

Capítulo 4

Critérios de Otimalidade e Planejamento Seqüencial de Experimentos

Os planos experimentais desenvolvidos nos Capítulos 2 e 3 dependem, em grande parte, da existência de uma certa regularidade da região experimental. Muitas vezes, não é possível fazer com que todas as variáveis variem simultaneamente ao longo de toda a faixa de interesses. Por exemplo, suponha que a faixas de interesse de duas variáveis comuns de processo, temperatura e pressão, sejam iguais a $[25, 100]$ °C e $[2, 10]$ atm respectivamente, mas que a combinação de temperaturas altas e pressões altas não possa ocorrer, para que não seja comprometida a segurança da operação. Isso é muito comum em problemas reais, nos quais a resposta do processo responde de forma intensa a interações não lineares entre as variáveis. Nesse caso, teríamos que dividir o plano experimental em blocos, como apresentado no Capítulo 3, ou desenvolver novos conceitos de planejamento. Esse é o objetivo central desse Capítulo – desenvolver critérios de planejamento que possam ser aplicados a problemas que apresentam geometria complexa da região de experimentação.

4.1 - Hiper-Elipse e a Geometria da Região de Confiança

Como apresentado nos Capítulos 2 e 3 do volume I dessa série de publicações, a generalização da curva normal para problemas multivariáveis pode ser feita na forma:

$$f(\mathbf{x}) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^{NX}} \sqrt{\det(\mathbf{V}_x)}} \exp\left(-\frac{1}{2} (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu})^T \mathbf{V}_x^{-1} (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu})\right) \quad (4.1)$$

onde $f(\mathbf{x})$ é a função densidade de probabilidade normal multivariável, \mathbf{x} é o vetor de variáveis do problema, $\boldsymbol{\mu}$ é o vetor de valores médios de cada variável e \mathbf{V}_x é a matriz de covariâncias das variáveis do problema. Como discutido nos capítulos referenciados, a matriz \mathbf{V}_x é necessariamente positiva definida, o que significa que o expoente da Equação (4.1) é sempre negativo, tornando-se mais negativo à medida que a distância $(\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu})$ aumenta.

Chama-se de **região de confiança** com probabilidade p àquela região do espaço de variáveis que é limitada por uma superfície onde todos os pontos estão associados a um mesmo valor da densidade de probabilidade e onde a integral da função densidade de probabilidade é igual a p . A definição detalhada do conceito de região de confiança e as aplicações dele decorrentes são apresentadas no Capítulo 3 do volume I dessa série de publicações. O conceito de região de confiança aqui proposto pode ser facilmente compreendido se imaginarmos que a função densidade de probabilidade descreve um relevo no espaço e as superfícies que delimitam regiões de diferentes probabilidades são as curvas de nível, como mostrado na Figura 4.1.

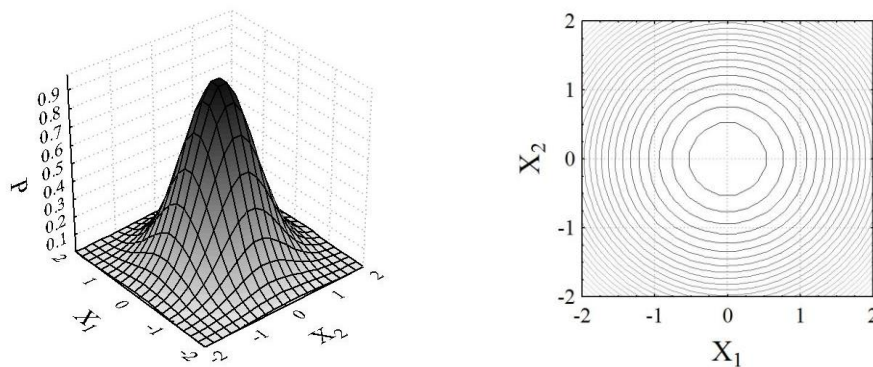


Figura 4.1 - Esquema de definição da região de confiança: relevo tridimensional e curvas de nível.

No caso da curva normal, a definição da região de confiança está associada ao expoente da Equação (4.1), dado que os demais termos da equação são constantes e não dependem do ponto experimental considerado. Sendo assim, as curvas de nível que limitam as regiões de confiança satisfazem a Equação (4.2) abaixo:

$$(\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu})^T \mathbf{V}_x^{-1} (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu}) = c \quad (4.2)$$

onde c é uma constante que caracteriza o grau de confiança. A região de confiança é aquela que satisfaz a Inequação (4.3)

$$(\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu})^T \mathbf{V}_x^{-1} (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu}) \leq c \quad (4.3)$$

constituída pelos pontos interiores em relação à curva de nível.

As Equações (4.2) e (4.3) são muito estudadas na Álgebra e caracterizam um conjunto particular de curvas chamadas de formas quadráticas. Este nome deve-se ao fato de que, após feitas as multiplicações vetoriais, a Equação (4.2) pode ser colocada na forma:

$$\sum_{i=1}^{NX} \sum_{j=1}^{NX} (v_{ij}^{-1}) (x_i - \mu_i) (x_j - \mu_j) = c \quad (4.4)$$

que é a generalização de uma polinomial de segundo grau para várias variáveis. v_{ij}^{-1} é o elemento ij da inversa da matriz de covariâncias de \mathbf{x} .

Como a matriz \mathbf{V}_x é positiva definida, a curva definida pela Equação (4.2) é uma forma quadrática muito especial, que recebe o nome de hiper-elipse; ou seja, uma elipse no espaço de dimensão NX . O problema é que o estudo da Equação (4.2) na forma proposta é bastante dificultado pelo fato da matriz \mathbf{V}_x não ser diagonal, o que faz com que todos os termos quadráticos apareçam, como na Equação (4.4). Portanto, antes de estudar as características da hiper-elipsóide que define a região de confiança, é conveniente diagonalizá-la. Para tanto, lembremos do problema clássico de valores característicos, colocado como encontrar os números λ (valores característicos) e vetores \mathbf{d} (vetores característicos) que satisfazem a seguinte equação:

$$\mathbf{V}_x \mathbf{d} = \lambda \mathbf{d} \tag{4.5}$$

ou seja

$$(\mathbf{V}_x - \lambda \mathbf{I}) \mathbf{d} = \mathbf{0} \tag{4.6}$$

O sistema de equações (4.6) é um sistema linear clássico. Para que existam soluções não triviais da Equação (4.6), é necessário que a matriz $(\mathbf{V}_x - \lambda \mathbf{I})$ seja singular; ou seja, que seu determinante seja igual a zero. Portanto, a Equação

$$\det(\mathbf{V}_x - \lambda \mathbf{I}) = 0 \tag{4.7}$$

é a equação que permite calcular os valores característicos do sistema. Uma vez obtidos os valores característicos do sistema, as Equações (4.5) e (4.6) podem ser utilizadas para que sejam obtidos os vetores característicos. Como a matriz $(\mathbf{V}_x - \lambda \mathbf{I})$ é singular, infinitos vetores característicos satisfazem as Equações (4.5) e (4.6). Alguns exemplos numéricos são apresentados no Capítulo 3 do volume I dessa série de publicações.

É conveniente tomar como solução dentre as infinitas soluções existentes, aquela cujo vetor tem tamanho unitário. Deve ser ainda enfatizado que a Equação (4.7) resulta sempre em um polinômio de grau NX que, portanto, admite até NX diferentes raízes ou valores característicos. Como a matriz \mathbf{V}_x é positiva definida e simétrica, é possível garantir que todos os seus valores característicos são números reais e positivos¹.

A Equação (4.5) pode ser re-escrita de forma compacta, englobando todas as soluções características do sistema na forma:

$$\mathbf{V}_x \begin{bmatrix} \mathbf{d}_1 \\ \mathbf{M}_2 \\ \mathbf{M} \\ \mathbf{M}_{NX} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{d}_1 \\ \mathbf{M}_2 \\ \mathbf{M} \\ \mathbf{M}_{NX} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1 & 0 & L & 0 \\ 0 & \lambda_2 & L & 0 \\ 0 & 0 & O & M \\ 0 & 0 & L & \lambda_{NX} \end{bmatrix} \tag{4.8}$$

que pode então ser usada como definição da matriz diagonal dos valores característicos e da matriz de vetores característicos na forma:

$$\mathbf{V}_x \mathbf{D} = \mathbf{D} \mathbf{\Lambda} \tag{4.9}$$

onde

$$\mathbf{\Lambda} = \begin{bmatrix} \lambda_1 & 0 & L & 0 \\ 0 & \lambda_2 & L & 0 \\ M & M & O & M \\ 0 & 0 & L & \lambda_{NX} \end{bmatrix} \tag{4.10}$$

¹ C.R. Wylie and L.C. Barrett, "Advanced Engineering Mathematics", McGraw-Hill, 5ª Ed., Singapura, 1985. (pp.717-731)

e

$$\mathbf{D} = [\mathbf{d}_1 \mathbf{M}_2 \mathbf{M} \mathbf{M}_{\text{NX}}] \quad (4.11)$$

Desta forma, é possível representar a matriz \mathbf{V}_x como o produto de matrizes

$$\mathbf{V}_x = \mathbf{D} \mathbf{\Lambda} \mathbf{D}^{-1} \quad (4.12)$$

onde $\mathbf{\Lambda}$ tem estrutura diagonal.

Exemplo 4.1- Descreve-se a seguir o Exemplo 3.27 do volume I dessa série de publicações.

Seja a matriz $\mathbf{A} = \begin{bmatrix} 1 & -1 \\ 0 & 2 \end{bmatrix}$. Neste caso, os valores característicos são iguais a:

$$\det(\mathbf{A} - \lambda \mathbf{I}) = \det \left(\begin{bmatrix} 1 - \lambda & -1 \\ 0 & 2 - \lambda \end{bmatrix} \right) = (1 - \lambda)(2 - \lambda) - 0(-1) = 0$$

$$\lambda^2 - 3\lambda + 2 = 0$$

cujas raízes são:

$$\lambda = \frac{-(-3) \pm \sqrt{(-3)^2 - 4(1)(2)}}{2(1)} = \begin{cases} 1 \\ 2 \end{cases}$$

Assim, os vetores característicos podem ser obtidos como:

$$\begin{bmatrix} 1 & -1 \\ 0 & 2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} = 1 \begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} \Rightarrow \begin{bmatrix} a - b = a \\ 2b = b \end{bmatrix} \Rightarrow \begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a \\ 0 \end{bmatrix} = \mathbf{d}_1$$

A solução com tamanho unitário é $\mathbf{d}_1 = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$.

$$\begin{bmatrix} 1 & -1 \\ 0 & 2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} = 2 \begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} \Rightarrow \begin{bmatrix} a - b = 2a \\ 2b = 2b \end{bmatrix} \Rightarrow \begin{bmatrix} a \\ b \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -b \\ b \end{bmatrix} = \mathbf{d}_2$$

A solução com tamanho unitário é $\mathbf{d}_2 = \begin{bmatrix} -\frac{\sqrt{2}}{2} \\ \frac{\sqrt{2}}{2} \end{bmatrix}$.

Desta forma, $\mathbf{\Lambda} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 2 \end{bmatrix}$ e $\mathbf{D} = \begin{bmatrix} 1 & -\frac{\sqrt{2}}{2} \\ 0 & \frac{\sqrt{2}}{2} \end{bmatrix}$.

Calculando-se a matriz inversa de **D** como

$$\mathbf{D}^{-1} = \frac{1}{\det(\mathbf{D})} \begin{bmatrix} d_{22} & -d_{12} \\ -d_{21} & d_{11} \end{bmatrix} = \frac{1}{\left(\frac{\sqrt{2}}{2}\right)} \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} & \frac{\sqrt{2}}{2} \\ 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 0 & \sqrt{2} \end{bmatrix}$$

chega-se finalmente à representação diagonalizada de **A** como

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} 1 & -\frac{\sqrt{2}}{2} \\ 0 & \frac{\sqrt{2}}{2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 0 & \sqrt{2} \end{bmatrix}$$

Como além de positiva definida, a matriz **V_x** é também simétrica, é possível mostrar que **D⁻¹ = D^{T1}**, de forma que nos problemas que nos interessam mais diretamente, é possível escrever:

$$\mathbf{V}_x = \mathbf{D} \mathbf{\Lambda} \mathbf{D}^T \tag{4.13}$$

Substituindo a Equação (4.13) na Equação (4.2), a equação que descreve a superfície que envolve a região de confiança ganha a forma:

$$(\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu})^T \mathbf{D} \mathbf{\Lambda}^{-1} \mathbf{D}^T (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu}) = c \tag{4.14}$$

Finalmente, redefinindo as variáveis do problema como

$$\mathbf{z} = \mathbf{D}^T (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu}) \tag{4.15}$$

a Equação (4.14) ganha a forma

$$\mathbf{z}^T \mathbf{\Lambda}^{-1} \mathbf{z} = c \tag{4.16}$$

que tem a forma explícita

$$\sum_{i=1}^{NX} \frac{z_i^2}{\lambda_i} = c \tag{4.17}$$

facilmente identificável como uma elipse centralizada no ponto central e com semi-eixos com comprimentos iguais a $\sqrt{c \lambda_i}$. O leitor mais atento deve observar que *c*, ou o grau de confiança exigido, não exerce qualquer influência sobre o formato da região de confiança,

¹ C.R. Wylie and L.C. Barrett, "Advanced Engineering Mathematics", McGraw-Hill, 5ª Ed., Singapura, 1985. (pp.717-731)

excetuando-se obviamente o aumento proporcional de todos os semi-eixos da elipse. Por isso, quase sempre o fator c será desprezado durante a análise subsequente.

O conjunto de transformações introduzidas através da Equação (4.15) representa uma translação para a origem ($\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu}$) e uma rotação da elipse [$\mathbf{z} = \mathbf{D}^T (\mathbf{x} - \boldsymbol{\mu})$], de forma a fazer com que os seus semi-eixos coincidam com os eixos ortogonais e que o centro da elipse coincida com a origem dos eixos de coordenadas. As transformações da Equação (4.15) são isométricas, no sentido de que elas preservam a forma original da figura geométrica. Veja o exemplo da Figura 4.2.

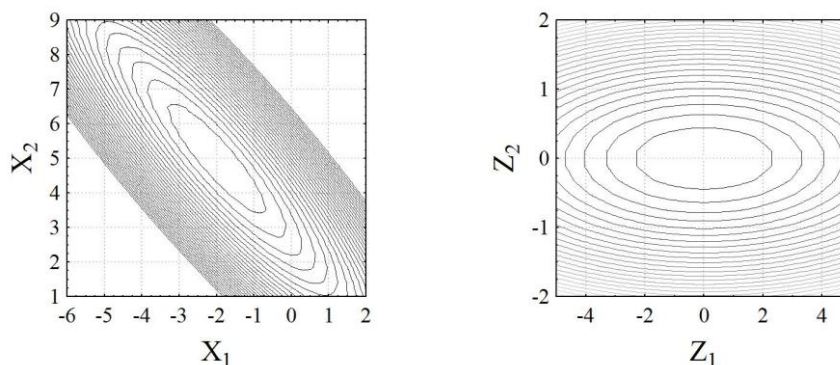


Figura 4.2 - Transformações geométricas devidas às mudanças de coordenadas.

A partir da Equação (4.17) fica relativamente fácil extrair muitas informações sobre a geometria da região de confiança. As informações mais importantes são:

- 1- Eixos têm comprimentos proporcionais a $\sqrt{\lambda_i}$ (em que λ_i são os valores característicos da matriz de covariâncias das variáveis aleatórias \mathbf{x});
- 2- A assimetria máxima da elipse, ou fator de esfericidade, definida como a razão entre os comprimentos extremos de seus eixos, pode ser dada por

$$\phi = \sqrt{\frac{\lambda_{MIN}}{\lambda_{MAX}}} \quad (4.18)$$

- 3- Como o traço de uma matriz (a soma dos elementos da diagonal principal) é igual à soma de seus valores característicos, ou seja,

$$tr(\mathbf{V}_x) = \sum_{i=1}^{NX} v_{ii} = \sum_{i=1}^{NX} \lambda_i \quad (4.19)$$

o traço da matriz de covariâncias é igual à soma dos comprimentos quadrados de seus eixos;

- 4- Como o volume de uma elipse é proporcional ao produto do comprimento de seus eixos, conclui-se que o volume da região de confiança é proporcional à raiz quadrada do produto dos valores característicos de \mathbf{V}_x . Como o produto dos valores característicos de uma matriz é idêntico ao valor do determinante da matriz, é possível escrever

$$Volume \approx \sqrt{\det(\mathbf{V}_x)} = \prod_{i=1}^{NX} \sqrt{\lambda_i} \quad (4.20)$$

Portanto, os valores característicos da matriz de covariâncias V_X guardam muitas informações a respeito da geometria da região de confiança da distribuição normal. O leitor deve, no entanto, perceber que distribuições probabilísticas não normais podem apresentar geometria da região de confiança bastante distinto do aqui apresentado, como discutido em muitos trabalhos da literatura¹.

Exemplo 4.2- No Exemplo 4.1, os valores característicos são iguais a $\lambda_1=1$ e $\lambda_2=2$. Portanto, os semi-eixos da elipse de confiança são proporcionais respectivamente a 1 e $\sqrt{2}$. Dessa forma, a esfericidade é igual a

$$\phi = \sqrt{1/2} = \sqrt{2}/2 = 0.7071$$

e o traço é igual a

$$tr(\mathbf{A}) = \lambda_1 + \lambda_2 = a_{11} + a_{22} = 1 + 2 = 3$$

Finalmente, o volume da hiper-elipse é proporcional

$$Volume \approx \prod_{i=1}^{NX} \sqrt{\lambda_i} = \sqrt{1} \cdot \sqrt{2} = \sqrt{2}$$

4.2 - Os Critérios de Otimalidade

Admitindo-se que um certo conjunto de variáveis apresenta variabilidade normal, então a região de confiança onde esperamos encontrar os valores mais prováveis daquele conjunto tem o formato de uma hiper-elipse, como discutido na seção anterior. É muito interessante perceber que, quanto maior a região de confiança, desde que estabelecido o nível de confiança desejado, menor o grau de certeza sobre o resultado experimental a ser obtido. (Por isso, muitos acham que seria mais razoável chamar a hiper-elipse de região de *desconfiança*.) Portanto, quando fazemos uma estimação de parâmetros, gostaríamos de obter como resultado pequenas regiões de confiança para os parâmetros. Da mesma forma, ao fazermos previsões sobre a resposta de certas variáveis através de um modelo, gostaríamos que a região de confiança dos erros de predição fosse tão pequena quanto possível.

Baseado nesses princípios genéricos, Kiefer¹ propôs a seguinte classificação de otimalidade de planos experimentais, baseado no formato final da região de confiança de algumas variáveis relevantes para a análise final dos resultados:

1- Otimalidade A - Planos experimentais que permitem minimizar o comprimento total final dos eixos da região de confiança dos parâmetros:

¹ M. Schwaab, E.C. Biscaia Jr., J.L. Monteiro e J.C. Pinto, "Nonlinear Parameter Estimation through Particle Swarm Optimization," *Chem. Eng. Sci.*, **63**, 6, 1542-1552, 2008.

