

반도체 봉지제용 EMC의 점도거동 특성 연구 - Mooney식을 이용한 점도예측 -

김인범·배두한·이명천[†]·이의수·윤호창*·임종찬*

동국대학교 화학공학과, *고려화학 중앙연구소
(1999년 8월 11일 접수, 1999년 9월 11일 채택)

The Characteristics of Viscosity Behavior of EMC for Semi-conductor Encapsulant - The Prediction of Viscosity by Mooney Equation -

In Beom Kim, Doo Han Bae, Myung Cheon Lee[†], Euy Soo Lee, Hyo Chang Yun*, and Jong Chan Lim*

Department of Chemical Engineering, Dongguk University, Seoul 100-715, Korea

*Central Research Institute, Korea Chemical Co., Kyunggi 449-910, Korea

(Received August 11, 1999; accepted September 11, 1999)

요약 반도체 봉지제에 쓰이는 EMC(Epoxy Molding Compound)는 고농도의 충전제를 함유하고 있는데, 이 충전제의 양과 성질에 따라 유동 특성이 크게 달라진다. 본 연구에서는 충전제의 농도, 입자모양, 크기에 따른 EMC(에폭시/실리카)의 점도변화 특성을 조사하였고, 이를 Mooney 식을 사용하여 예측하여 보았다. Mooney 식에 포함되어 있는 최대 충전율과 형상인자 중 최대 충전율은 Ouchiya의 충전 모델과 Taguchi의 방법을 이용하여 구하였고, 형상인자는 실험자료를 이용하여 구하였다. 구해진 Mooney 식은 EMC의 점도 거동을 잘 예측하였다.

Abstract: Because epoxy molding compound(EMC) for semi-conductor encapsulants contains high concentrations of fillers, its flow behaviors are affected much by the concentrations and properties of those fillers. This paper reports the effects of a filler concentration, shape, size, and size distributions on the viscosity behavior of EMC(epoxy/silica). In addition, the prediction of viscosity behavior was performed using the Mooney equation. The maximum packing volume in the Mooney equation was calculated by Ouchiya's packing model and Taguchi's optimization method, while the shape factor was determined by fitting the experimental data. The results showed that the Mooney equation predicted the viscosity behavior of EMC very well.

Keywords: EMC, encapsulant, Mooney, viscosity

1. 서 론

반도체 봉지제로 쓰이는 epoxy molding compound(EMC)는 외부로부터의 물리적, 화학적 영향에 대해서 마이크로칩을 보호하는 역할을 한다. 이 EMC는 transfer molding 공정을 통하여 마이크로 칩과 회로 주위로 흘러 들어가게 되고, 가교결합에 의한 경화가 진행되어 반도체 봉지제로서의 역할을 수행한다. 따라서, 몰딩과정에서 EMC의 유동성을 나타내는 점도가 중요한 물성을 나타낸다고 할 수 있다[1,2].

EMC의 구성 성분은 에폭시 수지 외에 여러 종류의 첨가제 및 많은 양의 충전제가 포함되어 있다. 충전제의 경우 주로 실리카가 사용되고 있는데, 그 모양과 입자크기 및 크기분포 등이 다양하며 보통 85 wt % 정도를 차지하고 있다[2,3]. 최근에 와서는 보다 낮은 점도의 에폭시 수지를 이용하여 추가적인 원가 절감 및 EMC의 열적, 그리고 전기적 성질의 안정화를 위해 실리카 충전제의 함량을 90 wt %까지 증가시키려는 노력이 진행되고 있다. 그러나, 실리카 충전제의 함량이 증가함에 따라 점도가 급격히 상승하게 되고 이로 인해 pre-mixing 단계나 transfer molding과정에서의

높은 점도로 말미암아 많은 어려움이 발생하게 되며, EMC 시스템이 나타내는 유동학적인 거동 특성이 에폭시 수지보다는 충전제들에 의해 점성 및 점탄성 특성들이 크게 좌우되기 쉽기 때문에 이에 대한 영향을 고려하여야 한다.

일반적으로 충전제가 함유된 고분자 유체의 유동학적 거동에 영향을 줄 수 있는 인자들로는 충전제의 분산정도, 함량, 입자크기, 입자모양, 입자 크기분포, 표면처리여부 등을 들 수 있다. 또한, 충전제가 고농도로 충전되어 있는 경우에는 입자간의 상호작용이 중요하게 작용하는데, 그 정도에 따른 적당한 점도 예측식의 선택이 중요하다[4-6].

