

Witold K u p ś ć (Warszawa)

PLANOWANIE DOŚWIADCZEŃ Z MIESZANINAMI

Wstęp

Większość występujących w przyrodzie i stosowanych w technice substancji jest mieszaninami rozmaitych składników. Przykładem mogą być rudy i minerały, stopy techniczne, tworzywa sztuczne, materiały budowlane itp. Właściwości mieszanin zależą przede wszystkim od rodzaju i zawartości podstawowych składników. Zmieniając proporcje tych składników można nadawać mieszaninom żądane właściwości. Jednym z celów badania wieloskładnikowych związków jest ustalenie zależności między frakcjami oddzielnych składników i ilościowymi właściwościami mieszanin - ustalenie zależności "skład - właściwość". Zagadnienie badania mieszanin można sformułować następująco.

W n -wymiarowej przestrzeni euklidesowej dany jest obszar X o następujących własnościach. Współrzędne punktu $\bar{x} = (x_1, x_2, \dots, x_n)$ należące do X spełniają warunki:

$$(1) \quad x_i \geq 0, \quad \sum_{i=1}^n x_i = 1 \quad \text{dla } i = 1, 2, \dots, n.$$

Wskaźnik i oznacza i -ty składnik n -składnikowej mieszaniny, x_i - frakcję i -tego składnika. W każdym punkcie zbioru X określona jest zmienna losowa $Y(\bar{x})$ o wartości oczekiwanej $EY(\bar{x})$. Wartość tę oznaczmy przez $F(\bar{x})$ i nazwijmy "odpowiedzią właściwości dla danego składu". Model odpowiada sytuacji, w której nieznana jest funkcja $F(\bar{x})$, lecz w każdym punkcie \bar{x} wartość jej może być oszacowana. Zadanie polega na oszacowaniu funkcji $F(\bar{x})$ przy następujących,

najczęściej przyjmowanych założeniach o tej funkcji oraz o zmiennych losowych Y :

1° Funkcja $F(\bar{x})$ może być przybliżona w całym obszarze X wielomianem dostatecznie wysokiego stopnia.

2° Gdy w N (niekoniecznie różnych) punktach \bar{x}_j ($j = 1, 2, \dots, N$) obserwowane będą zmienne losowe $Y(\bar{x}_j)$, to zakłada się, że są one niezależne o rozkładzie normalnym $N(F(\bar{x}_j), \sigma)$.

Sformułowane zadanie dla mieszanin jest oczywiście szczególnym przypadkiem zadania regresji wielokrotnej, w którym na obszar X nałożono warunki (1). Geometrycznie obszar X jest $(n-1)$ - wymiarowym regularnym sympleksem.

Niniejsze opracowanie stanowi przegląd znanej autorowi literatury związanej z powyższym tematem. Opracowanie składa się z sześciu części. Część 1 omawia najstarsze historycznie plany Scheffego - siatkowo-sympleksowe i środkowo-sympleksowe. W drugiej części przedstawione są plany skonstruowane przy pomocy kryterium postulującego, by średni kwadrat różnicy między wielomianem aproksymującym i prawdziwą funkcją odpowiedzi był minimalny. Część trzecia dotyczy planów, w których występują dodatkowe ograniczenia na zmiany składników mieszaniny. Rozpatrzono plany z niezerowymi frakcjami wszystkich składników, plany z ograniczeniami w postaci wielościanu oraz w postaci elipsoidy. W części czwartej rozpatruje się przypadek, w którym składniki mieszanin są z kolei mieszaninami innych składników, przy czym te ostatnie podlegają zmianom. W części 5 rozpatrzono sytuację, w której rezygnuje się z założenia o wielomianowym charakterze funkcji odpowiedzi. Część 6 podaje sposób konstrukcji planów będących uogólnieniem planów Scheffego.

1. Plany siatkowo-sympleksowe i środkowo-sympleksowe

Zagadnienie badania mieszanin wprowadził Scheffe [15]. Rozpatrywał on zagadnienie aproksymacji funkcji $F(\bar{x})$ wielomianem stopnia q postaci:

$$(2) \quad \beta_0 + \sum_{i=1}^n \beta_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq n} \beta_{ij} x_i x_j + \dots + \\ + \sum_{i_1, i_2, \dots, i_n} \beta_{i_1, i_2, \dots, i_n} x_1^{i_1} x_2^{i_2} \dots x_n^{i_n} \\ \left(\sum_j i_j = q \right)$$

Liczba współczynników takiego wielomianu jest równa $\binom{n+q}{q}$. Ze względu jednak na związek (1), liczba nieznanych współczynników jest mniejsza i wynosi $\binom{n+q-1}{q}$. Wykorzystując ten związek Scheffe wprowadził "zredukowane" wielomiany pierwszego, drugiego i trzeciego stopnia a Gorman i Hinman [8] - czwartego stopnia. Są to wielomiany n zmiennych o liczbie współczynników $\binom{n+q-1}{q}$, wyrażające się wzorami:

$$(3) F_1(\bar{x}) = \sum_{i=1}^n \beta_i x_i;$$

$$(4) F_2(\bar{x}) = \sum_{i=1}^n \beta_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq n} \beta_{ij} x_i x_j;$$

$$(5) F_3(\bar{x}) = \sum_{i=1}^n \beta_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq n} \beta_{ij} x_i x_j + \sum_{1 \leq i < j < k \leq n} \delta_{ij} x_i x_j (x_i - x_j) + \\ + \sum_{1 \leq i < j < k \leq n} \beta_{ijk} x_i x_j x_k;$$

$$(6) F_4(\bar{x}) = \sum_{i=1}^n \beta_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq n} \beta_{ij} x_i x_j + \sum_{1 \leq i < j < k \leq n} \delta_{ij} x_i x_j (x_i - x_j) + \\ + \sum_{1 \leq i < j < k \leq n} \delta_{ij} x_i x_j (x_i - x_j)^2 + \sum_{1 \leq i < j < k \leq n} \beta_{1ijk} x_i^2 x_j x_k + \\ + \sum_{1 \leq i < j < k \leq n} \beta_{1jkk} x_i x_j^2 x_k + \sum_{1 \leq i < j < k \leq n} \beta_{1jkk} x_i x_j x_k^2 + \\ + \sum_{1 \leq i < j < k < l \leq n} \beta_{1ijkl} x_i x_j x_k x_l.$$

