

Catarina Pedrosa Santos

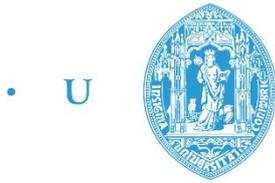
Planeamento Estatístico de Experiências para Otimização da Operação de Sensores Analíticos

Dissertação apresentada à Universidade de Coimbra para cumprimento dos requisitos necessários à obtenção do grau de Mestre em Engenharia Física no ramo de Metrologia e Qualidade

Julho/2016



UNIVERSIDADE DE COIMBRA



• U C •

FCTUC FACULDADE DE CIÊNCIAS
E TECNOLOGIA
UNIVERSIDADE DE COIMBRA

Catarina Pedrosa Santos

Planeamento Estatístico de Experiências para Otimização da Operação de Sensores Analíticos

*Dissertação apresentada à Universidade de Coimbra para
cumprimento dos requisitos necessários à obtenção do
grau de Mestre em Engenharia Física no ramo de
Metrologia e Qualidade*

Orientadores:

Marco Paulo Seabra dos Reis (CIEPQPF, Departamento de Engenharia
Química, Universidade de Coimbra)

Tiago Miguel Janeiro Rato (CIEPQPF, Departamento de Engenharia Química,
Universidade de Coimbra)

Coimbra, 2016

Agradecimentos

Agradeço aos meus orientadores, o Professor Doutor Marco Reis e o Dr. Tiago Rato, pelo apoio prestado e incansável ajuda e conselhos que me têm prestado durante o desenvolvimento desta tese. Ainda gostaria de agradecer a Christopher J. Nachtsheim, da University of Minnesota Twin Cities, e especialmente a Bradley Jones, da SAS Institute, pela disponibilização de artigos fundamentais para esta tese.

Mais pessoalmente, gostaria de agradecer à minha família, especialmente à minha mãe pela comidinha que me ia fazendo e pelo apoio quando precisei, ao meu pai por me incentivar a estudar e me lembrar nos momentos certos que se calhar deveria estudar para as frequências. À minha grande amiga Carolina, que desde o secundário que me atura e não sei bem porquê. Estiveste sempre nos bons e menos bons momentos e sei que vais estar em muitos mais. Às minhas amigas da Universidade, Bia, Luísa e Sofia, por me fornecerem muitos momentos de descontração quando foi mesmo necessário. Ao Nuno, que tanto estimo como meu amigo, ajudaste-me na tese e em algumas disciplinas e fico-te muito grata por isso. Mas fico ainda mais grata por aquelas “caminhadas” de e até o departamento.

Queria agradecer a muitas mais pessoas, mas isso seria outra tese, por isso agradeço a todos os que foram passando pelo minha vida e me foram marcando de uma ou outra forma e por acreditarem em mim.

Ainda deixo uma nota de gratidão a todos os meus colegas, amigos, funcionários e professores do Departamento de Física que tornaram estes 5 anos mais fáceis e descontraídos nos momentos necessários e puxaram por mim também nas alturas certas.

Resumo

Uma das tarefas básicas na ciência e indústria é encontrar leis (equações) que descrevam os acontecimentos observados. Para tal, é importante entender como é que as múltiplas variáveis de entrada de que o fenómeno depende o influenciam. Assim, é necessário realizar experiências de forma a obter resultados, utilizando-os para ajustar modelos que expliquem o fenómeno. Neste contexto, o planeamento estatístico de experiências apresenta diversas metodologias que tentam indicar a melhor combinação entre os fatores para a realização das experiências.

Nesta tese, são considerados três tipos de modelo: principal, de interações e quadrático. Pretende-se identificar em que situações é que cada uma das metodologias de planeamento de experiências se aplica melhor no ajuste de cada um dos modelos. Com este fim, é escolhido um sistema representativo de cada tipo e são simuladas experiências. Posteriormente, os resultados são ajustados (por regressão linear) aos três tipos de modelo que são depois comparados com os sistemas reais.

Os resultados obtidos indicam uma grande sensibilidade face ao tipo de modelo que se pretende ajustar (número de fatores e efeitos importantes).

