现世，虽然著者无能力说明这种方法的原理和统计性质，但是能看懂怎样应用之——在原著（或参考文献 9）中，就二因素（变量）试验而论，我们读者完全可按照其描述而应用这种方法。

④在原著中，对于将试验数据拟合为经验公式，只简单地用“借助多变量分析技术”一言以蔽之。内容有主次之分，试验数据分析部分固然可简化，但综观全文，这部分太省略了，许多必要的说明和交代都没有。“多变量分析技术”是指什么？是不是指回归分析法（或最小二乘法）？

由于上述的原因，著者将原著译成中文[9]，学习、研究和分析之。本文提取、介绍和评议这个 TPOs 研究应用多赫勒均匀网法的案例，并就此例讨论应用试验设计法应当注意的普遍性问题。

2　TPOs 研究应用多赫勒均匀网法案例

西班牙研究者研究 TPOs——等规聚丙烯（iPP）和乙烯-辛烯共聚物的共混物作为基质，填充聚对苯二甲酸乙二醇酯（PET）短纤维，主要目标是对这类复合物实施有系统的调研，以求得到具有平衡性能的复合物和分析它们的行为/形态的关系。

下面只介绍研究者应用试验设计法的情况，至于三元复合物的制作、试验实施、动态力学和形态研究、等等，有兴趣者请自行阅读原著[1]或译文[9]。

2.1 二因素试验的多赫勒均匀网组合设计

研究者为了分析基质组成和纤维百分比对这些复合物的张力行为的影响，既要变量范围广阔又要用少量的试验次数，在这种情况下，应用了二变量方法和在多赫勒均匀网法的基础上安排试验。

研究者确定两变量 x_1 和 x_2 及其变化范围，x_1 为 PP 在基质的百分比变化，变化范围为 0 到 100%；x_2 为 PET 短纤维在复合物中的含量变化，变化范围为 0 到 20%；假设二元二次方程式（1）为要拟合的复合物性能与所考察的组分的关系的数学模型：

$$Y= b_0+ b_1x_1+ b_2x_2+ b_{11}x_1^2 + b_{22}x_2^2+ b_{12}x_1x_2 \qquad (1)$$

式中 Y 是复合物的特性或力学性能值，两变量 x_1 和 x_2 以**编码值**（codified value）表示（见图 1 和表 1）。

图 1 和表 1 表示研究者以多赫勒均匀网为基础的组合设计。

在图 1 中，试验点的坐标值是用编码值表示的，编码值是无量纲值，例如（1，0），表示 PP 在基质的含量（x_1）为“ 1 ”(相当于这个变量变化范围的上限，即 PP 在基质的百分比为 100%)， PET 短纤维在复

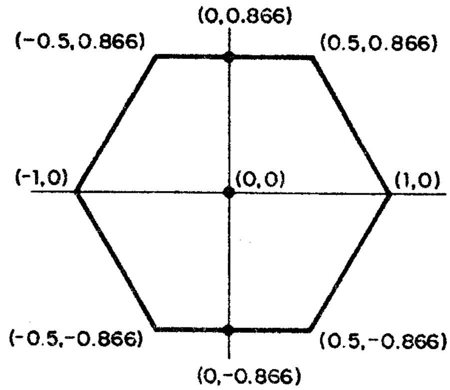

图1　以多赫勒均匀网为基础的试验设计示意图。

表1　试验组合的编码值和物理值

试验序号	编码值 x_1	编码值 x_2	物理值 X_1，%	物理值 X_2，%
1	1.0	0	100	10
2	0.5	0.866	75	18.66
3	-0.5	0.866	25	18.66
4	-1.0	0	0	10
5	-0.5	-0.866	25	1.34
6	0.5	-0.866	75	1.34
7	0	0.866	50	18.66
8	0	-0.866	50	1.34
9	0	0	50	10
10	0	0	50	10
11	0	0	50	10

合物中的含量（x_2）为“ 0 ”(相当于 PET 短纤维在复合物中的含量为 10%)。编码值（codified　value）是多赫勒均匀网法规定的变量数值，叫法定值、编码水平或编码值（本文用编码值）。

在表 1 中，试验点的坐标值既用编码值也用物理值表示。物理值或叫非编码值

（uncodified value），是有量纲的，可当为或意味为变量的实验配量。例如（100%，10%），表示 PP 在基质的百分比（X_1）为 100%， PET 短纤维在复合物中的含量（X_2）为 10%。

变量的物理值 X 与变量的编码值 x 的关系见式（2）。也就是说，式（2）是将变量的编码值变成物理值的转换公式，在表 1 中，变量的物理值正是用式（2）计算得到的。

$$X=\frac{X_A+X_B}{2}+x\frac{X_A-X_B}{2} \tag{2}$$

式中 x 是变量的编码值；X 是变量的物理值，下标 A 和 B 分别表示上限和下限。在本例中，X_1 的下限为 0，上限为 100%； X_2 的下限为 0，上限为 20%。

多赫勒设计的性质之一是试验点均匀分布。一组 6 个点均匀分布在正六边形的顶点上：点 No1（1，0）是起始点，逆时针依次是点 No2（0.5，0.866），点 No3（0.5，0.866），…，点 No6（0.5，-0.866），如图 1 所示。

多赫勒设计也考虑整个试验区域的探索。在该设计的中心点（0，0）安排 3 次相同试验（试验点 No9、No10、No 11，即重复试验 3 次）。为了用 3 种不同纤维含量制备 **3 种**具有相同基质的复合材料，在试验中加入点 No 7（0，0.866）和点 No 8（0，-0.866），它们加上点（0，0）便是 **3 种具有相同基质**的复合材料。研究者说安排重复试验的目的是可确定实验误差。实际上，在中心点安排重复试验的用处远不只是为确定实验误差！（参见 3.1-⑹和 3.3⑺ ）

