

УДК 519.24:519.6

Наталія Кондрат'єва, кандидат фізико-математичних наук,
доцент, доцент кафедри фундаментальної та
прикладної математики,

Вікторія Леонт'єва, кандидат фізико-математичних наук,
доцент, доцент кафедри фундаментальної та
прикладної математики,

Кирил Вітлянчук, здобувач вищої освіти,
Іван Булин, здобувач третього (освітньо-наукового)
рівня вищої освіти,

Геннадій Усатенко, здобувач третього (освітньо-наукового)
рівня вищої освіти,
Запорізький національний університет, м. Запоріжжя, Україна

ЗАСТОСУВАННЯ МАТЕМАТИЧНИХ МЕТОДІВ ПЛАНУВАННЯ ЕКСПЕРИМЕНТУ ПРИ РОЗВ'ЯЗАННІ ПРАКТИЧНИХ ЗАДАЧ

Анотація. В роботі досліджено методологію математичного планування експерименту та продемонстровано її практичне застосування для оптимізації технологічного процесу осадження тонких плівок методом магнетронного розпилення. На основі центрально-композиційного плану 2-го порядку з двома факторами побудовано адекватну регресійну модель, яка описує залежність швидкості осадження від керованих параметрів процесу. Представлений підхід дозволив скоротити кількість необхідних дослідів порівняно з класичними підходами, зберігаючи при цьому повноту інформації про досліджуваний об'єкт.

Ключові слова: планування експерименту, поверхня відгуку, центрально-композиційний план, регресійна модель, оптимізація, канонічний аналіз.

Abstract. The paper investigates the methodology of mathematical experimental planning and demonstrates its practical application for optimizing the technological process of thin-film deposition by magnetron sputtering. Based on a second-order central composite plan with two factors, an adequate regression model that describes the dependence of the deposition rate on the controlled process parameters was constructed. The presented approach made it possible to reduce the number of required experiments compared to classical approaches, while preserving the completeness of information about the object under study.

Keywords: experimental planning, response surface, central composite plan, regression model, optimization, canonical analysis.

Проблема ефективної організації наукового та інженерного експерименту є однією з ключових у прикладній математиці [1-8]. Будь-яке практичне дослідження, від встановлення залежності між параметрами фізичного явища до оптимізації промислового технологічного процесу, неминуче стикається з необхідністю раціонального вибору умов проведення дослідів. Традиційний підхід, у якому дослідник послідовно варіює один фактор, утримуючи решту сталими, хоча й залишається інтуїтивно прозорим, виявляється принципово обмеженим: він не лише вимагає значних часових та матеріальних ресурсів, але й є концептуально неспроможним виявляти ефекти взаємодії між чинниками. Усвідомлення такої обмеженості сформувало системну дисципліну математичного планування експерименту.

Незважаючи на значний масив наукової літератури з математичного планування експерименту, питання послідовного та методично виваженого застосування методів планування другого порядку у поєднанні зі статистичним аналізом та канонічною інтерпретацією результатів залишається актуальним, оскільки в численних практичних роботах відповідна методологія часто застосовується не в повному обсязі або не обґрунтовується у статистичному сенсі. Отже, метою цієї статті є демонстрація цілісного методологічного підходу – від постановки задачі та конструювання матриці плану до побудови регресійної моделі, перевірки її адекватності та канонічного аналізу поверхні відгуку – на прикладі оптимізації конкретного фізичного процесу осадження тонких плівок методом магнетронного розпилення.

