

# 실용적인 혼합물 성분 공정변수 실험설계

임용빈<sup>†</sup>

이화여자대학교 자연과학대학 통계학과

## Practical designs for mixture component-process experiments

Yong B. Lim<sup>†</sup>

Department of Statistics, Ewha Womans University

Key Words : Mixture Components-Process Variables Experiments, Combined Model, Robust Mixture Components-Process Variables Designs, Practical Mixture Components-Process Variables Designs, FDS(Fraction of Design Space) Plots

### Abstract

Process variables are factors in an experiment that are not mixture components but could affect the blending properties of the mixture ingredients. For example, the effectiveness of an etching solution which is measured as an etch rate is not only a function of the proportions of the three acids that are combined to form the mixture, but also depends on the temperature of the solution and the agitation rate. Efficient designs for the mixture components-process variables experiments depend on the mixture components-process variables model which is called a combined model. We often use the product model between the canonical polynomial model for the mixture and process variables model as a combined model. In this paper we propose three starting models for the mixture components-process variables experiments. One of the starting model we are considering is the model which includes product terms up to cubic order interactions between mixture effects and the linear & pure quadratic effect of the process variables from the product model. In this paper, we propose a method for finding robust designs and practical designs with respect to D-, G-, and I-optimality for the various starting combined models and then, we find practically efficient and robust designs for estimating the regression coefficients for those models. We find the prediction capability of those recommended designs in the case of three components and three process variables to be good by checking FDS(Fraction of Design Space) plots.

## 1. 서 론

석유화학분야에서 기술린의 혼합 비율이나, 반도체와 LCD 분야에서의 식각용액의 혼합비, 식음료업에서의 과즙음료의 혼합 비율의 결정, 접착력을 향상시키기 위한 접착제, 표백력과 세탁력을 최적화하는 세제의 혼

합비 등 혼합물을 활용하는 제조업의 분야는 광범위하다. 혼합물 성분들의 비율의 합은 1이고, 제품의 품질 특성과 연계된 반응변수는 혼합물의 총량에는 영향을 받지 않고, 성분들의 비율만의 함수로 가정된다. 예를 들면, 사과, 파인애플, 오렌지 주스를 섞어서 과일 주스를 만든다고 하자. 일반적으로 과일주스의 맛은 3 종류의 주스의 혼합 비율에만 종속하고, 주스의 총량에는 영향을 받지 않는다. 즉, 혼합 비율만 동일하면, 과일주스를 1리터 만들던지 2리터 만들던지 맛은 동일하리라고 기대된다. 많은 혼합물 실험에서 제품의 품질 특성은

<sup>†</sup> 교신저자 yblim@ewha.ac.kr

※ 이 논문은 2010년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단(2010-0023217)의 지원을 받아 수행된 연구임

혼합물 성분들의 비율에 따라서 영향을 받을 뿐만 아니라, 공정의 조건에 따라서도 달라진다. 공정변수는 혼합물의 성분과는 관련이 없는 인자이지만, 수준 값이 달라지면 혼합물의 혼합설계에 영향을 줄 수 있다. 즉, 혼합 비율이 동일한 혼합물일 지라도, 공정의 조건을 달리하면, 제조된 혼합물 완제품의 품질특성인 반응변수의 값이 달라질 수 있다. Cornell (1990)에서 논의된 예를 들면, 생선 패티 혼합물이 민어, 송어, 도미를 혼합하여 구성되는 경우에, 생선 까스의 맛은 생선의 혼합 비율에 따라서도 영향을 받지만, 기름에 튀기는 시간, 요리 온도, 요리 시간에 따라서도 영향을 받는다. 이와 같이 혼합물 성분-공정변수 실험은 화학, 식품공학, 제약 분야 등 소비자 제품을 생산하는 많은 산업 분야에서 흔히 접하게 된다.

혼합물 성분-공정변수 실험설계는 혼합물 성분비와 공정변수들 간의 관계를 설명하는 혼합물 성분-공정변수의 모형에 따라서 결정되는데, 이 결합 모형(combined model)으로는 혼합물 모형과 공정변수 모형의 교적 모형(product model)을 활용하고, 결합 설계(combined design)로는 혼합물 설계와 공정변수 설계의 교적설계를 활용한다. 그런데, 혼합물 성분들의 수인  $q$ 와 공정변수들의 수인  $p$ 가 증가함에 따라서 교적모형의 항들의 개수와 혼합물 성분-공정변수 결합 설계의 크기는 굉장히 커진다. Kowalski 등 (2000), Myers & Montgomery (2009)에서는 실용적인 모형으로 교적모형의 일부 항들로 구성된 부분모형을 제안하고, 실험설계로는 혼합물 공정변수 실험에 대한 2수준 일부실시법과 심플렉스 중심배열법의 교적 설계에 의한 결합설계의 부분 실시법을 제안한다. 혼합물공정변수 모형에 대한 실용적인 실험설계를 선택하는 전략적인 접근 방법은 교적 설계의 실험점들이 실용적인 실험설계의 후보 실험점이 되고, 엔지니어들이 허용할 수 있는 전체 실험의 크기가 주어졌을 때에 실용적인 부분모형에 대해서 D-최적기준에 따라서 후보 실험점들로부터 실험점들을 결정하는 것이다.

이 논문에서는 혼합물 성분-공정변수에 관한 실용적인 시작 모형으로 혼합물 모형으로는 곡선효과를 반영한 2차모형을 가정하고, 공정변수의 선형효과를 반영한 형태와 곡선효과를 반영하는 형태를 제시하려고 한다. 우선 혼합물 성분-공정변수에 관한 가장 간단한 모형으로 2차 혼합물모형과 일차의 공정변수 모형을 고려하여, 교적 모형에서 혼합물 성분 비율의 일차항들과 각각의 공정변수와의 교호작용인 이차교호작용효과만 인