Sposób otrzymania zredukowanego wielomianu pokażemy na przykładzie $F_2(\bar{x})$. Pełny wielomian ma postać:

$$b_0 + \sum_{i=1}^n b_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq n} b_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^n b_{ii} x_i^2.$$

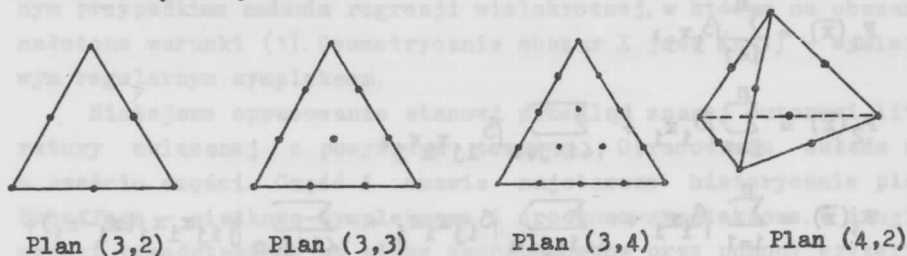
Zauważmy, że $b_0 = b_0 \sum_1 x_i$ oraz, że mnożąc równość $\sum_1 x_i = 1$ obustronnie przez x_i otrzymujemy $x_i^2 = x_i - \sum_{j \neq i} x_i x_j$. Podstawiając te wyrażenia do pełnego wielomianu otrzymujemy zredukowany wielomian (4).

Dla oszacowania metodą najmniejszych kwadratów współczynników wielomianów (3) - (6) potrzeba co najmniej $\binom{n+q-1}{q}$ obserwacji.

Scheffe [15] zaproponował, by dokonywać je w punktach siatki (n, q) będącej zbiorem punktów:

$$(7) (x_1, x_2, \dots, x_n); \quad x_1 = 0, 1/q, 2/q, \dots, (q-1)/q, 1, \quad \sum_{i=1}^n x_i = 1$$

Przykładowo plan siatkowo-sympleksowy $(n, 1)$ zawiera wszystkie wierzchołki sympleksu (1) , plany $(3, 2)$, $(3, 3)$, $(3, 4)$ i $(4, 2)$ przedstawione są na rysunku 1.



Rys. 1. Niektóre plany siatkowo-sympleksowe

Przy takiej konstrukcji planu doświadczalnego, oszacowania współczynników zredukowanych wielomianów przyjmują bardzo prostą formę. Na przykład dla wielomianu F_2 współczynniki wyrażają się wzorami:

$$\hat{\beta}_1 = y_1, \quad \hat{\beta}_{1j} = 4y_{1j} - 2y_1 - 2y_j; \quad i, j = 1, 2, \dots, n$$

gdzie y_1 - wartość funkcji odpowiedzi zaobserwowana w punkcie

$$\begin{pmatrix} 0, 0, \dots, 1, 0, \dots, 0 \\ 1 \quad 2 \quad \dots \quad i \quad \dots \quad n \end{pmatrix}$$

a y_{1j} - wartość funkcji odpowiedzi zaobserwowana w punkcie

$$\begin{pmatrix} 0, 0, \dots, 0, 1/2, 0, \dots, 1/2, \dots, 0 \\ 1 \quad 2 \quad \dots \quad i \quad \dots \quad j \quad \dots \quad n \end{pmatrix}$$

Oszacowania współczynników wielomianów (3) - (6) oraz wariancje ekstrapolowanych wartości wielomianów zestawione są w pracy [15] i [8], a także w przeglądowych opracowaniach [5] i [19].

Wadą planów siatkowo-sympleksowych jest duża liczba punktów, w których większość składników mieszanki nie występuje. Wielomian wyznaczony na podstawie takich punktów może nieadekwatnie opisywać zależność skład-właściwość, szczególnie we wnętrzu sympleksu. Dlatego w pracy [17] Scheffe proponuje inny sposób rozmieszczenia punktów doświadczalnych oraz inny wielomian aproksy-

mujący. Plan środkowo-sympleksowy (simplex-centroid) jest planem zawierającym punkty o współrzędnych

$$(8) \quad (1, 0, \dots, 0); (1/2, 1/2, 0, \dots, 0); \dots; (1/n, \dots, 1/n)$$

oraz punkty, których współrzędne są wszystkimi permutacjami powyższych. Liczba punktów takiego planu wynosi $2^n - 1$. Jako odpowiedni wielomian aproksymujący przyjęto wielomian

$$(9) \quad \sum_{i=1}^n \beta_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq n} \beta_{ij} x_i x_j + \dots + \beta_{12\dots n} x_1 x_2 \dots x_n$$

Wzór na oszacowanie współczynników wielomianu (9) jest również prosty. Ma on postać:

$$(10) \quad b_{S_k} = k \sum_{t=1}^k (-1)^{k-t} t^{k-1} J_t(S_k)$$

gdzie b_{S_k} - zapis oszacowania współczynnika $\beta_{i_1, i_2, \dots, i_k}$

($S_k = (i_1, i_2, \dots, i_k)$ pewien podzbiór zbioru $1, 2, \dots, n$ wskaźników)

J_t - suma zaobserwowanych wartości funkcji odpowiedzi wszystkich $\binom{k}{t}$ mieszanin złożonych z t składników wziętych w równych proporcjach $1/t$ i utworzonych ze składników wyznaczonych przez wskaźniki zawarte w podzbiórze S_k .

Dla przykładu:

$$b_{ijk} = 3 \left(\sum_{l=i, j, k} y_l - 2^2 (y_{ij} + y_{ik} + y_{jk}) + 3^2 y_{ijk} \right)$$

gdzie y_i - odpowiedź w wierzchołku sympleksu, y_{m1} - odpowiedź w środku krawędzi łączącej m -ty i 1 -ty wierzchołek, y_{ijk} - odpowiedź w środku ściany przechodzącej przez i -ty, j -ty oraz k -ty wierzchołek sympleksu.

2. Plany minimalizujące różnicę między wielomianem aproksymującym i prawdziwą funkcją odpowiedzi

Wielomian aproksymujący może nie zapewniać należytego przedstawienia funkcji odpowiedzi. Może to wynikać ze zbyt dużego błędu eksperymentalnego (błąd losowy) lub z nieadekwatności funkcji aproksymującej (błąd systematyczny). W pracach [3], [6] i [7] wprowadzono do doświadczeń z mieszaninami następujące kryterium optymalności planu.

