

혼합물 실험계획에서 블럭화의 효과를 평가할 수 있는 그래픽방법

장 대 홍¹⁾, 박 상 현²⁾

요 약

혼합물 실험에서 실험의 조건이 균질하지 않은 경우, 블럭화를 주로 행한다. 이런 블럭화가 이루어 질 때 추정반응값 분산그림을 이용하여 각 구성성분에 제약이 없는 경우와 제약이 있는 경우 각각에 대하여 블럭화가 실험계획의 추정반응값 분산에 어떤 영향을 미치는지 알 수 있는 그래픽 방법을 제안하였다. 이 방법을 통하여 혼합물 실험에서 블럭화의 효과를 각 구성성분에 대하여 알아볼 수 있다. 또한, 어떤 블럭화가 추정반응값 분산의 증가를 최소화할 수 있는 지를 그림을 이용하여 비교, 검토할 수 있게 된다.

1. 서론

혼합물 실험에서 구성성분 갯수를 q 개라 하고, x_i 를 i 번째 구성성분의 비율이라 하면,

$$0 \leq x_i \leq 1, \quad \sum_{i=1}^q x_i = 1, \quad i = 1, 2, \dots, q \quad (1)$$

이 된다.

(1)식 외에 각 구성성분에 제약이 있는 경우, 즉

$$0 < L_i \leq x_i \leq U_i < 1, \quad i = 1, 2, \dots, q \quad (2)$$

일 때, 실험영역은 원 다면체상의 제한된 영역이 되고, 일반적으로 불규칙한 볼록다면체가 된다. 이런 경우 볼록다면체의 꼭지점, 각 면의 중심점, 각 변의 중심점, 전체 중심점들이 실험계획을 구성할 수 있는 후보점들이 된다.

반응표면에서 뿐만이 아니라 혼합물 실험에서도 실험의 조건이 균질하지 않은 경우, 균질하게 하기 위하여 블럭화(blocking)를 행한다. 특히, 최소제곱추정방법으로 구한 구성성분의 회귀계수들이 블럭의 효과들에 영향을 받지 않기 위하여 종종 직교블럭화(orthogonal blocking)를 행한다.

Murty and Das (1968), Nigam (1970), Saxena와 Nigam (1973), Singh, Pratap과 Das (1982) 등은 혼합물 실험에서 직교블럭화를 이루기 위한 조건들에 대하여 언급하였다. Khuri (1994)는 반응표면분석에서 반응표면의 추정에 블럭화가 끼치는 영향에 대하여 언급하였다. 또, Vining,

1) (608-737) 부산광역시 남구 대연3동 599-1, 부산수산대학교 응용수학과 부교수.

2) (608-737) 부산광역시 남구 대연3동 599-1, 부산수산대학교 응용수학과 박사과정.

Cornell과 Myers (1993)은 혼합물 실험에서 제한된 영역에서의 실험계획에 대하여 전 실험영역에 걸친 성능을 파악할 수 있는 그래픽 방법을 제안하였다. 본 논문에서는 Khuri (1994)와 Vining, Cornell 과 Myers (1993)이 제안한 방법들을 이용하여 혼합물 실험에서 블럭화의 효과를 각 구성성분에 대하여 알아 볼 수 있는 그래픽 방법을 제안하였다. 추정반응값 분산그림을 통하여 각 구성성분에 제약이 없는 경우와 제약이 있는 경우 각각에 대하여 블럭화가 실험계획의 추정반응값 분산에 어떤 영향을 미치는지 알 수 있게 되고, 직교블럭화의 경우와 비직교블럭화의 경우도 블럭화의 효과를 서로 비교할 수 있게 된다. 또한, 어떤 블럭화가 추정반응값 분산의 증가를 최소화할 수 있는 지를 추정반응값 분산그림을 통하여 비교, 검토할 수 있다. 제 2절에서는 혼합물 실험계획에서의 블럭화에 대하여 언급하였고, 제 3절에서는 혼합물 실험계획의 각 구성성분에 제약이 없는 경우와 있는 경우 각각에 대하여 추정반응값 분산그림을 이용한 수치 예를 제시하였고 제 4절에서는 결론을 내렸다.