정하는 것이다. 즉, 결합 모형의 간결성과 항들에 관한 간단한 해석을 위하여 혼합물 성분 비율과 공정변수간의 3차 이상의 교호작용효과는 무시하는 것이다. 다음으로 시작 모형의 회귀계수의 추정에 효율적인 강건한 실험설계를 구하는 것이다. 이 논문에서는 임(2007)에 의해서 연구된 혼합물 반응표면 모형에서의 강건한 실험설계에 관한 연구 결과를 확장하여, D-최적기준, G-최적기준, I-최적기준의 효율들에 강건한 실험설계와 효율은 다소 떨어지지만, 대칭성과 균형성을 갖춘 실용적인 혼합물 성분-공정변수의 결합모형에 대한 실험설계를 구하려고 한다. 혼합물 성분-공정변수 실험계획법의 궁극적인 목적인 반응변수의 모평균을 최적화하는 최적조건을 효율적으로 구하기 위해서는 실험자료의 분석을 통해서 혼합물 성분-공정변수에 관한 적절한 모형을 효율적으로 찾아야 하고, 이를 위해서는 동일한 실험의 크기에서도 회귀계수의 추정이 정밀한 실험설계를 효율적으로 결정하는 것이 필수적이다. 반응표면 분석의 시작 단계에서 중심점을 갖는 2수준 요인배치법의 실험을 통해서 곡선효과를 검토한 것과 마찬가지로, 혼합물 성분-공정변수의 시작 모형에 대한 실용적인 실험설계로 공정변수에 대한 곡선효과와 검토가 가능한 실험설계를 제시한다. 공정변수에 대한 곡선효과가 의심스러운 경우에는 공정변수의 선형효과와 혼합물 성분들의 이차효과들 간의 교호작용인 3차교호작용효과와 공정변수의 순수 2차 효과와 혼합물성분의 선형효과 간의 교호작용인 3차교호작용효과의 항들을 첫 번째 형태의 모형에 추가하여 두 번째 형태의 모형을 구성한다. 모형의 크기가 커지는 단점이 있지만, 실험의 크기가 문제가 되지 않는다면 고려될 수 있는 또 다른 모형은 공정변수들의 이차 교호 작용효과와 혼합물 성분의 선형효과들간의 교호작용인 3차교호작용효과의 항들을 두 번째 형태의 모형에 추가하는 것이다.

2절에서는 세 가지 형태의 혼합물 성분-공정변수에 관한 시작 모형을 소개한다. 3절에서는 최적 실험설계 기준과 강건한 실험설계와 실용적인 실험설계를 구하는 전략을 공부한다. 4절에서는 실험설계의 대칭성(symmetry)과 균형성을 고려하여 각각의 시작 모형에 관하여 실험의 크기를 경험적으로 결정하고, 주어진 실험의 크기에서 강건한 실험설계, 실용적인 실험설계와 곡선효과와 검토가 가능한 실용적인 실험설계로부터 곡선효과를 가정한 경우의 모형에 대한 축차적인 실험설계를 구한다. 5절에서는  $q=3$  &  $p=3$ ,  $N=42$  인 경우에 실험 계획 전문 소프트웨어인 Design Expert 8.0를

활용하여 실용적으로 추천된 실험설계, 강건한 실험설계와 I-최적 설계의 예측력을 시각적으로 비교하고 평가한다.

## 2. 결합된 혼합물 성분-공정변수 모형

q개 성분의 혼합물에 있어서  $x_i$ 를 i번째 성분의 혼합 비율이라고 하면, 혼합 비율들은 다음과 같은 관계식을 만족해야 하기에,

$$x_1 + x_2 + \dots + x_q = 1, \quad x_i \geq 0, \quad i = 1, 2, \dots, q \quad (1)$$

혼합물 실험의 실험 공간은 q-1 차원 심플렉스 공간이 된다. 혼합물 실험공간에서의 모형은 혼합 비율들의 합이 1이라는 식 (1)의 제약조건 때문에 상수항과 순수 2차항들을 포함하지 않는 Scheffe의 정준 다항식을 가정하고, 곡선효과를 반영하는 가장 간단한 모형인 이차 모형은

$$E(y) = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i < j} \beta_{ij} x_i x_j \quad (2) \text{ 이다.}$$

공정변수들을 갖는 혼합물 실험에서는 q 개의 혼합물 성분을 갖는 혼합물 실험이 p개의 공정변수를 갖는 공정조건에서 수행된다. 코우드화된 공정변수의 실험공간은  $-1 \leq z_j \leq 1, \quad j = 1, \dots, p$  을 포함하는 p차원의 하이퍼 큐브(hyper-cube)이고, 공정변수만의 모형은 가장 간단한 선형효과만을 가정한 경우에는 일차항  $z_j$  를 포함하고, 공정변수들의 곡선효과를 반영하는 경우에는 일차항  $z_j$ 와 이차항인  $z_j^2$  와  $z_j z_k$  들을 포함한다. 이제 p개의 공정변수와 q 개의 혼합물 성분을 갖는 혼합물 성분-공정변수 실험에 대한 결합모형(combined model)을 생각해 보자. 일반적으로 혼합물 성분-공정변수 실험에서 주된 관심사는 혼합물 성분 비율들이 반응변수에 미치는 영향이기에, 결합모형에서 혼합물에 대한 모형으로는 혼합물 성분 비율들의 곡선효과를 반영한 2차 모형을 가정한다.

첫 번째 형태의 결합모형인 모형 1은 혼합물 성분-공정변수에 관한 가장 간단한 모형으로 2차 혼합물모형과 일차의 공정변수 모형을 고려하여, 교적 모형에서 혼합물 성분 비율의 일차항들과 각각의 공정변수와의 교호작용인 이차교호작용효과만 인정하는 것이다. 즉, 결합 모형의 간결성과 항들에 관한 간단한 해석을 위하

여 혼합물 성분 비율과 공정변수간의 3차 이상의 교호작용효과는 무시한 모형으로 아래와 같이 주어진다.

$$E(y) = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i=1}^{q-1} \sum_{j=i+1}^q \beta_{ij} x_i x_j + \sum_{k=1}^p \sum_{l=1}^q \alpha_{ik} x_i z_k \quad (3)$$

두 번째 형태의 모형인 모형 2는 공정변수에 대한 곡선효과를 반영한 모형이다. 2차 혼합물모형과 2차의 공정변수 모형을 고려하여, 교적 모형에서 공정변수의 선형효과와 혼합물 성분들의 이차효과들 간의 교호작용인 3차교호작용효과와 공정변수의 순수 2차 효과와 혼합물성분의 선형효과 간의 교호작용인 3차교호작용효과와 항들만을 인정하는 것이다. 두 번째 형태의 모형은 이 항들을 첫 번째 형태의 모형인 식 (3)에 추가하여 구성한 모형으로 다음과 같이 주어진다.

$$E(y) = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i=1}^{q-1} \sum_{j=i+1}^q \beta_{ij} x_i x_j + \sum_{k=1}^p \sum_{l=1}^q \alpha_{ik} x_i z_k + \sum_{k=1}^p \sum_{l=1}^{q-1} \sum_{j=l+1}^q \alpha_{ijk} x_i x_j z_k + \sum_{k=1}^p \sum_{l=1}^q \alpha_{ikk} x_i z_k^2 \quad (4)$$

세 번째 형태의 모형인 모형 3은 공정변수들의 2인자 교호작용 효과와 혼합물 성분의 선형 효과들간의 교호작용인 3차교호작용효과와 항들을 두 번째 형태의 모형에 추가하는 것으로 다음과 같이 주어진다.