В якості об'єкта дослідження обрано процес планарного магнетронного розпилення, широко застосовуваний у мікроелектроніці та нанотехнологіях для формування функціональних тонкоплівкових покриттів. Функцією відгуку у виступає швидкість осадження плівки, нм/хв, – параметр, що безпосередньо визначає продуктивність процесу та однозначно вимірюється за умов конкретних дослідів. З урахуванням фізичної природи процесу в якості основних керованих

чинників визначено: потужність розряду u_1 (Вт) та тиск аргону u_2 (Па) – параметри, що домінують у кінетиці перенесення частинок від мішені до підкладки. Решту умов (відстань мішень-підкладка, матеріал мішені, температура підкладки) зафіксовано на рівні, типовому для технологічних умов лабораторної установки. Переведення від натуральних значень факторів до кодованих змінних – стандартна процедура, що забезпечує порівнянність ефектів та чисельну стійкість матриці планування. Зв'язок між натуральними та кодованими значеннями i -го фактора описується лінійним перетворенням

$$x_i = \frac{u_i - u_i^0}{\Delta u_i}, \quad i = 1, 2,$$

де u_i^0 – базове (центральне) значення; Δu_i – одиниця варіювання. Для потужності розряду: $u_1^0 = 200$ Вт, $\Delta u_1 = 100$ Вт; для тиску аргону: $u_2^0 = 0,500$ Па, $\Delta u_2 = 0,200$ Па. У кодованому масштабі кожен фактор набуває значень від $-\alpha$ до $+\alpha$ в межах активної зони планування.

Для апроксимації невідомої поверхні відгуку моделлю другого порядку обрано центрально-композиційний план (ЦКП), який є одним з найбільш поширених та статистично вивчених планів методу поверхні відгуку (МПВ) [1, 5]. ЦКП з $k = 2$ факторами складається з трьох підгруп точок: $2^k = 4$ факторних точок (вершини квадрата в кодованому просторі), $2k = 4$ зоряних (осьових) точок та n_0 центральних точок-реплікацій.

Ротатабельність плану (властивість, що забезпечує рівність дисперсії передбачення у всіх точках, рівновіддалених від центру), досягається при значенні зоряного плеча $\alpha = \sqrt[4]{2^k} = \sqrt{2} \approx 1,414$.

Загальна кількість дослідів становить

$$N = 2^k + 2k + n_0 = 11.$$

Матрицю ЦКП у кодованих змінних разом із зареєстрованими значеннями відгуку наведено у табл. 1.

Геометричне розташування дослідних точок у кодованому факторному просторі ілюструє рис. 1.

Таблиця 1. Матриця центрально-композиційного плану та результати вимірювань швидкості осадження

№	x_1	x_2	x_1^2	x_2^2	$x_1 x_2$	y , нм/хв
1	-1	-1	1	1	1	37,4
2	+1	-1	1	1	-1	51,5
3	-1	+1	1	1	-1	34,2
4	+1	+1	1	1	+1	47,1
5	-1,414	0	2	0	0	32,9
6	+1,414	0	2	0	0	51,2
7	0	-1,414	0	2	0	47,6
8	0	+1,414	0	2	0	38,5
9	0	0	0	0	0	50,7
10	0	0	0	0	0	49,5
11	0	0	0	0	0	50,1

Розглянемо процес побудови регресійної моделі для поставленої в роботі задачі. Математична постановка задачі апроксимації передбачає пошук рівняння регресії другого порядку загального вигляду:

$$\hat{y} = b_0 + \sum_{i=1}^k b_i x_i + \sum_{i=1}^k b_{ii} x_i^2 + \sum_{1 \leq i < j \leq k} b_{ij} x_i x_j + \varepsilon,$$

де b_0 – вільний член; b_i – коефіцієнти при лінійних членах; b_{ii} – при квадратичних; b_{ij} – при членах взаємодії; $\varepsilon \sim \mathcal{N}(0, \sigma^2)$ – випадкова складова. Для $k = 2$ модель включає $p = 6$ параметрів.

У матричній формі вектор оцінок коефіцієнтів визначається методом найменших квадратів:

$$\hat{\mathbf{b}} = (\mathbf{X}^T \mathbf{X})^{-1} \mathbf{X}^T \mathbf{y},$$

де $\mathbf{X}$ – матриця плану розмірності $N \times p$, $\mathbf{y}$ – вектор-стовпець зареєстрованих відгуків.