2. 혼합물 계획에서의 블럭화

혼합물 실험모형으로 Scheffé형 모형을 많이 쓰는데, Scheffé형 1차와 2차 모형은 각각

$$\eta = \sum_{i=1}^q \beta x_i$$

와

$$\eta = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i < j} \beta_{ij} x_i x_j$$

이 된다. 여기서, η 는 평균반응값이고, β_i 나 β_{ij} 는 각각 x_i 와 $x_i x_j$ 에 대응되는 회귀계수들이다.

이 모형을 $x_q = 1 - \sum_{j=1}^{q-1} x_j$ 을 이용하여 일반적인 회귀모형으로 변환하면 각각,

$$\eta = \alpha_0 + \sum_{i=1}^{q-1} \alpha_i x_i$$

와

$$\eta = \alpha_0 + \sum_{i=1}^{q-1} \alpha_i x_i + \sum_{i < j} \alpha_{ij} x_i x_j$$

로 바뀐다. 이 모형을

$$\eta(\underline{x}) = \alpha_0 + \underline{x}_a' \underline{a} \quad (3)$$

라 하자. 여기서, $\underline{x} = (x_1, x_2, \dots, x_q)$, 1차 모형에서는 $\underline{x}_a' = (x_1, x_2, \dots, x_{q-1})$, $\underline{a}' = (\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_{q-1})$ 이고, 2차모형에서는 $\underline{x}_a' = (x_1, x_2, \dots, x_{q-1}, x_1^2, x_2^2, \dots, x_{q-1}^2, x_1 x_2, \dots, x_1 x_{q-1}, \dots, x_{q-2} x_{q-1})$, $\underline{a}' = (\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_{q-1}, \alpha_1^2, \alpha_2^2, \dots, \alpha_{q-1}^2, \alpha_{12}, \dots, \alpha_{1, q-1}, \dots, \alpha_{q-2, q-1})$ 이다.

n 개의 실험점으로 구성된 실험계획에서 n 개의 실험들의 조건이 균질하지 못하여 b 개의 블럭으로 나눈 결과, 각 블럭내에서는 실험들의 조건이 균질하게 되었다고 가정하고, n_j 를 $n = \sum_{j=1}^b n_j$

를 만족하는 j 번째 블럭의 크기라 할 때 ($j=1, 2, \dots, b$), 반응값 벡터 y 는

$$y = \alpha_0 \mathbf{1}_n + X\alpha + Z\delta + \varepsilon \quad (4)$$

이 된다. 여기서, $\mathbf{1}_n$ 는 원소가 모두 1인 $n \times 1$ 벡터, X 는 $\mathbf{1}_n$ 를 제외한 $n \times p$ 모형행렬, $\delta = (\delta_1, \delta_2, \dots, \delta_b)'$ 는 블럭효과 벡터, $Z = \text{diag}(\mathbf{1}_{n_1}, \mathbf{1}_{n_2}, \dots, \mathbf{1}_{n_b})$ 인 블럭대각행렬, 그리고, $\varepsilon \sim (0, I\sigma^2)$ 인 오차벡터이다. $\mathbf{1}_n = Z\mathbf{1}_b$ 이므로, (4)식을

$$y = W\theta + \varepsilon \quad (5)$$

로 바꿀 수 있다. 여기서, $W = [X : Z]$, $\theta = (\alpha', \tau)'$, $\tau = \alpha_0 \mathbf{1}_b + \delta$ 이다. $\sum_{j=1}^b \delta_j = 0$ 으로 가정하면,

$$\alpha_0 = \frac{1}{b} \sum_{j=1}^b \tau_j = \frac{1}{b} \mathbf{1}_n' \tau$$

로 놓을 수 있다. 여기서 τ_j 는 τ 의 j 번째 원소이다 ($j=1, 2, \dots, b$).

