

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL

Escola de Engenharia

PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA DE PRODUÇÃO

Dissertação de Mestrado

**ROTINAS PARA A OTIMIZAÇÃO
EXPERIMENTAL DE MISTURAS**

Mestranda: Danielle Barcos Nunes

Orientador: José Luís Duarte Ribeiro

Porto Alegre, dezembro de 1998.

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL

Escola de Engenharia

PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA DE PRODUÇÃO

**ROTINAS PARA A OTIMIZAÇÃO EXPERIMENTAL DE
MISTURAS**

Danielle Barcos Nunes

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia de
Produção como requisito parcial à obtenção do título de Mestre em
Engenharia de Produção

Área de concentração: Engenharia da Qualidade

Porto Alegre, dezembro de 1998.

ROTINAS PARA A OTIMIZAÇÃO EXPERIMENTAL DE MISTURAS

Danielle Barcos Nunes

Orientador

Coordenador

Banca Examinadora:

RESUMO

No cenário atual, onde a globalização, aliada a um maior nível de exigência por parte do cliente, impõem às empresas um maior empenho por competitividade, a agilidade no desenvolvimento e otimização de produtos torna-se crucial para a sobrevivência das mesmas no mercado.

Neste contexto, procurou-se compilar várias técnicas utilizadas em *Engenharia da Qualidade* em um método integrado para a *Otimização Experimental de Misturas*. Essas técnicas fornecem resultados muito mais rápidos e econômicos do que a tradicional prática de variar um componente de cada vez na mistura, devido ao menor número de ensaios necessários. Entretanto, apesar de não serem tão recentes, as ferramentas aplicáveis à otimização de misturas não têm sido utilizadas pelo seu maior beneficiário (a indústria), provavelmente por falta de divulgação de sua existência, ou, principalmente, devido à complexidade dos cálculos envolvidos.

Dessa forma, além do método proposto, desenvolveu-se também um *software* que implementa todos os passos sugeridos, com o intuito de facilitar ainda mais a aplicação dos mesmos por pessoas não especializadas em técnicas estatísticas.

Através do software (OptiMix), o método foi testado em uma situação real e em um estudo comparativo com um relato da literatura, a fim de testar sua validade, necessidade de adaptações e consistência dos resultados. A avaliação dos estudos de caso demonstrou que o método proposto fornece resultados coerentes com os de outras técnicas alternativas, com a vantagem de o usuário não precisar realizar cálculos, evitando assim, erros e agilizando o processo de otimização.

ABSTRACT

Nowadays, the advent of globalization, allied to the increasing exigency level of the customers, have been imposing to the industry constant efforts for competitiveness and fast development and optimization of products and processes. These matters have become crucial for the company survival in the market.

In this context, we have tried to compile several techniques comprised in the Quality Engineering in an integrated method for the Experimental Optimization of Mixtures. These techniques give results in a faster and less expensive way than the traditional practise of varying only one component in the mixture at a time (due to the smaller number of trials necessary). Although these tools aren't so recent, they haven't been utilized for the optimization of formulations by the industry, probably due to the lack of information about it or, mainly, because of the complex calculations it involves.

Therefore we decided to develop, besides the theoretical method, a software which implements the calculations inherent to the suggested steps, so that it becomes easier for people who are not specialized in statistical techniques to apply them.

By using the software (called OptiMix), we have tested the proposed method in two cases: in a real problem and in a comparative study with a report found in the literature. The two studies intended to verify the validity of the method as well as the necessary adaptations on it and the consistency of its results. The studies carried out have demonstrated that the proposed model gives results in agreement with other techniques utilized by specialists. Besides, it has the advantage of avoiding as much as possible the need for calculations made by the final usuary, so that the optimization process becomes safer, easier and faster.

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO.....	1
1.1 COMENTÁRIOS INICIAIS.....	1
1.2 TEMA E JUSTIFICATIVA	3
1.3 OBJETIVOS DO TRABALHO.....	4
1.4 MÉTODO DE PESQUISA	5
1.4.1 Revisão bibliográfica.....	5
1.4.2 Desenvolvimento do modelo teórico	5
1.4.3 Desenvolvimento de um software	6
1.4.4 Estudos de caso	6
1.4.5 Aperfeiçoamento e validação do modelo.....	7
1.5 ESTRUTURA DO TRABALHO	7
1.6 LIMITAÇÕES.....	8
2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	10
2.1 DEFINIÇÃO DE UM PROBLEMA DE MISTURA	11
2.2 PROJETOS EXPERIMENTAIS ESPECÍFICOS PARA MISTURAS	13
2.2.1 Investigando toda a região Simplex	14
2.2.2 Investigando sub-regiões do Simplex	15
2.3 EXPERIMENTOS COM MISTURA SOB A ÓTICA DE SUPERFÍCIE DE RESPOSTA	22
2.3.1 A Metodologia de Superfície de Resposta	23
2.3.2 Projetos padrão para ajuste de superfícies de resposta.....	24

2.3.3	<i>Projetos ortogonais de 1ª ordem</i>	27
2.3.4	<i>Projetos rotáveis de 2ª ordem</i>	27
2.3.5	<i>O uso de projetos padrão em Experimentos com Misturas</i>	31
2.4	MODELAGEM DA SUPERFÍCIE DE RESPOSTA.....	33
2.4.1	<i>Modelos polinomiais para Misturas</i>	33
2.4.2	<i>Modelos polinomiais padrão</i>	35
2.4.3	<i>Regressão Linear Múltipla</i>	36
2.5	OTIMIZAÇÃO DA RESPOSTA.....	40
2.5.1	<i>Método de Inspeção Gráfica</i>	40
2.5.2	<i>Otimização de uma função objetivo</i>	41
2.6	USO DE ALGORITMOS COMPUTACIONAIS EM EXPERIMENTOS COM MISTURAS.....	45
2.6.1	<i>Softwares capazes de lidar com problemas de Mistura</i>	46
2.7	MÉTODOS PARA A OTIMIZAÇÃO EXPERIMENTAL DE MISTURAS.....	48
2.7.1	<i>Método de Otimização para múltiplas variáveis de resposta</i>	48
2.7.2	<i>Método de Otimização Experimental de Formulações</i>	49
3.	MODELO PROPOSTO PARA A OTIMIZAÇÃO DE MISTURAS	54
3.1	Iº. PASSO - IDENTIFICAÇÃO DO PROBLEMA E DOS OBJETIVOS DO ESTUDO.....	55
3.1.1	<i>Definindo as variáveis do sistema</i>	55
3.1.2	<i>Definindo as possíveis relações entre as variáveis</i>	57
3.2	IIº. PASSO - SELEÇÃO DAS VARIÁVEIS A SEREM INCLUÍDAS NO ESTUDO.....	57
3.3	IIIº. PASSO - ESPECIFICAÇÃO DA REGIÃO DE INTERESSE.....	58
3.4	IVº. PASSO - ESCOLHA DO TIPO DE PROJETO EXPERIMENTAL MAIS ADEQUADO.....	59
3.5	Vº. PASSO - PLANEJAMENTO DO EXPERIMENTO EM FATORES INDEPENDENTES.....	60
3.6	VIº. TRANSFORMAÇÃO DA MATRIZ EXPERIMENTAL PARA VARIÁVEIS DE MISTURA.....	62
3.7	VIIº. PASSO - EXECUÇÃO DO EXPERIMENTO.....	66
3.8	VIIIº. PASSO - MODELAGEM DA RESPOSTA EM FATORES INDEPENDENTES.....	67
3.8.1	<i>Construção de modelos para a média</i>	67
3.8.2	<i>Construção de modelos para a variância</i>	68
3.9	IXº. PASSO - OTIMIZAÇÃO DA QUALIDADE DA MISTURA.....	69
3.9.1	<i>Construção da Função Perda Multivariada</i>	70
3.9.2	<i>Cálculo do fator de redução a_j</i>	71
3.9.3	<i>Cálculo dos fatores de ponderação p_j</i>	72
3.9.4	<i>Estimativa do desvio padrão do ajuste para as variáveis w_i ($\hat{\sigma}_{w_i}$)</i>	73

3.9.5	Determinação das derivadas parciais $\frac{\partial \hat{y}_j(w)}{\partial w_i}$	76
3.9.6	Otimização individual das variáveis de resposta	77
3.9.7	Otimização global da qualidade da mistura	77
4.	IMPLEMENTAÇÃO COMPUTACIONAL DO MÉTODO (OPTIMIX)	78
4.1	APRESENTAÇÃO DO OPTIMIX	79
4.1.1	Necessidades Mínimas de Ambiente	79
4.2	APLICAÇÃO DO SOFTWARE	80
4.2.1	Criação do Projeto Experimental	80
4.2.2	Modelagem da Superfície de Resposta	81
4.2.3	Otimização da Qualidade da Mistura	82
4.3	DESCRIÇÃO DO AMBIENTE DE TRABALHO	82
4.3.1	Menu File	82
4.3.2	Menu Edit	85
4.3.3	Menu Design	87
4.3.4	Menu Analysis	93
4.3.5	Menu Optimization	101
4.3.6	Menu Help	107
5.	ESTUDOS DE CASO E VALIDAÇÃO DO MODELO	108
5.1	ESTUDO DE CASO A: SEPARAÇÃO DE FASES EM TINTA ALQUÍDICA	109
5.2	ESTUDO DE CASO B: OTIMIZAÇÃO DE UM PRODUTO DE LIMPEZA DOMÉSTICO	131
5.2.1	Metodologia utilizada por Heinsman & Montgomery (1995)	133
5.2.2	Metodologia proposta	140
6.	COMENTÁRIOS FINAIS	154
6.1	CONCLUSÕES	154
6.2	SUGESTÕES PARA DESENVOLVIMENTOS FUTUROS	158
7.	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	160

CAPÍTULO 1

1. INTRODUÇÃO

1.1 Comentários iniciais

Nas duas últimas décadas, o panorama do mercado mundial transformou-se rapidamente. Em face da crise econômica generalizada, observou-se uma retração do mercado consumidor, alterando a relação entre demanda e oferta. Uma vez que a oferta se tornou maior do que a demanda, a competitividade entre as empresas aumentou assustadoramente, pois as mesmas agora devem conquistar e manter a preferência dos clientes a fim de sobreviverem.

Desde que o consumidor assumiu o controle da situação e passou a impor suas demandas, as empresas sofreram um redirecionamento de seus objetivos, priorizando agora:

- maior qualidade;
- diminuição de custos (refletindo nos preços);
- atendimento aos prazos;
- diversificação de produtos.

A crescente tendência de globalização da economia (criação de mercados comuns e políticas de importações) só veio agravar esse quadro, pois teve como efeito colateral a internacionalização da concorrência, tornando a competição ainda mais acirrada. Nesse contexto,

as empresas precisam conhecer e entender as necessidades dos clientes a fim de satisfazê-los, pois só assim continuarão a disputar seu espaço no mercado.

Essa situação deu margem ao desenvolvimento de novas tecnologias e ferramentas, visando a tornar as empresas muito mais ágeis para reagir às expectativas de seus clientes. Por outro lado, o tempo que as empresas tinham para projetar, preparar e testar seus produtos reduziu-se significativamente, pois a concorrência não descansa, correndo-se o risco de o produto desenvolvido tornar-se obsoleto antes mesmo de ser lançado.

Neste contexto, várias técnicas de dimensionamento, planejamento, controle e otimização de processos e produtos têm sido desenvolvidas e aprimoradas, ressaltando-se dentre as mesmas as técnicas da *Engenharia da Qualidade*. Aliando conhecimentos técnicos à aplicação de ferramentas estatísticas, a *Engenharia da Qualidade* vem desempenhando um papel de fundamental importância, tanto no controle diário de operações industriais como no desenvolvimento e otimização de processos e produtos.

Dentre as diversas ferramentas utilizadas pela Engenharia da Qualidade, destaca-se a *Otimização Experimental de Processos e Produtos*, através das técnicas de *Planejamento e Análise de Experimentos*. Sua aplicação viabiliza a determinação do ajuste ótimo dos fatores controláveis de um processo (pressão, temperatura, vazão, quantidade de determinados reagentes, tempo de operação, etc.), a fim de se obter o valor desejado para uma ou mais características de qualidade do produto. O *Planejamento de Experimentos* permite ainda uma redução no número de ensaios necessários, em relação ao método de tentativa e erro, proporcionando economia de tempo e dinheiro.

Uma importante aplicação do *Planejamento de Experimentos* é na otimização experimental de formulações (composição de misturas). O desenvolvimento de formulações é parte fundamental das atividades de indústrias de alimentos, produtos químicos, plásticos, borrachas, tintas, medicamentos, etc. Entretanto, o processo de otimização da qualidade do produto é tradicionalmente feito por tentativa e erro, variando-se a proporção de uma matéria-prima de cada vez na mistura. Isto pode facilmente vir a consumir muito tempo, e não possibilita um entendimento das interações porventura existentes entre as matérias-primas (Heinsman & Montgomery, 1995).

Existem diversas técnicas para o *Planejamento e Análise de Experimentos com Misturas*; no entanto, as mesmas não têm sido muito difundidas, acredita-se que devido à complexidade dos cálculos envolvidos.

1.2 Tema e justificativa

O tema desta dissertação são as rotinas para o *Projeto e Análise de Experimentos com Misturas*, que visem à otimização experimental do produto constituído de uma mistura.

Experimentos com Misturas são aqueles em que a característica de qualidade a ser medida é assumida como dependente apenas das proporções entre os materiais componentes da mistura. Para o planejamento de tais experimentos, devem-se selecionar algumas composições possíveis da mistura, que serão ensaiadas a fim de se medir o valor da(s) variável(is) de resposta de interesse para o cliente.

A Análise de Experimentos visa ao ajuste de um modelo matemático que expresse o valor esperado das características de qualidade em função das proporções dos componentes da mistura. A partir do modelo ajustado, procede-se a uma otimização, a fim de determinar uma formulação que conduza ao melhor valor possível das características de qualidade.

Existem diversas técnicas alternativas para o Planejamento de Experimentos e Análise dos dados de uma mistura. A determinação dos pontos experimentais, assim como a definição do modelo a ser ajustado aos dados coletados, dependem das características da mistura em análise (nº de componentes, existência de interações entre os mesmos, faixas possíveis de variação das respectivas proporções). Assim, alguns critérios de seleção são geralmente adotados na escolha da técnica de planejamento experimental e do tipo de modelo mais convenientes para cada caso.

A abordagem de projeto experimental de misturas, aliada à otimização de suas características de qualidade, possui aplicação potencial em uma larga variedade de sistemas industriais. Uma vez que a redução no tempo de desenvolvimento e a maior flexibilidade na *performance* de otimização do produto representam uma grande vantagem competitiva na atual busca por qualidade aliada a baixos custos, o estudo do tema proposto encontra-se amplamente justificado.

Por outro lado, apenas uma pequena parcela das empresas que poderiam ser beneficiadas pelo uso dessas técnicas efetivamente aplicam-nas. Essa “impopularidade” dos *Experimentos com Misturas* pode ser atribuída à complexidade:

(i) na própria seleção da técnica de planejamento mais adequada a cada caso, dentre as inúmeras existentes;

(ii) na determinação dos pontos experimentais, que pode tanto envolver a localização de vértices de hiper-poliedros irregulares (em $n > 3$ dimensões), como transformações de variáveis e cálculos matriciais de domínio restrito;

(iii) no tratamento dos dados coletados, através da Análise de Regressão Múltipla, a fim de modelar a superfície de resposta em função da composição da mistura;

(iv) no tratamento dos modelos obtidos para múltiplas variáveis de resposta, visando à obtenção do ajuste que melhor represente o compromisso entre as mesmas.

Dessa forma, faz-se necessário o desenvolvimento de um roteiro amigável para a seleção da técnica de planejamento, cálculo dos pontos experimentais, análise e otimização dos resultados de *Experimentos com Misturas*. A partir daí, essa poderosa ferramenta poderá sair dos meios acadêmicos, tendo seu uso difundido em uma esfera mais ampla.

1.3 Objetivos do trabalho

O trabalho proposto tem como objetivo principal o *desenvolvimento de rotinas genéricas de cálculo para o Planejamento e Análise de Experimentos com Mistura*, organizando os métodos selecionados entre os vários existentes em uma seqüência lógica de passos a serem seguidos durante a otimização experimental de uma mistura.

No decorrer e ao final dos trabalhos, os seguintes objetivos secundários deverão ter sido atingidos:

- Realização de um levantamento das diferentes técnicas existentes para o Planejamento, Análise e Otimização de Experimentos com Misturas.

- Elaboração de um *software* de aplicação das rotinas desenvolvidas, utilizando-se a ferramenta de desenvolvimento Visual Basic 4. Assim, as principais etapas do método proposto poderão ser realizadas através de uma interface gráfica amigável e interativa, tornando o Projeto de Experimentos com Misturas mais acessível ao usuário em geral.
- Difusão do uso de *Experimentos com Misturas* para a otimização de formulações, o que hoje não ocorre, devido ao reduzido número de pessoas que dominam as técnicas envolvidas tanto em seu planejamento como no tratamento dos resultados.

1.4 Método de pesquisa

O trabalho desenvolveu-se em cinco etapas: revisão bibliográfica, elaboração de um modelo teórico para a *Otimização Experimental de Misturas*, desenvolvimento de um *software* baseado nesse modelo, estudos de caso visando ao aperfeiçoamento e validação do modelo, e conclusões finais.

1.4.1 Revisão bibliográfica

Esta primeira etapa tem como objetivos a aquisição de domínio teórico do assunto e a análise do que tem sido realizado na área, a fim de se reunir os subsídios necessários ao desenvolvimento de um método válido e útil.

Para tanto, será realizada uma revisão de todo o material disponível sobre *Experimentos com Misturas* que possa acrescentar algum conhecimento relevante sobre as diferentes técnicas de planejamento e análise e as diretrizes para sua aplicação (livros técnicos, artigos, anais de congressos, etc.).

1.4.2 Desenvolvimento do modelo teórico

O segundo passo será a organização do conhecimento obtido através da pesquisa bibliográfica, elaborando um modelo teórico que “simplifique” (aos olhos do usuário) o processo de Planejamento e Análise de Experimentos com Misturas, ao mesmo tempo em que possibilite a obtenção de resultados os mais consistentes possíveis.

O referido modelo constituir-se-á de um guia passo-a-passo para a realização dos cálculos necessários à determinação dos pontos experimentais mais adequados e ao ajuste dos dados coletados. Como esses cálculos são diferenciados conforme as características do sistema que se deseja otimizar, o modelo a ser desenvolvido deverá ser genérico, prevendo as possibilidades mais comuns. Dessa forma, para o direcionamento dos cálculos ao planejamento apropriado, o método deverá ser interativo, contando com *inputs* do usuário, a fim de determinar a seqüência de cálculos a ser seguida.

1.4.3 Desenvolvimento de um *software*

Com base no que foi exposto acima, intui-se a necessidade da implementação de rotinas computacionais para a seleção e realização dos cálculos necessários, em um processo interativo com o usuário. Após a determinação dos passos a serem seguidos para a geração do planejamento experimental adequado a cada caso, o desenvolvimento de um *software* será uma consequência natural.

Pretende-se desenvolver um *software* aplicativo do modelo teórico desenvolvido, através da ferramenta de desenvolvimento Visual Basic 4. A escolha dessa linguagem se deve à interface gráfica familiar oferecida, dentro dos padrões Windows, tornando o modelo proposto amigável ao usuário, o que é um dos objetivos deste trabalho.

Além disso, o *software* virá agilizar as etapas subseqüentes da pesquisa, as quais consistem no teste e aperfeiçoamento do modelo através de aplicações práticas. Essa agilização se faz necessária tanto pela complexidade como pela extensão dos cálculos envolvidos, os quais demandam tempo mesmo de pessoas familiarizadas com sua realização.

1.4.4 Estudos de caso

O projeto tem como pressuposto básico que o modelo a ser desenvolvido trará um avanço, no sentido de facilitar ao usuário a aplicação das técnicas de Planejamento e Análise de Experimentos com Misturas. No entanto, segundo Eisenhardt (1989), apenas a conexão mais íntima com a realidade permitirá concluir sobre sua relevância e validade.

A aplicação prática do modelo (por intermédio do *software* desenvolvido) será feita através de estudos de caso. Os casos deverão ser escolhidos de forma a fornecer exemplos de situações

distintas, a fim de que se possa generalizar as conclusões obtidas sobre a *performance* do método proposto.

1.4.5 Aperfeiçoamento e validação do modelo

Como já foi dito, a validade do modelo proposto encontra-se fortemente vinculada à sua praticidade e adequação a diferentes situações. Através dos estudos de caso, ter-se-á a oportunidade de verificar se o *software* atende às necessidades do usuário e possui as características desejadas de facilidade de uso.

Uma vez que se encontrem falhas no cumprimento de suas funções básicas, o modelo deverá ser reformulado, ou simplesmente adaptado, e novamente testado na prática. Após alguns testes, poder-se-á concluir sobre a possibilidade de atingir os objetivos iniciais ou a necessidade de restrição dos mesmos a determinadas situações (validação do modelo para determinados casos).

1.5 Estrutura do trabalho

A apresentação final do trabalho realizado a partir deste projeto deverá estruturar-se da seguinte forma:

Capítulo 1: Introdução

Conterá uma introdução teórica ao assunto do trabalho, com o objetivo de esclarecer a forma como o mesmo se insere no contexto atual. Além disso, apresentará o tema da pesquisa e sua relevância, os objetivos (principais e secundários) do trabalho, o método a ser utilizado para a realização desses objetivos, a descrição da estrutura da dissertação e suas limitações.

Capítulo 2: Revisão bibliográfica

Será feito um breve histórico do conhecimento relevante sobre o tema, utilizado no embasamento do trabalho a ser desenvolvido. Isso inclui uma visão aprofundada do que vem a ser Experimentos com Mistura, das técnicas de planejamento existentes, suas aplicações, vantagens e desvantagens, e do que já foi realizado no sentido de tornar essas técnicas mais acessíveis.

Capítulo 3: Construção do modelo teórico

Apresentará o desenvolvimento do modelo teórico de rotinas para a definição do plano experimental apropriado, análise e otimização dos dados em um experimento com misturas.

Capítulo 4: Implementação computacional do modelo

Descreverá como o modelo construído foi adaptado para um algoritmo computacional em linguagem Visual Basic 4, fornecendo as principais características do *software* desenvolvido.

Capítulo 5: Estudos de caso e validação do modelo

Serão relatadas detalhadamente aplicações do modelo proposto em estudos de otimização de formulações. A aplicação desses modelos terá o suporte do *software* a ser desenvolvido. Apresentar-se-ão as observações realizadas e os resultados obtidos.

Paralelamente, será feita uma avaliação do desempenho das técnicas, e por conseguinte, do *software*, nos casos estudados. Isso inclui a verificação de atendimento dos objetivos a que o modelo se propõe e identificação da necessidade de alterações.

Capítulo 6: Conclusões

Apresentará, de forma resumida, os principais resultados obtidos ao longo de todo o trabalho, enfatizando a análise da validade e aplicabilidade do modelo desenvolvido. Adicionalmente, poderá conter sugestões para trabalhos subseqüentes relacionados ao presente ou com a mesma finalidade deste.

1.6 Limitações

As técnicas em estudo relacionam-se à Otimização **Experimental** de Misturas, ou seja, baseada na observação e tratamento dos resultados provenientes de diferentes formulações testadas. Não entrarão no escopo do trabalho técnicas de otimização envolvendo a resolução de equações diferenciais descritivas do comportamento teórico do sistema. Em alguns casos mais simples, o uso das técnicas teóricas pode ser vantajoso; no entanto, muitas vezes, tais modelos matemáticos não estão disponíveis para os sistemas em questão (misturas).

O trabalho detém-se na problemática de Planejamento e Análise de Experimentos **com Misturas**, onde os fatores controláveis são as proporções de seus componentes. Não serão focalizadas técnicas **específicas** para o planejamento de experimentos que envolvem componentes de mistura e, simultaneamente, fatores independentes (variáveis de processo).

Condições especiais específicas, que exijam, por exemplo, o uso de experimentos parcionados em células (*split-plot designs*) também não serão abordadas.

CAPÍTULO 2

2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Neste capítulo, é feito um breve histórico do conhecimento científico que se tem destacado na literatura sobre os temas de *Experimentos com Misturas* e *Otimização Experimental*. Através de uma exposição detalhada sobre as técnicas que serviram de base para o desenvolvimento deste trabalho, além de comentários relevantes a respeito das não contempladas, tem-se como objetivo evidenciar a diferença entre os diversos métodos existentes nesta área, bem como os motivos de se terem adotado alguns deles em detrimento de outros.

A estrutura do texto desta revisão reflete a ordem de utilização dos conceitos e técnicas dentro da metodologia aqui proposta:

- Inicialmente, define-se o que vêm a ser *Experimentos com Misturas* e os diferentes tipos de problemas de mistura possíveis;
- a seguir, expõem-se as diversas técnicas existentes para o projeto experimental, análise e otimização dos resultados de misturas, comentando-se suas aplicações, vantagens e desvantagens;
- após, citam-se os esforços já realizados no sentido de tornar essas técnicas mais acessíveis ao usuário comum (sem conhecimento profundo da área);
- finalmente, apresentam-se dois métodos para *Otimização Experimental* propostos recentemente, o quais serviram como ponto de partida para o método proposto neste trabalho.

2.1 Definição de um problema de Mistura

Um *Experimento com Mistura* é aquele no qual dois ou mais ingredientes são misturados para formar um produto final, e a resposta a ser medida constitui-se numa propriedade intensiva da mistura, sendo função apenas das proporções dos componentes presentes (seja em massa, volume ou nº de móis), e não da quantidade total da mistura.

Seu objetivo geral é a modelagem e análise da superfície de resposta da mistura, a partir de um número limitado de observações (Cornell, 1973), as quais são realizadas em combinações pré-selecionadas dos componentes (resultando em misturas de diferentes composições). Através da modelagem da superfície de resposta, será possível obter (Cornell, 1990a):

- predições da resposta para qualquer composição da mistura dentro da região abrangida pelo experimento;
- medidas da influência de cada componente, em separado ou em combinação com outros, na resposta;
- uma estimativa do ponto ou região do espaço experimental que gera os melhores resultados para a resposta (ajuste ótimo).

Diferente dos problemas usuais de experimentos visando ao ajuste ótimo de um sistema, onde os fatores em estudo representam quantidades (temperatura, concentração, tempo ou velocidade de processamento), no problema da mistura os componentes representam proporções de uma mistura, ou seja, sua composição. Estas proporções devem ser não-negativas e, se expressas como frações da mistura, sua soma deve ser igual a 1. Dessa forma, o espaço de experimentação de uma mistura com q componentes, na qual a proporção do i -ésimo componente é representada por x_i , fica reduzido a uma região *simplex*¹ limitada pelas condições:

$$x_i \geq 0, \quad 1 \leq i \leq q \quad (2.1)$$

¹ “*Simplex*” é uma configuração espacial determinada por um número de pontos um a mais do que o número de dimensões do espaço (Crosier, 1984).

$$e \quad \sum_{i=1}^q x_i = 1 \quad (2.2)$$

Note-se que, devido à restrição definida em (2.2), as variáveis x_i são linearmente dependentes, de forma que a alteração da proporção de um componente na mistura causará uma mudança na proporção de pelo menos um dos demais.

O formato do espaço experimental depende do número de componentes da mistura, constituindo-se num *simplex* regular $(q - 1)$ - dimensional, como os exemplificados na Figura 2-1 abaixo:

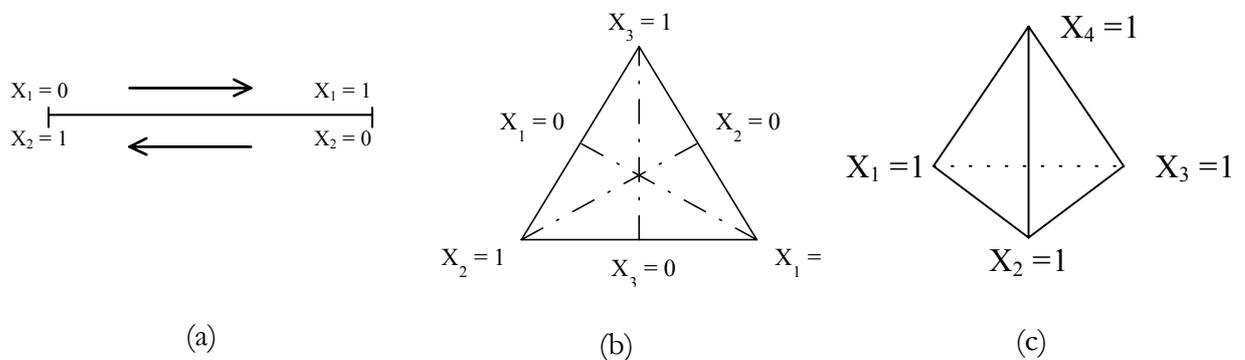


Figura 2-1: Espaço experimental para misturas de (a) dois, (b) três e (c) quatro componentes.

No entanto, muitas vezes, além das restrições fundamentais de misturas, existem limites mínimos ou máximos para as proporções de quaisquer dos componentes. Estes casos podem ainda ser subdivididos em três:

- Misturas em que há restrições de limite inferior para a proporção de um ou mais componentes. O espaço dessa mistura possui o mesmo formato do *simplex* original (Cornell, 1981), porém em menor escala, uma vez que se constitui em uma sub-região do mesmo (Figura 2-2.a).
- Misturas com restrições de limite superior, ou inferior e superior para a proporção de algum componente. A região de misturas viáveis torna-se irregular, não mais respeitando a forma do *simplex* original (Figura 2-2.b).

- Misturas dentro de uma sub-região de interesse do *simplex*: ocorrem geralmente quando se desejam testar formulações nos arredores das condições operacionais atuais, ou quando as misturas fora dessa região não são viáveis ou desejáveis (Cornell, 1981).

Além dos anteriores, há ainda duas classes particulares de Experimentos com Misturas: experimentos envolvendo a composição da mistura e variáveis de processo, tais como temperatura, tempo de reação, método de mistura, etc. (variáveis independentes entre si e da formulação adotada); e experimentos Mistura-Quantidade, onde as variáveis de resposta sendo medidas dependem não só da composição da mistura como de sua quantidade. Esses tipos de problemas de mistura não serão o objeto de estudo deste trabalho.

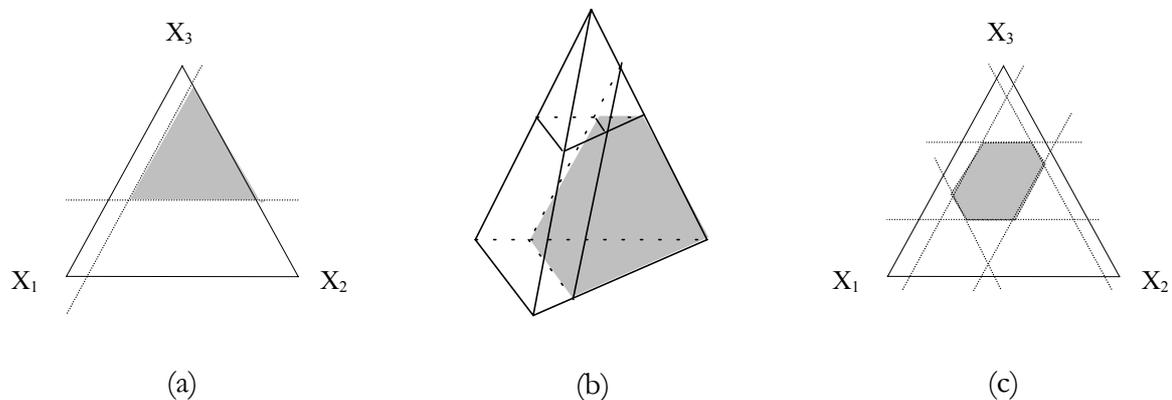


Figura 2-2: Exemplos de espaço experimental para misturas (a) de 3 componentes, com limites inferiores em X_2 e X_3 ; (b) de 4 componentes, com limite superior para um e inferior para outro e (c) de 3 componentes, com limites inferiores e superiores para todos.

2.2 Projetos experimentais específicos para Misturas

Para cada tipo de situação apresentada acima, há um conjunto de técnicas de planejamento apropriadas. Quando se deseja investigar sistemas de mistura sobre os quais se possui pouco ou nenhum conhecimento, a região de experimentação torna-se muito ampla, uma vez que não se sabe ao certo quais os componentes a serem investigados com maior profundidade nem as faixas de variação mais convenientes para os mesmos. Nesses casos, costuma-se recorrer a experimentos exploratórios iniciais (Pasa, 1996), que abrangem toda a região *simplex*.

No entanto, para o ajuste de um modelo que descreva toda a superfície de resposta da mistura com a precisão requerida, pode ser necessário um grande número de pontos experimentais, o que tende a tornar um experimento exploratório anti-econômico. Além disso, há sistemas para os quais já se sabe que apenas determinadas faixas de composição resultam no produto cujas características devem ser medidas, tornando sem sentido a investigação de toda a região. Por esses motivos, sempre que possível, procura-se restringir o espaço experimental aos componentes mais importantes (de sabida influência na resposta), dentro das faixas de variação mais apropriadas, gerando uma sub-região interior ao *simplex*.

2.2.1 Investigando toda a região *Simplex*

Para uma mistura sem restrições pré-definidas para as proporções de seus componentes, podem-se usar os projetos *Simplex-lattice*, introduzidos por Scheffé em 1958, que consistem numa distribuição simétrica dos pontos experimentais sobre todo o espaço *simplex*. Os pontos experimentais são definidos por todas as combinações possíveis entre os componentes da mistura em que suas proporções assumam apenas os valores:

$$x_i = 0, 1/m, 2/m, \dots, 1 \quad (2.3)$$

onde $m = 1, 2, \dots$ é o grau do polinômio a ser ajustado à resposta medida.

Como essa técnica está atrelada ao posterior ajuste de modelos polinomiais (também desenvolvidos por Scheffé) específicos aos dados coletados durante o experimento, o número de pontos a serem testados depende não só do número de componentes da mistura, mas também do grau do polinômio que se deseja ajustar à superfície de resposta (Cornell, 1981). Dessa forma, para cada combinação de número de fatores e grau do polinômio a ser ajustado, tem-se um projeto específico, denominado $\{q, m\}$ - *Simplex-lattice*.

Alternativamente, pode-se utilizar um projeto do tipo *Simplex-centróide*, onde são selecionados para experimentação, além de todos os vértices, os centróides do *Simplex* ($q - 1$) - dimensional e de todos os sub-*simplices* de menor dimensão contidos no mesmo (arestas, faces, etc.). O número de pontos deste projeto depende apenas do número de componentes da mistura, totalizando $2^q - 1$ (prestando-se, portanto, ao ajuste de um polinômio de grau q , que possui um número igual de termos).

Apesar de os projetos *Simplex-lattice* e *Simplex-centróide* caracterizarem-se e terem-se popularizado por serem de simples aplicação, possuem a desvantagem de não permitirem o teste de falta de ajuste do modelo, uma vez que o número de termos do mesmo é igual ao número de pontos ensaiados (Cornell, 1973). Esse problema pode ser contornado pela replicação das observações ou adição de pontos convenientes ao projeto, o que, no entanto, tira seu grande mérito de simplicidade.

Os projetos *Simplex* possuem ainda o inconveniente de serem formados apenas por pontos de fronteira da região experimental, não sendo adequados quando se deseja inferir sobre o efeito relativo de cada componente na resposta ou selecionar dentre diversos componentes os mais significativos, para posteriores experimentos mais detalhados (Cornell, 1981). Nestes casos, recomenda-se o uso de Projetos Axiais, os quais consistem principalmente de pontos internos (misturas completas), situados sobre os eixos dos componentes (o eixo do componente i é definido como a linha imaginária que une o ponto da superfície onde $x_i=0$ e $x_j=1/(q-1)$ para todo o $j \neq i$, ao vértice onde $x_i=1$). Maiores detalhes sobre este método podem ser vistos em Cornell (1981), p. 51-54.

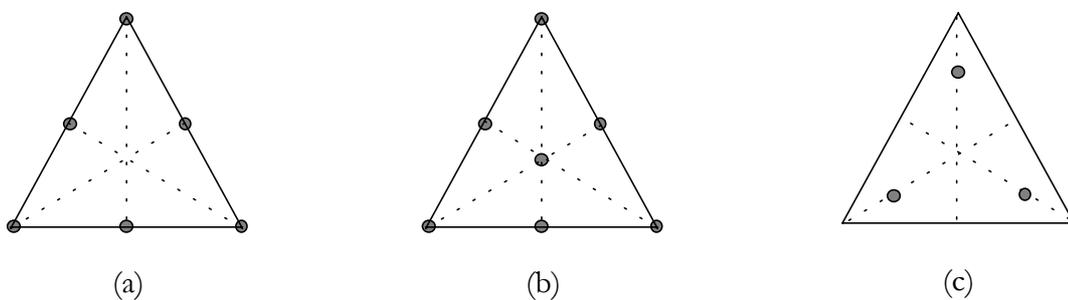


Figura 2-3: Exemplos de projetos (a) $\{3,2\}$ -*Simplex-lattice*; (b) *Simplex-centróide*; e (c) *Axial*, para uma mistura de 3 componentes.

2.2.2 Investigando sub-regiões do *Simplex*

Muitas vezes, para formar uma mistura válida, a partir da qual um produto aceitável possa ser feito, e a medição da resposta seja viável, um ou mais dos componentes deve estar presente em uma proporção mínima, $L_i > 0$, ou máxima, $U_i < 1$. Saxena & Nigam (1977) afirmam que essa situação é muito freqüente na prática, citando como exemplos os experimentos com óleos lubrificantes, ligas, taxa de octanagem, etc.

2.2.2.1 Quando há apenas restrições inferiores

Quando um ou mais dos componentes apresentam apenas limites inferiores L_i para suas proporções, são criados também limites superiores para os demais componentes, de forma que, se $x_i \geq L_i > 0$, então:

$$x_j \leq U_j = 1 - L, \quad \forall j \neq i \text{ e} \quad (2.4)$$

$$\sum_{j \neq i}^q x_j = 1 - L < 1 \quad (2.5)$$

onde
$$L = \sum_{i=1}^q L_i < 1 \quad (2.6)$$

Dessa forma, a região de experimentação torna-se uma sub-região interna ao *Simplex*, mas conservando o formato original do mesmo. Pode-se então realizar os mesmos tipos de projetos vistos anteriormente, para regiões *Simplex* não-restritas, fazendo-se apenas uma transformação de escala nas proporções dos componentes, da forma:

$$x'_i = \frac{x_i - L_i}{1 - L}, \quad (2.7)$$

As proporções x'_i assim transformadas são denominadas *pseudocomponentes*. Uma das principais razões para o uso desse artifício é que, na maior parte das vezes, o planejamento do experimento e ajuste do modelo resultam muito mais simples do que com os componentes originais (Cornell, 1981). No entanto, os pontos experimentais definidos através de pseudocomponentes não se distribuem uniformemente na região de interesse, podendo interferir desfavoravelmente na posterior modelagem da superfície de resposta (Cornell, 1973).

2.2.2.2 Quando há restrições inferiores e superiores

Há vezes em que apenas misturas consistindo de todos os componentes simultaneamente fazem sentido para a medida das variáveis de resposta, como já foi mencionado anteriormente. No caso da existência de limites inferiores e superiores para os x_i , da forma

$$0 < L_i \leq x_i \leq U_i < 1, \quad (2.8)$$

o espaço fatorial torna-se um polítopo convexo, cujo formato não é necessariamente igual ao do *Simplex* original; ao contrário, pode ser totalmente irregular.

Uma vez que a distribuição de pontos em uma região irregular do hiper-espaço não é um problema trivial, uma série de diferentes abordagens têm sido desenvolvidas no sentido de facilitar essa tarefa. Uma das primeiras consistiu no uso dos vértices extremos e algumas de suas combinações convexas como pontos experimentais. Os vértices da região restrita podem ser localizados através de diversos algoritmos, dos quais os pioneiros foram o Algoritmo de Vértices Extremos de McLean & Anderson (1966) e o XVERT de Snee & Marquardt (1974).

O referido algoritmo de McLean & Anderson, no entanto, é criticado por Gorman (1966), que, apesar de reconhecer sua grande utilidade, alerta para o fato de que as restrições podem definir vértices distribuídos de maneira não-uniforme no espaço. Os mesmos podem, de fato, apresentar-se aglomerados em determinadas regiões e escassos em outras, não se constituindo portanto em pontos apropriados para o ajuste de um modelo de regressão igualmente preciso sobre toda a região de interesse (Box & Draper, 1987; Cornell, 1990c). Gorman (1966) sugere ainda que “leves” alterações nas especificações poderiam levar a uma melhor distribuição dos vértices da região restrita no espaço $(q - 1)$ -dimensional. Esse procedimento, no entanto, prejudicaria a generalidade do método, recaindo em um tratamento tanto particularizado quanto subjetivo do problema (o que é uma alteração “leve”?).

Baseados nessa mesma limitação dos projetos de vértices extremos, Saxena & Nigam (1977), propõem o uso de um projeto *Simplex*-simétrico em variáveis transformadas, com posterior conversão ao espaço experimental real. Apesar de o método proposto ser vantajoso em relação ao de McLean & Anderson (1966), proporcionando uma melhor distribuição dos pontos no espaço fatorial, peca também por falta de generalidade, uma vez que a escolha do projeto em variáveis transformadas que fornecerá um experimento adequado em variáveis de mistura envolve um processo de tentativa e erro (ver Saxena & Nigam, 1977, para maiores detalhes).

Frente à existência de restrições inferiores e superiores para as proporções dos componentes, ou mesmo quando se deseja testar apenas misturas pertencentes a uma sub-região de interesse, alguns pesquisadores preferem recorrer a uma transformação de variáveis,

substituindo as q proporções dos componentes x_i , linearmente dependentes entre si, devido à restrição expressa na Eq. (2), por $(q - 1)$ variáveis w_i linearmente independentes.

O uso de variáveis independentes entre si possui inúmeras vantagens, tais como:

- o melhor ajuste de modelos polinomiais de baixa ordem do que seria possível ao se lidar com as variáveis correlacionadas x_i (Cornell, 1981);
- a possibilidade de utilização de formas de modelos tradicionais, projetos experimentais padrão de superfície de resposta e critérios de projeto ótimo, com os quais se tem maior familiaridade;
- a facilidade de se combinar num mesmo experimento variáveis de mistura e de processo (independentes por natureza).

2.2.2.3 Transformação para variáveis independentes

Existem diversas formas de realizar essa transformação, todas elas válidas matematicamente, diferindo apenas na forma final da relação entre as variáveis transformadas e as variáveis de mistura (Cornell, 1981).

2.2.2.3.1 Redefinindo todo o espaço *simplex*

Um método baseado na transformação das variáveis de mistura para variáveis independentes foi primordialmente apresentado por Draper & Lawrence (1965a-b), na geração de projetos experimentais consistindo apenas de pontos interiores dos *simplex* para 3 e 4 componentes. Segundo Cornell (1973), essa foi a primeira abordagem que possibilitou o uso de critérios padrão de geração de projeto, tais como a minimização do erro quadrático médio do modelo a ser ajustado, em problemas de mistura.