Niech $\hat{y}_{\bar{x}}$ oznacza funkcję oszacowaną dla obserwowanej odpowiedzi $y_{\bar{x}}$, pod warunkiem, że prawdziwa funkcja odpowiedzi jest $\eta_{\bar{x}}$. Niech S będzie sympleksem określonym przez (1). Określmy średni błąd kwadratowy oceny $y_{\bar{x}}$ jako

$$(11) \quad \int_S E(\hat{y}_{\bar{x}} - E(y_{\bar{x}}))^2 W(\bar{x}) d\bar{x} = \int_S E(\hat{y}_{\bar{x}} - E(\hat{y}_{\bar{x}}))^2 W(\bar{x}) d\bar{x} + \\ + \int_S (E(\hat{y}_{\bar{x}}) - E(y_{\bar{x}}))^2 W(\bar{x}) d\bar{x} = V + B.$$

Pierwszy składnik V po prawej stronie wyrażenia (11) nazwijmy błędem losowym, drugi B - błędem systematycznym. Symbol $d\bar{x}$ niech oznacza $dx_1 dx_2 \dots dx_n$, a funkcja wagowa $W(\bar{x})$ niech będzie stałą dla całego sympleksu

$$(12) \quad W(\bar{x}) = \begin{cases} (\int d\bar{x})^{-1} = W & \text{na } S \\ 0 & \text{poza tym} \end{cases}$$

Plan będzie się nazywać optymalnym, jeśli dla danego $y_{\bar{x}}$ i $\eta_{\bar{x}}$ wyrażenie (11) osiągnie wartość minimalną. Plan jest optymalny w sensie minimalizacji błędu losowego gdy wyrażenie V osiąga minimum, a optymalny w sensie minimalizacji błędu systematycznego gdy B jest minimum.

2a. Plany minimalizujące błąd systematyczny

Zadanie wyboru planu optymalnego w sensie kryterium (11) rozwiązuje się w dwóch etapach. Najpierw poszukuje się planu minimalizującego błąd systematyczny B , a następnie uwzględnia się błąd losowy V . Plan minimalizujący błąd systematyczny można otrzymać korzystając z następującego twierdzenia Boxa i Drapera [4]:

Niech w obszarze S funkcja odpowiedzi będzie przybliżona wielomianem $y_{\bar{x}}$ stopnia d_1 . Prawdziwa odpowiedź $\eta_{\bar{x}}$ jest wielomianem stopnia $d_2 > d_1$. Współczynniki wielomianu $y_{\bar{x}}$ oszacowane są metodą najmniejszych kwadratów. Plan D minimalizuje błąd systematyczny B , jeżeli wszystkie jego momenty aż do stopnia $d_1 + d_2$ będą równe odpowiednim momentom rozkładu równomiernego w S . Momenty planu D określa się jako:

$$(13) \quad [iP_j^g] = N^{-1} \sum_{u=1}^n x_{iu}^p x_{ju}^g, \quad p+g \leq d_1+d_2, \quad N - \text{liczba punktów planu,}$$

zaś momenty rozkładu równomiernego na S są określone wzorem:

$$(14) \quad \{iP_j^g\} = W \int_S x_i^p x_j^g d\bar{x}$$

gdzie S - sympleks określony wzorem (1), W - całka określona wzorem (12).

Korzystając z przytoczonego twierdzenia, Draper i Lawrence [6] rozwiązali zadanie wyboru optymalnego planu dla trójskładnikowych mieszanin ($n = 3$) i w pracy [7] dla $n = 4$ w przypadku $d_1 = 1$, $d_2 = 2$ oraz dla $d_1 = 2$, $d_2 = 3$. Becker [3] rozwiązał zadanie dla dowolnego n i dla $d_1 = 1$, $d_2 = 2$. Rozwiązanie zadania polega na porównaniu wyrażeń (13) i (14) oraz rozwiązaniu wynikającego stąd nieliniowego układu równań. Rozwiązanie dla $n = 3$ przebiegało następująco. Wprowadzono nowy układ współrzędnych

$z_1 = 1/2(-x_1+x_2)$, $z_2 = \sqrt{3}/6(-x_1-x_2+2x_3)$, $z_3 = x_1 + x_2 + x_3 = 1$. W układzie tym punkty sympleksu S opisuje się przy pomocy dwu współrzędnych z_1 i z_2 . Wierzchołki sympleksu mają współrzędne

$$(0, 1/\sqrt{3}); (1/2, -\sqrt{3}/6); (-1/2, -\sqrt{3}/6)$$

Momenty rozkładu równomiernego na S można otrzymać przy pomocy funkcji tworzącej momenty. W naszym przypadku ma ona postać

$$(15) \quad M_{z_1, z_2}(t_1, t_2) = \frac{4}{\sqrt{3}} \int_{-\sqrt{3}/6}^{\sqrt{3}/3} \int_{-1/3(1-z_2\sqrt{3})}^{1/3(1-z_2\sqrt{3})} \exp(t_1 z_1 + t_2 z_2) dz_1 dz_2 =$$

$$= 1 + \frac{1}{24} \frac{t_1^2}{2!} + \frac{1}{24} \frac{t_2^2}{2!} + \frac{\sqrt{3}}{360} \frac{t_1^3}{3!} + \frac{\sqrt{3}}{360} \frac{t_2^3}{3!} - \frac{\sqrt{3}}{360} \frac{t_1^2 t_2}{2! 1!} -$$

$$- \frac{\sqrt{3}}{360} \frac{t_1 t_2^2}{1! 2!} + \frac{1}{240} \frac{t_1^4}{4!} + \frac{1}{240} \frac{t_2^4}{4!} + \frac{1}{720} \frac{t_1^2 t_2^2}{2! 2!} + \dots$$

Moment $\{i^p j^q\}$ jest współczynnikiem przy $t_1^p t_2^q$ w rozwinięciu funkcji tworzącej w szereg. Poszukiwane momenty rozkładu równomiernego na S można przedstawić w postaci macierzy o wymiarze $d_1 \times (d_1 + d_2)$. Macierz μ momentów rozkładu równomiernego w przypadku $d_1 = 1$, $d_2 = 2$ jest postaci

$$(16) \quad \mu = \begin{bmatrix} 1 & z_1 & z_2 & z_1^2 & z_2^2 & z_1 z_2 \\ 1 & 0 & 0 & 1/24 & 1/24 & 0 \\ 0 & 1/24 & 0 & 0 & 0 & -\sqrt{3}/360 \\ 0 & 0 & 1/24 & -\sqrt{3}/360 & \sqrt{3}/360 & 0 \end{bmatrix} \begin{matrix} 1 \\ z_1 \\ z_2 \end{matrix}$$