그러면, θ 에 대한 최소제곱 추정량은

$$\hat{\theta} = (W'W)^{-1} W'y$$

가 되고, $\hat{\theta}$ 의 분산-공분산 행렬은

$$\text{Var}(\hat{\theta}) = (W'W)^{-1} \sigma^2$$

이 된다. $\hat{\theta}$ 를 이용하여 (3)식에 대한 추정량을 구하면,

$$\hat{\eta}(x) = \hat{\alpha}_0 + \underline{x}_\alpha' \hat{\alpha} \quad (6)$$

이 된다. 여기서, $\hat{\alpha}_0 = \frac{1}{b} \mathbf{1}_n' \hat{\tau}$ 이다.

$\sum_{i=1}^q x_i = 1$ 이라는 사실을 이용하여 (6)식을 다시 쓰면,

$$\hat{\eta}(x) = \underline{x}_\theta' \hat{\theta}$$

가 된다. 여기서, $\underline{x}_\theta' = \left[\underline{x}_\alpha' : \left(\frac{1}{b} \sum_{i=1}^q x_i \right) \mathbf{1}_b' \right]$ 이다. 그러므로, $\hat{\eta}(x)$ 의 분산은

$$\text{Var}[\hat{\eta}(x)] = \underline{x}_\theta' (W'W)^{-1} \underline{x}_\theta \sigma^2$$

이 된다.

$$V(\underline{x}) = \frac{\text{Var}[\hat{\eta}(\underline{x})]}{\sigma^2} = \underline{x}_\theta'(W'W)^{-1} \underline{x}_\theta$$

라 하자. 그러면, 각 구성성분에 제약이 없는 경우는 각 구성성분의 축방향을 따라서, 각 구성성분에 제약이 있는 경우는 각 구성성분의 Cox 방향을 따라 $V(\underline{x})$ 의 값을 구하여 그림으로 나타내면 추정반응값 분산그림(prediction variance trace : PVT)이 되는데, 이 그림을 이용하면 추정반응값 분산의 관점에서 블럭화가 각 구성성분에 미치는 효과를 전 실험영역에 걸쳐 알아볼 수 있고, 직교블럭화의 경우와 비직교블럭화의 경우도 블럭의 효과를 서로 비교하여 볼 수 있다. 여기서, 축방향이란 원 다면체의 전체중심점에서 각 꼭지점을 이은 가상선이고, Cox 방향이란 제한된 영역의 전체 중심점에서 각 꼭지점을 이은 가상선을 말한다. 추정반응값 분산그림에서 각 구성성분에 대한 효과를 알기 위하여 구성성분의 축방향 또는 Cox 방향을 이용하는 이유는, 각 구성성분의 값이 축방향이나 Cox 방향을 따라 변할 때, 다른 구성성분들의 비는 변화가 없기 때문에 관심의 대상인, 특정 구성성분만의 효과를 알 수 있기 때문이다. 즉, i 번째 구성성분 x_i 가 축방향이나

Cox 방향을 따라 변할 때, 다른 구성성분들의 비인 $\frac{x_j}{x_k}$ 의 비율(여기서, $j \neq k \neq i$)은 일정하여 i

번째 구성성분만의 효과를 얻을 수 있다.

Khuri (1994)는 블럭화 후의 실험계획이 블럭화 전의 실험계획에 비하여 추정반응값 분산이 항상 크거나 같게 된다는 것을 증명하였다. 또한, 직교블럭계획인 경우는 각 블럭의 크기가 동일하면 추정반응값 분산이 블럭화 전의 실험계획과 같아짐을 보였다. 혼합물 실험계획에서 각 구성성분에 대하여 제약이 없는 경우는 직교블럭계획을 만들기가 용이하나, (2)식처럼 각 구성성분에 대하여 제약이 있는 경우는 직교블럭계획을 만드는 것이 힘들므로 블럭화한 경우가 블럭화 전보다 추정반응값 분산이 거의 항상 크게 된다.

