

# 均匀设计法在我所化学电源专业的推广应用

义宇雁 贺必新 许艳芳

(中国船舶重工集团公司 712 研究所)

## 1. 前言

“均匀设计”是我国统计学家中国科学院应用数学研究所方开泰教授和中科院院士王元教授将数论与多元统计相结合创立的一种供多因素、多水平实验用、可减少实验次数的全新的最优试验设计方法。其特点是将试验点均匀地分布在试验范围内，用较少的试验点来获得最多的信息。这一方法结合统计调优把所得的数据进行整理、分析、判断，用逐步回归法建立回归方程，并进行方差分析和显著性检验，通过方程预报、等值线图、曲线图等数学方法，揭示出隐含于数据中的信息，找出试验条件间的最佳组合，可实现用最少的试验次数和最短的试验时间，达到寻找最佳效果的目的。由于均匀设计不再具有整齐可比的特点，因而不能象正交试验那样，通过简单的方差分析方法来处理所得的数据，而必须借助计算机来进行数据处理。

我所在均匀设计推广应用到化学电源研究过程方面做了一些工作，在应用过程中均匀设计明显地促进了我所相关项目的研究工作。下面是我所在相关项目工作中的情况介绍。

## 2. 利用均匀设计方法优化鱼雷用电池的设计研究

半个世纪以来，一些水下运载器的动力电池的发展从由锌/氧化银一次电池、镁/氯化银(或氯化亚铜)海水激活电池，到铝/氧化银海水激活电池等在不断更新，性能得到大幅度提高。而与之相匹配的训练装备用动力电池却只有锌/氧化银二次电池，性能已明显满足不了使用要求。我们所研究的某型训练装备用电池采用的是目前训练用电池中技术较先进的锌/氧化银电池，影响其性能的主要有正极物质、正极添加剂、正极骨架、正极片数、正极粉量、正极厚度，负极物质、负极添加剂、负极骨架、负极片数、负极粉量、负极厚度，包覆物，隔膜和电液量等十多个因素，采用常规的试验方法不仅投资相当大，试验周期长，而且数据处理困难往往很难得到相关因素的数学模型。

本项目研究的目的是利用均匀设计方法对该型训练装备用的锌/氧化银电池的试验结果进行处理，建立数学模型并对模型进行分析，目的是找出影响该型训练装备用锌/氧化银电池性能的各个因素及各因素之间的关系。使电池的正、负极活性物质、隔离物等设计要素趋于合理。提高电池比能，延长电池寿命。

### 2.1 试验设计

我们在近百个已经进行过的试验方案，数百次试验的基础上，选取正极粉量、负极粉量、正、负极骨架进行 3 因素 4 水平以及包覆物、隔膜 2 因素 3 水平的混

合试验设计，利用均匀设计软件包对试验设计进行了优化组合，其中正极粉量、负极粉量、正、负极骨架为定量选择，包覆物、隔膜为定性选择。设计因素水平见表 1，水平设计表见表 2。

表 1 均匀设计因素水平表

因素 \ 水平	1	2	3	4
正极粉量(g)	a	a+1	a+2	a+3
负极粉量(g)	b	b+0.5	b+1	b+1.5
正、负极骨架	c	c+10	c+20	c+30
包覆物	1	2	3	
隔膜	1	2	3	

表 2 拟水平设计  $U_{10}(3^4 \times 2^3)$  表

N0:	X1	X2	X3	X4	X5
1	1(1)	1(1)	3(7)	2(5)	3(9)
2	1(2)	2(5)	2(4)	3(10)	1(1)
3	2(3)	4(9)	2(3)	1(3)	2(5)
4	2(4)	1(2)	2(5)	1(1)	2(7)
5	2(5)	2(3)	4(10)	3(8)	2(4)
6	3(6)	4(10)	1(2)	2(6)	1(2)
7	3(7)	3(6)	1(1)	2(7)	3(8)
8	3(8)	3(7)	3(8)	3(9)	1(3)
9	4(9)	3(8)	4(9)	1(2)	2(6)
10	4(10)	2(4)	3(6)	2(4)	3(10)