¹ J. Kiefer, "Optimum Experimental Designs", *J.R. Statist. Soc. B*, **21**, 272-319, 1959.

$$A\text{-Ótimo} = \min \left[\text{tr}(\mathbf{V}_\alpha) \right] \quad (4.21)$$

2- Otimalidade D - Planos experimentais que permitem minimizar o volume final da região de confiança dos parâmetros:

$$D\text{-Ótimo} = \min \left[\det(\mathbf{V}_\alpha) \right] \quad (4.22)$$

3- Otimalidade E - Planos experimentais que permitem minimizar o maior comprimento dos eixos da região de confiança dos parâmetros:

$$E\text{-Ótimo} = \min \left[\max(\lambda_i) \right] \quad (4.23)$$

4- Otimalidade G - Planos experimentais que permitem minimizar a máxima variância de predição na região experimental de interesse:

$$G\text{-Ótimo} = \min \left\{ \max \left[\text{Var}(\hat{y}(\mathbf{x})) \right] \right\} \quad (4.24)$$

5- Otimalidade Média - Planos experimentais que permitem minimizar a variância média de predição na região experimental de interesse:

$$Ave\text{-Ótimo} = \min \left[\int_{\mathbf{R}} \text{Var}(\hat{y}(\mathbf{x})) d\mathbf{x} \right] \quad (4.25)$$

Vários outros critérios de otimalidade foram descritos por outros autores, dos quais podem ser citados por exemplo dois critérios de otimalidade descritos por Atkinson²:

6- Otimalidade C - Planos experimentais que permitem minimizar uma combinação linear da matriz de covariâncias dos parâmetros do modelo. Tais combinações aparecem na análise econômica de alguns problemas particulares:

$$C\text{-Ótimo} = \min \left[\mathbf{c}^T \mathbf{V}_\alpha \mathbf{c} \right] \quad (4.26)$$

7- Otimalidade D_s - Planos experimentais que permitem minimizar o volume final da região de confiança de uma parcela dos parâmetros do modelo. Admite-se que a parcela restante de NP-s parâmetros não é relevante para a análise do problema:

$$D_s\text{-Ótimo} = \min \left[\det \left([\mathbf{V}_\alpha]_{s \times s} \right) \right] \quad (4.27)$$

8- Otimalidade T - Planos experimentais que permitem maximizar a diferença entre as respostas de dois modelos distintos, para permitir discriminação dos modelos (escolher o melhor deles), indicando qual é o modelo mais adequado para descrever um conjunto de dados experimentais representativos de um fenômeno ou processo qualquer, conforme discutido no Capítulo 6.

² A.C. Atkinson, "The Usefulness of Optimum Experimental Designs", *J.R. Statist. Soc. B*, **58**, 59-76, 1996.

Alguns desses critérios, em condições particulares de aplicação, podem ser equivalentes. Por exemplo, Kiefer já havia percebido que, quando aplicados a modelos lineares nos parâmetros, com parâmetros obtidos por estimação do tipo mínimos quadrados, projetos D-Ótimos são também G-Ótimos e vice-versa. Isso é o mesmo que dizer que planos experimentais que permitem obter parâmetros de modelos lineares por mínimos quadrados com o menor volume da região de confiança também minimizam a máxima variância de predição e vice-versa. Esse resultado clássico, chamado de equivalência D-G, será utilizado nos próximos capítulos para justificar alguns resultados apresentados.

Exemplo 4.3- Suponha que dois experimentos precisam ser realizados para estimar o parâmetro a do seguinte modelo

$$y = a f(x)$$

Nesse caso, como mostrado nas Equações (3.12) a (3.14), as variâncias paramétrica e de predição podem ser escritas na forma

$$\sigma_a^2 = \frac{\sigma_y^2}{\sum_{k=1}^{NE} [f(x_k)]^2}$$

$$\sigma_{y_j}^2 = \sigma_y^2 \frac{[f(x_j)]^2}{\sum_{k=1}^{NE} [f(x_k)]^2}$$

Portanto, para minimizar a variância paramétrica (e de predição, uma vez fixado o valor da condição de experimentação x_j onde se pretende otimizar o desempenho do modelo), é necessário maximizar a função $F(x_1, \dots, x_{NE})$ no denominador das expressões acima

$$F(x_1, \dots, x_{NE}) = \sum_{k=1}^{NE} [f(x_k)]^2$$

Admitindo-se que $f(x) = \text{sen}(\pi x)$ e que x varia no intervalo $[-1, 1]$, conclui-se que os pontos de máximo da função $F(x_1, x_2)$ são aqueles que maximizam o valor absoluto da função $f(x) = \text{sen}(\pi x)$, respectivamente iguais a $x_1 = -0.5$ e $x_2 = 0.5$. Nesse caso particular, uma solução analítica pode ser obtida para o problema (o que é raro!) na forma:

$$\frac{\partial F}{\partial x_i} = 2f(x_i) \frac{\partial f}{\partial x_i} = 2\pi \text{sen}(\pi x_i) \cos(\pi x_i) = 0$$

cuja solução é

$$\text{sen}(\pi x_i) = 0 \rightarrow x_i = i$$

ou

$$\cos(\pi x_i) = 0 \rightarrow x_i = \left(i + \frac{1}{2}\right)$$

onde i é qualquer número inteiro. Para caracterizar o ponto de máximo, é ainda necessário que

$$\frac{\partial^2 F}{\partial x_i^2} = 2\pi^2 \left\{ [\cos(\pi x_i)]^2 - [\text{sen}(\pi x_i)]^2 \right\} < 0$$

Para o primeiro grupo de soluções

$$\frac{\partial^2 F}{\partial x_i^2} = 2\pi^2 \left\{ [\cos(\pi i)]^2 - [\text{sen}(\pi i)]^2 \right\} = 2\pi^2 \{1 - 0\} > 0$$

caracterizando essas soluções como pontos de mínimo da função $F(x_1, x_2)$. Para o segundo grupo de soluções

$$\frac{\partial^2 F}{\partial x_i^2} = 2\pi^2 \left\{ \left[\cos\left(\pi\left(i + \frac{1}{2}\right)\right) \right]^2 - \left[\text{sen}\left(\pi\left(i + \frac{1}{2}\right)\right) \right]^2 \right\} = 2\pi^2 \{0 - 1\} < 0$$

caracterizando essas soluções como pontos de máximo da função $F(x_1, x_2)$. Portanto, o melhor projeto experimental não é o plano fatorial, na forma definida no Capítulo 2. Se os extremos $x_1 = -1$ e $x_2 = +1$ forem escolhidos para executar o plano experimental, em conformidade com o plano fatorial clássico, o parâmetro a será estimado com incerteza infinita, pois $F(x_1, x_2) = 0$. Esse resultado surpreendente é devido à forma da função $f(x)$, que não cresce indefinidamente com o valor de x , como admitido explicitamente ao longo dos Capítulos 2 e 3.

Exemplo 4.4- Como no Exemplo 4.3, suponha que dois experimentos precisam ser realizados para estimar o parâmetro a do seguinte modelo

$$y = a f(x)$$

No entanto, suponha agora que as variâncias experimentais dependem do valor de x medido na forma

$$\sigma_y^2 = \sigma_0^2 + \sigma_1^2 x^2$$

ou seja, o sistema é heterocedástico e os erros experimentais mudam com as condições de experimentação, aumentando continuamente com o valor de x . Nesse caso, como mostrado nas Equações (3.12) a (3.14), as variâncias paramétrica e de predição podem ser escritas na forma

$$\sigma_a^2 = \frac{1}{\sum_{k=1}^{NE} \frac{[f(x_k)]^2}{\sigma_{y_k}^2}}$$

$$\sigma_{y_j}^2 = \frac{[f(x_j)]^2}{\sum_{k=1}^{NE} \frac{[f(x_k)]^2}{\sigma_{y_k}^2}}$$

Portanto, para minimizar a variância paramétrica (e de predição, uma vez fixado o valor da condição de experimentação x_j onde se pretende otimizar o desempenho do modelo), é necessário maximizar a função $F(x_1, \dots, x_{NE})$ no denominador das expressões acima

$$F(x_1, \dots, x_{NE}) = \sum_{k=1}^{NE} \frac{[f(x_k)]^2}{\sigma_{y_k}^2}$$

Admitindo-se novamente que $f(x) = \text{sen}(\pi x)$ e que x varia no intervalo $[-1, 1]$, conclui-se que os pontos de máximo da função $F(x_1, x_2)$ são aqueles que satisfazem a seguinte equação:

$$\frac{\partial F}{\partial x_i} = 2 \frac{f(x_i)}{\sigma_{y_i}^2} \frac{\partial f}{\partial x_i} - \frac{[f(x_i)]^2}{[\sigma_{y_i}^2]^2} \frac{\partial \sigma_{y_i}^2}{\partial x_i} = 2 \frac{[\text{sen}(\pi x_i)]^2}{[\sigma_0^2 + \sigma_1^2 x_i^2]^2} \left[\pi \frac{(\sigma_0^2 + \sigma_1^2 x_i^2)}{\text{tg}(\pi x_i)} - 2\sigma_1^2 x_i \right] = 0$$

cuja solução é

$$\text{sen}(\pi x_i) = 0 \rightarrow x_i = i$$

onde i é um número inteiro qualquer, ou

$$g(x_i) = \pi (\sigma_0^2 + \sigma_1^2 x_i^2) - 2 \text{tg}(\pi x_i) \sigma_1^2 x_i = 0$$

que só pode ser obtida numericamente. O primeiro conjunto de soluções pode ser descartado, pelas razões discutidas no Exemplo 4.3. Admitindo-se que $\sigma_0^2 = \sigma_1^2$, então para o segundo conjunto de soluções

$$\pi (1 + x_i^2) - 2 \text{tg}(\pi x_i) x_i = 0$$

cujos valores são $x_1 = -0.42$ e $x_2 = +0.42$, como ilustrado na Figura 4.3. (Na Figura 4.3, as linhas verticais são pontos de descontinuidade da função $g(x) = 0$.)

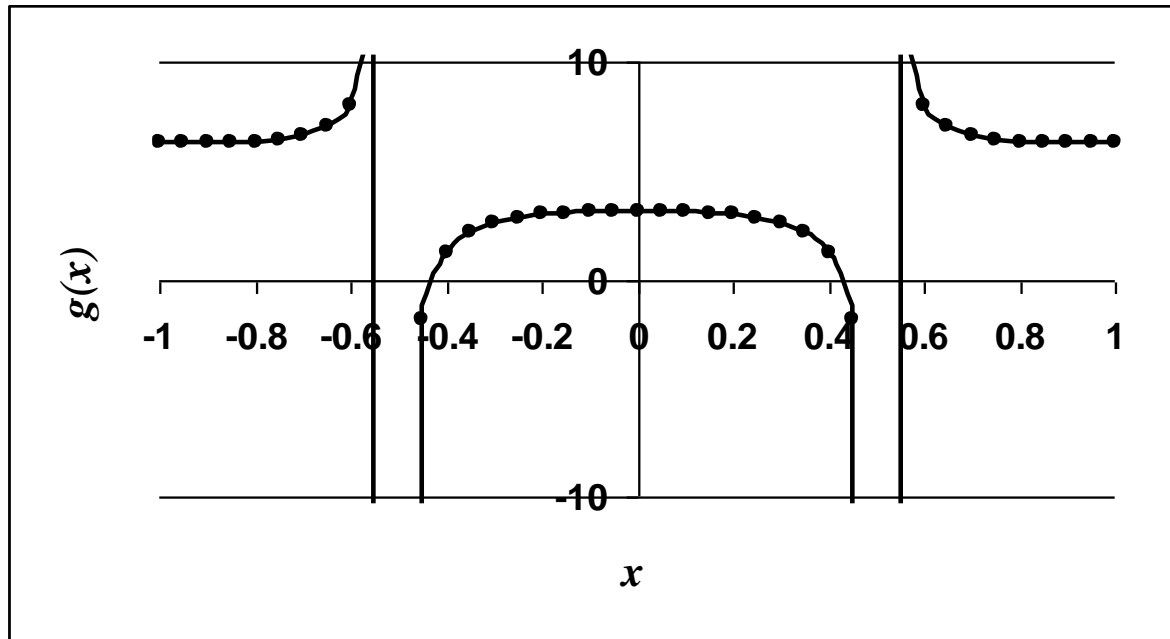


Figura 4.3- Condições ótimas de experimentação no Exemplo 4.4.

Portanto, mais uma vez o melhor projeto experimental não é o plano fatorial, na forma definida no Capítulo 2. Se os extremos $x_1 = -1$ e $x_2 = +1$ forem escolhidos para executar o plano experimental, em conformidade com o plano fatorial clássico, o parâmetro a será estimado com incerteza infinita, pois $F(x_1, x_2) = 0$. Além disso, o plano experimental ótimo é diferente daquele proposto no Exemplo 4.3, porque o problema de estimação de parâmetros mudou. Assim, vê-se que o plano experimental ótimo está intrinsecamente ligado à definição do modelo, da região de experimentação e da formulação do problema de estimação de parâmetros.

O grande problema para a geração de planos experimentais ótimos, no entanto, é que a otimização dos planos experimentais segundo quaisquer dos critérios apresentados anteriormente, como ilustrado nos Exemplos 4.3 e 4.4, depende da região experimental de interesse, da natureza do modelo estudado, da natureza do estimador de parâmetros utilizado e do número de pontos experimentais considerado. Assim, a forma irregular da região experimental de interesse pode tornar virtualmente impossível determinar com precisão o valor de qualquer dos critérios sobre toda a região admissível. Além disso, a matriz de covariância dos parâmetros ou das predições de modelos não-lineares depende do valor dos parâmetros, o que impede uma colocação precisa do problema de otimização, já que os parâmetros serão conhecidos somente após a realização dos experimentos. (Diz-se neste caso que o plano é sub-ótimo, pois depende da avaliação preliminar de que valor o parâmetro assumirá após a realização dos experimentos. Obviamente, não se pode esperar muita precisão, exceto quando excelentes estimativas paramétricas estão disponíveis.) Finalmente, como muitos pontos experimentais podem fazer parte do plano ótimo, cada um desses necessitando da definição de todas as possíveis múltiplas variáveis do problema, o problema de otimização é necessariamente multi-variável e de dimensão possivelmente grande. Por tudo isso, a maior parte do esforço de pesquisa na área tem sido o de prover alternativas numéricas que permitam gerar numericamente os planos experimentais ótimos. Apesar disso, a literatura técnica

conhece várias soluções particulares para problemas específicos¹⁻² (região experimental especificada, modelo especificado, estimador de parâmetros especificado, número especificado de pontos experimentais), que, dada a especificidade dos resultados, não serão discutidos nesse livro. No entanto, é particularmente interessante observar que todos os projetos experimentais fatoriais e meio-fatoriais desenvolvidos nos Capítulos 2 e 3 são D- e G-Ótimos no cubo, para a estimação de parâmetros por mínimos quadrados em modelos lineares.

Exemplo 4.5- Para um modelo linear, na forma $y = \alpha_1 x + \alpha_2$, com parâmetros estimados por mínimos quadrados sem erros nas variáveis independentes, foi visto no Capítulo 4 do Volume I desta série de publicações, que

$$\alpha = \mathbf{M}^{-1} \mathbf{Y} ; \mathbf{M} = \begin{bmatrix} \sum_{i=1}^{NE} x_i^2 & \sum_{i=1}^{NE} x_i \\ \sum_{i=1}^{NE} x_i & NE \end{bmatrix} ; \mathbf{Y} = \begin{bmatrix} \sum_{i=1}^{NE} y_i x_i \\ \sum_{i=1}^{NE} y_i \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{V}_\alpha = \sigma_y^2 \mathbf{M}^{-1} = \frac{\sigma_y^2}{NE \sum_{i=1}^{NE} x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^{NE} x_i \right)^2} \begin{bmatrix} NE & - \sum_{i=1}^{NE} x_i \\ - \sum_{i=1}^{NE} x_i & \sum_{i=1}^{NE} x_i^2 \end{bmatrix}$$

$$\text{tr}(\mathbf{V}_\alpha) = \frac{\sigma_y^2 \left(NE + \sum_{i=1}^{NE} x_i^2 \right)}{NE \sum_{i=1}^{NE} x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^{NE} x_i \right)^2} ; \det(\mathbf{V}_\alpha) = \frac{\sigma_y^2}{NE \sum_{i=1}^{NE} x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^{NE} x_i \right)^2}$$

Se considerarmos que NE é igual a 2, o denominador da função do traço e do determinante fica:

$$NE \sum_{i=1}^{NE} x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^{NE} x_i \right)^2 = 2(x_1^2 + x_2^2) - (x_1^2 + 2x_1x_2 + x_2^2)$$

$$NE \sum_{i=1}^{NE} x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^{NE} x_i \right)^2 = x_1^2 + x_2^2 - 2x_1x_2 = (x_1 - x_2)^2$$

Assim, fica claro que quando x_1 é igual a x_2 , os erros das estimativas dos parâmetros da reta são infinitos. Este resultado é bastante razoável, já que para definirmos uma reta precisamos de dois pontos distintos. Na Figura 4.4 são apresentadas as curvas do inverso do traço e do determinante da matriz de covariância dos parâmetros. Observe que sempre que x_1 é igual a x_2 o valor é nulo, de forma que os valores do traço e do determinante sejam infinitos.

¹ V.V. Fedorov, "Theory of Optimal Experiments", W.J. Studden e E.M. Klimko Eds., Academic Press, New York, 1972.

² S.D. Silvey, "Optimum Design", Chapman and Hall, Londres, 1980.

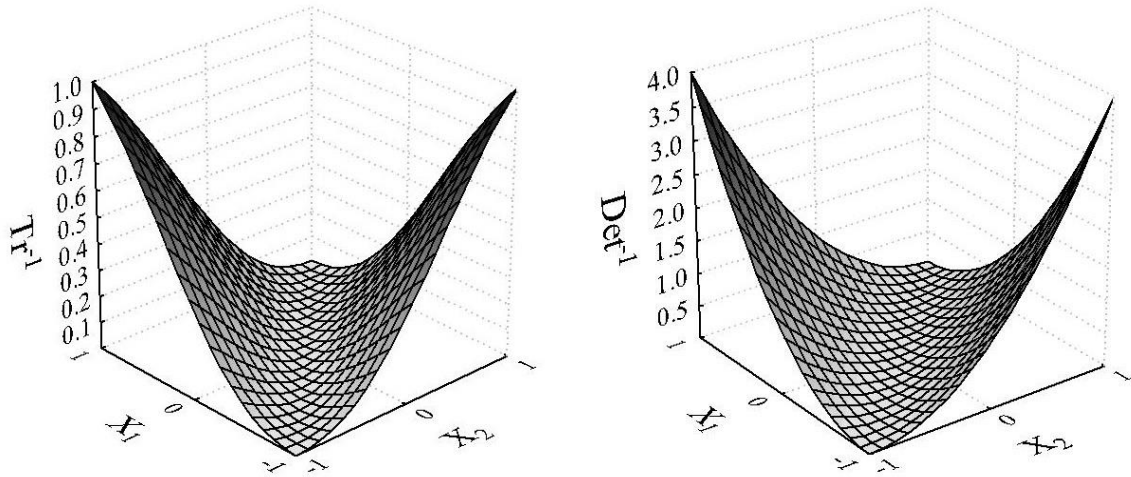


Figura 4.4 – Inverso do traço e inverso do determinante da matriz covariâncias para um modelo de reta com NE igual a 2.

Deve ser observado ainda que os valores máximos da função aparecem nos valores extremos onde x_1 e x_2 admitem valores opostos, iguais a -1 e +1 (ou o contrário). Assim os planos A- e D- ótimos são compostos por experimentos realizados nos pontos extremos da região experimental.