$$E(y) = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i=1}^{q-1} \sum_{j=i+1}^q \beta_{ij} x_i x_j + \sum_{k=1}^p \sum_{l=1}^q \alpha_{ik} x_i z_k + \sum_{k=1}^p \sum_{l=1}^{q-1} \sum_{j=l+1}^q \alpha_{ijk} x_i x_j z_k + \sum_{k=1}^p \sum_{l=1}^q \alpha_{ikk} x_i z_k^2 + \sum_{k=1}^{p-1} \sum_{l=k+1}^p \sum_{i=1}^q \delta_{ikl} x_i z_k z_l \quad (5)$$

## 3. 실험설계 기준

혼합물 성분-공정변수 실험설계의 효율성은 다양한 형태로 주어진 혼합물 성분-공정변수 모형과 최적 실험설계 기준에 따라서 달라진다. 최적 실험설계의 기준을 간단히 정리해 보자.

(1) D-최적기준 : 혼합물 성분-공정변수 모형에서 추천된 회귀계수들의 일반화 분산인 분산-공분산 행렬의 행렬식의 값을 최소로 한다.

(2) G-최적기준 : 혼합물 성분-공정변수 실험 공간 상에 주어진 임의의 혼합 비율  $x_0$ 와 공정조건  $z_0$ 에서

의 예측치의 분산의 최대값을 최소로 한다.

(3) I-최적기준 : 후보 실험점 그룹에 있는 각각의 혼합 비율  $x_0$ 와 공정조건  $z_0$ 에서의 예측치의 분산의 평균을 최소로 한다.

(4) A-최적기준 : 혼합물 성분-공정변수 모형에서 추정된 회귀계수들의 분산의 합을 최소로 한다.

D-최적기준, G-최적기준, I-최적기준의 효율에 강건한 실험설계를 구하기 위한 전략으로 임(2007)이 제안한 MiniMax 접근법을 활용한다. 우선 강건한 실험설계의 후보 실험설계들을 찾기 위해서 각각의 최적 기준치 근방의 실험설계들을 구해서 후보 실험설계의 묶음(pools)을 만든다. 묶음에 포함된 실험설계의 다양성을 위하여 A-최적 기준치 근방의 실험설계도 묶음에 포함한다. 다음으로 묶음에 있는 각각의 실험설계에 대해서 D-효율, G-효율, I-효율 값들을 계산하고, D-효율, G-효율, I-효율값들 중에서 최소값을 min(DGI)로 정의하고, 3 개의 최적기준에 대해서 최악의 효율인 min(DGI) 값을 구한다. 일차적인 목표는 묶음에 있는 후보 실험설계들 중에서 min(DGI) 값을 최대로 하는 강건한 실험설계를 찾는 것이다.

실험설계의 실용성을 판단하는 기준은 실험공간상에서 주어진 실험설계의 대칭성(symmetry)과 균형성을 고려하는 것이다. 예를 들면  $q=3$  &  $p=1$  이고, 식 (3)의 모형에 공정변수의 2차 효과와 혼합물 성분의 선형효과 간의 3차 교호작용 효과의 향이 추가된 모형에 대해서 D-최적 설계는 공정변수  $z$ 의 3개의 점들인  $z = \pm 1, 0$  중에서 2 개의 실험점에서는 {3,1} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하고, 나머지 한 개의 실험점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하는 것이다. 그런데, 우리가 고려한 모형은 공정변수  $z$ 의 부호 변화에 대해서 모형이 동일하여 대칭이다. 따라서 실용적인 실험설계는 공정변수  $z$ 의 부호 변화에 대한 대칭성과 균형성을 만족하는 실험설계로, 공정변수  $z$ 의 양 극단값인  $z = \pm 1$  에서는 {3,1} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하고, 중앙값인  $z = 0$ 에서는 {3,2} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하는 실험설계이다. 참고로, 비대칭인 실험설계는 min(DGI) 값이 0.652인 반면에 실용적인 실험설계는 0.763으로 min(DGI) 값도 대칭인 실험설계를 선호한다.

## 4. 실용적인 혼합물 성분-공정변수 실험설계

이 절에서는 혼합물 성분의 개수인  $q=3, 4$  이고 공정변수의 수인  $p=1, 2, 3$  인 총 6가지 경우의 각각에 대해서, 앞에서 소개된 3 가지 형태의 결합된 혼합물 성분-공정변수 모형을 가정하고, 각각의 가정된 모형의 적합을 효율적으로 할 수 있도록 뒷받침해줄 수 있는 실용적인 실험설계를 구한다. 각각의 모형에서 D-최적 설계, G-최적 설계, I-최적 설계, A-최적 설계 근방의 실험설계를 구하기 위해서 접근성이 용이한 통계 범용 소프트웨어인 SAS의 PROC Optex를 활용한다. 후보 실험점은 실용적인 혼합물 실험설계와 공정변수 실험설계의 교적 설계의 실험점들로 구성된다. 2차 모형을 가정한 경우의 실용적인 혼합물 설계는 {q,2} 심플렉스 격자법의 실험점, 중앙점과 각각의 꼭지점을 연결하는 Cox 방향 좌표축의 중앙에 위치한  $q$ 개의 내부점, 면중심점과 중앙점으로 구성된다. 공정변수 실험설계는 일차모형을 가정한 경우에 2수준 요인배치법이고 이차모형을 가정하는 경우에는 중심합성계획법(Central Composite Design)이다. 공정변수의 실험공간이  $p$ 차원의 하이퍼 큐브이기 때문에 중심합성계획법에서 축점의 위치인  $\alpha$  값은 1로 정한다. 다양한 최적 설계 근방에 있는 실험설계들의 묶음을 확장시키기 위한 시도로, 확장된 교적 설계의 후보실험점들을 사용한다. 혼합물 실험설계의 확장된 후보실험점들은  $q-1$  차원 심플렉스 공간 상의 각 혼합물 성분 비율을 0.05 단위의 간격으로 격자점들을 만들어 구성하고, 공정변수들의 후보 실험점은 일차 모형과 2차 모형의 경우에 각각  $2^p$  실험점과  $3^p$  실험점으로 구성한다. 최적치 근방의 실험설계는 각각의 모형과 후보실험점 그룹에 대해서 SAS의 PROC Optex에서 랜덤한 시행횟수인 Iter=300, 확장된 후보실험점 그룹에 대해서는 Iter=100 으로 하여 D-, G-, I-, A- 효율을 가장 크게 하는 실험설계를 각각 크기순으로 3개씩 선택하였다. 실험의 크기  $N$ 는 추천되는 실험설계가 대칭성과 균형성을 만족하도록 시행차를 통해서 결정한다.