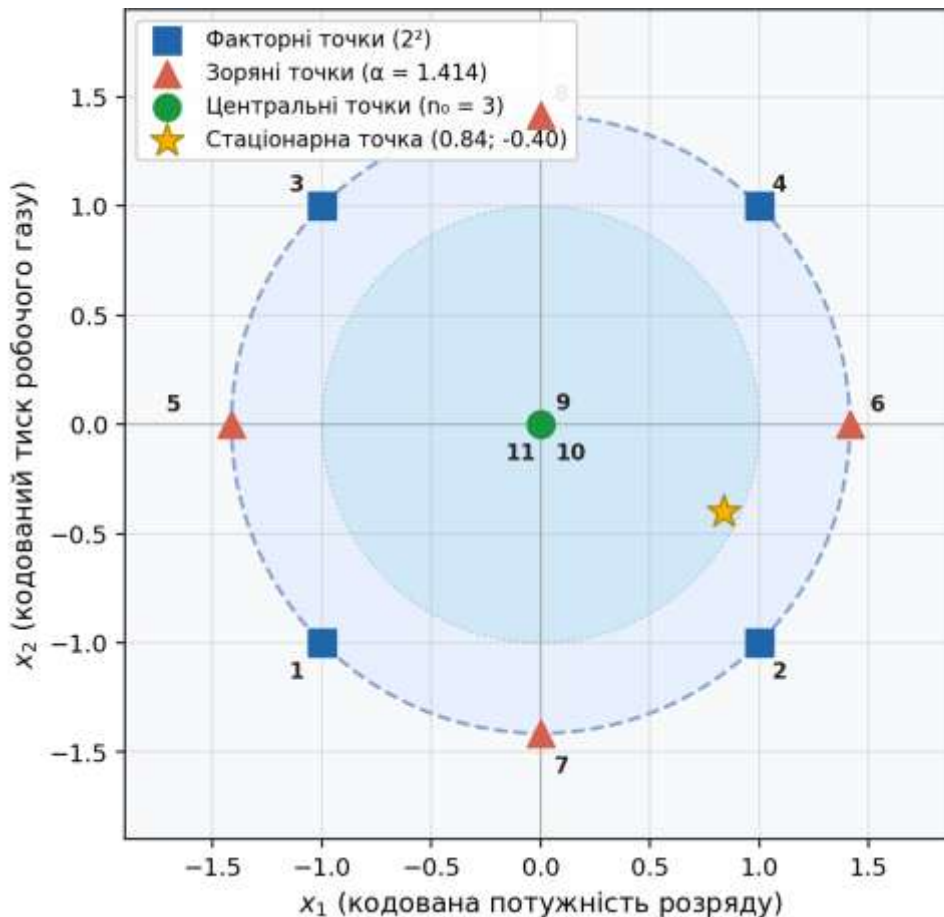


Рис. 1. Матриця центрально-композиційного плану ($k = 2$, $\alpha = \sqrt{2}$, $N = 11$)

Завдяки спеціальній структурі ЦКП матриця $\mathbf{X}^T \mathbf{X}$ набуває майже блочно-діагонального вигляду, що спрощує обчислення та зменшує кореляції між оцінками коефіцієнтів.

Підставляючи значення з табл. 1, отримуємо числові оцінки коефіцієнтів моделі, подані в табл. 2.

Перевірка значущості кожного коефіцієнта здійснюється за t -критерієм Стьюдента:

$$t_j = \frac{|\hat{b}_j|}{s_{\hat{b}_j}}, \quad s_{\hat{b}_j} = s\sqrt{c_{jj}},$$

де $s = \sqrt{MS_{\text{res}}} \approx 0,933$ нм/хв – залишкове стандартне відхилення;
 $c_{jj} = [(\mathbf{X}^T \mathbf{X})^{-1}]_{jj}$ – відповідний діагональний елемент оберненої матриці.