Quanto ao erro de predição,

$$\hat{\sigma}_y^2 = [x \ 1] \mathbf{V}_a \begin{bmatrix} x \\ 1 \end{bmatrix} = \sigma_{\alpha 11}^2 x^2 + 2 \sigma_{\alpha 12}^2 x + \sigma_{\alpha 22}^2$$

cujo valor máximo está necessariamente sobre um ponto extremo. A variância média em toda a região experimental é dada por:

$$\begin{aligned} \text{Ave}(\hat{\sigma}_y^2) &= \frac{\int_{x_{\min}}^{x_{\max}} (\sigma_{\alpha 11}^2 x^2 + 2\sigma_{\alpha 12}^2 x + \sigma_{\alpha 22}^2) dx}{(x_{\max} - x_{\min})} \\ \text{Ave}(\hat{\sigma}_y^2) &= \frac{\sigma_{\alpha 11}^2 \left(\frac{x_{\max}^3}{3} - \frac{x_{\min}^3}{3} \right) + 2\sigma_{\alpha 12}^2 \left(\frac{x_{\max}^2}{2} - \frac{x_{\min}^2}{2} \right) + \sigma_{\alpha 22}^2 (x_{\max} - x_{\min})}{(x_{\max} - x_{\min})} \end{aligned}$$

Para encontrar os resultados G- e Ave- Ótimos é necessário introduzir nas expressões acima os valores de $\sigma_{\alpha 11}^2$, $\sigma_{\alpha 12}^2$ e $\sigma_{\alpha 22}^2$, como descritos na matriz de covariâncias. Nesses casos, observa-se a dependência explícita dos critérios nos valores extremos da região experimental admissível. Uma vez mais, observa-se que as condições ótimas para experimentação são os pontos extremos do intervalo de valores admissíveis, onde x_1 e x_2 têm valores opostos.

Como observado acima, a variância sempre será máxima em um dos extremos. Considerando a região experimental de -1 a +1, o inverso da variância no ponto +1 é mostrado na Figura 4.5 (esquerda) como uma função das duas condições experimentais. Observe que sempre que uma das duas condições experimentais é igual a +1, o inverso da variância alcança o valor máximo, de forma que a variância no ponto +1 será mínima. Quando a variância média

é considerada, o resultado obtido é similar ao apresentado na Figura 4.4, indicando que para modelos lineares, minimizar o determinante ou o traço da matriz de covariância dos parâmetros leva à minimização do valor médio da variância de predição. Como na Figura 4.4, na Figura 4.5 sempre que x_1 é igual a x_2 a variância máxima ou a média tem valor infinito, exceto no caso da variância máxima quando x_1 e x_2 são exatamente iguais a 1, onde o valor da variância tem valor mínimo (o inverso assume valor máximo).

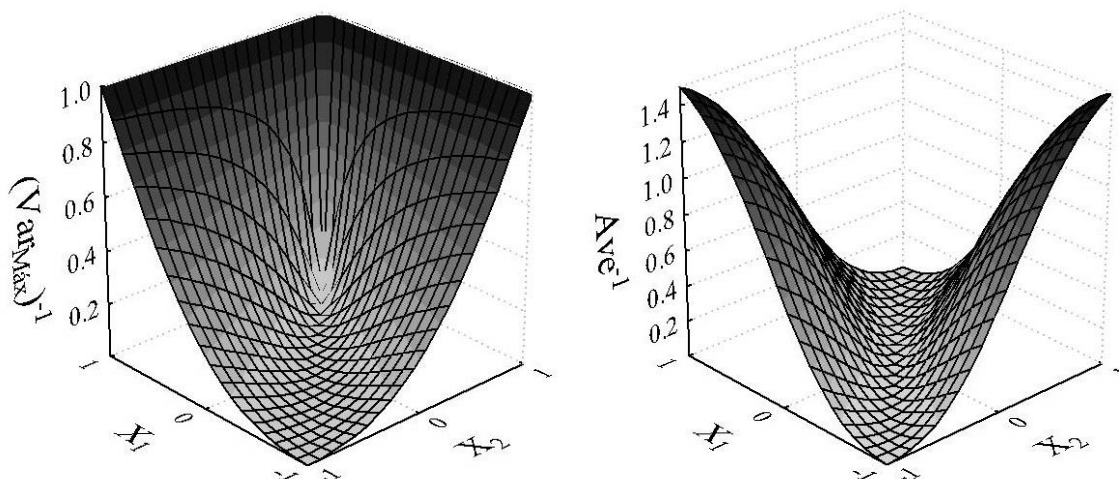


Figura 4.5 – Variância máxima e média para um modelo de reta com NE igual a 2.

A estratégia de apresentação adotada por este livro para tratar do problema de planejamento experimental, quando restrições estão presentes na forma da região admissível, consiste em primeiramente fazer uma breve descrição de um conjunto de técnicas empíricas de planejamento para o problema clássico de misturas, onde existem claras restrições na região experimental. Depois são apresentados algoritmos numéricos que permitem a otimização do plano experimental, segundo qualquer dos critérios apresentados acima. Finalmente, é introduzido o conceito de planejamento sequencial para otimização de propriedades especificadas em domínios regulares e irregulares.

4.3 - As Técnicas de Mistura

O problema de mistura é o problema clássico de existência de restrições na região experimental admissível. Este problema é enfrentado com frequência nas áreas de Química, Engenharia Química, Engenharia de Materiais e assemelhadas. O problema básico é analisar como uma ou mais variáveis dependentes dependem da formulação do sistema. Por exemplo, como a octanagem da gasolina depende da composição individual de seus constituintes ou como o sabor do panetone depende das quantidades relativas dos componentes adicionados à receita. Neste problema, se NC constituintes estão presentes, apenas $NC-1$ variáveis são de fato independentes, pois

$$\sum_{i=1}^{NC} x_i = 1 \tag{4.28}$$

que é o mesmo que dizer que a soma das frações dos constituintes originais dever ser sempre igual a 1. Dessa forma, uma restrição forte é imposta sobre a forma da região experimental,

com conseqüente impacto sobre o planejamento. Vejamos na Figura 4.6 abaixo o que acontece com a região experimental admissível quando o número de constituintes é igual a 1, 2 e 3 respectivamente:

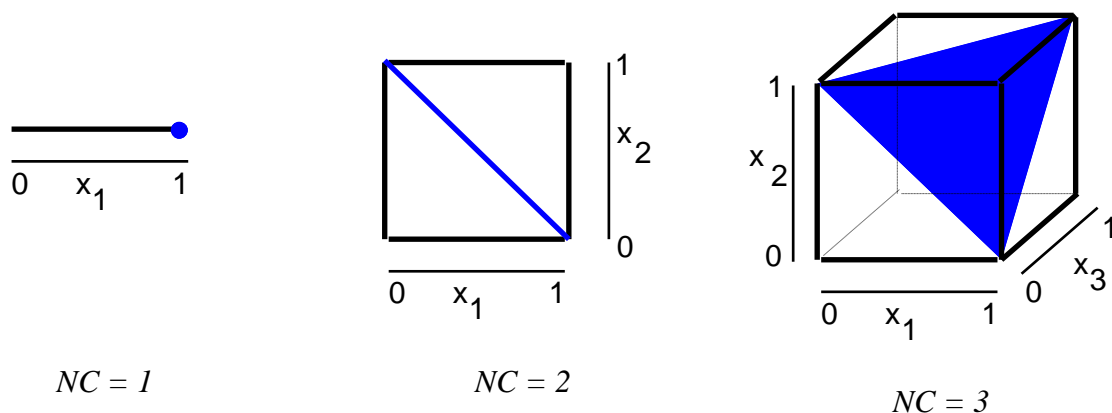


Figura 4.6 - Formato da região admissível (azul) para problemas de mistura com dimensão igual a 1, 2 e 3, respectivamente.

O leitor deve perceber que a eliminação de uma das variáveis, para que se possa trabalhar com um conjunto menor de variáveis realmente independentes, não resolve o problema de formulação quando a dimensão é superior a 2, como mostra a Figura 4.7.

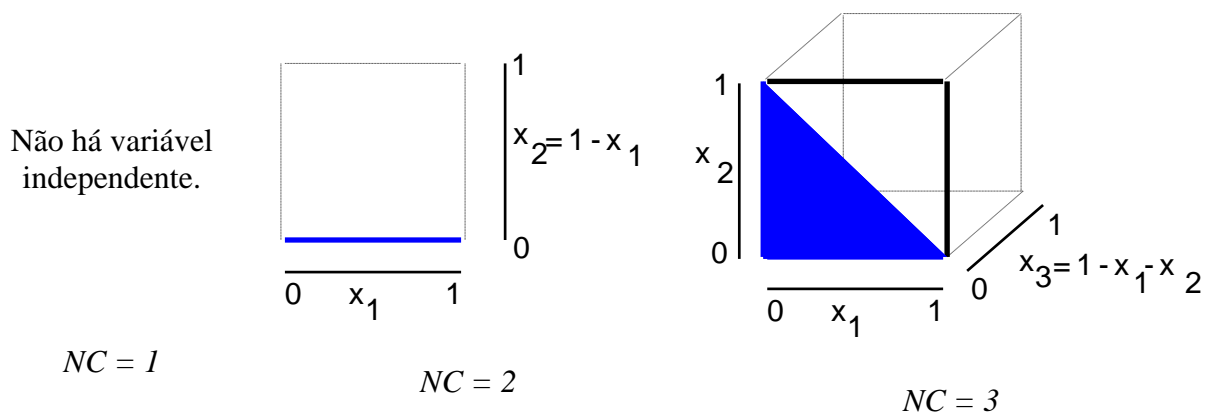


Figura 4.7 - Formato da região admissível (azul) para problemas de mistura com dimensão igual a 1, 2 e 3, respectivamente, quando uma das variáveis é eliminada.

O formato da região experimental admissível é sempre hiper-triangular, chamada na literatura técnica de um SIMPLEX; ou seja, uma figura geométrica convexa no espaço de dimensão $NC-1$, cujas arestas são linhas retas. Nenhuma das técnicas analisadas nos Capítulos 2 e 3 podem ser aplicadas com sucesso nesses casos (exceto se $NC=2$).

Algumas propostas de planos experimentais são discutidas com exaustão na literatura técnica dedicada exclusivamente a misturas (veja, por exemplo, o livro de Cornell¹). Todas essas propostas podem ser consideradas empíricas, no sentido que não visam a otimizar qualquer propriedade específica dos parâmetros do modelo ou da predição. Na maioria das vezes as propostas apenas visam a gerar um conjunto de pontos suficiente para permitir a estimação de parâmetros com estrutura pré-especificada. É interessante observar que os

¹ J.A. Cornell, "Experiments With Mixtures", John Wiley & Sons, New York, 1981.

modelos empíricos utilizados nesse caso devem ter uma estrutura particular, por conta da restrição de igualdade da Equação (4.28). Por exemplo, o modelo linear genérico com forma

$$y = \alpha_0 + \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i x_i \quad (4.29)$$

ganha a forma de mistura

$$y = \alpha_0 \sum_{i=1}^{NC} x_i + \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i x_i = \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i^* x_i \quad (4.30)$$

onde

$$\alpha_i^* = \alpha_0 + \alpha_i \quad (4.31)$$

ou seja, o termo independente deve ser eliminado, como forma de compensar pelo menor número de varáveis independentes do problema. De forma semelhante, um modelo quadrático genérico

$$y = \alpha_0 + \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i x_i + \sum_{i=1}^{NC} \sum_{j=i}^{NC} \delta_{ij} x_i x_j \quad (4.32)$$

ganha a seguinte forma de mistura

$$\begin{aligned} y &= \alpha_0 \sum_{i=1}^{NC} x_i + \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i x_i + \sum_{i=1}^{NC} \sum_{j=i}^{NC} \delta_{ij} x_i x_j \\ &= \alpha_0 \sum_{i=1}^{NC} x_i + \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i x_i + \sum_{i=1}^{NC} \delta_{ii} x_i \left(1 - \sum_{j=1}^{NC} x_j \right) + \sum_{i=1}^{NC} \sum_{j=i}^{NC} \delta_{ij} x_i x_j \end{aligned} \quad (4.33)$$

ou ainda

$$y = \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i^* x_i + \sum_{i=1}^{NC} \sum_{j=i+1}^{NC} \delta_{ij}^* x_i x_j \quad (4.34)$$

onde

$$\alpha_i^* = \alpha_0 + \alpha_i + \delta_{ii} \quad (4.35)$$

$$\delta_{ij}^* = \delta_{ij} - \delta_{ii} - \delta_{jj} \quad (4.36)$$

Portanto, o modelo linear tem $NP = NC$ parâmetros, enquanto o modelo quadrático tem $NP = NC (NC + 1) / 2$ parâmetros.

Do ponto de vista matemático, pode ser conveniente trabalhar com um sistema de coordenadas que elimine o elemento dependente e que esteja completamente inserido sobre o SIMPLEX. As variáveis e o sistema de coordenadas podem ser redefinidos, se percebemos que o centróide (ponto onde todas as composições são iguais) e os pontos extremos do sistema original de coordenadas estão sempre contidos no SIMPLEX. Os NC vetores que unem os pontos extremos ao centróide, portanto, estão completamente contidos no SIMPLEX (ver

Figura 4.8). No entanto, como o SIMPLEX tem dimensão $NC-1$, esses vetores não são linearmente independentes. Por isso, podemos utilizar os $NC-1$ primeiros vetores para gerar o sistema de coordenadas sobre o SIMPLEX. Para gerar a componente final do sistema de coordenadas, podemos utilizar o vetor que une o ponto zero do sistema original (que nunca está contido na região admissível) ao centróide. Uma interpretação geométrica dessa discussão está mostrada na Figura 4.8 abaixo.

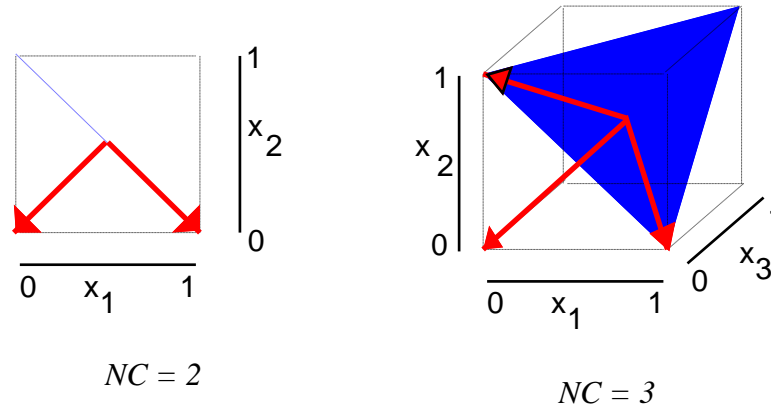


Figura 4.8 - Esquema de definição do novo sistema de coordenadas. Região admissível em azul. Vetores linearmente independentes em vermelho.

Os vetores linearmente independentes, portanto, podem ser escritos como:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{v}_1^T &= \left[1 - \frac{1}{NC} ; -\frac{1}{NC} ; L ; -\frac{1}{NC} ; -\frac{1}{NC} \right] \\
 \mathbf{v}_2^T &= \left[-\frac{1}{NC} ; 1 - \frac{1}{NC} ; L ; -\frac{1}{NC} ; -\frac{1}{NC} \right] \\
 &M \\
 \mathbf{v}_{NC-1}^T &= \left[-\frac{1}{NC} ; -\frac{1}{NC} ; L ; 1 - \frac{1}{NC} ; -\frac{1}{NC} \right] \\
 \mathbf{v}_{NC}^T &= \left[-\frac{1}{NC} ; -\frac{1}{NC} ; L ; -\frac{1}{NC} ; -\frac{1}{NC} \right]
 \end{aligned}
 \tag{4.37}$$

O procedimento de Gram-Schmidt¹ pode então ser usado para ortogonalizar a base de vetores do espaço e redefinir o sistema de coordenadas. O procedimento de ortogonalização consiste em aplicar de forma recursiva a transformação

$$\mathbf{v}_i^\perp = \frac{\mathbf{v}_i - \sum_{j=1}^{i-1} \langle \mathbf{v}_i, \mathbf{v}_j^\perp \rangle \mathbf{v}_j^\perp}{\left\| \mathbf{v}_i - \sum_{j=1}^{i-1} \langle \mathbf{v}_i, \mathbf{v}_j^\perp \rangle \mathbf{v}_j^\perp \right\|}, \quad i = 1, \dots, NC
 \tag{4.38}$$

¹ C.R. Wylie and L.C. Barrett, "Advanced Engineering Mathematics", McGraw-Hill, 5ª Ed., Singapura, 1985. (pp.663-665)

Em termos do novo sistema de coordenadas, é conveniente ainda posicionar a nova origem no centróide do sistema original, que está sempre contido no SIMPLEX. Desta forma, as variáveis do problema podem ser descritas em termos do novo sistema de coordenadas como:

$$\mathbf{g}^T = (\mathbf{x}^T - \mathbf{o}^T) [\mathbf{v}_1^\perp \ M \ \mathbf{v}_2^\perp \ M \ L \ M \ \mathbf{v}_{NC}^\perp] \quad (4.39)$$

onde \mathbf{g}^T são as novas variáveis, \mathbf{x}^T são as variáveis originais e \mathbf{o}^T são as coordenadas do centróide no sistema original de coordenadas.

A conveniência desta transformação é eliminar a variável x_{NC} da análise. É importante salientar, no entanto, que a forma da região experimental admissível não muda, de forma que o problema de planejamento experimental continua tão complexo quanto antes.

Exemplo 4.6- Seja o problema de mistura com dois componentes. Neste caso, os vetores linearmente independentes definidos pela Equação (4.37) são:

$$\mathbf{v}_1^T = \left[\frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right], \mathbf{v}_2^T = \left[-\frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right]$$

Portanto, o primeiro elemento da nova base de coordenadas é

$$\mathbf{v}_1^\perp = \frac{\mathbf{v}_1}{\|\mathbf{v}_1\|} = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{1}{2}\right)^2 + \left(-\frac{1}{2}\right)^2}} \begin{bmatrix} \frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \\ -\frac{\sqrt{2}}{2} \end{bmatrix}$$

O segundo elemento da nova base de coordenadas é

$$\mathbf{v}_2^\perp = \frac{\mathbf{v}_2 - \langle \mathbf{v}_2, \mathbf{v}_1^\perp \rangle \mathbf{v}_1^\perp}{\|\mathbf{v}_2 - \langle \mathbf{v}_2, \mathbf{v}_1^\perp \rangle \mathbf{v}_1^\perp\|}$$

cujo numerador é igual a

$$\begin{bmatrix} -\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} \end{bmatrix} - \left[\left(-\frac{1}{2}\right) \left(\frac{\sqrt{2}}{2}\right) + \left(-\frac{1}{2}\right) \left(-\frac{\sqrt{2}}{2}\right) \right] \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \\ -\frac{\sqrt{2}}{2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} \end{bmatrix}$$

de forma que o denominador é igual a

$$\sqrt{\left(-\frac{1}{2}\right)^2 + \left(-\frac{1}{2}\right)^2} = \frac{\sqrt{2}}{2}$$

e finalmente

$$\mathbf{v}_2^T = \frac{2}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} -\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\frac{\sqrt{2}}{2} \\ -\frac{\sqrt{2}}{2} \end{bmatrix}$$

Para verificarmos como de fato a segunda variável é eliminada do problema, vejamos como as coordenadas originais ficam em termos do novo sistema de coordenadas:

$$\begin{aligned} \mathbf{g}^T &= \left[\left(x_1 - \frac{1}{2} \right); \left(x_2 - \frac{1}{2} \right) \right] \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} & -\frac{\sqrt{2}}{2} \\ -\frac{\sqrt{2}}{2} & -\frac{\sqrt{2}}{2} \end{bmatrix} \\ &= \left[\frac{\sqrt{2}}{2} (x_1 - x_2); -\frac{\sqrt{2}}{2} (x_1 + x_2 - 1) \right] = \frac{\sqrt{2}}{2} [(x_1 - x_2); 0] \end{aligned}$$

confirmando a eliminação de uma das variáveis do problema.