(1)  $q=3$  &  $p=1$  경우

① 모형 1

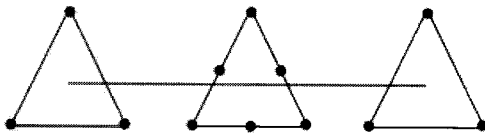
$N=12$  인 경우는 2차 혼합물모형의 D-최적 설계인 {3,2} 심플렉스 격자법과 공정변수  $z$ 의 양 극단값인

-1, 1를 실험점으로 갖는  $z$ 의 일차모형에 대한 D- 최적 설계와의 교적설계가 D-, G-, I-, A- 최적설계로 강건한 실험설계이고, <그림 1>에서 보는 바와 같이 대칭성과 안정성을 만족한다.



<그림 1>  $q=3$  &  $p=1$ , 모형 1의  $N=12$ 인 경우에 강건한 실험설계

반응표면분석의 시작 단계에서 중심점을 갖는 2수준 요인배치법의 실험을 통해서 곡선효과를 검토한 것과 마찬가지로, 혼합물 성분-공정변수의 시작 모형에 대한 실용적인 실험설계로 공정변수에 대한 곡선효과의 검토가 가능한 실험설계를 생각해 보자. 자연스러운 선택은 공정변수  $z$ 의 실험공간인  $[-1, 1]$ 의 중앙점인  $z=0$ 에서 {3,2} 심플렉스 격자법을 실시하고, 양 극단값인 -1, 1에서는 심플렉스의 꼭지점으로 구성된 {3,1} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하는 것으로 <그림 2>에 시각적으로 표현된다. 이 실험설계는 모형 1에 공정변수  $z$ 의 2차효과와 혼합물 성분의 선형효과간의 교호작용효과를 추가한 모형에 대한 D- 최적 설계이고, 실험자료의 분석 결과 곡선효과가 의심스러운 경우에는  $z$ 의 양 극단값인 -1, 1에서 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 모서리 중앙점에서 각각 추가 실험을 실시하면, 총  $N=18$ 의 축차적인 실험설계가 모형 2에 대한 강건한 실험설계이기때문에 모형 1에 대한 실용적인 실험설계로  $N=12$ 인 경우의 이 실험설계를 추천한다.

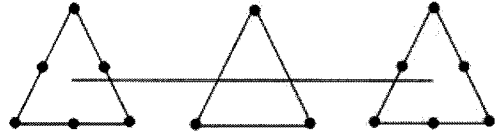


<그림 2>  $q=3$  &  $p=1$ , 모형 1의  $N=12$ 인 경우에 곡선효과 검토가 가능한 실용적인 실험설계

② 모형 2

$N=15$ 인 경우에, 모형 2에 대한 D-최적 설계는 공정변수  $z$ 의 양 극단값인 -1, 1에서는 {3,2} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하고, 중앙점인  $z=0$ 에서 심플렉스의 꼭지점으로 구성된 {3,1} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하는 실험설계이고,  $\min(DGI)$  값이 0.965로 D-, G- & I- 효율이 적어도 0.965 이상인 강건한

실험설계이다. 이 실험설계는 <그림 3>에 주어진 바와 같이 대칭성과 균형성을 만족하고 있어서, 이 모형에 대한 실용적인 실험설계로 추천한다.

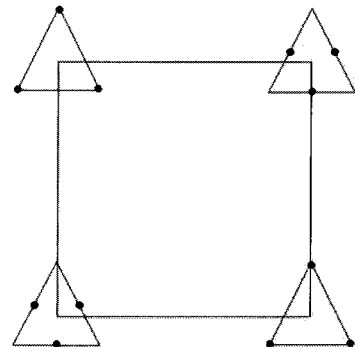


<그림 3>  $q=3$  &  $p=1$ , 모형 2의  $N=15$ 인 경우에 강건하고 실용적인 실험설계

(2)  $q=3$  &  $p=2$  경우

① 모형 1

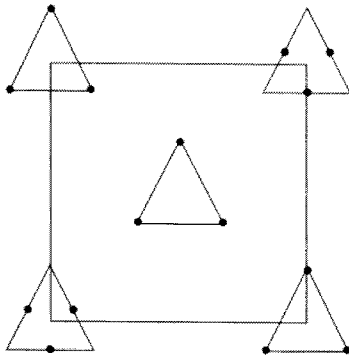
$N=12$ 인 경우에 자연스러운 선택은 두 개의 {3,2} 심플렉스 격자법의 실험점들을  $2^2$  요인배치법의 실험점에 대칭성과 균형성을 고려해서 분배하는 것이다 <그림 4>에서 보는 바와 같이  $z_1 z_2 = -1$ 인  $2^2$  요인배치법의 실험점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 꼭지점에서,  $z_1 z_2 = 1$ 인  $2^2$  요인배치법의 실험점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 모서리 중앙점에서 실험을 실시하는 실험설계가 후보 설계가 될 수 있고, 이 실험설계가 D-, I-, A- 최적설계이고,  $\min(DGI)$  값이 0.990으로 강건한 실험설계의  $\min(DGI)$  값인 0.998 근방에 있는 실용적인 실험설계이다.



<그림 4>  $q=3$  &  $p=2$ , 모형 1의  $N=12$ 인 경우에 강건한 실험설계

공정변수에 대한 곡선효과의 검토가 가능한 실험설계로는  $N=12$ 인 경우에 실용적인 실험설계에 공정변수 실험공간의 중앙점에서 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 꼭지점이나 3개의 모서리 중앙점에서 실험을 추가하여  $N=15$ 인 실험을 실시하는 실험설계이다. 꼭지점을 추가하는 경우의  $\min(DGI)$  값이 더 크기 때문에 <그림

5>에 시각적으로 표현된 바와 같이 공정변수 실험공간의 중앙점에서 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 꼭지점을 추가한 실험설계를 추천한다. 이 실험설계의 모형 1에 대한 효율을 살펴보면, min(DGI) 값이 0.821로 모형 1에 대해서도 D-, G- & I- 효율이 적어도 0.821 이상 이면서 곡선효과와 검토가 가능하기에, 모형 1에 대한 실용적인 실험설계이다.