Observou-se que em 9 dos 12 casos estudados a metodologia *Definitive Screening Design* apresentou maior desempenho (potência próxima de 0,05). Concluiu-se ainda que a sua *performance* piorou para modelos com complexidade crescente quando se consideram mais fatores e mais efeitos ativos. Verificou-se, por isso, que a escolha da metodologia mais adequada passa por um compromisso entre o número de experiências envolvidas e o número de efeitos ativos.

Abstract

One of the most basic tasks in science and industry is to find laws (equations) that describe the observed phenomena. As such, it is important to understand how the multiple entry variables, on which the phenomenon depends, influence its behaviour. Consequently, it is necessary to perform experiences in order to obtain results and further use them to adjust mathematical models that explain said phenomenon. In this context, the design of experiments has several methodologies that try to specify the best combinations between factors to perform the experiments.

In this thesis, three types of models are considered: linear main effect, with interactions and full second order. The aim is to identify which design is more adequate for fitting each type of process. With that in mind, a representative system is chosen from each type of process and the experiments are simulated. Afterwards, the results are fit (by linear regression) to the three types of models that are then compared to the real systems.

The obtained results are highly sensitive to the type of model being fit (number of factors and important effects).

In 9 out of the 12 cases study, the Definitive Screening Design presented the best performance (power close to 0,05). However, its performance decreases for models with greater complexity and when more factors and active effects are considered. Therefore, the choice for the most adequate design is a balance between the number of experiments executed and the number of active effects.

Conteúdo

Agradecimentos	i
Resumo	iii
Abstract.....	v
Conteúdo.....	vii
Lista de Figuras.....	ix
Lista de Tabelas.....	xi
Abreviaturas.....	xiii
Capítulo 1	1
Introdução	1
1.1 – Contexto Histórico	2
1.2 – Aplicações	4
Capítulo 2	7
Estado da Arte	7
2.1 – Introdução ao Planejamento Estatístico de Experiências	7
2.1.1 – Princípios Básicos do Planejamento Estatístico de Experiências.....	14
2.1.2 – Modelo de Regressão Linear.....	16
2.2 – Metodologias de DoE para <i>Screening</i> de fatores	18
2.2.1 – Plano Fatorial Completo	18
2.2.2 – Plano Fatorial Fracionado a 2 níveis	28
2.2.3 – Plackett – Burman Designs	32
2.2.4 – Definitive Screening Design	33
2.2.5 – D-Optimal Designs.....	37

Capítulo 3	39
Casos de Estudo	39
3.1 – Escolha do processo real	40
3.2 – Simulação das Experiências	44
3.3 – Determinação dos coeficientes	46
3.4 – Determinação de outros parâmetros relevantes ao estudo	50
3.5 – Resultados.....	51
3.5.1 – Processo Principal	52
3.5.2 – Processo com Interações	58
3.5.3 – Processo Quadrático	65
Capítulo 4	73
4.1 – Discussão dos Resultados	73
4.2 – Caso Prático	78
Capítulo 5	81
Conclusões e Trabalho Futuro	81
Referências.....	83