Para montar o plano experimental para o problema de mistura, uma alternativa poderia ser a criação de um mapeamento que transformasse os planos experimentais dos Capítulos 2 e 3 em planos experimentais no SIMPLEX. O problema é que a criação desses mapeamentos oferece alguns desafios de ordem teórica e prática pela seguinte razão: embora uma mistura de três componentes tenha apenas duas variáveis independentes, os experimentos precisam de fato ser distribuídos ao longo das três direções ortogonais, sob pena do plano experimental não permitir a análise adequada dos efeitos introduzidos por cada um dos componentes da mistura. Veja por exemplo o esquema da Figura 4.9, onde três dos quatro vértices do plano experimental $OA_4(2^2)$ foi mapeado num dos vértices do SIMPLEX do problema de três componentes. O centro do plano $OA_4(2^2)$ foi mapeado no centróide do SIMPLEX. E o quarto vértice? Parece não haver equivalência entre esses planos. A “introdução” de um novo “vértice” no SIMPLEX (isso pode ser feito formalmente através de uma transformação não linear, mas será negligenciado nesse texto) desbalanceia o projeto, no sentido de que um certo par de componentes é privilegiado em relação ao componente restante. Por outro lado, o mapeamento do vértice sobressalente para um ponto interior do SIMPLEX, do ponto de vista formal matemático, não é adequado.

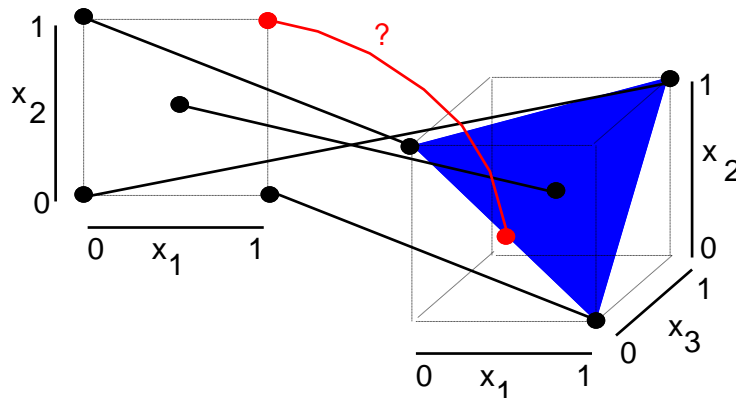


Figura 4.9 - Exemplo de mapeamento do quadrado para o SIMPLEX.

Por essa razão, o problema de planejamento para misturas é normalmente resolvido com propostas empíricas ou no escopo de otimização, como discutido na seção anterior e na próxima. Algumas das propostas empíricas mais comuns são apresentadas abaixo.

4.3.1 - Grades Experimentais Regulares Sobre o SIMPLEX (*Simplex-Lattice Designs*):

Segundo a proposta de distribuição regular dos pontos experimentais sobre o SIMPLEX (análoga à proposta usada originalmente para gerar o plano fatorial completo do Capítulo 2), cada eixo coordenado pode ser dividido em m intervalos (ou $m+1$ níveis), sendo efetuadas todas as combinações possíveis dos pontos que limitam esses intervalos. Por exemplo, suponhamos que a mistura tem três componentes e que m também é igual a 3. Nesse caso, os pontos que limitam os intervalos sobre os eixos coordenados são 0, 1/3, 2/3 e 1. Assim, os pontos experimentais obtidos são aqueles apresentados na Figura 4.10.

- (1, 0, 0),
- (2/3, 1/3, 0), (2/3, 0, 1/3),
- (1/3, 2/3, 0), (1/3, 1/3, 1/3), (1/3, 0, 2/3),
- (0, 1, 0), (0, 2/3, 1/3), (0, 1/3, 2/3), (0, 0, 1)

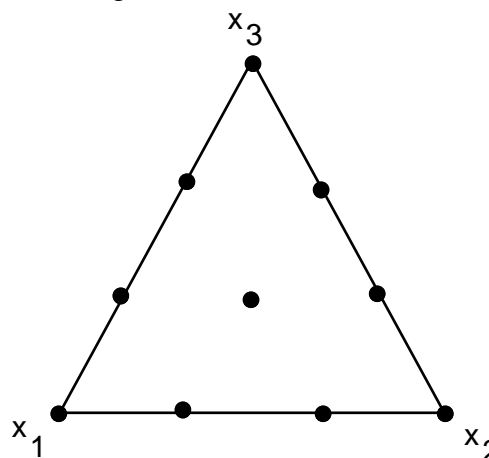


Figura 4.10 – Plano experimental regular em um SIMPLEX, formado por 3 componentes e quatro níveis ($m=3$).

Esses pontos experimentais podem ser gerados com facilidade no computador, usando-se um algoritmo na forma apresentada no Algoritmo 4.1.

Algoritmo 4.1- Geração de Grades Regulares Sobre o SIMPLEX.

Comentário: Inicialização

1. Faça $x_i = 0, i = 1, \dots, NC$

Comentário: Loop Principal

2. Enquanto ($x_1 \leq 1$):

3. Faça: $x_{NC} = 1 - \sum_{i=1}^{NC-1} x_i$

4. Guarde o ponto experimental $x_i, i = 1, \dots, NC$

5. Faça: $j = NC - 1$

6. Se ($j = 0$) vá para o item 10

7. Faça: $x_j = x_j + \frac{1}{m}$

8. Se $(x_j > 1 - \sum_{k=1}^{j-1} x_k)$ Então

Comentário: Ponto Inválido

8.1. Faça: $x_j = 0$

8.2. Faça: $j = j - 1$

8.3. Volte para o item 6

9. Volte para o item 2

10. FIM

O número de pontos experimentais contidos em planos do tipo grade regular é dado pela expressão:

$$NE = \binom{NC + m - 1}{m} = \frac{(NC + m - 1)!}{m! (NC - 1)!} \quad (4.40)$$

No caso mostrado como exemplo na Figura 4.10, onde $NC = m = 3$, o número de experimentos fica igual a $NE = 5! / (3! 2!) = 10$, que corresponde exatamente ao número de pontos experimentais encontrados.

O número de parâmetros do modelo linear da Equação (4.34), que considera apenas os efeitos principais e as interações de segunda ordem, pode ser dado por

$$NP = \frac{NC (NC + 1)}{2} \quad (4.41)$$

de forma que é possível estabelecer o número de graus de liberdade do problema de estimação de ante-mão, quando modelos lineares polinomiais são utilizados para estabelecer as correlações entre as diversas variáveis analisadas.

4.3.2 - Grades Experimentais Regulares Centrais Sobre o SIMPLEX (Simplex-Centroid Designs):

Nesse caso, todos os centróides existentes em cada uma das faces i -dimensionais do SIMPLEX, $i = 0, \dots, NC-1$, são adicionados ao plano experimental. A idéia básica desse plano é conter todas as misturas com composição uniforme passíveis de serem formuladas com os componentes da mistura. Um exemplo para três componentes é apresentado na Figura 4.11.

$(1, 0, 0)$, $(0, 1, 0)$, $(0, 0, 1)$,
 $(1/2, 1/2, 0)$, $(1/2, 0, 1/2)$, $(0, 1/2, 1/2)$,
 $(1/3, 1/3, 1/3)$

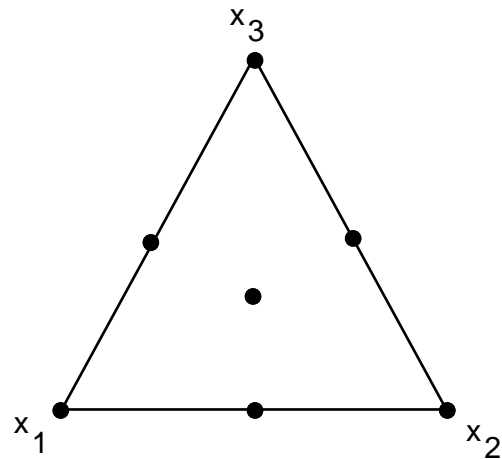


Figura 4.11 – Plano experimental regular central em um SIMPLEX de 3 componentes.

O leitor deve observar que os vértices contêm os componentes puros, os pontos médios das arestas contêm misturas binárias de composição uniforme e o centróide contém uma mistura ternária uniforme. Esses pontos experimentais podem ser gerados com facilidade no computador, usando-se um algoritmo na forma do Algoritmo 4.2.

Algoritmo 4.2- Geração de Grades Centrais Sobre o SIMPLEX.*Comentário:* Loop Principal1. Com i variando de 1 até NC , Faça:*Comentário:* Inicialização2. Faça $x_j = \frac{1}{i}$, $j = 1, \dots, i$ $x_j = 0$, $j = i + 1, \dots, NC$ 3. Guarde o ponto experimental x_j , $j = 1, \dots, NC$ *Comentário:* Busca por um Novo Ponto Admissível*Comentário:* Identifica os Zeros à Direita4. Começando em $k = NC$, diminua k até que $x_k \neq 0$;5. Se ($k < NC$) então:*Comentário:* Havia zeros à direita. Pode-se mover o centro.5.1 Troque os valores de x_k e x_{k+1} .

5.2 Volte ao item 3

Comentário: Não havia zeros à direita. Deve-se movimentar pontos internos.*Comentário:* Procura-se nova sequência de zeros à esquerda.6. Começando em $l = k$, diminua l enquanto $x_l \neq 0$ ou até $l = 0$.7. Se ($l = 0$) então:*Comentário:* Não há zeros. É o último centróide.

7.1. Vá para o item 13

Comentário: Procura-se nova sequência de valores não nulos à esquerda.8. Começando em $m = l$, diminua m até que $x_m \neq 0$ ou até $m = 0$;9. Se ($m = 0$) Então*Comentário:* Não há mais valores não nulos. Acabaram-se as combinações para centróides dessa dimensão.9.1. Volte ao item 1, passando para $i = i + 1$ *Comentário:* Encontrou outro valor não nulo.10. Troque os valores de x_m e x_{m+1} *Comentário:* Volta valores não nulos à direita para posições contíguas.11. Variando n de $1, \dots, NC - l$ Troque os valores de $x_{m+1+n} = x_{l+n}$

12. Volte ao item 3

13. FIM

O número de pontos experimentais contidos em planos do tipo grade central é dado pela expressão:

$$NE = \sum_{i=1}^{NC} \binom{NC}{i} \quad (4.42)$$

No caso mostrado como exemplo na Figura 4.11, onde $NC = 3$, o número de experimentos fica igual a

$$NE = \binom{3}{1} + \binom{3}{2} + \binom{3}{3} = \frac{3!}{1! 2!} + \frac{3!}{2! 1!} + \frac{3!}{3! 0!} = 3 + 3 + 1 = 7$$

que corresponde exatamente ao número de pontos experimentais encontrados.

4.3.3 - Outros Planos Experimentais para Misturas:

Várias outras propostas empíricas foram apresentadas para o problema de misturas na literatura, como, por exemplo, uma variação dos planos centrais, que consiste em dispor pontos experimentais sobre os eixos que ligam os vértices aos centróides do SIMPLEX (Planos Regulares Axiais Sobre o SIMPLEX¹). No entanto, muitos problemas para geração dos planos ocorrem quando restrições adicionais são impostas sobre a região experimental. Por exemplo, pode-se desejar que certos componentes variem apenas em um sub-intervalo contido no intervalo [0,1]. Neste caso, a estrutura geométrica do SIMPLEX pode resultar bastante complexa, assim como ficar difícil posicionar da melhor forma os pontos experimentais sobre a região experimental admissível. Por isso, nesses casos são sugeridos os procedimentos descritos na próxima seção.

Exemplo 4.7- Suponha que um plano de mistura será formulado para três componentes ($NC=3$). Suponha ainda que existem limitações a respeito dos teores máximos que as misturas podem conter dos componentes 1 e 2. O SIMPLEX resultante está mostrado na Figura 4.12.

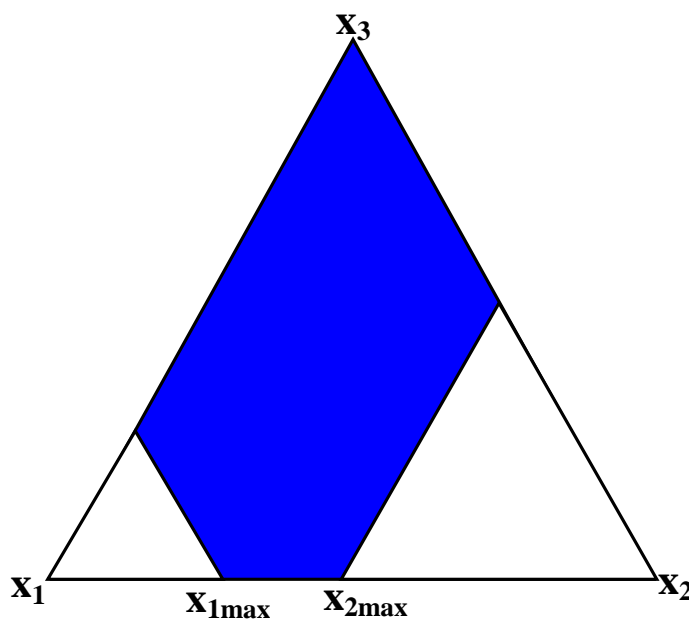


Figura 4.12 – SIMPLEX gerado para 3 componentes (azul), quando existem limites máximos para os componentes 1 e 2.

Como pode ser definida uma distribuição regular de pontos para o SIMPLEX da Figura 4.12?

4.4 - As Técnicas Numéricas para Otimização de Planos em Batelada

O problema de planejamento experimental nessa seção é colocado como o de determinar um sub-conjunto NE de pontos experimentais contidos num conjunto NG de pontos

¹ J.A. Cornell, "Experiments With Mixtures", John Wiley & Sons, New York, 1981.

admissíveis (ou grade experimental) que permitem otimizar um determinado critério de otimalidade. Esse problema numérico foi originalmente tratado por Fedorov¹. Por isso esse conjunto de técnicas numéricas é frequentemente chamado de planejamento experimental de Fedorov.

Na forma aqui colocada, supõe-se que é possível fornecer um conjunto *NG* de pontos contidos na região experimental admissível, tarefa essa nem sempre trivial se as restrições a serem satisfeitas são muitas. Por isso, uma tarefa inicial do analista deve ser trabalhar a região experimental, de forma a prover um conjunto de pontos experimentais possíveis. Esses pontos experimentais podem ser gerados automaticamente com geradores de malhas computacionais, se a tarefa inicial se mostrar muito complexa, embora isso não seja muito comum.

A tarefa seguinte é analisar os dados da malha de forma adequada, visando a selecionar as *NE* melhores condições experimentais. Nesse ponto é importante enfatizar que o subconjunto de *NE* condições experimentais não necessariamente é composto por condições distintas, uma vez que a replicação de experimentos frequentemente tem um efeito benéfico sobre os resultados alcançados. A análise dos dados pode ser dividida em três fases: a estimativa inicial da melhor malha (ou chute inicial), a análise e troca das condições consideradas ruins por outras consideradas melhores e o ajuste fino final do plano experimental, quando a natureza discreta da malha pode ser relaxada, para permitir a obtenção de melhores resultados. O algoritmo genérico de otimização, portanto, pode ser colocado na forma do Algoritmo 4.3.

Algoritmo 4.3- Esquema Geral de Otimização Numérica de Planos Experimentais.

Estabelecidos *NG* - Número de Pontos do Grid;

NE - Número de Pontos Experimentais Desejados;

Rotina de Estimação de Parâmetros;

Modelo Procurado;

Critério de Otimalidade Desejado.

Gerar a Malha Experimental

Gerar uma Estimativa Inicial para o Plano Experimental Ótimo

Conduzir a Análise, Eliminando Pontos Inadequados por Outros Mais Adequados

Fazer Ajuste Fino Final da Resposta

É importante salientar que o algoritmo original de Fedorov (EXCHANGE) cuidava principalmente da fase de análise dos dados, enquanto os demais pontos foram gradualmente sendo incorporados ao algoritmo original por outros autores, visando a aumentar a eficiência da técnica de otimização. Cada um desses pontos será discutido com detalhes em cada uma das sub-seções que seguem.

4.4.1 - Um Gerador Automático de Malhas Experimentais

Para gerar automaticamente malhas experimentais, é preciso reconhecer primeiramente que as *NX* variáveis do problema estão sujeitas a um certo conjunto de restrições de igualdade e

¹ V.V. Fedorov, "Theory of Optimal Experiments", W.J. Studden e E.M. Klimko Eds., Academic Press, New York, 1972.

a um segundo conjunto de restrições de desigualdade, que podem ser colocadas da seguinte maneira:

$$f_i(\mathbf{x}) = 0, \quad i = 1, \dots, NF \quad (4.43)$$

$$g_i(\mathbf{x}) \leq 0, \quad i = 1, \dots, NG \quad (4.44)$$

Admite-se aqui que as NF restrições de igualdade são linearmente independentes. Caso existam dúvidas quanto à independência das restrições de igualdade, é conveniente analisar o posto da matriz Jacobiana de \mathbf{f} , definida como

$$\mathbf{J} = [J_{ij}], \quad J_{ij} = \left. \frac{\partial f_i}{\partial x_j} \right|_R \quad (4.45)$$

onde R é uma região experimental viável. Se as restrições de igualdade forem lineares, as derivadas de \mathbf{f} não dependem dos pontos experimentais considerados. Se as funções forem linearmente independentes, o posto de \mathbf{J} será igual a NF em toda a grade experimental analisada. As restrições de desigualdade, por sua vez, podem ser redundantes sem maiores prejuízos para a análise aqui efetuada.

Devido à existência das restrições de igualdade, o número de variáveis independentes de fato é $NX - NF$. NF variáveis podem ser descritas como funções das demais $NX - NF$ variáveis do problema, para que sejam satisfeitas as restrições de igualdade. O que o gerador de malhas tem que fazer é, a partir da estrutura do problema, definir quantas e quais são as variáveis independentes, variar as variáveis independentes na região em que estão definidas, obter as variáveis dependentes como funções das variáveis independentes e finalmente checar se as restrições de desigualdade são ou não são satisfeitas. Todas essas tarefas são relativamente simples de executar no computador, excetuando-se talvez a definição do melhor conjunto de variáveis independentes do problema. As variáveis independentes podem ser identificadas pelo usuário ou a partir da estrutura da matriz Jacobiana de \mathbf{f} .