由上述可知：

①图 1 是多赫勒均匀网法设计试验方案的基础，加上式（2）和表 1，便成了多赫勒均匀网法设计的二变量试验步骤和过程。

②多赫勒均匀网法与二次回归的正交设计法（譬如正交组合设计）有某些相似之处，同样必须：确定变量的个数及其变化范围，选定数据拟合的数学模型，选定试验设计方法，需要类似式（1）、图 1、表 1 和式（2）的步骤和过程，在试验区域的中心安排重复试验。

③在本例中，两变量的水平是不相等的，x_1 是 5 水平（0，±0.5，±1），x_2 是 3 水平（0，±0.866）。

④两变量的变化范围一般决定了试验域，然而，在本例中，X_2 的上限 20%并没有在所设计的试验点出现（见图 1 或表 1），这似乎缩小了试验域。

常见的多因素试验设计法（正交试验设计，均匀设计，正交组合设计，具有旋转性的正交设计），在正交试验设计和均匀设计法中也有不等水平的情况——用拟水平法（例如，均匀设计的混合水平表）；但是没有像④这种情况，这将会产生什么问题或不良后果呢？

2.2 试验数据的分析结果

研究者按照表 1 的试验方案做试验，测量复合物的拉伸和弯曲性能如表 2 所示，表 1 和表 2 组成完整的基本试验数据。根据这些数据，研究者借助“ 多变量分析技术 ”得到遵循式（1）的响应方程，这些方程式列在表 3 中。

这里要作一点说明：原著全文对编码值 x 和物理值 X 的表述，文字和代数符

号不尽一致，容易造成误会。因此，著者专门做了验证，确认式（3）～式（6）中的变量值必须使用编码值；于是，本文和参考

表2　试验的复合物的力学性能

试验号	拉　伸　性　能		弯　曲　性　能	
	模量，MPa	扯断强度，MPa	模量，MPa	最大弯曲强度，MPa
1	958	28.0	1341	40.5
2	804	20.9	1080	31.1
3	216	12.0	237	8.0
4	19	8.7	44	2.0
5	171	9.8	152	5.7
6	675	21.5	817	24.9
7	453	19.5	591	17.2
8	330	18.6	488	14.9
9	408	20.4	534	16.1
10	402	20.6	552	16.5
11	406	20.2	551	17.8

表3　复合物力学性能的响应方程式

性能	响应方程式		相关系数
拉伸模量	$Y=399.97+488.12x_1+57.16x_2+106.89x_1x_1$	(3)	0.98
拉伸强度	$Y=20.63+10.51x_1-3.60x_1x_1-3.97x_2x_2-1.94x_1x_2$	(4)	0.96
弯曲模量	$Y=546.73+669.0x_1+86.79x_2+166.17x_1x_1$	(5)	0.99
弯曲强度	$Y=16.78+19.49x_1+2.08x_2+5.06x_1x_1$	(6)	0.99

文献 9 在编辑上作了统一处理，x 对应于编码值，X 对应于物理值，正是这个原因，本文的式（1）～式（6）的表示形式与原著有些不同。

设计试验方案和分析试验数据是试验设计要解决的两个主要问题。原著只简单地讲“借助多变量分析技术”得到表 3 的响应方程式，没有更多的阐述。试验设计法中的数据分析一般采用回归分析法。从原著的情况看，所谓多变量分析技术应该是包括变量筛选的多元回归分析技术，著者在下一节中将说明多变量分析技术的确是回归分析技术。

不知为什么，研究者只列出在表 3 中的响应方程的相关系数（在多元回归方程中国内称为复相关系数），却还没有披露比此更为必要和重要的统计信息，譬如：响应方程的显着性检验，变量引入和剔出方程的显着性水平，说明方程精度的剩余标准误差，等等。他们只是说，“在实验值和由那些通过对试验结果的统计学处理获得的理论方程式计算的值之间，在所有的情况下已观察到它们的高度相关性。” 研究者应该说明更多和必要的关于响应方程的分析信息，因为这关系到响应方程的应用、试验结果讨论和结论可靠性和说服力。

2.3 研究者对其分析结果的应用

所谓分析结果的应用实际上就是力学性能响应方程式（3）～（6）的应用。这些方程式可应用的前提是：①方程是显着的，②方程中变量项系数是显着的，③方程的剩余标准误差是可接受的；还有其它，但这三者是最基本的，恰恰研究者未提供这三者的信息。然而，这并不影响原著（或参考文献 9）是一个应用试验设计法的难得案例。

姑且假设响应方程式（3）～（6）不存在上列三者的问题，在这种假设下看看研究者对响应方程式（3）～（6）的应用，至于它们存在的问题留在下一节讨论。

应用试验设计法的首要目标是要寻求响应方程式，有了它（们），就可获得许多信息和能做预测或控制，这是非试验设计法不能比拟的，研究者应用式（3）～（6）做的事情有：

①判断试验因素的影响

纵观 4 个响应式，每个式子都出现变量的一次项 x_1 和 x_2，这就是说，所选定的两个试验因素的主效应的影响显着，它们的系数都是正数，显然， PP 和 PET 纤维用量增大都能提高拉伸和弯曲性能（至于两个变量的影响大小的比较，由于研究者没有做标准化系数分析，所以不能一眼了然，不好轻意判断）。因此，研究者指出：“力学性能测量表明 PET 纤维对 PP/乙烯-辛烯共混物起到补强剂的作用，这种作用在共混物中共聚物高百分比时更加明显，而且比较纤维百分含量和基质，所分析的力学性能更依赖于基质组成。因此，随着基质中 PP 含量增大，材料变得更刚硬和稳定，导致可注意到的拉伸和弯曲模量和强度的改善。”