Таблиця 2. Оцінки коефіцієнтів регресійної моделі та їхня статистична значущість
($t_{\text{кр}} = 2,571$, $\alpha = 0,05$, $\nu = 5$)

Коефіцієнт	Оцінка $\hat{b}$	Стандартна похибка s_b	t -критерій	Значущість
b_0	50,100	0,538	93,06	+
b_1	6,610	0,330	20,05	+
b_2	-2,559	0,330	7,76	+
b_{11}	-4,025	0,392	10,26	+
b_{22}	-3,525	0,392	8,98	+
b_{12}	-0,300	0,466	0,64	-

Порівнюючи розраховані значення t_j з табличним $t_{\text{кр}}(0,05; 5) = 2,571$, бачимо, що усі лінійні та квадратичні члени є статистично значущими, тоді як ефект взаємодії b_{12} такої значущості не досягає. Це свідчить про переважно незалежний вплив потужності розряду та тиску аргону на швидкість осадження в межах дослідженого факторного простору, що фізично інтерпретується стаціонарністю кінетики розпилення за даних умов: при підвищенні потужності розряду час осадження частинок скорочується незалежно від рівня тиску газу, що визначає довжину вільного пробігу.

Наведемо результати перевірки адекватності моделі. Перш за все, представимо числові характеристики якості апроксимації. Так, коефіцієнт детермінації

$$R^2 = 1 - \frac{SS_{\text{res}}}{SS_{\text{tot}}} \approx 0,992,$$

скоригований коефіцієнт $R^2_{\text{adj}} = 0,984$ показує, що побудована модель пояснює понад 99 % варіації функції відгуку.

Загальна значущість моделі оцінюється за F -критерієм Фішера:

$$F = \frac{SS_{\text{reg}}/(p - 1)}{SS_{\text{res}}/(N - p)} \approx 121,4,$$

що суттєво перевищує критичне значення $F_{\text{кр}}(0,05; 5,5) = 5,05$, підтверджуючи статистичну значущість регресії в цілому.

Поряд із загальною перевіркою значущості окремим та концептуально важливим є критерій браку відповідності (критерій LOF), що розрізняє «чисту» помилку відтворюваності від відхилень, зумовлених неправильною специфікацією форми моделі. В такому випадку дисперсія відтворюваності, оцінена за трьома центральними реплікаціями $n_0 = 3$ ($y_9 = 50,7$, $y_{10} = 49,5$, $y_{11} = 50,1$ нм/хв) визначається у вигляді

$$s_{\text{відтв}}^2 = \frac{\sum_{j=1}^{n_0} (y_{0j} - \bar{y}_0)^2}{n_0 - 1} = 0,360 \text{ (нм/хв)}^2.$$

Тоді критерій LOF представляється наступним чином:

$$F_{\text{LOF}} = MS_{\text{LOF}}/s_{\text{відтв}}^2 = 3,36 < F_{\text{кр}}(0,05; 3,2) = 19,16.$$

Відсутність статистично значущого браку відповідності свідчить про те, що квадратична модель достатньо точно відображає фактичну форму поверхні відгуку: дисперсія залишків зумовлена переважно випадковим розкидом вимірювань, а не систематичним спотворенням через вибір неадекватного ступеня полінома.

З урахуванням незначущості коефіцієнта b_{12} , рівняння регресії набуває форми

$$\hat{y} = 50,10 + 6,61 x_1 - 2,56 x_2 - 4,025 x_1^2 - 3,525 x_2^2 - 0,30 x_1 x_2.$$

В даному рівнянні від'ємні значення коефіцієнтів при квадратичних членах $b_{11} < 0$ та $b_{22} < 0$ якісно сигналізують про те, що поверхня відгуку матиме вигнутий (куполоподібний) характер з максимумом усередині дослідженого простору – результат, що цілком узгоджується з фізичними уявленнями про існування оптимального режиму магнетронного розпилення.

Надалі наведемо результати аналізу поверхні відгуку. Наочне уявлення про характер залежності $\hat{y}(x_1, x_2)$ дають тривимірний графік поверхні відгуку (рис. 2) та карта ізоліній (рис. 3). Ізолінії правильної еліптичної форми з спільним центром у точці максимуму підтверджують, що стаціонарна точка є глобальним максимумом у межах дослідженого факторного простору. При цьому форма еліпсів свідчить про дещо більшу чутливість відгуку до варіювання потужності x_1 порівняно з тиском x_2 : нахил головної осі ізоліній є ближчим до горизонтальної, тобто до напрямку зміни x_1 .