O procedimento aqui apresentado, conhecido como procedimento de partição de um conjunto de equações, é bastante usado em estudos de otimização de processos, quando se deseja conhecer o melhor conjunto de variáveis de projeto¹. O procedimento consiste em primeiramente eliminar aquelas variáveis que não estão em quaisquer das restrições de igualdade (colunas nulas de \mathbf{J}) e depois selecionar como NF variáveis dependentes aquelas variáveis que aparecem no menor conjunto possível de equações (colunas de \mathbf{J} com menor número de termos não nulos). Deve-se tomar o cuidado também de verificar se todas as variáveis escolhidas de fato podem perturbar todas as equações do problema, pois não há como resolver a equação $x - y = 0$ se ambos x e y são fixados arbitrariamente pelo usuário. Parece óbvio que ou x ou y (exclusivamente) deve ser considerado como variável independente, ficando a outra variável como variável dependente. Por isso, toda vez que uma variável é escolhida como variável dependente, uma das equações em que ela aparece deve ser eliminada da lista, como a dizer que aquela variável sai daquela equação. Idealmente, deve-se eliminar a equação que contém o maior número de variáveis, de forma a facilitar a escolha das demais variáveis dependentes do problema.

¹ T.F. Edgar e D.M. Himmelblau, "Optimization of Chemical Processes", McGraw-Hill, New York, 1988 (pp. 551-598).

Algoritmo 4.4- Escolha das Variáveis Dependentes

1. Calcular a matriz Jacobiana de f em pontos da região experimental escolhidos aleatoriamente
2. Se posto(\mathbf{J}) < NF , o sistema é redundante e deve ser re-analisado
Comentário: Escolhendo as variáveis independentes
3. Número de Variáveis Dependentes Escolhidas = 0
Comentário: Loop Principal
4. Variando i de 1 a NF Faça
Comentário: Loop Secundário
5. Variando j de 1 a NX Faça
 6. Se (coluna j de \mathbf{J} tem i elementos não nulos) então
 - 6.1. x_j é variável dependente
 - 6.2. Incremente número de variáveis dependentes escolhidas
Comentário: Eliminando uma equação
 - 6.3. Analisando os elementos não nulos da coluna j de \mathbf{J} , anule a linha k que contém o maior número de elementos não nulos
Comentário: Eliminando a Variável j da Análise
 - 6.4. Anule a coluna j de \mathbf{J}
 - 6.5. Se (Número de Variáveis Dependentes Escolhidas = NF) então
Comentário: Escolha Terminada
 - 6.5.1. Vá para o item 9
Comentário: A Escolha ainda não terminou
 - Comentário:* Fim do Loop Secundário
7. Volte para 5
Comentário: Fim do Loop Principal
8. Volte para 4
9. FIM

É possível otimizar o Algoritmo 4.4, visando a reduzir o esforço computacional da resolução do sistema de equações formado pelas restrições de igualdade. Essas modificações, no entanto, são pouco relevantes para os objetivos desse livro.

Exemplo 4.8- Seja o seguinte conjunto de restrições de igualdade impostas à região admissível dos dados experimentais

$$x_1 + x_2 + x_3 + x_4 + x_5 - 1 = 0$$

$$x_1 + x_2 - x_3 - x_4 = 0$$

$$x_1^2 + x_2^2 - 0.09 = 0$$

A primeira restrição diz que as variáveis fazem parte de um problema de mistura, cuja soma deve ser necessariamente igual a 100% do material usado. A segunda restrição diz que a quantidade total dos componentes 1 e 2 deve ser igual à quantidade total dos componentes 3 e 4. Esse tipo de restrição é bastante comum em receitas e formulações, quando os componentes interagem de forma a produzir um efeito particular sobre o sistema, como no caso de água e cimento na formulação do concreto. A terceira restrição diz que as quantidades utilizadas dos componentes 1 e 2 devem estar sempre a uma distância especificada do centro.

A matriz Jacobiana, nesse caso, pode ser representada pela estrutura simbólica apresentada abaixo (também chamada de matriz de incidência), onde X representa um elemento não nulo:

$$\mathbf{J} = \begin{bmatrix} X & X & X & X & X \\ X & X & X & X & 0 \\ X & X & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

A primeira variável selecionada é x_5 , que só aparece na primeira equação. Por isso, a linha 1 e a coluna 5 são anuladas. A matriz de incidência ganha a forma:

$$\mathbf{J} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ X & X & X & X & 0 \\ X & X & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Seguindo o Algoritmo 4.4, escolhe-se a seguir a variável x_3 , que agora só aparece na segunda equação. A linha 2 e a coluna 3 são então eliminadas, resultando em:

$$\mathbf{J} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ X & X & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Finalmente, escolhe-se a variável x_1 como última variável dependente. Desta forma, segundo o Algoritmo 4.4, conjuntos adequados são:

Variáveis independentes: x_2 e x_4 ;

Variáveis dependentes: x_1, x_3 e x_5 .

Escolhidas as variáveis independentes do problema, identificadas sem perda de generalidade como sendo as primeiras $NX - NF$ variáveis, é possível propor uma modificação do Algoritmo 4.1 para geração de planos regulares sobre o SIMPLEX na forma do Algoritmo 4.5. Para tanto, supõe-se sem perda de generalidade que todas as variáveis estão limitadas ao intervalo $[-1, 1]$ e que o usuário define o grau de precisão com que a grade experimental deve ser gerada (m). Obviamente, o grau de discretização utilizado para cada variável pode ser diferente, de maneira que a malha de pontos admissíveis gerados pode conter diferentes níveis para diferentes variáveis.

Algoritmo 4.5- Geração Automática de Malhas Experimentais.

Comentário: Inicialização

1. Faça $x_i = -1$, $i = 1, \dots, NX - NF$
2. Número de intervalos de discretização da variável $i = m_i$ (Número de níveis menos 1)

Comentário: Loop Principal

3. Enquanto ($x_1 \leq 1$) Faça:

4. Calcule o conjunto de variáveis x_i , $i = NX - NF + 1, \dots, NX$ com as restrições de igualdade

Comentário: Verifique as restrições de desigualdade

5. Se $(g_i(\mathbf{x}) \leq 0, i = 1, \dots, NG)$ então

5.1. Guarde o ponto experimental $x_i, i = 1, \dots, NX$

Comentário: Determinação um Novo Ponto Admissível

6. Faça: $j = NX - NF$

7. Se $(j = 0)$ Vá para o item 11

8. Faça: $x_j = x_j + \frac{2}{m_j}$

9. Se $(x_j > 1)$ Então

Comentário: Ponto Inválido

9.1. Faça: $x_j = -1$

9.2. Faça: $j = j - 1$

9.3. Volte ao item 7

10. Volte ao item 3

11. FIM

4.4.2 - Estimativa Inicial do Plano Experimental Ótimo

Mitchell¹ sugere que os *NE* pontos experimentais que formam a estimativa inicial do plano experimental ótimo devem ser escolhidos aleatoriamente da grade. Segundo Mitchell, várias alternativas determinísticas testadas nunca levaram a qualquer melhoria dos resultados, de forma que a escolha aleatória seria fortemente recomendada. Essa postura foi criticada e revista por Galil e Kiefer² e Atkinson e Donev³. Segundo esses autores, os *NE* experimentos do plano inicial devem ser escolhidos da seguinte maneira: n_1 pontos fixos, escolhidos pelo usuário por motivos particulares que transcendem o problema de otimização; n_2 pontos experimentais escolhidos de forma aleatória na grade experimental; e finalmente $NE - n_1 - n_2$ pontos escolhidos de forma determinística, visando a facilitar o trabalho do otimizador. Para evitar que a estratégia de partida seja completamente determinística, o que é prejudicial quando o código otimizador apenas provê um ótimo local e precisa ser inicializado várias vezes, sugere-se ainda que n_2 seja escolhido também de forma aleatória. Atkinson e Donev³ sugerem que n_2 seja um número aleatório limitado por:

$$0 \leq n_2 \leq \min \left\{ \left(\frac{NP}{2} \right), NE - n_1 - 1 \right\} \quad (4.46)$$

ou seja, que o número de pontos experimentais gerados aleatoriamente no início do processo de otimização não seja superior a metade do total de pontos experimentais que devem constituir o plano experimental ótimo do problema.

¹ T.J. Mitchell, "An Algorithm for the Construction of D-Optimal Experimental Designs", *Technometrics*, **16**, 203-210, 1974.

² Z. Galil e J. Kiefer, "Time- and Space-Saving Computer Methods, Related to Mitchell's DETMAX, for Finding D-Optimum Designs", *Technometrics*, **22**, 301-313, 1980.

³ A.C. Atkinson e A.N. Donev, "The Construction of Exact D-Optimum Experimental Designs With Application to Blocking Response Surface Designs", *Biometrika*, **76**, 515-526, 1989.

Os experimentos gerados de forma determinística devem ser adicionados seqüencialmente, de forma a maximizar o critério de otimalidade analisado. Para sistemas lineares nos parâmetros com estimação de mínimos quadrados, a análise é relativamente fácil, pois as matrizes de covariâncias dependem apenas das condições experimentais. Para os demais sistemas, são requeridas informações *a priori* sobre o valor dos parâmetros obtidos e distribuição de erros, como analisado no Volume I desta série de publicações. Essa análise determinística resulta num conjunto sub-ótimo de condições experimentais, uma vez que os pontos são incluídos individualmente e de forma seqüencial, não sendo analisados em conjunto, o que é deixado como tarefa do otimizador.

Finalmente, enquanto o número de pontos experimentais escolhidos for menor do que o número de parâmetros do problema, as matrizes de covariâncias dos parâmetros serão singulares. Isso também pode acontecer se, por acaso, os *NE* pontos experimentais selecionados estiverem imersos num subespaço de dimensão menor que a dimensão do espaço experimental onde estão inseridos. Nesses casos, recomenda-se que a matriz de covariâncias do problema seja perturbada por uma matriz não-singular positiva definida, na forma:

$$\mathbf{V}_\alpha^* = \mathbf{V}_\alpha + r \mathbf{T} \tag{4.47}$$

onde *r* é um número pequeno. Mitchell sugere que *r* seja igual a 0.005 e que *T* seja a matriz obtida quando o critério é aplicado sobre toda a grade de pontos candidatos. Atkinson e Donev sugerem que a matriz *T* seja simplesmente a matriz identidade de dimensão *NPxNP*. Vuchkov¹ propõe que *T* seja uma matriz diagonal com elementos não nulos iguais a 1, em número igual ao do grau de singularidade do sistema. Não há nenhum estudo que aponte influência muito grande desse procedimento de regularização sobre os resultados obtidos, de forma que parece ser mais adequado adotar o procedimento proposto por Atkinson e Donev.

4.4.3 - Análise e Troca de Dados

O problema de otimização, na forma proposta, constitui um problema combinatorial. O ótimo pode ser obtido se todas as combinações possíveis são analisadas. Embora possível a princípio, essa não é uma solução adequada do ponto de vista computacional. Se não, vejamos: suponha que o grid contém 50 pontos experimentais, dentre os quais desejamos selecionar 5 condições que permitam maximizar o valor do critério de otimalidade adotado. Nesse caso, o número total de possibilidades é igual a

$$\binom{50}{5} = \frac{50!}{5! 45!} = 2118760 \text{ !!!!!!}$$

O número de possibilidades cresce rapidamente, à medida que réplicas passam também a ser aceitas no plano. Por isso, a análise extensiva de todas as possibilidades é inaceitável na grande maioria dos problemas. Assim, o procedimento de escolha, a partir da estimativa inicial do ótimo, deve ser feita de forma a otimizar as possíveis combinações candidatas ao ótimo.

¹ I.N. Vuchkov, "A Ridge-Type Procedure for Design of Experiments", *Biometrika*, **64**, 147-150, 1977.

O primeiro algoritmo proposto na literatura com a finalidade de resolver o problema de otimização combinatorial de planejamento foi o EXCHANGE, de Fedorov¹. A idéia desse algoritmo é relativamente simples: analisando-se o problema de forma sequencial (um experimento de cada vez), executam-se as $NE \times (NG-1)$ (onde NG é o número de dados na grade, isto é, experimentos que podem ser executados) permutas possíveis de dados experimentais entre pontos do plano experimental e candidatos da grade de condições viáveis, escolhendo-se aquela combinação que resulta no melhor valor do critério de otimalidade. O procedimento deve ser repetido de forma iterativa, até que nenhuma das permutas realizadas provoque melhoria do critério de otimalidade. O Algoritmo EXCHANGE é apresentado no Algoritmo 4.6.

Algoritmo 4.6- O Algoritmo EXCHANGE de Fedorov, para Otimização de Planos Experimentais.

Comentário: Inicialização

1. Define-se uma estimativa inicial do plano experimental ótimo
2. Calcula-se o valor do critério de otimalidade para a estimativa inicial

Comentário: Loop Principal

3. Enquanto ($DELTA > 0$) Faça

4. PLANO1 = Melhor plano até agora
5. CRITÉRIO1 = Melhor valor do critério de otimalidade até agora
6. PLANO2 = PLANO1
7. CRITÉRIO2 = CRITÉRIO1

Comentário: Loop Secundário

8. Variando k de 1 a NE Faça

Comentário: Loop Terciário

9. Variando l de 1 a NG Faça

10. PLANO3 = Construa novo plano, substituindo x_k do plano por x_l da grade
11. CRITÉRIO3 = Calcule o critério de otimalidade para o novo plano
12. Se ($CRITÉRIO3 > CRITÉRIO2$) então
Comentário: Foi encontrado um plano melhor que os anteriores
 - 12.1. PLANO2 = PLANO3
 - 12.2. CRITÉRIO2 = CRITÉRIO3

13. Fim do Loop Terciário

14. Fim do Loop Secundário

15. $DELTA = CRITÉRIO2 - CRITÉRIO1$
16. PLANO1 = PLANO2
17. CRITÉRIO1 = CRITÉRIO2

18. Fim do Loop Principal

19. FIM

¹ V.V. Fedorov, "Theory of Optimal Experiments", W.J. Studden e E.M. Klimko Eds., Academic Press, New York, 1972.

Para que tenhamos uma idéia dos ganhos associados ao algoritmo EXCHANGE, se 100 iterações forem necessárias para resolver o problema posto anteriormente, que é um número certamente exagerado, o número de avaliações necessárias terá sido igual a

$$100 \times 5 \times 49 = 24500$$

ou cerca de 1% do número total de avaliações feitas se todas as possibilidades forem analisadas. Contudo, o cômputo do ótimo global com o EXCHANGE não é garantido, de maneira que Atkinson e Donev sugerem que o algoritmo seja executado algumas vezes, como forma de garantir que o ótimo global foi alcançado. (Daí a importância de uma componente aleatória no procedimento de inicialização.)

Várias modificações do algoritmo básico proposto por Fedorov foram sugeridas na literatura, visando a reduzir o esforço computacional do procedimento de busca. Uma das modificações mais populares é o algoritmo KL-EXCHANGE, de Atkinson e Donev, que generaliza algumas das propostas encontradas na literatura. Segundo esse algoritmo, apenas as mais promissoras permutas entre pontos do plano experimental e pontos da grade de pontos admissíveis deve ser analisada. Se lembrarmos que os pontos extremos da região experimental admissível, em geral, resultam em melhor estimativa dos parâmetros, embora sejam exatamente esses os pontos que possuem maior variância de predição (ver Seção 4.2 e Capítulo 4 do Volume 1 desta série de publicações), as permutas mais promissoras são aquelas feitas entre os K pontos com menor erro de predição do plano experimental e os L pontos com maior erro de predição da grade de pontos experimentais admissíveis. (É bom lembrar que essa heurística deve ser usada com muita cautela em problemas que não usam técnicas de mínimos quadrados para estimativa dos parâmetros, em problemas não lineares, em problemas multi-variáveis e em problemas que usam critérios de otimalidade diferentes do A-, D- ou G-Ótimos.) Dessa forma, os pontos do plano experimental devem ser sempre ordenados em ordem crescente de erro de predição, enquanto os pontos da grade experimental devem ser ordenados em ordem decrescente de erro de predição. Se $K = NE$ e $L = 1$, o algoritmo é aquele apresentado originalmente por Cook e Nachtsheim¹; se $K < NE$ e $L = 1$, o algoritmo é aquele apresentado originalmente por Johnson e Nachtsheim². Visando a acelerar o procedimento de busca, Galil e Kiefer³ propuseram ainda que um novo ponto ótimo de referência deveria ser tomado assim que alguma melhoria do critério de otimalidade fosse identificada, ao invés dessa decisão só ser tomada após finalizada a etapa de comparações entre todas as permutas possíveis. Todas essas modificações estão introduzidas no algoritmo KL-EXCHANGE apresentado no Algoritmo 4.7.

Algoritmo 4.7- O Algoritmo KL-EXCHANGE, para Otimização de Planos Experimentais.

Comentário: Inicialização

1. Define-se uma estimativa inicial do plano experimental ótimo
2. Calcula-se o valor do critério de otimalidade para a estimativa inicial

¹ R.D. Cook e C.J. Nachtsheim, "A Comparison of Algorithms for Constructing Exact D-Optimal Designs", *Technometrics*, **22**, 315-324, 1980.

² M.E. Johnson e C.J. Nachtsheim, "Some Guidelines for Constructing Exact D-Optimal Designs on Convex Design Spaces", *Technometrics*, **25**, 271-277, 1983.

³ Z. Galil e J. Kiefer, "Time- and Space-Saving Computer Methods, Related to Mitchell's DETMAX, for Finding D-Optimum Designs", *Technometrics*, **22**, 301-313, 1980.

3. Definem-se os valores de K e L

Comentário: Loop Principal

Comentário: Início das Comparações

4. PLANO1 = Melhor plano até agora

5. CRITÉRIO1 = Melhor valor do critério de otimalidade até agora

6. Organize os pontos do plano em ordem crescente de erro de predição

7. Organize os pontos da grade em ordem decrescente de erro de predição

Comentário: Loop Secundário

8. Variando k de 1 a K Faça

Comentário: Loop Terceário

9. Variando l de 1 a L Faça

10. PLANO2 = Construa novo plano, substituindo x_k
do plano por x_l da grade

11. CRITÉRIO2 = Calcule o critério de otimalidade para o novo plano

12. Se (CRITÉRIO2 > CRITÉRIO1) então

Comentário: Foi encontrado um plano melhor que os anteriores

12.1. PLANO1 = PLANO2

12.2. CRITÉRIO1 = CRITÉRIO2

12.3. Volte ao item 4

13. Fim do Loop Terceário

14. Fim do Loop Secundário

15. Fim do Loop Principal

16. FIM

Finalmente, é possível ainda fazer com que os pontos x_k e x_l sejam escolhidos aleatoriamente dentre aqueles pontos do plano e da grade admissível, procedimento esse sugerido quando o número de pontos analisados é muito grande e a heurística introduzida pelo algoritmo KL-EXCHANGE não é adequada para o critério de otimalidade usado.

Um algoritmo também bastante popular para otimização do plano experimental foi proposto originalmente por Mitchell^{1,2} e melhorado posteriormente por Galil e Kiefer³. O algoritmo é conhecido como DETMAX, por ter sido originalmente aplicado a problemas de desenvolvimento de planos experimentais D-ótimos. O algoritmo é de fácil compreensão e consiste em aumentar (ou diminuir) o número de experimentos do plano experimental, de forma a maximizar o critério de otimização, e subsequentemente diminuir (aumentar) este mesmo plano, visando a manter o critério de otimalidade no melhor valor e garantir que o número de experimentos permanece constante e igual a NE . Esse algoritmo também não garante a obtenção do ótimo global do problema, de forma que aplicações sucessivas, partindo-se de diferentes estimativas iniciais do ótimo, são necessárias para garantir a obtenção do ótimo global ou de uma boa aproximação do ótimo global. O aumento (diminuição) do plano experimental é sempre seguido da diminuição (aumento) desse mesmo plano, visando a manter

¹ T.J. Mitchell, "An Algorithm for the Construction of D-Optimal Experimental Designs", *Technometrics*, **16**, 203-210, 1974.