②分析试验因素的交互作用

研究者知道，“试验设计的优点是，除了能分析每个变量的单独效应之外,也可以分析它们的协同效应 (combined effect)。”确实，试验设计法能分析协同效应而非试验设计法不能。响应方程式中的变量交叉乘积项表示交互作用或叫协同效应。在本例中，只有拉伸强度响应式(4)有 x_1x_2 项存在。不过著者将在 3.3-⑴中说明 x_1x_2 项不应该出现在式（4）中。

③预测和控制

应用响应方程式的主要目的往往在于利用响应式预测或控制。在本例中，研究者利用响应式分别绘出拉伸模量等 4 种力学性能的等高线图，如图 2～5 所示，这就是一种性能预测或控制。正如研究者所言，根据这些图线“可以选择实验变量的成对值以便得到具有指定的力学性能的复合物，也可以比较不同材料的相关行为。”研究者正是应用这些响应方程式及其等高线图开展试验结果讨论和下结论的。

④优化

研究者就是想借助 PET 短纤维补强提高复合物的刚度和得到平衡的力学性能，通过试验，他们指出“在复合物中强度最大值是在纤维含量为 10%发展的”。就式(4)而论,不难认可这种说法：令 $x_2=0$（即 $X_2=10\%$,），以此代入式(4)，可知会有比较高的拉伸强度，这就是优化。研究者正是用含 PET 纤维 10%的复合物做扫描电子显微镜的形态研究，“表明当乙烯-辛烯共聚物在基质中构成连续相时，则在纤维-基质界面有较好的相互作用，证实纤维对弹性体丰富的基质是比较有效

的补强剂 ”，可参见原著[1,9]的图 7 和图 8。

综上所述，我们可从原著中提取一个二变量的多赫勒均匀网法应用的完整案例，它是在基于共混物 PP/弹性体和 PET 短纤维的三元复合物研究中使用的，暂且叫做 “ TPSo 研究中应用多赫勒均匀网法案例 ”。必须说明：本文的图 1～图 5 是原著[1,9]的图 1～图 5，表 1、表 2 和表 3 分别是原著的表 2、表 4 和表 3。

3　对原著试验数据的回归分析

在国内拟合二次方程的试验设计法，其数据分析国内都应用回归分析法，并且通常包括使用变量筛选法。原著的基本数据（即表 1 和表 2 的）齐全，使著者有可能做回归分析。

3.1　做回归分析的原因

著者由于以下原因，决定对原著的试验数据进行回归分析：

⑴研究者所借助的“ 多变量分析技术 ”是不是国内所说的回归分析技术？

⑵著者在纠正原著对编码值 x 和物理值 X 表述不一致的过程中，发现表 3 中的响应方程式有的偏差太大，例如式（3），怀疑它可能存在问题。

⑶对照数据拟合的数学模型式（1）和经拟合得到的响应方程式（3）～式（6），显然研究者采用了变量筛选技术。他们可能用了哪种筛选变量法？如果采用逐步回归法，则变量引入和剔出方程的显着性水平 α 值是多大？

⑷研究者只提供响应方程的相关系数（见表 3），却没有披露更为必要和重要的可检验响应方程的显着性的方程的 F 值和其它统计值。

相关系数可检验一元线性回归方程的显着性，不能检验多元回归方程的显着性。经检验不显着的回归方程（也可称响应方程式）是不能用于预测和控制的。响应方程式（3）～式（6）
显着不显着呢？