<그림 5> q=3 & p=2, 모형 1의 N=15인 경우에 곡선효과 검토가 가능한 실용적인 실험설계

② 모형 2 & 모형 3

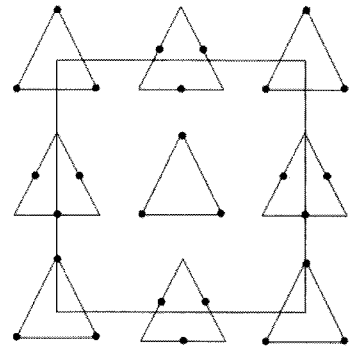
N=27 인 경우에, 모형 2에 대한 D-최적 설계는 공정변수들의 실험설계의 후보점을 결정하는 중심합성설계의 상자점과 중앙점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 꼭지점에서, 축점에서는 3개의 모서리 중앙점에서 실험을 실시하는 실험설계이고, min(DGI) 값이 0.909로 강건한 실험설계이다. 이 실험설계는 <그림 6>에 주어진 바와 같이 대칭성과 균형성을 만족하고 있다. 이 실험설계는 또한 모형 3에서도 min(DGI) 값이 0.957으로 강건한 실험설계이기에, 공정변수들의 곡선효과 모형에 대한 실용적인 실험설계는 N=27인 경우의 이 실험설계로 추천한다.

(3) q=3 & p=3 경우

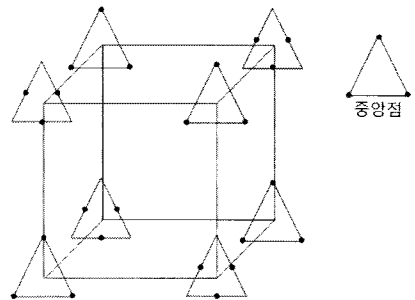
① 모형 1

실용적인 실험설계의 후보는  $z_1 z_2 z_3 = -1$  인  $2^3$  요인 배치법의 실험점과 중앙점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 꼭지점에서,  $z_1 z_2 z_3 = 1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 모서리 중앙점에서 실험을 실시하는 실험설계로 N=27 이고, <그림 7>에 주어진 바와 같이 대칭성과 균형성을 만족하고 있다. 이 실험설계는 모형 1에서도 min(DGI) 값이

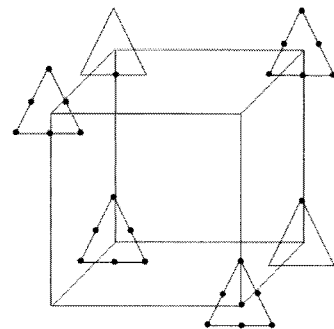
0.906으로 모형 1에대한 강건한 실험설계의 값인 0.940에 근접하고, 곡선효과와 검토가 가능하기에, 실용적인 실험설계로 추천한다. N=27인 경우에 모형 1의 강건한 실험설계는 <그림 8>에 주어지는데, 곡선효과와 검토도 가능하지 않을 뿐만 아니라, 대칭성과 균형성이 다소 떨어짐을 확인할 수 있다.



<그림 6> q=3 & p=2, 모형 2 & 모형 3의 N=27인 경우에 강건하고 실용적인 실험설계



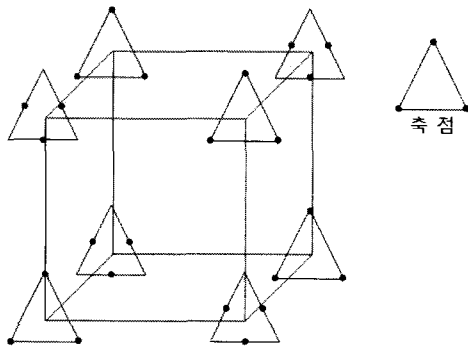
<그림 7> q=3 & p=3, 모형 1의 N=27인 경우에 곡선효과 검토가 가능한 실용적인 실험설계



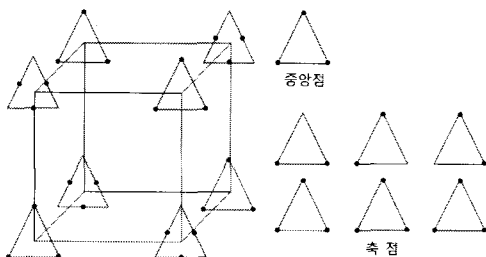
<그림 8> q=3 & p=3, 모형 1의 N=27인 경우에 강건한 실험설계

② 모형 2

N=42 인 경우에, D-최적 설계는  $z_1z_2z_3 = -1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점과 축점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 꼭지점에서,  $z_1z_2z_3 = 1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 모서리 중앙점에서 실험을 실시하는 실험설계이다. 이 실험설계는 <그림 9>에 주어진 바와 같이 대칭성과 균형성을 만족하고 있고, min(DGI) 값이 0.927로 강건한 실험설계이다. 모형 1에서 추천된 N=27 인 경우의 실용적인 실험설계에 D-최적기준에 따라서 실험점을 15개 추가하는 축차적인 실험설계는 각 축상의 한 점에서는 {3,2} 심플렉스 격자법의 3개의 꼭지점에서, 나머지 한 점에서는 2개의 꼭지점에서 실험을 실시하는데, <그림 10>에서 주어진 바와 같이 6개의 축점 전체에서는 15개의 꼭지점이 골고루 나오는 실험설계로 대칭성과 균형성을 만족하고 있다. 이 축차적인 실험설계의 min(DGI) 값은 0,778로 강건한 실험설계의 min(DGI) 값과의 비율이 0.84이다. 이 모형에 대한 실용적인 실험설계로는 N=42인 경우의 강건한 실험설계를 추천한다.



<그림 9> q=3 & p=3, 모형 2의 N=42인 경우에 강건하고 실용적인 실험설계



<그림 10> q=3 & p=3, 모형 2의 N=42인 경우에 축차적인 실험설계

③ 모형 3

N=42 인 경우의 실험설계는 모형 3의 포화된 실험설계(saturated design)이다. 모형 2에서 추천된 강건한 실험설계의 min(DGI) 값이 0.65이다. 강건한 실험설계는 확장된 실험점 그룹에서의 A- 최적 설계로 min(DGI) 값이 0.981 이고, <표 1>에 주어진다.

(4) q=4 & p=1 경우

① 모형 1

N=18인 경우에 모형 1에 대한 강건한 실험설계는 min(DGI) 값이 0.879로 공정변수 z의 양 극단값인 -1, 1 에서는 심플렉스의 4개의 꼭지점들과 4개의 면중심점, 4개의 꼭지점과 2개의 모서리 중앙점에서 각각 실험을 하고, 나머지 4개의 모서리 중앙점은 중앙점인 z=0 에서 실험을 실시한다. 가장 간단한 이 모형에 대한 실용적인 실험설계로 공정변수에 대한 곡선효과의 검토가 가능한 실험설계를 생각해 보자. 자연스러운 선택은 공정변수 z의 실험공간인 [-1,1]의 중앙점인 z=0 에서 {4,2} 심플렉스 격자법을 실시하고, 양 극단값인 -1, 1 에서는 심플렉스의 꼭지점으로 구성된 {4,1} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하는 것이다. 이 실험설계는 모형 1에 공정변수 z의 2차효과와 혼합물 성분의 선형효과간의 교호작용효과를 추가한 모형에 대한 D- 최적 설계이고, 이 실험설계의 모형 1에 대한 효율을 살펴보면, min(DGI) 값이 0.801으로 모형 1에 대해서도 D-, G- & I- 효율이 적어도 0.801 이상이어서 N=18인 경우의 모형 1에 대한 실용적인 실험설계로 추천한다.