试验中按锌/氧化银电池总装工艺装成 1:1 的电池，按检试大纲进行性能检测。

## 2.2 实验结果见表 3

表 3 均匀设计实施计划结果

试验号	正极粉量	负极粉量	正、负极骨架	包覆物	隔膜	Y(放电时间)
1	a	b	c+20	2	3	5.48
2	a	b+0.5	c+10	3	1	5.93
3	a+1	b+1.5	c+10	1	2	6.01
4	a+1	b	c+10	1	2	5.91
5	a+1	b+0.5	c+30	3	2	6.58
6	a+2	b+1.5	c	2	1	5.47
7	a+2	b+1	c	2	3	5.76
8	a+2	b+1	c+20	3	1	5.87
9	a+3	b+1	c+30	1	2	5.96
10	a+3	b+0.5	c+20	2	3	5.64

## 2.3 实验结果的回归分析

利用均匀协会提供的均匀设计软件包在微机上对上述结果进行处理，采用逐

步回归的方法，通过选择适当的模式及确定引入和剔除变量的 F 统计的临界值，对各个因变量建立数学模型。

确定引入变量的 F 临界值  $F_1=0.5$

剔除变量的 F 临界值  $F_2=0.5$

经过处理的回归方程如下：

$$Y=1.957095X_5+0.000983X_1X_2+0.016439X_1X_5+0.043398X_2X_5+0.002516X_3X_4+0.127823X_4^2+0.014550X_4X_5+0.700865X_5^2$$

表 4 方差分析

方差来源	平方和	自由度	均方	F
回归 SR	0.9133	f1=8	0.1142	44840
残差 SE	0	f2=1	0	
总和 ST	0.9133	9		

复相关系数  $R=1.0000$

剩余标准差  $S=0.0016$

由表 4 可以看出，F 统计量值=44840 >  $F_{(0.05)}=239$ ，说明所得回归方程是可靠的。

## 2.4 工艺条件的优化及重复试验

依据方程求最佳配合为：

正极粉量 a+3，负极粉量 b+1.5，正、负极骨架 C，包覆物 3，隔膜 2.125

因隔膜属定性选择，为此，我们通过比较计算，在工艺条件操作方便的情况下，选定配方为正极粉量 a+3，负极粉量 b+1.5，正、负极骨架 C+10，包覆物 3，隔膜 2。试验结果表现了良好的性能，较好的满足了装配用训练电池的使用要求。

## 2.5 结论

- 2.5.1 本文利用均匀设计法对某型训练用装备的锌/氧化银电池进行了优化设计，得到最佳组合，为实际操作方便，我们在最佳组合的基础上优选试验方案为：正极粉量 a+3，负极粉量 b+1.5，正、负极骨架 c+10，包覆物 3，隔膜 2。按此方案进行试验，电池性能不仅满足了检试大纲使用要求，而且优于原各种组合。
- 2.5.2 用均匀设计法进行多因素多水平试验，不仅可以对组分进行定量选择，而且可以对物件定性选取。
- 2.5.3 运用均匀设计对试验数据进行处理，可得到较为合理的最佳组合。
- 2.5.4 用均匀设计法进行多因素多水平试验，可以节约大量的时间和费用。按常规的试验方法本试验需上百次试验，而采用均匀设计方法，10 次试验就取得了较好的结果，工作效率大大提高。

因此，均匀设计技术在鱼雷电池研究中的推广应用，大大提高了研究工作的进度和可靠性，取得了显著的经济和社会效益。

## 3、均匀设计法在低锑多元合金研究中的应用

铅酸蓄电池主要由正极板、负极板、电解液(硫酸溶液)、隔板、电池槽、电池盖等组成。其中，极板又由板栅和活性物质组成，板栅的作用有两种，一是作为载体，支撑活性物质，其次是作为电流的集电器和传导器。目前的使用的铅酸蓄

电池大多为少维护或密封铅酸蓄电池，其板栅合金大多为低锑或无锑合金。随着板栅中锑含量的降低，会不可避免地出现合金的流动性降低、机械强度劣化等现象，因此需要通过添加一些微量元素来解决这些问题。为此，我们针对影响低锑合金耐腐性能元素较多的特点，选取了五种金属添加剂，为考察这五种添加剂的不同添加量对板栅合金的耐腐性能的影响，我们采用了均匀设计法。