충전제가 함유되어진 유체의 점도를 예측하는 수식에 대한 연구는 오래 전부터 많은 수식들이 이미 제안되어 왔다[7,8]. 그러나, 지금까지 제안되어진 수식들은 주로 낮은 농도로 충전제가 함유되어 입자간의 상호작용이 무시되는 유체에 대한 경우나 충전제의 입자크기가 단분산되어 있는 경우에 대한 것들이다. EMC의 경우 충전제가 85 wt % 정도로 고충전되고 있고 서로 다른 모양과 크기의 충전제들이 혼합되어 있으며 충전제 입자의 크기가 균일하지 않고 분산되어 있어 최대 충전율 값의 계산은 단순한 충전모델로는 잘 맞지 않는다. 본 연구에서는 점도 예측을 위해 Mooney 식을 사용하였는데, 이 Mooney 식은 아래의 식 (1)에서 보는 바와 같이 형상 인자(shape factor), k_E 와 최대 충전율, ϕ_m 두 가지 매

[†] 주 저자 (e-mail: leemc@cakra.dongguk.ac.kr)

개변수를 포함하고 있는데 형상 인자에는 입자모양과 입자간의 상호작용에 의한 영향이, 최대 충전율에는 입자 크기분포가 미치는 영향이 포함되어 있다[9].

$$\ln \frac{\eta}{\eta_f} = \frac{k_E \Phi}{1 - \frac{\Phi}{\Phi_m}} \quad (1)$$

η_f ; 순수 수지의 점도

Φ_m 값은 이상적으로 충전되어진 상태를 실험적으로 재현하여 그 값을 구하는 것이 어렵기 때문에 충전모델을 설정하여 충전제의 입도 분포로부터 이론적으로 계산하여야 한다. 따라서, Φ_m 값을 최적화하기 위한 입도 분포를 수학적으로 예측하고 이를 바탕으로 실제 응용 가능한 프로그램을 개발하였는데, 본 연구에서는 구형의 충전제로 가정할 경우 충전율을 구하기 위하여 Ouchiyama의 충전 모델을 사용하였고, 최적 충전율을 구하기 위하여 Taguchi 방법을 사용하였다[11,12]. Ouchiyama에 의해 제안된 충전모델은 다양한 크기를 가지는 구형 입자들이 무질서하게 충전되어 있는 경우, 특정 입자 주위에 있는 입자들이 평균 입자들이라고 가정하여 세워진 것이다. 평균입자 크기의 가정은 동일 크기의 구형의 집합에서의 공극과 입자의 혼합상태에서의 크기 분포에 좌우된다[11]. 즉, Ouchiyama 이론에 따르면 직경 D 인 고체 입자를 직경 $D + \bar{D}$ (\bar{D} : 고체 입자를 둘러싸고 있는 입자들의 평균 지름)인 원래의 입자보다 큰 가상구(가상구는 입자주위의 공극도 포함함)가 둘러싸고 있다고 가정하였다. 그에 반해서 각각의 가정의 구는 다른 가상구들과 같은 공간을 차지하고 있다고 가정하였고, 그 공간이라는 것은 각각 $D \sim \bar{D}$ 와 $D + \bar{D}$ 라는 내경과 외경을 가지고 구형의 입자 안에서 알맞게 제한되어 있다. 내경 $D \sim \bar{D}$ 는 다음과 같이 정의한다.

$$(D \sim \bar{D}) = D - \bar{D} \quad \text{if } D > \bar{D}$$

$$= 0 \quad \text{if } D \leq \bar{D}$$

위의 가정과 식으로부터 유도되는 충전율($\bar{\epsilon}$)은 식 (2)와 같다.

$$\bar{\epsilon} = 1 - \frac{\sum_{i=0}^{\infty} D_i^3 f_i}{\sum_{i=0}^{\infty} (D_i - \bar{D})^3 f_i + \frac{1}{n} \sum_{i=0}^{\infty} \{ (D_i + \bar{D})^3 - (D_i - \bar{D})^3 \} f_i} \quad (2)$$