² T.J. Mitchell, "Computer Construction of D-Optimal First-Order Designs", *Technometrics*, **16**, 211-220, 1974.

³ Z. Galil e J. Kiefer, "Time- and Space-Saving Computer Methods, Related to Mitchell's DETMAX, for Finding D-Optimum Designs", *Technometrics*, **22**, 301-313, 1980.

NE constante, a não ser que essa operação resulte em um experimento reconhecidamente inadequado. Por isso, uma lista de planos reconhecidamente ruins é mantida, de maneira a evitar que equívocos semelhantes se repitam ao longo das demais iterações. Dessa forma, vários experimentos podem ser consecutivamente adicionados (removidos) do plano. Mitchell recomenda que o procedimento iterativo seja interrompido toda vez que o número de experimentos em excesso (falta) em relação a *NE* atingir o valor 6, pois a possibilidade de sucesso posterior é muito baixa. É também importante salientar que, à medida que a remoção de experimentos ocorre, as matrizes de covariâncias podem ficar singulares. Nesses casos, os mesmos procedimentos recomendados para eliminar singularidades durante a preparação de uma estimativa ótima inicial do plano experimental podem ser usados.

Algoritmo 4.8- O Algoritmo DETMAX, para Otimização de Planos Experimentais.

Comentário: Inicialização

1. Define-se uma estimativa inicial do plano experimental ótimo
2. Calcula-se o valor do critério de otimalidade para a estimativa inicial

Comentário: Início das Comparações

3. PLANO1 é o melhor Plano até agora
4. CRITÉRIO1 é o melhor valor do critério de otimalidade até agora
5. Escolhe-se aleatoriamente a direção de busca (+1 ou -1)
6. Lista1 = Vazia
7. PLANO2 = PLANO1
8. CRITÉRIO2 = CRITÉRIO1

Comentário: Loop Secundário

9. Enquanto (PLANO2 estiver na Lista1) Faça
 10. Adicione (Remova) experimento a PLANO2 para maximizar CRITÉRIO2
 11. Se (Número de Pontos Adicionados (Retirados) \geq 6) Então

Comentário: Encontrar Solução Melhor é Pouco Provável

 - 11.1 Vá ao item 24
12. Fim do Loop Secundário

Comentário: Encontrou um Plano que não está na Lista1. Movimento no sentido contrário para atingir *NE* novamente

13. Lista2 = PLANO2

Comentário: Loop Terciário

14. Enquanto (*NE* não for atingido) Faça
 15. Remova (Adicione) experimento a PLANO2 para maximizar CRITÉRIO2
 16. Se (PLANO2 estiver na Lista1) Então

Comentário: Encontrou um Plano ruim.

 - 16.1. Adicionar Lista2 à Lista1.
 - 16.2. Volta ao item 9 para recomeçar a busca
 17. Adicione PLANO2 à Lista2
18. Fim do Loop Terciário

Comentário: Encontrou novo Plano com *NE* experimentos

19. Se (CRITÉRIO2 < CRITÉRIO1) Então

Comentário: O novo plano não é melhor

19.1. Vá ao item 24

Comentário: O caminho de busca resultou num plano melhor.

20. PLANO1 = PLANO2

21. CRITÉRIO1 = CRITÉRIO2

22. Volte ao item 3

23. Fim do Loop Principal

24. FIM

Algumas propostas algorítmicas que permitem encontrar o ótimo global do problema de otimização foram descritas na literatura, como o algoritmo de Welch¹, baseado no bem conhecido método de otimização discreta “Branch and Bound”². Contudo, nenhuma dessas propostas se mostrou até agora competitiva, do ponto de vista computacional, para tratar problemas de dimensões compatíveis com aquelas encontradas na prática experimental. Comparações entre os diversos algoritmos analisados, apresentadas nas referências supracitadas, favorecem em geral o algoritmo EXCHANGE de Fedorov e seus derivados, tanto no que se refere à eficiência computacional como na eficiência em achar o ótimo global do problema de otimização.

Atkinson³ faz uma revisão sobre planos experimentais ótimos existentes na literatura, ficando claro que existem grandes lacunas sobre o estudo de problemas de otimização em regiões experimentais irregulares e sobre a utilização de critérios de otimização diferentes do critério de otimalidade D. A grande maioria dos trabalhos trata do desenvolvimento de planos experimentais D-Ótimos sobre hipercubos. Simulações extensivas desenvolvidas por Mitchell para combinações diversas de *NE* e *NX* mostram que, nesses casos, planos ótimos são constituídos por combinações de vértices do hipercubo. Muitas tabelas e regras de construção desses planos ótimos são apresentados no trabalho original de Mitchell⁴. Exemplos de aplicação a regiões irregulares formadas por problemas de mistura e por formação de blocos são apresentados por Lewis e Chariot⁵, Atkinson e Donev^{6,7} e Chau e Kelley⁸. Alguns exemplos são apresentados nas Figuras 4.13 a 4.15 abaixo. Aplicações a modelos não lineares são também pouco frequentes e difíceis de generalizar, dado que os resultados dependem da estimativa inicial dos parâmetros ou da distribuição de probabilidades associadas às possíveis combinações paramétricas. Na maior parte dos casos, tais informações não estão disponíveis antes que experimentos preliminares sejam executados. Alguns poucos exemplos de aplicações a modelos não lineares são apresentados por Atkinson².

¹ W.J. Welch, “Branch-and-Bound Search for Experimental Designs Based on D Optimality and Other Criteria”, *Technometrics*, **24**, 41-48, 1982.

² H.M. Salkin, “*Integer Programming*”, Addison-Wesley, Reading, 1975.

³ A.C. Atkinson, “The Usefulness of Optimum Experimental Designs”, *J. R. Statist. Soc. B*, **58**, 59-76, 1996.

⁴ T.J. Mitchell, “Computer Construction of D-Optimal First-Order Designs”, *Technometrics*, **16**, 211-220, 1974.

⁵ G.A. Lewis e M. Chariot, “Non Classical Experimental Designs in Pharmaceutical Formulation”, *Drug Development. Indust. Pharm.*, **17**, 1551-1570, 1991.

⁶ A.C. Atkinson e A.N. Donev, “The Construction of Exact D-Optimum Experimental Designs With Application to Blocking Response Surface Designs”, *Biometrika*, **76**, 515-526, 1989.

⁷ A.C. Atkinson e A.N. Donev, “*Optimum Experimental Designs*”, Oxford University Press, Oxford, 1992.

⁸ K.W. Chau e W.R. Kelley, “Formulating Printable Coatings Via D-Optimality”, *J. Coatings Technol.*, **65**, 71-78, 1993.

$$y = \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i x_i + \sum_{i=1}^{NC} \sum_{j=i+1}^{NC} \delta_{ij} x_i x_j$$

Estimação por mínimos quadrados

NE = 12

NC = 3

D-Otimalidade

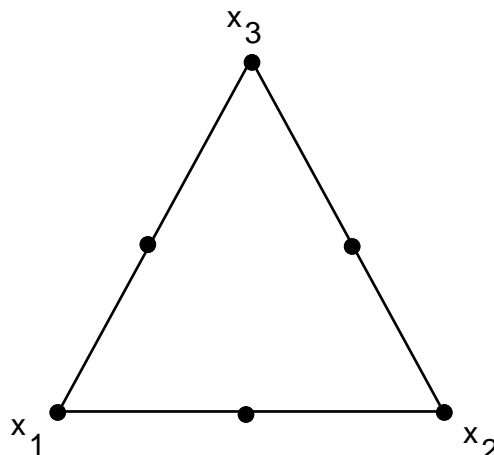


Figura 4.13 - Plano experimental D-Ótimo para modelos de mistura de 2ª ordem, com 3 componentes e 12 experimentos (○ - 1 experimento; ● - 2 experimentos).

$$y = \sum_{i=1}^{NC} \alpha_i x_i + \sum_{i=1}^{NC} \sum_{j=i+1}^{NC} \delta_{ij} x_i x_j$$

Estimação por mínimos quadrados

NE = 12

NC = 3

D-Otimalidade

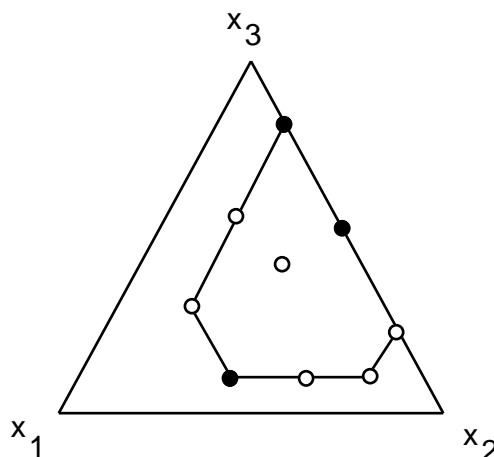


Figura 4.14 - Plano experimental D-Ótimo para modelos de mistura de 2ª ordem, com 3 componentes e 12 experimentos, com restrições adicionais sobre a região de experimentação (○ - 1 experimento; ● - 2 experimentos).

$$y = \sum_{i=1}^{NB} \alpha_i^e e_i + \sum_{i=1}^{NX} \alpha_i x_i + \sum_{i=1}^{NX} \sum_{j=i}^{NX} \delta_{ij} x_i x_j$$

Estimação por mínimos quadrados

NE = 10 (NE₁ + NE₂)

NX = 2

NB = 2; NE₁ = 5, NE₂ = 5

D-Otimalidade

A variável e identifica o bloco.

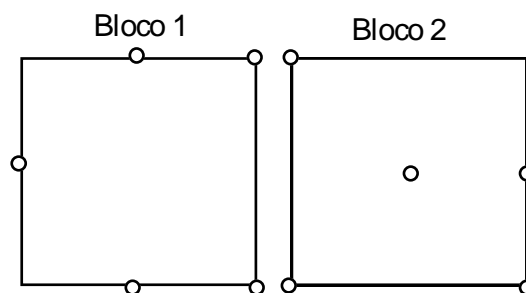


Figura 4.15 - Plano experimental D-Ótimo para modelos de 2ª ordem em blocos regulares, com 2 componentes em 2 blocos e 10 experimentos (○ - 1 Experimento).

4.4.4 - Ajuste Fino Final da Resposta

Após a etapa de otimização discreta do plano experimental, Dovev e Atkinson¹ propõem que um ajuste fino final das condições de otimalidade seja executado no domínio contínuo da região experimental admissível. Para tanto, a resposta obtida na etapa anterior pode ser usada como estimativa inicial do ótimo e alimentada a um algoritmo padrão de otimização com restrições, uma vez que as restrições dadas pelas Equações (4.43-44) foram impostas à forma da região experimental admissível. Vários desses algoritmos são apresentados e discutidos em referências básicas de otimização¹. É importante enfatizar, no entanto, que Donev e Atkinson reconhecem que muito poucas vezes os resultados obtidos durante a etapa de otimização discreta são corrigidos em mais do que 1% durante a etapa de ajuste fino. Assim, essa etapa pode ser quase sempre negligenciada, sem maiores danos para o plano experimental, especialmente se a grade experimental de pontos viáveis for gerada com número elevado de células de discretização.

Exemplo 4.9- No problema do Exemplo 4.3, é gerada uma malha experimental para x com precisão de 0.1. Nesse caso, os candidatos a pontos experimentais ótimos são

x	-1 ; -0.9 ; -0.8 ; -0.7 ; -0.6 ; -0.5 ; -0.4 ; -0.3 ; -0.2 ; -0.1 ; 0 ; 0.1 ; 0.2 ; 0.3 ; 0.4 ; 0.5 ; 0.6 ; 0.7 ; 0.8 ; 0.9 ; 1.0
-----	--

Adotando o procedimento sugerido por Mitchell, como discutido na Seção 4.4.2, é escolhida uma solução inicial para o plano ótimo de forma aleatória. O plano ótimo escolhido, com a condição de que réplicas não devem ser realizadas, é

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} 0.1 \\ 0.8 \end{bmatrix}$$

O Algoritmo 4.6 (EXCHANGE) é então aplicado, fazendo-se permutas das condições experimentais selecionadas pelos demais candidatos da malha. Como são duas condições e 19 candidatos (21 experimentos candidatos, com 2 experimentos pré-selecionados), existem $19 \times 2 = 38$ condições para serem analisadas. Essas condições estão mostradas na Figura 4.16, utilizando-se o critério A-Ótimo, equivalente no caso a maximizar a função

$$F(x_1, x_2) = \sum_{k=1}^2 [\text{sen}(\pi x_k)]^2$$

como mostrado no Exemplo 4.3. O valor inicial da função é

$$F(x_1 = 0.1, x_2 = 0.8) = [\text{sen}(\pi \cdot 0.1)]^2 + [\text{sen}(\pi \cdot 0.8)]^2 = 0.441$$

As séries de experimentos analisados são, portanto, as seguintes:

¹ A.N. Donev e A.C. Atkinson, "An Adjustment Algorithm for the Construction of Exact D-Optimum Experimental Designs", *Technometrics*, **30**, 429-433, 1988.

¹ T.F. Edgar e D.M. Himmelblau, "Optimization of Chemical Processes", McGraw-Hill, New York, 1988 (pp. 299-438).

$$F_1(x_1, x_2 = 0.8) = [\text{sen}(\pi x_1)]^2 + [\text{sen}(\pi \cdot 0.8)]^2$$

$$F_2(x_1 = 0.1, x_2) = [\text{sen}(\pi \cdot 0.1)]^2 + [\text{sen}(\pi x_2)]^2$$

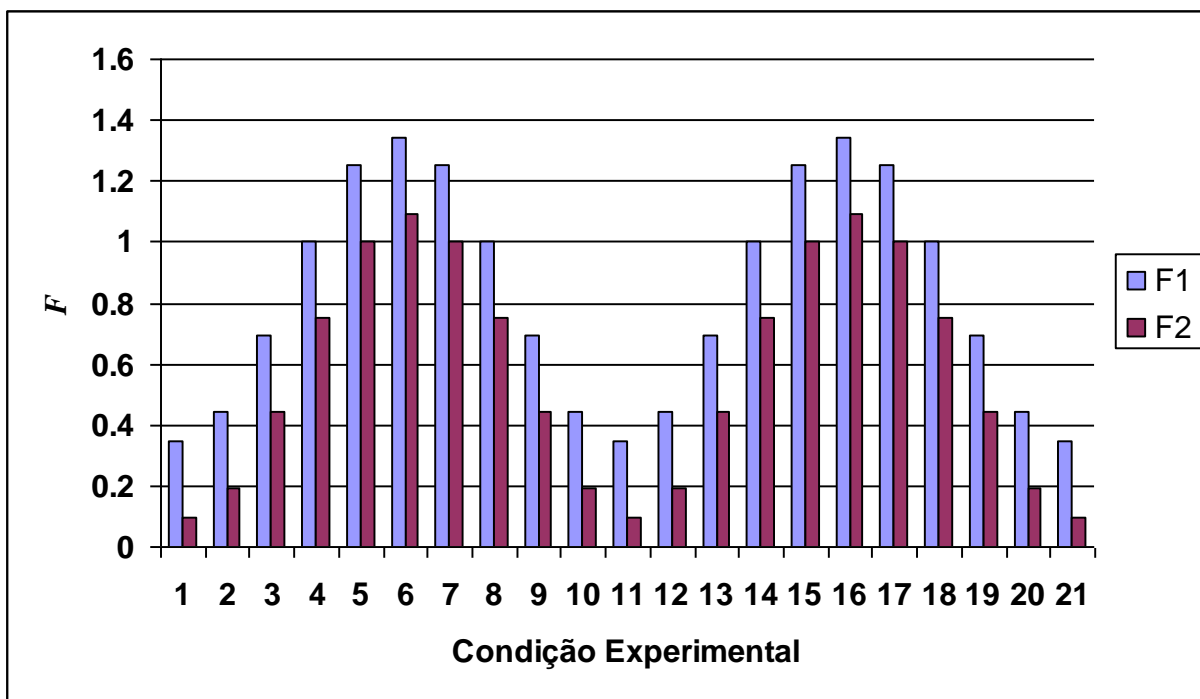


Figura 4.16- Primeira iteração do algoritmo EXCHANGE no Exemplo 4.9.

Segundo a Figura 4.16, a condição experimental que maximiza $F(x_1, x_2)$ é a condição 6 de F_1 ; ou seja, a que propõe a troca da condição experimental 0.1 pela condição experimental -0.5. Portanto, após a primeira iteração, obtém-se a solução

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} -0.5 \\ 0.8 \end{bmatrix}$$

sendo que a função objetivo atinge o valor de 1.346. (A Figura 4.16 mostra que existem duas soluções, sendo escolhida a mais distante, para evitar réplicas e pouca exploração da região experimental.) O leitor cuidadoso pode perceber na Figura 4.16 que F_1 é sempre maior que F_2 , indicando que a substituição do primeiro ponto do plano experimental é preferível, em relação ao segundo ponto do plano candidato a ótimo.

O algoritmo EXCHANGE é aplicado de novo, levando ao resultado da Figura 4.17. Segundo a Figura 4.17, a condição experimental que maximiza $F(x_1, x_2)$ é a condição 16 de F_2 ; ou seja, a que propõe a troca da condição experimental 0.8 pela condição experimental 0.5. Portanto, após a segunda iteração, obtém-se a solução

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} -0.5 \\ 0.5 \end{bmatrix}$$

sendo que a função objetivo atinge o valor de 2.000. (A Figura 4.17 mostra que existem duas soluções, sendo escolhida a mais distante, para evitar réplicas e pouca exploração da região experimental.) O leitor pode perceber na Figura 4.17 que F_2 é sempre maior que F_1 , indicando que a substituição do segundo ponto do plano experimental é preferível, em relação ao primeiro ponto do plano candidato a ótimo. Isso mostra como o primeiro passo do algoritmo foi bem sucedido para o encaminhamento do ótimo.