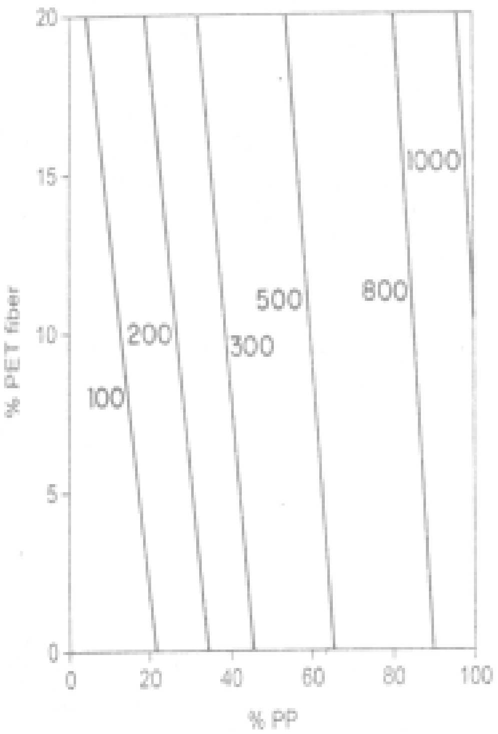

图2　拉伸模量作为基质中PP百分比和复合物中纤维含量的函数

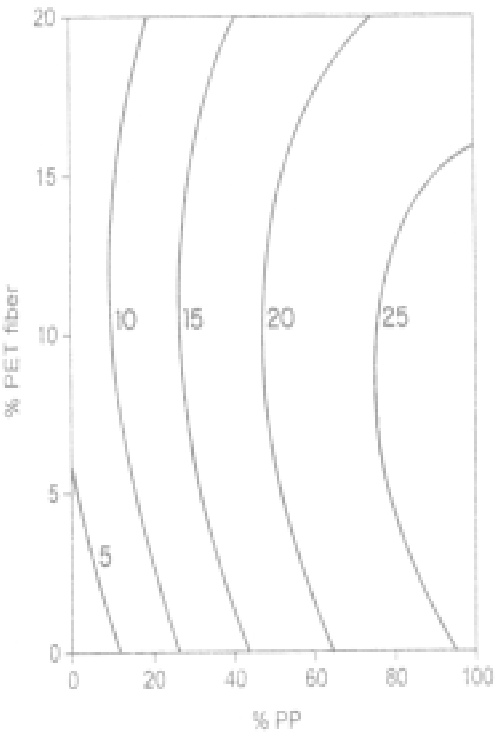

图3　扯断强度作为基质中PP百分比和复合物中纤维含量的函数

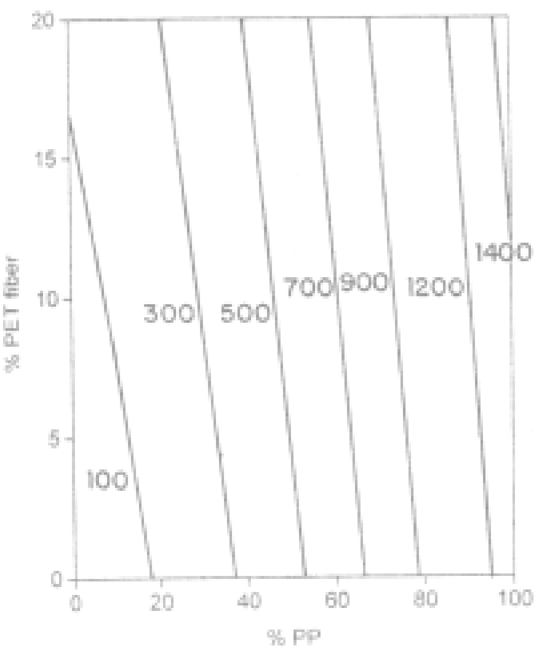

图4　弯曲模量作为基质中PP百分比和复合物中纤维含量的函数

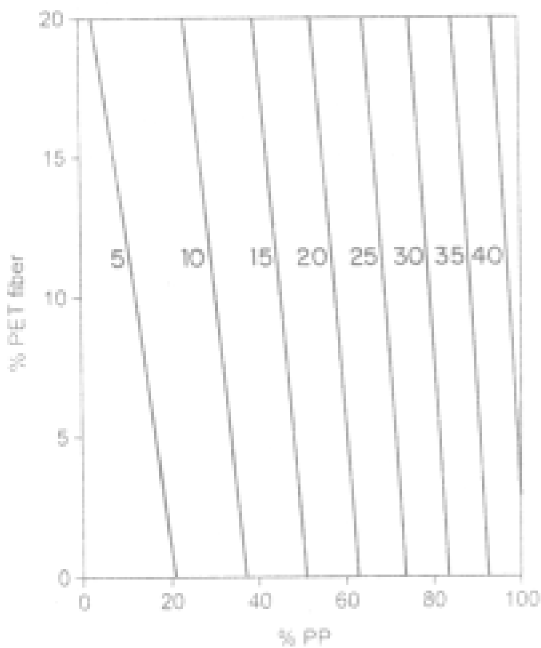

图5　最大弯曲强度作为基质中PP百分比和复合物中纤维含量的函数

⑸研究者的试验设计，在试验域的中心安排 3 次重复试验，并表明这种安排是“以便确定实验误差。”然而，他们未说明响应方程式精度的剩余标准误差δ。回归分析技术可以提供回归方程的剩余标准误差δ，响应方程式（3）～式（6）的剩余标准误差δ分别多大？

⑹在试验域中心的重复试验不单可确定实验误差，而且，回归分析法可检验回归方程在试验域内是否失拟。在二次回归的试验设计中，不论在正交组合设计中，还是在正交旋转组合设计中，或是在通用旋转组合设计中，在中心点都要适当安排重复试验来做失拟检验。

响应方程式（3）～式（6）失拟不失拟呢？

⑺研究者在求得响应方程式和力学性能的等高线图后，在原著[1,9]“结果和讨论”节中述及：

①“从图 2 可推论本研究所用的 PET 纤维对 PP/共聚物的共混物起到补强剂的作用。因此，当 **10%**的纤维加入共混物时，**观测到模量值增大约 45 %**。”

②“如前所述，PET 纤维对含高百分比共聚物（大于 50 %）的材料的补强效应比较明显，**显示模量增量约 40 %**。”

对于①，著者难以从图 2 理解研究者的推论，不过图 2 是用响应方程式（3）得到的，当然可利用式（3）推算——当 10 %的纤维加入共混物时，相当于 $x_2=0$，代入响应方程式（3）可得

$$Y=399.97+488.12x_1+106.89x_1x_1,$$

“**拉伸模量增大约 45 %**”从何说起呢？此说暂时搁放，下面 3.3-⑸再推算。

对于②，“PET 纤维对含高百分比共聚物（大于 50 %）的材料的补强效应比较明显”是可理解的，而“**显示模量增量约 40 %**”怎样与响应方程式（3）和（5）联系起来呢？

⑻上列疑问⑶、⑷、⑸和⑹等，也是在阅读国内化工期刊论文时常可碰到的问题，甚至在现代橡胶配方设计的专着中，讲试验设计的专章也有这样的问题[10]。著者认为在应用回归分析时应当注意这些问题，尤其不能忽略方程的失拟检验和显着性检验、回归系数的显着性检验和方程的剩余标准误差等。