여기서,

$$\bar{D} = \sum_{i=0}^{\infty} D_i f_i \quad (3)$$

$$f_i = \frac{v_i}{D_i^m} / \sum_{i=0}^{\infty} v_i / D_i^m \quad (4)$$

$$\bar{n} = 1 + \frac{4}{13} (7 - 8\bar{\epsilon}_0) \frac{\sum_{i=0}^{\infty} (D_i + \bar{D})^2 (1 - \frac{3}{8} \frac{\bar{D}}{D_i + \bar{D}}) f_i}{\sum_{i=0}^{\infty} [D_i^3 - (D_i \sim \bar{D})^3] f_i} \quad (5)$$

로 표시되며 f_i 는 중첩구의 크기분포를, v_i 는 부피분율, \bar{n} 는 중첩구의 평균개수를 나타낸다.

Taguchi 방법은 기존의 통계적 접근방법이 아닌 공학적 방법론으로, 최대 충전율을 구하기 위해 입도 분포가 다른 충전제의 혼합 비율을 예측하고 그 때의 충전율을 구하기 위하여 직교 배열법과

손실함수의 개념 및 noise의 영향을 도입한 실험 계획법의 일종이다[10,12]. Taguchi 방법에 의한 최적 입도 분포 예측을 위해서는 충전율을 목적 함수로, 입도 분포가 다른 충전제를 설계변수로 하였고, 단계는 최소, 중간, 최대의 3단계 직교배열표를 적용하였고, 각각의 상호작용은 무시하였다.

본 연구에서는 충전제의 농도, 충전제 입자의 모양, 그리고 크기에 따른 점도변화특성을 조사하여 보았고 이를 Mooney의 식을 사용하여 예측하여 보았다. 그리고, Mooney 식에 포함되어 있는 최대 충전율, Φ_m 은 Ouchiyama의 충전모델과 Taguchi 방법에 의한 최적 산출 방식에 의해 계산하였고[11,12], 형상인자 k_E 는 실험치를 이용하여 결정하였다. 또한, 이 방법으로 구해진 값들에 대하여 Mooney식을 이용한 점도 예측방법이 실험을 통해 구한 점도 거동과 어떠한 차이를 나타내는지 확인해 보았다.

2. 실험

2.1. 시 료

실험에 사용되어진 에폭시 수지는 현재 반도체 봉지재용 혼합재료로 사용되어지고 있는 노블라게 에폭시 수지를 이용하였으며, 평균 입자 크기가 다른 구상 실리카 3종류와 1종류의 각상 실리카를 선택하여 실리카의 입자크기와 형태에 따른 점도변화를 측정하였다. 구상 실리카의 경우 평균 입자 크기가 29, 15, 8 μm (실리카 A, B, C)인 세 가지 충전제를 사용하였으며, 각각의 실리카들 모두 입자크기 분포를 가지고 있다. 또한 각상 실리카의 경우 평균 입자 크기 5 μm (실리카 D)의 한 종류를 사용하였는데, 마찬가지로 입자 분포를 가지고 있다.

2.2. 시료의 제조

에폭시 수지에 대하여 각각의 실리카 충전제를 40~70 vol %로 혼합하였는데 혼합에 사용되어진 장비로는 Brabender kneader를 사용하였으며, 80 $^{\circ}\text{C}$ 의 온도에서 10분간 kneading한 후 얻어진 시료를 분쇄하여 파우더로 제조하였다. 점도를 측정하기 위한 시편을 제작하기 위하여 얻어진 파우더를 몰드에 넣고 시편을 제조하였는데, 시편의 모양은 직경 25 mm, 높이 2.0 mm의 원통형으로 만들어 사용하였다.

2.3. 점도 측정

점도 값의 측정은 직경 25 mm의 parallel-plate가 부착되어진 RMS(Rheometric Mechanical Spectrometer, RMS-800)를 이용하여 전단율의 변화 및 주파수 변화에 따라 점도 변화를 80 $^{\circ}\text{C}$ 의 온도에서 측정하였다. 각각의 실리카 입자의 크기 분포는 입자 크기 분석기(Malvern Instrument, MasterSizer)를 사용하여 구하였으며, 이를 Ouchiyama 충전모델 및 Taguchi 방법에 의한 최대 충전율 값의 계산에 사용하였다.