Lista de Figuras

- Figura 1 – Modelo geral de um processo, adaptado de Montgomery (2009) [4].8
- Figura 2 – (a) plano 2^3 com um ponto central; (b) *star points* (c) *central composite design*, adaptado de Box, G.E.P. *et al* (2005) [3].25
- Figura 3 – Gráfico de probabilidade normal usando o plano Plackett – Burman para simular as experiências obtido pelo JMP Pro 12.49
- Figura 4 – Potência e probabilidade do erro do tipo I e do tipo II para o caso de a hipótese nula ser verdadeira.51
- Figura 5 – Gráfico de barras para o plano *Box-Behnken* sem pontos centrais para o processo $y = -6x_1 - 4x_2 + e$. A linha laranja corresponde à significância do teste e valor ótimo para a potência de cada coeficiente. Acima das barras é apresentado o valor do coeficiente do processo principal.54
- Figura 6 – Gráfico de barras com o plano DSD para o processo $y = -6x_1 - 4x_2 + 4x_3 - 2x_4 - 2x_5 + e$. Os valores acima das barras correspondem às magnitudes dos coeficientes do processo; a linha laranja corresponde ao nível de confiança.55
- Figura 7 – Gráfico de barras para o plano *Plackett-Burman* para o processo: $y = -6x_1 + 4x_2 - 2x_3 + e$. A linha laranja corresponde ao nível de confiança do teste de hipóteses e os valores acima das barras são as magnitudes dos coeficientes do processo.56
- Figura 8 – Gráfico de barras para o plano D-optimal com o processo real: $y = -6x_1 - 6x_2 + 4x_3 - 4x_4 + 4x_5 - 2x_6 + 2x_7 - 2x_8 - 2x_9 - 2x_{10} + e$. A linha laranja corresponde ao valor ideal da potência e os valores acima das barras correspondem aos coeficientes do processo principal.58
- Figura 9 – Gráfico de barras para o plano fatorial fracionado de resolução III com dois pontos centrais para o processo $y = -6x_1 + 4x_1x_2 + e$. A linha laranja corresponde ao valor ideal da potência e os valores acima das barras dizem respeito às magnitudes dos coeficientes do processo de interações.....60
- Figura 10 – Gráfico de barras para o plano central composite design sem pontos centrais usando o processo de interações $y = 6x_1 + 4x_2 + 2x_3 + 4x_1x_2 - 2x_1x_3 + e$ para comparação. A linha laranja corresponde ao valor ótimo da potência e os valores acima da barra dizem respeito a cada um dos coeficientes do processo.....61
- Figura 11 – Gráfico de barras para o plano fatorial fracionado com dois pontos centrais e resolução III, usando o processo: $y = 6x_1 + 4x_2 - 4x_1x_2 + e$. A linha vermelha

corresponde ao valor ótimo que a potência deverá ter para todos os coeficientes. Os valores acima das barras correspondem às magnitudes dos coeficientes do processo...62

Figura 12 – Gráfico de barras para o plano *central composite design* com dois pontos centrais, usando o processo: $y = 6x_1 + 4x_2 - 4x_1x_2 + e$. Os valores acima de cada barra correspondem ao valor de cada coeficiente do processo e a linha laranja diz respeito ao valor ideal da potência.....63

Figura 13 – Gráfico de barras para o plano DSD com o processo real: $y = 6x_1 - 6x_2 + 4x_3 + 4x_4 - 2x_5 - 2x_6 + 2x_7 - 4x_1x_2 + 4x_1x_3 - 2x_1x_4 + e$. Os valores representados em cima das barras correspondem ao valor real dos coeficientes e a linha laranja corresponde ao nível de significância do teste de hipóteses (valor ideal para a potência).64

Figura 14 – Correlação dos fatores do modelo para o plano DSD.....65

Figura 15 – Gráfico de barras para o plano *Box-Behnken* sem pontos centrais com o processo real: $y = 6x_1 - 4x_1^2 + e$. Os valores acima de cada barra correspondem às magnitudes dos coeficientes que se encontram no processo quadrático. A linha laranja apresenta o valor ideal para a potência.67

Figura 16 – Gráfico de barras para o plano *definitive screening design* para o processo: $y = 6x_1 + 4x_2 + 4x_1x_2 + 2x_1x_3 - 4x_1^2 + e$. A linha laranja corresponde ao valor ideal para a potência e os valores no gráfico são as magnitudes dos coeficientes que estão no processo quadrático indicado.....68

Figura 17 – Gráfico de barras para o plano *D-optimal* para o processo: $y = 6x_1 + 4x_1x_2 + 4x_1^2 + e$. A linha laranja indica o limite ótimo que a potência deve ter e os valores acima das barras indicam a magnitude dos coeficientes do processo indicado. .70

Figura 18 – Gráfico de barras para o plano DSD com o processo: $y = -6x_1 + 4x_2 + 4x_3 + 2x_4 + 2x_5 + 4x_1x_2 + 4x_1x_3 - 2x_1x_4 + 4x_1^2 + 2x_2^2 + e$. Os valores acima de cada barra correspondem aos coeficientes do processo quadrático e a linha laranja diz respeito ao valor ideal para a potência.71