3. 블럭화의 효과를 평가하기 위한 추정반응값 분산그림

3.1 각 구성성분에 제약이 없는 경우

(1)식을 제외하고는 각 구성성분에는 제약이 없는 경우로서 다음 표1과 같은 3개의 구성성분들을 갖는 직교블럭계획과 비직교블럭계획을 생각하여 볼 수 있다. 여기서, 직교블럭계획은 Cornell (1990)에 언급한 대칭-심플렉스 블럭계획(symmetric-simplex block design)이고, 비직교블럭계획은 직교블럭계획과 비교하기 위하여 이 계획의 2개의 블럭에서 각각 하나의 실험점을 서로 교체하여 만든 블럭계획이다. 이 계획들을 이용하여 2차모형을 추정하였다 할 때, 직교블럭계획에 대한 PVT가 그림1이고, 비직교블럭계획에 대한 PVT가 그림2이다. 이 그림들에서 알 수 있는 사실은 직교블럭계획인 경우 $V(\underline{x})$ 의 변화가 모든 구성성분들에 대하여 동일하다는 것과 비직교블럭계획인 경우 각 구성성분에 대한 $V(\underline{x})$ 의 변화가 조금씩 다르게 나타난다는 것이다. 이 차이가 직교블럭계획이 비직교블럭계획으로 바뀌면서 나타나는 차이인 것이다. PVT가 이런 변화를 그림으로 쉽게 발견할 수 있게 하는 수단이 된다.

표1. 직교블럭계획과 비직교블럭계획

	직교블럭계획			비직교블럭계획		
	x_1	x_2	x_3	x_1	x_2	x_3
블럭 1	1	0	0	1	0	0
	0	1	0	0	1	0
	0	0	1	0	0	1
	1/2	1/2	0	2/3	1/6	1/6
	1/2	0	1/2	1/2	0	1/2
	0	1/2	1/2	0	1/2	1/2
블럭 2	1	0	0	1	0	0
	0	1	0	0	1	0
	0	0	1	0	0	1
	2/3	1/6	1/6	1/2	1/2	0
	1/6	2/3	1/6	1/6	2/3	1/6
	1/6	1/6	2/3	1/6	1/6	2/3

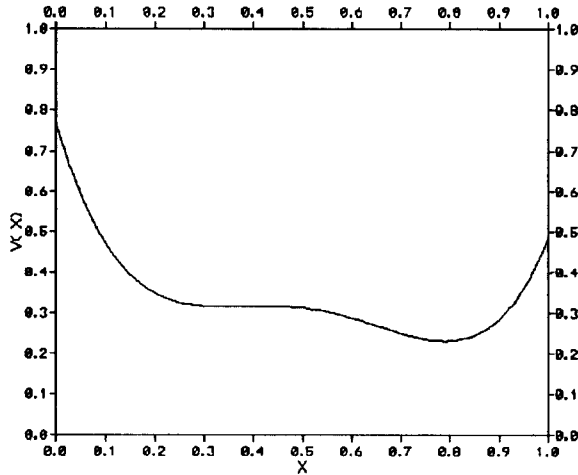


그림1. 직교블럭계획에 대한 추정반응값 분산그림

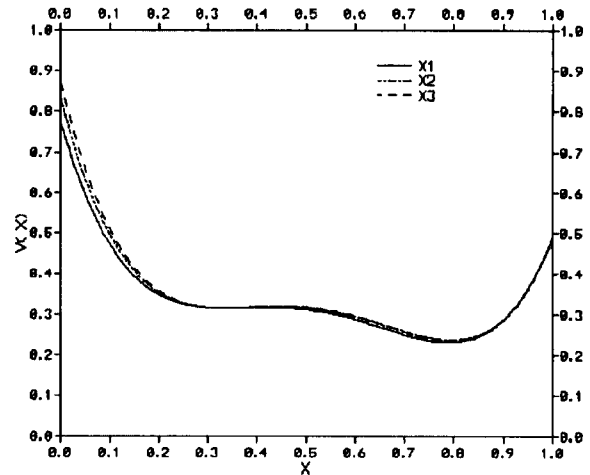


그림2. 비직교블럭계획에 대한 추정반응값 분산그림

3.2 각 구성성분에 제약이 있는 경우

McLean과 Anderson (1966)은 화염실험을 통하여 4개의 성분들에 다음과 같은 제약조건을 주어 표2와 같은 27개의 후보점들을 제시하고, 이 중 15개의 실험점들로 구성된 McLean-Anderson 실험계획을 제시하고, 이 실험계획을 이용하여 2차모형을 추정하였다.