Cornell (1981) apresenta em seu livro, *Experiments with Mixtures*, um exemplo de transformação de todo o espaço *simplex* para um sistema de coordenadas independentes. Primeiramente, define-se a origem do novo sistema de coordenadas como sendo o centróide do *simplex*, através de uma transformação de escala do tipo:

$$\tilde{x}_i = q \cdot \left(x_i - \frac{1}{q} \right) = q \cdot x_i - 1 \quad (2.9)$$

O centróide do simplex, originalmente expresso em coordenadas de mistura como $(1/q, 1/q, \dots, 1/q)$, passa a ser expresso em variáveis \tilde{x}_i como $(0, 0, \dots, 0)$, e cada \tilde{x}_i varia de -1 a $(q - 1)$.

Após, realiza-se uma rotação nos eixos dos componentes originais, fazendo com que o eixo do componente q se torne ortogonal ao simplex, através da multiplicação do vetor de variáveis intermediárias $\tilde{\mathbf{x}}$ por uma matriz ortogonal² Θ . As novas variáveis assim definidas são, em forma vetorial:

$$\mathbf{w}' = \frac{q(q-1)}{q} \cdot \tilde{\mathbf{x}}' \cdot \Theta \quad (2.10)$$

onde a matriz Θ é definida de forma a ser ortogonal, ou seja, $\Theta' \cdot \Theta = \Theta \cdot \Theta^{-1} = \mathbf{I}$ (matriz identidade). Um formato sugerido para a matriz Θ pode ser visto em Cornell (1981).

Cada vetor \mathbf{w}' terá seu último elemento, w_q , igual a zero. Isso se deve ao fato de esse eixo ser perpendicular ao plano formado pelos demais. Ignorando-se este último elemento, o espaço simplex passa a ser descrito por $(q - 1)$ variáveis linearmente independentes.

2.2.2.3.2 Redefinindo uma sub-região do *simplex*

Uma proposta posterior, apresentada por Cornell & Good (1970), considerou a existência de uma sub-região de interesse no *simplex*, centrada em um ponto de máximo interesse, que pode ser tanto a condição operacional atual, como um ponto que se acredita estar dentro da região ótima, ou simplesmente um ponto de partida conveniente para a exploração da superfície de resposta.

² Uma matriz quadrada é dita ortogonal quando suas colunas formam um conjunto linearmente independente de vetores, os quais representam portanto os eixos de um sistema de coordenadas independentes.

A região de interesse é definida pelas faixas de variação desejadas para cada componente da mistura, sendo aproximada por um elipsóide simétrico em relação ao ponto central, segundo a expressão:

$$\sum_{i=1}^q \left(\frac{x_i - x_{oi}}{h_i} \right)^2 \leq 1 \quad (2.11)$$

onde x_{oi} é a proporção do componente i no ponto central da região

h_i é a semi-amplitude da faixa de variação para o componente i

O elipsóide pode ser redefinido em outro sistema de coordenadas, onde o ponto central será expresso pelas coordenadas $(0, 0, \dots, 0)$. Isso é obtido através de um reescalonamento das proporções dos componentes da mistura, similar à transformação para pseudocomponentes. As proporções reescaladas são dadas por:

$$v_i = \frac{x_i - x_{oi}}{h_i}, \quad i = 1, 2, \dots, q \quad (2.12)$$

Esse reescalonamento faz com que cada componente assumira a proporção $v_i = -1$ quando estiver em seu nível mínimo (L_i), e $v_i = 1$, quando $x_i = U_i$; consiste, portanto, em uma *normalização* das faixas de variação, redefinindo a região elipsoidal como uma hiper-esfera de raio 1. Dessa forma, tende-se a evitar problemas de multi-colinearidade no ajuste do modelo e tornar os coeficientes de regressão de um mesmo modelo diretamente comparáveis (pois corresponderão a variações dentro de uma mesma escala).

Após normalizadas, as variáveis ainda são interdependentes, conforme se pode verificar pela substituição da equação (2.12) em (2.10), obtendo-se:

$$\sum_{i=1}^q v_i \leq 1 \quad (2.13)$$

Para obter a composição da mistura expressa em variáveis independentes, deve-se realizar sobre a mesma uma **transformação ortogonal**. A transformação ortogonal se dá pela

multiplicação da matriz experimental normalizada, expressa em coordenadas v_p , por uma matriz ortogonal de transformação \mathbf{T} :

$$\mathbf{V} \cdot \mathbf{T} = [\mathbf{W} | \mathbf{0}] \quad (2.14)$$

onde \mathbf{V} é a matriz experimental ($N \times q$) expressa em variáveis normalizadas v_i ;

\mathbf{T} é a matriz ortogonal de transformação ($q \times q$);

\mathbf{W} é a matriz experimental [$N \times (q - 1)$] expressa em coordenadas linearmente independentes w_i ;

$\mathbf{0}$ é a última coluna da matriz transformada, representada como uma matriz ($1 \times q$) nula justaposta à matriz \mathbf{W} .

A transformação para variáveis independentes é tal, que a região de interesse inicialmente elipsoidal torna-se uma esfera ($q - 1$)-dimensional, projetada no novo sistema de coordenadas. Isso é possível, uma vez que a última coordenada, por ser sempre zero, não é necessária para a identificação de qualquer ponto, sendo portanto ignorada.

A forma da matriz de transformação deve ser tal que: (i) seja ortogonal e (ii) produza uma matriz transformada com a última coluna nula. Sabendo-se que a última coluna da matriz resultante é obtida através da multiplicação escalar de cada linha da matriz \mathbf{V} pela última coluna da matriz \mathbf{T} , esta pode ser redefinida como:

$$\mathbf{T} = [\mathbf{T}_1 | \mathbf{T}_2] \quad (2.15)$$

onde \mathbf{T}_1 é uma matriz [$q \times (q - 1)$], tal que $\mathbf{V} \cdot \mathbf{T}_1 = \mathbf{W}$

\mathbf{T}_2 é uma matriz ($q \times 1$), tal que $\mathbf{V} \cdot \mathbf{T}_2 = \mathbf{0}$

As variáveis w_i assim obtidas devem então ser usadas na construção de projetos, bem como no ajuste do modelo à superfície de resposta e em outros cálculos matemáticos, tais como a plotagem de linhas de contorno. Cornell (1973) frisa ainda como vantagem adicional da redefinição do problema de mistura em termos de variáveis independentes o fato de a mesma

possibilitar o uso de projetos rotáveis padrão para o ajuste da superfície de resposta, cuja importância será discutida a seguir.

É importante ressaltar que, no decorrer de um estudo onde se usam variáveis transformadas, a qualquer momento se pode obter o ajuste correspondente em X a um ponto expresso em W , através de uma **transformação inversa**:

Se
$$[\mathbf{W} \mid \mathbf{0}] = \mathbf{V} \cdot \mathbf{T},$$

então
$$\mathbf{V} = [\mathbf{W} \mid \mathbf{0}] \cdot \mathbf{T}^{-1} = [\mathbf{W} \mid \mathbf{0}] \cdot \mathbf{T}' = \mathbf{W} \cdot \mathbf{T}_1' \quad (2.16)$$

e
$$\mathbf{x} = \mathbf{v} \cdot \mathbf{h} + \mathbf{x}_0 \quad (2.17)$$

onde \mathbf{T}' é a matriz \mathbf{T} transposta (igual à sua inversa, por ser ortogonal)

\mathbf{h} é o vetor (1 x q) das semi-amplitudes de cada componente

\mathbf{x}_0 é o vetor (1 x q) das coordenadas do ponto central expresso em X

2.3 Experimentos com Mistura sob a ótica de superfície de resposta

Em qualquer situação onde os efeitos de variáveis quantitativas na resposta do sistema estejam sendo examinados, a Metodologia de Superfície de Resposta pode ser de grande utilidade, como será visto. Experimentos com Misturas não são exceção. De acordo com Hare & Brown (1977), que apresentaram um método para plotar superfícies de resposta em coordenadas de mistura, a única particularidade dos Experimentos com Misturas em relação à superfície de resposta é o espaço fatorial.

Segundo Cornell (1990a), o conceito de Superfície de Resposta possui também a vantagem de oferecer formas convenientes para a avaliação da *performance* de um modelo na representação de um sistema de mistura.

2.3.1 A Metodologia de Superfície de Resposta

A Metodologia de Superfície de Resposta é uma coleção de técnicas matemáticas e estatísticas, que são úteis na modelagem e análise de problemas nos quais a resposta de interesse é influenciada por diversas variáveis. Seu objetivo final é determinar o ajuste das condições operacionais (no caso da mistura, sua composição) que otimiza a resposta do sistema, ou, ao menos, a região do espaço fatorial dentro da qual as especificações são satisfeitas (Box & Draper, 1987).

Os métodos estatísticos envolvidos compreendem uma seqüência de passos que devem ser executados a fim de se obterem resultados consistentes (Cornell, 1978):

- 1) Seleção do tipo de modelo a ser ajustado a um conjunto de dados experimentais;
- 2) escolha e realização do programa experimental mais adequado para a coleta de tais dados;
- 3) uso das técnicas apropriadas na análise dos dados.

Usualmente, o modelo ajustado à superfície de resposta é um polinômio de baixa ordem. Embora seja pouco provável que o modelo polinomial reflita a verdadeira relação funcional entre a resposta e os fatores controláveis sobre todo o espaço fatorial, ele pode ser interpretado como a aproximação da função por expansão da mesma em série de Taylor. Box & Draper (1987) consideram que essa aproximação certamente funcionará bem para regiões relativamente pequenas do espaço experimental.

A relação de dependência existente entre a resposta η e o ajuste dos k fatores controláveis x_i é dada por uma função desconhecida $\eta = \phi(x_1, x_2, \dots, x_k)$, geralmente representada por um modelo polinomial de 1ª ou 2ª ordem. Em um programa experimental constituído de N rodadas, o valor assumido pela resposta y em cada ensaio u , denotado por y_u , é considerado variar em torno de seu valor esperado, η , com uma variância constante σ^2 , devido a erros experimentais e influência dos fatores não-controláveis (fatores de ruído). Assim,

$$y_u = \eta + \varepsilon_u, \quad 1 \leq u \leq N \quad (2.18)$$

onde os ε_{ii} são os erros experimentais aleatórios, considerados não-correlacionados e identicamente distribuídos em torno de uma média zero com variância σ^2 .

A estimativa dos parâmetros desconhecidos β do polinômio escolhido para representar a superfície de resposta é realizada através do Método dos Mínimos Quadrados. Segundo Box & Draper (1987), os resultados dessa estimação serão melhores se os dados experimentais tiverem sido coletados através de um projeto experimental apropriado.

2.3.2 Projetos padrão para ajuste de superfícies de resposta

Os requisitos básicos para qualquer projeto de superfície de resposta, de acordo com Box & Draper (1987), são que ele:

- 1) Forneça dados razoavelmente bem distribuídos sobre a região de interesse;
- 2) permita a investigação da adequação do modelo, incluindo a falta de ajuste;
- 3) permita a realização dos ensaios em blocos;
- 4) permita a construção seqüencial de experimentos de ordem mais alta pela adição de pontos;
- 5) forneça uma estimativa interna do erro;
- 6) não requeira um grande número de rodadas;
- 7) não requeira muitos níveis das variáveis independentes;
- 8) assegure a simplicidade de cálculo dos parâmetros do modelo.

As características desejáveis de um projeto experimental destinado ao ajuste da superfície de resposta convergem, em suma, para duas grandes finalidades:

- Simplicidade do processo em todas as etapas
- Obtenção de um ajuste que gere boas estimativas para a superfície de resposta

A necessidade de boas estimativas é justificada pelo próprio objetivo primordial desta Metodologia: determinação do ajuste que fornece um valor ótimo para a resposta. Considerando-se que a localização do ótimo não é conhecida *a priori*, faz sentido usar um projeto que fornecerá um modelo confiável e com igual precisão para as estimativas da resposta em todas as direções

(Box & Draper, 1987). A obtenção de modelos com essas características é assegurado pelo uso de projetos experimentais **Ortogonais** e/ou **Rotáveis**.

2.3.2.1 Ortogonalidade do projeto

Um projeto envolvendo k fatores controláveis é dito ortogonal se as colunas de sua matriz experimental são linearmente independentes entre si, ou seja:

$$\sum_{u=1}^N x_{ui} \cdot x_{uj} = 0, \quad \forall i, j = 1, 2, \dots, k, \quad i \neq j \quad (2.19)$$

A principal vantagem trazida pela ortogonalidade é a minimização da variância dos coeficientes de regressão estimados por Mínimos Quadrados. Para o ajuste de modelos de 1ª ordem, a ortogonalidade da matriz experimental também implica outra propriedade desejada: o Projeto Experimental será conseqüentemente *rotável*.

Além disso, diversas estatísticas utilizadas para medir os efeitos dos fatores controláveis na resposta, tais como suas Somas Quadradas, serão estatisticamente independentes se obtidas através de um projeto ortogonal (Gunst & Mason, 1991). Segundo eles, o uso de matrizes experimentais severamente não-ortogonais, resultando em Somas Quadradas altamente correlacionadas, impede a medida de qualquer dos efeitos individuais de forma independente.

2.3.2.2 Rotabilidade dos pontos

Um projeto é dito rotável se, rotando-se os pontos em torno do centro do experimento $(0, 0, \dots, 0)$, os momentos da distribuição dos pontos permanecem iguais.

Para um projeto experimental rotável, a variância da estimativa da resposta $Var[\hat{y}(x)]$ será constante para todos os pontos situados a uma mesma distância do centro do projeto, independente da direção. Isso é desejável pelo fato de não se saber *a priori* a direção da região que fornece a resposta ótima; dessa forma, uma variância dependente da direção em relação ao centro poderia levar a estimativas mais imprecisas justamente nas regiões de maior interesse.

2.3.2.3 *Blocagem ortogonal*

Em projetos de superfície de resposta, a propriedade de blocagem ortogonal é uma forma de eliminar a influência dos fatores de ruído (não-controláveis) na estimativa dos efeitos dos fatores controláveis. Um projeto é dito “bloqueado ortogonalmente” se o programa experimental puder ser realizado seqüencialmente, de forma que o efeito da divisão em blocos possa ser estimado separada e independentemente dos demais (Cornell, 1973).

Quando o número total de rodadas do experimento é grande, ou quando um projeto de 2ª ordem é construído seqüencialmente a partir de um de 1ª ordem, principalmente se os ensaios suplementares forem rodados após um tempo considerável da realização dos primeiros, pode haver mudanças nas condições operacionais externas ao experimento, sendo então necessária a blocagem (Box & Draper, 1987).

Alguns exemplos de condições operacionais variantes que devem constituir diferentes blocos, a fim de que seus efeitos possam ser separados dos efeitos dos fatores em estudo, são:

- os diferentes turnos de operadores de uma planta industrial;
- diferentes lotes de matéria-prima do mesmo fornecedor;
- diferentes fornecedores para a mesma matéria-prima;
- diferentes laboratórios realizando a análise do experimento.

Para que um projeto de 2ª ordem seja capaz de bloquear ortogonalmente, duas condições devem ser satisfeitas:

- 1) Cada bloco deve ser um projeto ortogonal de 1ª ordem, ou seja:

$$\sum_{u=1}^{N_b} x_{iu} \cdot x_{ju} = 0, \quad i \neq j = 1, 2, \dots, k \quad (2.20)$$

onde N_b é o número de observações realizadas no bloco b

- 2) A fração com que cada bloco contribui para a Soma dos Quadrados total de uma variável deve ser igual à fração do número total de observações realizada nesse bloco:

$$\frac{\sum_{u=1}^{N_b} x_{iu}^2}{\sum_{u=1}^N x_{iu}^2} = \frac{N_b}{N}, \quad i = 1, 2, \dots, k \quad (2.21)$$

onde N é o número total de observações do projeto experimental

Segundo Cornell (1973), os projetos *Simplex* não possuem essa propriedade de blocagem, enquanto que os propostos por Draper & Lawrence (1965a-b), Thompson & Myers (1968), e Cornell & Good (1970) podem ser blocados ortogonalmente.

2.3.3 Projetos ortogonais de 1ª ordem

Para o ajuste de modelos de 1ª ordem, a ortogonalidade é o principal critério na seleção do projeto experimental mais adequado. A classe dos Projetos Ortogonais de 1ª ordem é constituída por:

- Projetos fatoriais 2^k ;
- Projetos fatoriais 2^{k-f} (fracionados) em que os efeitos principais não estejam confundidos entre si;
- Projetos *Simplex*.

Os projetos 2^k não possibilitam a estimativa do erro experimental, a menos que algumas rodadas sejam repetidas; a repetição parcial do experimento, porém, poderá fazer com que ele perca sua ortogonalidade. Um método comum, neste caso, de aumentar o número de pontos do experimento sem prejudicar sua propriedade de ortogonalidade, é a inclusão de várias observações no ponto central. Essa prática, além de não afetar as estimativas dos coeficientes das variáveis, torna o termo independente mais robusto (Box & Draper, 1987).

2.3.4 Projetos rotáveis de 2ª ordem

São os indicados para o ajuste de modelos de 2ª ordem, quando o projeto experimental deve conter pelo menos três níveis de cada fator. Uma escolha natural para este caso seriam os Projetos Fatoriais 3^k ; no entanto, os mesmos apresentam dois inconvenientes: o número de

pontos facilmente se torna excessivo, e o projeto não é rotável (Box & Draper, 1987). Por esse motivo, as configurações mais adequadas para o ajuste de modelos de 2ª ordem são os Projetos Compostos Centrais, seguidos dos Equirradiais (ambos rotáveis).

2.3.4.1 Projetos Compostos Centrais

Os Projetos Compostos Centrais (PCC) são, provavelmente, os mais largamente usados (Cornell, 1990c) para o ajuste de superfícies de resposta de 2ª ordem. Isso provavelmente se deve ao fato de os mesmos serem capazes de atender a vários requisitos fundamentais para uma boa estimativa do modelo da superfície de resposta: ortogonalidade, rotabilidade e blocagem ortogonal. Os PCC constituem-se da combinação de:

- uma porção Fatorial ou “Cubo”, composta por 2^{k-f} pontos do tipo $(\pm 1, \pm 1, \dots, \pm 1)$
- uma porção Axial ou “Estrela”, formada por $2k$ pontos da forma $(\pm \alpha, 0, \dots, 0)$, $(0, \pm \alpha, 0, \dots, 0)$, $(0, 0, \dots, \pm \alpha)$
- NC replicações do ponto central: $(0, 0, \dots, 0)$

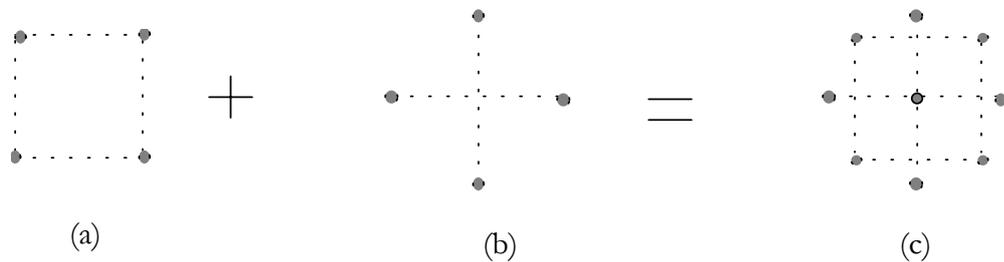


Figura 2-4: Construção de um PCC de 2ª ordem para 2 fatores: (a) $2^k = 4$ pontos fatoriais (Cubo); (b) $2k = 4$ pontos axiais (Estrela); (c) Cubo + Estrela + NC pontos centrais.

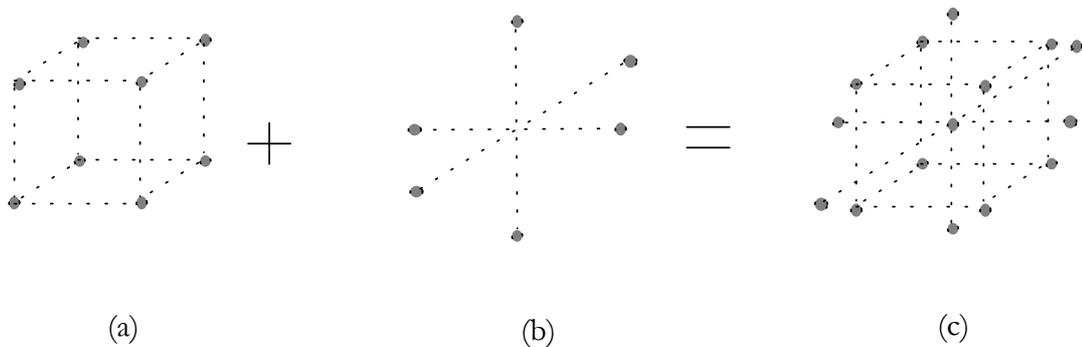


Figura 2-5: Construção de um PCC de 2ª ordem para 3 fatores: (a) $2^k = 8$ pontos fatoriais (Cubo); (b) $2k = 6$ pontos axiais (Estrela); (c) Cubo + Estrela + NC pontos centrais.

Um PCC pode ser rotável ou não, de acordo com o valor escolhido para α . Sendo α a distância de qualquer ponto ao centro de um projeto rotável, seu valor depende apenas do número de pontos da porção fatorial. Definindo-se o tamanho da porção cubo como:

$$M = r \cdot 2^{k-f}, \quad (2.22)$$

onde r é o número de replicações dos pontos fatoriais

f é o número de fracionamentos da porção fatorial

então $\alpha_{\text{ROTÁVEL}} = M^{1/4}$ (Box & Draper, 1987) (2.23)

Os PCC possuem ainda outra característica desejável para a modelagem de superfícies de resposta: eles podem ser construídos a partir de um projeto de 1ª ordem (2^{k-f}) já realizado, pela simples adição de pontos axiais e centrais ao programa experimental, gerando um PCC dividido em blocos. De fato, os PCC podem sempre ser planejados de forma a blocar ortogonalmente em 2 blocos, pela divisão do experimento em um bloco fatorial com NC_f pontos centrais, e um bloco axial com NC_a pontos centrais.

Independente do valor de α usado no projeto, a 1ª condição para a blocagem ortogonal (Eq. 2.20) será sempre mantida. No entanto, para respeitar a 2ª. condição (Eq. 2.21), a expressão abaixo deverá ser observada:

$$\frac{\sum_{u=1}^{2k} x_{iu}^2}{\sum_{u=1}^M x_{iu}^2} = \frac{2k + NC_a}{M + NC_f} \quad (2.24)$$

Substituindo-se o lado esquerdo da Eq. 2.24 por sua expressão em função de α , $\frac{2\alpha^2}{M}$, encontra-se o valor de α a ser usado para permitir a blocagem ortogonal do experimento:

$$\alpha = \left[\frac{M(2k + NC_a)}{2(M + NC_f)} \right]^{1/2} \quad (2.25)$$

Esse valor de α geralmente não resulta em um projeto rotável. Para que essa propriedade seja adquirida, de acordo com a Eq. 2.23, $\alpha = M^{1/4}$, o que leva a:

$$M^{1/2} = \frac{M(2.k + NC_a)}{2(M + NC_f)} \quad (2.26)$$

A equação acima nem sempre pode ser exatamente satisfeita. É possível encontrar apenas valores de α que satisfaçam aproximadamente ambas as condições de bloqueio ortogonal e rotabilidade (Box & Draper, 1987).

2.3.4.2 Projetos Equirradiais

Os projetos Equirradiais para ajuste de modelos de 2ª ordem consistem de dois ou mais conjuntos de pontos posicionados em círculos, esferas ou hiper-esferas concêntricas. Em cada conjunto, os pontos estão equidistantes uns dos outros, além de equidistantes do centro do projeto. Quando cada conjunto equirradial de pontos do projeto forma os vértices de um polígono, poliedro ou politopo *regular*, o projeto é **rotável**.

Em duas dimensões (projetos para 2 fatores), todas as figuras regulares de 5 ou mais vértices, aumentadas de ao menos 1 ponto central, constituem-se em projetos rotáveis (Cornell, 1990c). Dentre os mesmos, o **Hexágono** sobressai-se por ser, além de rotável, blocável ortogonalmente:

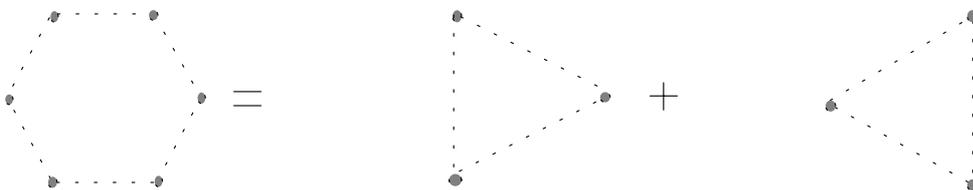


Figura 2-6: Projeto Hexágono dividido em dois blocos em formato de *simplex* (ortogonais).

Outros projetos equirradiais com maior número de vértices não são objeto de estudo particular, por confundirem-se com os Projetos Compostos Centrais rotáveis. O Octágono, por

exemplo, é idêntico ao PCC formado por um cubo completo + estrela para $k = 2$ fatores, com $\alpha = \sqrt{2}$.

Quando os pontos devem ser igualmente espaçados em três dimensões (projetos para 3 fatores), projetos equirradiais são obtidos pelos vértices de: tetraedros, octaedros, cubos, dodecaedros (12 faces) e icosaedros (20 faces). No entanto, o Tetraedro, o Octaedro e o Cubo não fornecem projetos rotáveis de 2ª ordem, a não ser quando combinados entre si. Neste caso, obtém-se, novamente, PCC's rotáveis de 2ª ordem.

2.3.5 O uso de projetos padrão em *Experimentos com Misturas*

Já foi mencionado que uma das razões para o uso de variáveis independentes é a possibilidade de utilização de técnicas conhecidas de superfície de resposta, como a construção de projetos padrão e o uso de critérios de planejamento ótimo. Esses critérios também já foram apresentados, sendo que dois deles são geralmente os mais considerados na tentativa de se obter um bom modelo para a resposta do sistema: a minimização da variância e o mínimo viés para os parâmetros do modelo a serem estimados.

Viu-se também que, com o uso de projetos rotáveis, a variância da estimativa da resposta $Var[\hat{y}(w)]$ (no caso, expressa em função das variáveis de mistura transformadas W) torna-se função *somente* da distância ao centro do projeto, e não da direção. Isso equivale a dizer que:

- qualquer rotação realizada no sistema de coordenadas original pela matriz de transformação \mathbf{T} não afetará a variância de $\hat{y}(w)$;
- uma vez que os pontos experimentais forem planejados dentro da região de interesse no espaço da mistura, a uma distância constante ρ de seu centro, uma rotação qualquer realizada por uma matriz \mathbf{T} arbitrária não vai tirá-los fora dessa região.

Ou seja, para projetos rotáveis, qualquer forma apropriada pode ser usada para a matriz de transformação, contanto que a mesma seja ortogonal e $\mathbf{V} \cdot \mathbf{T}_2 = \mathbf{0}$.

O tamanho do projeto, em termos de distância dos pontos ao seu centro, é dado pelo seu raio ρ , definido de acordo com os critérios de projeto que se esteja adotando (minimização da variância ou do viés dos coeficientes do modelo).

Quando o viés é considerado zero (e se deseja minimizar a variância dos coeficientes estimados), Box (1952) mostra que o maior raio possível para o projeto é o mais indicado. Por outro lado, quando se considera a variância como negligenciável, e o viés é que deve ser minimizado, a abrangência do projeto deve ser reduzida ao máximo. O raio da região de interesse em variáveis independentes w_p , como já foi visto, é unitário; já quando essa região é passível de ser aumentada, pode-se usar qualquer valor menor ou igual ao raio da maior esfera centrada em $\mathbf{w} = \mathbf{0}$ e contida no *simplex*, dado por (Cornell, 1981):

$$\rho^* = \min_{1 \leq i \leq q} \rho_i \quad (2.27)$$

onde

$$\rho_i = \left\{ 1 + \frac{x_{oi}^2}{\left(\sum_{i=1}^q x_{oi}^2 \right) - x_{oi}^2} \right\}^{1/2} \quad \text{se } h_i = x_{oi} \quad (2.28)$$

$$\rho_i = x_{oi} \left\{ \frac{1}{h_i^2} + \frac{1}{\left(\sum_{i=1}^q h_i^2 \right) - h_i^2} \right\}^{1/2} \quad \text{se } h_i < x_{oi} \quad (2.29)$$

Cornell (1981) recomenda, para o ajuste de um modelo de 2ª ordem, um projeto composto central, pelas mesmas razões já expostas no item 2.3.4.1 deste trabalho. A única particularidade é que a matriz experimental em variáveis w deverá ser multiplicada por um fator c , chamado multiplicador do raio. Para projetos de máxima abrangência,

$$c = \frac{\rho^*}{\sqrt{q-1}}, \quad (2.30)$$

enquanto que, para projetos contidos na região de interesse,

$$c = \frac{1}{\sqrt{q+1}} \quad (2.31)$$

Para que o projeto composto central em um espaço de mistura seja rotável, requiere-se ainda que, além de $\alpha = \sqrt[4]{M}$,

$$c \leq \frac{\rho_{PCC}}{\sqrt{q-1}} \quad (2.32)$$

onde $\rho_{PCC} \leq \rho^*$.

2.4 Modelagem da superfície de resposta

Pode-se dizer que, na área de *Experimentos com Misturas*, os esforços têm-se concentrado no desenvolvimento das técnicas de **Projeto** do experimento, em detrimento de novas abordagens para sua **Análise**. Essa afirmação feita por Cornell (1973) e Snee (1973) ainda hoje se pode verificar, através de uma revisão da literatura, onde se encontra um farto material sobre diferentes propostas de seleção de pontos experimentais; no entanto, poucas inovações são observadas em termos de técnicas de análise específicas para misturas.

2.4.1 Modelos polinomiais para Misturas

Após o desenvolvimento dos primeiros modelos polinomiais específicos para mistura, por Scheffé (1958), foram apresentados como alternativa os modelos de Becker (1968), que se propunham a sanar algumas deficiências dos primeiros, como a inabilidade de representar efeitos aditivos dos componentes. Abordagens alternativas foram propostas apenas para casos específicos, em que se deseja descrever a resposta em função das razões entre os componentes, ou quando um dos ingredientes está em grande proporção na mistura, podendo ser desconsiderado no ajuste do modelo (Snee, 1973).

2.4.1.1 Polinômios canônicos de Scheffé

Estes foram os primeiros modelos polinomiais, derivados por Scheffé (1958), especificamente para misturas, através da aplicação da restrição fundamental de mistura dada pela Eq. (2.2) aos polinômios padrão de ordem m , com posterior simplificação.

Exemplo: Polinômio de 1ª ordem para um sistema com dois componentes:

$$\eta = \beta_o + \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 \text{ (padrão)} \quad \therefore \quad \eta = (x_1 + x_2) \beta_o + \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2$$

$$\eta = (\beta_0 + \beta_1) x_1 + (\beta_0 + \beta_2) x_2 \therefore \eta = \beta'_1 x_1 + \beta'_2 x_2 \quad (\text{canônico})$$

Nota-se que há a remoção do termo independente β_0 . Da mesma forma, os polinômios de maior grau terão menor número de termos no formato canônico, resultando em:

$$\text{Linear:} \quad \eta = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i \quad (2.33)$$

$$\text{Quadrático:} \quad \eta = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i < j}^q \beta_{ij} x_i x_j \quad (2.34)$$

$$\text{Cúbico Especial:} \quad \eta = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i < j}^q \beta_{ij} x_i x_j + \sum_{i < j < k}^q \beta_{ijk} x_i x_j x_k \quad (2.35)$$

Uma vez que os dados experimentais são provenientes de um Projeto *Simplex*, as fórmulas do Método dos Mínimos Quadrados para o cálculo das estimativas b dos coeficientes β nos polinômios canônicos são simplificadas. As mesmas podem ser expressas como funções simples dos valores observados da resposta coletada nos pontos do projeto. Por exemplo, para um projeto $\{q, 2\}$ - *Simplex-lattice*, o cálculo das estimativas b_i e b_{ij} do modelo quadrático (Eq. 2.23) são:

$$b_i = \bar{y}_i, \quad i = 1, 2, \dots, q \quad (2.36)$$

$$\text{e} \quad b_{ij} = 4 \cdot \bar{y}_{ij} - 2 \cdot (\bar{y}_i + \bar{y}_j), \quad i < j = 1, 2, \dots, q \quad (2.37)$$

onde \bar{y}_i é o valor da resposta medida nos pontos em que a mistura é formada pelo componente i puro

\bar{y}_{ij} é o valor da resposta medido em misturas onde os componentes i e j aparecem em proporções iguais a $1/2$.

Fórmulas como as exemplificadas em (2.36) e (2.37), segundo Cornell (1990a), ocorrem somente quando os polinômios canônicos são ajustados aos seus respectivos projetos *Simplex*. Em casos onde misturas adicionais são incluídas aos projetos, as fórmulas para a estimativa dos coeficientes são mais complicadas.

Apesar de sua simplicidade de aplicação, os polinômios canônicos de Scheffé foram desde cedo criticados por Quenouille (1959), quanto à sua incapacidade de representar corretamente a ação de componentes inertes ou com efeitos aditivos.

2.4.1.2 Modelos homogêneos de Becker

A fim de modelar efeitos aditivos ou de componentes inertes (Cornell, 1990a), Becker (1968) apresentou um conjunto de *Modelos Homogêneos*, alternativos aos de Scheffé:

$$H1: E(y) = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i < j}^q \beta_{ij} \min(x_i, x_j) + \sum_{i < j < k}^q \beta_{ijk} \min(x_i, x_j, x_k) \quad (2.38)$$

$$H2: E(y) = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i < j}^q \beta_{ij} \frac{x_i x_j}{(x_i + x_j)} + \sum_{i < j < k}^q \beta_{ijk} \frac{x_i x_j x_k}{(x_i + x_j + x_k)^2} \quad (2.39)$$

$$H3: E(y) = \sum_{i=1}^q \beta_i x_i + \sum_{i < j}^q \beta_{ij} (x_i, x_j)^{1/2} + \sum_{i < j < k}^q \beta_{ijk} \min(x_i, x_j, x_k)^{1/3} \quad (2.40)$$

Os modelos de Becker oferecem melhor ajuste do que os de Scheffé em determinadas situações, como por exemplo, quando se realiza a transformação das variáveis de mistura para pseudocomponentes. Uma análise comparativa detalhada sobre a *performance* dos diversos modelos para misturas pode ser vista em Snee (1973).

2.4.2 Modelos polinomiais padrão

Como já comentado dentro da Metodologia de Superfície de Resposta, a relação de dependência η entre a resposta e o ajuste dos fatores controláveis é geralmente representada por um modelo polinomial de baixa ordem. O mesmo pode assumir a forma genérica:

$$\begin{aligned} \eta = & \beta_o + \sum_{i=1}^k \beta_i x_i + \sum_{i < j}^k \beta_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^k \beta_{ii} x_i^2 + \dots + \sum_{i < j < k}^k \beta_{ij\dots m} x_i x_j \dots x_m \\ & + \sum_{i=1}^k \beta_{i\dots i} x_i^m \end{aligned} \quad (2.41)$$

Os parâmetros desconhecidos β deste modelo, assim como os dos modelos de Scheffé ou de Becker descritos nos itens anteriores, devem ser estimados por rotinas de regressão linear, simples ou múltipla, para uma ou mais variáveis regressoras (fatores controláveis) respectivamente. Como estamos considerando a aplicação de tais modelos para a descrição da superfície de resposta de uma mistura, cujos fatores controláveis são as ($q > 1$) proporções de seus componentes, a técnica a ser utilizada é a de Regressão Linear Múltipla.

2.4.3 Regressão Linear Múltipla

A Análise de Regressão consiste de duas etapas:

- 1) Estimação dos parâmetros desconhecidos do modelo de regressão ou “ajuste do modelo aos dados”.
- 2) Verificação da adequação do modelo, na qual se estudam tanto a adequação do modelo escolhido para a representação do comportamento da resposta, como a qualidade do ajuste obtido.

Se o resultado da verificação indicar que o modelo não é adequado, o mesmo deve ser modificado, e seus parâmetros, reestimados. Portanto, a Análise de Regressão é um processo *iterativo*, desde o primeiro ajuste até a obtenção de um modelo considerado satisfatório e que será adotado.

2.4.3.1 Estimação dos parâmetros do modelo

É realizada através do popular Método dos Mínimos Quadrados, cuja descrição detalhada pode ser encontrada em Montgomery & Peck (1992).

2.4.3.2 Verificação da adequação do modelo

Os mesmos autores apresentam também inúmeras técnicas e estimativas utilizadas para testar a adequação e ajuste do modelo, dentre os quais se sobressaem:

- **Teste de hipóteses para a significância da regressão:** É usado para determinar se há uma relação linear entre a resposta y e qualquer das variáveis regressoras. As hipóteses são:

$$\begin{cases} H_0: \beta_1 = \beta_2 = \dots = \beta_k = 0 \\ H_1: \beta_j \neq 0 \quad \text{para pelo menos um } j \end{cases}$$

O procedimento de teste é usualmente sumarizado em uma tabela de ANOVA (*Analysis of Variance*), como a mostrada a seguir:

Tabela 2-1: Análise de Variância para a significância de um modelo de regressão múltipla.

Fonte de Variação	Soma dos Quadrados	Graus de Liberdade	Média Quadrada	F_o
Regressão	SS_R	p	$MS_R = SS_R/p$	MS_R/MS_E
Resíduos	SS_E	$N - p - 1$	$MS_E = SS_E/(N - p - 1)$	
Total	SS_Y	$N - 1$		

onde SS_R é a soma dos quadrados dos valores fornecidos pelo modelo de regressão

SS_E é a soma dos quadrados dos resíduos

SS_T é a soma dos quadrados dos valores observados (total)

N é o número de observações

p é o número de parâmetros estimados no modelo

- **Estimativas R^2 e R_A^2 (R^2 ajustado):** O coeficiente de determinação múltipla, mais conhecido como R^2 , pode ser interpretado como uma medida da redução na variabilidade da resposta obtida pelo uso das variáveis regressoras, e é definido como (Montgomery & Peck, 1992):

$$R^2 = \frac{SS_R}{SS_Y} = 1 - \frac{SS_E}{SS_Y} \quad (2.42)$$

Uma vez que $SS_Y = SS_R + SS_E$, R^2 varia entre 0 e 1. No entanto, um grande valor de R^2 não implica necessariamente que o modelo é bom, pois a adição de um termo ao modelo sempre aumenta o R^2 , mesmo que o termo não seja estatisticamente significativo. Desse modo, corre-se o

risco de “super-ajustar” o modelo, adicionando-se termos desnecessários. Por esse motivo, é de grande utilidade o uso paralelo da estatística R^2 ajustado, dada por:

$$R_A^2 = 1 - \frac{SS_E / (N - p)}{SS_T / (N - 1)} \quad (2.43)$$

Essa estatística pode diminuir ao se acrescentarem variáveis não-significativas ao modelo, penalizando o “super-ajuste” do mesmo. A comparação entre R^2 e R_A^2 para um mesmo modelo fornece um bom indicativo dessa situação quando as duas estatísticas diferem acentuadamente (Montgomery & Peck, 1992).

- **Gráficos de Resíduos:** Os resíduos r_i do modelo de regressão múltipla são dados por $r_i = y_i - \hat{y}_i$, representando o suposto erro experimental, dado o modelo ajustado. Desempenham um importante papel no julgamento da adequação do modelo, sendo freqüentemente instrutivo plotá-los (Montgomery & Peck, 1992):

- em papel de probabilidade normal
- versus cada variável regressora
- versus \hat{y}_i (valor ajustado)
- na seqüência de realização dos ensaios

Esses gráficos são usados para detectar desvios da consideração de normalidade do erro experimental, pontos fora da tendência dos demais (*outliers*), tendências na variância, e a especificação funcional incorreta para um regressor. Tanto os resíduos como os resíduos padronizados ($\frac{r_i}{\sqrt{SS_E}}$) podem ser plotados, sendo que os últimos são mais úteis na detecção de *outliers*.

2.4.3.3 Modelagem da variância

Na modelagem de um produto ou processo com vistas à otimização experimental, deseja-se encontrar não só o ajuste que forneça o valor mais próximo do alvo, mas também que seja o

menos afetado possível por pequenas variações em torno desse ajuste. Assim, além da média, torna-se necessário modelar a variância da resposta em função do ajuste dos fatores controláveis.

Embora para a modelagem da média haja um procedimento que pode ser considerado como padrão, de eficiência reconhecida, que é o Método dos Mínimos Quadrados, para o ajuste de modelos para a variância ainda não há um consenso (Barbetta et al., 1997). A literatura apresenta várias alternativas, dentre as quais se destacam: Ajustar um modelo

- a) aos resíduos quadráticos (r_i^2) das observações em relação à estimativa correspondente fornecida pelo modelo ajustado para a média, ou
- b) à variância amostral (S_i^2), calculada para cada conjunto de observações realizadas nas mesmas condições experimentais (replicações de um mesmo ajuste dos fatores controláveis).

O uso da variância amostral (método S2) como variável dependente se justifica por ser esse, sob o modelo normal, o melhor estimador de σ_i^2 (Barbetta et al, 1997). No entanto, esse método exige um número razoável de replicações do experimento para ser considerado eficiente (no aproveitamento das informações amostrais) (Bartlett e Kendal, 1946 e Myers e Montgomery, 1995). Sua principal vantagem é utilizar dados diretamente do experimento, não dependendo do modelo ajustado para a média.

Já o método dos resíduos quadráticos (RQ), além de ter um referencial teórico bastante forte, por se basear no método dos Mínimos Quadrados Generalizados (Barbetta et al., 1998), não exige um grande número de replicações, sendo sempre mais eficiente do que o S2. Contudo, a confiabilidade dos resultados dessa modelagem depende da qualidade do modelo ajustado para a média.

Em ambos os casos, diversos autores (Myers e Montgomery, 1995; Carrol e Ruppert, 1988; Barbetta et al., 1997) têm sugerido usar uma transformação logarítmica, a fim de:

- a) reduzir o efeito de curvaturas e interações, gerando modelos mais simples;
- b) normalizar a variável regressora, pois os resíduos ou variâncias amostrais possuem distribuição geralmente assimétrica.

Como vantagem adicional da transformação logarítmica, tem-se a garantia de valores estritamente positivos para as estimativas de variância.

Entretanto, o uso do logaritmo de S_i^2 ou r_i^2 pode gerar valores discrepantes quando essas duas estatísticas se aproximam de zero; pois $\log(x \rightarrow 0) \rightarrow -\infty$. Isso pode ocorrer ocasionalmente quando se tem um pequeno número de replicações. Para contornar esse problema, Barbetta et al (1997) propõem a adição de uma constante positiva $q = c.\bar{S}^2$ às observações, obtendo-se como variável dependente $\log(S_i^2 + c.\bar{S}^2)$ (e de forma análoga para os resíduos). Para determinar o valor da constante c que forneceria as melhores estimativas para os parâmetros do modelo (menores vício relativo, variância e coeficiente de variação), Barbeta et al (1998) realizaram um extenso estudo de simulação, chegando ao valor empírico de 0,02. Segundo eles, esse valor produziu os melhores resultados para inúmeros projetos experimentais com duas replicações, sendo também melhor do que $c = 0$ para a maioria dos experimentos com até quatro replicações..

2.5 Otimização da resposta

A otimização de um experimento, assim como de um sistema qualquer, significa a determinação de um ajuste ou janela operacional que resulte nas características mais desejáveis para a resposta, com ênfase para a proximidade de um valor alvo e pequena variância em torno deste (Fogliatto, 1996). Esse conceito se aplica tanto à otimização de um sistema univariado (uma só variável de resposta) como para o caso multivariado (mais de uma variável de resposta).