Na macierz momentów planu zostały nałożone następujące ograniczenia

$$\begin{bmatrix} 1^1 j^0 \\ 1^2 j^0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1^0 j^1 \\ 1^0 j^2 \end{bmatrix}; \quad \begin{bmatrix} 1^1 j^1 \\ 1^3 j^0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1^1 j^1 \\ 1^2 j^1 \end{bmatrix} = 0;$$

$$\begin{bmatrix} 1^2 j^0 \\ 1^3 j^0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1^0 j^2 \\ 1^3 j^0 \end{bmatrix}; \quad \begin{bmatrix} 1^3 j^0 \\ 1^2 j^1 \end{bmatrix} = -\begin{bmatrix} 1^2 j^1 \\ 1^2 j^1 \end{bmatrix}.$$

Macierz tę można napisać w postaci

$$(17) \quad M = \begin{matrix} & 1 & z_1 & z_2 & z_1^2 & z_2^2 & z_1 z_2 & \\ \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & c & c & 0 \\ 0 & c & 0 & 0 & 0 & d \\ 0 & 0 & c & d & -d & 0 \end{bmatrix} & 1 & z_1 & z_2 \end{matrix}$$

Zadanie polega na znalezieniu takich planów, dla których

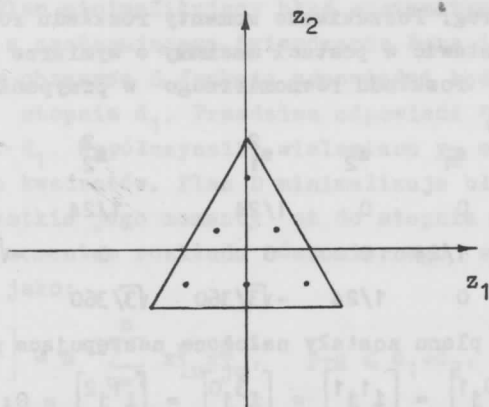
$$\mu = M$$

czyli sprowadza się do znalezienia, dla różnych N , takich planów, że

$$c = \frac{1}{24}, \quad d = -\frac{\sqrt{3}}{360}.$$

Rozwiązanie takich układów równań przeprowadzono metodami numerycznymi. Ze zbioru możliwych rozwiązań układu równań określających plan D wybrano te, które należały do następujących podzbiorów:

- 1° Wierzchołki trójkąta równobocznego o środku w początku układu współrzędnych z_1, z_2 i boku p : $(0, 1/\sqrt{3}p)$, $(\pm 1/2p, -\sqrt{3}/6p)$,
- 2° Wierzchołki trójkąta równobocznego o środku w początku układu współrzędnych z_1, z_2 i boku q : $(0, -1/\sqrt{3}q)$, $(\pm 1/2q, \sqrt{3}/6q)$,
- 3° Wierzchołki kwadratu o środku w początku układu współrzędnych i bokach $2a$ równoległych do osi układu: $(\pm a, \pm a)$,
- 4° Punkty na osiach współrzędnych: $(\pm b, 0)$, $(0, \pm b)$,
- 5° Wierzchołki prostokąta: (c, d) , $(-c, -d)$, $(c, -d)$, $(-c, d)$.



Rys. 2. Plan minimalizujący błąd systematyczny B dla $n = 3$,
 $d_1 = 1$, $d_2 = 2$

Dla przypadku $d_1 = 1$, $d_2 = 2$ okazało się, że nie istnieją plany o liczbie punktów trzy lub cztery, natomiast wśród badanych podzbiorów istnieją plany zawierające 5 i więcej punktów. Autorzy wyznaczyli plany złożone z 6, 7, 8 i 9 punktów. Przykładowy plan składający się z podzbiorów 1^0 i 2^0 przedstawiono na rys. 2, gdzie parametr $p = 0,621$, $q = 0,339$. W przypadku $d_1 = 2$, $d_2 = 3$, wykorzystując te same podzbiory, zbudowano plany o liczebności od 8 do 15 punktów eksperymentalnych, uwzględniając w tej liczbie punkty w początku układu współrzędnych $(0, 0)$. Kompletną listę planów zawiera praca [6].

W analogiczny sposób rozwiązano zadanie dla $n = 4$ w pracy [7]. W tym przypadku rozpatrywano układ współrzędnych z_1, z_2, z_3 , w którym początek układu pokrywa się ze środkiem czworościanu, a wierzchołki czworościanu mają współrzędne: $(1, 1, -1)$, $(1, -1, 1)$, $(-1, 1, 1)$, $(-1, -1, -1)$. Wybrane zostały następujące zbiory punktów:

1^0 $(a, a, -a)$, $(a, -a, a)$, $(-a, a, a)$, $(-a, -a, -a)$;

2^0 (b, b, b) , $(b, -b, -b)$, $(-b, b, -b)$, $(-b, -b, b)$;

3^0 $(\pm h, 0, 0)$, $(0, \pm h, 0)$, $(0, 0, \pm h)$;

4^0 $(-r, -s, -t)$, $(-r, s, t)$, $(r, -s, t)$, $(r, s, -t)$, $(-t, r, s)$, $(t, -r, s)$,
 $(t, r, -s)$, $(-t, -r, -s)$, $(-s, t, r)$, $(s, -t, r)$, $(s, t, -r)$, $(-s, -t, -r)$.

Ze zbiorów tych, dla przypadku $d_1 = 1$, $d_2 = 2$, utworzono plany zawierające od 8 do 12 punktów eksperymentalnych. Dla przykładu plan złożony ze zbiorów 1^0 i 2^0 jest planem o ośmiu punktach, gdzie parametry a i b wynoszą: $a = 0,548$, $b = 0,315$. Dla przypadku $d_1 = 2$, $d_2 = 3$ plany przedstawione w [7] zawierają od 18 do 24 punktów (w tym również punkty centralne).