3.2 逐步回归分析结果

著者采用 SAS(Statistical Analysis System)软件对原著的试验数据做了逐步回归分析。SAS 软件是美国 SAS 研究所研制的一套大型集成软件系统，具有完备的数据存取、数据管理、数据分析和数据展现功能；具有强大的数据分析能力，被誉为统计分析的国际标准软件，具有权威性；它的回归分析模块具有逐步回归等 8 种筛选变量的方法。

逐步回归的基本思想是，将变量一个一个引入，引入变量的条件是其偏回归平方和经检验是显着的，同时每引入一个新变量后，对已选入的变量要进行逐个检验，将不显着变量剔除，这样经过若干步便得到“最优”变量子集，即保证最后所得的变量子集中的所有变量都是显着的。由于计算机的普遍使用，这种方法得到了广泛的使用。SAS 系统的回归分析模块要求用户必须在运行回归分析模块之前指定引入或剔除变量的显着性水平α值。著者分别指定α＝0.05，0.10，0.25 进行逐步回归分析，分析结果列在表 4 中。

表4 性能-组分关系的回归方程式

α值	回归方程式及其有关统计信息	F值；复相关系数
0.05	$Y_1＝416.76＋495.00x_1＋57.16x_2＋85.87x_1x_1$ (7) f=3,7,10；t=27.347,21.263,3.007,2.548；δ＝40.32	155.889；0.9926
	$Y_2＝20.66＋9.87x_1－2.70x_1x_1－4.21x_2x_2$ (8) f=3,7,10；t=28.816,13.583,2.428,3.926；δ＝1.26	67.137；0.9831
	$Y_3＝539.76＋683.67x_1＋86.80x_2＋149.87x_1x_1$ (9) f=3,7,10；t=28.579,23.697,3.685,3.589；δ＝49.97	196.007；0.9941
	$Y_4＝16.40＋19.88x_1＋2.08x_2＋4.77x_1x_1$ (10) f=3,7,10；t=36.474,28.949,3.706,4.795；δ＝1.19	291.591；0.9960
0.10	$Y_1＝416.76＋495.00x_1＋57.16x_2＋85.87x_1x_1$ (7) f=3,7,10；t=27.347,21.263,3.007,2.548；δ＝40.32	155.889；0.9926
	$Y_2＝20.66＋9.87x_1－2.70x_1x_1－4.21x_2x_2$ (8) f=3,7,10；t=28.816,13.583,2.428,3.926；δ＝1.26	67.137；0.9831
	$Y_3＝539.76＋683.67x_1＋86.80x_2＋149.87x_1x_1＋102.77x_1x_2$ (11) f=4，6,10；t=35.781,29.669,4.613,4.493,2.230；δ＝39.91	231.675；0.9968
	$Y_4＝16.40＋19.88x_1＋2.08x_2＋4.77x_1x_1$ (10) f=3,7,10；t=36.474,28.949,3.706,4.795；δ＝1.19	291.591；0.9960
0.25	$Y_1＝416.76＋495.00x_1＋57.16x_2＋85.87x_1x_1$ (7) f=3,7,10；t=27.347,21.263,3.007,2.548；δ＝40.32	155.889；0.9926
	$Y_2＝20.66＋9.87x_1－2.70x_1x_1－4.21x_2x_2$ (8) f=3,7,10；t=28.816,13.583,2.428,3.926；δ＝1.26	67.137；0.9831
	$Y_3＝539.76＋683.67x_1＋86.80x_2＋149.87x_1x_1＋102.77x_1x_2$ (11) f=4，6,10；t=35.781,29.669,4.613,4.493,2.230；δ＝39.91	231.675；0.9968
	$Y_4＝16.40＋19.88x_1＋2.08x_2＋4.77x_1x_1＋2.25x_1x_2$ (12) f=4,6,10；t=43.019,34.144,4.371,5.655,1.933；δ＝1.01	305.156；0.9975

在表 4 中，列出了必要的逐步回归分析信息：α值表示在逐步回归分析中变量引入和剔出方程的显着性水平；Y 表示力学性能,下标 1、2、3、4 分别表示拉伸模量、拉伸强度、弯曲模量和弯曲强度；f 表示自由度，“ f =3，7，10 ” 表示回归自由度、剩余自由度和总自由度分别是 3、7 和 10；“ F 值；复相关系数 ” 是指回归方程的 F 值和复相关系数；t 表示用于回归系数显着性检验的 t 值, “ t=36.474，28.949，3.706，4.795 ” 则表示依式（1）顺序出现

在该方程式的包括常数项在内的各变量项回归系数的 t 值；δ 表示回归方程的剩余标准误差。

3.3 对逐步回归分析结果和原著疑问的讨论

⑴在变量引入和剔出方程的显着性水平不同情况下的分析结果

在统计检验中通常使用显着性水平 α 值 0.05 或 0.01，一般在 α＝0.05 条件下显着认为 “ 显着 ”，在 α＝0.01 下显着认为 “ 很显着 ”，因此，著者首先用 α＝0.05

作为变量引入和剔出方程的显着性水平，得到回归方程式（7）～（10）。比较式（8）和式（4），前者不含交叉乘积项，后者有 x_1x_2 项。在这种情况下，因为希望在 Y_2（拉伸强度）的方程式中出现 x_1x_2 项，所以逐步放宽变量引入和剔出方程的要求，相应在α分别为 0.10 和 0.25 下进行逐步回归分析，Y_2（拉伸强度）的方程式仍然不出现 x_1x_2 项，仍然是式（8）的结果。在表 4 中，如果在不同的α值下得到相同的回归方程式，这些方程式都用相同的编号表示。因此说，对表 1 和表 2 的数据进行逐步回归分析，当变量引入和剔出方程的显着性水平α＝0.05 时，可以得到回归方程（响应方程）式（7）、(8)、(9）和（10)。