$$\begin{aligned}
 &0.40 \leq x_1 \leq 0.60 \\
 &0.10 \leq x_2 \leq 0.50 \\
 &0.10 \leq x_3 \leq 0.50 \\
 &0.03 \leq x_4 \leq 0.08
 \end{aligned}$$

여기서, x_1 은 magnesium의 비율, x_2 는 sodium nitrate의 비율, x_3 는 strontium nitrate의 비율, x_4 는 binder의 비율이다.

표2. McLean과 Anderson 화염실험에서의 후보점들

	꼭지점					변 중심점					면 중심점			
	x_1	x_2	x_3	x_4		x_1	x_2	x_3	x_4		x_1	x_2	x_3	x_4
1	0.40	0.10	0.47	0.03	9	0.40	0.100	0.445	0.055	21	0.40	0.2725	0.2725	0.055
2	0.60	0.10	0.27	0.03	10	0.40	0.445	0.100	0.055	22	0.60	0.1725	0.1725	0.055
3	0.40	0.47	0.10	0.03	11	0.40	0.285	0.285	0.030	23	0.50	0.1000	0.3450	0.055
4	0.60	0.27	0.10	0.03	12	0.40	0.260	0.260	0.080	24	0.50	0.3450	0.1000	0.055
5	0.40	0.10	0.42	0.08	13	0.60	0.100	0.245	0.055	25	0.50	0.2350	0.2350	0.030
6	0.40	0.42	0.10	0.08	14	0.60	0.245	0.100	0.055	26	0.50	0.2100	0.2100	0.080
7	0.60	0.10	0.22	0.08	15	0.60	0.185	0.185	0.030					
8	0.60	0.22	0.10	0.08	16	0.60	0.160	0.160	0.080	27*	0.50	0.2225	0.2225	0.055
					17	0.50	0.100	0.370	0.030					
					18	0.50	0.100	0.320	0.080					
					19	0.50	0.370	0.100	0.030					
					20	0.50	0.320	0.100	0.080					

* 전체 중심점

다음 표3에 15개의 실험점들로 구성된 McLean-Anderson 실험계획과 D-최적화 실험계획을 제시하였다. Vining, Cornell과 Myers (1993)에 의하면 추정반응값 분산의 입장에서는 McLean-Anderson 실험계획이 D-최적화 실험계획보다 더 좋다는 것을 밝혔으나, Jang과 Park (1995)에 의하면 실험계획의 강건성의 입장에서는 D-최적화 실험계획이 McLean-Anderson 실험계획 만큼은 못하나 꽤 강건하다는 것을 밝혔다. 그래서, McLean-Anderson 실험계획과 D-최적화 실험계획 2가지를 다루어 보았다.

표3. 표2를 이용한 혼합물 실험계획

	M-A*	D
꼭지점 1-8	전부	전부
변 중심점 9-20		
		9
		11
		13
		17
		18
면 중심점 21-26	21	21
	22	24
	23	
	24	
	25	
	26	
전체 중심점 27	27	

* M-A : McLean-Anderson 실험계획, D : D-최적화 계획

표3을 이용하여 임의로 표4와 같은 블럭계획들을 만들어 보았다. 이 블럭계획들은 수많은 블럭계획들 중 추정반응값 분산의 변화가 아주 심한 경우와 아주 약한 경우들을 택한 블럭계획들이다.

우리는 표3을 이용하여 블럭의 갯수가 3개 이상인 경우의 블럭계획들도 작성하여 분석하여 볼 수 있다.