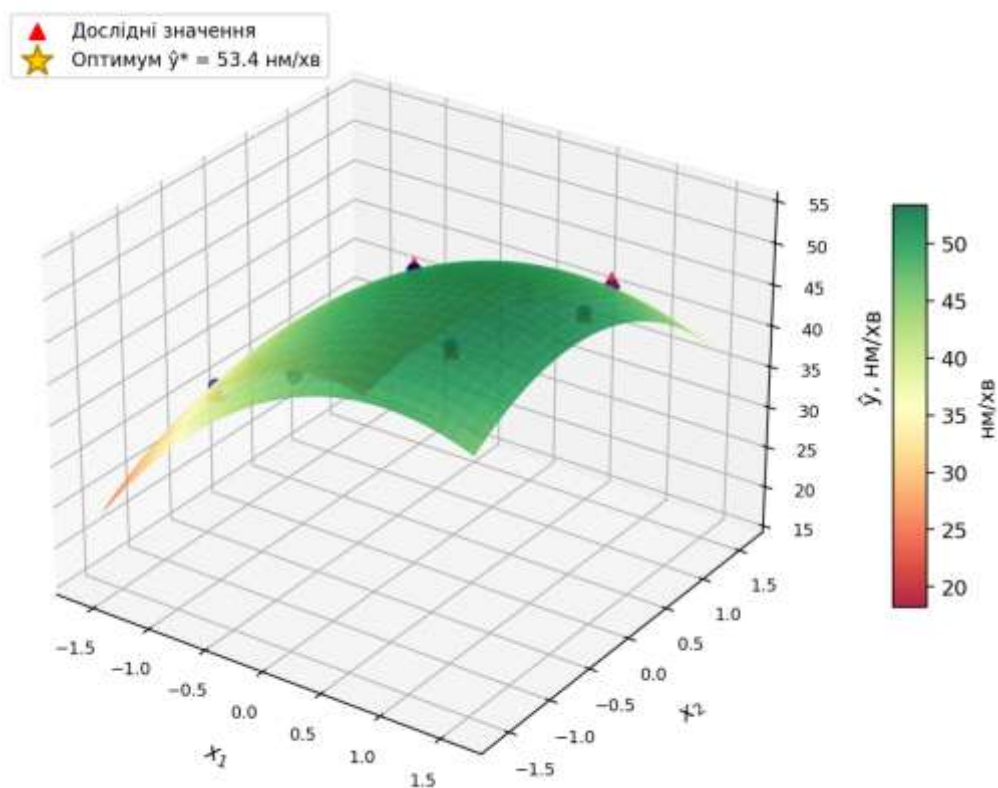


Рис. 2. Поверхня відгуку $\hat{y}(x_1, x_2)$ (швидкість осадження плівки)

Для формалізованого встановлення характеру стаціонарної точки та пошуку оптимуму застосовано канонічний аналіз поверхні відгуку [1, 5]. Квадратична частина рівняння записується у матричній формі у вигляді

$$\hat{y} = \hat{b}_0 + \mathbf{x}^\top \mathbf{b} + \mathbf{x}^\top \mathbf{B} \mathbf{x},$$

де $\mathbf{b} = (b_1, b_2)^\top$ – вектор лінійних коефіцієнтів, $\mathbf{B}$ – симетрична матриця квадратичної форми:

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} b_{11} & b_{12}/2 \\ b_{12}/2 & b_{22} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -4,025 & -0,150 \\ -0,150 & -3,525 \end{pmatrix}.$$