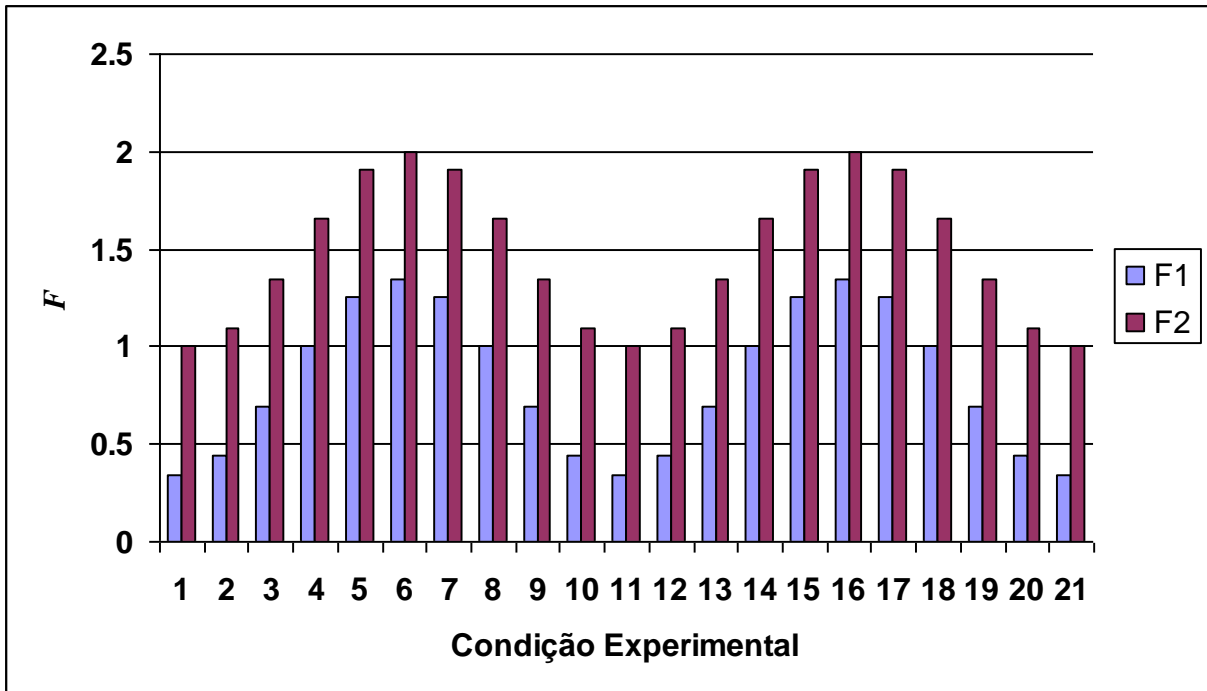


Figura 4.17- Segunda iteração do algoritmo EXCHANGE no Exemplo 4.9.

O algoritmo EXCHANGE é aplicado uma vez mais, levando ao resultado da Figura 4.18. Segundo a Figura 4.18, a função objetivo $F(x_1, x_2)$ não pode mais ser melhorada, sendo atingida a convergência. Portanto, após a terceira iteração, obtém-se a solução procurada

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} -0.5 \\ 0.5 \end{bmatrix}$$

A solução encontrada coincide exatamente com a solução analítica apresentada no Exemplo 4.3, demonstrando a eficiência do procedimento numérico proposto.

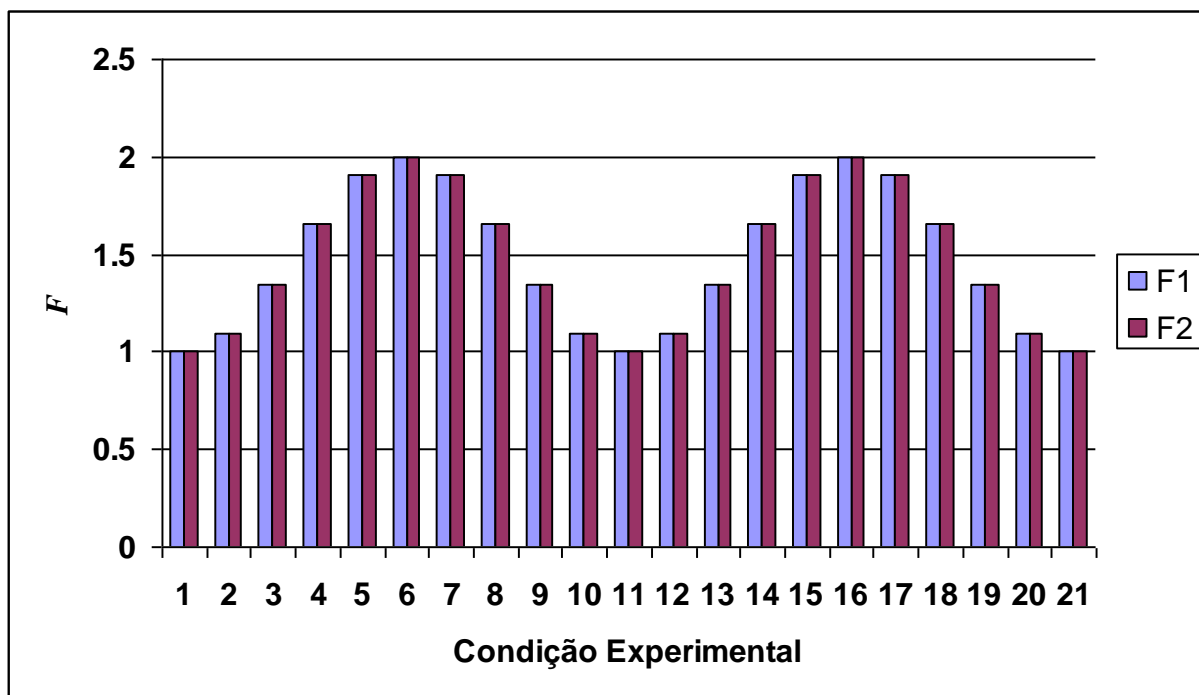


Figura 4.18- Terceira iteração do algoritmo EXCHANGE no Exemplo 4.9.

Exemplo 4.10- Deseja-se estimar os parâmetros do modelo

$$y = a e^{bx}$$

De acordo com os procedimentos desenvolvidos no Capítulo 4 do volume I dessa série de publicações, é possível estimar a matriz de covariâncias das incertezas paramétricas na forma:

$$\mathbf{V}_a = \sigma_y^2 \left[\sum_{k=1}^{NE} \begin{bmatrix} e^{bx_k} \\ a x_k e^{bx_k} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{bx_k} & a x_k e^{bx_k} \end{bmatrix} \right]^{-1} = \sigma_y^2 \begin{bmatrix} \sum_{k=1}^{NE} e^{2bx_k} & a \sum_{k=1}^{NE} x_k e^{2bx_k} \\ a \sum_{k=1}^{NE} x_k e^{2bx_k} & a^2 \sum_{k=1}^{NE} x_k^2 e^{2bx_k} \end{bmatrix}^{-1}$$

Portanto, não é possível estimar a qualidade dos parâmetros sem ter alguma estimativa dos valores de a e b , cujos parâmetros desejamos estimar. Esse é um dos problemas fundamentais do planejamento ótimo de experimentos para modelos lineares. Admitindo-se que $a=1$ e $b=-1$ (o que só pode ser corroborado nesse momento pela experiência prévia do analista), pode-se escrever

$$\mathbf{V}_a = \sigma_y^2 \begin{bmatrix} \sum_{k=1}^{NE} e^{-2x_k} & \sum_{k=1}^{NE} x_k e^{-2x_k} \\ \sum_{k=1}^{NE} x_k e^{-2x_k} & \sum_{k=1}^{NE} x_k^2 e^{-2x_k} \end{bmatrix}^{-1}$$

Admitindo-se que 3 experimentos iniciais devem ser realizados ($NE=3$) para estimar os dois parâmetros do problema, que a malha experimental de possíveis experimentos realizados é igual a

x	0 ; 0.1 ; 0.2 ; 0.3 ; 0.4 ; 0.5 ; 0.6 ; 0.7 ; 0.8 ; 0.9 ; 1.0 ; 1.1 ; 1.2 ; 1.3 ; 1.4 ; 1.5 ; 1.6 ; 1.7 ; 1.8 ; 1.9 ; 2.0
-----	--

e adotando o procedimento sugerido por Mitchell, como discutido na Seção 4.4.2, o candidato a plano ótimo escolhido para iniciar o procedimento de estimação é

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} 0.3 \\ 0.6 \\ 1.9 \end{bmatrix}$$

O Algoritmo 4.6 (EXCHANGE) é então aplicado, fazendo-se permutas das condições experimentais selecionadas pelos demais candidatos da malha. Como são três condições e 18 candidatos (21 experimentos candidatos, com 3 experimentos pré-selecionados), existem $18 \times 3 = 54$ condições para serem analisadas. Essas condições estão mostradas na Figura 4.19, utilizando-se o critério D-Ótimo, que propõe a minimização do determinante de \mathbf{V}_α . Portanto, do ponto de vista da implementação numérica, para cada plano candidato deve-se calcular a matriz \mathbf{V}_α e o determinante de \mathbf{V}_α , usado como função a ser minimizada.

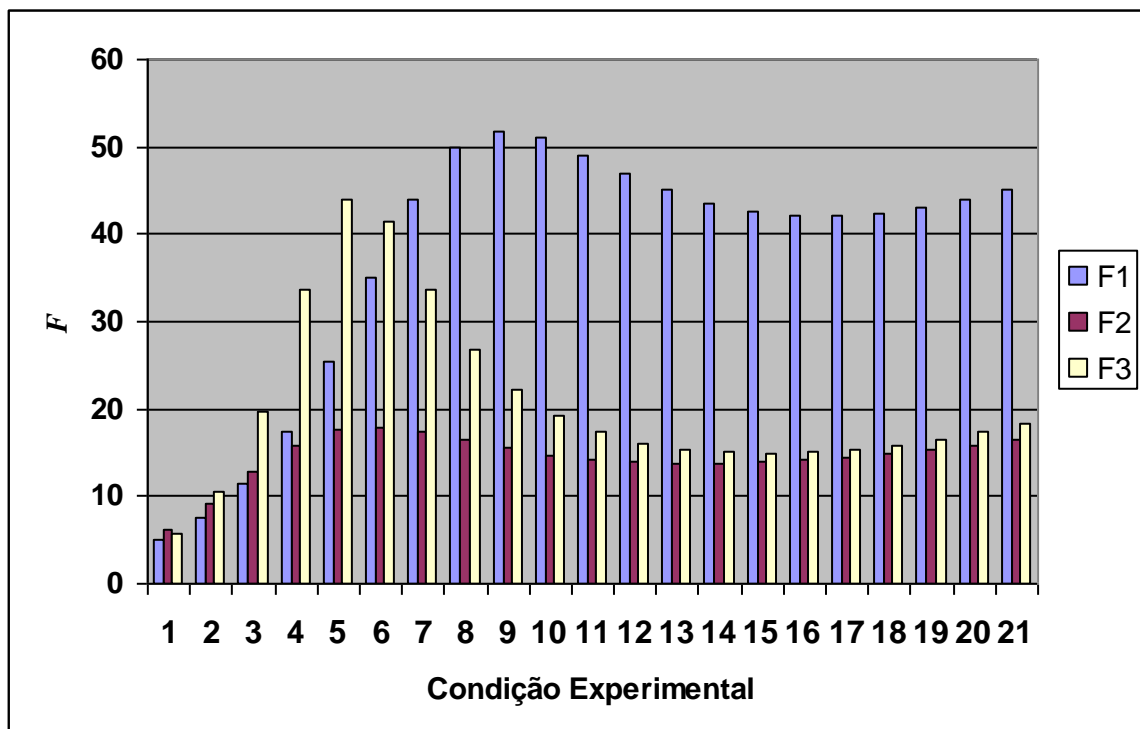


Figura 4.19- Primeira iteração do algoritmo EXCHANGE no Exemplo 4.10.

Segundo a Figura 4.19, a condição experimental que minimiza $F(x_1, x_2, x_3)$ é a condição 1 de F_1 ; ou seja, a que propõe a troca da condição experimental 0.3 pela condição experimental 0.0. Portanto, após a primeira iteração, obtém-se a solução

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} 0.0 \\ 0.6 \\ 1.9 \end{bmatrix}$$

sendo que a função objetivo atinge o valor de 5.0. A Figura 4.19 mostra que existem mínimos locais, ilustrando que problemas não lineares de maiores dimensões podem resultar em problemas de otimização mais complexos.

O algoritmo EXCHANGE é aplicado uma vez mais, levando ao resultado da Figura 4.20. Segundo a Figura 4.20, a condição experimental que minimiza $F(x_1, x_2, x_3)$ é a condição 12 de F_3 ; ou seja, a que propõe a troca da condição experimental 1.9 pela condição experimental 1.1. Portanto, após a segunda iteração, obtém-se a solução

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} 0.0 \\ 0.6 \\ 1.1 \end{bmatrix}$$

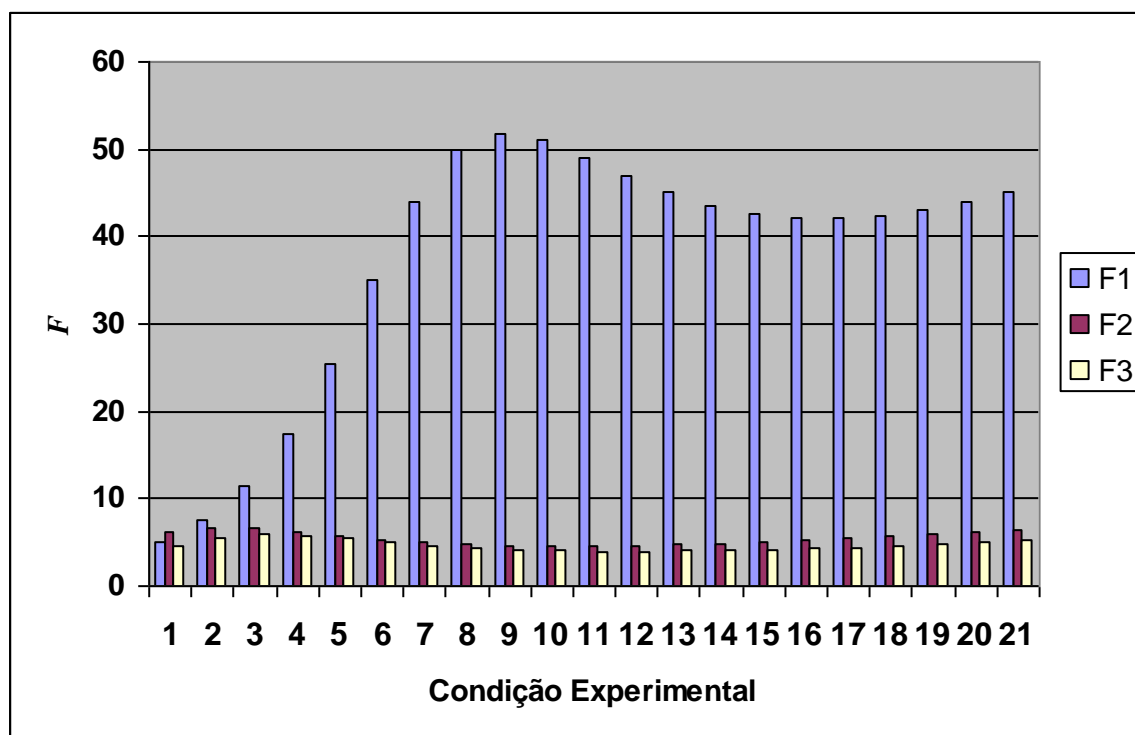


Figura 4.20- Segunda iteração do algoritmo EXCHANGE no Exemplo 4.10.

Se réplicas não são permitidas, o algoritmo converge para a solução

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} 0.0 \\ 1.0 \\ 1.1 \end{bmatrix}$$

4.5 - A Filosofia do Planejamento Seqüencial de Experimentos

Como já discutido várias vezes, o tratamento de modelos não lineares com as técnicas de otimização descritas nas seções anteriores é muito difícil. Contudo, em vários problemas relevantes e experimentalmente intensivos, como por exemplo na área de Cinética de Reações, alguns modelos não lineares são tão bem estabelecidos que dificilmente haverá justificativa para usar um outro modelo não que aquele já consagrado pela literatura. Na área específica de Cinética de Reações, sabe-se que a dependência funcional das velocidades de reação com a temperatura e composição de reagentes tem a forma geral:

$$r_i = k_{0i} \exp\left(-\frac{\Delta E_i}{RT}\right) \prod_{j=1}^{NR} C_{ji} \quad (4.48)$$

onde r é a velocidade específica de reação, k_0 e ΔE são parâmetros a serem estimados a partir de dados experimentais, R é a constante universal dos gases, T é a temperatura absoluta, C é concentração e os índices i e j identificam respectivamente a reação analisada e os reagentes que tomam parte daquela reação. A Equação (4.48) é usualmente classificada como “fortemente não linear”.

Além disso, mesmo quando modelos lineares nos parâmetros são utilizados, em grande parte dos estudos não é possível garantir que aquele determinado modelo adotado como referência vai de fato se mostrar adequado para reproduzir os dados experimentais. Isso só é fato possível quando a experiência acumulada ou a análise teórica do fenômeno estudado recomenda uma certa estrutura de modelo matemático. Aliás, é comum que durante os estudos de modelagem vários modelos diferentes sejam testados, em função do comportamento experimental observado e da qualidade dos ajustes obtidos. Então, mesmo nos casos lineares, todo o esforço de otimização do plano experimental pode resultar inútil após verificação final dos resultados obtidos.

Como conseqüência da discussão apresentada, uma forma alternativa de encarar o problema de otimização do plano experimental pode ser colocada em bases um pouco diferentes. Por que não desenvolver planos experimentais de forma seqüencial e progressiva, à medida que dados experimentais forem revelando a estrutura do modelo matemático adequado para representar o fenômeno estudado? Dessa forma, um plano experimental ótimo preliminar suficientemente enxuto pode ser gerado e executado, produzindo dados experimentais que podem ser analisados e usados para a construção de um modelo matemático, que por sua vez pode confirmar ou não as premissas iniciais básicas utilizadas para gerar o plano experimental ótimo preliminar. Os resultados são então analisados criticamente, verificando-se se os objetivos iniciais do estudo já foram atingidos ou não. Caso a resposta seja afirmativa, não há por que prosseguir e o estudo é terminado. Se a resposta for negativa, estuda-se a viabilidade de aumentar o plano experimental, adicionando-se um ou mais experimentos ao plano experimental preliminar, visando a otimizar o critério de otimalidade adotado. O aumento do plano experimental pode ser feito com os mesmos procedimentos descritos na Seção 4.4. No entanto, como n_1 experimentos já foram de fato realizados, tais experimentos não devem fazer parte de quaisquer das permutas analisadas durante o caminho em direção ao ótimo (ver Seção 4.4.3). Todo esse procedimento está sumarizado no Algoritmo 4.9 apresentado abaixo.

Algoritmo 4.9- O Algoritmo de Planejamento Seqüencial.

Comentário: Inicialização

1. Baseado em Premissas Iniciais:

- 1.1. Definem-se os objetivos a serem alcançados (Primeira Decisão)
- 1.2. Define-se um plano experimental ótimo (Segunda Decisão)

Comentário: Loop Principal

2. Executam-se os (novos) experimentos
3. Estimam-se os parâmetros
4. Analisam-se os resultados obtidos
 - 4.1. Procede-se a análise estatística dos dados
 - 4.2. Avalia-se o valor do CRITÉRIO de otimalidade obtido

Comentário: Análise Crítica dos Dados Obtidos (Terceira Decisão)

5. Se (Objetivos foram alcançados) Então
Comentário: Não há por que continuar
 - 5.1. Vá para o item 9

Comentário: Objetivos não foram alcançados

Comentário: Expectativa Quanto aos Dados que Serão Obtidos (Quarta Decisão)

6. Se (Não vale à pena dar continuidade ao estudo) Então
Comentário: Não há por que continuar
 - 6.1. Vá para o item 9

Comentário: Objetivos não foram alcançados, mas as expectativas são promissoras.

7. Volte ao item 2

8. Fim do Loop Principal

9. FIM

O leitor deve perceber que o Algoritmo 4.9 depende de quatro tomadas de decisão que podem ser analisadas individualmente abaixo.

4.5.1- Primeira Decisão - Os Objetivos a Serem Alcançados.