### 3.1 试验设计及试验结果

本试验欲考察的影响低锑合金耐腐性能的五种因素为：A、B、C、D、E，每个因素考察 10 个水平。由于需要考察的因素较多，同时，由于在同一工艺中的因素较多，因素间难免会存在交互影响，因此用传统的单因素作曲线图法进行试验无法全面周到地考察试验的内在规律。正交设计法虽然也可以考察简单的交互作用，但在水平数较多且交互影响较复杂时，用正交设计法不但试验次数多（本试验若用正交设计至少需做 100 次试验）而且也不太容易考察清楚各因素间的交互影响，而导致混杂的情况出现。均匀设计法则尤其适用于多因素多水平的试验设计，它可以大大减少试验次数，提高效率、节省经费。

本试验根据个因素的取值范围和试验精度的要求，把每一因素都分为 10 个水平（如表 5 所示），并利用均匀设计软件来选用均匀设计表。

均匀设计软件所提供的 5 因素 10 水平的设计表有：U\*表、UL 表，其偏差分别为：0.3291、0.3331，因此我们选用了  $U_{10}^*(10^5)$  均匀设计表来安排试验，试验方案及试验结果见表 6。

按表 5 的添加量，分别称取各种金属材料，配制实验所需的 10 种合金，然后浇铸出腐蚀面积为  $5.8\text{cm}^2$  的极板。

将待试的极板的外型和表面进行严格修整打磨，然后称重，并浸入比重为  $1.32\text{g/cm}^3$  的硫酸溶液中，在常温下以  $5\text{mA/cm}^2$  的电流恒流腐蚀 3 天。试验完毕，将极板用水冲洗，然后置于糖碱溶液中煮沸 10~15 分钟，使棕褐色腐蚀产物全部除掉，直到呈现板栅本色。取出极板，用蒸馏水冲洗后擦干，放入恒温箱中用 60~80 烘干 2 小时左右，取出称重，得到的腐蚀量如表 6 所示。

表 5 5 因素 10 水平的因素水平表

因素	水平									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
A ( $X_1$ )	0	0.04	0.06	0.08	0.10	0.12	0.14	0.16	0.18	0.20
B ( $X_2$ )	0	0.20	0.30	0.40	0.50	0.60	0.70	0.80	0.90	1.00
C ( $X_3$ )	0	0.04	0.06	0.08	0.10	0.12	0.14	0.16	0.18	0.20
D ( $X_4$ )	0	0.02	0.03	0.04	0.05	0.06	0.07	0.08	0.09	0.10
E ( $X_5$ )	0	1.50	2.00	2.50	3.00	3.50	4.00	4.50	5.00	5.50

注：以上数据均为百分含量，余量为铅。

表 6  $U_{10}^*(10^5)$  试验方案及试验结果

因素 水平	$X_1$	$X_2$	$X_3$	$X_4$	$X_5$	Y (mg)
1	1 (0.00)	2 (0.20)	4 (0.08)	8 (0.08)	5 (3.00)	19.0
2	2 (0.04)	4 (0.40)	8 (0.16)	5 (0.05)	10 (5.50)	25.9
3	3 (0.06)	6 (0.60)	1 (0.00)	2 (0.02)	4 (0.50)	24.2
4	4 (0.08)	8 (0.80)	5 (0.10)	10 (0.10)	9 (5.00)	20.1
5	5 (0.10)	10 (1.00)	9 (0.18)	7 (0.07)	3 (2.00)	17.5

6	6 (0.12)	1 (0.00)	2 (0.04)	4 (0.04)	8 (4.50)	22.0
7	7 (0.14)	3 (0.30)	6 (0.12)	1 (0.00)	2 (1.50)	19.7
8	8 (0.16)	5 (0.50)	10 (0.20)	9 (0.01)	7 (4.00)	16.5
9	9 (0.18)	7 (0.70)	3 (0.06)	6 (0.06)	1 (0.80)	20.0
10	10 (0.20)	9 (0.90)	7 (0.14)	3 (0.03)	6 (3.50)	20.9

### 3.2 数据处理

均匀设计的试验数据需进行回归分析才能得到所需的数学模型，我们利用均匀设计软件对试验结果进行了处理。处理结果如下：

#### 3.2.1 一次五元线性回归

通过最优子集法得到的回归方程为：

$$\hat{Y} = 21.9084 - 18.4166 \times X_3 - 45.8403 \times X_4 + 0.9955 \times X_5$$

均匀设计软件计算出来的参数值分别如下：

残差平方和  $SSE = 27.4446$ ；回归平方和  $SSR = 46.0514$ ；总的变差平方和  $SST = 73.4960$ ；复相关系数  $R^2 = 0.6266$ ；估计标准误差  $S_y = 2.1387$ 。