2.4. Mooney 식의 매개변수들의 계산방법

Mooney 식의 shape factor와 최대 충전율 값을 구하여 비교하는 방법으로 다음과 같은 결정방법을 사용하였다. 첫 번째 방법으로는 사용되어진 충전제 입자간의 상호작용이 없는 hard sphere로 가정하여 얻어진 Einstein factor 2.5를 사용하고, 최대 충전율은 입자 크기의 단분산을 가정하여 구상 충전제인 경우는 random close-packed sphere로 가정하여 얻어지는 값인 0.74를, 각상 충전제의 경우는 구상 충전제로 가정하여 hexagonal close-packed sphere의 최대 충전율 값인 0.64를 이용하여 실험결과와 비교해 보았다[13]. 두 번째 방법으로는 형상인자값을 Einstein factor인 2.5를 사용하고 최대 충전율은 입자 크기 분포를 고려하여 본 연구에서 시도한

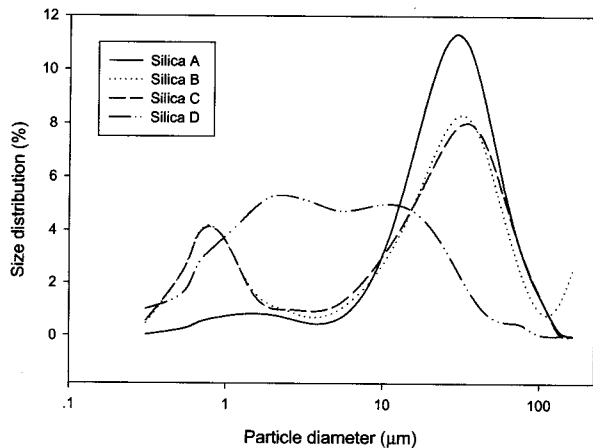


Figure 1. The particle size distributions of silica samples.

Ouchiyama의 충전모델과 Taguchi 방법의 반복적인 적용에 의해 구하여진 값들을 이용하여 결정해 보았다. 본 연구에서 적용된 Taguchi 방법에서의 계산방법은 초기값을 level 2로, level 1과 level 3을 level ± 1 로 설정하여 3수준 직교배열에 의한 모의실험과 분산분석을 실시하여 최적조합을 선정하고 수렴성을 검사한 후 최적조합을 level 2로 선정하는 알고리즘으로 이루어져 있다. 마지막 방법으로는 최대 충전을 값은 두 번째 방법에서 결정된 값을 이용하고, 형상인자를 변수로 지정하여 실험 결과로부터 one parameter regression을 통해 구해 보았다.

3. 결과 및 고찰

사용된 각 충전제의 입자 크기 분포는 Figure 1에 나타내었다. 이 그림에서 보면 실리카 A에 비해 실리카 B와 실리카 C는 입자 크기가 작은 쪽에서 어느 정도 분포 곡선이 나타나는 이중 분포 구조를 갖고 있다.

실리카 A, B, C, D 각각의 농도에 따른 점도 측정값을 Figures 2~5에 각각 나타내었다. 각 경우에 있어서 충전을 값은 약 44 vol %에서부터 68 vol % 정도까지 측정하였는데 이 범위에서 점도 값의 변화는 그다지 크지 않았다. 실험에 있어서 최대 충전율은 68 vol % 정도까지밖에 높여서 진행하지 못하였는데, 그 이유는 충전율을 이 이상으로 증가시켰을 때 점도가 크게 상승하기 시작하고 RMS 측정시 plate와 시편 사이에서 미끄럼이 일어나 올바른 점도 값을 구하기 어렵기 때문이다. Figures 2~5에서는 또한 충전제 농도변화에 따른 실험치와 Mooney 식에 의한 예측치를 비교해 보았다. 첫 번째 방법의 경우 Mooney 식에 있는 형상 인자와 최대 충전을 값은 기존의 알려진 값을 사용하였는데 앞에서 언급한대로 형상 인자의 값은 2.5를 사용하였고, 최대 충전을 값은 구상 실리카의 경우는 0.74를, 각상 실리카의 경우는 0.64를 사용하였다. 기존에 알려진 이 두 값을 사용하였을 때 Figure에서 보면 실리카 A, B, C, D 모든 경우에서 실험치와 크게 벗어남을 볼 수 있다. 따라서, 일반적으로 사용되고 있는 형상인자 2.5와 최대 충전을 0.74 및 0.64는 고충전의 EMC 재료에는 잘 맞지 않음을 알 수 있다. 잘 맞지 않는 이유는 실제 EMC 재료의 충전제로 쓰이는 실리카 입자의 크기는 단분산되어 있지 않고 넓은 분포를 갖고 있어 최대 충전을 값이 0.74보다 더 크기 때문이다.