Em um problema de otimização multivariada, almeja-se encontrar um ajuste ótimo global para o sistema, ou seja, considerando-se todas as respostas simultaneamente. Isso geralmente é realizado de uma forma um tanto quanto empírica, seja por inspeção visual do gráfico das superfícies de resposta, ou combinando-se as diversas respostas em uma só função objetivo, que deverá ser otimizada por métodos tradicionais, tais como programação linear ou não-linear.

2.5.1 Método de Inspeção Gráfica

Esta abordagem originou-se da Metodologia de Superfície de Resposta, em que, após se ajustar um modelo a uma variável de resposta, desenham-se os gráficos de contorno de sua superfície, identificando-se visualmente a região do espaço experimental que fornece os valores

mais desejáveis. Quando se tem mais de uma variável de resposta, os gráficos de contorno individuais são superpostos, numa tentativa de determinar uma região ótima comum.

Myers et al. (1992) introduziram uma sofisticação no método, que originalmente analisa somente o modelo para a média da superfície de resposta, sugerindo a modelagem simultânea da média e variância das respostas, de acordo com o método de Box & Meyer (*in* Myers et al, 1992). O ótimo global é então identificado visualmente, através da inspeção dos gráficos de contorno para todos os modelos.

A determinação visual da região ótima possui, porém, como inconveniente a dificuldade de visualização que pode surgir ao se trabalhar com um grande número de fatores controláveis e/ou de variáveis de resposta. Segundo Fogliatto (1996), para um estudo envolvendo mais de duas variáveis de resposta, este método já se torna inadequado.

2.5.2 Otimização de uma função objetivo

A forma mais adequada para a função que concilie os diversos objetivos em um só tem sido alvo de diversos estudos, sob os mais diferentes enfoques. No campo tradicional de Superfície de Resposta, uma abordagem comum é a baseada na otimização de uma das respostas, sob a restrição de que as demais permaneçam dentro de determinadas faixas (ver Myers & Carter, 1973; Heinsman & Montgomery, 1995). Algumas abordagens mais atuais baseiam-se no conceito da Função Desejabilidade, apresentada por Harrington (1965 – ver Fogliatto, 1996), ou nas teorias de Taguchi.

2.5.2.1 Métodos baseados na “Função Desejabilidade”

Este conceito foi introduzido por Harrington (1965 – ver Fogliatto, 1996), seguindo a lógica de atribuir um valor de desejabilidade a cada valor assumido pela resposta dentro de um programa experimental. Foi assumido que cada variável de resposta deveria manter-se dentro de um intervalo de especificação, de forma que se atribui valor 1 à desejabilidade de uma resposta igual ao centro do intervalo, zero para valores fora do intervalo desejado, e desejabilidades entre zero e 1 para os demais valores. Para cada ajuste experimental dos fatores controláveis, a desejabilidade global é obtida como a média geométrica das desejabilidades de todas as variáveis de resposta nesse ponto. Ajusta-se então um modelo de regressão para a desejabilidade global em

função dos fatores controláveis, o qual deverá ser maximizado em um procedimento de otimização.

O método de Harrington foi posteriormente aperfeiçoado por Derringer & Suich (1980), a fim de lidar com variáveis de resposta com valores-alvo diferentes do centro do intervalo. Eles consideraram três diferentes possibilidades para o alvo: zero, um valor qualquer ou infinito, obtendo expressões para a Função Desejabilidade em cada um desses casos. Essa Função Desejabilidade modificada foi também adotada por Chang & Shivpuri (1994 – ver Fogliatto, 1996) em sua proposta de otimização, que apresenta como avanço a utilização dos limites da região experimental como restrições em um procedimento de programação não-linear.

2.5.2.2 Métodos baseados nas teorias de Taguchi

Podem-se identificar duas correntes dentre os adeptos de Taguchi: aqueles que se baseiam no conceito de Razão Sinal/Ruído e os que se utilizam dos conceitos que embasam a Função Perda Quadrática.

Os métodos de otimização baseados na Razão Sinal/Ruído enfocam a minimização da variabilidade do processo, enquanto que a Função Perda Quadrática leva em conta a perda obtida devido ao afastamento da resposta em relação ao seu valor-alvo. No entanto, ao apresentarem seu método de otimização para uma variável de resposta, baseado no uso de Medidas de Performance Independentes do Ajuste - PerMIAs (*Performance Measures Independent of Adjustment*), León et al. (1987 – ver Fogliatto, 1996) mostraram que, em algumas situações, tanto a Razão Sinal/Ruído como a Função Perda Quadrática de Taguchi levam ao mesmo resultado.

Elsayed & Chen (1993 – ver Fogliatto, 1996) contribuíram para a metodologia de otimização múltipla, estendendo o método de PerMIAs para múltiplas variáveis de resposta. Este método exige a classificação dos fatores controláveis em dois grupos: aqueles que afetam somente a média das variáveis de resposta, e os que afetam tanto a média quanto a variabilidade; isso demanda um conhecimento *a priori* sobre o comportamento do sistema que, em grande parte dos estudos experimentais, não se possui (Elsayed & Ribeiro, 1995).

Sob o prisma da Perda Quadrática, Khuri & Conlon (1981 – ver Fogliatto, 1996) apresentaram o método da “distância generalizada”, que tem como objetivo encontrar ajustes que minimizem tanto o desvio quadrado da resposta ao seu valor-alvo como sua variância. Tribus &

Szonyl (1989 – ver Fogliatto, 1996), por sua vez, sugeriram o uso do valor esperado da própria Função Perda de Taguchi como uma medida de *performance* para cada ajuste dos fatores controláveis, em um procedimento de otimização de múltiplas variáveis de resposta.

Uma segunda fase na utilização da Função Perda de Taguchi para a otimização de múltiplas variáveis de resposta foi inaugurada por Raiman & Case (1992 – ver Fogliatto, 1996): ao invés de usarem simplesmente a estimativa das perdas em cada ajuste como uma medida de performance durante a otimização, sua abordagem é a de otimizar um modelo da própria Função Perda Global. A estimativa da Função Perda Global é obtida através do cálculo da perda global em cada ponto de um programa experimental, seguido do ajuste de um modelo de Regressão Linear Múltipla. Apesar de representar um avanço em relação aos métodos anteriores, sua proposta apresenta as seguintes limitações (Ribeiro & Elsayed, 1995):

- o modelo de regressão obtido para a Função Perda pode apresentar inconsistência para determinados ajustes, ou seja, aumento da perda quando as respostas se aproximam de seus valores-alvo;
- a função não é simétrica, podendo fornecer valores diferentes para o mesmo desvio do alvo em direções opostas;
- nada garante a não-negatividade dos valores obtidos para a perda; e, finalmente,
- os pesos a serem usados para os desvios de cada resposta ao seu alvo são difíceis de se determinar na prática.

Pignatiello (1993 – ver Ribeiro & Elsayed, 1995) apresentou uma variação desse método, garantindo a não-negatividade da Perda Global através do uso de uma matriz de coeficientes estritamente positiva. No entanto, as demais inconsistências verificadas na abordagem de Raiman & Case se mantiveram.

A aproximação desenvolvida por Ribeiro & Albin (1995 – ver Ribeiro & Elsayed, 1995) é similar à de Pignatiello, apresentando, porém, algumas vantagens: os pesos das perdas devidas a cada variável de resposta são dados por suas importâncias relativas para a qualidade global, valores estes facilmente determináveis; o uso do desvio absoluto do alvo garante valores sempre positivos para a Função Perda. Essa mesma expressão foi posteriormente aperfeiçoada por Ribeiro & Elsayed (1995), pela adição de um termo de *robustez*, que mede o efeito da variância dos fatores controláveis na variância das respostas.

2.5.2.2.1 Função Perda Multivariada

A Função Perda Multivariada apresentada por Ribeiro & Elsayed (1995) traz como principal inovação uma preocupação em maximizar a robustez do processo a flutuações nos ajustes dos fatores controláveis, assunto esse pouco explorado, abordado anteriormente apenas de forma não-quantitativa por Taguchi.

A função é composta por três parcelas, que consideram:

- 1) Desvio de cada variável de resposta ao seu valor-alvo
- 2) Robustez a ruídos (variabilidade devido a fatores não-controláveis)
- 3) Robustez à variabilidade dos fatores controláveis

Uma vez que já se possuam modelos ajustados para a média e variabilidade de cada uma das J variáveis de resposta y_j em função dos K fatores controláveis w_i , a função perda $Z(w)$ assume a forma:

$$Z(w) = \sum_{j=1}^J p_j \left[\left(\hat{y}_j(w) - T_j \right)^2 + \hat{\sigma}_{y_j}^2(w) + \sum_{i=1}^K \sigma_{w_i}^2 \left(\frac{\partial \hat{y}_j(w)}{\partial w_i} \right)^2 \right] \quad (2.44)$$

onde p_j é um fator de ponderação para a contribuição de cada variável de resposta, que leva em conta suas unidades, faixa de variação e importância relativa;

$\hat{y}_j(w)$ é o modelo ajustado para a estimativa da média da variável de resposta y_j em função dos fatores controláveis w_i ;

T_j é o valor-alvo para a variável y_j ;

$\hat{\sigma}_{y_j}(w)$ é o modelo ajustado para a estimativa do desvio padrão de y_j em função de w ;

$\hat{\sigma}_{w_i}$ é a estimativa do desvio padrão do ajuste do fator controlável w_i ;

$\frac{\partial \hat{y}_j(w)}{\partial w_i}$ é a derivada parcial do modelo para a estimativa da média de y_j em relação ao fator controlável w_i .

O fator multiplicativo p_j , como já mencionado, tem como função ponderar a contribuição relativa da variável de resposta y_j para a perda global. Para tanto, ele incorpora a importância relativa dessa variável na avaliação da optimalidade global do sistema; e um fator de escala dependente de sua faixa de variação e alvo, que visa a eliminar as diferenças de unidades entre as diversas variáveis de resposta, tornando todas as perdas diretamente comparáveis.

2.6 Uso de algoritmos computacionais em Experimentos com Misturas

Como já foi visto, o *Projeto de Experimentos com Misturas*, bem como o *Projeto de Experimentos* em geral, envolvem uma infinidade de restrições e considerações quanto à distribuição adequada dos pontos experimentais, freqüentemente no espaço q -dimensional, com $q > 3$. Isso pode facilmente tornar sua realização manual não só extremamente demorada como bastante suscetível a erros, devido ao grande número de cálculos envolvidos. Já em 1966, Gorman afirmava que “o algoritmo para localização de vértices extremos (McLean & Anderson, 1966), não só é muito bem-vindo como é uma necessidade prática para projetos para mais de 4 componentes”, evidenciando a dificuldade de alocação manual de pontos no espaço experimental nesses casos.

Segundo Gunst & Mason (1991), a capacidade para o uso de *Projetos de Experimentos* no meio industrial tem sido grandemente aumentada pela crescente disponibilidade de *softwares* destinados à geração e análise de experimentos estatisticamente planejados. Eles afirmam ainda que esta área tem sido de interesse contínuo por parte de pesquisadores e práticos, havendo uma grande expectativa em torno do desenvolvimento de sistemas que possam orientar ativamente o usuário na escolha do Projeto Experimental, tais como sistemas especialistas, ou através do uso de inteligência artificial. Isso possibilitaria uma grande popularização destas técnicas, uma vez que poderiam ser aplicadas por qualquer experimentador munido de um computador e do *software* apropriado.

O auxílio do computador na construção de *Experimentos com Misturas* tem se mostrado necessário particularmente para os casos em que há restrições diversas para as proporções dos componentes, resultando em regiões experimentais irregulares (Snee, 1975). Segundo Cornell (1990c), essa situação é freqüente na prática, sendo que vários algoritmos computacionais tem sido desenvolvidos para:

- Localização de vértices extremos e/ou centróides uni a $(q - 1)$ -dimensionais: Algoritmo de Vértices Extremos de McLean & Anderson (1966), algoritmo XVERT de Snee & Marquardt (1974), CONSIM de Snee (1979), XVERT1 de Nigam et al. (1983), CONVRT & CONAEV de Piepel (1988).
- Seleção de pontos a partir de um conjunto de candidatos: DETMAX, de Mitchell (1974); CADEX, de Kennard & Stone (1969); ACED, de Welch (1982).

Os *softwares* XSTAT e ECHIP são usados para a geração de vértices extremos, e o último, também para a seleção de subconjuntos dos mesmos. Os dois programas são discutidos em detalhe por Nachtsheim (1987), fazendo também parte de um levantamento realizado por Piepel (1997).

2.6.1 *Softwares* capazes de lidar com problemas de Mistura

O estudo apresentado por Piepel (1997) pesquisa todos os *softwares* atualmente disponíveis no mercado internacional que sejam específicos ou apresentem alguma opção referente a *Experimentos com Misturas*. Foram identificados, no total, apenas **quinze** *softwares* com tais características, que foram então analisados em profundidade pelo pesquisador. Alguns pontos que podem ser observados nesse estudo são:

- a maioria dos *softwares* (cerca de 12/15) é capaz de planejar Projetos *Simplex-lattice* e *Simplex-centróide*; no entanto, este número diminui para cerca de 10 quando se trata de gerar projetos para sub-regiões definidas por restrições nas proporções dos componentes;
- os *softwares* que geram pontos em regiões restritas do *simplex* utilizam a abordagem de vértices extremos e centróides de várias dimensões;
- nenhum dos *softwares* utiliza projetos padrão de superfície de resposta com transformação para variáveis de mistura;
- apenas 5 deles são capazes de gerar projetos bloqueados;
- a maioria dos *softwares* (12) ajustam os modelos polinomiais de Scheffé aos dados de mistura, enquanto que apenas 5 oferecem outros tipos de modelos específicos para misturas (modelos de Becker, Cox, para razões entre os componentes, etc.);

- a técnica mais largamente utilizada para a estimação dos parâmetros do modelo de regressão é a dos Mínimos Quadrados; outros métodos, como Mínimos Quadrados ponderados e Regressão *Stepwise* são oferecidos por 5 ou 6 pacotes, enquanto que rotinas de regressão Robusta, Ridge ou Mínimos Quadrados Parciais (ver Montgomery and Peck, 1992) estão incluídas isoladamente apenas em *softwares* mais abrangentes (Statgraphics , Strategy, SAS e RS/Discover).
- apenas 8 dos *softwares* estudados apresentam rotinas de otimização, tanto de uma como de múltiplas respostas. Os algoritmos utilizados para otimização múltipla envolvem: otimizar uma das respostas, mantendo as demais em determinadas faixas; ou otimizar uma função desejabilidade, segundo a metodologia exposta no item 2.5.2.1 dessa dissertação.

2.6.1.1 Softwares *específicos para misturas*

Dentre os pacotes analisados por Piepel (1997), são específicos para Misturas:

- GOSSET
- MIXSOFT - Mixture Experiment Software
- MIXTURE-DESIGN - Statistical Programs

Os dois primeiros pacotes são especializados em *Projetos de Experimentos com Misturas*, não possuindo qualquer rotina de análise. Já o MIXTURE-DESIGN possui rotinas de ajuste e análise somente para os modelos polinomiais de Scheffé; não é capaz, no entanto, de gerar pontos em sub-regiões restritas do *simplex* (assim como o GOSSET).

2.6.1.2 Softwares *com opções para misturas*

Os demais *softwares* incluídos no levantamento são pacotes mais abrangentes, criados com finalidades genéricas dentro da área de *Projeto de Experimentos*, ou mais amplamente, para análises estatísticas em geral. São eles:

- ACED (*Algorithms for the Construction of Experimental Designs*)
- CARD (*Computer Aided Research and Development*)
- COPS (*Computer Optimized Process Solutions*)

- DESIGN-EXPERT
- ECHIP
- JMP e SAS (SAS Institute, Inc.)
- MINITAB
- MODDE
- RS/DISCOVER
- STATGRAPHICS
- STRATEGY

2.7 Métodos para a Otimização Experimental de Misturas

Conforme se pode observar, pela existência dos inúmeros métodos expostos ou referenciados neste trabalho, não há um consenso sobre as técnicas a serem adotadas em cada etapa de um estudo de otimização experimental. Cada pesquisador tende a defender a técnica mais adequada para a sua área de atuação, o que é ressaltado por Cornell (1973) como o “viés pessoal” que cada um possui, baseado em sua experiência particular. Há, dessa forma, a carência de uma definição formal de metodologias genéricas a serem seguidas, constituídas por uma seqüência lógica de técnicas de fácil compreensão e aplicação e coerentes entre si.

2.7.1 Método de Otimização para múltiplas variáveis de resposta

Caten (1995) apresentou, em sua dissertação de mestrado, um *Método de Otimização de Produtos e Processos Medidos por Múltiplas Características de Qualidade*, o qual não é direcionado a problemas de misturas, mas contém importantes linhas gerais a serem seguidas em qualquer estudo de otimização consistente. O método constitui, na verdade, uma metodologia, pois engloba o uso de diversas técnicas no decorrer de suas etapas, com o objetivo final de obter uma otimização empírica do produto ou processo em questão. As etapas fundamentais propostas por Caten (1995) são:

1) **Identificação do problema:** objetivos mensuráveis a serem alcançados, características de qualidade de interesse para o cliente, variáveis de resposta que determinam essas características e (suspeitas de) correlações entre as variáveis de resposta

2) **Planejamento e execução dos experimentos:** definição dos parâmetros do processo que podem afetar as variáveis de resposta; decisão sobre quais parâmetros serão variados ou mantidos constantes; identificação de fatores de ruído e formas de amenizar seu efeito; escolha da faixa de variação adequada para cada fator controlável; planejamento e execução do programa experimental.

3) **Modelagem individual das variáveis de resposta:** ajuste de modelos para a média e variabilidade de cada variável de resposta em função dos fatores controláveis, através de rotinas de regressão linear ou não-linear.

4) **Definição de uma função objetivo:** a fim de estimar um ajuste ótimo global para o sistema, ou seja, conciliando as múltiplas variáveis de resposta, Caten sugere o uso da Função Perda Multivariada proposta por Ribeiro & Elsayed (1995).

5) **Otimização:** consiste em identificar o ajuste dos fatores controláveis que minimiza a Função Perda Multivariada, através de rotinas de programação linear ou não-linear. Como a função incorpora muitos termos, para simplificar a solução analítica do problema, é sugerido o uso alternativo de um *meta-modelo*, ajustado para a perda estimada em diversos pontos.

Apoiada nesse trabalho (Caten, 1995), destinado a Otimizações Experimentais em geral, e a partir de sua experiência prática na aplicação de técnicas para a Otimização de Misturas, Pasa (1996) consolidou um *Método de Otimização Experimental de Formulações*, cujo nome já explicita ser específico para problemas de mistura. O método proposto por Pasa (1996) serviu como ponto de partida para o trabalho desenvolvido nesta dissertação.

2.7.2 Método de Otimização Experimental de Formulações

Apresentado por Pasa (1996) com base no conhecimento teórico e experiência prática próprios e do Grupo de Engenharia de Qualidade do PPGE/UFRRGS, este método propõe-se a ser, ao mesmo tempo, amigável e abrangente, constituindo-se das seguintes etapas:

1) Identificação do objeto e dos objetivos do estudo:

O objeto do estudo é o produto formado a partir de uma mistura, sobre o qual devem ser definidos:

- Características de qualidade de interesse, de acordo com a função do produto

- Variáveis de resposta que representam uma medida dessas características de qualidade e respectivos: alvo, tipo do alvo (nominal, menor-é-melhor, maior-é-melhor) e limites de especificação.
- Componentes da mistura, bem como suas faixas de variação possíveis
- Ponto central de interesse para a investigação
- Influências previamente conhecidas dos componentes nas características de qualidade em estudo.

Já os objetivos são as metas que se pretende alcançar, dados os recursos disponíveis, que podem incluir:

- a obtenção de modelos em função dos fatores controláveis para a estimativa de
 - valores individuais de cada variável de resposta
 - perda de qualidade do produto em unidades monetárias
 - custo de produção
 - perda monetária global (má-qualidade + custos de produção)
- determinação de ajustes ou regiões operacionais que conduzam a
 - mínima perda de qualidade
 - mínimo custo de produção
 - mínimo custo global (má-qualidade + custos de produção)

2) Verificação da adequação do método ao problema em estudo

Após a completa definição do problema a ser estudado, pode-se verificar em que situação ele se enquadra e se o método proposto pode ser aplicado.

3) Transformação para variáveis independentes

Nesta etapa, Pasa adota o procedimento apresentado por Cornell & Good (1970), considerando a existência de uma sub-região elipsoidal de interesse (ver item 2.2.2.3.2 desta dissertação). A partir do ponto central e das faixas de variação estabelecidas para cada componente na Etapa 1, são determinadas a matriz de transformação \mathbf{T} e as conseqüentes

relações lineares $w_i = f(x_1, x_2, \dots, x_q)$ para $1 \leq i \leq (q-1)$ e $x_i = f(w_1, w_2, \dots, w_{q-1})$ para $1 \leq i \leq q$.

4) Projeto de Experimentos com Misturas

É sugerido o uso de Projetos de Experimento padrão, em termos das variáveis independentes w , tais como Projetos Fatoriais 2^k e 3^k completos ou fracionados e Projetos Compostos Centrais. Os níveis mínimo e máximo dos w_i (w_{iMax} e w_{iMin}) a serem empregados no planejamento são determinados através da minimização e da maximização das funções $w_i = f(x_1, x_2, \dots, x_q)$, sujeitas às restrições das faixas de variação dos x_i .

No caso de projetos de 1ª ordem (Fatoriais 2^k ou fracionados), os ± 1 da matriz experimental padrão são substituídos por w_{iMax} e w_{iMin} (Pasa, 1996, demonstra, através de exemplos, que $w_{iMin} = -w_{iMax}$; isso decorre do fato de a região de interesse ser simétrica em relação ao ponto central $\mathbf{w} = \mathbf{0}$). Já quando o projeto é de 2ª ordem, os pontos axiais assumem os valores $\pm\alpha = \pm w_{iMax}$, e os demais pontos, valores proporcionais

5) Execução dos ensaios

É realizada após a transformação inversa da matriz de planejamento, expressa em coordenadas \mathcal{W} , para a matriz experimental, em termos de variáveis de mistura X . Isso se dá através das operações descritas no item 2.2.2.3.2 deste trabalho. Durante a execução, são registrados os valores medidos para as variáveis de resposta em estudo em cada ponto experimental.

6) Modelagem individual das variáveis de resposta

De posse da matriz de planejamento expressa em variáveis independentes \mathcal{W} , e dos respectivos valores medidos para as variáveis de resposta em cada ponto, aplicam-se rotinas de Regressão Múltipla. Os modelos ajustados são modelos polinomiais padrão, uma vez que se está trabalhando com variáveis linearmente independentes, e não com as variáveis de mistura.

7) Otimização individual das variáveis de resposta e transformação inversa

A partir das informações definidas na Etapa 1, sobre os alvos, tipos e limites de especificação para cada variável de resposta, acrescidas dos modelos ajustados na Etapa 6, determinam-se funções “Perda Individual” para a qualidade das variáveis de resposta. Essa

função pode ser obtida através da particularização da Função Perda Multivariada de Ribeiro & Elsayed (1995), aplicando-a individualmente a cada variável de resposta.

As funções Perda individuais podem ser otimizadas por rotinas de regressão linear ou não-linear (conforme o grau de seus termos), e o ajuste ótimo para cada variável de resposta é obtido em função de X , através de **transformações inversas**.

8) Modelagem da perda global de qualidade (considerando todas as variáveis de resposta)

Consiste da determinação de uma Função Perda global, ou seja, que incorpore as contribuições de todas as variáveis de resposta para a perda de qualidade. Pasa utiliza a Função Perda Multivariada proposta por Ribeiro & Elsayed (1995), incluindo ainda uma constante de redução da perda para variáveis do tipo menor-é-melhor ou maior-é-melhor, a qual foi introduzida posteriormente por Ribeiro & Caten (1996).

O procedimento sugerido para a estimativa dos desvios padrão das variáveis W , $\hat{\sigma}_{w_i}$, utilizados na Função Perda Multivariada, é o seu cálculo como uma combinação linear das variabilidades de ajuste dos componentes, σ_{x_i} , segundo o método proposto por Nanni e Ribeiro (1992), uma vez que $w_i = f(x_1, x_2, \dots, x_q)$. Para tanto, Pasa (1996) considera os erros dos ajustes em X **independentes** entre si.

A Função Perda global também é obtida em unidades monetárias, através de sua multiplicação por uma constante k . Essa constante é determinada como o coeficiente angular (em módulo) da reta de interpolação entre o valor de mercado de um produto cuja perda de qualidade é mínima, e o de um cuja perda é máxima. Ou seja:

$$R\$ \hat{Z}(w) = k \cdot \hat{Z}(w) \quad (2.45)$$

onde

$$k = \frac{\text{Valordem mercado}_{Max} - \text{Valordem mercado}_{Min}}{\hat{Z}(w)_{Max} - \hat{Z}(w)_{Min}} \quad (2.46)$$

9) Otimização da qualidade e transformação inversa

Trata-se de encontrar o ajuste das variáveis independentes W que minimiza a Função Perda adimensional obtida na Etapa 8, e o correspondente ajuste em X , através da transformação inversa para o espaço da mistura. A minimização da função pode ser realizada com o uso de rotinas de programação linear ou não-linear.

10) Modelagem dos custos de produção

A partir dos custos associados à inclusão de cada componente na mistura, determina-se um modelo relacionando o custo de produção do produto ao ajuste das variáveis independentes W .

11) Otimização dos custos de produção e transformação inversa

Esta etapa é análoga à Etapa 9, minimizando-se, porém, a função determinada para o custo de produção.

12) Obtenção de uma função de custos globais (considerando os custos devidos à má qualidade e custos de produção)

A Função Custo Global é obtida pela simples adição da expressão para o custo de produção da mistura à expressão da Função Perda em unidades monetárias.

13) Otimização dos custos globais e transformação inversa

Análoga às etapas 9 e 11, para a Função Custo Global.

14) Interpretação dos resultados

Consiste na extração de todas as informações relevantes contidas nos dados e resultados obtidos, com o objetivo de aprofundar os conhecimentos sobre o produto e os efeitos de seus componentes. A fim de simplificar a interpretação dessas informações, Pasa recomenda a apresentação dos resultados sob a forma de gráficos de isovalores e de sensibilidade para as perdas, tanto individuais como global, e custos de produção e global.

15) Conclusões

Formuladas a partir da interpretação dos resultados na Etapa anterior, devem conter as informações pretendidas, definidas na Etapa 1 como objetivos do estudo.

CAPÍTULO 3

3. MODELO PROPOSTO PARA A OTIMIZAÇÃO DE MISTURAS

A partir da identificação das inúmeras técnicas existentes, tanto para o projeto experimental como para a análise e a otimização dos dados de uma mistura, conclui-se pela necessidade de uma padronização de procedimentos que se constitua num guia para pessoas pouco familiarizadas com tais métodos.

A realização de um estudo bem-sucedido envolve: definir os objetivos que se deseja alcançar, identificar o cenário experimental e selecionar corretamente as técnicas mais indicadas a esse cenário (tipo de modelo a ser ajustado, plano experimental que fornecerá os pontos necessários ao ajuste do modelo, etc.). A falta de orientação na escolha das técnicas a serem utilizadas pode facilmente levar um experimentador a obter resultados distorcidos, ou mesmo inconsistentes, reduzindo os benefícios potenciais do *Planejamento e Análise de Experimentos com Misturas*.

O conjunto de rotinas propostas para a Otimização Experimental de Misturas divide-se nas seguintes etapas:

1. Identificação do problema e dos objetivos do estudo
2. Seleção das variáveis a serem incluídas no estudo de otimização
3. Especificação das variáveis selecionadas
4. Escolha do tipo de Projeto Experimental mais adequado
5. Planejamento do Experimento em fatores independentes

6. Transformação da matriz experimental para variáveis de mistura
7. Execução do experimento
8. Modelagem da superfície de resposta
9. Otimização da qualidade da mistura
10. Análise dos resultados e conclusões

3.1 P. Passo - Identificação do problema e dos objetivos do estudo

- Enunciar o problema/motivo que levou à decisão de realizar um estudo do produto;
- Definição do produto em estudo, com as finalidades de:
 - estabelecer os objetivos do estudo, ou seja, definir com clareza o que se deseja alcançar ao final do projeto;
 - realizar um levantamento das informações preexistentes sobre o produto, que serão de grande auxílio na escolha do projeto experimental e modelos de regressão mais adequados;
 - identificar se a metodologia de *Experimentos com Misturas* realmente se aplica à situação, ou se há outras técnicas mais indicadas;

As informações a serem levantadas dividem-se em dois grandes grupos: identificação e especificação das variáveis do sistema; identificação de possíveis relacionamentos entre as mesmas.

3.1.1 Definindo as variáveis do sistema

As variáveis podem ser definidas como: características de qualidade, variáveis de resposta, fatores controláveis e fatores não-controláveis:

As **características de qualidade** são aqueles atributos de um produto, quantificáveis ou não, utilizados como parâmetro para se avaliar a sua qualidade. Deve-se tentar identificar:

- quais dessas características são de maior interesse para o cliente
- os valores das mesmas que são associados a uma boa qualidade (um determinado valor, o máximo ou mínimo possível?)

As **variáveis de resposta** de um sistema são os atributos mensuráveis de um processo ou produto, resultantes do ajuste das condições operacionais do processo. Elas podem ser as próprias características de qualidade ou influírem direta ou indiretamente nas mesmas, sendo portanto utilizadas como medida quantitativa da qualidade do produto. Sua caracterização inclui determinar:

- o valor mais desejável ou valor-alvo, T (*target*);
- o tipo de alvo: nominal (deve ser um valor específico), menor-é-melhor ou maior-é-melhor;
- os limites de especificação: quando o alvo é **nominal**, geralmente a resposta pode variar dentro de uma faixa em torno desse alvo, tendo-se um *limite inferior* de especificação (*LIE*) e um *superior* (*LSE*), dentro dos quais o valor é considerado aceitável. Para variáveis com alvo do tipo **menor-é-melhor**, no entanto, há um *limite superior*, mas não um inferior, pois quanto menor, melhor. De forma análoga, para um alvo **maior-é-melhor**, não é especificado um limite superior; apenas o *limite inferior*;
- a importância relativa I_{Rj} da variável de resposta j , ou da característica de qualidade por ela representada, na avaliação da qualidade global do produto.

Os **fatores** de um processo são todas aquelas condições operacionais variáveis que se acredita influenciarem no valor das variáveis de resposta e, conseqüentemente, nas características de qualidade do produto. Podem ser classificados em **controláveis** e **não-controláveis**. No caso de misturas, os fatores controláveis são as proporções e os tipos dos ingredientes; já os não-controláveis, também chamados *fatores de ruído*, constituem-se em condições ambientais ou do processo cujo ajuste não se pode controlar, e cujo efeito na resposta se deseja minimizar. Quanto aos mesmos, deve-se procurar especificar:

- se existem diferentes fornecedores ou alternativas para um mesmo componente;

- faixas de variação possíveis para a proporção de cada componente ($L_i \leq x_i \leq U_i$), de modo que as variáveis de resposta sejam mensuráveis no produto resultante (muitas vezes, sabe-se que utilizando mais ou menos do que determinada proporção de um componente, não será possível obter um produto a partir daquela mistura, e a medida das variáveis de resposta será então inviável ou sem sentido).

3.1.2 Definindo as possíveis relações entre as variáveis

Após a definição de todas as variáveis de resposta e fatores do sistema, procura-se identificar, com o auxílio dos integrantes da equipe técnica, a existência de possíveis relações e correlações entre as mesmas. Tais informações, baseadas na experiência e *feeling* do corpo técnico, são apenas estimativas, que servirão como guia na escolha do planejamento experimental e modelos mais apropriados. São elas:

- correlações já conhecidas entre as variáveis de resposta, de forma que medindo-se uma, sabe-se qual será o valor da outra;
- intensidade e natureza do efeito de determinados componentes (mantendo os demais fixos entre si) nas variáveis de resposta; pode-se conhecer ou suspeitar, por experiência prática, se o efeito é linear, quadrático, forte ou fraco, etc;
- interações entre os componentes da mistura;
- influência dos fatores de ruído em cada variável de resposta;
- efeito da composição da mistura sobre os fatores de ruído.

3.2 *II*^o. Passo - Seleção das variáveis a serem incluídas no estudo

A seleção é realizada, basicamente, a partir das informações sobre as relações entre as variáveis. O objetivo é restringir o experimento, por motivos econômicos, técnicos ou de tempo, às variáveis de maior interesse, ou mais representativas do sistema. A restrição pode ser feita no número de variáveis de resposta a serem estudadas, no número de componentes da mistura, ou em ambos.

Por exemplo, se duas ou mais variáveis de resposta são fortemente correlacionadas, pode-se estudar apenas uma delas, economizando-se em medidas, testes e esforços de modelagem e

otimização. Pode-se considerar ainda a importância relativa das variáveis, restringindo o estudo àquelas de maior peso na avaliação da qualidade global do produto.

Por outro lado, se um dos componentes da mistura possui pequeno ou nenhum efeito nas variáveis de resposta sendo estudadas, é possível considerar como “a mistura” em questão apenas o conjunto dos demais componentes, mantendo aquele em uma proporção fixa. Essa medida pode proporcionar uma considerável redução no número de pontos experimentais a serem testados, além de posterior simplificação na modelagem e análise dos dados. Para um Projeto Fatorial 2^k , por exemplo, a exclusão de 1 componente pode reduzir o número de pontos à metade.

3.3 IIIª. Passo - Especificação da região de interesse

Este passo é de fundamental importância para a posterior determinação do tipo de projeto experimental a ser adotado e da transformação de variáveis a ser realizada.

Como já foi comentado no item 2.2 da Revisão Bibliográfica, a região de interesse deve abranger o mínimo possível do espaço fatorial, com o objetivo de se obterem modelos mais precisos para a superfície de resposta. Portanto, o espaço de experimentação só compreenderá toda a região *simplex* quando não se possuir qualquer informação a respeito do comportamento da mistura e faixas de composição mais adequadas, consistindo então de um Experimento Exploratório. Neste caso, a modelagem poderá não fornecer uma boa precisão, mas informações preliminares, que permitam a posterior realização de experimentos mais detalhados.

Quando, por outro lado, existem informações sobre as faixas de composição que fornecem as melhores respostas, ou misturas fora dessas faixas são inviáveis, o estudo se concentra em uma sub-região do *simplex*. A região de interesse é então definida por:

- seu ponto central $\mathbf{x}_0 = (x_{01}, x_{02}, \dots, x_{0q})$;
- os limites inferior (L_i) e superior (U_i) para cada componente, de forma que:

$$L_i = x_{oi} - h_i \quad \text{e} \quad U_i = x_{oi} + h_i$$

onde h_i é a semi-amplitude da faixa de variação do componente i

3.4 IVº. Passo - Escolha do tipo de Projeto Experimental mais adequado

Os projetos experimentais sugeridos neste método são os projetos padrão para o ajuste de superfícies de resposta, planejados, para uma mistura de q componentes, em $k = (q - 1)$ coordenadas independentes. Os motivos, já expostos no Capítulo 2 deste trabalho, compreendem:

- a melhor distribuição dos pontos experimentais na região de interesse;
- o uso dos critérios de ortogonalidade e rotabilidade na geração dos pontos experimentais, otimizando a posterior modelagem e análise dos resultados;
- a possibilidade de melhores estimativas para os coeficientes dos modelos de regressão, tanto pela distribuição uniforme dos dados como pelo uso de variáveis regressoras não-correlacionadas;
- a possibilidade de blocagem ortogonal, a fim de separar os efeitos dos componentes e de certos fatores de ruído.

Dentre os projetos padrão, recomendam-se:

Para a análise de efeitos lineares (de 1ª ordem): Projetos Fatoriais completos ou fracionados (2^k ou 2^{k-f}), os quais já se viu serem ortogonais e blocáveis.

Para a análise de efeitos quadráticos (de 2ª ordem): Projetos Compostos Centrais ou Projetos Equirradiais (um Hexágono, por exemplo, pode ser usado para um projeto com 2 fatores independentes - ou seja, correspondente a uma mistura de 3 componentes);

A escolha do projeto específico a ser realizado, por exemplo, entre um Fatorial 2^3 ou um PCC formado por um Cubo + 2 estrelas em 3 blocos, depende:

- do número de componentes da mistura;
- do tipo de efeitos que se deseja investigar (lineares, quadráticos, etc.), dos componentes da mistura sobre as variáveis de resposta em estudo, conforme as possíveis relações levantadas no Iº Passo;
- do número total de ensaios que se deseja ou que é possível realizar, seja por restrições econômicas ou de tempo;

- do número de ensaios que se tem condições de realizar em condições homogêneas, ou seja, dentro de um mesmo bloco; isso definirá a necessidade de um projeto ser dividido em blocos ou não, além do tamanho máximo possível para cada bloco.

3.5 Vº. Passo - Planejamento do experimento em fatores independentes

O Planejamento é realizado em termos das variáveis independentes W , de acordo com a notação padrão para Projetos Fatoriais e PCC's, sendo posteriormente transformado para os respectivos ajustes expressos como composição da mistura. A matriz experimental em níveis codificados terá o mesmo aspecto de uma matriz para um experimento comum, que não envolva mistura, ou seja:

- para Projetos Fatoriais 2^k , os níveis codificados das variáveis W serão expressos em ± 1 's;
- para PCC's, os pontos do cubo assumirão os níveis ± 1 , e os axiais, $\pm \alpha$ ou 0.

Ao contrário do sugerido por Pasa (1996), os níveis das variáveis independentes não são reescalados para a faixa de variação possível de cada eixo W dentro do espaço experimental definido pelas restrições da mistura. Os objetivos deste procedimento são dois:

- fazer com que o usuário do método sinta a maior familiaridade possível com a matriz codificada, seja pela experiência prévia em *Projetos de Experimentos* para fatores independentes, ou pela maior facilidade de interpretação dos níveis padronizados em ± 1 e $\pm \alpha$;
- eliminar as operações de maximização e minimização das funções $w_i = f(x_1, x_2, \dots, x_q)$ sujeitas às restrições $x_i \geq L_i$ e $x_i \leq U_i$, a fim de simplificar e agilizar o método. Note-se que, até este momento, não houve a necessidade de se definirem as funções $w_i = f(x_1, x_2, \dots, x_q)$ e $x_i = f(w_1, w_2, \dots, w_{q-1})$ nem a matriz de transformação ortogonal.

A fim de ilustrar o procedimento adotado, tomar-se-á como exemplo o mesmo problema apresentado por Pasa (1996) na demonstração de seu método: a mistura em questão contém 3 componentes, e o projeto escolhido foi um Projeto Composto Central de 2ª ordem, para $k = 2$ fatores. A matriz experimental em variáveis independentes é formada por:

- $2^2 = 4$ pontos fatoriais
- $2 \times 2 = 4$ pontos axiais
- 1 ponto central

como a parte fatorial possui tamanho $M = 4$, para o projeto ser rotável, $\alpha = 4^{1/4} \cong 1,41$ (Eq. 2.23).

Tabela 3-1: - Matriz experimental de um Projeto Composto *rotável* para 2 fatores independentes.

Ensaio	w ₁	w ₂
1	-1	1
2	1	1
3	-1	-1
4	1	-1
5	-1,41	0
6	1,41	0
7	0	1,41
8	0	-1,41
9	0	0

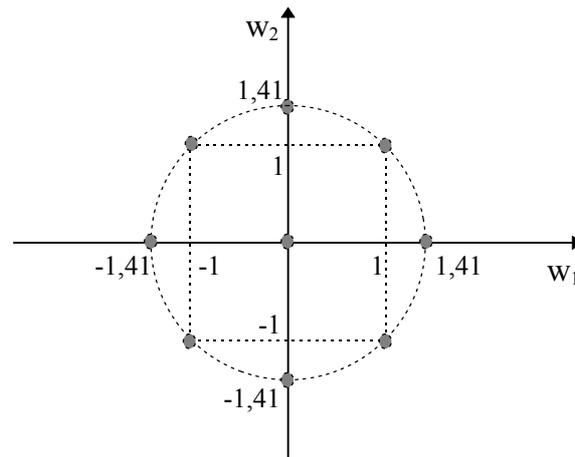


Figura 3-1: Distribuição espacial dos pontos de um Projeto Composto *rotável* para 2 fatores independentes.

3.6 VP. Transformação da matriz experimental para variáveis de mistura

Nesta etapa, é introduzida uma modificação aos métodos propostos até então. Cornell (1981) sugere o cálculo do raio ρ desejado para o projeto, e de um fator multiplicador c , em função desse raio (Eqs. 2.27 a 2.32), que deverá multiplicar toda a matriz experimental padrão (Tabela 3-1). Pasa (1996), por sua vez, modifica independentemente os níveis de cada fator w_i na matriz experimental, segundo a faixa de variação desse eixo compreendida na região de interesse. Este procedimento, no entanto, provoca uma distorção no projeto; ao adaptá-lo aos limites da região de interesse, faz com que os pontos deixem de ser equidistantes do centro, tirando portanto a rotabilidade do experimento.

A transformação proposta por Cornell (1981) consiste de duas etapas (tanto na transformação do espaço da mistura para o independente como na inversa):

Transformação direta: Partindo-se da matriz experimental em termos da composição da mistura, obtém-se a matriz intermediária \mathbf{V} , através de:

$$\mathbf{V} = (\mathbf{X} - \mathbf{X}_0) \cdot \mathbf{H}^{-1} \quad (\text{forma matricial da Eq. 2.12})$$

onde \mathbf{X}_0 é a matriz formada por N vetores $\mathbf{x}_0 = (x_{o1}, x_{o2}, \dots, x_{oq})$;

\mathbf{H}^{-1} é a matriz diagonal cujos elementos diagonais são $1/h_i$.

e, a seguir, a matriz \mathbf{W} , através da transformação ortogonal $\mathbf{V} \cdot \mathbf{T} = [\mathbf{W} \mid \mathbf{0}]$ (Eq. 2.14).

Transformação inversa: A partir da matriz \mathbf{W} , a matriz intermediária \mathbf{V} é obtida por:

$$\mathbf{V} = [\mathbf{W} \mid \mathbf{0}] \cdot \mathbf{T}' \quad \text{ou} \quad \mathbf{V} = \mathbf{W} \cdot \mathbf{T}'$$

e a matriz \mathbf{X} , numa segunda etapa, através de $\mathbf{X} = \mathbf{V} \cdot \mathbf{H} + \mathbf{X}_0$ (Eq. 2.17).

No entanto, ao se realizar a transformação direta conforme descrito acima, a matriz \mathbf{W} obtida não apresenta os níveis de um projeto padrão ($\pm 1, \pm \alpha$), e sim, níveis específicos, resultantes das faixas de variação dos componentes x_i . Da mesma forma, na transformação inversa, a matriz \mathbf{X} é obtida a partir de uma matriz \mathbf{W} específica para a região de interesse em questão. O problema consiste em: como usar uma matriz \mathbf{W} padrão, ou seja em níveis codificados tradicionais, e obter, por transformação inversa, uma matriz \mathbf{X} cujos pontos estejam contidos na região experimental desejada?