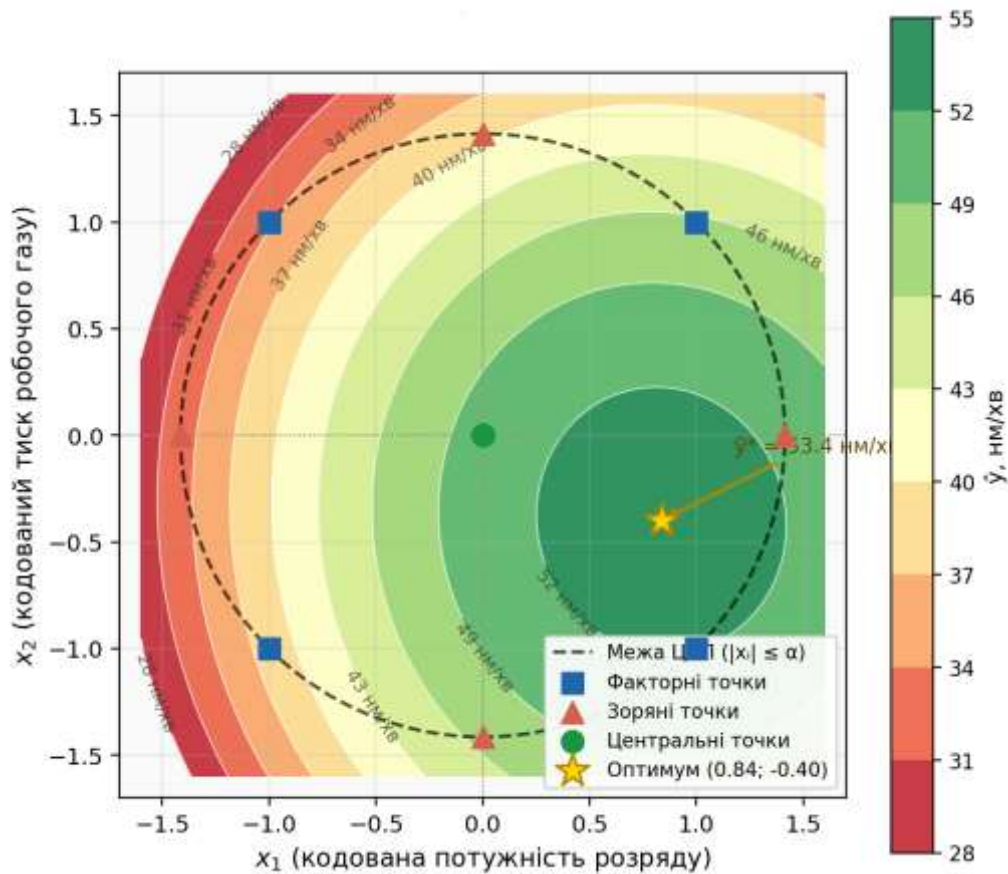


Рис. 3. Карта ізоліній поверхні відгуку (швидкість осадження плівки, нм/хв)

Координати стаціонарної точки $\mathbf{x}^*$ знаходяться з умови нульового градієнта:

$$\mathbf{x}^* = -\frac{1}{2} \mathbf{B}^{-1} \mathbf{b},$$

що дає $x_1^* = 0,836$, $x_2^* = -0,399$. Обидві координати знаходяться в межах активної зони ЦКП ($|x_i^*| < \alpha$), тому стаціонарна точка є внутрішньою по відношенню до дослідженого простору.

Власні числа матриці **B**

$$\lambda_1 = -4,067, \quad \lambda_2 = -3,484$$

є обидва від'ємними, що є формальним підтвердженням того, що стаціонарна точка є максимумом поверхні відгуку.

Канонічна форма рівняння у власних осях z_1, z_2 (орієнтованих вздовж власних векторів матриці **B**) має вигляд

$$\hat{y} = \hat{y}^* + \lambda_1 z_1^2 + \lambda_2 z_2^2 = 53,37 - 4,067 z_1^2 - 3,484 z_2^2$$

та наочно ілюструє форму поверхні: відхилення від максимуму в будь-якому напрямку спричиняє зниження відгуку, причому більш різке – у напрямку власного вектора, що відповідає λ_1 (напрямок максимальної кривизни), і дещо повільніше – у напрямку λ_2 (напрямок мінімальної кривизни).