따라서, 크기분포를 고려한 최대 충전을 먼저 구하여 이를 적용할 필요가 있는데 이를 위하여 앞에서 언급한 방법대로 Ouchiyama의 충전 모델과 Taguchi 방법에 의한 최대 충전을 값을 구한 결과를 각각 Table 1에 나타내었다. 구상 실리카와 각상

Table 1. The Maximum Packing Volume of Silica Samples Calculated by Taguchi Method

	Silica A	Silica B	Silica C	Silica D
ϕ_m	0.94	0.89	0.89	0.83

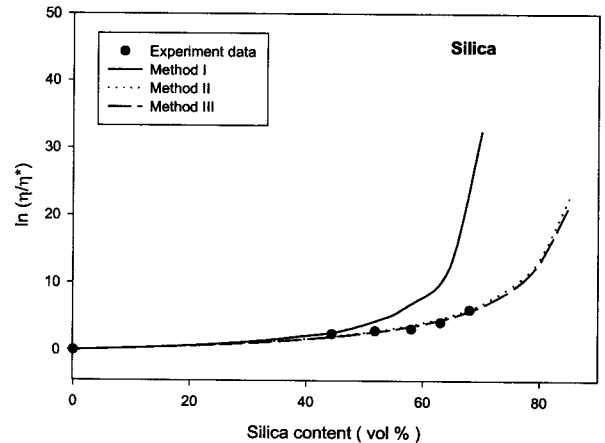


Figure 2. Relative viscosity of epoxy/silica A system vs. silica content, showing the effect of shape factor and maximum packing volume on the Mooney prediction.

실리카 모두 충전율을 구형 입자가 단분산된 것으로 가정하여 설정한 0.74와 각상 입자가 단분산된 것으로 가정하여 설정한 0.64보다는 훨씬 큰 값을 보임을 알 수 있다. 이는 큰 입자와 작은 입자들이 같이 혼합되어 있을 때 큰 입자사이의 공간을 작은 입자들이 채울 수 있기 때문에 충전 효율이 더 커지기 때문으로 생각된다.

실리카 D의 경우는 각상의 모양을 갖고 있는데 지금까지 각상에 대해 제시된 충전 모델이 없으므로 Ouchiyama의 충전 모델을 적용하기 위해서는 구상으로 가정하고 최대 충전을 값을 계산하였다. 따라서 이 값은 실제의 경우와 어느 정도 오차가 있다고 할 수 있다.

만약 Mooney 식에서 형상 인자 값을 2.5로 고정하고 최대 충전을 값을 Table 1에서 구한 값을 사용한 두 번째 방법의 경우는 최대 충전을 0.74로 할 때보다 실험치에 훨씬 가까워지는 결과를 얻게 되는데 이러한 모습을 Figures 2~5에서 각각 볼 수 있다. 그러나, 구상 실리카의 경우 충전제의 함량이 높은 영역에서는 낮은 영역에서의 만큼처럼 실험치에 잘 맞지 않음을 볼 수 있고 각상 실리카의 경우는 전반적으로 구상 실리카만큼 실험치와 잘 맞지 않는 것을 알 수 있다.

최대 충전을 값들은 Ouchiyama의 충전 모델과 Taguchi 방법에 의해 구하여진 값들을 사용하고, 형상 인자 값들은 실험 값을 regression하여 구한 세 번째 방법에 의한 결과를 마찬가지로 Figures 2~5에 나타내었다. 그림에서 보면 실리카 A, B, C, D 모든 경우에 대하여 실험 결과와 잘 일치함을 볼 수 있으며, 이 때 구해진 형상 인자 값은 Table 2에 나타내었는데, 여기에서 보면 구상 실리카 중 비슷한 크기 분포를 갖는 실리카 B와 실리카 C의 경우는 최대 충전율과 형상 인자가 거의 비슷한 결과를 보이고 있고, 상대적으로 최대 충전을 값이 더 크고 세립입자의 양이 적은 실리카 A는 더 큰 형상 인자 값을 나타내고 있다. 이는 상대적으로 높은 충전율로 인해 유동 시 입자 상호간의 접촉 확률이 더 높음으로 인해 발생하는 입자 상호작용의 영향으로 생각되어진다. 각상 실리카의 경우는 충전제의 모양이 구상과는 다른 형태를 갖고 있기 때문에 구상 충전제와는 다른 형상 인자 값을 갖게 되는데, 2.97의 큰 값을 보이는 이유는 조밀한 충전이 힘들고 구상에 비해