让式（7）～（10）与式（3）～（6）做比较。从保留在方程式中的变量项看（不管系数），式（7)、(9）和（10）分别与式（3)、(5）和（6）相同；而式（8）与式（4）不同，式（8）不含 x_1x_2 项，式（4）含 x_1x_2 项。从方程式的复相关系数大小看，式（7）～（10）的复相关系数分别与式（3)、(4)、(5）和（6）很接近或相同。从方程中的变量项及其系数看，式（9）和（10）分别与式（5）和（6）很接近。

⑵回归方程的显着性检验

由于研究者在试验域的中心安排了 3 次重复试验，可以也应当做失拟检验。回归分析法告诫：在能做失拟检验时，必须先做失拟检验，然后做回归方程的显着性检验。在本例中，研究者未提及失拟检验。为了方便讨论本例的问题，著者特意颠倒顺序，先做回归方程的显着性检验，然后做失拟检验。

查 F 表可知 $F_\alpha(f_1,f_2)$值，α表示显着性水平，f_1 和 f_2 分别表示回归自由度、剩余自由度，$F_\alpha(f_1,f_2)$叫 F 临界值，是α、f_1 和 f_2 的函数。可查得 $F_{0.01}(3,7)=3.07$, $F_{0.01}(4,6)=3.13$。检验式（7）～（10）的显着性：

对于式（7），F =155.889,因为 $F>F_{0.01}(3,7)$，所以式（7）很显着；

对于式（8），F=67.137, 因为 $F>F_{0.01}(3,7)$，所以式（8）很显着；

对于式（9），F=196.007, 因为 $F>F_{0.01}(3,7)$，所以式（9）很显着；

对于式（10），F=291.591,因为 $F>F_{0.01}(3,7)$，所以式（10）很显着。

用相仿的检验做法，也可知式（11）和（12）是很显着的。

⑶回归系数的显着性检验

由于式（7）～（12）是用逐步回归分析法得到的，因此出现在方程式中的各变量项**仅仅在所指定的α值条件下**是显着的。例如，在变量引入和剔出方程的显着性水平α＝0.25 条件下得到式（12)，我们只有 75%的把握讲 x_1x_2 作用显着（犯错误的概率是 0.25)，这是个大概率事件； 看看表 4，式（12）x_1x_2 项的 t=1.933；查 t 表得临界值 $t_{0.25}(1，6)=1.287$， $t_{0.10}(1，6)=1.943$，$t_{0.05}(1,6)=2.447$。因为 $t_{0.25}(1,6)<t<t_{0.10}(1,6)<t_{0.05}(1，6)$，所以我们有 95%的把握讲 x_1x_2 作用不显着（犯错误的概率是 0.05)，这是小概率事件；因此，应当采用式（8）而不采用式（12)。因此，著者在上节 2.3-②中指出，式（4）不应该出现 x_1x_2 项。

⑷回归方程的剩余标准误差

要应用回归方程精确地预测或控制时，就必须重视回归方程的剩余标准误差。当有确定的一对变量值(x_{01}，x_{02})，则有对应的回归值 Y_0。以式（7）为例，δ＝40.32；令 x_1＝-1(即 PP 在基质的百分比为 0)，x_2＝0 (即 PET 短纤维在复合物中的含量为 10%)代入式（7）计算得到 Y_0＝7.63； 我们有 95%和 99.7%的把握讲预报值分别落在区间 (-73.01,88.27) （即 Y_0±2δ）和（-113.33，128.59)（即 Y_0±3δ）。因

此，可以把剩余标准误差δ作为预报精度的标志。如果δ大得无法容忍，即使回归方程和回归系数都是显着的，这样的回归方程也没有实际应用意义。

在本例中，式（7）的剩余标准误差δ＝40.32，相当大；当 x_1＝-1，x_2＝0 时，拉伸模量实验值是 19（就是试验点 No4，见表 1 和表 2），按式（7）的预测值是 7.63，两者的差别相当大；其实，式（7）对其它 10 个试验点的预报精度都相当差（参见表 5-残差列），原因是为式（7）的δ相当大，因此式（7）不能用于预测和控制。式（7）和式（3）都是同出一源的拟合式，虽然不知它们的差异是什幺原因造成的，但是，在前面 3.1-⑺和下文 3.3-⑸中已指出，式（3）预测得不好是不争的事实，因此，必须谨慎地使用式（3）。

⑸试验方案的力学性能预测值

表5　拉伸模量的试验方案预测和偏差分析等统计信息

试验号	实验值	式（7）预测：预测值	预测的标准误差	残差	残差的标准误差	学生化残差	学生化残差图 2--1--0 1 2	库克距离统计量	式(3)的预测值
1	958	997.6	35.92	-39.63	18.32	-2.164	****	4.502	995.0
2	804	735.3	23.55	68.77	32.73	2.101	****	0.572	720.2
3	216	240.2	23.55	-24.23	32.73	-0.740	*	0.071	232.1
4	19	7.63	35.92	11.36	18.32	0.620	*	0.370	18.74
5	171	141.2	23.55	29.77	32.73	0.910	*	0.107	133.1
6	675	636.2	23.55	38.77	32.73	1.185	**	0.182	621.1
7	453	466.3	22.43	-13.26	33.51	-0.396		0.018	449.5
8	330	367.3	24.43	-37.26	33.51	-1.112	**	0.139	350.5
9	408	416.8	15.24	-8.76	37.33	-0.235		0.002	400.0
10	402	416.8	15.24	-14.76	37.33	-0.395		0.007	400.0
11	406	416.8	15.24	-10.76	37.33	-0.288		0.003	400.0