표4. 블럭계획들

계획	M-A1	M-A2	M-A3	D1	D2
블럭 1	1	1	1	1	1
	2	2	2	2	2
	3	5	3	3	5
	4	6	4	4	7
	5	22	22	5	17
	6	24	24	6	18
	7	26	26	7	24
	8			8	
블럭 2	21	3	5	9	3
	22	4	6	11	4
	23	7	7	13	6
	24	8	8	17	9
	25	21	21	18	11
	26	23	23	21	13
	27	25	25	24	21
		27	27		

그림3은 원 M-A 계획에 대한 PVT와 M-A1 블럭계획에 대한 PVT를 나타낸 그림이다. M-A1 블럭계획은 첫번째 블럭이 8개의 꼭지점들로 구성되어 있고, 두번째 블럭이 면 중심점들과 전체 중심점으로 구성되어 있는 블럭계획이다. 이런 블럭계획은 원 M-A 계획에 비하여 추정반응값 분산이 매우 크게 나타남을 알 수 있다. 또한, 원 M-A 계획에서는 각 구성성분의 제한영역의 변두리에서 추정반응값 분산이 크게 나타나나, M-A1 블럭계획에서는 각 구성성분의 제한영역의 가운데에서 추정반응값 분산이 크게 나타남을 알 수 있다. 그림4는 원 M-A 계획에 대한 PVT와 M-A2 블럭계획에 대한 PVT를 나타낸 그림이다. M-A2 블럭계획은 첫번째 블럭과 두번째 블럭에 각각 꼭지점들과 면/전체 중심점들이 골고루 섞여 있는 블럭계획이다. 이런 계획은 추정반응값 분산의 변화가 원 M-A 계획과 비슷하게 나타남을 알 수 있다.

그림5는 원 M-A 계획에 대한 PVT와 M-A3 블럭계획에 대한 PVT를 나타낸 그림이다. M-A3 블럭계획은 M-A2 블럭계획처럼 2개의 블럭에 꼭지점들과 면/전체 중심점들이 골고루 섞여 있는 블럭계획이나 M-A2 블럭계획과는 다른 구성을 하고 있는 블럭계획이다. 이런 계획은 추정반응값 분산의 변화가 원 M-A 계획과는 다르게 나타남을 알 수 있다. 즉, 첫번째 구성성분에서는 제한영역의 작은 쪽에서, 두번째/세번째 구성성분에서는 제한영역의 큰 쪽에서 원 M-A 계획 보다도 추정반응값 분산이 오히려 줄고 있음을 알 수 있다. 그림6은 원 D-최적화 계획에 대한 PVT와 D1 블럭계획에 대한 PVT를 나타낸 그림이다. D1 블럭계획은 첫번째 블럭이 8개의 꼭지점들로 구성되어 있고, 두번째 블럭이 면 중심점들과 면 중심점들로 구성되어 있는 블럭계획이다. 이런 블럭계획은 원 D-최적화 계획에 비하여 추정반응값 분산이 매우 크게 나타남을 알 수 있다. 또한, 첫번째, 두번째, 세번째 구성성분에서는 원 D-최적화 계획처럼 제한영역의 가운데에서 추정반응값 분산이 크게 나타난다. 그러나, 네번째 구성성분에서는 D-최적화 계획과는 반대의 경향을 나타낼 수 있다.