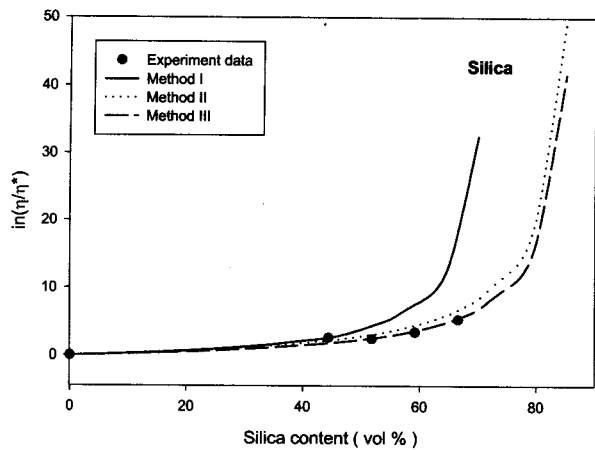


Figure 3. Relative viscosity of epoxy/silica B system vs. silica content, showing the effect of shape factor and maximum packing volume on the Mooney prediction.

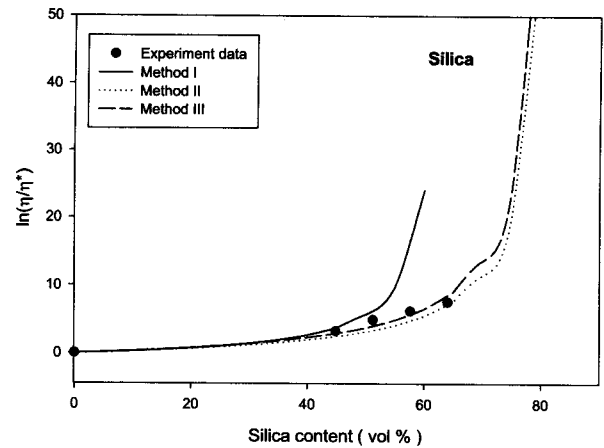


Figure 5. Relative viscosity of epoxy/silica D system vs. silica content, showing the effect of shape factor and maximum packing volume on the Mooney prediction.

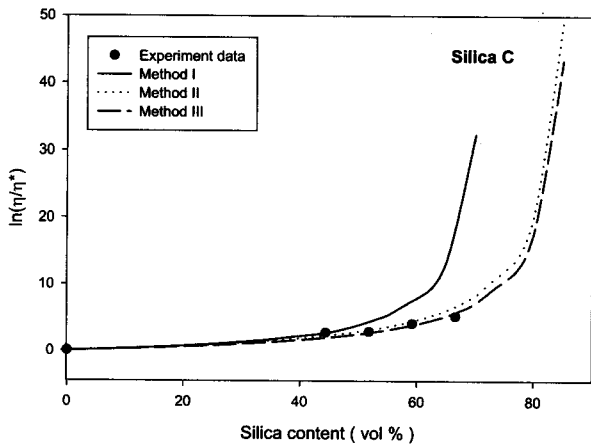


Figure 4. Relative viscosity of epoxy/silica C system vs. silica content, showing the effect of shape factor and maximum packing volume on the Mooney prediction.

유동시 입자 상호간에 접촉할 확률이 크기 때문일 것으로 생각되어진다. 위의 세 가지 방법에 의해 결정된 매개변수들 값의 결과를 Table 2에 정리하였다.

결론적으로 크기 분포를 갖고 있는 구상 혹은 각상의 실리카가 고농도로 함유된 에폭시 수지의 점도예측은 Mooney 식을 이용하여 예측이 가능하였으며, 이에 필요한 형상 인자 값과 최대 충전율을 같은 크기분포와 입자의 형상이 고려된 값이 사용되어야 보다 정확한 점도 예측이 가능하였다.