O procedimento proposto neste método baseia-se na seguinte consideração: a matriz intermediária \mathbf{V} representa, por definição, o espaço experimental restrito pelas faixas de variação dos componentes, reescalado para a faixa -1 a +1. Como o uso de uma matriz \mathbf{W} arbitrária não garante que os níveis da matriz intermediária variem entre -1 e +1, os pontos resultantes em \mathbf{X} podem apresentar-se fora da região de interesse, ou, por outro lado, muito próximos ao centro da região, e longe de seus limites. Para que o projeto se ajuste perfeitamente à região de interesse, sem distorcer as posições relativas entre os pontos, propõe-se:

1) Realizar a primeira etapa da transformação, a partir da matriz experimental de um projeto padrão em coordenadas \mathbf{W} , obtendo-se uma matriz \mathbf{V} qualquer;

2) Dividir toda a matriz \mathbf{V} pelo seu maior elemento em valor absoluto, ou seja:

$$\mathbf{V}_{\text{ajust.}} = \frac{1}{\max |v_{ui}|} \cdot \mathbf{V} \quad (3.1)$$

3) Realizar a segunda etapa da transformação proposta por Cornell, utilizando, porém, a matriz $\mathbf{V}_{\text{ajust.}}$ em vez de \mathbf{V} , obtendo-se a matriz experimental \mathbf{X} , em termos da composição da mistura, com todos os pontos dentro da região de interesse.

Retomando o exemplo iniciado no item 3.5.1 deste trabalho, deseja-se então obter a matriz experimental em variáveis X , correspondente à matriz codificada apresentada na Tabela 3-1, para uma mistura de 3 componentes. Para realizar a transformação inversa, utiliza-se a matriz de transformação proposta por Cornell (1981), em função das semi-amplitudes de variação dos componentes da mistura, os h_i . Ainda segundo o exemplo de Pasa (1996), as faixas de variação para os componentes são estipuladas em:

$$9,4 \leq x_1 \leq 14,2$$

$$4,0 \leq x_2 \leq 6,4$$

$$80,0 \leq x_3 \leq 86,0$$

A partir dos limites para cada componente, podem-se calcular o ponto central da região e as semi-amplitudes das faixas de variação através de:

$$x_{oi} = \frac{U_i + L_i}{2} \quad \text{e} \quad h_i = \frac{U_i - L_i}{2},$$

obtendo-se:

Tabela 3-2: Ponto central e semi-amplitudes da região de interesse

Componente	Média x_{oi}	Semi-amplitude h_i
1	11,8	2,4
2	5,2	1,2
3	83,0	3,0

A matriz de transformação inversa, \mathbf{T}'_1 , resulta em:

$$\mathbf{T}'_1 = \begin{bmatrix} -0,44721 & 0,89442 & 0 \\ -0,66667 & -0,33333 & 0,66667 \end{bmatrix}$$

e $\mathbf{W} \cdot \mathbf{T}'_1$ fornece a matriz intermediária \mathbf{V} , segundo a Tabela 3-2 a seguir:

Tabela 3-3: Matriz V de variáveis intermediárias

Ensaio	V ₁	V ₂	V ₃
1	-0,21946	-1,22775	0,66667
2	-1,11388	0,56109	0,66667
3	1,11388	-0,56109	-0,66667
4	0,21946	1,22775	-0,66667
5	0,63057	-1,26113	0
6	-0,63057	1,26113	0
7	-0,94000	-0,47000	0,94000
8	0,94000	0,47000	-0,94000
9	0	0	0

Como se pode verificar, o maior valor absoluto da matriz intermediária é 1,26113. Então, a matriz $V_{ajust.}$ é dada pela divisão de cada elemento v_{ii} por esse valor, obtendo-se:

Tabela 3-4: Matriz $V_{ajust.}$, cujos níveis variam entre -1 e +1.

Ensaio	V ₁	V ₂	V ₃
1	-0,17402	-0,97353	0,52863
2	-0,88324	0,44491	0,52863
3	0,88324	-0,44491	-0,52863
4	0,17402	0,97353	-0,52863
5	0,50000	-1,00000	0,00000
6	-0,50000	1,00000	0,00000
7	-0,74536	-0,37268	0,74536
8	0,74536	0,37268	-0,74536
9	0,00000	0,00000	0,00000

A matriz experimental expressa em proporções da mistura pode então ser calculada, resultando em:

Tabela 3-5: Matriz experimental expressa em variáveis de mistura X .

Ensaio	X_1	X_2	X_3
1	11,38	4,03	84,59
2	9,68	5,73	84,59
3	13,92	4,67	81,41
4	12,22	6,37	81,41
5	13,00	4,00	83,00
6	10,60	6,40	83,00
7	10,01	4,75	85,24
8	13,59	5,65	80,76
9	11,80	5,20	83,00

A disposição dos pontos na região de interesse do espaço *simplex* é ilustrada na Figura 3-2 a seguir.

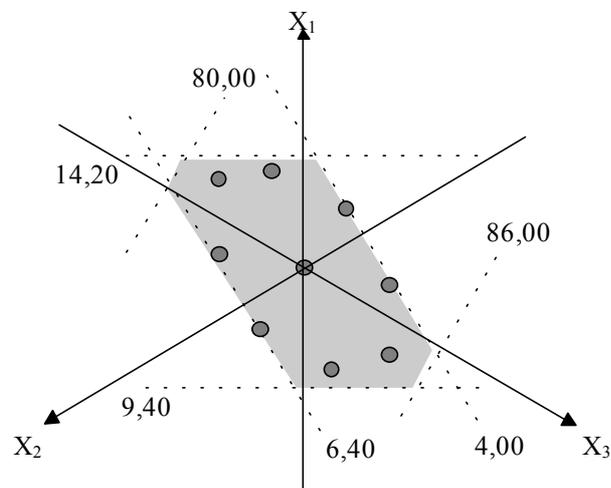


Figura 3-2: Disposição dos pontos experimentais no espaço da mistura

3.7 VII. Passo - Execução do Experimento

Os ensaios devem ser executados de acordo com a matriz experimental obtida em termos das proporções dos componentes da mistura (lembrando de seguir procedimentos de

aleatorização da ordem dos ensaios). Em cada ensaio, são registrados os valores assumidos pelas variáveis de resposta escolhidas no IIº. Passo; dessa forma, ao final do experimento, tem-se uma planilha com os dados correspondentes a cada tratamento (valor médio para cada variável de resposta e eventual variabilidade).

3.8 VIIIº. Passo - Modelagem da resposta em fatores independentes

Através da Análise de Regressão Múltipla, obtêm-se modelos matemáticos para a estimativa da média e variância de cada variável de resposta de interesse, em função das variáveis independentes W .

Os modelos passíveis de serem ajustados correspondem à ordem do experimento rodado:

- Projetos Fatoriais sem pontos centrais permitem apenas o ajuste de modelos lineares ou com termos de interações, pois as medidas são realizadas em apenas dois níveis de cada fator (-1 ou +1);
- já os projetos com pontos centrais, permitem o teste da falta de ajuste do modelo linear;
- modelos quadráticos ou cúbicos podem ser ajustados a PCC's, pela existência de medidas em mais de três níveis ($-\alpha$, -1, 0, +1 e $+\alpha$); os últimos, no entanto, só são recomendados em situações especiais, ou seja, quando há evidências práticas e/ou teóricas de que o comportamento da função seja dessa forma.

3.8.1 Construção de modelos para a média

Após a seleção dos termos a serem incluídos no modelo, realiza-se o ajuste de seus coeficientes através de Mínimos Quadrados. A seguir, algumas estatísticas devem ser calculadas, a fim de se verificar a adequação do modelo ajustado, tais como:

- significância dos coeficientes estimados
- significância do ajuste
- estatísticas R^2 e R_A^2 (R^2 ajustado) para o modelo

Recomenda-se também plotar o gráfico de resíduos em função da resposta ajustada, com o objetivo de confirmar a sua aleatoriedade ou verificar uma eventual falta de ajuste. Com base em tais critérios, pode-se definir um novo modelo, eliminando termos não-significativos ou adicionando outros, ou adotar o modelo, se considerado satisfatório.

3.8.2 Construção de modelos para a variância

Os modelos para a variância podem ser ajustados antes ou depois da seleção dos modelos representativos para a média de cada variável de resposta, conforme a estatística que se vá utilizar. A escolha entre a variância amostral, ou seja, a variância entre todos os resultados obtidos para o mesmo ajuste; e o resíduo quadrático médio das observações para um mesmo ajuste, com relação à estimativa gerada pelo modelo para a média depende de dois fatores:

- a) qualidade do modelo ajustado para a média;
- b) número de replicações do experimento.

Quanto maior a significância do modelo para a média e menor o número de replicações, mais indicado é o uso dos resíduos quadráticos como estimadores da variância; já a variância amostral é recomendada quando se tem um número razoável de replicações e/ou quando o modelo obtido para a média não é significativo o suficiente para gerar resíduos confiáveis.

Adotou-se o ajuste do modelo à estatística transformada, conforme sugerido por Barbetta (?):

$$\log(S_i^2 + c.\bar{S}^2) \text{ ou } \log(r_i^2 + c.\bar{r}^2),$$

onde:

S_i^2 é a variância entre todas as observações realizadas no ajuste i (variância amostral);

r_i^2 é a média dos resíduos quadráticos de todas as observações realizadas no ajuste i em relação ao valor predito pelo modelo para a média para esse ajuste;

\bar{S}^2 é a média entre todas as variâncias amostrais S_i^2 ;

\bar{r}^2 é a média entre todos os r_i^2 ;

c é uma constante empírica que deve fornecer as melhores estimativas possíveis

para os parâmetros do modelo a ser ajustado. Conforme Barbetta et al (1998), 0,02 é um valor adequado para experimentos com até 4 replicações.

Para verificar a adequação dos modelos obtidos para a variância da variável de resposta, são indicados os mesmos testes aplicados aos modelos para médias.

3.9 IXº. Passo - Otimização da qualidade da mistura

Tanto a qualidade global da mistura como a relativa a cada variável de resposta são avaliadas através da Função Perda Multivariada proposta por Ribeiro e Elsayed (1993), acrescida do fator de redução a_j desenvolvido por Ribeiro e Caten (1996). Esta é a única das abordagens encontradas na literatura (ver item 2.5.2 desta dissertação) que, além de garantir valores consistentes quanto à não-negatividade, engloba três aspectos essenciais para a perda de qualidade de um produto ou processo:

- desvio de cada variável de resposta em relação ao seu alvo;
- variabilidade de cada variável de resposta (devida a ruídos) em função do ajuste dos fatores controláveis;
- variabilidade de cada variável de resposta devida a flutuações nos fatores controláveis (sensibilidade).

Conforme descrita no item 2.5.2.2.1, a Função Perda utilizada é da forma:

$$Z(w) = \sum_{j=1}^J a_j p_j \left[\left(\hat{y}_j(w) - T_j \right)^2 + \hat{\sigma}_{Y_j}^2(w) + \sum_{i=1}^K \sigma_{w_i}^2 \left(\frac{\partial \hat{y}_j(w)}{\partial w_i} \right)^2 \right] \quad (3.2)$$

onde a_j é um fator de correção da perda para valores da resposta próximos aos limites de especificação, levando em conta o tipo da variável de resposta (maior, menor ou nominal-é-melhor) e sua variabilidade;

p_j é um fator de ponderação para a contribuição de cada variável de resposta, que leva em conta suas unidades, faixa de variação e importância relativa;

$\hat{y}_j(w)$ é o modelo ajustado para a estimativa da média da variável de resposta y_j em

função dos fatores controláveis w_i ;

T_j é o valor-alvo para a variável y_j ;

$\hat{\sigma}_{y_j}^2(w)$ é o modelo ajustado para a estimativa do desvio padrão de y_j em função de w ;

$\hat{\sigma}_{w_i}$ é a estimativa do desvio padrão do ajuste do fator controlável w_i ;

$\frac{\partial \hat{y}_j(w)}{\partial w_i}$ é a derivada parcial do modelo para a estimativa da média de y_j em relação ao

fator controlável w_i .

3.9.1 Construção da Função Perda Multivariada

A Função Perda pode ser obtida a partir dos diversos dados e informações levantados nas etapas anteriores. Alguns constituem-se diretamente em termos da função; outros permitem o cálculo de fatores multiplicativos e demais parcelas. Os dados necessários são:

- o alvo (T_j), o tipo (maior, menor ou nominal-é-melhor), os limites de especificação (LIE_j e LSE_j) e a importância relativa I_{Rj} de cada variável de resposta;
- os modelos ajustados para a média e a variância de cada variável de resposta ($\hat{y}_j(w)$ e $\hat{\sigma}_{y_j}^2(w)$), em função dos fatores independentes W ;
- a estimativa do desvio padrão do ajuste para a proporção de cada componente ($\hat{\sigma}_{x_i}$);
- a média \bar{y}_j e o desvio padrão σ_{y_j} para os dados experimentais sobre a região de interesse.

De posse dessas informações, podem-se calcular os termos restantes, quais sejam: os fatores multiplicativos a_j e p_j , a estimativa do desvio padrão do ajuste, $\hat{\sigma}_{w_i}$, para as variáveis

transformadas W , e as derivadas parciais $\frac{\partial \hat{y}_j(w)}{\partial w_i}$.

3.9.2 Cálculo do fator de redução a_j

A Função Perda Multivariada, tal como apresentada por Ribeiro & Elsayed (1995), considera as variáveis de resposta como aleatórias e normalmente distribuídas, com média \bar{y}_j e desvio padrão $\hat{\sigma}_{y_j}$; sua variabilidade em qualquer ponto contribui para a perda de qualidade.

Na verdade, para variáveis do tipo nominal-é-melhor, toda a região sobre a sua curva de distribuição Normal contribui para a perda, uma vez que qualquer desvio, positivo ou negativo, implica um afastamento indesejável do alvo. Já para variáveis do tipo menor-é-melhor, apenas a porção da curva acima do alvo contribui para a perda, pois, abaixo do alvo, a mesma é considerada zero; da mesma forma, para variáveis maior-é-melhor, apenas a área abaixo do alvo representa perda de qualidade.

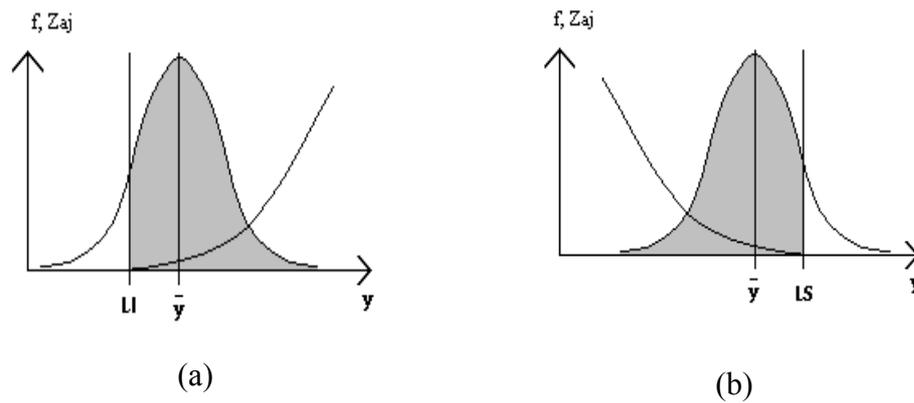


Figura 3-3: Região onde há perda de qualidade: (a) para variáveis do tipo maior-é-melhor e (b) para variáveis do tipo menor-é-melhor.

A fim de corrigir a perda para variáveis do tipo menor-é-melhor e maior-é-melhor, nos casos em que sua distribuição se encontra parcial ou totalmente abaixo ou acima do alvo, Ribeiro & Caten (1996) desenvolveram um fator de redução a_j (para a variável de resposta j), calculado da seguinte forma:

$$d_j = \begin{cases} \frac{(T_j - \bar{y}_j)}{\hat{\sigma}_{Y_j}} & \text{para Menor - e' - melhor} \\ \frac{(\bar{y}_j - T_j)}{\hat{\sigma}_{Y_j}} & \text{para Maior - e' - melhor} \end{cases} \quad (3.3)$$

e

$$a_j = \begin{cases} 1, & \text{se } d_j < -2 \\ \exp\left(-\left(\frac{d_j + 2,1}{2,2868}\right)^{4,6}\right), & \text{se } -2 < d_j < 2 \\ 0, & \text{se } d_j > 2 \end{cases} \quad (3.4)$$

onde d_j é a distância de \bar{y}_j ao seu valor-alvo T_j , em número de desvios-padrão.

Note-se que, para uma variável do tipo menor-é-melhor cujo valor médio \bar{y}_j se encontre mais do que 2 desvios-padrão abaixo do alvo, $d_j = 2$ e $a_j = 0$. Como a distribuição dos valores y_j situa-se praticamente toda (95%) abaixo do alvo, a perda de qualidade resultante é nula.

3.9.3 Cálculo dos fatores de ponderação p_j

O fator p_j , como já mencionado, possui duas funções: padronizar os intervalos de variação de todas as variáveis de resposta, eliminando o efeito de escala das respectivas unidades de medida e ordem de grandeza; e ponderar as parcelas de perda correspondentes à variável y_j pela sua importância relativa na avaliação da qualidade total da mistura. Dessa forma, o coeficiente p_j engloba duas parcelas, sendo obtido por:

$$p_j = f_j \times I_{Rj} \quad (3.5)$$

onde I_{Rj} é a importância relativa da variável de resposta j ;

f_j é um fator de escala calculado com base nos limites de especificação, alvo e tipo de cada variável de resposta; as expressões específicas para cada tipo de variável são apresentadas na Tabela 3.6.

Tabela 3-6 - Fórmulas para o cálculo do fator de escala f_j , de acordo com o tipo da variável de resposta.

Tipo da Variável de Resposta	Expressão para o Fator de Escala f_j
Maior-é-melhor	$f_j = \frac{1}{(T_j - LIE_j)^2}$
Menor-é-melhor	$f_j = \frac{1}{(LSE_j - T_j)^2}$
Nominal Simétrica $(LSE_j - T_j) = (T_j - LIE_j)$	$f_j = \frac{1}{(T_j - LIE_j)^2} = \frac{1}{(LSE_j - T_j)^2}$
Nominal Assimétrica $(LSE_j - T_j) \neq (T_j - LIE_j)$	$f_j = \frac{1}{(T_j - LIE_j)^2}$, para $\hat{y}_j(w) \leq T_j$ $f_j = \frac{1}{(LSE_j - T_j)^2}$, para $\hat{y}_j(w) \geq T_j$

3.9.4 Estimativa do desvio padrão do ajuste para as variáveis w_i ($\hat{\sigma}_{w_i}$)

Uma vez que os fatores independentes w_i expressam a composição da mistura em outro sistema de coordenadas, a variabilidade da proporção de qualquer componente da mistura em um dado ajuste também pode ser expresso como uma variabilidade no espaço transformado W .

O cálculo da estimativa do desvio padrão para cada variável independente w_i baseia-se no fato de estas serem funções lineares das variáveis x_i . De acordo com Nanni e Ribeiro (1992), se:

$$w_i = c_0 + \sum_{j=1}^q c_j x_j \quad (3.6)$$

então:

$$Var(w_i) = \sum_{j=1}^q (c_j^2 \hat{\sigma}_j^2) + 2 \sum_{j < k}^q [c_j c_k Cov(x_j, x_k)] \quad (3.7)$$

onde c_0 e c_j são os coeficientes resultantes das operações de transformação ortogonal.

Esta expressão contempla tanto o caso em que as variáveis x_i apresentam variabilidades correlacionadas, como situações em que suas variabilidades sejam independentes entre si. Neste caso, $Cov(x_j, x_k) = 0$, e a Eq. (3.5) reduz-se a:

$$Var(w_i) = \sum_{j=1}^q (c_j^2 \hat{\sigma}_j^2) \quad (3.8)$$

3.9.4.1 Cálculo dos coeficientes c_0 e c_j

Relembrando o processo de transformação ortogonal utilizado neste método e descrito no *VF Passo*, é possível obterem-se expressões analíticas para os coeficientes c_0 e c_j 's da expressão $w_i = f(x_1, x_2, \dots, x_q)$. O experimento em coordenadas de mistura é determinado através das operações $\mathbf{V} = \mathbf{W} \cdot \mathbf{T}'_1$ e $\mathbf{X} = \frac{1}{\text{Max}|v_{ui}|} \mathbf{V} \cdot \mathbf{H} + \mathbf{X}_0$. Logo, para se obterem as variáveis

w_i em função de x_i , deve-se proceder aos seguintes passos:

$$1) v_i = \text{Max}|v_{ui}| \frac{(x_i - x_{oi})}{h_i} \quad (3.9)$$

$$2) w_i = \sum_{j=1}^q v_j \cdot t_{ji} \quad (3.10)$$

Dessa forma,

$$w_i = \text{Max}|v_{ui}| \cdot \sum_{j=1}^q \frac{t_{ji}}{h_j} (x_j - x_{oj}) \quad \text{ou}$$

$$w_i = -\text{Max}|v_{ui}| \cdot \sum_{j=1}^q \left(\frac{t_{ji} \cdot x_{oj}}{h_j} \right) + \sum_{j=1}^q \left(\frac{\text{Max}|v_{ui}| \cdot t_{ji}}{h_j} \cdot x_j \right)$$

Os coeficientes da função $w_i = c_0 + \sum_{j=1}^q c_j x_j$ são, portanto, dados por:

$$c_0 = -\text{Max}|v_{ui}| \cdot \sum_{j=1}^q \left(\frac{t_{ji} \cdot x_{oj}}{h_j} \right) \quad (3.11)$$

$$c_j = \frac{\text{Max} |v_{ui}| \cdot t_{ji}}{h_j} \quad (3.12)$$

3.9.4.2 Determinação da covariância entre x_i e x_j $Cov(x_i, x_j)$

Pasa (1996) considera os desvios das proporções dos componentes independentes entre si, argumentando que um erro na dosagem de um componente não implica um erro nas dosagens dos demais. Essa suposição está correta, do ponto de vista das quantidades absolutas dos componentes; estas, muitas vezes, são dosadas por equipamentos (balanças, válvulas, etc.) independentes, de modo que suas precisões e erros de medida não podem ser correlacionados.

A variabilidade de ajuste considerada no presente trabalho, no entanto, não se refere à quantidade absoluta dos componentes na mistura, mas à sua proporção. Neste caso, pode-se afirmar que tais variabilidades são *intimamente* correlacionadas, uma vez que um erro na proporção de um componente (pela própria restrição de mistura, $\sum_{i=1}^q x_i = 1$) obrigatoriamente afetará a proporção de pelo menos um dos demais. Considerando ainda que os erros nas dosagens são aleatórios e devidos a fatores não-controláveis, não se poderá forçar a proporção de determinado componente a se manter inalterada frente à variabilidade de outro(s); assim, o desvio de um componente afetará indiscriminadamente todos os demais, e o termo correspondente à covariância entre x_i e x_j não pode ser desprezado.

Por exemplo, retomando-se o experimento utilizado como ilustração nas etapas anteriores, deseja-se rodar o 5º ensaio, onde: $x_1 = 13,00\%$; $x_2 = 4,00\%$ e $x_3 = 83,00\%$. Se a quantidade do componente x_3 sofrer uma variação $\Delta m_3 = 1\%$ (1 unidade do componente 3 em excesso para 100 unidades de mistura), isso provocará um aumento na quantidade total da mistura. O novo total da mistura será então de 101 unidades de medida, e as proporções dos componentes tornar-se-ão:

$$x_3 = \frac{(83 + 1) \cdot 100}{101} \cong 83,17\% \quad ,$$

$$x_1 = \frac{13 \cdot 100}{101} \cong 12,87\% \quad \text{e}$$

$$x_2 = \frac{4 \cdot 100}{101} \cong 3,96\%$$

Como se pode observar, para um aumento absoluto de 0,17 na percentagem do componente 3, os demais dividiram um decréscimo de 0,17, de forma proporcional às suas percentagens na “sub-mistura” ($x_1 + x_2$). Ou seja,

$$\Delta x_1 = -\Delta x_3 \frac{x_1}{100 - x_3} \quad \text{e} \quad (3.13)$$

$$\Delta x_2 = -\Delta x_3 \frac{x_2}{100 - x_3} . \quad (3.14)$$

Verifica-se, deste modo, que o erro na proporção de cada componente depende de sua proporção pretendida na mistura, da proporção do componente cuja quantidade sofreu um desvio e do tamanho desse desvio. Considerando ainda que variações simultâneas podem ocorrer nas quantidades dos componentes, a determinação analítica da correlação entre os respectivos desvios torna-se bastante complexa.

Deve-se também ter em mente que a correlação entre as variabilidades das proporções e, conseqüentemente, a covariância, variam de ajuste para ajuste, pois:

$$\text{Cov}(x_j, x_k) = \text{Correl}(x_j, x_k) \cdot \hat{\sigma}_j \cdot \hat{\sigma}_k \quad (3.15)$$

Contudo, deseja-se determinar a covariância para os pares de componentes sobre *toda a região de experimentação*, e não puntualmente. Assim, propõe-se o cálculo das covariâncias a partir da própria matriz experimental em termos de variáveis de mistura:

- utiliza-se qualquer rotina ou pacote computacional que forneça matrizes de correlações entre grupos de dados (Ex.: Statgraphics, Microsoft Excel - menu *Ferramentas - Analisar Dados...* -, citando apenas os mais “amigáveis”) para determinar as $\text{Correl}(x_j, x_k)$.
- De posse das correlações e dos desvios-padrão de cada componente com relação ao ajuste pretendido, calculam-se as covariâncias através da Eq.(3.15)

3.9.5 Determinação das derivadas parciais $\frac{\partial \hat{y}_j(w)}{\partial w_i}$

As derivadas parciais do modelo para a média da variável de resposta em relação aos fatores controláveis w_i podem ser determinadas analítica ou numericamente. A determinação analítica implica encontrar a expressão para a derivada parcial em relação a cada fator controlável,

calculando-a nos ajustes de interesse. Já no cálculo numérico, utiliza-se o próprio modelo para a média, calculando-se as derivadas parciais puntualmente, através do método de diferenças finitas:

$$\frac{\hat{\partial} \hat{y}_j(w)}{\hat{\partial} w_i} = \frac{\hat{y}(w_i + \Delta w_i) - \hat{y}(w_i - \Delta w_i)}{2 \Delta w_i} \quad (3.16)$$

Na equação (3.16), as estimativas da média são realizadas para um determinado ajuste dos demais fatores controláveis, variando-se apenas o fator w_i . O método numérico foi adotado neste trabalho, por eliminar a necessidade de determinação da expressão analítica da derivada parcial, o que, computacionalmente, é mais vantajoso.

Após a determinação de todos os seus termos, a Função Perda Multivariada pode ter seu mínimo localizado através de qualquer rotina de otimização (programação não-linear), tendo como restrições os valores mínimo e máximo de cada variável w_i , de acordo com o projeto experimental realizado. Para Projetos Fatoriais, cada w_i varia entre -1 e +1, enquanto que nos PCC's, seus valores extremos são $\pm\alpha$.

3.9.6 Otimização individual das variáveis de resposta

A otimização individual de uma variável de resposta pode ser realizada, utilizando-se apenas as parcelas correspondente à mesma na Função Perda, ou seja, atribuindo-se peso zero às demais variáveis de resposta.

Deve-se ter sempre em mente que o ajuste ótimo assim encontrado é aquele que fornece a menor perda para a variável de resposta considerada, podendo no entanto ser um ajuste péssimo para as demais.

3.9.7 Otimização global da qualidade da mistura

O ajuste ótimo global dos fatores controláveis para a qualidade da mistura é obtido considerando-se simultaneamente todas as variáveis de resposta na Função de Perda, ponderadas pela sua importância relativa.

CAPÍTULO 4

4. IMPLEMENTAÇÃO COMPUTACIONAL DO MÉTODO (OPTIMIX)

Como já discutido no decorrer deste trabalho, além de serem muito diversas as técnicas existentes para o Projeto, Análise e Otimização de Misturas, são poucos os *softwares* disponíveis no mercado que apresentam tais opções. Este último fato, principalmente, desfavorece a aplicação de *Experimentos com Mistura*, uma vez que, mesmo tendo um guia claro de procedimentos a serem seguidos, o usuário do método se vê obrigado a realizar uma seqüência de cálculos extensos, com os quais pode não estar familiarizado, ou lançar mão de diferentes pacotes computacionais a cada etapa (Planejamento do Experimento, Análise de Regressão e Otimização).

Dentro do Grupo de Engenharia da Qualidade do PPGE/UFRRGS, já se haviam implementado computacionalmente algumas das rotinas incluídas neste método, largamente usadas em Planejamento de Experimentos em geral. Porém, os módulos foram originalmente desenvolvidos de forma independente, havendo a necessidade de concatená-los, integrando-os a um todo. Além disso, os mesmos foram criados em linguagem QuickBasic, rodando em ambiente DOS, sem recursos gráficos atraentes ao usuário nem a facilidade de operação do ambiente Windows.

Os módulos desenvolvidos em QuickBasic cujos códigos serviram de base a rotinas do OptiMix são os seguintes:

- GERADE (Ribeiro, 1996) - geração de projetos padrão de superfície de resposta (Fatoriais 2^k , completos ou fracionados, e Projetos Compostos Centrais de 2ª ordem);
- BUSCA (Ribeiro, 1995) - *software* para a otimização de funções lineares ou não lineares.

Tais módulos foram recodificados para a linguagem de desenvolvimento do OptiMix (Visual Basic 4.0) e adaptados para a lógica de fluxo de informações do programa.

A escolha do Microsoft Visual Basic 4.0 como ferramenta de desenvolvimento para o aplicativo foi motivada por dois fatores: a simplicidade de programação e a facilidade de uso do *software* resultante, em ambiente gráfico totalmente de acordo com o padrão Windows, com o qual o usuário já está familiarizado. Outras ferramentas existentes no mercado, tais como o Borland Delphi e o Microsoft Visual C++ , destinam-se também a criar aplicativos para o ambiente Windows; no entanto, o uso dos referidos pacotes implicaria um esforço adicional para a aprendizagem de suas respectivas linguagens de programação (baseadas em Pascal e C), o que fugiria à proposta do trabalho.

4.1 Apresentação do OptiMix

O desenvolvimento de um *software* específico para a Otimização Experimental de Misturas - o OptiMix - teve como objetivos:

- implementar computacionalmente as principais rotinas propostas no método desenvolvido, de forma a facilitar sua aplicação por usuários em geral;
- obter uma ferramenta de auxílio para a realização de testes e estudos de caso, com vistas à validação do modelo;
- demonstrar a praticidade de utilização do conjunto de técnicas apresentadas, uma vez que as mesmas estejam disponíveis e já dispostas em uma seqüência lógica.

4.1.1 Necessidades Mínimas de Ambiente

O microcomputador onde o OptiMix será instalado deve possuir as seguintes características:

- IBM-PC/AT compatível;
- Processador 80486 com velocidade de 100 MHz ou superior;
- Placa controladora de vídeo SVGA ou superior;
- 8 *Megabytes* de RAM;

- 2 *megabytes* de espaço em disco;
- Resolução mínima de vídeo de 800 x 600 pixels, com 256 cores (desejável High Color – 16 bits);
- Ambiente operacional Microsoft Windows 95;
- *Mouse* compatível.

4.2 *Aplicação do software*

O *software* parte da etapa em que as variáveis a serem incluídas no estudo (componentes da mistura a serem variados e variáveis de resposta a serem modeladas) já foram selecionadas pelo usuário, seja pelos critérios sugeridos neste método ou não. A aplicação do OptiMix pode então abranger desde a etapa de Planejamento do Experimento até a Otimização da qualidade da mistura, de acordo com modelos para a superfície de resposta das variáveis em estudo, ajustados pelo próprio *software* ou através de outras ferramentas. O processo pode ser iniciado em qualquer desses estágios, desde que o usuário já disponha dos dados necessários e forneça-os ao *software*.

As etapas do método incluídas no OptiMix foram divididas em três subgrupos: Criação do Projeto Experimental, Modelagem da Superfície de Resposta e Otimização da Qualidade da Mistura.

4.2.1 Criação do Projeto Experimental

A partir do número de componentes e número de variáveis de resposta fornecidos pelo usuário, o OptiMix requisita as respectivas características de cada variável necessárias ao planejamento do experimento e posterior determinação da Função Perda. De acordo com o número de componentes da mistura, q , o *software* apresenta uma lista de possíveis projetos padrão em $(q - 1)$ variáveis independentes, dentre os quais o usuário deve escolher um e determinar o número de pontos centrais desejados, o número de replicações e tamanho dos blocos (para projetos bloqueados). Para cada projeto selecionado pelo usuário, o OptiMix fornece um conjunto de informações a respeito dos efeitos passíveis de serem medidos, efeitos confundidos, possibilidade de medida de falta de ajuste, etc., com o propósito de auxiliar na seleção da alternativa mais adequada aos objetivos do estudo.

Após a definição de todas as características desejadas para o projeto experimental, o mesmo é gerado e apresentado sob forma de planilha, com a opção de visualização da matriz experimental tanto em níveis codificados, como em termos da composição da mistura. Essa planilha pode ser impressa, copiada para a Área de Transferência, a fim de ser editada em outro aplicativo, ou gravada em um arquivo do OptiMix juntamente com os demais dados do projeto.

Obtendo a planilha experimental para o projeto, o usuário deve gravar todas as informações e opções já realizadas em um arquivo do OptiMix, a fim de retornar ao mesmo após a execução do experimento e dar continuidade às análises.

4.2.2 Modelagem da Superfície de Resposta

De posse dos resultados experimentais, o arquivo previamente iniciado deve ser aberto, e os dados observados para cada variável de resposta, introduzidos na própria planilha experimental gerada anteriormente. Para projetos bloqueados, recomenda-se tratar previamente os dados experimentais, retirando destes o efeito dos blocos antes de entrar com seus valores no OptiMix. Após a entrada dos dados experimentais, poderão ser ajustados modelos para a média de cada variável de resposta, a partir da escolha dos termos que se deseja incluir e do nível mínimo de significância aceito para as estimativas dos respectivos coeficientes.

Além dos coeficientes estimados, o OptiMix oferece diversas estatísticas úteis para a verificação de adequação do ajuste e dos termos relevantes para o modelo, tais como o erro padrão, estatística t (para a hipótese: coeficiente = 0) e significância de cada coeficiente ajustado; Tabela ANOVA, estatísticas R^2 e R^2 ajustado para o modelo de regressão; gráficos de resíduos do modelo em relação à média da variável de resposta ou a cada um dos fatores independentes.

Após o ajuste dos modelos para a média, o usuário está apto a ajustar modelos para a variância, se assim o desejar (utilizando os resíduos quadráticos – o método da variância amostral será implementado mais adiante), dispondo dos mesmos recursos anteriormente citados para a avaliação da qualidade do ajuste.

Ao se ajustar um modelo para a média de uma variável de resposta, torna-se disponível a visualização de Gráficos de Estimativas em um ou dois fatores e dos Contornos de Superfície, representando a média predita pelo modelo em função do ajuste dos fatores independentes ou da composição da mistura. Os dois fatores ou componentes a serem variados podem ser livremente escolhidos pelo usuário, bem como os níveis dos demais fatores (que permanecem fixos). No

caso de gráficos em função da composição, os fatores que não estão sendo plotados *não permanecem em níveis fixos* (pois dependem dos demais, de forma a somar 100%); no entanto, mantêm sempre as proporções relativas entre si, como se fossem uma sub-mistura de composição fixa, presente em diferentes quantidades em relação ao total. O mesmo tipo de gráfico pode ser plotado para a variabilidade da variável de resposta, se houver modelo ajustado para a mesma. Os gráficos apresentados podem ser impressos ou copiados para a Área de Transferência.

4.2.3 Otimização da Qualidade da Mistura

A última etapa inclui tanto a otimização individual como global, ou ainda de subgrupos das variáveis de resposta. A opção de otimização global somente estará disponível após todas as variáveis de resposta terem modelos ajustados para as respectivas médias. A possibilidade de otimização individual ou de um conjunto de determinadas variáveis, entretanto, só depende do ajuste de um modelo para as médias das variáveis envolvidas. Os modelos para a variância das variáveis de resposta, por sua vez, não são imprescindíveis, uma vez que as mesmas podem frequentemente ser consideradas constantes dentro do espaço experimental. Na falta de um modelo ajustado para a variância, o OptiMix assume-a como constante e igual ao valor calculado para o conjunto de observações durante o processo de Regressão Múltipla.

4.3 Descrição do ambiente de trabalho

A tela principal do OptiMix apresenta uma barra de menus e uma barra de ferramentas, através das quais se pode acessar qualquer janela disponível, de acordo com os dados já fornecidos pelo usuário. Em cada etapa da utilização, o *software* disponibiliza apenas as opções de menu compatíveis com as informações existentes.

4.3.1 Menu File

Este menu apresenta as opções relacionadas à entrada e saída de informações sobre o projeto experimental ou de otimização, seja sob a forma de arquivo ou de impressão.

4.3.1.1 New Experiment

Permite a criação de um novo projeto experimental ou de otimização, a partir da tela **Gerenciador de Projeto** (Figura 4-1) apresentada. No caso de o usuário estar trabalhando previamente em outro projeto e não ter salvo as últimas alterações, o OptiMix emite uma caixa de diálogo, a fim de confirmar o encerramento do projeto anterior, gravando ou não as alterações porventura realizadas.

Atalho na barra de ferramentas: 

Através do **Gerenciador de Projeto**, o usuário tem acesso aos três módulos do OptiMix: Projeto, Análise e Otimização dos resultados do Experimento. A tela exibe também um sumário dos dados do projeto definidos até então: número de fatores controláveis e variáveis de resposta; número de rodadas do programa experimental, nome do projeto (*Factorial*, *Central Composite*, *Hexagon* ou *User-defined*), fracionamento (2^{k-p} , onde k é o número de componentes da mistura menos 1, ou *None*), número de estrelas e número de blocos. Este sumário auxilia o usuário a lembrar-se da opção realizada, facilitando que o mesmo altere o *design*, se julgar conveniente.

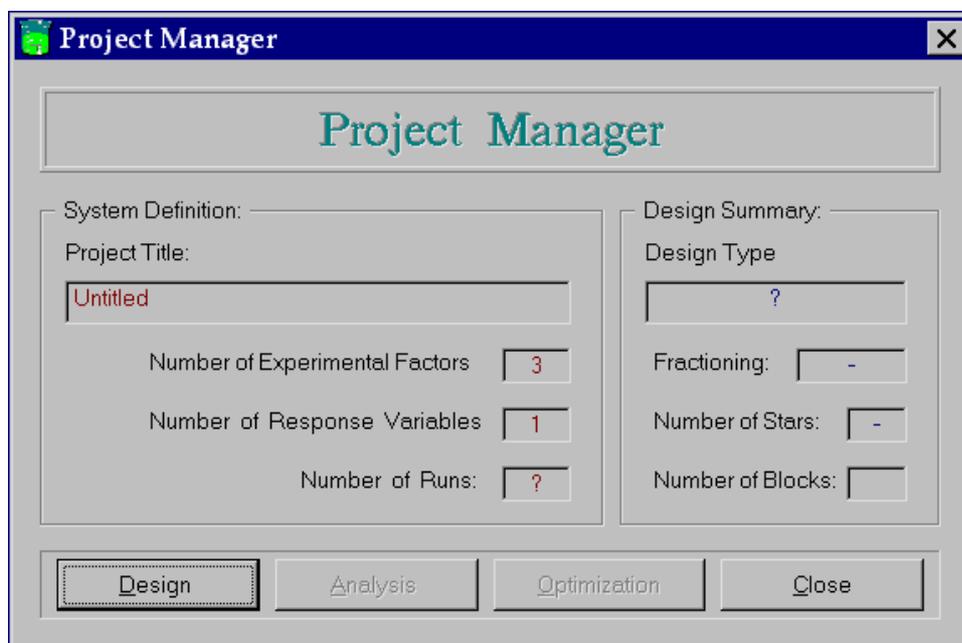


Figura 4-1: Gerenciador de Projeto, onde o usuário visualiza os dados básicos sobre sistema e o projeto escolhido e acessa os módulos do programa.

4.3.1.2 *Open Experiment...*

Carrega as informações de um projeto já iniciado e previamente gravado como um arquivo do OptiMix (extensão .opm). No caso de o usuário estar trabalhando previamente em outro projeto e não ter salvo as últimas alterações, o OptiMix emite uma caixa de diálogo, pedindo a confirmação do encerramento do projeto anterior, com a gravação ou não das alterações realizadas.

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.1.3 *Save Experiment e Save As...*

Na opção *Save Experiment*, o OptiMix grava em um arquivo “.opm” todas as informações necessárias para a posterior abertura e continuidade do projeto: número de fatores controláveis e variáveis de resposta; especificações de todas as variáveis (nome e faixas de variação de cada componente, tipo, alvo, limites e peso relativo de cada variável de resposta, entre outras); tipo e características do Projeto Experimental escolhido (dentre os oferecidos pelo OptiMix) ou se o Projeto é externo (definido pelo usuário); dados experimentais, se já existentes; modelos porventura ajustados para as variáveis de resposta, resultados de otimizações, etc.

Caso o projeto experimental em questão esteja sendo salvo pela primeira vez, é pedido um nome para o novo arquivo através da caixa de diálogo padrão do Windows para a opção *Save As...*

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.1.4 *Print Experimental Sheet*

Esta opção somente se encontra habilitada quando a janela ativa é a que contém a Planilha Experimental. A planilha será impressa na forma como estiver sendo apresentada na tela, segundo a opção do usuário (planilha em termos de composição da mistura ou em níveis codificados das variáveis não-correlacionadas).

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.1.5 *Print Graphic*

Opção somente habilitada quando a janela ativa possuir algum gráfico, permitindo que o mesmo seja enviado diretamente para a impressora padrão. Podem ser impressos os Gráficos de Resíduos para os diversos modelos ajustados, os Gráficos de Estimativas ou dos Contornos de Superfície para a média, variabilidade ou perda das variáveis de resposta individuais, bem como os de Estimativas de Perda Global.

A qualidade da impressão dependerá da impressora utilizada, do tamanho e tipo do gráfico. Os gráficos de Resíduos, de Estimativas Individuais ou de Perda Global são impressos no mesmo tamanho apresentado na tela. Já o gráfico de Contornos de Superfície, por se tratar de um diferente objeto gráfico, permite apenas a impressão em um tamanho padrão, definido pelo *driver* da impressora.

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.1.6 *Exit*

Finaliza a execução do OptiMix. No caso de o usuário estar trabalhando em um projeto e não ter salvo as últimas alterações realizadas, o OptiMix emite uma caixa de diálogo, requisitando a confirmação do encerramento da sessão, com a gravação ou não das modificações.

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.2 **Menu Edit**

Este menu apresenta as principais opções de edição de documentos, através da transferência de dados ou figuras entre o OptiMix e a Área de Transferência do Windows.

4.3.2.1 *Clear*

Permite remover o conteúdo de caixas de texto ou da área selecionada de planilhas e tabelas, mantendo-o na Área de Transferência para posterior aproveitamento em outro aplicativo ou em outro campo do mesmo *software*.

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.2.2 Copy Data

Copia o conteúdo de caixas de texto, tabelas e listas para a Área de Transferência, permitindo seu posterior aproveitamento no próprio OptiMix ou em outro aplicativo.

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.2.3 Copy Graphic

Copia o gráfico da janela ativa para a Área de Transferência. O formato no qual o gráfico será copiado depende do tipo de objeto: Os Gráficos de Estimativas para os resíduos, média ou variabilidade individuais ou perda global são sempre copiados em formato *bitmap*; já os gráficos de Contornos de Superfície para a média, variabilidade e perda individual oferecem ao usuário as opções de cópia em formato *bitmap*, *metafile* ou *enhanced metafile*.

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.2.4 Paste

Permite colar texto nas diversas caixas de texto e tabelas existentes no programa. Esta ferramenta foi incluída com o propósito de facilitar a inserção no OptiMix de grandes quantidades de dados provenientes de outros aplicativos, sem a necessidade de digitação.