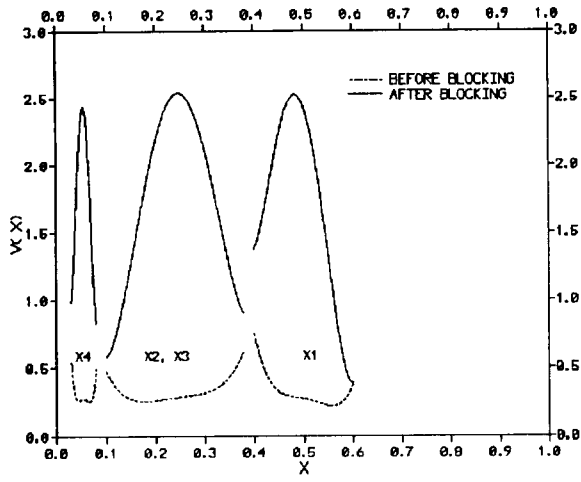


그림3. 원 M-A 계획과 M-A1 블럭계획에 대한 추정반응값 분산그림

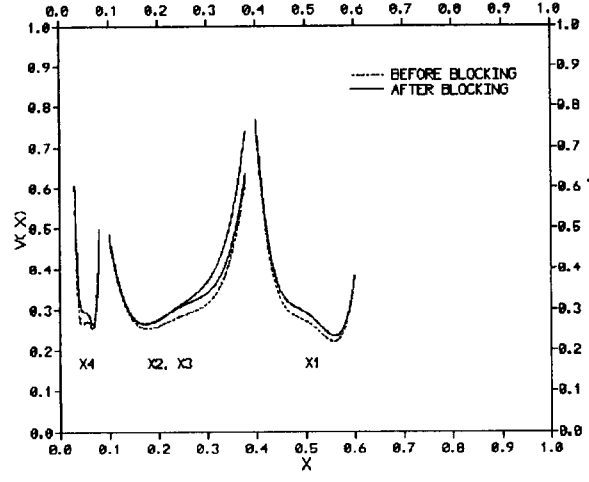


그림4. 원 M-A 계획과 M-A2 블럭계획에 대한 추정반응값 분산그림

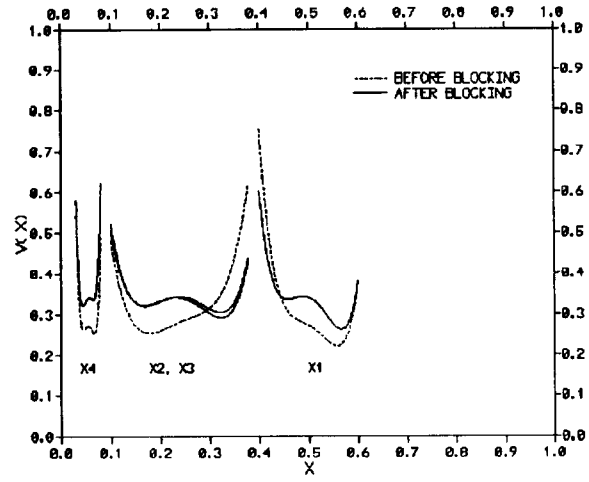


그림5. 원 M-A 계획과 M-A3 블럭계획에 대한 추정반응값 분산그림

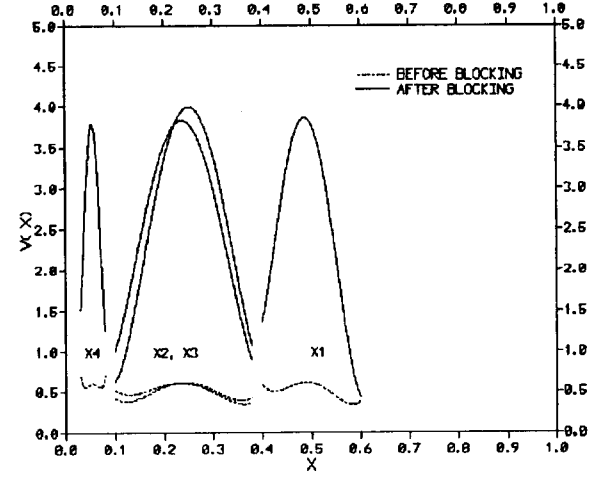


그림6. 원 D-최적화 계획과 D1 블럭계획에 대한 추정반응값 분산그림

그림7은 원 D-최적화 계획에 대한 PVT와 D2 블럭계획에 대한 PVT를 나타낸 그림이다. D2 블럭계획은 첫번째 블럭과 두번째 블럭에 각각 꼭지점들과 변/면 중심점들이 골고루 섞여 있는 블럭계획이다. 이런 계획은 각 구성성분의 제한영역의 변두리에서 원 D-최적화 계획보다 추정반응값 분산이 크게 나타남을 알 수 있다.