2b. Plany minimalizujące ogólny błąd kwadratowy

Sposób postępowania dla minimalizacji ogólnego błędu kwadratowego wyrażonego wzorem (11) polega na efektywnym obliczeniu tego błędu przez wykonanie całkowania, a następnie minimalizacji otrzymanego wyrażenia. Taki sposób postępowania przyjęto w pracy [6] dla $n = 3$, $d_1 = 1$, $d_2 = 2$ oraz $d_1 = 2$, $d_2 = 3$, a w pracy [7] dla $n = 4$ i tych samych wartości d_1 i d_2 . W pracach tych rozpatrzono także problem przekształcania planów minimalizujących błąd systematyczny w plany minimalizujące błąd ogólny.

Becker [3] podał ogólną postać planu minimalizującego wyrażenie (11) dla dowolnego n oraz $d_1 = 1$, $d_2 = 2$. Rozwiązanie dotyczy planów o diagonalnej macierzy układu równań normalnych (planów ortogonalnych) oraz zcentrowanych w początku układu. Plan Bec-

kera $D_n(r, c_r)$ określa się następująco: na brzegu sympleksu S znajduje się $\binom{n}{r}$ różnych regularnych sympleksów $(r-1)$ -wymiarowych określonych przez warunek $\sum_{i=1}^r x_i = 1$. Zespół $\binom{n}{r}$ punktów składających się ze środków tych sympleksów nazwiemy planem $D_n(r, 1)$. Należy on do rodziny $D_n(r, c_r)$ planów ($0 < c_r \leq 1$), których punkty mają współrzędne postaci

$$(18) \quad x_{jk} = c_r \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{n} \right) \quad k = 1, 2, \dots, r$$

$$x_i = -\frac{c_r}{n} \quad \text{poza tym.}$$

Plan $D_n(r, c_r)$ jest otrzymywany z $D_n(r, 1)$ przez ruch punktów planu $D_n(r, 1)$ które leżą na brzegu S , wzdłuż prostych w kierunku środka sympleksu S o wielkość zależną od c_r . W szczególności wszystkie punkty planu $D_n(r, 0)$ są środkami sympleksu, zaś planu $D_n(1, 1)$ - jego wierzchołkami. Autor sugeruje stosowanie dwu lub więcej planów typu $D_n(r, c_r)$ i dodawanie N_0 punktów w początku układu.

Innym planem zaproponowanym w [3] jest plan $D_n(r, c_r, k_r)$. Jest to zbiór $n \binom{n}{r}$ punktów mających współrzędne postaci:

$$(19) \quad x_{jh} = c_r \left(k_r + \frac{1-k_r}{r} - \frac{1}{n} \right); \quad x_{jk} = c_r \left(\frac{1-k_r}{r} - \frac{1}{n} \right);$$

$$x_i = \frac{-c_r}{n} \quad \text{poza tym} \quad 1 \leq k \neq h \leq r$$

$$\frac{-1}{r-1} \leq k_r \leq 1.$$

Konstrukcja planu. Na brzegu sympleksu S jest $\binom{n}{r}$ różnych $(r-1)$ -wymiarowych sympleksów określonych przez frakcje r składników. Rozpatrzmy r punktów w środku każdego z tych sympleksów. Dla $k_r > 0$ przesuńmy każdy z tych r punktów po prostej w kierunku jednego z r wierzchołków $(r-1)$ -wymiarowego sympleksu o wielkość zależną od r . Każdy punkt porusza się w kierunku innego wierzchołka, ale wszystkie o tę samą wielkość. Dla $k_r < 0$ poruszamy się w kierunku od wierzchołka. W szczególności $D_n(r, c_r, 0)$ jest r -krotnym powtórzeniem $D_n(r, c_r)$, a plan $D_n(r, c_r, 1)$ jest $\binom{n-1}{r-1}$ -krotnym powtórzeniem planu $D_n(1, c_r)$.

3. Plany z ograniczeniami na zmiany składników mieszanin

W praktyce badania mieszanin często występują dodatkowe ograniczenia na zakresy badanych składników. Oznacza to, że oprócz warunków wyznaczających sympleks S:

$$(20) \quad x_i \geq 0, \quad \sum_{i=1}^n x_i = 1, \quad i = 1, 2, \dots, n$$

wprowadzone zostaną pewne ograniczenia postaci

$$(21) \quad f(x_1, x_2, \dots, x_n) \geq 0$$

wiążące zmienne x_i . Obecnie rozpatrzone zostaną prace omawiające niektóre przypadki tych ograniczeń.

3a. Plany z niezerowymi frakcjami wszystkich składników

Częstym i ważnym z praktycznego punktu widzenia ograniczeniem na frakcje składników mieszaniny jest ograniczenie

$$(22) \quad x_i > 0 \quad \text{dla} \quad i = 1, 2, \dots, n.$$

Postuluje ono, by w każdym punkcie planu doświadczenia występowały wszystkie składniki mieszaniny w niezerowych proporcjach. Zadanie budowy takich planów rozpatrzył Lambrakis [10], proponując następujące rozwiązanie. Wprowadza się oznaczenia:

$$f_i \quad (1 \leq i \leq n) - \text{odpowiedź mieszaniny z frakcjami } x_i = \frac{1}{2}, \quad x_r = \frac{1}{2}(n-1)^{-1} \text{ dla } 1 \leq r \leq n, \quad r \neq i;$$

$$g_{ij} \quad (1 \leq i < j \leq n): \quad x_i = x_j = \frac{1}{3}, \quad x_r = \frac{1}{3}(n-2)^{-1}, \quad 1 \leq r \leq n, \quad r \neq i, j;$$

$$h_{iij} \text{ oraz } h_{ijj} \quad (1 \leq i < j \leq n):$$

$$x_i = \frac{2}{4}, \quad x_j = \frac{1}{4}, \quad x_r = \frac{1}{4}(n-2)^{-1}, \quad 1 \leq r \leq n, \quad r \neq i, j;$$

$$x_i = \frac{1}{4}, \quad x_j = \frac{2}{4}, \quad x_r = \frac{1}{4}(n-2)^{-1}, \quad 1 \leq r \leq n, \quad r \neq i, j;$$

$$t_{iii} \text{ oraz } t_{ijj} \quad (1 \leq i < j \leq n):$$

$$x_i = \frac{3}{5}, \quad x_j = \frac{1}{5}, \quad x_r = \frac{1}{5}(n-2)^{-1}, \quad 1 \leq r \leq n, \quad r \neq i, j;$$

$$x_i = \frac{1}{5}, \quad x_j = \frac{3}{5}, \quad x_r = \frac{1}{5}(n-2)^{-1}, \quad 1 \leq r \leq n, \quad r \neq i, j;$$

$$u_{ijk} \quad (1 \leq i < j < k \leq n):$$

$$x_i = x_j = x_k = \frac{1}{4}, \quad x_r = \frac{1}{4}(n-3)^{-1}, \quad 1 \leq r \leq n, \quad r \neq i, j, k;$$