Atalho na barra de ferramentas: 

4.3.2.5 Insert New Run

Inserir uma nova linha na planilha experimental, permitindo ao usuário incluir rodadas extra em um projeto já existente. Se o projeto experimental original era um projeto padrão do OptiMix, este se torna automaticamente do tipo “definido pelo usuário” (opção *user-defined*, na janela Gerenciador de Projeto).

4.3.2.6 Delete Selected Run

Remove a(s) linha(s) selecionada(s) da planilha experimental. Da mesma forma que a opção anterior, torna *user-defined* um projeto originalmente gerado pelo OptiMix e posteriormente modificado através desse recurso.

4.3.3 Menu Design

Este menu possibilita o acesso às diferentes etapas relacionadas à geração do Projeto Experimental, desde a janela de Especificação das Variáveis do sistema até a Planilha Experimental, em variáveis de mistura ou codificadas, passando pela seleção de um projeto padrão, se desejado.

4.3.3.1 *Experimental Design Manager*

O *Gerenciador de Projeto Experimental* é a tela onde se definem os dados essenciais à geração do Projeto Experimental:

- O título do projeto (o *default* é “Untitled” - sem título; o usuário pode opcionalmente fornecer um novo nome);
- o número de componentes da mistura;
- o número de variáveis de resposta em estudo;
- se o projeto experimental foi ou será planejado pelo OptiMix ou definido pelo usuário;
- no caso de ser um projeto experimental externo (*User-defined*), o número de ensaios que o constituem.

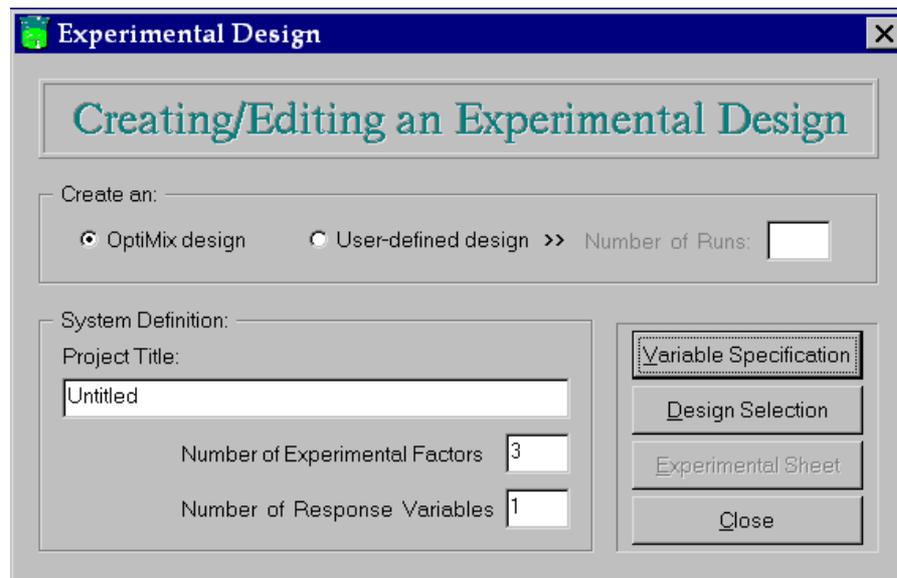


Figura 4-2: Tela do Gerenciador de Projeto Experimental, onde se definem os dados básicos do sistema e se tem acesso às telas relacionadas ao planejamento do experimento.

A tela possui botões que permitem o acesso à tela principal de cada módulo, nas quais se determinará o projeto a ser rodado. A opção ***Design Selection*** só se apresenta habilitada quando o usuário opta pela criação de um projeto padrão do OptiMix; se a opção for por um projeto definido pelo usuário, este deve acessar diretamente a Planilha Experimental, através do botão ***Experimental Sheet***; o mesmo estará habilitado sempre que o projeto for externo ou que o usuário já tenha selecionado um projeto padrão do OptiMix.

4.3.3.2 *Variable Specification*

Exibe a janela de ***Especificação das Variáveis***, onde o usuário deve informar ao OptiMix as características fundamentais dos fatores controláveis e variáveis de resposta em estudo, necessárias ao Planejamento do Experimento, Análise e Otimização. Eventuais inconsistências nos dados são automaticamente ajustadas pelo *software* (quando possível) ou avisadas ao usuário, para que este as corrija antes de prosseguir.

A janela de ***Especificação das Variáveis*** pode também ser acessada pelo botão ***Variable Specification***, localizado na parte inferior da janela ***Gerenciador de Projeto***, ou através de seu atalho na barra de ferramentas: 

Características requisitadas para a especificação das variáveis:

- ***Fatores controláveis:***
 - nome;
 - composição do ponto central da região de experimentação;
 - semi-amplitude da faixa de variação e
 - erro padrão no ajuste da percentagem de cada componente.

O OptiMix ajusta automaticamente os níveis mínimo e máximo para cada componente (mínimo = composição central – semi-amplitude de variação; máximo = composição central + semi-amplitude de variação).

Component Name	Central Point	Half Amplitude	Minimum Level	Maximum Level	Standard Variation
Component 1	23,000	6,0000	17,000	29,000	0,0000
Component 2	22,000	7,0000	15,000	29,000	0,0000
Component 3	21,000	6,0000	15,000	27,000	0,0000
Component 4	12,000	5,0000	7,0000	17,000	0,0000
Component 5	11,000	7,0000	4,0000	18,000	0,0000
Component 6	11,000	4,0000	7,0000	15,000	0,0000

Figura 4-3: Especificações requeridas para os fatores controláveis (componentes da mistura).

- *Variáveis de resposta:*

- nome;
- unidades de medida;
- tipo (nominal-é-melhor, menor-é-melhor ou maior-é-melhor);
- alvo;
- limites de especificação e
- importância relativa de cada variável.

Para variáveis do tipo menor-é-melhor, não há limite inferior (este é o próprio alvo), e para as do tipo maior-é-melhor, não há limite superior (idem).

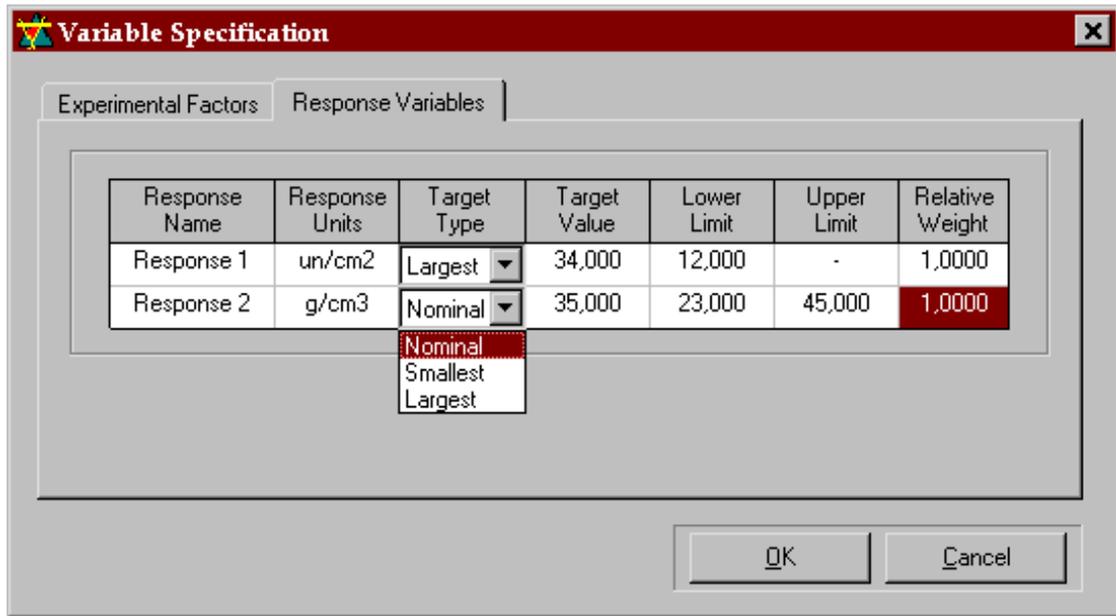


Figura 4-4: Especificações requeridas para as variáveis de resposta em estudo.

4.3.3.3 Design Selection

Na janela de *Seleção do Projeto*, o OptiMix exibe uma lista de projetos experimentais padrão (em $(q - 1)$ variáveis independentes) adequados ao número de componentes da mistura. Ao clicar em qualquer opção da lista, o *software* informa ao usuário as características do projeto selecionado que irão auxiliá-lo na escolha da alternativa mais adequada a seus propósitos, bem como à sua disponibilidade de tempo e recursos materiais.

O botão *Back* retorna ao *Gerenciador de Projeto Experimental*, e o *Next* apresenta a planilha experimental correspondente ao projeto selecionado.

Atalho na barra de ferramentas: 

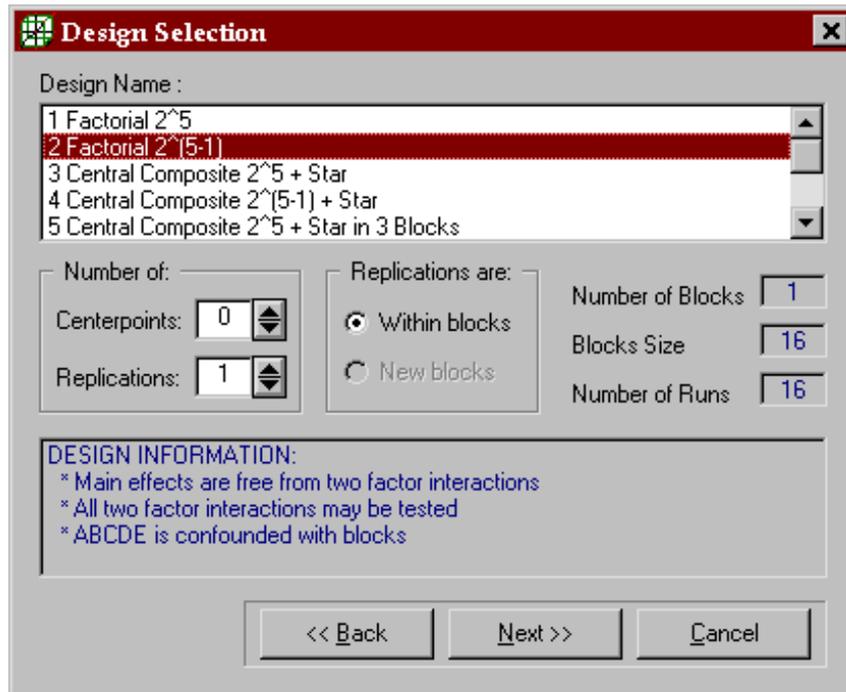


Figura 4-5: Janela de Seleção do Projeto, onde o usuário escolhe o projeto padrão mais adequado aos seus propósitos, baseado nas informações fornecidas pelo *software*.

Para cada projeto selecionado, o OptiMix exibe o número mínimo de pontos centrais (ensaios com a composição do centro da região experimental) permitidos, o número de blocos do projeto (*Number of Blocks*), o número de rodadas em cada bloco (*Blocks Size*) e no experimento completo (*Number of Runs*). Além disso, são fornecidas informações a respeito dos efeitos passíveis de serem medidos, efeitos confundidos, possibilidade de medida de falta de ajuste, etc., que devem ser levados em consideração, de acordo com o grau e precisão do modelo que se deseja posteriormente ajustar às variáveis de resposta.

O *software* permite ainda que o usuário acrescente pontos centrais ao projeto básico, estipule o número de replicações e opte por realizar as replicações dentro dos blocos já existentes (*Within blocks*) ou como novos blocos (*New blocks*). Em todos os casos, são apresentados, nos campos correspondentes, o número resultante de rodadas em cada bloco e no experimento, assim como o novo número de blocos.

4.3.3.4 *Experimental Sheet*

Apresenta a Planilha Experimental gerada pelo OptiMix ou criada pelo usuário, contendo a composição da mistura a cada rodada, além de colunas destinadas ao preenchimento com os

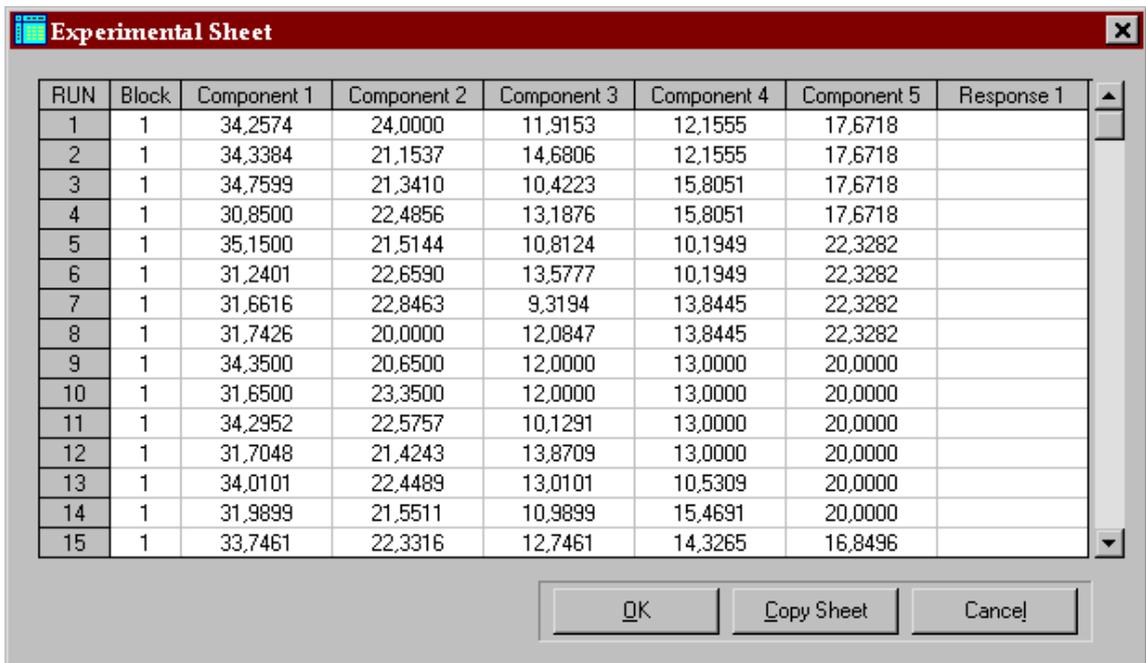
dados experimentais observados para as variáveis de resposta nos diversos ensaios. Esta planilha pode ser modificada pelo usuário, através do teclado ou das opções de edição, copiada para a Área de Transferência, através do botão *Copy Sheet*, ou impressa.

Atalho na barra de ferramentas: 

A janela da *Planilha Experimental* pode ainda ser acessada através do botão *Experimental Sheet*, do *Gerenciador de Projeto Experimental*, ou do botão *Next* da tela de *Seleção de Projeto*.

4.3.3.5 Display Options

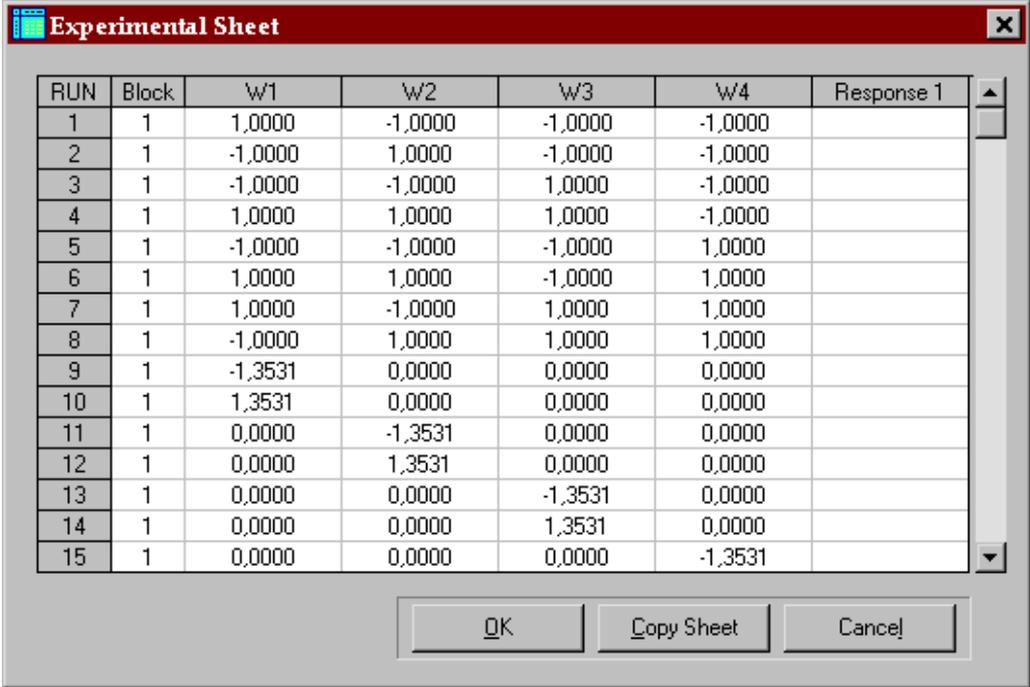
- *Mixture Variables (X)* – Apresenta a Planilha Experimental em termos da composição da mistura, quando a mesma for chamada através da respectiva opção no menu ou na barra de ferramentas, ou instantaneamente, se estiver ativa.



RUN	Block	Component 1	Component 2	Component 3	Component 4	Component 5	Response 1
1	1	34,2574	24,0000	11,9153	12,1555	17,6718	
2	1	34,3384	21,1537	14,6806	12,1555	17,6718	
3	1	34,7599	21,3410	10,4223	15,8051	17,6718	
4	1	30,8500	22,4856	13,1876	15,8051	17,6718	
5	1	35,1500	21,5144	10,8124	10,1949	22,3282	
6	1	31,2401	22,6590	13,5777	10,1949	22,3282	
7	1	31,6616	22,8463	9,3194	13,8445	22,3282	
8	1	31,7426	20,0000	12,0847	13,8445	22,3282	
9	1	34,3500	20,6500	12,0000	13,0000	20,0000	
10	1	31,6500	23,3500	12,0000	13,0000	20,0000	
11	1	34,2952	22,5757	10,1291	13,0000	20,0000	
12	1	31,7048	21,4243	13,8709	13,0000	20,0000	
13	1	34,0101	22,4489	13,0101	10,5309	20,0000	
14	1	31,9899	21,5511	10,9899	15,4691	20,0000	
15	1	33,7461	22,3316	12,7461	14,3265	16,8496	

Figura 4-6: Planilha Experimental expressa em termos da composição da mistura a cada rodada.

- *Independent Variables (W)* - Apresenta a planilha experimental em variáveis independentes (variáveis de projeto), quando a mesma for carregada, ou instantaneamente, se estiver ativa.



RUN	Block	W1	W2	W3	W4	Response 1
1	1	1,0000	-1,0000	-1,0000	-1,0000	
2	1	-1,0000	1,0000	-1,0000	-1,0000	
3	1	-1,0000	-1,0000	1,0000	-1,0000	
4	1	1,0000	1,0000	1,0000	-1,0000	
5	1	-1,0000	-1,0000	-1,0000	1,0000	
6	1	1,0000	1,0000	-1,0000	1,0000	
7	1	1,0000	-1,0000	1,0000	1,0000	
8	1	-1,0000	1,0000	1,0000	1,0000	
9	1	-1,3531	0,0000	0,0000	0,0000	
10	1	1,3531	0,0000	0,0000	0,0000	
11	1	0,0000	-1,3531	0,0000	0,0000	
12	1	0,0000	1,3531	0,0000	0,0000	
13	1	0,0000	0,0000	-1,3531	0,0000	
14	1	0,0000	0,0000	1,3531	0,0000	
15	1	0,0000	0,0000	0,0000	-1,3531	

Figura 4-7: Planilha Experimental expressa em $(q-1)$ variáveis codificadas.

4.3.4 Menu Analysis

Este menu apresenta opções destinadas à modelagem e análise da superfície de resposta das variáveis em estudo. As seguintes opções são encontradas:

4.3.4.1 Model Fitting Manager

Chama a janela de *Análise da Superfície de Resposta*, que gerencia o ajuste de modelos, exibindo um sumário do *status* de cada variável de resposta, quanto à existência ou não de modelos para a sua média e variância; para cada variável selecionada, apresenta os respectivos modelos existentes para a sua média e variância, além de permitir a definição e análise dos mesmos.

Atalho na barra de ferramentas:



Esta janela apresenta botões que acessam telas relacionadas ao processo de ajuste e análise de modelos para a Superfície de Resposta da variável selecionada na lista de variáveis. O botão *Close* retorna para o *Gerenciador de Projeto Experimental*, onde se pode acessar a etapa seguinte, de Otimização da qualidade da mistura. Os demais botões conduzem a telas onde o

usuário pode modelar a superfície de resposta da variável selecionada na *Lista de Status* ou analisá-la através de Gráficos de Estimativas para um ou dois fatores ou de Contornos de Superfície.

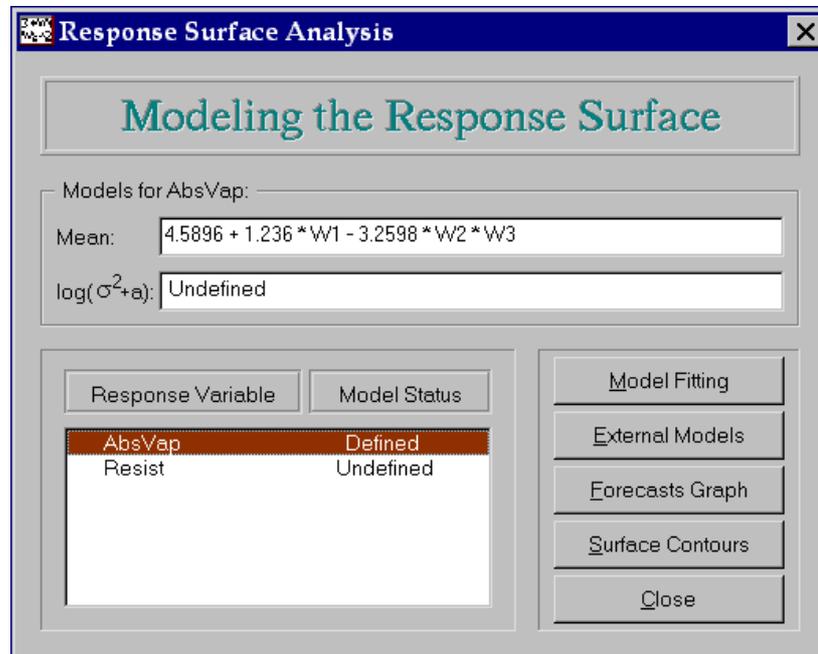


Figura 4-8: Gerenciador de modelagem e análise da superfície de resposta das variáveis.

O botão **Model Fitting** (Figura 4-8) conduz ao processo de ajuste de modelos, através de rotinas de Regressão Múltipla, com base nos dados experimentais associados a um programa experimental padrão ou arbitrário. Se não houver dados experimentais para a variável selecionada na lista, o OptiMix emite um aviso a esse respeito e não prossegue para a etapa de Regressão Múltipla.

A primeira tela desse módulo é a janela de **Seleção do Modelo** (Figura 4-9), onde se pode escolher ajustar um modelo para a média ou para a variabilidade (esta, somente depois de haver um modelo para a média), definem-se os termos que se deseja incluir no modelo e o nível de significância máximo para os coeficientes a serem calculados. O usuário pode ainda optar pela utilização ou não do processo de *Forward Selection* para a inclusão de termos no modelo.

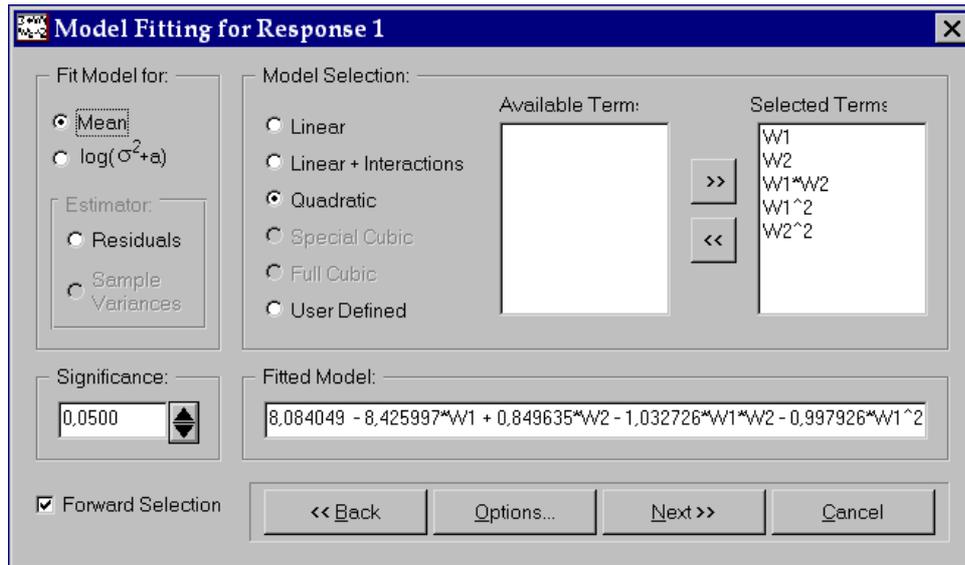


Figura 4-9: Janela de Seleção do Modelo, onde se escolhem os termos a serem incluídos e o nível máximo de significância desejado para seus coeficientes.

O botão **Back** desta janela retorna à tela principal do módulo de **Análise da Superfície de Resposta**, enquanto que o **Next** procede à Regressão Múltipla, de acordo com as opções realizadas, apresentando a seguir a tela de **Resultados da Regressão Múltipla**. Nesta, são mostrados os coeficientes estimados para os termos incluídos no modelo, bem como as demais estatísticas relacionadas (ver Figura 4-10, a seguir), que auxiliam no processo iterativo de eliminar ou acrescentar termos e realizar novos ajustes, com vistas à obtenção do modelo mais adequado.

Parameter	Coefficient	Standard Error	T - Test	Probability
Intercept	28,11067	1,974215	14,23891	0,000000
W1^2	-4,977832	2,714408	-1,833856	0,091581
W2^2	-5,256711	2,622426	-2,004522	0,068112
W3^2	-9,230556	2,628256	-3,512046	0,004286

Fitted Model:
 $28,11067 - 4,977832*W1^2 - 5,256711*W2^2 - 9,230556*W3^2$

R²: 50,86%
R²_{adj}: 43,30%

Figura 4-10: Resultados da Regressão Múltipla, salientando os termos significantes (em vermelho).

Além de contar com as estatísticas relacionadas a cada coeficiente estimado, como o erro padrão, o teste T para a hipótese: coeficiente = 0 e a probabilidade ou significância do mesmo, o usuário pode visualizar de imediato quais coeficientes se encontram abaixo do nível máximo de significância estipulado, pois estes aparecem em destaque na lista de estimativas. São apresentadas também as estatísticas R^2 e R^2_A . Para a verificação da significância do modelo ajustado, o OptiMix fornece uma tabela de Análise de Variância, acessada através do botão **ANOVA**, e gráficos de resíduos, através do botão **Residual Plot** (Figuras 4-10 e 4-12).

O botão **OK** associa o modelo ajustado à variável de resposta em questão, retornando à janela **Análise da Superfície de Resposta**; o **Cancel** não registra o novo modelo, mantendo o anterior e retornando à tela de **Seleção do Modelo**.

A janela **Estatísticas & ANOVA**, chamada através do botão **ANOVA**, apresenta a Análise de Variância para o Modelo de Regressão, onde se verifica a significância do ajuste. Além disso, fornece estatísticas obtidas a partir do conjunto de dados experimentais, como a sua média, desvio padrão e coeficiente de variação, e os critérios de aceitação de modelo, segundo o nível de significância estipulado pelo próprio usuário na tela de **Seleção do Modelo**.

Para que o modelo seja considerado significativo, a estatística *F-Ratio* apresentada na tabela ANOVA deve ser maior do que o $F-Ratio_{min}$ mostrado logo abaixo (Figura 4-11); da mesma forma, o *P-Value* fornecido pela Análise de Variância (tabela) deve ser menor do que o $P-Value_{max}$ estabelecido. No entanto, independente dos valores resultantes, a aceitação ou não do modelo cabe exclusivamente ao usuário; o *software* apenas fornece critérios que o auxiliam em sua decisão .

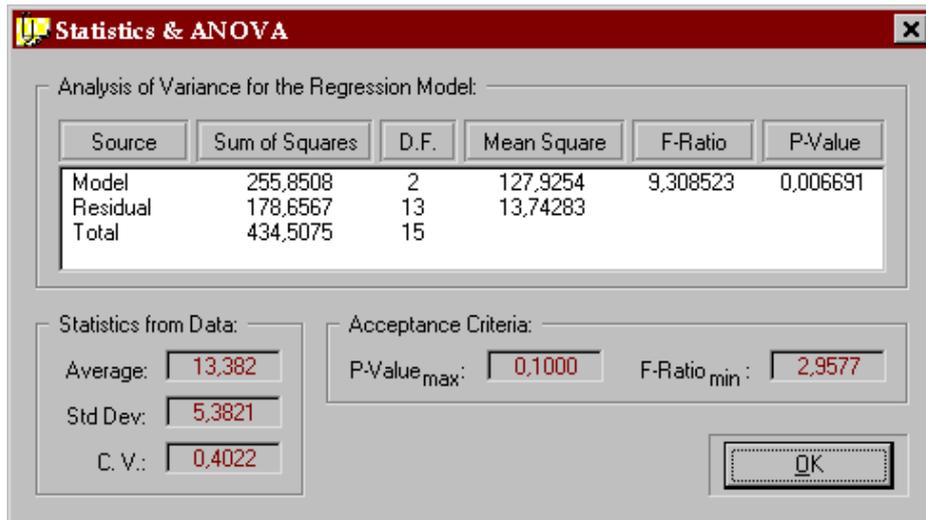


Figura 4-11: Análise de Variância para o modelo de regressão e estatísticas a partir do conjunto de dados experimentais.

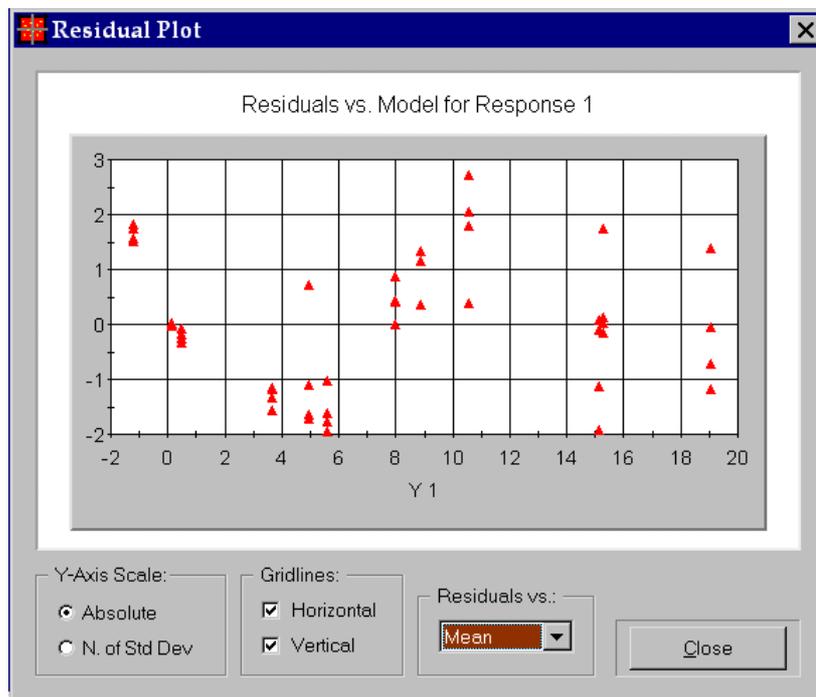


Figura 4-12: Gráfico de Resíduos dos dados em relação ao modelo ajustado.

O botão **External Models** conduz a uma tela onde o usuário pode definir modelos para a variável de resposta selecionada sem proceder à Regressão Múltipla. Esta opção pode ser utilizada sempre que os modelos para a superfície de resposta da variável tenham sido ajustados

em outro aplicativo ou em outro projeto do OptiMix. É a única opção disponível para a definição de modelos quando o projeto não contar com dados experimentais

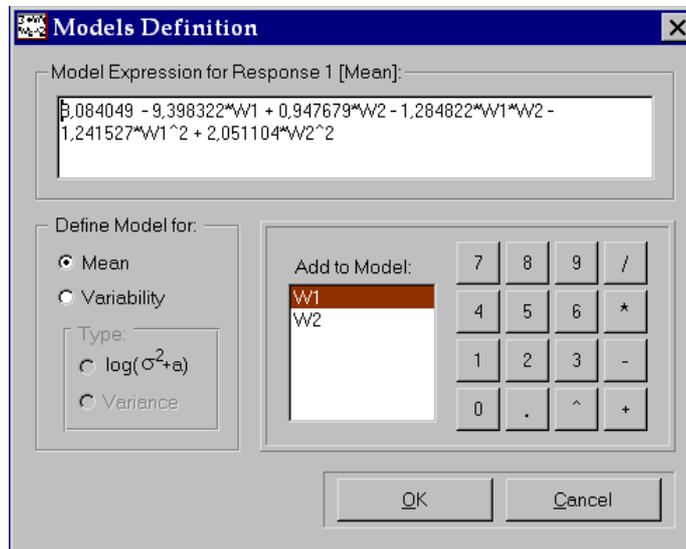


Figura 4-13: Definição de Modelos externos, sem passar pelo módulo de Regressão Múltipla do OptiMix.

4.3.4.2 *Forecasts Graphics*

Esta opção pode ser acessada tanto através do menu *Analysis* como pelo botão Forecasts Graph (Figuras 4-8 e 4-14) na janela de *Análise da Superfície de Resposta*, ou ainda pelo seu atalho na barra de ferramentas: 

A janela apresenta duas tabelas, que mostram :

- uma possível composição para a mistura
- o ajuste correspondente em variáveis não-correlacionadas

Essas tabelas podem ser editadas pelo usuário, tanto através do teclado como pelas operações de edição do menu ou da barra de ferramentas. Apenas a última linha da tabela de composição não pode ser editada (proporção do q -ésimo componente), pois é automaticamente ajustada como 100% menos a soma das demais. Quando um valor é alterado em uma das tabelas, o botão *Reestimate* imediatamente se torna habilitado, possibilitando que o usuário clique no mesmo e obtenha o ajuste correspondente na outra tabela, as estimativas de média e variabilidade para o

novo ajuste (com base nos modelos definidos para a referida variável de resposta) e um gráfico de estimativas plotado para um ou dois fatores.

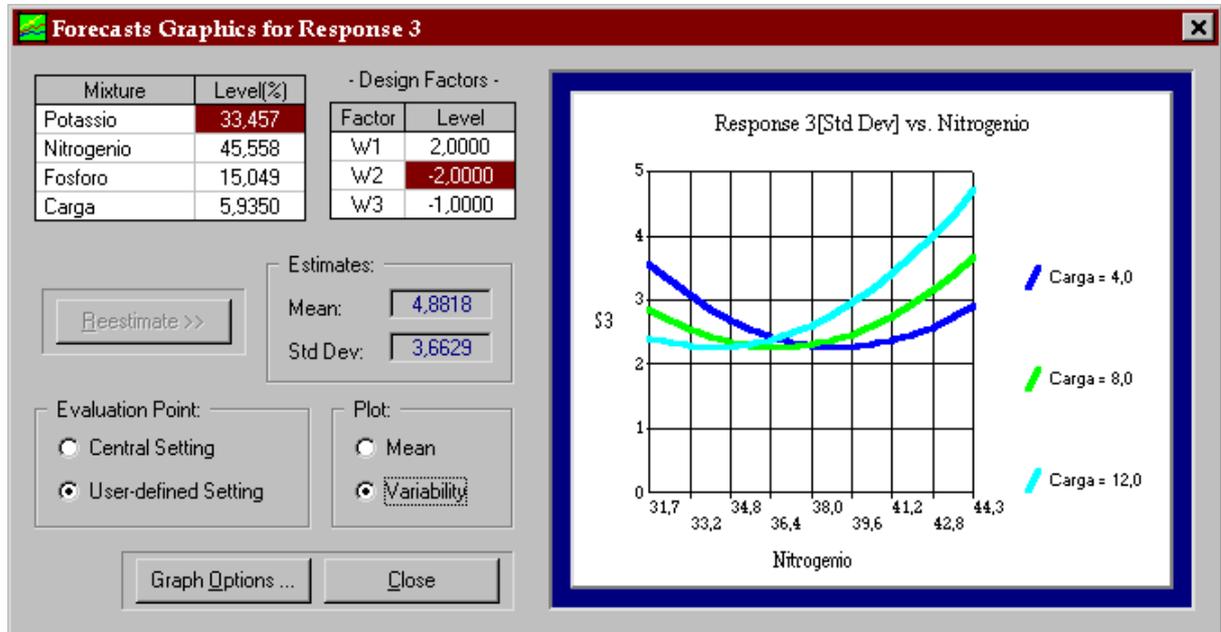


Figura 4-14: Janela de estimativas e Gráficos de Estimativas individuais para a média e a variabilidade.

O gráfico mostra as estimativas para a média ou para o desvio padrão da variável de resposta, conforme a opção do usuário. O mesmo pode ser copiado para a Área de Transferência ou impresso, através das respectivas opções no menu, ou maximizado para ocupar o tamanho total da janela, clicando-se duas vezes sobre ele (*double-click*); para retorná-lo ao tamanho normal, basta proceder da mesma forma. Além disso, através do botão **Graph Options...**, pode-se acessar uma tela que apresenta as seguintes opções para a sua configuração:

- plotar um ou dois fatores;
- seleção dos fator(es) a ser(em) plotado(s);
- traçar o gráfico em função da composição da mistura (*Mixture levels*) ou em função das variáveis de projeto (*Coded levels*);
- apresentar linhas de grade (*gridlines*) horizontais, verticais, ambas ou nenhuma.

4.3.4.3 Surface Contours

Os gráficos de Contornos de Superfície (Figuras 4-8 e 4-15) também podem ser acessados alternativamente através do menu **Analysis**, pelo botão correspondente na janela de

Análise da Superfície de Resposta, ou ainda pelo seu atalho na barra de ferramentas: 

A janela apresenta uma tabela contendo: a palavra *Auto*, para os dois fatores que estão sendo plotados, e os níveis fixados, para os demais. A tabela pode ser editada pelo usuário através do teclado, ou das opções de edição disponíveis no menu, e pode ser mostrada, assim como o gráfico, em termos de composição da mistura ou em variáveis não-correlacionadas. Quando um valor é alterado na tabela, o botão **Reestimate** imediatamente se torna habilitado, possibilitando que o usuário clique no mesmo e obtenha o novo gráfico de contornos de superfície (para outros níveis dos fatores fixos).

É possível ainda escolher a superfície cujos contornos serão plotados: da média, variabilidade ou perda de qualidade da variável de resposta. As demais configurações do gráfico podem ser alteradas através do botão **Graph Options...**, que exibe uma tela com as seguintes opções:

- fator(es) a ser(em) plotado(s);
- gráfico em função da composição da mistura (*Mixture levels*) ou em função das variáveis de projeto (*Coded levels*);
- apresentar linhas de grade (*gridlines*) horizontais, verticais, ambas ou nenhuma.

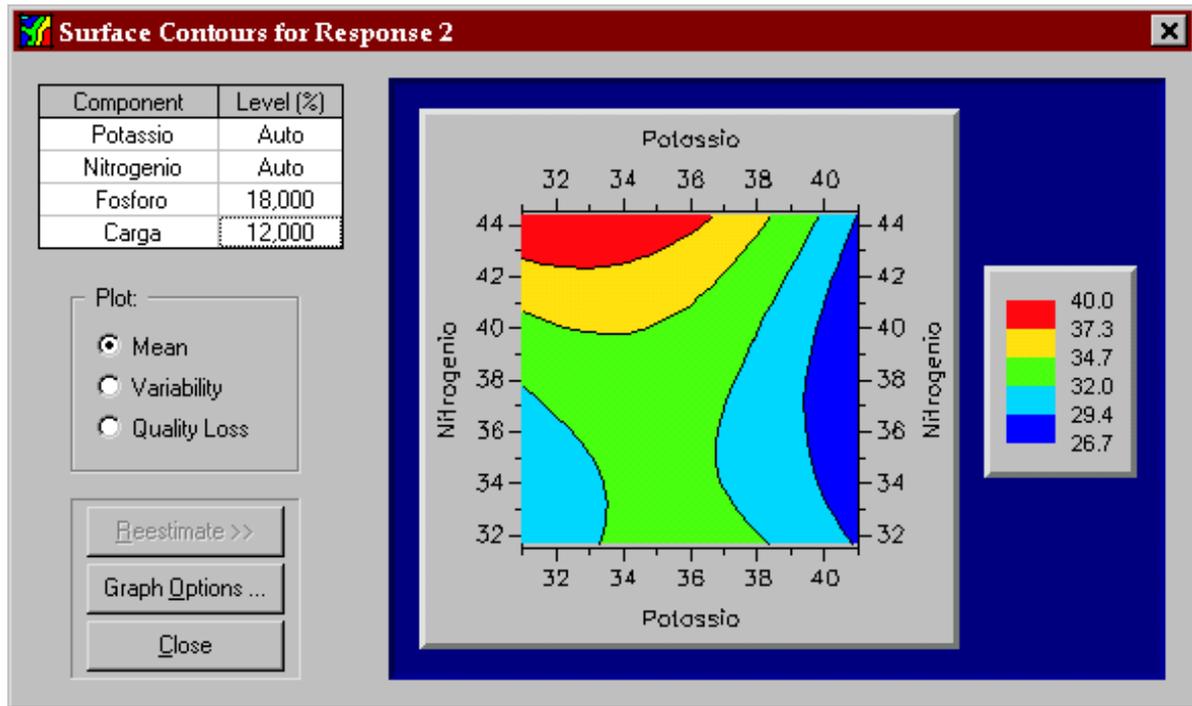


Figura 4-25: Contornos de Superfície para a média, variabilidade ou perda da variável de resposta.

Este objeto gráfico oferece ainda a possibilidade de editar várias de suas propriedades, como perspectiva, bordas, número de zonas (cores), posição da legenda, títulos, etc. Para tanto, basta clicar sobre o mesmo com o botão direito do *mouse*, e uma tela contendo inúmeras opções de configuração será apresentada ao usuário.

4.3.5 Menu Optimization

Este menu apresenta opções destinadas à determinação do ajuste ótimo para as variáveis de resposta em estudo e para a mistura e estimativas de perda global. As seguintes opções são encontradas:

4.3.5.1 Optimization Manager

Chama a janela de **Otimização da Qualidade** (Figura 4-16), que gerencia as rotinas de otimização, exibindo um sumário do *status* de cada variável de resposta, quanto à existência ou não de modelos já definidos (variáveis não modeladas não poderão ser otimizadas); para cada variável selecionada, apresenta os respectivos modelos existentes para a média e variância.

Atalho na barra de ferramentas: 

A janela possui um grupo de botões inferiores, que possibilitam retornar ao módulo anterior, de *Análise da Superfície de Resposta (Back)*, realizar uma otimização (*Optimize*) ou finalizar esta etapa (*Close*). O botão lateral *Loss Graphics* acessa a tela de *Gráficos de Perda Global*.

A otimização desencadeada pelo botão *Optimize* pode ser individual (da variável selecionada na lista de *status*), de um grupo de variáveis (simultaneamente selecionadas na mesma lista) ou global (otimização da qualidade da mistura).