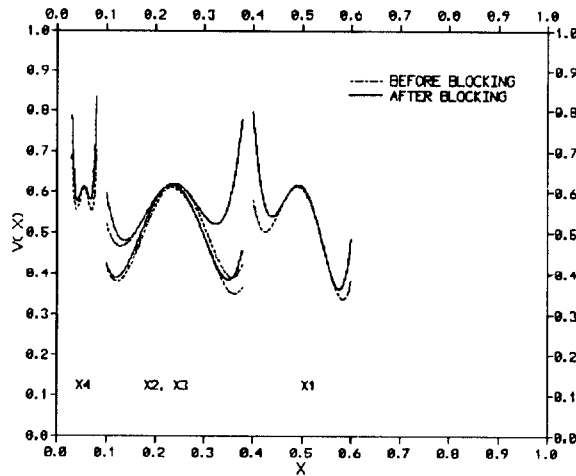


그림7. 원 D-최적화 계획과 D2 블럭계획에 대한 추정반응값 분산그림

4. 결론

우리는 제 3절에서 각 구성성분에 제약이 없는 경우에는 직교블럭계획과 비직교블럭계획이 추정반응값 분산에서 차이가 나타남을 추정반응값 분산그림을 통하여 확인하였다. 각 구성성분에 제약이 있는 경우에는 블럭계획들이 대부분 비직교블럭계획들이므로 블럭화 전보다 항상 추정반응값 분산이 크게 됨을 추정반응값 분산그림을 통하여 알 수 있었다. 또한, 어떤 블럭화가 추정반응값 분산의 증가를 최소화시킬 수 있는 지를 추정반응값 분산그림을 통하여 확인할 수 있었고, 블럭계획들을 추정반응값 분산의 입장에서 서로 비교, 검토하여 볼 수 있었다.

본 논문에서는 혼합물 실험시 블럭화의 효과를 추정반응값 분산의 관점에서 평가할 수 있는 그래픽 방법을 제안하였다. 추정반응값 분산그림을 통하여 각 구성성분에 대하여 블럭화의 효과를 알 수 있고, 직교 블럭화의 경우와 비직교블럭화의 경우도 블럭화의 효과를 서로 비교할 수 있다. 이 논문의 확장으로써, 분산 뿐만 아니라 편의도 고려하여 평균제곱오차로 까지 확장하여 그림을 작성할 수 있다.

참고문헌

- [1] Cornell, J. A. (1990). *Experiments with Mixtures*, John Wiley & Sons, Inc., New York.
- [2] Jang, D. H. and Park, S. H. (1995). A Graphical Method for Evaluating the Effect of Design Augmentation, Missing Observations, and Outliers in Mixture Experiments, *Proceedings of the International Conference on Statistical Methods and Statistical Computing for Quality and Productivity Improvement*, Vol. 2, 663-669.
- [3] Khuri, A. I. (1994). The Effect of Blocking of the Estimation of a Response Surface, 회귀 분석을 통한 품질향상에 관한 Workshop, 한국통계학회 공업통계연구회, 91-109.
- [4] Murty, J. S. and Das. M. N. (1968). Design and Analysis of Experiments with Mixtures, *Annals of Mathematical Statistics*, Vol. 39, 1517-1539.
- [5] Nigam, A. K. (1970). Block Designs for Mixture Experiments, *Annals of Mathematical Statistics*, Vol. 41, 1861-1869.
- [6] Saxena, S. K. and Nigan, A. K. (1973). Symmetric-Simplex Block Designs for Mixtures, *Journal of the Royal Statistical Society B*, 35, 466-472.
- [7] Singh, S. P., Pratap, M., and Das., M. N. (1982). Analysis of Mixture Experiments in presence of Block effects, *Sankhya*, Vol. 44, 270-277.
- [8] Vining, G. G., Cornell, I. A., and Myers, R. H. (1993). A Graphical Approach for Evaluating Mixture Designs, *Applied Statistics*, Vol. 42, 127-138.