4. 결 론

반도체 봉지제로 사용되는 EMC(에폭시/실리카)의 충전제의 농도, 입자 모양, 크기 및 크기분포에 따른 점도변화 특성을 조사하였으며, 이를 형상 인자와 최대 충전율을 매개 변수로 포함하고 있는 Mooney 식을 이를 예측하여 보았다. 우선 형상 인자 값을 Einstein factor인 2.5를 사용하고, 최대 충전율을 구형 입자가 단분산된 것으로 가정한 값인 0.74와 0.64를 사용하여 예측한 결과는

Table 2. The Values of Each Parameter in Mooney Equation

	Shape factor, k_E				Maximum packing volume, ϕ_m			
	Silica A	Silica B	Silica C	Silica D	Silica A	Silica B	Silica C	Silica D
Method I	2.5	2.5	2.5	2.5	0.74	0.74	0.74	0.64
Method II	2.5	2.5	2.5	2.5	0.94	0.89	0.89	0.83
Method III	2.37	2.04	2.15	2.97	0.94	0.89	0.89	0.83

Table 3. The Values of Each Parameter in Mooney Equation

	Shape factor, k_E				Maximum packing volume, ϕ_m			
	Silica A	Silica B	Silica C	Silica D	Silica A	Silica B	Silica C	Silica D
Method I	2.5	2.5	2.5	2.5	0.74	0.74	0.74	0.64
Method II	2.5	2.5	2.5	2.5	0.94	0.89	0.89	0.83
Method III	2.37	2.04	2.15	2.97	0.94	0.89	0.89	0.83

실험 값과 많은 오차를 나타냄을 알 수 있었으며, 형상 인자는 Einstein factor 2.5를 그대로 사용하고, 최대 충전율은 Ouchiyama 충전 모델과 Taguchi 방법에 의해 계산된 값을 적용하였을 경우는 훨씬 실험치에 근사한 결과를 보였으나 높은 함량의 범위에서는 만족할 만큼 잘 일치하지 않는 경향을 보였다. 이 경우 형상 인자는 실험 결과로부터 regression을 통해 구한 값을 적용한 경우에는 실험치와 잘 일치함을 알 수 있었다. 따라서, 충전제의 모양과 크기분포가 고려된 형상 인자와 최대 충전율을 사용한 Mooney 식을 이용하여 점도 예측이 어느 정도 잘 이루어짐을 확인할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 고려화학중앙연구소에서 수행하는 산업자원부 공업기반과제의 위탁과제로서 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

참고 문헌

1. L. S. Turg and V. W. Wang, *J. Reinf. Plast. Compos.*, **12**, 506 (1993).
2. M. G. Pecht, L. T. Nguyen, and E. B. Hakim, "Plastic Encapsulated Microelectronics; materials, processes, quality reliability, and application," 55, John Wiley & Sons, New York (1995).
3. R. R. Tummula, E. J. Rymaszewski, and A. G. Klopfenstein, "Microelectronics Packaging Handbook-semiconductor packaging," part II, 2nd ed., 407, Chapman & Hall, New York (1997).
4. D. M. Bigg, *Polym. Eng. and Sci.*, **22**, 512 (1982).
5. J. Kaschta and H. Munstedt, "Proceedings 12th International Congress on Rheology," 568, Quebec, Canada (1996).
6. J. B. Jansma and S. Qutubuddin, *J. Rheol.*, **39**, 161 (1995).
7. P. Carreau, D. De Kee, and R. Chhabra, "Rheology of Polymeric Systems-principles and applications," 329, Hanser Gardner Publications, Cincinnati (1997).
8. A. A. Zaman and B. M. Moudgil, *J. Rheol.*, **42**, 21 (1998).
9. C. L. Rohn, "Analytical Polymer Rheology," 189, Hanser Gardner Publications, Cincinnati (1995).
10. S. H. Park, "Applied Experimental Scheme Method", Youngi Mun Hwa Sa, Seoul 175 (1996).
11. N. Ouchiyama and T. Tanaka, *Ing. Eng. Chem. Fundam.*, **23**, 490 (1984).
12. P. J. Ross, "Taguchi Techniques for Quality Engineering", McGraw Hill, New York (1988).
13. I. S. Miles and S. Rostami, "Multicomponent Polymer Systems", 241, Longman Scientific & Technical, London (1992).