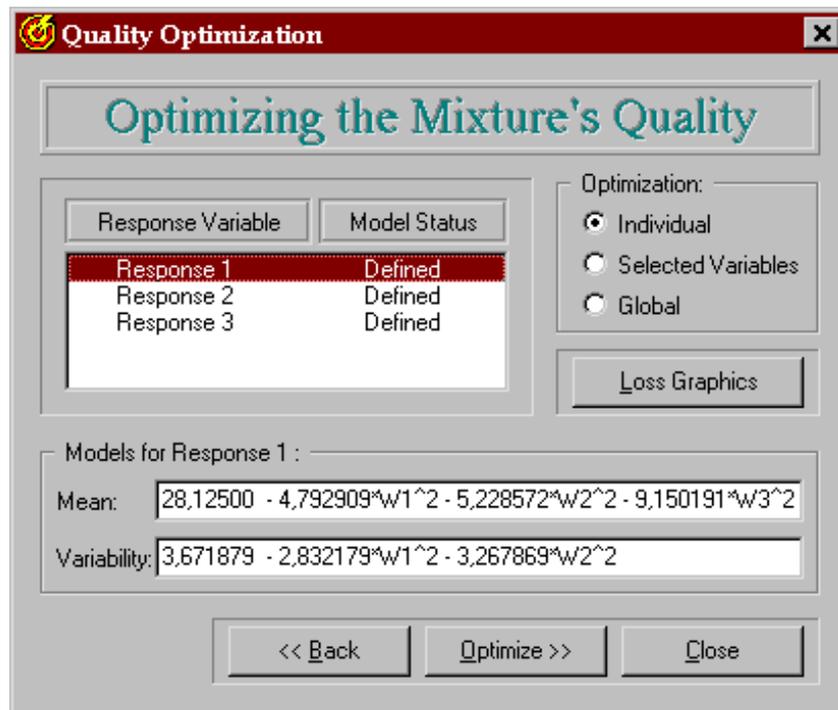


Figura 4-16: Gerenciador de Otimização.

O botão *Optimize* exibe a janela de *Parâmetros da Otimização*, na qual podem ser definidos os parâmetros iniciais e demais opções para a otimização. O *software* oferece as seguintes alternativas:

- encontrar o ajuste ótimo apenas para o desvio do alvo (*Mean*), a variabilidade (*Variability*) ou ambos (*Mean e Variability*);

- encontrar o ajuste de mínima perda (*Best Setting*) ou de máxima perda (*Worst Setting*)
- executar uma busca rápida pelo melhor ajuste, encontrando apenas um ponto ótimo (*Standard*), ou encontrar todos os pontos que fornecem a mesma perda (*Slow*); esta alternativa é bem mais lenta, indicada apenas quando houver fortes indícios de que os modelos envolvidos fornecerão uma Função Perda Global com mais de um mínimo.

Os parâmetros que definem a região onde o ajuste ótimo será procurado e os parâmetros iniciais da busca são:

- os valores mínimo e máximo a serem considerados para cada fator (expresso em variáveis não-correlacionadas);
- o valor inicial para cada fator (*Starting Point*);
- o passo inicial de variação para o valor de cada variável não-correlacionada (*Increment*).

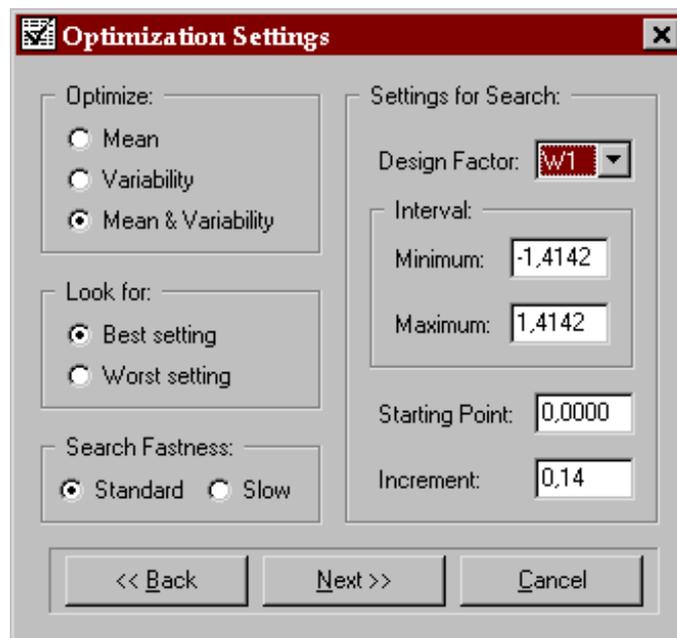


Figura 4-17: Tela de Parâmetros da Otimização.

O botão **Back** retorna ao **Gerenciador de Otimização**, o **Next** inicia a otimização, de acordo com os parâmetros definidos pelo usuário, e o **Cancel** interrompe a execução do módulo.

Após a otimização, o OptiMix apresenta uma tela com os resultados encontrados, relacionando:

- a importância relativa (*Weight*) e o valor alvo de cada variável de resposta;
- a média e a perda de qualidade de cada variável de resposta no ajuste ótimo;
- a perda global;
- o ajuste ótimo em termos da composição da mistura e em variáveis não-correlacionadas.

Optimization Results [Optimum Setting]

Response 1 Optimization Results:

Response	Weight	Target	Value at Optimum	Quality Loss
Response 1	1,00	34,00000	26,97732	0,000000
Response 2	2,00	23,00000	32,77973	0,000000
Response 3	2,00	12,00000	16,55281	0,022037

Global Loss = 0,022037

Component	Optimum %	Design Factor	Optimum Level
Potassio	37,307	W1	-0,2400
Nitrogenio	37,972	W2	-0,2464
Fosforo	17,494	W3	-0,2461
Carga	7,2268		

Buttons: OK, Cancel, Copy

Figura 4-18: Janela de resultados da última otimização realizada.

Todos os valores mostrados na janela de **Resultados da Otimização** podem ser copiados em conjunto para a Área de Transferência do Windows, através do botão **Copy**, situado em sua base.

4.3.5.2 *Loss Graphics*

A janela acessada através desta opção do menu **Optimization** pode também ser lançada pelo botão **Loss Graphics**, situado no **Gerenciador de Otimização**, ou pelo seu atalho na barra

de ferramentas: 

Na janela de **Estimativas de Perda Global**, são mostradas três tabelas, contendo:

- a) uma composição definida pelo usuário para a mistura;
- b) o ajuste correspondente em variáveis não-correlacionadas;
- c) as estimativas para a média e a perda individual de cada variável de resposta, correspondentes ao ajuste definido.

Da mesma forma que na janela de **Estimativas Individuais**, as duas primeiras tabelas podem ser editadas livremente, com exceção da última linha da tabela de composição (ajustada automaticamente como 100% menos a soma das demais). São apresentados ainda a perda global correspondente ao ajuste e um gráfico de Estimativas de Perda Global, que pode ser plotado para um ou dois fatores.

Quando um valor é alterado em uma das duas primeiras tabelas, o botão **Reestimate** imediatamente se torna habilitado, possibilitando a atualização de todas as estimativas de acordo com o novo ajuste. Ao se clicar o botão, são recalculados: o ajuste correspondente na outra tabela, as estimativas de médias, perdas individuais e perda global para o novo ajuste e o gráfico de Estimativas de Perda Global.

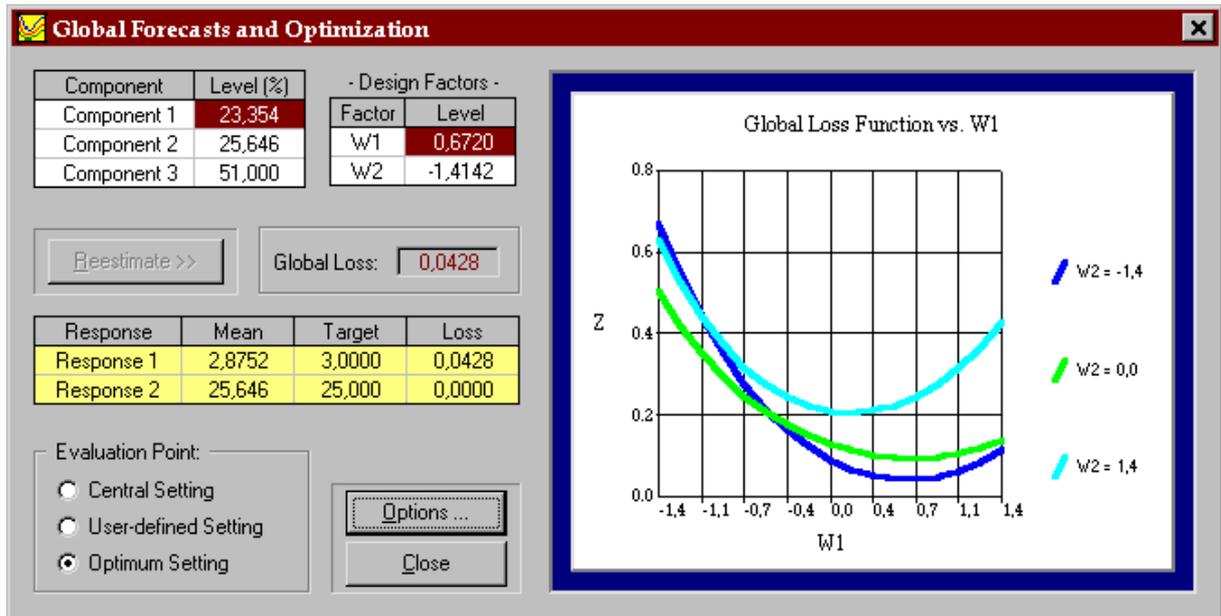


Figura 4-19: Janela de Estimativas e Gráficos de perda global.

O gráfico de Estimativas de Perda Global pode ser copiado para a Área de Transferência ou impresso, através das respectivas opções no menu, ou maximizado para ocupar o tamanho total da janela, clicando-se duas vezes sobre ele (*double-click*); para retorná-lo ao tamanho normal, basta proceder da mesma forma. O botão **Options...** acessa as seguintes opções de configuração:

- plotar um ou dois fatores;
- fator(es) a ser(em) plotado(s);
- traçar o gráfico em função da composição da mistura (*Mixture levels*) ou em função das variáveis de projeto (*Coded levels*);
- apresentar linhas de grade (*gridlines*) horizontais, verticais, ambas ou nenhuma.

4.3.5.3 Optimization Summary

A última opção do menu **Optimization** apresenta uma janela com todos os resultados das otimizações já realizadas. As informações são dispostas em três tabelas, contendo:

- a) a composição ótima da mistura;
- b) o ajuste correspondente dos fatores não-correlacionados;

- c) o alvo e tipo de cada variável de resposta, sua média, desvio padrão e perda de qualidade no ajuste ótimo.

Atalho na barra de ferramentas: 

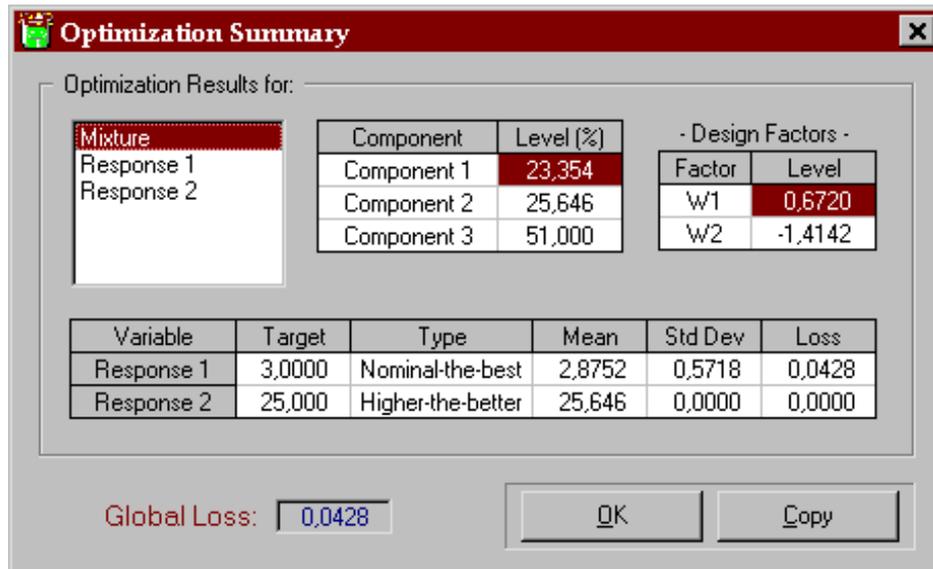


Figura 4-20: Sumário dos resultados de otimizações já realizadas dentro do projeto.

4.3.6 Menu Help

Este menu apresenta as diversas opções de auxílio padrão oferecidas pelo ambiente Microsoft Windows:

- As opções *Contents*, *Commands*, *Shortcut Keys*, *Glossary* e *Help On Help* não se encontram habilitadas no momento, pois os respectivos arquivos estão em fase de elaboração..

Atalho na barra de ferramentas: 

- Finalmente, a opção *About OptiMix...* exibe uma janela contendo informações sobre a criação e registro do *software*.

CAPÍTULO 5

1. ESTUDOS DE CASO E VALIDAÇÃO DO MODELO

Neste capítulo, são apresentados dois estudos de caso realizados durante este trabalho de dissertação, nos quais se aplicou o modelo proposto para a otimização de formulações, com o suporte do *software* desenvolvido (OptiMix). Os estudos de caso tiveram como objetivo ilustrar a aplicação prática do método, através de sua implementação computacional, bem como avaliar a eficiência de ambos nas situações estudadas.

Os estudos de caso permitiram, através das observações realizadas ao longo de cada um deles e da análise dos resultados obtidos, verificar o grau de atendimento dos objetivos a que o modelo se propõe e identificar eventuais necessidades de alteração no mesmo. Tais informações, advindas tanto da interação entre o método desenvolvido e seu público-alvo como da comparação com outros métodos tradicionalmente empregados, foram de grande importância para o aperfeiçoamento e validação deste trabalho.

O primeiro estudo de caso consistiu da otimização experimental da formulação de uma tinta à base de resina alquídica, realizado em uma empresa do ramo de tintas. A aplicação do método aqui proposto visou à análise e minimização do problema de separação de fases que a tinta sofre normalmente. O estudo serviu também de teste para o *software*, apresentando bons resultados globais, e ainda possibilitando a identificação de algumas alterações necessárias, que vieram a torná-lo mais genérico.

O segundo caso descrito constituiu-se de um estudo comparativo de uma situação apresentada por Heinsman & Montgomery (1995), na qual se otimiza a formulação de um

produto de limpeza doméstico, através de técnicas de experimentos com mistura. Este estudo foi realizado também com o auxílio do OptiMix, após sua alteração, de acordo com as necessidades identificadas no primeiro estudo de caso. Seu objetivo principal foi demonstrar as diferenças nos resultados obtidos ao se aplicar os dois métodos.

1.1 Estudo de Caso A: separação de fases em tinta alquídica

O presente estudo foi realizado em uma empresa líder do ramo de tintas e consistiu da otimização experimental da formulação de uma tinta imobiliária, à base de resina alquídica. O nome da empresa será mantido em sigilo, e os dados sofrerão algumas modificações para preservar a confidencialidade das informações. O estudo de otimização seguiu os passos do método proposto, como descrito a seguir:

I - Identificação do problema e dos objetivos do estudo:

O problema que levou à realização de um estudo com a tinta acima descrita foi a **separação de fases** tradicionalmente observada na mesma, que ocorre no período entre sua produção e seu consumo. O resultado é a formação de uma pequena camada segregada de solvente acima da tinta, visível ao cliente apenas quando este abre a lata para aplicá-la. O problema pode ser resolvido com a simples homogeneização da tinta por parte do cliente, antes da aplicação; no entanto, isto causa uma má impressão no que diz respeito à qualidade do produto.

Dessa forma, o objetivo do estudo foi encontrar uma formulação que atendesse a dois requisitos básicos:

- minimizar a **separação de fases** normalmente observada nesta tinta;
- não prejudicar as demais características de qualidade da mesma.

Esta primeira etapa, conforme descrito no Capítulo 3 desta dissertação, inclui ainda a definição do produto e de todas as variáveis envolvidas no problema.

O produto em questão, como já foi mencionado, é uma tinta à base de resina alquídica para uso imobiliário. A mesma é composta pela mistura dos seguintes **ingredientes (fatores controláveis)**:

- Solvente
- Resina (pode ser de dois tipos)
- Secante
- Concentrado (é uma sub-mistura, contendo o pigmento que dá a cor à tinta)
- Aditivos (anti-bolha, nivelante, anti-pele e anti-corrugamento)

Além da separação de fases, a ser minimizada, as demais **características de qualidade** do produto a serem mantidas dentro de suas especificações foram definidas pela equipe de engenheiros da empresa participantes do estudo. São elas: Tempo de secagem, Nivelamento, Viscosidade, Cor, Poder de cobertura, Formação de pele, Sedimentação, Bolha, Brilho, Aderência, Flexibilidade, Resistência ao intemperismo.

No entanto, as características de qualidade citadas acima podem ser todas medidas ou representadas através de um subgrupo de **variáveis de resposta**, quais sejam: Corrugamento, Nivelamento, Altura da fase separada (absoluta e %), Viscosidade, Variação de viscosidade, DE (desvio da cor em relação ao padrão), Razão de Contraste (poder de cobertura) e Sedimentação.

Essas variáveis serão, daqui para a frente, referidas como Y_1, Y_2, \dots, Y_9 , não respectivamente, com o intuito de preservar a confidencialidade dos resultados obtidos. Os valores-alvo e limites de especificação definidos para cada variável de resposta serão apresentados também alterados, assim como seus resultados experimentais e os coeficientes dos modelos ajustados. Tais modificações tiveram o objetivo de manter o sigilo das informações sem, no entanto, prejudicar a coerência dos cálculos. O tipo, alvo, limites de especificação e importância relativa definidos para cada variável nesta etapa são apresentados na Tabela 5-1 a seguir.

Tabela 5-1: Caracterização das variáveis de resposta

Variável de	Tipo	Alvo	Limite	Limite	Importância
-------------	------	------	--------	--------	-------------

Resposta			Inferior	Superior	Relativa
Y_1	Nominal-é-melhor	125	120	130	7
Y_2	Menor-é-melhor	0	-	10	8
Y_3	Menor-é-melhor	0	-	1	10
Y_4	Menor-é-melhor	0	-	10	10
Y_5	Maior-é-melhor	5	4	-	10
Y_6	Maior-é-melhor	98	-	-	10
Y_7	Maior-é-melhor	5	4	-	10
Y_8	Menor-é-melhor	0,5	-	0,8	1
Y_9	Maior-é-melhor	5	4	-	8

Foram definidos ainda vários fatores que poderiam influenciar significativamente os valores medidos para as variáveis de resposta. Tais variáveis não foram consideradas fatores de ruído, uma vez que são controláveis. Decidiu-se então mantê-las **constantes**, a fim de que não prejudicassem a análise do efeito dos componentes. Foram mantidos constantes:

- Tipo de concentrado usado (apenas de uma cor – a que apresenta o problema de separação de fases em maior grau);
- tempo de mistura dos componentes;
- tipo de estufa utilizada para a realização dos testes;
- lote de fabricação dos componentes;
- realizador dos testes de nivelamento;
- realizador dos testes de cobertura;
- instrumentos de medida para os demais testes.

II - Seleção das variáveis a serem incluídas no estudo de otimização:

Nesta etapa, definiram-se as possíveis ou conhecidas correlações entre as variáveis de resposta a serem medidas, assim como a influência dos fatores controláveis sobre as mesmas. Dessa forma, pôde-se eliminar do estudo variáveis desnecessárias, economizando-se em tempo, recursos materiais e esforços computacionais.

Ao analisar as **variáveis de resposta** anteriormente levantadas, a equipe técnica concluiu que a variável Y_5 pode ser predita a partir do valor de algumas das demais; ou seja, em ajustes que forneçam bons valores para determinadas variáveis de resposta a serem medidas, sabe-se que Y_5 também terá um bom resultado. Assim, esta variável foi eliminada do estudo, renomeando-se as variáveis Y_6 a Y_9 para Y_5 a Y_8 .

Com relação aos **fatores controláveis**, a equipe técnica acredita que a variação dos níveis dos aditivos (anti-bolha, nivelante, anti-pele e anti-corrugamento) não influenciam visivelmente na separação de fases da tinta, uma vez que entram na formulação em quantidades muito pequenas com relação aos demais componentes. Assim, decidiu-se por manter constantes os níveis desses aditivos, que representam 1,41% do total da mistura. A mistura efetivamente variada consistiu, então, dos quatro componentes restantes, somando 98,59% a cada rodada (ao invés de 100%).

Decidiu-se ainda realizar um experimento em dois blocos, utilizando-se em cada um deles um tipo diferente de resina, a fim de observar se alguma delas apresenta melhores resultados do que a outra. Os diferentes tipos de resina foram representados, no planejamento e posterior modelagem da superfície de resposta, pelos valores +1 e -1 (níveis discretos).

A fim de preservar a confidencialidade da formulação, os quatro componentes que entraram no planejamento serão, daqui em diante, referidos por X_1 , X_2 , X_3 e X_4 (expressos em %), em ordem diversa daquela em que foram citados anteriormente.

Nesta fase, foi verificada a impossibilidade de incluir o componente X_4 em um planejamento experimental padrão, uma vez que o mesmo não pode variar livremente dentro da faixa estipulada. Para que o produto final possua as características desejáveis, este componente é usualmente adicionado em uma quantidade calculada em função dos níveis dos componentes X_1 e X_2 , em uma relação linear, do tipo: $X_4 = aX_1 + bX_2$ (onde a e b são constantes, representando respectivamente as razões de adição X_4/X_1 e X_4/X_2). Decidiu-se, portanto, excluir X_4 do planejamento padrão, calculando posteriormente sua quantidade “ideal” para cada rodada

planejada. A fim de avaliar a influência deste fator, optou-se por realizar um experimento replicado, adicionando o componente X_4 em um nível 10% acima do valor ideal calculado (nível +1) em uma replicação, e 10% abaixo (nível -1), na outra. Dessa forma, a mistura propriamente dita, a ser ensaiada de acordo com um planejamento específico para misturas, consistiu apenas dos componentes X_1 , X_2 e X_3 .

III - Especificação das variáveis selecionadas

Uma vez definida a sub-mistura a ser ensaiada, foram estipulados os níveis mínimo e máximo possíveis para cada componente; ou seja, níveis que, ao serem praticados, gerem o produto esperado, viabilizando a medida de suas características através das variáveis de resposta em estudo. Com a exclusão do componente X_4 do planejamento padrão, o total da mistura a ser considerada como tal passou a ser 96,30%. O ajuste atual e as faixas de variação possíveis para cada fator encontram-se na Tabela 5-2 a seguir.

Tabela 5-2: Caracterização dos fatores controláveis

Componente	Ajuste atual	Semi-amplitude de variação	Nível Mínimo	Nível Máximo	Variabilidade do ajuste
X_1	76,91	7,82	69,09	83,63	0,05
X_2	11,37	3,37	8,00	14,74	0,05
X_3	8,02	8,02	0,00	16,04	0,05
Total	96,30				

O espaço experimental assim delimitado pode ser representado em coordenadas de mistura (*simplex*), em um sub-*simplex* bidimensional, cujos limites são 0 e 96,30%, ao invés de 0 e 100%, como mostrado na Figura 5-1.

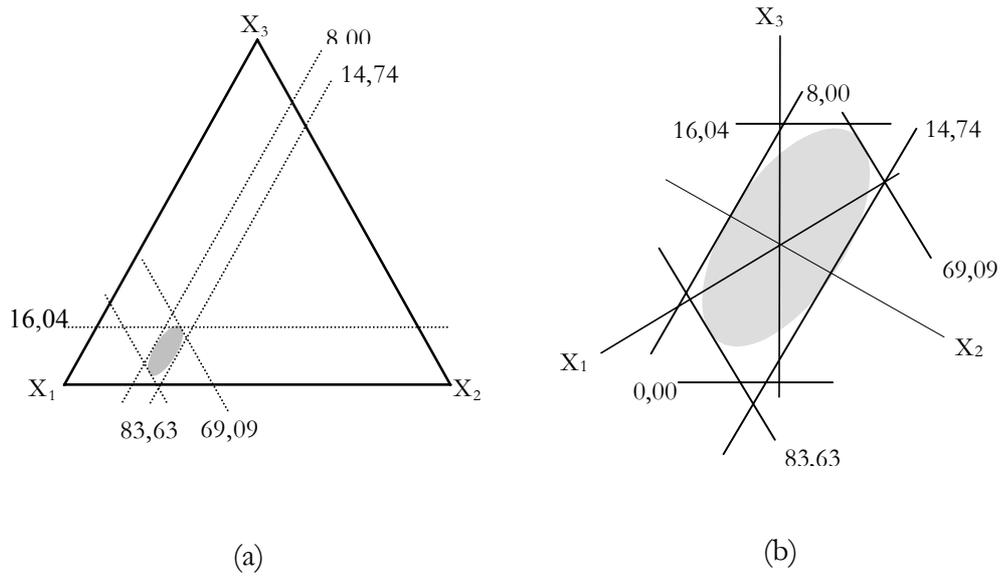


Figura 1-1: Espaço experimental em coordenadas de mistura (a) dentro do sub-simplex $X_1+X_2+X_3 = 96,30\%$ e (b) ampliado.

A partir do momento em que foram definidas as variáveis de resposta a serem incluídas na otimização e os componentes da mistura a entrarem no planejamento, lançou-se mão do uso do OptiMix, preenchendo-se as telas iniciais, de especificação das variáveis (Figuras 4-3 e 4-4) com os dados contidos nas Tabelas 5-1 e 5-2.

Constatou-se aí a necessidade da primeira alteração no método e no *software*, pois ambos foram construídos com base no pressuposto de que a mistura deveria sempre totalizar 100%. Como exemplificado neste estudo de caso, muitas vezes se desejará variar apenas um subgrupo de componentes, cuja soma não será 100%. Assim, optou-se por adaptar o método, sempre com o objetivo de torná-lo o mais abrangente possível, minimizando o trabalho do usuário.

Incluiu-se, portanto, no OptiMix, a opção de definir o total da mistura como um valor qualquer entre 0 e 100%, como mostrado na Figura 5-2:

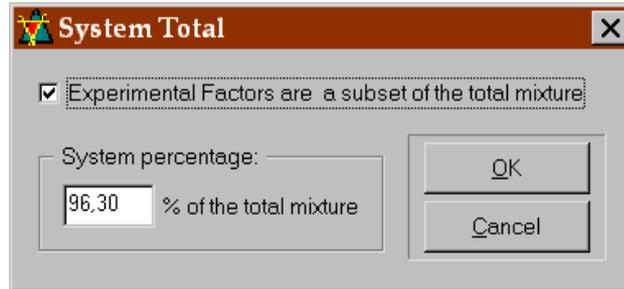


Figura 1-2: Definição do total formado pela sub-mistura em estudo.

Cabe ressaltar que a adaptação descrita acima foi necessária apenas no OptiMix, uma vez que o mesmo checa a composição do ponto central definido pelo usuário e, originalmente, não aceitava pontos centrais cuja composição não somasse 100%. Já as rotinas de cálculo da matriz experimental, através da matriz de transformação, não sofreram qualquer ajuste. Isso é plenamente justificável, se lembrarmos que o pressuposto que determina a forma da matriz de mudança de coordenadas é que a composição de todos os pontos experimentais deverá possuir uma soma igual à do ponto central; ou seja, se:

$$\sum_{i=1}^q x_i = \sum_{i=1}^q x_{oi}$$

e

$$\sum_{i=1}^q \frac{(x_i - x_{oi})}{h_i} = \sum_{i=1}^q v_i ,$$

então

$$\sum_{i=1}^q h_i v_i = 0 .$$

Esta é a condição que determina a forma da última coluna da matriz \mathbf{T} (o vetor \mathbf{T}_2) e, conseqüentemente, as demais, que devem ser ortogonais a ela. Assim, os pontos gerados por essa transformação, a partir de uma matriz W qualquer e da definição do ponto central do espaço da mistura, sempre respeitarão a soma das composições do ponto central, mesmo que abaixo de 100%.

IV - Escolha do tipo de Projeto Experimental mais adequado

Após a entrada das informações sobre o ponto central do espaço experimental da mistura e as faixas de variação de cada componente, escolheu-se, na tela *Design Selection*, um Projeto Composto Central 2^2 + Estrela, em dois blocos, com duas replicações. Os critérios utilizados para a escolha deste tipo de projeto foram:

- através da realização de um PCC de 2ª Ordem, possibilitar a detecção de efeitos não-lineares dos fatores controláveis;
- através da blocagem e replicação, incluir os fatores X_4 e tipo de resina como variáveis de processo, em níveis codificados +1 e -1, sem prejudicar a ortogonalidade do experimento.

O projeto experimental escolhido foi, a seguir, planejado pelo *software* em $(q - 1)$ variáveis independentes e apresentado ao usuário já convertido para variáveis de mistura (Passos V e VI do método: **Planejamento do Experimento em fatores independentes e Transformação da matriz experimental para variáveis de mistura**).

Tabela 5-3: Projeto experimental gerado pelo OptiMix

Rodada	Bloco	X_1	X_2	X_3
1	1	83,0841	9,6911	3,5247
2	1	78,3182	14,4570	3,5247
3	1	75,5018	8,2830	12,5153
4	1	70,7359	13,0489	12,5153
5	1	76,9100	11,3700	8,0200
6	2	80,2800	8,0000	8,0200
7	2	73,5400	14,7400	8,0200
8	2	82,2716	12,3657	1,6627
9	2	71,5484	10,3743	14,3773
10	2	76,9100	11,3700	8,0200

O experimento em termos das variáveis independentes também pode ser visualizado pelo usuário, se desejado, apresentando-se conforme mostrado na Tabela 5-4.

Tabela 5-4: Projeto experimental em variáveis independentes

Rodada	Bloco	W_1	W_2
1	1	-1,0000	-1,0000
2	1	1,0000	-1,0000
3	1	-1,0000	1,0000
4	1	1,0000	1,0000
5	1	0,0000	0,0000
6	2	-1,4142	0,0000
7	2	1,4142	0,0000
8	2	0,0000	-1,4142
9	2	0,0000	1,4142
10	2	0,0000	0,0000

Considerando-se ainda os dois fatores externos à mistura (o componente X_4 e o tipo de resina), o planejamento experimental completo em variáveis independentes tornou-se o mostrado na Tabela 5-4, onde os níveis do fator *Resina* são discretos, representando o tipo de resina utilizado na mistura. A distribuição dos níveis destes dois fatores adicionais foi feita de forma a manter a ortogonalidade do experimento.

Tabela 5-5: Projeto experimental completo em variáveis independentes

Rodada	Bloco	W_1	W_2	X_4	Resina
1	1	-1,0000	-1,0000	1,0000	1
2	1	1,0000	-1,0000	1,0000	1
3	1	-1,0000	1,0000	1,0000	1
4	1	1,0000	1,0000	1,0000	1
5	1	0,0000	0,0000	1,0000	1
6	2	-1,4142	0,0000	1,0000	-1
7	2	1,4142	0,0000	1,0000	-1
8	2	0,0000	-1,4142	1,0000	-1
9	2	0,0000	1,4142	1,0000	-1
10	2	0,0000	0,0000	1,0000	-1
11	3	-1,0000	-1,0000	-1,0000	-1
12	3	1,0000	-1,0000	-1,0000	-1
13	3	-1,0000	1,0000	-1,0000	-1
14	3	1,0000	1,0000	-1,0000	-1
15	3	0,0000	0,0000	-1,0000	-1
16	4	-1,4142	0,0000	-1,0000	1
17	4	1,4142	0,0000	-1,0000	1
18	4	0,0000	-1,4142	-1,0000	1
19	4	0,0000	1,4142	-1,0000	1
20	4	0,0000	0,0000	-1,0000	1

Nesta etapa, verificou-se a necessidade de uma segunda alteração no *software*, permitindo a inclusão de fatores controláveis adicionais tanto na planilha experimental como nos modelos a serem ajustados. Essa adaptação não acarretou qualquer mudança no método em si, uma vez que o enfoque adotado, de realizar o planejamento em variáveis independentes, já permitia a inclusão de variáveis de processo no estudo sem prejudicar a distribuição espacial dos pontos experimentais.

A distribuição espacial dos pontos experimentais planejados é mostrada na Figura 5-3 a seguir, em coordenadas de mistura. Já na Figura 5-4, pode-se observar a rotabilidade do projeto, apresentado em termos dos fatores independentes correspondentes.

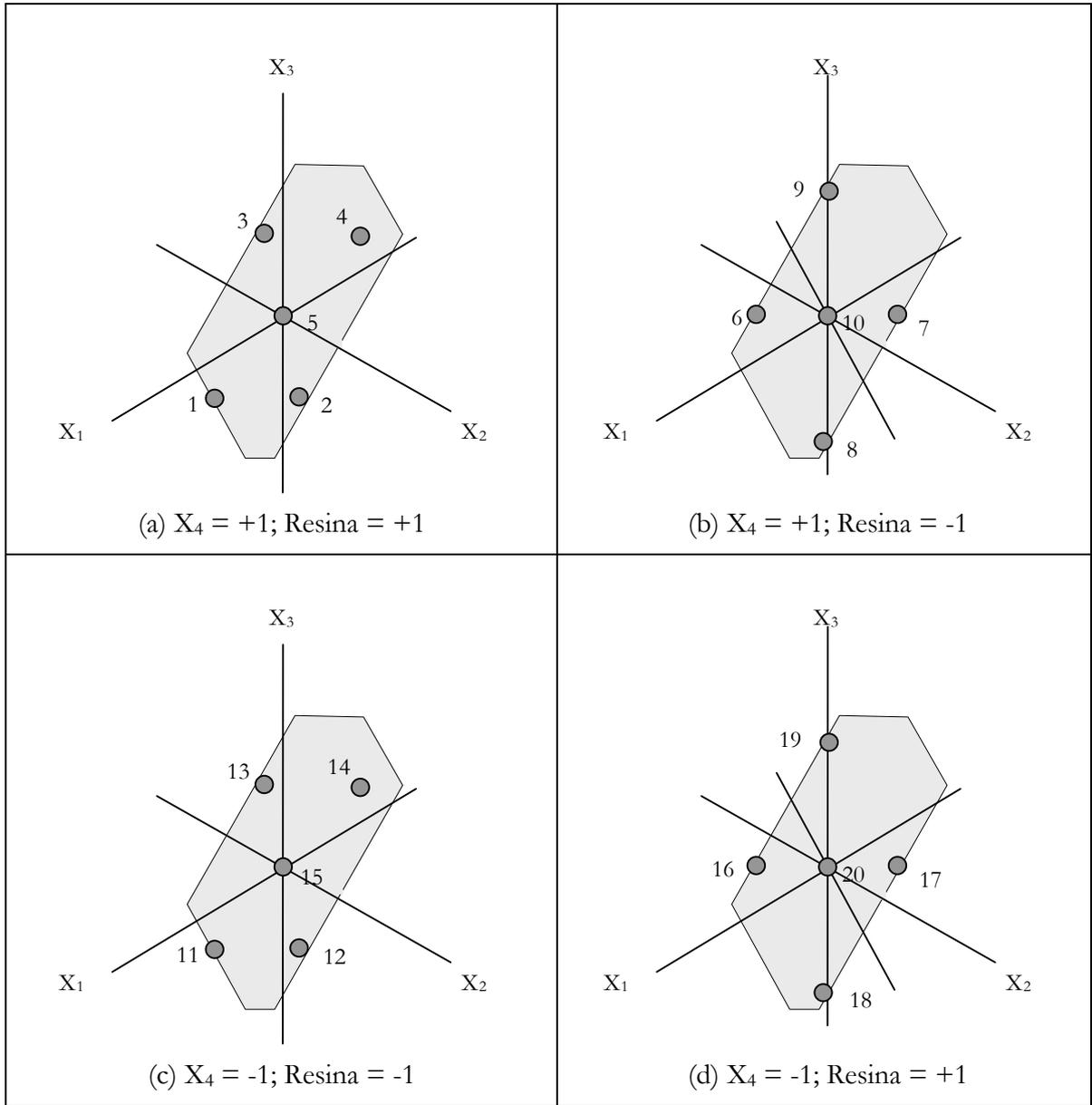


Figura 1-3: Distribuição espacial dos pontos experimentais em coordenadas de mistura.

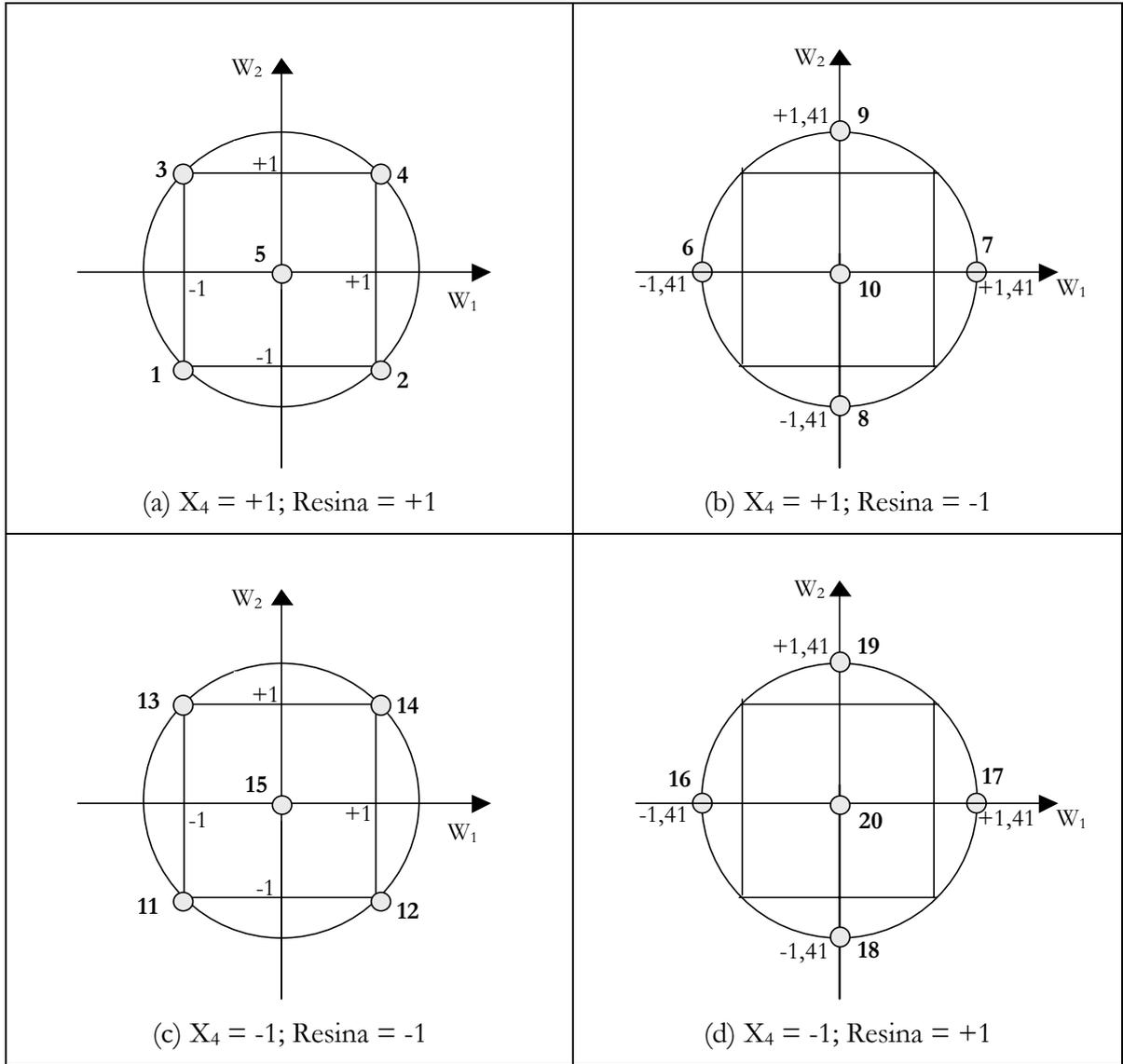


Figura 1-4: Distribuição espacial dos pontos experimentais em coordenadas independentes.

VII - Execução do Experimento:

O experimento foi executado com base na matriz experimental gerada pelo OptiMix, tendo-se, no entanto, feito as devidas conversões dos valores mostrados na Tabela 5-3 para os níveis reais dos componentes X_1 , X_2 e X_3 na mistura total (incluindo o componente X_4 e os aditivos, cujas proporções foram mantidas constantes).

Como já foi descrito, o componente X_4 teve sua proporção calculada em função dos componentes X_1 e X_2 , tendo sido adicionado em uma quantidade 10% superior ao valor calculado, nas dez primeiras rodadas, e 10% inferior, nas demais. Assim,

$$X_{u4} = 1,10(aX_{u1} + bX_{u2}), \text{ para } 1 \leq u \leq 10 \quad (5.1)$$

$$X_{u4} = 0,90(aX_{u1} + bX_{u2}), \text{ para } 11 \leq u \leq 20 \quad (5.2)$$

Entretanto, visto que os aditivos deveriam ser adicionados sempre nas mesmas proporções, somando 1,41%, os componentes X_1 , X_2 , X_3 e X_4 deveriam totalizar 98,59% em cada rodada. Assim, para cada ponto experimental, a proporção de cada componente de X_1 a X_4 foi dividida pela sua soma e multiplicada por 98,59. Ou seja, para cada rodada u :

$$X_{ui} = 98,59 \frac{X_{ui}}{\sum_{j=1}^q X_{uj}}, \text{ para } i = 1, 2, 3 \quad (5.3)$$

A conversão da planilha originalmente gerada pelo OptiMix foi realizada no Excel 7, através das operações de Copiar e Colar disponíveis nos dois aplicativos e da aplicação das equações 5.1, 5.2 e 5.3. A matriz experimental assim obtida é mostrada na Tabela 5-6. As proporções calculadas para os componentes são apresentados com apenas duas casas decimais, uma vez que esta é a precisão dos aparelhos de medida utilizados para as pesagens dos mesmos.

O experimento foi realizado pela equipe técnica da empresa, de acordo com essa planilha, tendo-se o cuidado de executar os ensaios e coletar os dados resultantes em ordem aleatória.

Tabela 5-6: Planilha experimental modificada de acordo com os níveis a serem efetivamente executados

Rodada	Bloco	Resina	X ₁	X ₂	X ₃	X ₄	Aditivos	Total
1	1	+1	82,74	9,65	3,51	2,69	1,41	100,00
2	1	+1	78,08	14,41	3,51	2,58	1,41	100,00
3	1	+1	75,38	8,27	12,50	2,44	1,41	100,00
4	1	+1	70,70	13,04	12,51	2,34	1,41	100,00
5	1	+1	76,73	11,34	8,00	2,51	1,41	100,00
6	2	-1	80,03	7,98	8,00	2,59	1,41	100,00
7	2	-1	73,43	14,72	8,01	2,44	1,41	100,00
8	2	-1	81,93	12,32	1,66	2,68	1,41	100,00
9	2	-1	71,51	10,37	14,37	2,34	1,41	100,00
10	2	-1	76,73	11,34	8,00	2,51	1,41	100,00
11	3	-1	83,15	9,70	3,53	2,21	1,41	100,00
12	3	-1	78,45	14,48	3,53	2,12	1,41	100,00
13	3	-1	75,72	8,31	12,55	2,01	1,41	100,00
14	3	-1	71,01	13,10	12,56	1,92	1,41	100,00
15	3	-1	77,09	11,40	8,04	2,07	1,41	100,00
16	4	+1	80,42	8,01	8,03	2,13	1,41	100,00
17	4	+1	73,76	14,78	8,04	2,00	1,41	100,00
18	4	+1	82,34	12,38	1,66	2,21	1,41	100,00
19	4	+1	71,82	10,41	14,43	1,92	1,41	100,00
20	4	+1	77,09	11,40	8,04	2,07	1,41	100,00

Os dados obtidos para as oito variáveis de resposta medidas encontram-se (modificados) na Tabela 5-7 a seguir.