$v_{ijjk}, v_{ijjk}, v_{ijkk} (1 \leq i < j < k \leq n):$

$$x_i = \frac{2}{5}, x_j = \frac{1}{5}, x_k = \frac{1}{5}, x_r = \frac{1}{5} (n-3)^{-1}, 1 \leq r \leq n, r \neq i, j, k;$$

$$x_i = \frac{1}{5}, x_j = \frac{2}{5}, x_k = \frac{1}{5}, x_r = \frac{1}{5} (n-3)^{-1}, 1 \leq r \leq n, r \neq i, j, k;$$

$$x_i = \frac{1}{5}, x_j = \frac{1}{5}, x_k = \frac{2}{5}, x_r = \frac{1}{5} (n-3)^{-1}, 1 \leq r \leq n, r \neq i, j, k;$$

$v_{ijkl} (1 \leq i < j < k < l \leq n):$

$$x_i = x_j = x_k = x_l = \frac{1}{5}, x_r = \frac{1}{5} (n-4)^{-1}, 1 \leq r \leq n, r = i, j, k, l.$$

Dla tak określonych planów i odpowiedzi podane są w pracy [10] dla modelu drugiego stopnia proste wzory na oszacowania współczynników regresji oraz ich błędów standardowych. Wzory te obowiązują dla $n \geq 4$.

3b. Plany z ograniczeniami w postaci wielościanu

W praktyce najbardziej typowymi ograniczeniami na frakcje są ograniczenia następujące:

$$(23) \quad 0 \leq a_i \leq x_i \leq b_i \leq 1 \quad \text{dla } i = 1, 2, \dots, n.$$

Ograniczenia takie powodują, że badany w doświadczeniu obszar staje się wielościanem zawartym w sympleksie S . Planowanie doświadczeń na wielościanie tego typu rozpatrywał w szczególnym przypadku Scheffe [15], uwzględniając ograniczenie z góry, dotyczące tylko jednego składnika. Ogólniejsze ograniczenia (23) rozpatruje praca [11]. Dla wielomianu drugiego stopnia poszukuje się planu, w którym punkty rozmieszczone są na wielościanie (23) w ten sposób, że należą do nich wierzchołki wielościanu. Zaproponowany algorytm wyznaczania planu jest następujący:

1° Wypisuje się $(n-1)$ -wymiarowe wektory (w każdym wektorze opuszcza się jedną składową), których składowe mogą przyjmować wartości a_i i b_i . Różnych takich wektorów jest $n \cdot 2^{n-1}$.

2° Spośród wypisanych wektorów należy wybrać te, których suma składowych jest mniejsza niż 1. Dla tych wektorów, w miejsce opuszczonych składowych, wprowadza się składowe o wartościach uzupełniających sumę składowych do jedności. Otrzymane wektory są punktami planu - wierzchołkami wielościanu.

3° Dla otrzymania planu drugiego stopnia, do otrzymanych punktów, dodaje się punkty, których współrzędne oblicza się jako średnie arytmetyczne współrzędnych wierzchołków mających wspólne krawędzie.

Wadą skonstruowanych planów jest duża liczba punktów doświadczalnych oraz brak prostych wzorów na współczynniki regresji.

3c. Plany z ograniczeniami w postaci elipsoidy

Praca Thompsona i Myersa [18] rozpatruje zagadnienie planowania doświadczenia z mieszaninami w przypadku gdy "obszar zainteresowań" badacza jest elipsoidą. Obszar ten określa się jak następuje.

Oznaczmy przez $\bar{x}_0^T = (x_{01}, x_{02}, \dots, x_{0n})$, $\sum_{i=1}^n x_{0i} = 1$, środek obszaru zainteresowania R. Obszar R jest elipsoidą, w której odległość osi równoległych do x_1 jest $2h_1$ ($i=1, 2, \dots, n$), gdzie h_1 jest wielkością określoną przez eksperymentatora. Wprowadza się zmienne

$$(24) \quad v_1 = \frac{x_1 - x_{01}}{h_1}$$

które przekształcają R w sferę jednostkową o środku w punkcie $\bar{v}_0 = 0$. Ograniczenie na obszar R w zapisie wektorowym ma postać

$$(25) \quad \sqrt{v^T v} \leq 1.$$

Dla tak określonego obszaru rozpatruje się modele pierwszego i drugiego stopnia i wybiera plany z klasy planów ortogonalnych oraz mających symetrię obrotową (rotatabilnych).

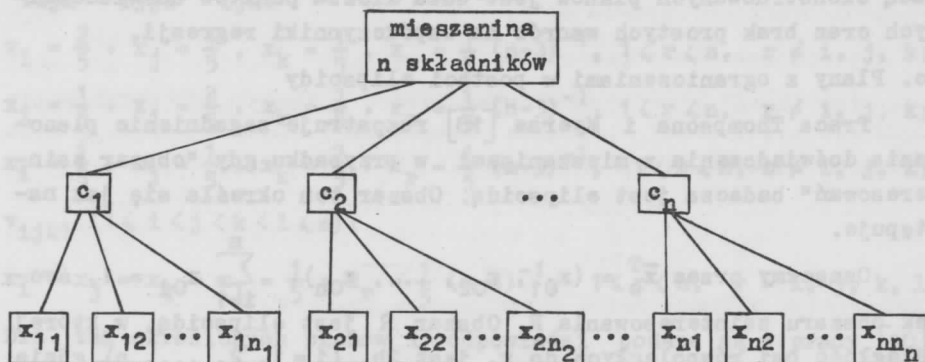
4. Plany doświadczeń z "pod-składnikami"

W praktyce zdarzają się sytuacje, w których n składników mieszaniny $c_i \gg 0$, $i = 1, 2, \dots, n$, $\sum_{i=1}^n c_i = 1$ jest mieszaninami innych składników z frakcjami $x_{ij} \gg 0$ ($i=1, 2, \dots, n$, $j = 1, 2, \dots, n_1$) $\sum_{j=1}^{n_1} x_{ij} = 1$ dla każdego $i = 1, 2, \dots, n$ (por. rys. 3).