为了更进一步说明式（7）的问题，请对比整个试验方案的拉伸模量的实验值与预测值（Y_0），见表 5，可知无论是用式(7)还是式(3)预测，残差都是相当大的。

现在可回头审视研究者关于 10%PET 短纤维增大 45%拉伸模量的讲法（见本节 3.1⑦），著者认为这种讲法是没有预测依据的。不论使用拉伸模量响应方程式（3）还是式（7），试将 x_1=0，x_2=-1；x_1=0，x_2=0；x_1=0，x_2=1 代入，都不可能增大 40%拉伸模量；假设这 3 对变量代入式（7），则拉伸模量（Y_1）分别是 359.6、416、473.92，拉伸模量不过分别增大 15.9%或 13.7%而已。

拉伸模量响应方程式的剩余标准误差相当大，预测试验方案的拉伸模量的偏差也相当大（见表 5），因此，必须谨慎地使用它。弯曲模量响应方程式也有这种情况。

⑹异常点诊断

为什幺拉伸模量和弯曲模量回归方程式拟合不佳呢？是否由试验数据引起？

SAS 系统有回归诊断功能，著者利用其中的异常点诊断（diagnosis of outlier）[11]判断异常点(outlier)或强影响点（influence case）。强影响点是指对因变量的预测值影响特别大、甚至容易导致相反结论的观测点，异常点也是强影响点。表 5 列

出学生化残差、学生化残差图和库克距离统计量。借助学生化残差(Student Residual)以及学生化残差图可以判断异常点，借助库克距离统计量（Cook’s D）可以判断强影响点。因为试验点 No1 和 No2 的学生化残差绝对值都大于 2（相应的，在学生化残差图上出现 4 个或 4 个以上的“ * ”)，所以，这两个点可能是“异常点”。而从库克距离统计量看，试验点 No1、No2 和 No4 可能是“强影响点”，因为它们的库克距离统计量都大于 50%。综合两者看，试验点 No1 和 No2 是异常点。

对于异常点，需认真核对原始数据。若属抄写或输入数据时人为造成的错误，应当予以纠正；若属非过失误差所致，如果有可能，最好在此点补做试验以便确认“异常点”是否确属异常点；或者，可将异常点剔除后再作回归分析。由于试验点 No1 和 No2 是多赫勒均匀网壳上的点，剔除它们便不能构成多赫勒均匀网法的六边形试验域，因此未做剔除异常点后的回归分析。

相仿的，可判断弯曲模量的试验点 No2 可能是“异常点”，试验点 No1、No2 和 No4 可能是“强影响点”，因此，试验点 No2 是异常点。而拉伸强度和弯曲强度试验不存在异常点。

通过对异常点的诊断，可知拉伸模量和弯曲模量回归方程式（式⑺和式⑼）拟合不佳的根源——原始试验数据的异常点或强影响点造成的，可见真实可靠的原始试验数据在数据分析中是多幺重要！由此及彼，可怀疑式⑶和式⑸的可靠性和应用性；

⑺失拟检验

试验点 No9～No11 是在中心点上的 3 次重复实验，若记这些试验结果为 Y01，Y02，…，Y0m,那幺它们的算术平均数为

$$\overline{Y}_0=\frac{1}{m_0}\sum_{i=1}^{m_0}Y_{0i}\ , \qquad (13)$$

于是它们的偏差平方和

$$S_{误}=\sum_{i=1}^{6}\left(Y_{0i}-\overline{Y}_0\right)^2\ , \qquad f_{误}=m_0-1 \qquad (14)$$

S 误完全是由误差引起的，可用它作各项显着性检验，还可用统计量

$$F_1=\frac{S_{Lf}\ /\ f_{Lf}}{S_{晌}\ /\ f_{晌}}\sim F(f_{Lf},f_{误}) \qquad (15)$$

来检验失拟平方和 S Lf 中是否含有其它不可忽略的因子对试验结果的影响，其中

$$S_{Lf}=S_{剩}-S_{误}, \qquad f_{Lf}=f_{剩}-f_{误} \qquad (16)$$

假如用统计量 F1 进行检验的结果是显着的，那就需要进一步考察原因，改变二次回归模型；假如检验结果是不显着的，就需要进一步用统计量 F 对二次回归模型进行显着性检验。

在一般情况下，重复试验可将误差平方和 $S_{误}$以及失拟平方和从剩余平方和 $S_{剩}$中分离出来，便可作回归的失拟检验，因而对统计分析是有好处的。对于回归方程式（7）～（10）：

表 6　回归方程的失拟检验　（$f_{误}=2$，$f_{误}=7$，$f_{Lf}=5$；$F_{0.05}(5,2)=19.3$）

回归方程	实验误差			失拟项				失拟否
	$\overline{Y}_0$	$S_{误}$	$S_{误}/f_{误}$	$S_{剩}$	S_{Lf}	S_{Lf}/f_{Lf}	F_1	
式(7)	405.3	18.67	9.34	11380.66	11361.99	2272.98	243.29	失拟
式(8)	20.4	0.08	0.04	11.08	11.00	2.20	55.00	失拟
式(9)	545.7	204.48	102.24	17478.66	17274.18	3454.84	33.79	失拟
式(10)	16.8	1.58	0.79	9.91	8.33	1.67	2.11	否