Перераховані оптимальні кодовані координати у натуральні значення факторів мають вигляд

$$u_1^* = u_1^0 + \Delta u_1 \cdot x_1^* \approx 284,0 \text{ Вт},$$

$$u_2^* = u_2^0 + \Delta u_2 \cdot x_2^* \approx 0,420 \text{ Па}.$$

Максимальне значення швидкості осадження, передбачене моделлю в оптимальній точці, представляється у вигляді $\hat{y}^* \approx 53,4$ нм/хв.

Отримані оптимальні умови є фізично обґрунтованими: підвищена потужність розряду $u_1^* \approx 284$ Вт забезпечує достатню кількість розпилених атомів при відносно зниженому тиску $u_2^* \approx 0,42$ Па, що зменшує кількість зіткнень атомів на шляху від мішені до підкладки та тим самим підвищує їх кінетичну енергію та щільність потоку на поверхні підкладки.

Отже, викладені в роботі результати переконливо демонструють, що метод поверхні відгуку у поєднанні з централью-композиційним планом є потужним та статистично обґрунтованим інструментом оптимізації фізичних та технологічних

процесів. Ключовою перевагою застосованого підходу виявлена суттєва економія дослідницьких ресурсів: для повного дослідження двофакторного простору та побудови адекватної квадратичної моделі виявилось достатнім провести лише $N = 11$ дослідів, тоді як традиційне повнофакторне сканування з використанням п'яти рівнів на кожен фактор вимагало б $5^2 = 25$ і більше точок без будь-яких гарантій отримання придатної для оптимізації аналітичної моделі. Статистичні критерії (F -тест Фішера, t -тест Стьюдента для коефіцієнтів та критерій браку відповідності) утворили ієрархічну систему перевірок, кожна з яких додала довіри до отриманої моделі на конкретному рівні: від загальної значущості регресії до адекватності вибору ступеня полінома. Канонічний аналіз, у свою чергу, дозволив перейти від «параметричного» опису коефіцієнтів до «геометричного» розуміння форми поверхні відгуку, що зробило результати оптимізації придатними не лише для практичного використання, але й для фізичної інтерпретації. Практичне значення одержаних результатів виходить за межі конкретного технологічного застосування. Встановлений алгоритм (від вибору факторів та побудови центрально-композиційного плану через оцінювання коефіцієнтів методом найменших квадратів до верифікації адекватності та канонічного аналізу) є універсальним та може бути перенесений на широкий клас задач фізико-математичних та технічних наук.

Список використаних джерел

1. Montgomery D. C. Design and Analysis of Experiments. Hoboken : John Wiley & Sons, 2019. 757 p.
2. Box G. E., Hunter J. S., Hunter W. G. Statistics for Experimenters: Design, Innovation, and Discovery. New York : Wiley-Interscience, 2005. 656 p.
3. Lawson J. Design and Analysis of Experiments with R. Boca Raton : CRC Press, 2015. 600 p.
4. Ryan T. P. Modern Experimental Design. Hoboken : John Wiley & Sons, 2007. 592 p.
5. Myers R. H., Montgomery D. C., Anderson-Cook C. M. Response Surface Methodology: Process and Product Optimization Using Designed Experiments. Hoboken : John Wiley & Sons, 2016. 705 p.

6. Chen P.-Y., Chen R.-B., Wong W. K. Particle Swarm Optimization for Searching Efficient Experimental Designs: A Review. *Wiley Interdisciplinary Reviews: Computational Statistics*. 2022. Vol. 14, No. 5. Article e1578.
7. Ji H., Müller H.-G. Optimal Designs for Longitudinal and Functional Data. *Journal of the Royal Statistical Society, Series B: Statistical Methodology*. 2017. Vol. 79, No. 3. P. 859–876.
8. Rha H., Kao M.-H., Pan R. Design Optimal Sampling Plans for Functional Regression Models. *Computational Statistics and Data Analysis*. 2020. No. 146. Article 106925.