② 모형 2

N=24인 경우에 모형 2에 대한 실험설계의 대칭성과 균형성을 고려한 자연스러운 선택은 z의 양 극단값인 -1, 1 에서는 {4,2} 심플렉스 격자법을 실시하고, 중앙점인 z=0 에서는 심플렉스의 4개의 꼭지점들인 {4,1} 심플렉스 격자법에서 실험을 실시하는 것이다. 이 실험설계는 D-최적 설계이고, min(DGI) 값이 0.961인 강건한 실험설계이기에 공정변수의 곡선효과가 의심스러운 경우에 N=24인 실용적인 실험설계로 추천한다.

(5) q=4 & p=2 경우

① 모형 1

N=20 인 경우에 자연스러운 선택은 2차 혼합물모형의 D-최적 설계인 두 묶음의 {4,2} 심플렉스 격자법의

<표 1> q=3 & p=3, N=42인 경우 모형3의 강건한 실험설계

OBS	$x_1$	$x_2$	$x_3$	$z_1$	$z_2$	$z_3$
1	0	0.55	0.45	-1	-1	-1
2	0.5	0.5	0	-1	-1	-1
3	1	0	0	-1	-1	0
4	0	1	0	-1	-1	0
5	0	0	1	-1	-1	0
6	0.5	0.5	0	-1	-1	1
7	0.5	0	0.5	-1	-1	1
8	0	0.5	0.5	-1	-1	1
9	1	0	0	-1	1	-1
10	0	1	0	-1	1	-1
11	0	0	1	-1	1	-1
12	0.5	0.5	0	-1	1	0
13	0.5	0	0.5	-1	1	0
14	0	0.5	0.5	-1	1	0
15	1	0	0	-1	1	1
16	0	1	0	-1	1	1
17	0	0	1	-1	1	1
18	0	1	0	0	-1	-1
19	0.5	0	0.5	0	-1	-1
20	1	0	0	0	-1	1
21	0	0	1	0	-1	1
22	0	0.05	0.95	0	0	0
23	0	0.95	0.05	0	0	0
24	0.9	0.1	0	0	0	0
25	1	0	0	1	-1	-1
26	0	0	1	1	-1	-1
27	0.5	0.5	0	1	-1	0
28	0.5	0	0.5	1	-1	0
29	0	0.5	0.5	1	-1	0
30	0	1	0	1	-1	1
31	0	1	0	1	0	-1
32	0.5	0	0.5	1	0	-1
33	1	0	0	1	0	1
34	0	0	1	1	0	1
35	0	0.55	0.45	1	1	-1
36	0.5	0.5	0	1	1	-1
37	1	0	0	1	1	0
38	0	1	0	1	1	0
39	0	0	1	1	1	0
40	0.5	0.5	0	1	1	1
41	0.5	0	0.5	1	1	1
42	0	0.5	0.5	1	1	1



실험점들을 일차 공정변수 모형의 D-최적 설계인  $2^2$  요인배치법의 실험점에 대칭성과 균형성을 고려해서 분배하는 것이다.  $z_1z_2 = -1$  인  $2^2$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점에서,  $z_1z_2 = 1$  인  $2^2$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 6개의 모서리 중앙점에서 실험을 실시하는 실험설계가 후보 설계가 될 수 있고, 이 실험설계가 D-, G-, I-, A- 최적 설계이고, min(DGI) 값이 1인 강건한 실험설계이다. 공정변수들에 대한 곡선효과의 검토가 가능한 실험설계로는 N=20 인 경우에 강건한 실험설계에 공정변수 실험공간의 중앙점에서 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점에서 실험을 추가하여 N=24 인 실험을 실시하는 것이다. 이 실험설계의 모형 1에 대한 효율을 살펴보면, min(DGI) 값이 0.906으로 모형 1에 대해서도 D-, G- & I- 효율이 적어도 0.929 이상 이면서, 곡선효과의 검토가 가능하기에, 실용적인 실험설계로 추천한다.

### ② 모형 2

N=48 인 경우에 D-최적 설계는  $z_1z_2 = -1$  인  $2^2$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 실험점에서,  $z_1z_2 = 1$  인  $2^2$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 6개의 모서리 중앙점과 4개의 꼭지점들 중에서 각각 2개의 꼭지점에서 균형을 맞추어서 실험을 실시하고, 중앙점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점에서 실험을 실시하고, 각각의 축점에서는 각 축마다 4개의 꼭지점들을 두 개씩 나누어서 실험을 실시하는 실험설계이다. 이 실험설계도 대칭성과 꼭지점 배치의 균형성을 만족하고 있고, min(DGI) 값이 0.859로 강건한 실험설계의 min(DGI) 값인 0.898 임을 고려할 때에, 효율적인 실험설계이다. 이 실험설계는 N=24 인 경우에 곡선효과의 검토를 위해서 모형 1에서 추천된 실용적인 실험설계로부터 24 개의 실험점을 축차적으로 추가하여 얻을 수 있는 실험설계이기에, 실용적인 실험설계이다.

### ③ 모형 3

N=48 인 경우에 D-최적 설계는  $2^2$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 실험점에서, 각각의 축점에서는 각 축마다 4개의 꼭지점들 중에서 두 개씩 나누어서 실험을 실시하는 실험설계이다. 이 실험설계도 대칭성과 꼭지점 배치의 균형성을 만족하고 있고,

min(DGI) 값이 0.708이다. N=48 인 경우의 모형 2에서 추천된 실용적인 실험설계는 모형 3에 대한 min(DGI) 값이 0.696으로 모형 3에 대한 D- 최적 설계의 min(DGI) 값인 0.708과 별로 차이가 나지 않아서, 이 실험설계를 모형 3 에서도 추천한다. 강건한 실험설계는 <표 2>에 주어지는데, min(DGI) 값이 0.922이고, 대칭성과 균형성이 결여되어 있지만, 모형 2에 대한 min(DGI) 값이 0.892으로 모형 2의 강건한 실험설계의 min(DGI) 값인 0.898에 근접하기 때문에 모형 2에서도 효율적인 실험설계로 추천될 수 있다.