Tabela 5-7: Resultados experimentais para as variáveis de resposta observadas.

Rodada	Y ₁	Y ₂	Y ₃	Y ₄	Y ₅	Y ₆	Y ₇	Y ₈
1	184	23,65	3	73,75	4,2	93,89	2,33	0,00
2	75	66,22	3	62,50	4,2	99,02	0,75	0,00
3	70	9,09	3	76,25	4,0	88,05	4,12	0,00
4	54	11,11	3	70,00	4,0	97,23	1,19	0,00
5	121	5,47	3	70,51	3,8	96,26	1,45	0,00
6	128	0,78	2	80,25	4,8	87,51	4,21	0,00
7	117	3,31	2	67,50	4,6	98,83	0,36	0,00
8	291	12,87	0	71,25	4,6	97,92	1,25	0,00
9	56	6,67	3	76,83	2,8	92,74	2,32	0,00
10	122	3,94	2	73,75	4,6	95,68	1,72	0,00
11	242	6,14	0	73,42	4,6	93,41	2,48	0,00
12	206	10,82	1	67,90	4,6	98,60	0,73	0,00
13	76	10,14	3	80,77	3,0	86,82	4,28	0,00
14	69	36,70	3	72,73	3,0	97,05	1,34	0,00
15	119	9,85	1	73,75	4,8	97,37	1,54	0,00
16	114	16,79	3	61,01	4,8	87,17	3,95	0,00
17	94	8,74	3	62,96	3,8	98,76	0,74	0,00
18	262	2,75	2	67,50	3,8	97,20	1,00	0,00
19	57	1,72	2	77,22	4,0	93,13	2,56	0,00
20	142	29,09	2	75,00	4,6	95,44	1,87	0,00

VIII - Modelagem da superfície de resposta

A etapa seguinte consistiu da modelagem individual de todas as variáveis de resposta medidas, com exceção da variável Y₈, cujos resultados não apresentaram qualquer variação sobre o espaço experimental pesquisado. Esta variável foi, portanto, excluída dos processos de modelagem e otimização subsequentes.

Os modelos para a média e variabilidade das variáveis Y₁ a Y₇ foram ajustados no OptiMix, incluindo-se na regressão todos os termos de um modelo **Quadrático**, porém, com a opção de *Forward Selection*. Esse método de regressão, como descrito no Capítulo 2, inclui inicialmente no modelo o termo de maior significância, e após, apenas os termos que não

provoquem uma diminuição da significância do modelo. O nível de significância estipulado para aceitação dos modelos foi de 5,00%.

O processo de modelagem incluiu também a análise dos gráficos de resíduos em função da média estimada e dos diversos fatores independentes. Esse tipo de análise permite a detecção de pontos espúrios, que devem ser eliminados do ajuste, além de eventuais tendências na distribuição dos resíduos, que podem indicar a falta ou excesso de determinados termos no modelo previamente ajustado. Por exemplo, para a estimativa da variável Y_1 , ajustou-se inicialmente, com o uso de *Forward Selection*, o modelo $\hat{Y}_1 = 129,9500 - 66,2678 W_2$. Os gráficos de resíduos traçados para o mesmo encontram-se na Figura 5-5 a seguir.

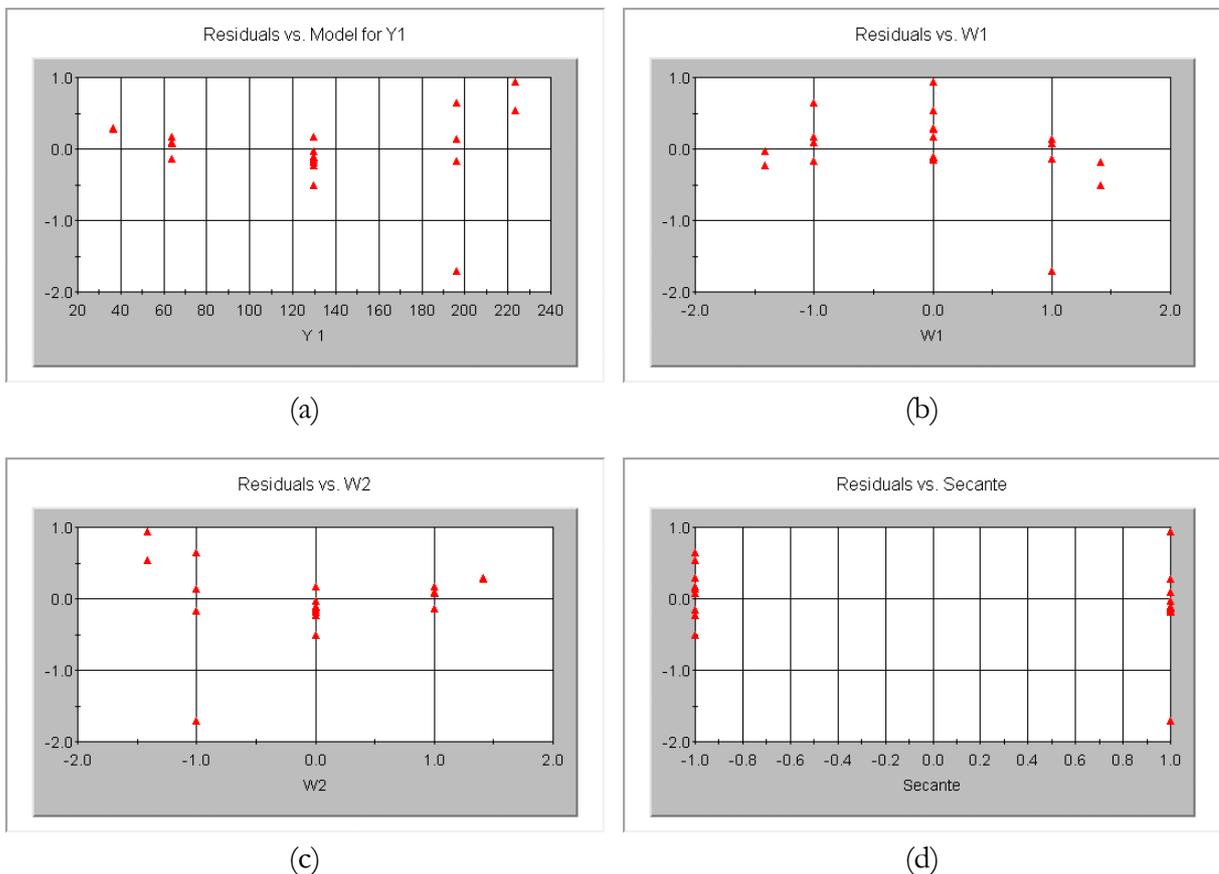


Figura 1-5: Gráficos de resíduos do modelo para Y_2 versus (a) estimativas; (b) W_1 ; (c) W_2 ; e (d) Secante.

Através da análise desses gráficos, pôde-se constatar a inadequação do modelo ajustado, demonstrada pela tendência quadrática na distribuição dos resíduos *versus* a média, W_1 e W_2 (Figuras 5-5 (a),(b) e (c)). Além disso, verificou-se a existência de um ponto espúrio em $W_1=1$,

$W_2 = -1$ e $Secante = 1$, correspondente à rodada número 2 (ver Figura 5-5 e Tabela 5-5). Este ponto foi eliminado da matriz experimental, e procedeu-se ao ajuste de um novo modelo quadrático para a variável de resposta Y_1 , também com *Forward Selection*.

O novo modelo assim obtido para a estimativa de Y_1 incluiu um termo quadrático adicional, cujo efeito pode ser observado nos gráficos de resíduos resultantes. Os mesmos demonstram a distribuição aleatória dos resíduos (Figura 5-6), indicando a melhor adequação deste modelo em relação ao anterior. O mesmo procedimento foi adotado para todas as variáveis de resposta, obtendo-se os modelos apresentados na Tabela 5-8.

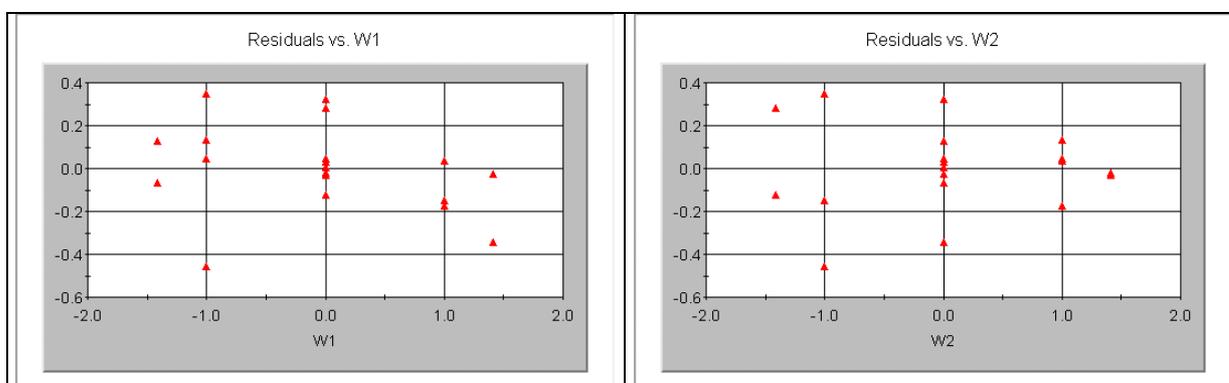


Figura 1-6: Gráficos de Resíduos para o modelo ajustado à variável Y_1 sem a observação da rodada 2.

Tabela 5-8: Modelos ajustados para a estimativa da média das variáveis de resposta.

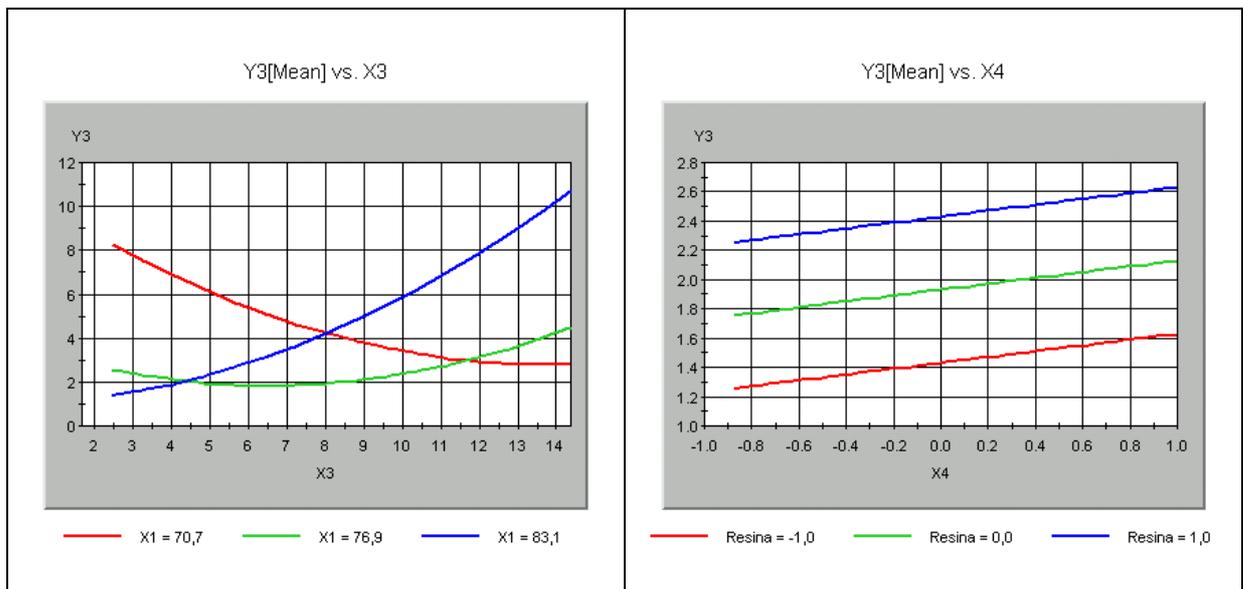
Modelos para a Média	F_{\min}	F	R^2	R^2_{ajust}
$Y_1 = 118,6698 - 75,1280 W_2 + 22,9615 W_2^2$	5,8733	185,3287	95,86%	95,62%
$Y_2 = 9,6072$	8,7052	0,0000	0,00%	5,56%
$Y_3 = 1,9286 + 0,5777 W_2 + 0,2000 X_4 + 0,5000 \text{ Resina} - 0,5777 W_2 \text{ Resina} + 0,3393 W_1^2$	4,6362	34,7316	92,54%	90,55%
$Y_4 = 72,5654 - 4,3506 W_1 + 2,7386 W_2 - 1,2496 \text{ Resina}$	5,8733	53,7853	91,49%	90,43%
$Y_5 = 4,4214 - 0,3664 W_2 + 0,3518 W_2 \text{ Resina} - 0,3643 W_2^2$	4,6362	16,9413	76,06%	73,24%
$Y_6 = 96,1875 + 3,8831 W_1 - 1,8032 W_2 + 1,1362 W_1 W_2 - 1,5347 W_1^2 - 0,4447 W_2^2$	4,6362	201,2988	98,63%	98,26%
$Y_7 = 1,7491 - 1,2062 W_1 + 0,5299 W_2 - 0,3031 W_1 W_2 + 0,3183 W_1^2$	5,8733	188,3781	98,18%	97,81%

A partir dos modelos ajustados para a média, pode-se ajustar modelos para a variabilidade de cada variável de resposta, utilizando como estimadores da variância os resíduos quadráticos. Os modelos foram ajustados a $\log(r_i^2 + c \cdot \bar{r}^2)$, com $c = 0,02$, conforme sugerido por Barbetta et al (1997). Tais modelos encontram-se na Tabela 5-9 a seguir:

Tabela 5-9: Modelos ajustados para a estimativa da variância das variáveis de resposta.

Modelos para a Variância	F_{\min}	F	R^2	R^2_{ajust}
$\log(r_{i1}^2 + c.\bar{r}^2) = 4,1187 - 1,1659 W_2 + 0,8411 W_1 \text{Resina}$	3,6337	7,1427	47,17%	44,06%
$\log(r_{i2}^2 + c.\bar{r}^2) = 2,6860$	3,1791	0,0000	0,00%	5,56%
$\log(r_{i3}^2 + c.\bar{r}^2) = -3,5330 - 0,8636 \text{Resina}$	4,6362	6,4047	26,24%	26,24%
$\log(r_{i4}^2 + c.\bar{r}^2) = -0,5469$	5,8733	0,0000	0,00%	5,56%
$\log(r_{i5}^2 + c.\bar{r}^2) = -2,4545 - 0,5539 X_4 - 0,5623 W_2 X_4 - 0,9052 W_2^2$	4,6362	7,0782	57,03%	51,97%
$\log(r_{i6}^2 + c.\bar{r}^2) = -2,7802$	4,6362	0,0000	0,00%	5,00%
$\log(r_{i7}^2 + c.\bar{r}^2) = -5,3779$	5,8733	0,0000	0,00%	5,26%

Após o ajuste de todos os modelos apresentados nas Tabelas 5-8 e 5-9, foi possível analisar o comportamento das diversas variáveis de resposta em função da composição da mistura, através dos gráficos de dois fatores e de curvas de nível das superfícies de resposta gerados pelo OptiMix.

Figura 1-7: Gráficos de dois fatores para a estimativa da média da variável Y_3 .

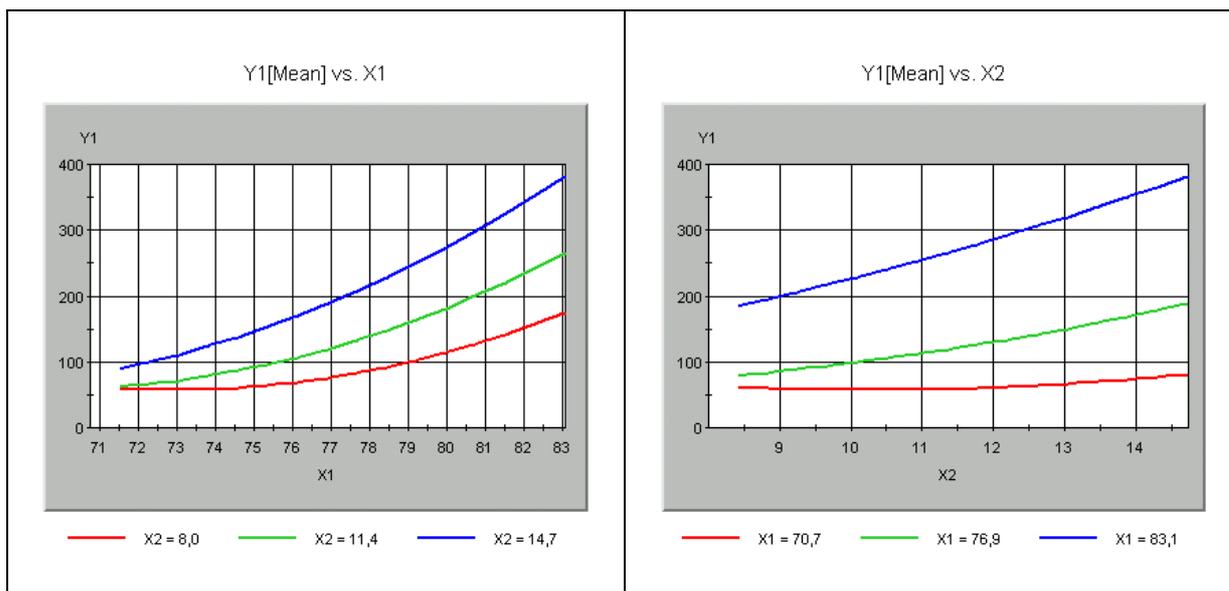


Figura 1-8: Gráficos de dois fatores para a estimativa da média da variável Y_1 .

Para fins de ilustração, são apresentados, nas Figuras 5-7 e 5-8, os gráficos de dois fatores que demonstram a influência dos diversos componentes da tinta em estudo nas variáveis de resposta Y_3 e Y_1 , respectivamente.

Por exemplo, através da observação do gráfico da Figura 5-7(a), verifica-se que os melhores resultados para a variável Y_3 (do tipo menor-é-melhor) são obtidos com níveis mais baixos do componente X_3 e do componente X_1 , conjuntamente (dentro do espaço experimental pesquisado). Já o gráfico da Figura 5-7(b) demonstra que o uso do componente X_4 abaixo das proporções relativas normalmente utilizadas fornece os melhores valores para Y_3 , independente do tipo de Resina.

Da mesma forma, analisando-se as Figuras 5-8 (a) e (b), conclui-se que os melhores resultados para a variável Y_1 (do tipo nominal-é-melhor, com alvo 125) são fornecidos por uma combinação das proporções dos componentes X_1 e X_2 , tal que sua soma permaneça em torno de 88% (considerando-se a mistura $X_1 + X_2 + X_3 = 96,30\%$).

IX - Otimização da qualidade da mistura:

Tendo-se em mão os modelos ajustados na etapa anterior, foi possível construir a Função Perda a ser minimizada, conforme a Eq. 3.2. Tanto a determinação dos termos da função como sua otimização foram realizadas com o auxílio das rotinas computacionais implementadas no OptiMix. Tais rotinas, de “busca” do ajuste ótimo, basearam-se na rotina “BUSCA” (Ribeiro, 1995), escrita originalmente em QuickBasic, a qual foi adaptada e incorporada ao *software* desenvolvido no decorrer deste trabalho.

Um procedimento especial foi adotado para encontrar o ponto ótimo, uma vez que o fator controlável Resina é uma variável discreta. Como explicado na etapa **II - Seleção das variáveis a serem incluídas no estudo de otimização**, essa variável se refere ao tipo de resina utilizada na composição da tinta, podendo ser apenas de um ou de outro tipo (+1 ou -1). Valores intermediários entre esses níveis poderiam ser interpretados como uma mistura dos dois tipos de resina; no entanto, não é de interesse da empresa empregar tal artifício, pois isso complicaria e encareceria o processo. Assim, decidiu-se encontrar os ajustes ótimos para o nível do fator Resina fixo em -1 e, posteriormente, em +1. Comparando-se os dois resultados obtidos, concluiu-se qual dos dois tipos de resina é capaz de fornecer a melhor qualidade global para a mistura.

Como a rotina utilizada para encontrar o mínimo da Função Perda exige que o usuário determine uma faixa de variação para cada fator, a forma encontrada para manter um fator fixo foi estipular tanto o máximo como o mínimo de sua faixa de variação iguais ao valor desejado. No caso da variável Resina, que deveria ser mantida em -1 ou +1, definiu-se sua faixa de variação como [-1,0000; -1,0000] na primeira otimização, e [1,0000; 1,0000] na segunda. Os resultados obtidos encontram-se nas Tabelas 5-11, 5-12, 5-13 e 5-14 a seguir.

Tabela 5-11: Ajuste ótimo para a qualidade global da tinta, com a resina do tipo -1.

Composição da Mistura		Ajuste em Coordenadas Independentes	
X ₁	74,87%	W ₁	1,0252
X ₂	13,89%	W ₂	-0,1061
X ₃	7,54%	X ₄	-0,7250
Total	96,30%	Resina	-1,0000

Tabela 5-12: Estimativas e perdas resultantes para o ajuste ótimo da tinta com a resina do tipo -1.

Variável	Alvo	Estimativa	Desvio	Perda
Y ₁	125,00	126,90	5,4197	0,1420
Y ₂	0,0000	9,6072	3,5987	0,1658
Y ₃	0,0000	1,5176	0,2632	0,3650
Y ₄	0,0000	69,065	0,7608	7,3392
Y ₅	5,0000	4,4935	0,3488	0,0580
Y ₆	98,000	98,618	0,2490	0,0000
Y ₇	0,5000	0,8238	0,0680	0,1871
Total				8,2571

Tabela 5-13: Ajuste ótimo para a qualidade global da tinta, com a resina do tipo +1.

Composição da Mistura		Ajuste em Coordenadas Independentes	
X ₁	74,96%	W ₁	0,9757
X ₂	13,76%	W ₂	-0,0990
X ₃	7,58%	X ₄	-0,7300
Total	96,30%	Resina	1,0000

Tabela 5-14: Estimativas e perdas resultantes para o ajuste ótimo da tinta com a resina do tipo +1.

Variável	Alvo	Estimativa	Desvio	Perda
Y ₁	125,00	126,33	12,520	0,6829
Y ₂	0,0000	9,6072	3,5987	0,1295
Y ₃	0,0000	2,6055	0,1110	1,0463
Y ₄	0,0000	66,800	0,7608	6,8659
Y ₅	5,0000	4,4193	0,3500	0,0707
Y ₆	98,000	98,580	0,2490	0,0000
Y ₇	0,5000	0,8520	0,0680	0,2197
Total				9,0151

X – Análise dos Resultados e Conclusões:

Pela análise dos valores resultantes das duas otimizações, expostos nas tabelas anteriores, verificou-se que a menor perda global obtida foi de 8,2571, fornecida pela resina do tipo - 1. Observa-se, porém, que o tipo de resina utilizada não influencia a perda da variável de resposta Y_6 e afeta apenas fracamente a perda das variáveis Y_2 , Y_4 , Y_5 e Y_7 .

Quanto aos demais fatores, a formulação ideal indicada para os dois tipos de resina apresentou resultados bastante semelhantes. Uma vez que os níveis +1/-1 deste fator representam sua adição em proporções 10% acima/abaixo da quantidade atualmente utilizada, o valor ótimo de -0,073 representa uma proporção 0,73% inferior à atual.

Convertendo-se, então, os valores do ajuste ótimo de X_1 , X_2 , X_3 e X_4 para seus níveis reais, obtém-se:

$$X_4 = (1,00 - 0,0073)(aX_1 + bX_2) = 2,2657$$

$$X_1 + X_2 + X_3 + X_4 = 74,87 + 13,89 + 7,54 + 2,26 = 98,56$$

ou seja,

$$X_{1Real} = 98,59 \frac{74,87}{98,56} \cong 74,89$$

$$X_{2Real} = 98,59 \frac{13,89}{98,56} \cong 13,89$$

$$X_{3Real} = 98,59 \frac{7,54}{98,56} \cong 7,54$$

$$X_{4Real} = 98,59 \frac{2,26}{98,56} \cong 2,27$$

Comparando-se este ajuste com o atualmente praticado pela empresa (ponto central do experimento $\rightarrow X_1 = 76,30$; $X_2 = 11,37$; $X_3 = 8,02$ e $X_4 = 2,29$), conclui-se que a mesma já

trabalha com uma formulação bem próxima da ótima. A maior diferença observada é na proporção do componente X_2 , justamente o suspeito, por parte da equipe envolvida no estudo, de ser o responsável pelo problema de separação de fases. No entanto, os resultados deste trabalho possibilitaram a eliminação dessa hipótese, verificando-se inclusive que uma maior quantidade daquele componente favorece não só uma menor separação de fases como o aumento da qualidade global da tinta.

Com relação ao tipo de resina, cabe salientar que o apontado por este trabalho como o ótimo para a qualidade global da formulação não é o que a empresa utiliza atualmente. A resina empregada é a do tipo +1, e não a -1, uma vez que esta apresenta maior custo. A fim de levar em conta, na análise, o aspecto econômico, pode-se sugerir dois procedimentos:

- Encontrar uma função Perda Global (qualidade + custos), segundo o procedimento adotado por Pasa (1996), que consiste em transformar a expressão da perda de qualidade em perda monetária e somá-la a uma expressão para o custo de fabricação da formulação. A minimização dessa função para cada uma das resinas forneceria o compromisso entre qualidade e custo.

ou

- Adotar a formulação ótima indicada para a resina do tipo +1, conforme os valores mostrados nas Tabelas 5-13 e 5-14. Uma vez que os valores obtidos para a perda de qualidade nas duas otimizações são bastante próximos (8,2571 e 9,0151), a hipótese de a empresa possuir elementos suficientes para afirmar que a utilização da resina -1 implica sempre um maior custo justificaria desprezar essa pequena diferença na qualidade do produto.

1.2 Estudo de Caso B: *otimização* de um produto de limpeza doméstico

O presente estudo de caso tem por objetivos:

- a) comparar a metodologia utilizada por Heinsman & Montgomery (1995), na otimização da formulação de um produto de limpeza, com a metodologia proposta neste trabalho;

- b) comparar os diferentes resultados obtidos através das duas metodologias.

Inicialmente, as duas metodologias são bastante similares, partindo da identificação do problema e dos objetivos do estudo e prosseguindo com a especificação das variáveis de resposta e região experimental. A partir de então, são utilizadas por Heinsman & Montgomery técnicas completamente diversas das sugeridas neste trabalho de dissertação.

A seguir, descreve-se a parte inicial do estudo de otimização, comum às duas metodologias:

I - Identificação do problema e dos objetivos do estudo

O **objetivo** do estudo realizado por Heinsman & Montgomery (1995) foi a maximização da duração do produto de limpeza. Como no problema anterior, entretanto, devia-se ter o cuidado de manter as demais características de qualidade dentro dos limites desejáveis.

As **características de qualidade** de interesse para os consumidores deste produto são basicamente duas: a duração e a capacidade de remoção de gorduras. Essas características foram medidas através de quatro variáveis de resposta: vida do produto, número de cargas de resíduos emulsificados, altura da espuma e quantidade total de espuma produzida. A fim de simplificar a descrição do estudo, as variáveis mencionadas acima serão, daqui para diante, representadas respectivamente por Y_1 , Y_2 , Y_3 e Y_4 .

O produto em questão consiste dos seguintes **componentes**: Surfactante não-iônico A, Surfactante aniônico, Surfactante não-iônico B e Surfactante Zwitteriônico. Por razões de praticidade, essas variáveis serão também renomeadas para X_1 , X_2 , X_3 e X_4 , respectivamente.

O artigo que descreve o estudo de otimização realizado por Heinsman & Montgomery (1995) não menciona se houve uma etapa preliminar de seleção das variáveis de resposta ou de um subconjunto dos componentes da mistura. Sabe-se apenas que todos os componentes e variáveis de resposta citados foram incluídos no planejamento e análise subsequentes.

II - Especificação das variáveis selecionadas

Quanto aos valores-alvo e importâncias relativas de tais variáveis, os autores mencionam que todas devem ser maximizadas e que a primeira (vida do produto) é mais importante do que as outras. Para as variáveis Y_2 , Y_3 e Y_4 , são definidos os limites inferiores mostrados na tabela a seguir.

Tabela 5-15: Caracterização das variáveis de resposta

Variável	Tipo	Limite Inferior	Importância
Y_1	Maior-é-melhor	-	Maior
Y_2	Maior-é-melhor	19	Menor
Y_3	Maior-é-melhor	82	Menor
Y_4	Maior-é-melhor	1000	Menor

Tabela 5-16: Caracterização da região experimental

Componente	Limite Inferior	Limite Superior
X_1	50,00	100,00
X_2	0,00	50,00
X_3	0,00	50,00
X_4	0,00	5,00

1.2.1 Metodologia utilizada por Heinsman & Montgomery (1995)

A seguir, descrever-se-á resumidamente as técnicas utilizadas por Heinsman & Montgomery (1995) no planejamento experimental, análise e otimização do produto de limpeza.

1.2.1.1 Planejamento Experimental

O projeto experimental foi construído diretamente em coordenadas de mistura, e a seleção dos pontos baseou-se nos seguintes critérios:

- distribuição aproximadamente uniforme dos pontos sobre a região experimental;

- minimização da variância dos coeficientes de regressão nos modelos das superfícies de resposta resultantes (critério do D-ótimo);
- número de pontos suficientes para o ajuste dos modelos desejados.

Foi então selecionado o projeto de $n = 20$ rodadas mostrado na Tabela 5-17. Este planejamento foi construído através de rotinas computacionais que implementam o método do D-ótimo, sendo forçada, pelos autores, a entrada de pontos interiores axiais e do centróide da região experimental. Segundo Heinsman & Montgomery (1995), a estratégia utilizada forneceu um espaçamento mais uniforme aos pontos dentro da região de planejamento do que resultaria do uso puro da estratégia do D-ótimo para selecionar todas as 20 rodadas.

Tabela 5-17: Projeto experimental em variáveis de mistura. Fonte: Heinsman & Montgomery (1995)

Rodada	X ₁	X ₂	X ₃	X ₄
1	100,00	0,00	0,00	0,00
2	50,00	50,00	0,00	0,00
3	50,00	0,00	50,00	0,00
4	95,00	0,00	0,00	5,00
5	50,00	45,00	0,00	5,00
6	50,00	0,00	45,00	5,00
7	75,00	25,00	0,00	0,00
8	75,00	0,00	25,00	0,00
9	50,00	25,00	25,00	0,00
10	72,50	22,50	0,00	5,00
11	72,50	0,00	22,50	5,00
12	65,00	15,00	15,00	5,00
13	65,00	15,00	15,00	5,00
14	82,90	7,92	7,92	1,25
15	65,80	15,83	15,83	2,50
16	57,90	32,92	7,92	1,25
17	57,90	7,92	32,92	1,25
18	80,40	7,92	7,92	3,75
19	57,90	30,42	7,92	3,75
20	57,90	7,92	30,42	3,75

As 20 rodadas do experimento projetado foram conduzidas em ordem aleatória, sendo os valores observados para as variáveis de resposta apresentados na Tabela 5-18.

Tabela 5-18: Valores observados para as variáveis de resposta. Fonte: Heinsman & Montgomery (1995)

Rodada	Y ₁	Y ₂	Y ₃	Y ₄
1	7,170	7,00	95,0	559,0
2	2,680	20,00	92,0	1320,0
3	3,080	3,00	44,0	275,0
4	6,990	7,00	73,0	508,0
5	2,920	20,00	105,0	1436,0
6	2,890	5,00	45,0	371,0
7	4,830	20,00	88,0	12,1
8	3,850	8,00	53,0	510,0
9	3,130	20,00	70,0	1123,0
10	4,430	20,00	80,0	1196,0
11	3,600	8,00	75,0	581,0
12	3,750	20,00	58,0	1061,0
13	3,260	20,00	59,0	1087,0
14	5,390	8,00	65,0	546,0
15	4,310	20,00	55,0	1069,0
16	2,640	20,00	80,0	1310,0
17	3,560	20,00	57,0	1011,0
18	5,230	20,00	68,0	1039,0
19	3,220	20,00	76,0	1192,0
20	3,520	20,00	59,0	1087,0

1.2.1.2 Análise da superfície de resposta

Toda a análise dos dados e o ajuste de modelos foi realizada em termos de pseudocomponentes, com o objetivo de minimizar problemas potenciais como a multicolinearidade dos coeficientes ou mau-condicionamento das matrizes na Regressão por Mínimos Quadrados.

Sendo X_i o i -ésimo componente original, o pseudocomponente correspondente é definido como:

$$x_i = \frac{X_i - L_i}{1 - \sum_{i=1}^4 L_i} \quad (5.4)$$

sendo L_i o limite inferior para a proporção do componente X_i .

Durante o processo de Regressão Múltipla de cada variável de resposta em função dos pseudocomponentes, foram testados os modelos Linear, Quadrático, Cúbico Completo e Cúbico Especial. A seguir, os ajustes obtidos foram comparados através dos respectivos R^2 , R^2_{ajust} , estatística F , testes de falta de ajuste, estatística *PRESS*, gráficos de resíduos *versus* resposta predita e resíduos em papel de probabilidade Normal. Baseados nesses resultados, os autores decidiram adotar modelos quadráticos para $\sqrt{\hat{Y}_1}$ e \hat{Y}_2 , e cúbicos especiais para \hat{Y}_3 e $\sqrt{\hat{Y}_4}$. As estatísticas para os modelos adotados encontram-se na Tabela 5-19 a seguir.

Tabela 5-19: Estatísticas para os modelos ajustados às variáveis $\sqrt{Y_1}$, Y_2 , Y_3 e $\sqrt{Y_4}$.

Variável	R^2	R^2_{ajust}
$\sqrt{\hat{Y}_1}$	94,84%	90,20%
\hat{Y}_2	82,42%	66,59%
\hat{Y}_3	98,06%	93,86%
$\sqrt{\hat{Y}_4}$	97,30%	91,44%

1.2.1.3 Otimização global da qualidade da formulação

O problema foi inicialmente otimizado através da formulação de um problema de programação não-linear, com:

Função-objetivo: Max Y_1

Restrições: $Y_2 \geq 19$, $Y_3 \geq 82$ e $Y_4 \geq 1000$ (5.5)

A solução para este problema foi encontrada através de uma implementação computacional do “*Método do Gradiente Reduzido*”, um procedimento sugerido por Del Castillo & Montgomery (1992) para a resolução de problemas de programação não-linear no contexto de

misturas. Os autores não deixam claro qual foi o pacote utilizado, mas sugerem que poderia ter sido o Microsoft Excel. Os resultados obtidos encontram-se na Tabela 5-20 e 5-21.

Tabela 5-20: Formulação ótima encontrada por programação matemática não-linear. Fonte: Heinsman & Montgomery (1995)

Componente	Proporção
X_1	76,66
X_2	19,41
X_3	0,00
X_4	3,93

Tabela 5-21: Estimativas das variáveis de resposta para a formulação ótima. Fonte: Heinsman & Montgomery (1995)

Variável	Estimativa
Y_1	5,056
Y_2	19,17
Y_3	82
Y_4	1000

No entanto, a manutenção das variáveis de resposta justamente em seus limites exigiria um controle operacional muito preciso sobre o processo. Devido a isso, procurou-se um ótimo alternativo, através do método da *função de desejabilidade* apresentada por Derringer & Suich (1980) e explicada no Capítulo 2 desta dissertação. Os resultados finais encontrados são mostrados nas Tabelas 5-22 e 5-23.

Tabela 5-22: Ótimo alternativo encontrado através do método da função de desejabilidade. Fonte: Heinsman & Montgomery (1995)

Componente	Proporção
X_1	74,31
X_2	21,88
X_3	0,00
X_4	3,81

Tabela 5-23: Estimativas das variáveis de resposta para o ponto ótimo alternativo. Fonte: Heinsman & Montgomery (1995)

Variável	Estimativa
Y_1	4,838
Y_2	20
Y_3	83,65
Y_4	1027

Após o teste da formulação ótima junto aos consumidores, constatou-se a necessidade de uma definição mais específica dos limites desejados para as variáveis de resposta antes de otimizá-las. Foi verificado por eles que o produto:

- a) não precisava durar tanto quanto o resultado alcançado na formulação ótima encontrada (Tabela 5-23);
- b) deveria ter mais espuma.

Os novos limites e valores-alvo definidos por eles para cada variável de resposta encontram-se na Tabela 5-24 a seguir:

Tabela 5-24: Novas especificações para as variáveis de resposta. Fonte: Heinsman & Montgomery (1995)

Variável de Resposta	Limite Inferior	Limite Superior
Y_1	3,5	-
Y_2	19	-
Y_3	82	105
Y_4	1000	1436

O problema foi resolvido novamente por programação não-linear, alterando-se simplesmente as restrições utilizadas inicialmente. O ajuste ótimo final e respostas associadas são apresentados nas Tabelas 5-25 e 5-26.

Tabela 5-25: Ajuste ótimo encontrado para as novas especificações

Componente	Proporção
X_1	58,70
X_2	37,70
X_3	0,00
X_4	3,60

Tabela 5-26: Estimativas das variáveis de resposta no novo ajuste ótimo

Variável	Estimativa
Y_1	3,5
Y_2	21,99
Y_3	96
Y_4	1417

1.2.2 Metodologia proposta

Após a descrição das técnicas empregadas por Heinsman & Montgomery (1995) em seu estudo, traçar-se-á um paralelo de como seria abordado o mesmo problema através da metodologia sugerida neste trabalho, comparando-se os procedimentos utilizados e os resultados obtidos.

1.2.2.1 Especificação das variáveis selecionadas

Conhecendo-se os limites viáveis para a proporção de cada componente, uma região de experimentação elipsoidal deve ser determinada, de forma a permitir a transformação do sistema de $q = 4$ coordenadas de mistura para $(q - 1) = 3$ coordenadas independentes, e vice-versa. Para tanto, precisa-se definir o ponto central da região e as semi-faixas de variação simétrica dos componentes em torno do mesmo.

Tabela 5-27: Definição de uma região elipsoidal no espaço da mistura.

Componente	Ponto Central	Semi-Amplitude	Limite Inferior	Limite Superior
X_1	65,834	15,834	50,000	81,668
X_2	15,833	15,833	0,000	31,666
X_3	15,833	15,833	0,000	31,666
X_4	2,5000	2,5000	0,000	5,000

Quanto às variáveis de resposta, devem ter um alvo, limite inferior e/ou superior e importância relativa definidos, para que se possa posteriormente construir a Função Perda e localizar o ajuste ótimo. A determinação desses valores baseou-se tanto nas afirmativas realizadas pelos autores sobre os valores desejados para as variáveis de resposta, como nos resultados experimentais e nos considerados por eles como ótimos.

Todas as variáveis foram definidas, no início do estudo, como do tipo maior-é-melhor, sem possuírem um alvo definido. Quando os autores verificaram a necessidade de aumentar a quantidade de espuma do produto final, estabeleceram “limites superiores” para as variáveis Y_3 e Y_4 , que nada mais são do que os melhores resultados obtidos para essas variáveis durante o experimento realizado (ver Tabela 5-18). Observando-se as respostas encontradas para as variáveis Y_3 e Y_4 no ajuste por eles considerado como ótimo, pode-se notar que as mesmas aproximam-se bastante desses “limites superiores”, o que nos leva a entender que estes foram, na verdade, os **alvos** para a otimização das respectivas variáveis de resposta.

Já para as variáveis Y_1 e Y_2 , não foram definidos alvos nem limites superiores. No entanto, a fim de manter a coerência, decidiu-se adotar o mesmo critério para a especificação de todas as variáveis de resposta: identificando-se, na Tabela 5-18, o maior valor encontrado para cada variável dentro do experimento, estipulou-se como alvo um valor 10% acima desse máximo. A razão para esse procedimento é a consideração de que, se tais valores foram atingidos em ajustes distribuídos uniformemente dentro do espaço experimental, deve haver outros ajustes intermediários que forneçam resultados ainda melhores.

Tabela 5-28: Especificação mais detalhada das variáveis de resposta

Variável de Resposta	Tipo	Alvo	Limite Inferior	Importância Relativa
Y_1	Maior-é-melhor	7,887	3,5	2
Y_2	Maior-é-melhor	22,00	19	1
Y_3	Maior-é-melhor	115,5	82	1
Y_4	Maior-é-melhor	1579,6	1000	1

A atribuição de peso 2 para a variável Y_1 e 1 para as restantes baseou-se na afirmação inicial dos autores, de que a primeira é mais importante do que as demais, e no procedimento por eles adotado, de otimizar essa variável, com a preocupação apenas de manter as restantes dentro dos limites estipulados.

1.2.2.2 *Planejamento Experimental*

Esta etapa engloba os passos IV, V e VI do método proposto, como descrito a seguir:

IV - Escolha do tipo de Projeto Experimental mais adequado:

Visto que se deseja medir efeitos quadráticos, o projeto adequado seria um PCC de 2ª ordem: $2^3 +$ Estrela (planejado em 3 fatores independentes). O experimento poderia ser dividido em blocos ou não (contendo respectivamente 16 ou 15 rodadas), conforme a disponibilidade de tempo e recursos para a sua realização ininterrupta. Em qualquer caso, o número de ensaios seria menor do que as 20 rodadas realizadas por Heinsman & Montgomery (1995), permitindo igualmente o ajuste de modelos quadráticos (ou mesmo cúbicos) e testes de falta de ajuste, com economia de tempo e recursos materiais. Isso se deve ao fato de que o método propõe o ajuste de modelos em função dos fatores independentes, ou seja, com um menor número de termos do que os modelos correspondentes em variáveis de mistura, necessitando assim de menos ensaios para a estimativa de seus coeficientes.

V - Planejamento do Experimento em fatores independentes:

A matriz para um Projeto Composto Central $2^3 +$ Estrela é a apresentada na Tabela 5-29 a seguir:

Tabela 5-29: Projeto Composto Central $2^3 +$ Estrela

Rodada	W_1	W_2	W_3
1	-1,0000	-1,0000	-1,0000
2	1,0000	-1,0000	-1,0000
3	-1,0000	1,0000	-1,0000
4	1,0000	1,0000	-1,0000
5	-1,0000	-1,0000	1,0000
6	1,0000	-1,0000	1,0000
7	-1,0000	1,0000	1,0000
8	1,0000	1,0000	1,0000
9	-1,2154	0,0000	1,0000
10	1,2154	0,0000	0,0000
11	0,0000	-1,2154	0,0000
12	0,0000	1,2154	0,0000
13	0,0000	0,0000	-1,2154
14	0,0000	0,0000	1,2154
15	0,0000	0,0000	0,0000

VI - Transformação da matriz experimental para variáveis de mistura:

É realizada através da matriz de transformação ortogonal sugerida por Cornell (1981) e adotada neste método. Fornecendo-se ao OptiMix os dados sobre as faixas de variação e ponto central da região experimental e escolhendo-se a opção de projeto “*Central Composite $2^3 + Star$* ”, obteve-se a matriz já transformada para variáveis de mistura mostrada na Tabela 5-30:

Tabela 5-30: Matriz experimental em variáveis de mistura

Rodada	X ₁	X ₂	X ₃	X ₄
1	81,1102	12,6087	5,8380	0,4431
2	62,6105	31,1084	5,8380	0,4431
3	70,4289	1,9288	27,1992	0,4431
4	51,9292	20,4285	27,1992	0,4431
5	79,7388	11,2375	4,4668	4,5569
6	61,2391	29,7372	4,4668	4,5569
7	69,0575	0,5576	25,8280	4,5569
8	50,5578	19,0573	25,8280	4,5569
9	77,0764	4,5906	15,8330	2,5000
10	54,5916	27,075	15,8330	2,5000
11	72,3251	22,3233	2,8517	2,5000
12	59,3429	9,3427	28,8143	2,5000
13	66,6674	16,6663	16,6663	0,0000
14	65,0006	14,9997	14,9997	5,0000
15	65,8340	15,8330	15,8330	2,5000

1.2.2.3 Análise da superfície de resposta

Como não se dispõe de resultados experimentais relativos aos pontos planejados por este método, foram analisados os próprios dados obtidos por Heinsman & Montgomery, com relação ao projeto construído por eles. Isso foi feito através da transformação da matriz experimental apresentada na Tabela 5-17 para a matriz correspondente em fatores independentes (Tabela 5-31).