对模型进行方差分析，方差分析表如表 7 所示。

表 7 方差分析表 (1)

方差来源	平方和	自由度	方差	F 值
回归	46.0514	$f_1=3$	15.3505	3.356
残差	27.4446	$f_2=6$	4.5741	
总和	73.4960	9		

根据显著性水平  $\alpha = 0.05$ ,  $df_1=3$ ,  $df_2=10-3-1=6$ , 查 F 分布表得  $F_{0.05}(3,6)=4.76$ , 因为

$$F=3.356 < F_{0.05}(3,6)=4.76$$

所以, F 检验没通过, 表明回归方程回归效果不显著, 回归方程无意义。因此, 我们对试验结果进行了二次线性回归。

#### 3.2.2 二次线性回归

通过逐步回归法得到的回归方程为：

$$\begin{aligned} \hat{Y} = & 18.5463 - 0.17X_1 + 12.3551X_2 + 36.6333X_4 - 112.9120X_1X_3 \\ & - 9.5512X_2^2 - 1.4184X_3X_5 - 961.8827X_4^2 + 0.2146 \times X_5^2 \end{aligned}$$

均匀设计软件计算出来的参数值分别如下：

残差平方和  $SSE = 0.0000$ ；回归平方和  $SSR = 73.4960$ ；总的变差平方和  $SST = 73.4960$ ；复相关系数  $R^2 = 1.0000$ ；估计标准误差  $S_y = 0.0010$ 。

a) 对模型进行方差分析，方差分析表见表 8。

表 8 方差分析表 (2)

方差来源	平方和	自由度	方差	F 值
回归	73.4960	$f_1=8$	9.1870	8637537.9718
残差	0.0000	$f_2=1$	0.0000	
总和	73.4960	9		

根据显著性水平  $\alpha = 0.05$ ,  $df_1=8$ ,  $df_2=10-3-1=1$ , 查 F 分布表得  $F_{0.05}(8,1)=239$ , 因为

$$F=8637537.9718 \gg F_{0.05}(8,1)=239$$

所以, F 检验通过, 表明回归方程回归效果显著, 回归方程有意义。

b) 拟合程度测定

由于复相关系数  $R^2 = 1.0000$ , 表明回归线对试验数据点的拟合程度很高。

c) 回归估计标准误差

回归估计标准误差  $S_y = 0.0010$ , 表明估计标准误差很小。

回归方程通过了各种检验, 表明用这个回归方程来表述板栅的耐腐蚀性能的好坏是合适的。

3.2.3 通过回归方程求最佳配方

经均匀设计软件计算, 板栅的耐腐蚀性能最佳(即腐蚀量最小)时的配方为: A: 0.20%; B: 0.00%; C: 0.20%; D: 0.10%; E: 0.65%。此种配方的腐蚀量预报值为 8mg。但由于此种合金在铸造板栅时存在着工艺的可行性问题, 因此, 我们参照各种配方的预报值的大小, 在工艺可行的条件下选取了一组合适的配方 M, 其各组分含量分别为: A: 0.20%; B: 1.0%; C: 0.20%; D: 0.10%; E: 1.50%。配方 M 的预报值为 10.9mg。我们按照相同的试验方法进行了验证试验, 测得腐蚀量的实际值为 9.6mg, 与预报值接近, 比我们通常使用的低锑合金的耐腐蚀性能提高约 25%。

3.3 结论

通过上述试验, 我们可以看出:

- 3.3.1 用均匀设计法配制的低锑多元合金耐腐蚀性能好, 所选择的最合适的配方 M 为: A: 0.20%; B: 1.0%; C: 0.20%; D: 0.10%; E: 1.50%。该配方的腐蚀量的实测值为 9.6mg, 比我们通常使用的低锑合金的耐腐蚀性能提高约 25%。
- 3.3.2 本试验若采用正交设计至少需做 100 次试验, 而采用均匀设计法, 只做了 10 次试验就达到了预期效果。可见, 利用均匀设计法安排试验, 能大大节省试验次数, 很快选出最佳配方, 提高效率, 节省经费, 并且能找出影响耐腐蚀性能的主要因素, 为进一步的研究工作起到指导作用。

均匀设计在我所化学电源专业的应用情况表明, 该方法在化工、医药等需要配方研究及多因素情况的研究方面, 当然包括电池行业的推广应用, 必将有广阔的前景。