Zagadnienie planowania doświadczeń dla przypadku "pod-składników" rozpatrywał Lambrakis [9]. Analizował on sytuację, w której frakcje c_i są ustalone, natomiast x_{ij} przyjmują wartości siatki sympleksowej (n_1, m_1) , to jest

$$(26) \quad x_{ij} = 0, \frac{1}{m_1}, \frac{2}{m_1}, \dots, 1 \text{ dla każdego } i = 1, 2, \dots, n.$$

Plany siatkowo-sympleksowe (n_1, m_1) wraz ze stałymi frakcjami c_i tworzą wielokrotną siatkę $(n_1, n_2, \dots, n_n; m_1, m_2, \dots, m_n)$ będą-



Rys. 3. Struktura mieszanki z "pod-składnikami"

ca pewnym uogólnieniem planu siatkowo-sympleksowego Scheffego. W pracy [9] rozpatruje się przypadek dwóch grup składników na przykładzie siatek $(p, 3)$ i $(q, 2)$. Wprowadźmy oznaczenia:

$$\begin{aligned}
 & x_{1j} = c_1 x_{1j} \quad (i = 1, 2, \dots, n; j = 1, 2, \dots, n_1) \\
 (27) \quad & n_1 = p; \quad x_{1j} = x_j; \quad X_{1j} = c_1 x_j = X_j \quad (j = 1, 2, \dots, p) \\
 & n_2 = q; \quad x_{2j} = z_j; \quad X_{2j} = c_2 z_j = Z_j \quad (j = 1, 2, \dots, q) \\
 & y - \text{odpowiedź mieszanki.}
 \end{aligned}$$

Siatka $(p, 3)$ zawiera:

p czystych składników y_{iii} ($1 \leq i \leq p$) z $x_i = 1$;

$\binom{p}{2}$ mieszanin y_{ijj} z frakcjami $x_i = 2/3$, $x_j = 1/3$ oraz $\binom{p}{2}$ mieszanin y_{ijj} z frakcjami $x_i = 1/3$, $x_j = 2/3$ ($1 \leq i < j < p$);

$\binom{p}{3}$ mieszanin y_{ijk} ($1 \leq i < j < k \leq p$) z frakcjami $x_i = x_j = x_k = 1/3$.

Siatka $(q, 2)$ zawiera:

q czystych składników y_{ii} ($1 \leq i \leq q$), $z_i = 1$;

$\binom{q}{2}$ mieszanin y_{ij} ($1 \leq i < j < q$) z frakcjami $z_i = z_j = 1/2$.

Łącząc każdą mieszankę z siatki $(p, 3)$ z każdą z siatki $(q, 2)$ w proporcjach c_1 i c_2 otrzymujemy siatkę podwójną $(p, q; 3, 2)$ postaci:

pq mieszanin o odpowiedzi $y_{iii,jj}$,

$\binom{q}{2}$ mieszanin o odpowiedzi $y_{iii,jk}$,

$\binom{p}{2} q$ mieszanin o odpowiedzi $y_{iij,kk}$,

$\binom{p}{2} q$ mieszanin o odpowiedzi $y_{ijj,kk}$,

$\binom{p}{2} \binom{q}{2}$ mieszanin o odpowiedzi $y_{ijj,kl}$,

$\binom{p}{2} \binom{q}{2}$ mieszanin o odpowiedzi $y_{iij,kl}$,

$\binom{p}{3}q$ mieszanin o odpowiedzi $y_{ijk,11}$,

$\binom{p}{2}\binom{q}{2}$ mieszanin o odpowiedzi $y_{ijk,lm}$.

Dla tak określonych planów wyznaczono w pracy [9] oszacowanie współczynników równań regresji otrzymanych przez pomnożenie zredukowanych wielomianów odpowiednio drugiego i trzeciego stopnia. Wielomian, którego współczynniki oszacowano, otrzymał postać:

$$\begin{aligned}
 (28) \quad y = & \sum_{i=1}^p \sum_{j=1}^q \alpha_{i,j} x_i z_j + \sum_{i=1}^p \sum_{1 \leq j < k \leq q} \alpha_{i,jk} x_i z_j z_k + \\
 & + \sum_{1 \leq i < j \leq p} \sum_{k=1}^q \alpha_{ij,k} x_i x_j z_k + \\
 & + \sum_{1 \leq i < j \leq p} \sum_{1 \leq k < l \leq q} \alpha_{ij,kl} x_i x_j z_k z_l + \\
 & + \sum_{1 \leq i < j \leq p} \sum_{k=1}^q \beta_{ij,k} x_i x_j (x_i - x_j) z_k + \\
 & + \sum_{1 \leq i < j < k \leq p} \sum_{l=1}^q \alpha_{ijk,l} x_i x_j x_k z_l + \\
 & + \sum_{1 \leq i < j < k \leq p} \sum_{1 \leq l < m \leq q} \alpha_{ijk,lm} x_i x_j x_k z_l z_m.
 \end{aligned}$$

Praca podaje również wariancje przewidywanych odpowiedzi.

5. Model funkcji odpowiedzi, która nie jest wielomianem

Opis właściwości mieszanin za pomocą modeli wielomianowych ma braki związane z opisem właściwości mających tzw. efekt addytywności. Zwracają na to uwagę Quenouille [14] i Scheffe [16]. Becker [1] definiuje efekt addytywności jak następuje.

Niech $f(x_1, x_2, \dots, x_n)$ przedstawia odpowiedź n -składnikowej mieszaniny. Mówimy, że następny składnik (którego frakcję oznaczamy przez x_{n+1}) ma efekt addytywny w stosunku do mieszaniny pozostałych n składników, jeżeli odpowiedź w obszarze badania $(n+1)$ -składnikowej mieszaniny ma postać:

$$(29) \quad \alpha_{n+1} x_{n+1} + (1 - x_{n+1}) f(x_1/(1-x_{n+1}), \dots, x_n/(1-x_{n+1})).$$

Funkcja f spełniająca warunek (29) jest funkcją jednorodną stopnia pierwszego. Aby realizować kolejne przybliżanie funkcji odpo-

wiedzi oraz dla prostoty interpretacji wprowadza się model

$$(30) \quad f = \sum \alpha_{1j} g_{1j}(x_1) + \sum \alpha_{1j} g_{1j}(x_1, x_j) + \dots + \\ + \alpha_{1,2,\dots,n} g_{1,2,\dots,n}(x_1, x_2, \dots, x_n).$$

Przykładowe funkcje g wykorzystywane w modelu (30) zestawiono w tabelicy 1.