$m_0=3$；自由度，$f_{误}=2$，$f_{误}=7$，$f_{Lf}=5$；失拟检验所需的统计量按照公式（13）～（16）计算并列在表 6 中。

对于式（10），$F_1<F_{0.05}(5,2)$，不显着，所以回归方程式（10）不失拟；而对于式（7）、（8）和（9），$F_1>F_{0.05}(5,2)$，显着，所以回归方程式（7）、（8）和（9）失拟。式（7）、（8）和（9）失拟,便不需进一步做回归方程的显着性检验，所以前面 3.3-⑵指出，要先做失拟检验。

重复试验的失拟检验对各种回归都是适用的，因此提倡在橡胶配方设计、化工生产等等变量可控制的回归试验中做重复试验的失拟检验。但重复试验往往受到时间、设备、经费等条件的限制，有时甚至是不可能的，例如在相同的条件下测量一些气象数据，这几乎是不可能的。在这种情况下，不可能用统计检验的方法来获得回归方程是否拟合得好的信息，而要靠往后的实践直接检验了。

通过本小节的分析，可知拉伸模量、拉伸强度和弯曲模量回归方程式（式⑺、⑻和⑼）在试验域内是失拟的；式⑺的剩余标准误差 δ 相当大；拟合式⑺和⑻的原始试验数据有异常点和强影响点。式⑺～⑽与式⑶～⑹都是用同一试验数据拟合的，由此可知式⑶、⑷、⑸是失拟的，应用式⑶必须谨慎。

结论

试验设计是一门专门的学问和技术，它要解决的问题有：如何设计试验，如何分析试验数据；总的目的就是使实验次数尽量少而又能做分析和达到好的试验效果。著者通过对原著的研究和分析，做了几项工作：

①从原著中提取一个二变量的多赫勒均匀网法在 TPSo 研究中应用的案例，说明了国内未见应用的多赫勒均匀网试验设计法，评议这个难得的应用试验设计法的案例。

②从数据分析的角度对原著的试验数据拟合式（响应方程式）提出诸多疑问，特别怀疑原著的拉伸强度响应方程式⑶。

③根据原著提供的完整基本试验数据做回归分析，这些数据也是、弯曲模量和弯曲强度 4 项响应方程式（即本文式⑶～⑹）的拟合来源，得到相应的 4 项响应方程式⑺～⑽；比较了式⑺～⑽与⑶～⑹的异同指出原著拉伸强度响应方程式⑷不应该含有两变量的交叉乘积项 x_1x_2，在所研究的三元复合物中，PP 在基质的百分比（x_1）和 PET 短纤维在复合物中的含量（x_2）不应该有协同效应。

④着重应用回归分析法，从失拟检验、方程的剩余标准误差、试验方案预测和异常点诊断等多角度讨论响应方程式⑺～⑽，指出拉伸模量、拉伸强度和弯曲模量回归方程式（式⑺、⑻和⑼）在试验域内是失拟的；式⑺的剩余标准误差δ相当大；拟合式⑺和⑻的原始试验数据有异常点和强影响点等问题，也就是说，响应方程式⑺、⑻和⑼是不可使用的。

⑤因为回归方程式⑺～⑽与原著的 4 项响应方程式（即式⑶～⑹）的拟合来源是相同的，因此可知式⑶、⑷、⑸也是失拟的，也是不可使用的。在做回归分析时，已计算回归方程式⑺～⑽各式的剩余标准误差，指出回归方程式⑺的剩余标准误差相当大，不能做预测和控制用；进而展示式⑺的试验方案预测和异常点诊断，说明式⑺的预测精度差，诊断拟合它的原始试验数据有多个异常点和强影响点。因此，即使式⑺不失拟，也是不可应用的，由此推及响应方程式⑶不可应用或必须谨慎使用。

参考文献

[1] M.A.Lopez-Manchado， M.Arroyo. OPTIMIZATION OF COMPOSITES BASED ON PP/ELASTOMER BLENDS AND SHORT PET FIBERS. RUBBER CHEM. TECHNOL.，2001，74（2）：189-197

[2] 上海师范大学数学系概率统计教研组. 回归分析及其试验设计(M). 上海：上海教育出版社,1978

[3] 姚钟尧，缪桂韶，林惠音. 含 OTOS 的天然/顺丁并用炭黑填充硫化胶生热性能初探.特种橡胶制品，1983,4(4)：1~7

[4] 姚钟尧，林惠音. 计算机辅助试验研究系统应用示例. 粘接，1996，17（6）：23～27

[5] 方开泰. 均匀设计与均匀设计表.. 北京：科学出版社, 1994

[6] 姚钟尧,梁士慧. 均匀设计法在丁苯橡胶配方试验中的应用. 华南理工大学学报.自然科学版，2001，29（1）：78-82

[7] 姚钟尧，蔡清毅，廖恺.均匀设计法在 EPDM 配方试验中应用. 橡胶工业，2001，48（9）：517

[8] D. H. Doehlert . Uniform Shell Design. Appl. Stat. 1970，19 (1)：23`

[9] M.A. Lopez-Manchado，M.Arroyo 着，姚钟尧译. 优化基于 PP/弹性体共混物和 PET 短纤维的复合物.世界橡胶工业，2003，31（4）：31

[10] 姚钟尧. CAR 系统的回归分析法应用及其它. 特种橡胶制品，1997, 18 (6)：40-48

[11] 胡良平，张学中. 现代统计学与 SAS 应用. 北京：军事医学科学出版社，1996.3.：260，264

后记

作为橡胶工艺技术人员，著者关注多因素试验设计方法的应用，“多赫勒均匀网法”（“an Uniform Net of Doehlert”）在高分子材料研究中的应用当然引起著者的兴趣；然而，却不晓得这种方法的原理和统计性质，不知道这种方法能否设计三或四因素试验，……。趁此均匀设计学会 2003 年会之际，特向专家和内行者求教。