### (6) q=4 & p=3 경우

#### ① 모형 1

N=40인 경우에 실용적인 실험설계의 후보는  $z_1z_2z_3 = -1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점에서,  $z_1z_2z_3 = 1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 6개의 모서리 중앙점에서 실험을 실시하는 실험설계로 대칭성과 균형성을 만족하고 있다. 이 실험설계는 min(DGI) 값이 0.980으로 모형 1에 대한 강건한 실험설계이다. 공정변수들에 대한 곡선효과의 검토가 가능한 실험설계로는 N=40 인 경우에 강건한 실험설계에 공정변수 실험공간의 중앙점에서 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점에서 실험을 추가하여 N=44인 실험을 실시하는 것이다. 이 실험설계의 모형 1에 대한 효율을 살펴보면 min(DGI) 값이 0.929로 모형 1에 대해서도 강건한 실험설계로 D-, G- & I- 효율이 적어도 0.926 이상 이면서 곡선효과의 검토가 가능하기에, 실용적인 실험설계로 추천한다.

#### ② 모형 2

N=58 인 경우에 D-최적 설계는  $z_1z_2z_3 = -1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점에서,  $z_1z_2z_3 = 1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 6개의 모서리 중앙점에서, 각각의 축점에서는 각 축마다 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점을 포함한 6개의 꼭지점을 3개씩 균형있게 나누어서 실험을 실시하는 실험설계이다. 이 실험설계도 대칭성과 꼭지점 배치의 균형성을 만족하고 있고, min(DGI) 값이 0.875으로 실용적인 실험설계이다. 모형 1에서 추천된 N=44 인 경우의 실용적인 실험설계에 D-최적기준에 따라서 실험점을 14개 추가

<표 2> q=4 & p=2, N=48인 경우 모형3의 강건한 설계

OBS	x1	x2	x3	x4	z1	z2
1	1	0	0	0	-1	-1
2	0	1	0	0	-1	-1
3	0	0	1	0	-1	-1
4	0	0	0	1	-1	-1
5	0.5	0	0.5	0	-1	-1
6	0.5	0	0	0.5	-1	-1
7	0	0.5	0.5	0	-1	-1
8	0	0	0.5	0.5	-1	-1
9	0.5	0.5	0	0	-1	0
10	0.5	0	0	0.5	-1	0
11	0	0.5	0	0.5	-1	0
12	1	0	0	0	-1	1
13	0	1	0	0	-1	1
14	0	0	1	0	-1	1
15	0	0	0	1	-1	1
16	0.5	0	0.5	0	-1	1
17	0	0.5	0.5	0	-1	1
18	0	0.5	0	0.5	-1	1
19	0	0	0.5	0.5	-1	1
20	0.5	0.5	0	0	0	-1
21	0.5	0	0	0.5	0	-1
22	0	0.5	0	0.5	0	-1
23	1	0	0	0	0	0
24	0	1	0	0	0	0
25	0.15	0.05	0.8	0	0	0
26	0	0	0.05	0.95	0	0
27	0	0	1	0	0	1
28	0.5	0.5	0	0	0	1
29	0.5	0	0	0.5	0	1
30	0	0.5	0	0.5	0	1
31	1	0	0	0	1	-1
32	0	1	0	0	1	-1
33	0	0	1	0	1	-1
34	0	0	0	1	1	-1
35	0.5	0	0.5	0	1	-1
36	0	0.5	0.5	0	1	-1
37	0	0	0.5	0.5	1	-1
38	0	0	1	0	1	0
39	0.5	0.5	0	0	1	0
40	0.5	0	0	0.5	1	0
41	0	0.5	0	0.5	1	0
42	1	0	0	0	1	1
43	0	1	0	0	1	1
44	0	0	1	0	1	1
45	0	0	0	1	1	1
46	0.5	0	0.5	0	1	1
47	0	0.5	0.5	0	1	1
48	0	0	0.5	0.5	1	1

하는 축차적인 실험설계는 각 축상의 2개의 축점에 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점을 포함하여 각각 5개, 4개, 5개의 꼭지점을 균형있게 두 그룹으로 나누어서 실험을 실시하는 실험설계인데, min(DGI) 값이 0.862 으로 D-최적 설계의 min(DGI) 값과 차이가 크게 나지 않아서 단계별로 곡선효과를 검토하는 경우에 실용적인 실험설계로 추천한다. 모형 2의 강건한 실험설계의 min(DGI) 값은 0.947이다.

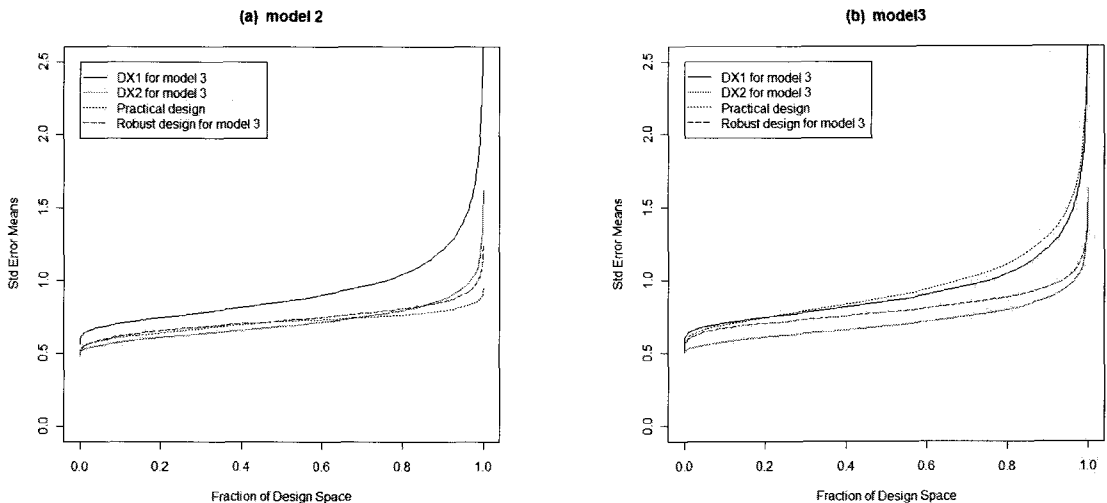
③ 모형 3

N=68 인 경우에 D-최적 설계는  $z_1z_2z_3 = -1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점에서는 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점과  $x_1$ 과  $x_3$ ,  $x_1$ 과  $x_4$ ,  $x_2$ 와  $x_3$ 를 연결하는 3개의 모서리 중앙점에서,  $z_1z_2z_3 = 1$  인  $2^3$  요인배치법의 실험점에서는 4개의 꼭지점과  $x_1$ 과  $x_2$ ,  $x_2$ 와  $x_4$ ,  $x_3$ 와  $x_4$ 를 연결하는 3개의 모서리 중앙점에서, 각각의 축점에서는 각 축마다 {4,2} 심플렉스 격자법의 4개의 꼭지점을 2개씩 균형있게 나누어서 실험을 실시하는 실험설계이다. 이 실험설계도 대칭성과 꼭지점 배치의 균형을 만족하고 있고, G- & I- 최적설계로, min(DGI) 값이 1인 강건하고 실용적인 실험설계이다.