Note-se que, a partir de pontos gerados em uma configuração qualquer dentro do espaço da mistura, os pontos no espaço experimental transformado não se distribuem necessariamente de forma uniforme. Como se pode observar na Tabela 5-31, as coordenadas W_i , nos pontos gerados por essa transformação, não possuem sequer as mesmas faixas de variação.

Tabela 5-31: Experimento gerado por Heinsman & Montgomery (1995) transformado para fatores independentes

Rodada	W_1	W_2	W_3
1	-2,2328	-1,2892	-1,0041
2	2,2330	-1,2892	-1,0041
3	0,0000	2,5785	-1,0041
4	-2,0096	-1,1603	1,0041
5	2,0097	-1,1603	1,0041
6	0,0000	2,3206	1,0041
7	0,0001	-1,2892	-1,0041
8	-1,1164	0,6446	-1,0041
9	1,1165	0,6446	-1,0041
10	0,0001	-1,1603	1,0041
11	-1,0048	0,5802	1,0041
12	0,0000	0,0000	1,0041
13	0,0000	0,0000	1,0041
14	-1,1155	-0,6441	-0,5020
15	0,0014	0,0008	0,0001
16	1,1174	-0,6441	-0,5020
17	0,0009	1,2898	-0,5020
18	-1,0039	-0,5796	0,5021
19	1,0058	-0,5796	0,5021
20	0,0019	1,1608	0,5021

VIII - Modelagem da superfície de resposta:

Os modelos foram ajustados por Mínimos Quadrados, através do OptiMix, utilizando-se a matriz experimental transformada representada na tabela anterior e os dados experimentais apresentados na Tabela 5-18. Além do modelo quadrático, foram testados os do tipo cúbico completo e cúbico especial, uma vez que o número de dados experimentais assim o permitia. Os ajustes fornecidos foram avaliados segundo suas estatísticas F , R^2 e R^2_{ajust} , sendo os modelos resultantes apresentados na Tabela 5-32.

Tabela 5-32: Modelos ajustados para as estimativas de Y_1 , Y_2 , Y_3 e Y_4 .

Modelos ajustados	F_{\min}	F	R^2	R^2_{ajust}
$\hat{Y}_1 = 3,8072 - 0,8594 W_1 - 0,6247 W_2 + 0,6701 W_1W_2 + 0,1357 W_2^2 + 0,1471 W_1^3$	3,9764	71,2705	96,22%	95,21%
$\hat{Y}_2 = 18,8994 + 4,9100 W_1 + 4,7634 W_3 + 1,6211 W_1W_2 - 1,715251 W_1^2 - 0,9726 W_2^3 - 4,7218 W_3^3$	2,9153	15,8244	87,96%	83,66%
$\hat{Y}_3 = 62,7826 - 7,6088 W_2 - 3,7639 W_1W_2 - 5,3399 W_1W_3 + 4,1927 W_1^2 - 8,0196 W_1W_2W_3$	3,1789	44,5291	94,48%	92,91%
$\hat{Y}_4 = 1047,679 + 217,4438 W_1 - 47,3547 W_1^2 - 48,5316 W_2^3$	4,6556	38,2538	88,44%	87,00%

Os modelos para \hat{Y}_1 , \hat{Y}_3 e \hat{Y}_4 foram ajustados com o recurso de *Forward Selection* para a seleção dos termos a serem incluídos; já o modelo para \hat{Y}_2 foi ajustado através de um processo iterativo, no qual se buscou, ao mesmo tempo, o máximo R^2 e a menor diferença possível entre R^2 e R^2_{ajust} . Esse critério favoreceu a obtenção de um modelo com o menor número possível de termos desnecessários. Foram examinados também os gráficos de resíduos para cada modelo ajustado (Figuras 5-9 e 5-10), a fim de confirmar a aleatoriedade de sua distribuição, bem como a não-existência de pontos espúrios dentre os dados observados.

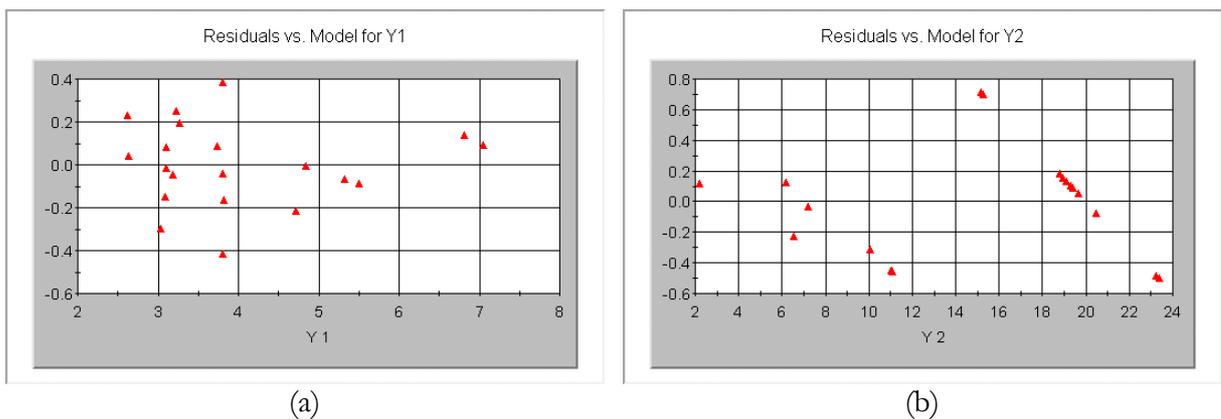


Figura 1-9: Gráficos de Resíduos para as variáveis de resposta Y_1 e Y_2 .

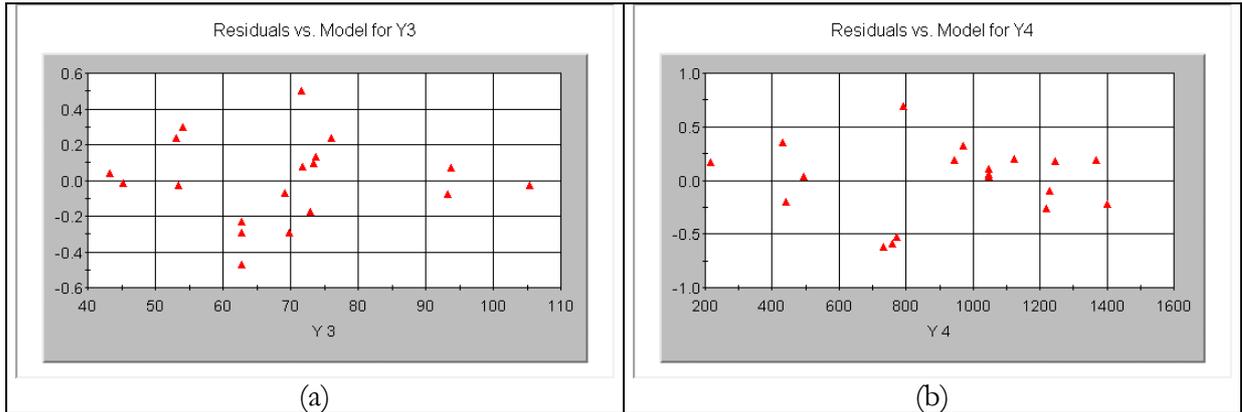


Figura 1-10: Gráficos de Resíduos para as variáveis de resposta Y_3 e Y_4 .

Após o ajuste de modelos para a **média**, ajustaram-se modelos para a **variância** de cada variável de resposta (estimada pelos resíduos quadráticos), utilizando-se os mesmos critérios adotados para aqueles. No estimador $\log(r_{i1}^2 + c \cdot \bar{r}^2)$, adotou-se $c = 0$ para todas as variáveis de resposta, pois esse valor forneceu modelos mais significativos do que $c = 0,02$. Os modelos resultantes são apresentados na Tabela 5-33 a seguir.

Tabela 5-33: Modelos ajustados para a estimativa da variância das variáveis de resposta.

Modelos para a Variância	F_{\min}	F	R^2	R^2_{ajust}
$\log(r_{i1}^2 + c \cdot \bar{r}^2) = -2,6113 + 1,3131 W_3 - 2,0721 W_3^2$	3,0204	5,7658	40,42%	37,11%
$\log(r_{i2}^2 + c \cdot \bar{r}^2) = 1,2369 + 0,8539 W_2 - 0,5075 W_2^2$	3,5915	3,4158	28,67%	24,70%
$\log(r_{i3}^2 + c \cdot \bar{r}^2) = 3,4250 - 2,1407 W_2 - 1,4504 W_3 - 1,5278 W_1^2$	3,2871	10,5548	67,86%	63,84%
$\log(r_{i4}^2 + c \cdot \bar{r}^2) = 8,4982$	3,1789	-	0,00%	5,26%

Tendo-se em mão os modelos ajustados para a média e variância das variáveis de resposta, partiu-se para a otimização global da formulação do detergente, que era o objetivo do estudo.

1.2.2.4 Otimização global da qualidade da formulação

A partir dos modelos ajustados para a estimativa da média e variância de cada variável de resposta, a Função Perda Multivariada para o problema em questão foi construída pelo OptiMix, o qual implementa o cálculo de todos os termos e coeficientes da mesma. Procedeu-se então à otimização da qualidade global do produto, através da minimização da Função Perda, realizada com o auxílio do mesmo *software*.

As faixas de variação adotadas para cada fator foram definidas automaticamente pelo OptiMix, com base na matriz experimental em fatores independentes mostrada na Tabela 5-31. O *software* pesquisa a matriz definida pelo usuário (ou seja, quando não é um projeto padrão, gerado pelo OptiMix), encontrando os níveis mínimo e máximo ensaiados para cada fator W_i . O ajuste ótimo assim encontrado é mostrado na Tabela 5-34 a seguir.

Tabela 5-34: Ajuste ótimo encontrado pelo OptiMix para a qualidade global da mistura.

Composição da Mistura		Ajuste em Coordenadas Independentes	
X ₁	51,08%	W ₁	2,0098
X ₂	46,08%	W ₂	-1,2892
X ₃	-1,42%	W ₃	0,7028
X ₄	4,25%		

Note-se que o ajuste ótimo obtido contém uma proporção negativa para o componente X₃. Assim, decidiu-se lançar mão do recurso de fixar a proporção deste componente em 0,00%, durante a otimização, variando-se os demais. Através da análise do gráfico de superfície da função Perda Global (Figura 5-11), plotado *versus* X₃ e X₄, verificou-se que as menores perdas são obtidas com X₃ = 0,00% e X₄ \cong 3,90%. Portanto, estes dois fatores foram mantidos fixos nesses valores durante a otimização, determinando-se apenas o nível ótimo dos outros dois componentes.

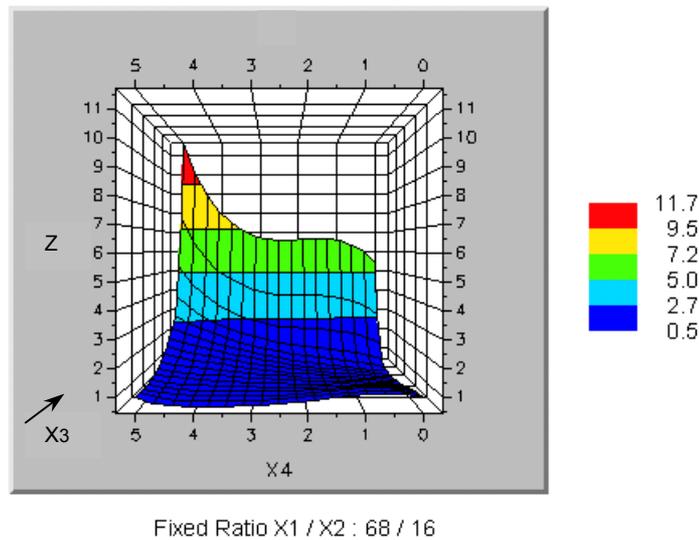


Figura 1-11: Gráfico de superfície para a Perda Global versus X_3 e X_4 . O plano paralelo à folha mais próximo ao observador corresponde a $X_3 = 0,00\%$.

No entanto, a otimização sugerida neste método é realizada através da variação dos fatores independentes W_i , e não dos X_i , uma vez que os modelos foram ajustados em função daqueles. Dessa forma, foi necessário determinar analiticamente os valores dos fatores W_i que fornecem $X_3 = 0,00\%$ e $X_4 = 3,90\%$ e fixá-los (os W_i) durante o processo de minimização da Função Perda Multivariada.

A função que expressa a dependência entre o valor de X_i e os níveis dos fatores independentes W_i , $X_i = f(W_1, W_2, W_3)$, é dada pelo processo de transformação de variáveis utilizado neste estudo. Como já demonstrado no Capítulo 3 deste trabalho, a transformação que fornece a composição da mistura a partir dos ajustes no espaço ortogonal consiste de duas etapas:

- 1) Obtenção da matriz intermediária \mathbf{V} , através de $\mathbf{V} = \mathbf{W} \cdot \mathbf{T}'_1$ (Eq. 2.16);
- 2) Obtenção da matriz \mathbf{X} , através de $\mathbf{X} = \mathbf{V} \cdot \mathbf{H} + \mathbf{X}_0$ (Eq. 2.17).

A matriz de transformação inversa, \mathbf{T}'_1 , por sua vez, é calculada a partir dos limites da região de experimentação apresentados na Tabela 5-27, conforme sugerido em Cornell (1981). Para um projeto experimental com uma mistura de 4 componentes, a matriz de transformação assume o formato:

$$\mathbf{T}_1 = \begin{bmatrix} -h_2/m_1 & -h_1h_3/m_2 & -h_1h_4/m_3 \\ h_1/m_1 & -h_2h_3/m_2 & -h_2h_4/m_3 \\ 0 & h_1^2 + h_2^2/m_2 & -h_3h_4/m_3 \\ 0 & 0 & h_1^2 + h_2^2 + h_3^2/m_3 \end{bmatrix} \quad (5.6)$$

onde h_i é a semi-amplitude da faixa de variação do componente X_i , para $i = 1, 2, 3, 4$.

$$m_1 = (h_1^2 + h_2^2)^{1/2} \text{ é o módulo da 1ª coluna da matriz } \mathbf{T}_1; \quad (5.7)$$

$$m_2 = \left[h_1^2 h_3^2 + h_2^2 h_3^2 + (h_1^2 + h_2^2)^2 \right]^{1/2} \text{ é o módulo da 2ª coluna da matriz } \mathbf{T}_1; \quad (5.8)$$

$$m_3 = \left[h_1^2 h_4^2 + h_2^2 h_4^2 + h_3^2 h_4^2 + (h_1^2 + h_2^2 + h_3^2)^2 \right]^{1/2} \text{ é o módulo da 3ª coluna de } \mathbf{T}_1 \quad (5.9)$$

Sabendo-se que $\mathbf{X} = \mathbf{W} \cdot \mathbf{T}_1' \cdot \mathbf{H} + \mathbf{X}_0$, é possível derivar as expressões para $X_3 = f(W_1, W_2, W_3)$ e $X_4 = f(W_1, W_2, W_3)$, multiplicando-se uma linha genérica da matriz \mathbf{W} pela 3ª ou 4ª linha da matriz \mathbf{T}_1 (que seriam, respectivamente as 3ª e 4ª colunas da matriz \mathbf{T}_1'):

$$X_3 = \left(\frac{(h_1^2 + h_2^2) W_2}{\left[h_1^2 h_3^2 + h_2^2 h_3^2 + (h_1^2 + h_2^2)^2 \right]^{1/2}} - \frac{h_3 h_4 W_3}{\left[h_1^2 h_4^2 + h_2^2 h_4^2 + h_3^2 h_4^2 + (h_1^2 + h_2^2 + h_3^2)^2 \right]^{1/2}} \right) h_3 + X_{o3} \quad (5.10)$$

$$X_4 = \frac{(h_1^2 + h_2^2 + h_3^2) W_3}{\left[h_1^2 h_4^2 + h_2^2 h_4^2 + h_3^2 h_4^2 + (h_1^2 + h_2^2 + h_3^2)^2 \right]^{1/2}} h_4 + X_{o4} \quad (5.11)$$

Substituindo-se os h_i , X_{o3} e X_{o4} pelos seus respectivos valores, constantes da Tabela 5-27, obtém-se, finalmente:

$$X_3 = 15,833 + 12,928 W_2 - 0,82986 W_3 \quad (5.12)$$

$$X_4 = 2,500 + 2,4897 W_3 \quad (5.13)$$

Igualando-se as duas expressões acima a 0,00% e 3,75%, respectivamente, obtém-se o sistema a seguir:

$$\begin{cases} 15,833 + 12,928 W_2 - 0,82986 W_3 = 0,000 \\ 2,500 + 2,4897 W_3 = 3,900 \end{cases}$$

que resulta em: $W_2 = -1,1886$ e $W_3 = 0,5623$.

A otimização da Função Perda foi então realizada através do OptiMix, definindo-se as faixas de variação para W_2 e W_3 durante a busca como $[-1,1886;-1,1886]$ e $[0,5623;0,5623]$. Dessa maneira, esses dois fatores se mantiveram fixos nos valores estipulados, fornecendo o seguinte ótimo:

Tabela 5-35: Ajuste ótimo encontrado para $W_2 = -1,1886$ e $W_3 = 0,5623$.

Composição da Mistura		Ajuste em Coordenadas Independentes	
X ₁	68,05	W ₁	0,4467
X ₂	28,05	W ₂	-1,1886
X ₃	0,00	W ₃	0,5623
X ₄	3,90		

Tabela 5-36: Estimativas para a média, desvio padrão e perda de qualidade das variáveis de resposta no novo ajuste ótimo.

Variável	Alvo	Limite inf.	Estimativa	Desvio	Perda
Y ₁	7,8870	3,5	4,0174	0,2825	0,3133
Y ₂	22,000	19,0	23,362	0,7807	0,0000
Y ₃	115,50	82,0	75,715	11,296	0,3048
Y ₄	1579,6	1000,0	1216,9	70,044	0,0813
					Perda Global = 0,6994

X - Análise dos resultados e conclusões:

A fim de comparar os resultados apresentados nas tabelas 5-35 e 5-36 com os alcançados por Heinsman & Montgomery, transformou-se a formulação ótima por eles encontrada para seu ajuste correspondente em fatores independentes e utilizou-se o mesmo para as estimativas de média, variabilidade e perdas associadas (Tabelas 5-37 e 5-38).

Tabela 5-37: Ajuste ótimo final encontrado por Heinsman & Montgomery (1995).

Composição da Mistura		Ajuste em Coordenadas Independentes	
X ₁	58,7	W ₁	1,2952
X ₂	37,7	W ₂	-1,1964
X ₃	0,0	W ₃	0,4418
X ₄	3,6		

Tabela 5-38: Estimativas para a média, desvio padrão e perda de qualidade das variáveis de resposta no ótimo final encontrado por Heinsman & Montgomery (1995).

Variável	Alvo	Estimativa	Desvio	Perda
Y ₁	7,887	2,9170	0,2959	0,5152
Y ₂	22,00	23,232	0,7745	0,0000
Y ₃	115,5	87,186	4,0193	0,0391
Y ₄	1579,6	1333,0	70,044	0,0391
				Perda Global = 0,7001

Pela análise dos dados contidos nas tabelas 5-35 a 5-38, é possível verificar que:

- os ajustes ótimos fornecidos pelas duas metodologias possuem um importante ponto em comum: o nível 0,00% para o componente X₄, apontando para uma possível simplificação do processo de fabricação do produto de limpeza;
- os dois estudos também fornecem resultados bastante semelhantes para a proporção do componente X₄ (3,60% e 3,90%);

- a Perda Global calculada no ponto ótimo obtido por Heinsman & Montgomery (0,7001) é levemente maior do que a encontrada pelo OptiMix (0,6994), de acordo com os modelos ajustados em fatores independentes;
- os valores estimados para as médias das variáveis de resposta, utilizando-se o ajuste ótimo encontrado por Heinsman & Montgomery e os modelos em fatores independentes, são diferentes dos obtidos por eles, através dos modelos em variáveis de mistura.

As observações realizadas apontam, em primeiro lugar, para uma coerência de resultados entre as duas versões do estudo, a despeito da utilização de técnicas completamente distintas, tanto para o ajuste dos modelos como para a determinação da formulação ótima. Essa constatação reforça a validade do método proposto nesta dissertação, frente a técnicas tradicionais, como as empregadas por Heinsman & Montgomery em seu estudo.

Não se pode deixar de comentar sobre a diferença das estimativas geradas pelos modelos de mistura e pelos obtidos em termos de fatores independentes, para o mesmo ajuste (ponto ótimo determinado por Heinsman & Montgomery). Ao se compararem as estatísticas R_2 e R_{2ajust} dos modelos ajustados pelos dois métodos, no entanto, observa-se que não houve diferenças significativas entre as mesmas, a não ser para os modelos $\sqrt{Y_4}$ (em variáveis de mistura) e Y_4 (em fatores independentes). Apesar de os modelos obtidos em termos de fatores independentes apresentarem boas estatísticas F (que medem a significância do ajuste), R_2 e R_{2ajust} , suspeita-se que as estimativas de seus coeficientes possam ter sido prejudicadas pela má distribuição dos pontos experimentais no espaço ortogonal.

A suspeita de que o ajuste de modelos em variáveis transformadas não tenha sido o mais adequado ao problema em estudo apenas reforça a importância da utilização de técnicas coerentes entre si ao longo de todo o projeto de otimização experimental. Ora, o método aqui sugerido baseia-se no pressuposto de que os pontos experimentais sejam planejados em fatores independentes, e não em variáveis de mistura, distribuindo-se simétrica e uniformemente em torno da origem de um sistema de coordenadas ortogonal.

Considerou-se como principal vantagem da metodologia sugerida neste trabalho, em relação à utilizada no estudo original, a maior facilidade no Planejamento do Experimento em $(q - 1)$ variáveis ortogonais, lançando-se mão dos familiares projetos Fatoriais ou PCC de 2ª ordem.

Além disso, o menor número de rodadas necessárias para o ajuste de modelos em fatores independentes proporcionará sempre uma economia de tempo e recursos materiais.

Um segundo aspecto que vale ser ressaltado é a importância do ajuste de modelos para a variabilidade, adotado por esta metodologia. Se, por um lado, isso representa um esforço a mais para o analista, a sua utilização para a determinação da perda fornece resultados muito mais robustos e confiáveis. Tomando-se como exemplo o valor encontrado por Heinsman & Montgomery para Y_1 no ajuste ótimo global (de acordo com seus modelos de regressão): 3,5 é exatamente o limite inferior para essa variável; portanto, é fácil prever que, devido à variabilidade inerente ao sistema, mesmo que se trabalhe com o ajuste ótimo, essa resposta estará freqüentemente abaixo do valor mínimo desejado.

Finalmente, resalta-se que as necessidades surgidas durante este estudo de caso levaram a novas modificações no *software*, incluindo a possibilidade de gerar, analisar e otimizar projetos experimentais inteiramente definidos pelo usuário (*user-defined*).

ETAPA	HEINSMAN & MONTGOMERY	MODELO PROPOSTO
1.3 PROJETO	Rotina computacional do D-ótimo, incluindo pontos axiais e o centróide da região experimental	Sugestão: PCC 23 + Estrela (16 rodadas) Na prática: transformação do projeto gerado por H&M para variáveis independentes
ANÁLISE	Pseudocomponentes, transformação nas variáveis de resposta, ajuste de vários modelos (apenas p/ a média), comparando-se suas estatísticas de ajuste	Ajuste de vários modelos, com <i>Forward Selection</i> , p/ a média e a variância, comparando-se seus R^2 e significância.
OTIMIZAÇÃO	I) Programação não-linear, otimizando uma das variáveis c/ restrições p/ as demais. II) Função de desejabilidade de Derringer and Suich (1980)	Minimização da Função Perda Quadrática, mantendo fixos os níveis das variáveis independentes que forneciam $X_3 = 0$
RESULTADOS	Composição ótima muito similar, com a eliminação de um dos componentes da mistura	

5. ESTUDOS DE CASO E VALIDAÇÃO DO MODELO	108
5.1 ESTUDO DE CASO A: SEPARAÇÃO DE FASES EM TINTA ALQUÍDICA.....	109
5.2 ESTUDO DE CASO B: OTIMIZAÇÃO DE UM PRODUTO DE LIMPEZA DOMÉSTICO.....	131
5.2.1 <i>Metodologia utilizada por Heinsman & Montgomery (1995)</i>	133
5.2.2 <i>Metodologia proposta</i>	140

FIGURA 5-1: ESPAÇO EXPERIMENTAL EM COORDENADAS DE MISTURA (A) DENTRO DO SUB-SIMPLEX $X_1+X_2+X_3 = 96,30\%$ E (B) AMPLIADO..... 114

FIGURA 5-2: DEFINIÇÃO DO TOTAL FORMADO PELA SUB-MISTURA EM ESTUDO..... 115

CAPÍTULO 6

6. COMENTÁRIOS FINAIS

6.1 Conclusões

Este trabalho visou ao desenvolvimento da área de otimização experimental de formulações, principalmente no que diz respeito a facilitar sua popularização. A necessidade de uma sistematização da metodologia de *Experimentos com Mistura* fundamentou-se na constatação de que a maioria das empresas que poderiam desfrutar de seus benefícios não o fazem, devido à grande abstração dos cálculos envolvidos e ao grande número de técnicas existentes para o mesmo fim. Esse último fator tende a confundir o usuário comum, na hora de escolher a técnica mais apropriada ao seu caso, podendo levar inclusive ao uso simultâneo de técnicas incompatíveis entre si e obtenção de resultados inconsistentes.

A primeira etapa do estudo, portanto, consistiu de uma pesquisa bibliográfica, através da qual foram analisadas criticamente as diversas técnicas já desenvolvidas na área de *Experimentos com Mistura*, comparando-as quanto às suas vantagens, desvantagens e situações em que podem/devem ou não ser aplicadas.

Observou-se, nessa etapa, uma abordagem altamente segmentada do assunto na literatura pesquisada. Diversos autores exploram alternativas apenas para o planejamento do experimento, outros dedicam-se a desenvolver técnicas de análise da superfície de resposta, enquanto um terceiro grupo preocupa-se em aperfeiçoar os métodos de otimização existentes, com o objetivo

de lidar simultaneamente com diversas variáveis de resposta. De fato, os únicos trabalhos encontrados que sugerem uma linha de atuação incluindo todas as etapas descritas anteriormente, de forma integrada e objetiva, foram as dissertações de mestrado de Caten (1995) e Pasa (1996); a primeira, na área de otimização experimental de produtos e processos em geral, e a segunda, abordando especificamente o problema de Misturas.

Com base nessa análise, foi possível organizar uma metodologia a mais abrangente possível, que se aplica a situações onde o espaço experimental viável ou de interesse restringe-se a uma sub-região do *simplex*, em torno de um ponto central (a maioria dos casos). A metodologia foi construída, procurando-se conciliar os métodos de Planejamento, Análise e Otimização que fornecessem os resultados mais consistentes possíveis. Para tanto, recorreu-se a um sistema de variáveis linearmente independentes, com o qual são realizadas as três etapas mencionadas acima. A metodologia proposta constitui-se dos seguintes passos:

- I - Identificação do problema e dos objetivos do estudo
- II - Seleção das variáveis a serem incluídas no estudo de otimização
- III - Especificação das variáveis selecionadas
- IV - Escolha do tipo de Projeto Experimental mais adequado
- V - Planejamento do Experimento em fatores independentes
- VI - Transformação da matriz experimental para variáveis de mistura
- VII - Execução do Experimento
- VIII - Modelagem da superfície de resposta
- IX - Otimização da qualidade da mistura
- X - Análise dos resultados e conclusões

A metodologia, como um todo, assemelha-se à desenvolvida por Pasa (1996). No entanto, possui alguns importantes diferenciais, que tiveram como finalidade torná-la, ao mesmo tempo, mais precisa em seus resultados e mais prática para o usuário. Apesar de tais objetivos parecerem conflitantes, alguns dos recursos utilizados felizmente vieram a contribuir para ambos, como descrito a seguir:

(i) Nos Passos V e VI, adotou-se o uso de projetos experimentais padrão em fatores independentes, sem a necessidade de alteração de seus níveis para manter os componentes da mistura dentro das faixas de variação estipuladas. Ao invés disso, simplesmente passou-se a dividir a matriz intermediária \mathbf{V} pelo seu maior elemento em módulo (quando este for superior a 1). Tal recurso, que visou originalmente a não distorcer a distribuição ortogonal dos pontos, a fim de não prejudicar o posterior ajuste dos modelos de regressão, acabou por simplificar o procedimento.

(ii) Ainda no Passo V, priorizou-se a utilização de Projetos Fatoriais ou Compostos Centrais de 2ª Ordem, bloqueados ortogonalmente, como forma de garantir o sucesso da modelagem subsequente da superfície de resposta da mistura. A bloqueagem ortogonal tornou o modelo ainda mais apropriado e prático para o tratamento de problemas de mistura incluindo fatores de processo.

(iii) A necessidade, surgida no Estudo de Caso A (item 5.1 desta dissertação), de se trabalhar com um subconjunto de componentes da mistura, levou à constatação de que o método sugerido para a obtenção da matriz experimental em variáveis de mistura, através da transformação ortogonal, não impede que se utilize uma mistura cujo total não some 100%.

(iv) A outra principal diferença de abordagem entre este trabalho e o de Pasa (1996), refere-se à forma de obtenção da variabilidade dos fatores independentes w_i em função das variabilidades dos x_i . Como demonstrado no Capítulo 3, as variabilidades das proporções dos componentes são estatisticamente correlacionadas, exigindo-se o cálculo da matriz de correlação de tais variáveis, com base na matriz experimental.

Após o desenvolvimento do modelo teórico para a seqüência de passos da metodologia, todos os cálculos envolvidos foram implementados em um *software*, escrito em linguagem Visual Basic. O mesmo consistiu numa importante ferramenta para a agilização dos testes necessários ao aperfeiçoamento do modelo, assim como para a realização dos estudos de caso. Além disso, o OptiMix veio suprir a necessidade de um aplicativo que integrasse todas as etapas do método, facilitando, tanto ao especialista quanto ao leigo, a realização de tarefas anteriormente levadas a cabo em *softwares* isolados (Statgraphics, para o ajuste de modelos; Busca, para a otimização, etc.), e que não lidavam especificamente com problemas de mistura.

A disponibilidade de um *software* que realize todas as etapas da metodologia proposta tende a tornar os resultados deste trabalho ainda mais acessíveis e vantajosos à comunidade em geral. Sua utilização permitirá, a qualquer usuário:

- uma grande redução no tempo necessário ao desenvolvimento de estudos de otimização experimental de formulações;
- a virtual eliminação das possibilidades de erros de cálculo, comuns quando se realiza uma extensa quantidade de operações matemáticas manualmente, ou com transferências de dados entre diversos aplicativos.

A etapa seguinte, de estudos de caso, foi de fundamental importância para a análise do desempenho do modelo e do *software* desenvolvidos. Durante a realização dos dois projetos relatados no Capítulo 5 deste trabalho, o OptiMix mostrou-se uma ferramenta de grande praticidade, oferecendo inúmeros gráficos e rápidas conversões entre ajustes, de fatores independentes para variáveis de mistura, e vice-versa. Sua aplicação prática revelou, no entanto, a conveniência de pequenas alterações, que lhe conferiram uma flexibilidade ainda maior:

- a possibilidade de planejar experimentos com um subgrupo dos componentes da mistura, sem exigir a conversão de suas proporções para um total de 100%;
- a inclusão de fatores de processo, tais como: diferentes tipos de um determinado componente, quantidade relativa entre um dos componentes e o restante da mistura (problema mistura-quantidade), etc.;
- manutenção de determinados fatores fixos durante a otimização, o que é absolutamente necessário quando se lida com fatores de processo que possuem níveis discretos.

Na verdade, as adaptações feitas, tanto no método quanto no *software*, acabaram deixando-os mais flexíveis e abrangentes do que se planejou no início deste estudo. Dessa forma, os resultados deste trabalho podem ser estendidos mesmo a situações inicialmente consideradas fora de seu escopo, como problemas de mistura-quantidade ou envolvendo fatores de processo. Isso se deveu, principalmente, à utilização do sistema de coordenadas independentes para todas as operações matemáticas, assim como à blocagem ortogonal dos experimentos, o que tornou muito

simples a inclusão de novos fatores também independentes no planejamento, análise e otimização do experimento com mistura.

Acredita-se que a sistematização aqui apresentada das técnicas envolvidas em um estudo de *Otimização Experimental de uma Mistura* pode contribuir enormemente para o desenvolvimento dessa área. A automatização dos cálculos envolvidos, através de sua implementação no primeiro *software* específico para misturas a englobar todas as etapas da metodologia de *Otimização Experimental*, representa um grande passo na difusão de técnicas tão complexas quanto úteis ao meio industrial. A adoção de tal metodologia por parte das empresas que trabalham com produtos formulados certamente ensejará a obtenção de produtos com maior qualidade global e menor custo de desenvolvimento.

Aliada a essas vantagens, o fato de a metodologia sugerida reduzir o tempo de desenvolvimento das formulações constitui-se num diferencial competitivo da empresa frente à concorrência. No atual panorama de concorrência globalizada, o industrial que insistir em otimizar seus produtos por tentativa e erro, ou com o auxílio dos diversos pacotes estatísticos tradicionais, nada amistosos ao usuário comum, correrá o risco de ver seus “novos” desenvolvimentos ultrapassados antes mesmo de serem lançados no mercado.

6.2 Sugestões para desenvolvimentos futuros

O campo de Experimentos com Misturas é tão vasto quanto os diferentes tipos de formulações existentes e suas restrições específicas. Torna-se mesmo difícil acreditar que se possa desenvolver, nessa área, uma metodologia tão completa e, ao mesmo tempo genérica, a ponto de contemplar todas as possíveis situações em que se desejará otimizar uma mistura.

Analisando-se os estudos de caso relatados por Pasa (1996), assim como os realizados neste trabalho, verifica-se, por exemplo, o quanto é comum o cálculo da proporção de um dos componentes como uma combinação linear de outros (dois ou mais). Observa-se, também, que não são raras as vezes em que se deseja testar diferentes tipos (ou marcas) de um mesmo componente, devendo-se tratar então, essa variável (tipo), como um fator de processo a níveis discretos.

A fim de dispensar um tratamento mais adequado a tais peculiaridades, sugere-se, tanto para modelos teóricos futuros, como para versões subseqüentes do OptiMix, a tentativa de conciliar as técnicas aqui sugeridas com:

- restrições do espaço experimental formadas por combinações lineares das proporções dos componentes;
- proporções de certos componentes determinadas por combinações lineares de outros;
- a inclusão de fatores de processo, especificando seus limites de variação e obtendo gráficos e resultados em níveis reais (atualmente, o OptiMix é capaz de trabalhar com fatores de processo incluídos como fatores “Extra”; porém, estritamente em níveis codificados);
- problemas de Mistura-Quantidade, de forma mais prática do que o recurso utilizado no Estudo de Caso A (item 5.1 desta dissertação), em que as proporções planejadas pelo OptiMix, assim como os resultados da otimização tiveram que ser convertidos externamente para seus valores reais;
- a utilização de fatores experimentais a níveis discretos (tanto variáveis de mistura como fatores independentes).

Finalmente, com o intuito de facilitar a aplicação do OptiMix por diferentes públicos, assim como a sua penetração no mercado latino, seria conveniente a versão do mesmo para a Língua Portuguesa e para o Espanhol.

6. COMENTÁRIOS FINAIS.....	154
6.1 CONCLUSÕES.....	154
6.2 SUGESTÕES PARA DESENVOLVIMENTOS FUTUROS.....	158

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- BARBETTA, P. A., RIBEIRO, J. L. e BORNIA, A. C. O problema da modelagem da variância na otimização experimental de produtos e processos. Anais do ENEGEP/97, Gramado/RS, 1997.
- BARBETTA, P. A., RIBEIRO, J. L. e SAMOBYL, R. W. Uma nova forma de modelar a variância em experimentos com poucas replicações. Anais do ENEGEP/98, Gramado/RS, 1998.
- BARTLETT, M. S. & KENDALL, D. J. The statistical analysis of variance-heterogeneity and the logarithmic transformation. *Journal of the Royal Statistical Society, B*, v. 8, p. 128-138, 1946.
- BECKER, W. G. Models for the response of a mixture. *Journal of the Royal Statistical Society, B*, v. 30, p. 349-358, 1968.
- BOX, G. E P. Multi-factor designs of first order. *Biometrika*, v. 39, p. 49-57, 1952.
- BOX, G. E P. & DRAPER, N. **Empirical model building and response surfaces**. New York: John Wiley and Sons, 1987.
- CARROLL, R. J. & RUPPERT **Transformation and weighting in regression**. Chapman and Hall, 1988.

- CATEN, C. T. **Método para a otimização experimental de múltiplas características de qualidade.** Dissertação de Mestrado defendida no Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Produção da UFRGS. Porto Alegre, RS, 1995.
- CORNELL, J. A. Experiments with mixtures: A review. *Technometrics*, v. 15, n. 3, p. 437-455, 1973.
- CORNELL, J. A. Experiments with mixtures: An update and bibliography. *Technometrics*, v. 21, n. 1, p. 95-106, 1979.
- CORNELL, J. A. **Experiments with mixtures: designs, models, and the analysis of mixture data.** John Wiley & Sons, Inc., New York, 1981.
- CORNELL, J. A. Mixture experiments. Coletânea de artigos, cap. 7. Marcel Dekker, New York, 1990a.
- CORNELL, J. A. **How to run mixture experiments for product quality.** The ASQC Basic References in Quality Control: Statistical Techniques. v. 5, ASQC Quality Press, Milwaukee, 1990b.
- CORNELL, J. A. **How to apply response surface methodology.** The ASQC Basic References in Quality Control: Statistical Techniques. v. 8, ASQC Quality Press, Milwaukee, 1990c.
- CORNELL, J. A. & GOOD, I. J. The mixture problem for categorized components. *Journal of the American Statistical Association*, v. 65, p. 339-355, 1970.
- DEL CASTILLO, E. and MONTGOMERY, D. C. A Nonlinear Programming Solution to the Dual Response Problem. *Journal of Quality Technology*, v. 25, p. 199-204, 1992.
- DERRINGER, G. L. & SUICH, R. Simultaneous optimization of several response variables, *Journal of Quality Technology*, v. 12, p. 214-219, 1980.
- DRAPER, N. R. & LAWRENCE, W.E. Mixture designs for three factors, *Journal of the Royal Statistical Society, B*, v. 27, p. 450-465, 1965a.

- DRAPER, N. R. & LAWRENCE, W.E. Mixture designs for four factors, *Journal of the Royal Statistical Society, B*, v. 27, p. 473-478, 1965b.
- EISENHARDT, K. M. Building theories from case study research. *Academy of Management Review*, v. 14, n. 4, p. 532-550, 1989.
- FOGLIATTO, F. S. **Multi-response optimization using the analytic hierarchy process.** Projeto de Tese de Doutorado. Department of Industrial Engineering, Rutgers University. Piscataway, NJ, 1996.
- GORMAN, J. W. & HINMAN, J. E. Simplex lattice designs for multicomponent systems. *Technometrics*, v. 4, n. 4, p. 463-487, 1962.
- GORMAN, J. W. Discussion of “extreme vertices design of mixture experiments” by R. A. McLean and V. L. Anderson. *Technometrics*, v. 8, n. 3, p. 455-456, 1966.
- GUNST, R. F. & MASON, R. L. **How to construct fractional factorial experiments.** The ASQC Basic References in Quality Control: Statistical Techniques. v. 14, ASQC Quality Press, Milwaukee, 1991.
- HARE, L. B. & BROWN, P. L. Plotting response surface contours for three-component mixtures. *Journal of Quality Technology*, v. 9, n. 4, p. 193-197, 1977.
- HEINSMAN, J. A. & MONTGOMERY, D. C. Optimization of a household product formulation using a mixture experiment. *Quality Engineering*, v.7, n.3, p. 583-600, 1995.
- KENNARD, R. W. & STONE, L. A. Computer aided design of experiments. *Technometrics*, v. 11, p. 137-148, 1969.
- MCLEAN, R. A. & ANDERSON, V. L. Extreme vertices design of mixture experiments. *Technometrics*, v.8, p. 447-454, 1966.
- MYERS, R. H. & CARTER, W. H. Response surface techniques for dual response systems. *Technometrics*, p. 301-317, 1973.

- MYERS, R. H. & MONTGOMERY, D. C. **Response surface methodology: process and product optimization using designed experiments.** John Wiley & Sons, Inc., New York, 1995.
- MYERS, R. H., VINING, G.G., GIOVANNITTI-JENSEN, A. & MEYERS, S. L. Variance dispersion properties of second-order response surface designs. *Journal of Quality Technology*, v. 24, n. 2, p. 1, 1992.
- MONTGOMERY, D. C. & PECK, E. A. **Introduction to linear regression analysis.** 2nd ed. John Wiley & Sons, Inc., New York, 1992.
- PASA, G. S. **Método de otimização experimental de formulações.** Dissertação de Mestrado defendida no Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Produção da UFRGS. Porto Alegre, RS, 1996.
- PIEPEL, G. F. Survey of software with mixture experiment capabilities. *Journal of Quality Technology*, v. 19, n. 1, p. 76-85, 1997.
- QUENOUILLE, N. H. Experiments with mixtures. *Journal of the Royal Statistical Society, B*, v. 21, p. 201-202, 1959.
- RIBEIRO, J. L. & ELSAYED, E. A. A case study on process optimization using the gradient loss function. *International Journal of Production Research*, v. 33, n. 12, p. 3233-3248, 1995.
- SCHEFFÉ, H. Experiments with mixtures. *Journal of the Royal Statistical Society, B*, v. 20, p. 344-360, 1958.
- SNEE, R. D. Techniques for the analysis of mixture data. *Technometrics*, v. 15, p. 517-528, 1973.
- SNEE, R. D. & MARQUARDT, D. W. Extreme vertices designs for linear mixture models. *Technometrics*, v. 16, p. 399-408, 1974.
- SAXENA, S. K. & NIGAM, A. K. Restricted exploration of mixtures by symmetric-simplex design. *Technometrics*, v.19, n.1, p.47-52, 1977.
- THOMPSON, W. O. & MYERS, R. H. Response surface designs for experiments with mixtures. *Technometrics*, v.10, p. 739-756, 1968.