A definição adequada dos objetivos a serem alcançados é fundamental para aplicação apropriada do algoritmo sequencial e definição matemática precisa das quantidades que serão utilizadas para definir o critério de otimalidade. É conveniente classificar os problemas de planejamento quanto aos objetivos básicos em quatro grandes classes:

1- Classe 1- O objetivo é fazer com que as variáveis respostas (variáveis dependentes) atinjam um determinado conjunto de valores especificados de forma explícita (por exemplo, $y_3 = 0.5$) ou implícita (a variável y_2 deve atingir o máximo valor possível). Essa classe de problemas dá origem a um conjunto de técnicas de planejamento descrito genericamente como Análise da Superfície de Resposta ou EVOP (*Evolutionary Operation Procedure* - Procedimento Evolucionário de Operação).

2- Classe 2- O objetivo é fazer com que, dentre os vários modelos matemáticos plausíveis para descrever os dados experimentais, seja possível determinar o melhor deles. Essa classe de

problemas dá origem a um conjunto de técnicas de planejamento chamado de Técnicas para Discriminação de Modelos Rivais, ou simplesmente Discriminação de Modelos. Essa classe de problemas será tratada no Capítulo 6.

3- Classe 3- O objetivo é fazer com que os parâmetros de um certo modelo matemático já estabelecido possam ser estimados da melhor forma possível. Essa classe de problemas dá origem a um conjunto de técnicas de planejamento chamado de Técnicas para Estimação de Parâmetros. Essa classe de problemas será tratada no Capítulo 5.

4- Classe 4- O objetivo é fazer com que os lucros em um determinado problema econômico sejam maximizados ou com que os custos sejam minimizados. Essa classe de problemas dá origem a um conjunto de técnicas de planejamento chamado de Técnicas para Minimização do Custo das Incertezas Paramétricas. Essa classe de problemas está ilustrada no Apêndice C.

4.5.2- Segunda Decisão - O Plano Experimental Preliminar.

O plano experimental proposto inicialmente depende fundamentalmente das premissas básicas de que se parte. Por exemplo, se é razoável admitir comportamento linear para as variáveis, ou porque essa é uma informação preliminar ou porque não há qualquer informação experimental disponível, planos ortogonais mínimos a dois níveis, como aqueles apresentados nos Capítulos 2 e 3, parecem ser suficientemente bons. Se existem interações que precisam ser salvas, porque imagina-se *a priori* que essas interações são importantes para descrever o fenômeno estudado, planos ortogonais estendidos podem ser propostos. Sabendo-se *a priori* que há não linearidades importantes em relação a algumas variáveis, podem ser propostos planos a três níveis em relação a certas variáveis. Se o número de condições experimentais resulta muito grande, as técnicas discutidas na Seção 4.4 podem ser utilizadas para escolher o melhor subconjunto de experimentos da grade. Enfim, todo o ferramental necessário já foi discutido anteriormente e sua utilização depende muito da quantidade de informações que o experimentador já tem a sua disposição. É importante enfatizar, no entanto, que o plano preliminar deve ser mantido tão pequeno quanto possível, para que a filosofia seqüencial possa fazer sentido.

4.5.3- Terceira Decisão - Avaliar se Objetivos Já Foram Alcançados.

Essa avaliação depende muito da classe de problemas que estamos analisando e, por isso, será analisada com detalhes ao longo dos próximos capítulos. A pergunta fundamental a ser feita para a Classe 1 de problemas é: o valor desejado ou o máximo já foi alcançado, dentro da precisão experimental? Para a segunda classe de problemas, a pergunta formulada deve ser: pode-se afirmar com que nível de confiança que o modelo com melhor desempenho é realmente o melhor? Para a Classe 3, a pergunta formulada é: os parâmetros já alcançaram a precisão desejada? Na quarta classe de problemas, a pergunta é: é possível ainda minimizar as perdas e/ou aumentar os lucros com novos experimentos?

4.5.4- Quarta Decisão - Avaliar se Vale à Pena Continuar.

Novamente, essa avaliação depende muito da Classe de problemas analisada e, por isso, será estudada ao longo dos próximos capítulos. A pergunta a ser formulada para a Classe 1 de problemas é: será que vou realmente conseguir me aproximar do objetivo perseguido se realizar mais um experimento? Será que é possível atingir o objetivo perseguido? Para a segunda classe de problemas, a pergunta é: será que a diferença entre os modelos vai aumentar de forma significativa se eu fizer mais um experimento? Para a terceira classe de problemas, a

pergunta é: de quanto as incertezas paramétricas vão diminuir se eu continuar realizando experimentos? Para a Classe 4 de problemas, a pergunta pode ser formulada como: os ganhos econômicos eventuais compensam as perdas associadas aos custos experimentais e ao atraso no processo de tomada de decisão? Para todas as classes de problemas, é possível perguntar: quantos experimentos ainda terei que fazer para atingir os objetivos perseguidos?

Como veremos ao longo dos próximos capítulos, a utilização da filosofia de planejamento seqüencial permite ganhos consideráveis na velocidade de consecução dos objetivos perseguidos.

4.6. Análise de Superfícies de Resposta

O problema de análise de superfície de resposta é um problema de planejamento seqüencial de experimentos durante o qual se persegue a otimização (usualmente a maximização) de um índice de desempenho do processo. Alguns exemplos típicos incluem a identificação das condições experimentais que levam à maximização da atividade de catalisadores e/ou de enzimas, à maximização das conversões de processos químicos, à maximização de seletividades para os produtos desejados, à minimização dos custos de operação, dentre outras possibilidades. Em todos esses casos, pode ser usado um algoritmo derivado do Algoritmo 4.9 e apresentado no Algoritmo 4.10. Usualmente inicia-se o plano com um planejamento fatorial a três níveis (na forma completa, definida no Capítulo 2, ou na forma de blocos, apresentada no Capítulo 3). O plano fatorial a três níveis faz todo o sentido nesse caso, por causa do interesse explícito de maximizar o desempenho do processo – ou seja, deseja-se identificar a existência de concavidades e de pontos de máximo (ou mínimo). De qualquer forma, como descrito no Capítulo 3, a inserção de um terceiro nível pode ser feita na forma de blocos, após identificação das variáveis mais relevantes do processo. Uma vez realizados os experimentos e construído um modelo, utiliza-se o modelo do processo para otimizar as condições de experimentação (de operação). Se as condições de ótimo obtidas são similares às melhores condições de operação já conhecidas, o processo de experimentação é interrompido; caso contrário, o candidato a ótimo é inserido no plano experimental e o procedimento é reiniciado até a convergência do processo.

Algoritmo 4.10- O Algoritmo de Análise de Superfície ou de Superfície de Resposta.

Comentário: Inicialização

1. Baseado em Premissas Iniciais:

- 1.1. Definem-se os objetivos a serem alcançados (*índice de desempenho do processo*)
- 1.2. Define-se um plano experimental ótimo (*usualmente, um plano fatorial a 3 níveis*)

Comentário: Loop Principal

2. Executam-se os (novos) experimentos
3. Estimam-se os parâmetros
4. Analisam-se os resultados obtidos
 - 4.1. Procedem-se a análise estatística dos dados (*refaz-se o modelo*)
 - 4.2. Avalia-se o valor do CRITÉRIO de otimalidade obtido

Comentário: Análise Crítica dos Dados Obtidos (Terceira Decisão)

5. Se (Objetivos foram alcançados) Então

Comentário: Não há por que continuar. O candidato a ótimo ponto de operação é similar ao último valor disponível ou o índice de desempenho não pode ser melhorado.

5.1. Vá para o item 8

Comentário: Objetivos não foram alcançados. O candidato a ótimo ponto de operação é muito diferente dos valores anteriores ou o índice de desempenho pode ser melhorado, segundo o modelo.

6. Inclua o candidato a ótimo no plano experimental e volte ao item 2

7. Fim do Loop Principal

8. FIM

As expressões “*análise de superfície*” e “*superfície de resposta*” são devidas em grande parte à interpretação geométrica de problemas bidimensionais; ou seja, com duas variáveis independentes (x_1, x_2) e uma medida de desempenho (y). Nesses casos, a maximização do índice de desempenho (y) é equivalente a encontrar o ponto (x_1, x_2) que leva a superfície imersa no espaço tridimensional ($y=f(x_1, x_2)$) a um valor máximo. Obviamente, a técnica pode ser aplicada a problemas com números arbitrariamente grandes de variáveis independentes e até mesmo de variáveis dependentes, desde que um índice comum de desempenho (como o custo, por exemplo) possa ser composto a partir das muitas respostas que o problema apresenta.

Exemplo 4.11- Um plano experimental formado por um bloco meio-fatorial a dois níveis e um bloco em cruz é formulado para investigar o efeito que três variáveis exercem sobre o índice de desempenho de um processo. O plano foi executado, como descrito na Tabela 4.1.

Tabela 4.1- Plano experimental inicial do Exemplo 4.11.

Experimento	z_1	z_2	z_3	y	NR
1	-1	-1	+1	0.4	1
2	-1	+1	-1	6.4	1
3	+1	-1	-1	6.7	1
4	+1	+1	+1	4.3	1
5	0	0	0	6.2, 6.0, 6.4	3
6	-1	0	0	4.3	1
7	+1	0	0	6.2	1
8	0	-1	0	5.5	1
9	0	+1	0	7.3	1
10	0	0	-1	6.4	1
11	0	0	+1	4.7	1

De acordo com os dados da Tabela 4.1, conclui-se que a variância experimental, com 2 graus de liberdade, é igual a 0.04. Portanto, supondo a distribuição normal e um grau de confiança de 95%, pode-se dizer que o erro experimental é da ordem de ± 0.4 . Essa informação é importante para analisar a convergência do processo de otimização, pois duas medidas de desempenho que difiram por quantidade inferior a essa devem ser consideradas equivalentes. Ainda de acordo com a Tabela 4.1, o melhor candidato a ótimo é a condição experimental 9, com $z_1=0$, $z_2=+1$ e $z_3=0$, resultando em um índice de desempenho igual a $y=7.3\pm 0.4$.

A análise usual de efeitos por mínimos quadrados resulta no seguinte modelo:

$$y = (6.3 \pm 0.5) + (1.0 \pm 0.5) z_1 + (0.9 \pm 0.5) z_2 - (1.7 \pm 0.7) z_1^2 - (0.8 \pm 0.7) z_3^2$$

com função objetivo igual a 2.22. Fazendo-se o teste F entre a variância de predição, igual a

$$s_y^2 = \frac{F}{(13-5)} = 0.28$$

e calculada com 8 graus de liberdade, com a variância experimental, conclui-se que

$$0.165 < \frac{s_y^2}{\sigma_y^2} = \frac{0.28}{0.04} = 7 < 39.37$$

com 95% de confiança, de maneira que o modelo pode ser considerado bom e compatível com as medidas experimentais. Segundo o modelo, o ponto ótimo de operação no intervalo de investigação é igual a:

$$\frac{\partial y}{\partial z_1} = (1.0 \pm 0.5) - 2(1.7 \pm 0.7) z_1 = 0 \rightarrow z_1 = \frac{1.0}{3.4} = 0.29$$

$$\frac{\partial y}{\partial z_2} = (0.9 \pm 0.5)$$

de maneira que y aumenta sempre com z₂; logo, z₂ = 1.00 . Finalmente,

$$\frac{\partial y}{\partial z_3} = -2(0.8 \pm 0.7) z_3 = 0 \rightarrow z_3 = 0.0$$

Portanto, o novo candidato a ótimo é z₁=0.3, z₂=+1 e z₃=0, resultando em um índice de desempenho igual a y=7.3±0.4, semelhante estatisticamente ao valor anterior. Por isso, o procedimento pode ser interrompido ou ser usado para garantir que o ponto ótimo de fato foi obtido. Assim, um experimento adicional é incluído no plano experimental e executado, levando aos seguintes resultados

12	0.3	0	+1	7.6	1
----	-----	---	----	-----	---

A análise de efeitos por mínimos quadrados após a inclusão do ponto adicional resulta no seguinte modelo:

$$y = (6.3 \pm 0.5) + (1.0 \pm 0.5) z_1 + (0.9 \pm 0.4) z_2 - (1.7 \pm 0.7) z_1^2 - (0.8 \pm 0.7) z_3^2$$

com função objetivo igual a 2.23. Conclui-se, portanto, que o planejamento seqüencial convergiu e que a condição ótima de operação foi encontrada, não tendo sido detectada mais nenhuma modificação apreciável dos dados do problema. Cumpre salientar que os dados do problema foram gerados com o seguinte modelo

$$y = 6.5 + z_1 + z_2 - z_3 - z_1 z_2 - z_1^2 - z_3^2$$

adicionando-se ruído aleatório às respostas. Os efeitos principais de z_3 e a interação $z_1 z_2$ não foram identificados porque esses efeitos estão fundidos no plano experimental proposto, como explicado no Capítulo 3. Segundo o modelo real, desconhecido durante o planejamento, o ótimo é

$$\frac{\partial y}{\partial z_1} = 1 - z_2 - 2z_1 = 0 \rightarrow z_1 = \frac{1 - z_2}{2}$$

$$\frac{\partial y}{\partial z_2} = 1 - z_1 \begin{cases} z_2 = -1, & \text{se } z_1 > 1 \\ z_2 = +1, & \text{se } z_1 < 1 \end{cases}$$

de maneira que y aumenta sempre com z_2 ; logo, $z_2 = 1.00$ e $z_1 = 0.00$. Finalmente,

$$\frac{\partial y}{\partial z_3} = -1 - 2z_3 = 0 \rightarrow z_3 = -0.5$$

$z_1=0.0$, $z_2=+1$ e $z_3=-0.5$, resultando em um índice de desempenho igual a $y=7.75$. Assim, embora o modelo apresente imperfeições por causa da fusão de efeitos, o desempenho obtido é comparável ao máximo verdadeiro.

4.7. Conclusões

Neste capítulo foram apresentados os conceitos de planejamento ótimo de experimentos, sendo estabelecidos diversos critérios de otimalidade. Assim, para a geração do plano experimental, o usuário destas técnicas deve decidir qual critério de otimalidade pretende seguir. Estes critérios de otimalidade têm um caráter geral e podem ser usados em condições onde os planos fatoriais falha, em particular, em problemas de mistura, onde a região experimental não pode ser definida de forma trivial. Foi apresentado um conjunto de procedimentos para a geração de planos experimentais em batelada, seguindo os critérios de otimalidade e as restrições impostas as variáveis, que são particulares de cada problema que se analisa. Por fim, foi apresentado o conceito de planejamento sequencial de experimentos, onde a partir de um conjunto inicial de experimentos, novos experimentos são planejados de forma específica para que os objetivos da experimentação sejam alcançados. Este conceito é de fundamental importância para as técnicas de planejamento que serão apresentadas nos capítulos seguintes.

4.8. Leitura Adicional

O leitor interessado pode consultar alguns textos clássicos relacionados ao planejamento ótimo de experimentos, como:

A.C. Atkinson e A.N. Donev, “*Optimum Experimental Designs*”, Oxford: Oxford University Press, 1992.

J.A. Cornell, “*Experiments With Mixtures*”, New York: John Wiley & Sons, 1981.

S.D. Silvey, “*Optimum Design*”, Londres: Chapman and Hall, 1980.

V.V. Fedorov, “*Theory of Optimal Experiments*”, W.J. Studden e E.M. Klimko Eds., New York: Academic Press, 1972.

Além dos livros indicados acima, também pode ser recomendada a leitura dos artigos científicos citados ao longo do capítulo:

A.C. Atkinson e A.N. Donev, “The Construction of Exact D-Optimum Experimental Designs With Application to Blocking Response Surface Designs”, *Biometrika*, **76**, 515-526, 1989.

A.C. Atkinson, “The Usefulness of Optimum Experimental Designs”, *J.R. Statist. Soc. B*, **58**, 59-76, 1996.

A.N. Donev e A.C. Atkinson, “An Adjustment Algorithm for the Construction of Exact D-Optimum Experimental Designs”, *Technometrics*, **30**, 429-433, 1988.

G.A. Lewis e M. Chariot, “Non Classical Experimental Designs in Pharmaceutical Formulation”, *Drug Devlpmnt. Indust. Pharm.*, **17**, 1551-1570, 1991.

I.N. Vuchkov, “A Ridge-Type Procedure for Design of Experiments”, *Biometrika*, **64**, 147-150, 1977.

J. Kiefer, “Optimum Experimental Designs”, *J.R. Statist. Soc. B*, **21**, 272-319, 1959.

K.W. Chau e W.R. Kelley, “Formulating Printable Coatings Via D-Optimality”, *J. Coatings Technol.*, **65**, 71-78, 1993.

M.E. Johnson e C.J. Nachtsheim, “Some Guidelines for Constructing Exact D-Optimal Designs on Convex Design Spaces”, *Technometrics*, **25**, 271-277, 1983.

R.D. Cook e C.J. Nachtsheim, “A Comparison of Algorithms for Constructing Exact D-Optimal Designs”, *Technometrics*, **22**, 315-324, 1980.

T.J. Mitchell, “An Algorithm for the Construction of D-Optimal Experimental Designs”, *Technometrics*, **16**, 203-210, 1974.

T.J. Mitchell, “An Algorithm for the Construction of D-Optimal Experimental Designs”, *Technometrics*, **16**, 203-210, 1974.

W.J. Welch, “Branch-and-Bound Search for Experimental Designs Based on D Optimality and Other Criteria”, *Technometrics*, **24**, 41-48, 1982.

Z. Galil e J. Kiefer, “Time- and Space-Saving Computer Methods, Related to Mitchell’s DETMAX, for Finding D-Optimum Designs”, *Technometrics*, **22**, 301-313, 1980.

É sugerida ainda aos leitores interessados em técnicas numéricas de otimização a leitura dos seguintes livros:

T.F. Edgar e D.M. Himmelblau, “*Optimization of Chemical Processes*”, New York: McGraw-Hill, 1988.

H.M. Salkin, “*Integer Programming*”, Reading: Addison-Wesley, 1975.

J. Nocedal, S.J. Wright, “*Numerical Optimization*”, New York: Springer-Verlag Inc., 1999

Para os interessados nos fundamentos matemáticos apresentados e usados ao longo deste capítulo é sugerida a leitura do livro:

C.R. Wylie and L.C. Barrett, “*Advanced Engineering Mathematics*”, Singapura: Graw-Hill, 5^a Ed. 1985.

4.9. Exercícios Sugeridos

1- Considerando quatro variáveis em um problema de mistura:

a) Obtenha uma grade experimental regular sobre o SIMPLEX, com quatro níveis, utilizando o Algoritmo 4.1;

b) Obtenha uma grade experimental regular central sobre o SIMPLEX, utilizando o Algoritmo 4.2.

2- Sendo um problema com 5 variáveis (x_1, x_2, x_3, x_4, x_5) e o seguinte conjunto de restrições de igualdade e desigualdade impostas à região admissível dos dados experimentais:

$$x_1 + x_2 + x_3 + x_4 - 1 = 0$$

$$x_1 + 0.03x_3 = 0$$

$$\frac{x_1}{x_2} - 0.5 > 0$$

Determine, utilizando o Algoritmo 4.4, o melhor conjunto de variáveis independentes.

3- Para mostrar a generalidade do Algoritmo 4.5:

a) Obtenha a grade experimental de um plano fatorial para 3 variáveis a três níveis, onde não existem restrições com relação aos valores das variáveis;

b) Obtenha a grade experimental regular sobre o SIMPLEX para um problema de mistura com 3 variáveis e 4 níveis, onde existe a restrição de que a soma das variáveis seja igual a 1.

4- Resolva o problema proposto no Exemplo 4.4 com auxílio do algoritmo EXCHANGE.