Tabela 1. Funkcje g dla modelu (30)

	Modele	
	I	II
$g_2(x_1, x_j)$	$\min(x_1, x_j)$	$(x_1 x_j)^{1/2}$
$g_3(x_1, x_j, x_k)$	$\min(x_1, x_j, x_k)$	$(x_1 x_j x_k)^{1/3}$
...
$g_n(x_1, x_2, \dots, x_n)$	$\min(x_1, x_2, \dots, x_n)$	$(x_1 x_2 \dots x_n)^{1/n}$

6. Uogólnienie planów Scheffego

Plany siatkowo-sympleksowe i środkowo-sympleksowe zostały w pracy Murty i Dasa [13] uogólnione w następujący sposób.

Niech punkt $(x_{u1}, x_{u2}, \dots, x_{un})$ planu z mieszaninami o n składnikach, gdzie d spośród x_{ui} nie równa się zero, nazywa się mieszaniną rzędu d i będzie oznaczany przez S_d . Niech d_1 spośród x_{ui} z S_d będzie każde równe q_1 , d_2 równe q_2 itd., d_h równe q_h , tak, że $d_1 + d_2 + \dots + d_h = d$ oraz $d_1 q_1 + d_2 q_2 + \dots + d_h q_h = 1$. Niech wszystkie mieszaniny S_d rzędu d otrzymane przez permutację różnych frakcji w mieszaninie o n składnikach będą zapisane w postaci macierzy G_d . Każda mieszanina S_d niech tworzy wiersz macierzy G_d , a i -ty składnik niech będzie reprezentowany przez i -tą kolumnę tej macierzy. Liczba wierszy w macierzy G_d jest dana przez

$$(31) \quad w_d = \binom{n}{d_1} \binom{n-d_1}{d_2} \binom{n-(d_1+d_2)}{d_3} \dots \binom{n-(d_1+\dots+d_{h-1})}{d_h}$$

Wiersze G_d traktowane jako punkty planu spełniają warunki symetrii (frakcje występują w różnych kolumnach symetrycznie).

Definicja. Symetryczny plan sympleksowy dla doświadczeń z mieszaninami składa się z pewnych (bądź wszystkich) macierzy G_d , $d = 1, 2, \dots, n$, gdzie każda macierz G_d jest otrzymana przez permutację różnych frakcji z n składników w mieszaninie rzędu d z d_1 składnikami mającymi frakcję q_1 , d_2 mającymi frakcję q_2 itd., d_h -

mającymi frakcję q_h , przy czym $d_1 + d_2 + \dots + d_h = d$ oraz $d_1 q_1 + d_2 q_2 + \dots + d_h q_h = 1$.

Plan siatkowo-sympleksowy Scheffe (n, m) jest szczególnym przypadkiem symetrycznego planu sympleksowego. Ma on różną liczbę macierzy G_d dla każdego d . Na przykład plan $(n, 6)$ ma 3 macierze G_2 których wiersze otrzymuje się z ciągów $(1/6, 5/6, 0, \dots, 0)$, $(1/3, 2/3, 0, \dots, 0)$, $(1/2, 1/2, 0, \dots, 0)$. Plan środkowo-sympleksowy ma wszystkie n macierzy G_d , każda złożona z niezerowych frakcji równych $1/d$ w każdej mieszaninie S_d .

Literatura cytowana

- [1] Becker, N. G., Models for the response of a mixture, J.R.S.S., ser. B, 30 (1968), str. 349-358.
- [2] Becker, N. G., Regression problems when the predictor variables are proportions, J.R.S.S., ser. B, 31 (1969), str. 107-112.
- [3] Becker, N. G., Mixture designs for a model linear in the proportions, Biometrika 57 (1970), str. 329-338.
- [4] Box, G.E.P., Draper, N. R., A basis for the selection of a response surface design, J.A.S.A. 54 (1959), str. 622-654.
- [5] Czernlewa, T. A., Mikeszina, N.G., Primienienije sympleks - reszczetczatowo płanirowanija pri issledowanii diagram sostawswojstwo, w pracy zbiorowej Nowyje idei w płanirowanii eksperimienta, Moskwa 1969, str. 191-208.
- [6] Draper, N. R., Lawrence, W., Mixture design for three factors, J.R.S.S., ser. B, 27 (1965), str. 450-465.
- [7] Draper, N.R., Lawrence, W., Mixture designs for four factors, J.R.S.S., ser. B, 27 (1965), str. 473-478.
- [8] Gorman, J. W., Hinman, J.E., Simplex lattice designs for multicomponent systems, Technometrics 4 (1962), str. 463-487.
- [9] Lambrakis, D. P., Experimentation with mixtures: A generalization of the simplex-lattice design, J.R.S.S., ser. B, 30 (1968), str. 123-136.
- [10] Lambrakis, D.P., Experiments with p-component mixtures, J.R.S.S., ser. B, 30 (1968), str. 137-144.
- [11] Mc Lean, R. A., Anderson, V. L., Extreme vertices design of mixture experiments, Technometrics 8 (1966), str. 447-454.

- [12] Mikeszina, N. G., *Planowanie eksperymentów na sympleksie (izuczenie swojstw smiesi), w pracy zbiorowej Nowyje idei w planowaniu eksperymentu*, Moskwa 1969, str. 177-190.
- [13] Murty, J.S., Das, M. N., *Designs and analysis of experiments with mixtures*, A.M.S. 39 (1968), str. 1517-1539.
- [14] Quenouille, M. H., *Experiments with mixtures*, J.R.S.S., ser. B, 21 (1959), str. 201-202.
- [15] Scheffe, H., *Experiments with mixtures*, J.R.S.S., ser. B, 20 (1958), str. 344-360.
- [16] Scheffe, H., *Reply to Mr Quenouille's comments about my paper on mixtures*, J.R.S.S., ser. B, 23 (1961), str. 171-172.
- [17] Scheffe, H., *The simplex-centroid design for experiments with mixtures*, J.R.S.S., ser. B, 25 (1963), str. 235-263.
- [18] Thompson, W. O., Myers, R. H., *Response surface designs for experiments with mixtures*, *Technometrics* 10 (1968), str. 739-756.
- [19] Zedginidze, I. G., *Matematyckeskoje planowanie eksperymentu dla issledowanija i optimizacii swojstw smieszej*, Tbilisi 1971.