### 5. 혼합물 성분-공정변수 실험설계 평가

Goldfarb 등(2004)은 여러 개의 혼합물 성분-공정

변수 실험설계들의 예측력을 시각적으로 평가하는 도구로 FDS(Fraction of Design Space) 그림을 제안하였다. FDS 그림은 주어진 실험점에서의 척도화된 예측치의 분산(scaled prediction variance)이 특정 값보다 같거나 작은 실험점들로 구성된 일부분 실험 공간에 대한 부피(혹은 크기)의 비율을 시각적으로 나타낸다. FDS 그림은 실험 계획 전문 소프트웨어인 Design Expert 8.0에서 구현할 수 있다. <그림 11>에는  $q=3$  &  $p=3$ ,  $N=42$  인 경우에 모형 3의 I-최적기준과 실용적인 혼합물 실험설계와 공정변수 실험설계인 중심합성계획의 교적 설계의 실험점들로 구성된 후보 실험점 그룹에서 실험점 교환인 point exchange 로 구한 최적 설계인 DX1과 실험점들의 흔들림을 주는 coordinate exchange 와 point exchange를 병행하는 Best 탐색에서 구한 DX2, 모형 2 에서 추천된 강건하고 실용적인 실험설계와 모형 3의 강건한 실험설계의 FDS 그림이 주어진다. DX1은 실용적인 실험설계에 대응되고, DX2는 확장된 후보 실험점 그룹에서 얻어진 강건한 실험설계에 대응된다. 모형 2에서의 FDS 그림은 모형 2에서 추천된 실용적인 실험설계의 예측력이 가장 안정적으로 평가되지만, 모형 3에서의 FDS 그림은 가장 예측력이 떨어지지만 DX1과 유사하다. 실험의 크기  $N=42$ 가 포화된 설계(saturated design)임을 감안할 때에, 실용적인 실험설계의 min(DGI) 값이 0.65 였지만, 모형 3이 참인 경우에도, 추천될 여지가 있다고 판단된다. 모형 3의 강건한 실험설계는 min(DGI) 값이 0.981이고 I-최적설계인 DX2 의 min(DGI) 값은 0.843이지만, 대부분의 실험 공



<그림 11>  $q=3$  &  $p=3$ ,  $N=42$  경우의 FDS 그림

간에서 DX2의 척도화 분산이 강건한 실험설계의 척도화 분산보다 작다. 이 그림은 min(DGI)를 최대로 하는 강건한 실험설계는 최악의 경우를 보호하려는 실험설계 기준임을 시각적으로 잘 보여 주고 있다. 모형 2가 참인 경우에 모형 3의 강건한 실험설계의 min(DGI) 값은 0.712인 반면, DX2의 min(DGI) 값은 0.678로 강건한 실험설계가 DX2 보다 우월하고, 모형 2에서의 FDS 그림도 모형 3의 강건한 실험설계가 DX2 보다 우월함을 보인다. FDS 그림으로 판단하면,  $q=3$  &  $p=3$  인 경우에 공정변수들의 곡선효과가 의심스러운 경우에는  $N=42$  인 실용적인 실험설계나 모형 3의 강건한 실험설계를 추천한다.

## 6. 요약 및 결론

혼합물 성분-공정변수에 관한 실용적인 시작 모형으로 혼합물 모형으로는 곡선효과를 반영한 2차모형을 가정하고, 공정변수의 선형효과를 반영한 형태와 곡선효과를 반영하는 형태를 제시한다. 다음으로 제시된 시작 모형의 회귀계수의 추정에 효율적인 강건한 실험설계를 구하는 것이다. 임(2007)에 의해서 연구된 혼합물 반응표면 모형에서의 강건한 실험설계에 관한 연구 결과를 확장하여, 혼합물 성분의 개수 인  $q=3, 4$  이고 공정변수의 수인  $p=1, 2, 3$  인 총 6가지 경우의 각각에 대해서, 제시된 모형이 참인 경우에 D-최적기준, G-최적기준, I-최적기준의 효율들에 강건한 실험설계와 효율은 다소 떨어지지만, 대칭성과 균형을 갖춘 실용적인 실험설계를 구하고, 각각의 경우에 대해서 공정변수의 선형효과를 반영한 형태의 모형을 가정한 경우에는 곡선효과 존재 여부를 검토할 수 있는 실용적인 실험설계와 공정변수의 곡선효과를 반영한 모형을 가정한

경우에는 실용적인 실험설계와 강건한 실험설계를 추천한다.  $q=3$  &  $p=3$ ,  $N=42$  인 경우에 실용적으로 추천된 실험설계와 강건한 실험설계의 예측력을 시각적으로 평가하기 위해서 실험 계획 전문 소프트웨어인 Design Expert 8.0에서 구한 I-최적 설계들과 FDS 그림을 통해서 비교한 결과, 추천된 실험설계들의 예측력도 우수함을 확인하여, 추천된 실험설계가 산업 현장에서 활용될 수 있기를 기대한다.

## 참고문헌

- [1] 임용빈(2007). "2차 혼합물 반응표면 모형에서의 강건한 실험설계". 「응용통계연구」 20호, pp.267-280.
- [2] Cornell, J.A.(1990). *Experiments with mixtures, Designs, Models, and the Analysis of Mixture Data*, 2nd ed., New York: Wiley
- [3] Goldfarb, H.B., Borror, C.M., Montgomery, D.C. and Anderson-Cook, C.M.(2004). Evaluating mixture-process designs with control and noise variables, *J. of Quality Technology*, Vol. 36, pp. 245-262.
- [4] Kowalski, S., Cornell, J.A. and Vining, G.G.(2000). A new model and class of designs for mixture experiments with process variables, *Commun. Statist.-Theory Meth.*, Vol. 29, pp. 2255-2280.
- [5] Myers, R.H. and Montgomery, D.C.(2009). *Response Surface Methodology*, 3rd ed., New York: Wiley
- [6] Stat-Ease(2010). *Design-Expert, software for response surface methodology and mixture experiments*, Version 8, Minneapolis: Stat-Ease.