Figura 19 – Gráfico de barras para o plano *Central composite designs* sem pontos centrais com o processo: $y = -6x_1 + 4x_2 + 4x_3 + 2x_4 + 2x_5 + 4x_1x_2 + 4x_1x_3 - 2x_1x_4 + 4x_1^2 + 2x_2^2 + e$. A linha laranja corresponde ao valor ótimo para a potência e os valores acima das barras correspondem às magnitudes de cada coeficiente do processo quadrático.....72

Figura 20 – Gráfico de barras para o plano DSD para o processo $S = 2.228.533 + 355.669,69x_1 + 328.093,19x_1x_3 - 431.314x_2x_4 + e$. A linha laranja corresponde ao valor ótimo que a potência deve ter e os valores acima das barras são as magnitudes do processo prático.....80

Lista de Tabelas

Tabela 1 – Nomenclatura usada para os níveis de um fator. Neste caso, cada fator tem 3 níveis.	10
Tabela 2 – Áreas de aplicação de alguns planos de experiências.	12
Tabela 3 – Exemplo de 4 experiências a realizar com dois fatores.	13
Tabela 4 – Plano fatorial completo a 2 níveis, adaptado de Box, G. E. P. et al (2005) [3].	20
Tabela 5 – Contrastes para um plano fatorial completo 2^3	20
Tabela 6 – Efeitos calculados pela equação (6) e respectivos desvios padrão, adaptado de Box, G. E. P. et al (2005) [3].	22
Tabela 7 – Vantagens e desvantagens dos planos fatoriais completos a 2 níveis.	23
Tabela 8 – Exemplo de um plano fatorial completo 3^2	24
Tabela 9 – Incomplete Block Design para $k = 3$ fatores, adaptado de Wu, C.F. et al (2009) [1].	27
Tabela 10 – Plano fatorial completo de 2^2	27
Tabela 11 – Box-Behnken design para 3 fatores, com um ponto central, adaptado de Wu, C.F. et al (2009) [1].	27
Tabela 12 – Exemplo de um plano 2^{5-1}	29
Tabela 13 – Estrutura de confusão de um plano fatorial fracionado de 2^{5-1}	30
Tabela 14 – Exemplo de um plano Plackett – Burman, adaptado de Box, G.E.P. et al (2005) [3].	33
Tabela 15 – Estrutura geral de um plano DSD para k fatores quantitativos, adaptado de Jones, B. e Nachtsheim (2011) [9].	34
Tabela 16 – Exemplo de um Plano DSD com 4 fatores contínuos e 2 fatores categóricos, adaptado de Jones, B. e Nachtsheim (2013) [10].	37
Tabela 17 – Número mínimo de experiências para cada plano, para 5 e 10 fatores.	40

Tabela 18 – Número máximo de termos que cada processo pode ter, para 5 e 10 fatores.	42
Tabela 19 – Magnitude dos coeficientes que entrarão nos três processos, para 5 fatores.	44
Tabela 20 - Magnitude dos coeficientes que entrarão nos três processos, para 10 fatores.	44
Tabela 21 – Coeficientes estimados pelo JMP e pela função do MATLAB.	49
Tabela 22 – Resumo da potência e planos sugeridos para cada um dos processos principais.....	53
Tabela 23 – Resumo da potência e planos sugeridos para cada um dos processos com interações.	59
Tabela 24 – Resumo da potência e planos sugeridos para cada um dos processos quadráticos.	66
Tabela 25 – Fatores com respectivas magnitudes para otimizar o desempenho de extração do HS – SPME, adaptado de Leça et al (2015) [32].....	78
Tabela 26 – Termos do modelo de interações para otimização do HS – SPME, adaptado de Leça et al (2015) [32].	79

Abreviaturas

BBD – *Box-Behnken Designs*

BBD (0 cp) – *Box-Behnken Designs* sem pontos centrais

BBD (2 cp) – *Box-Behnken Designs* com 2 pontos centrais

CCD – *Central Composite Designs*

CCD (0 cp) – *Central Composite Designs* sem pontos centrais

CCD (2 cp) – *Central Composite Designs* com 2 pontos centrais

cp – Pontos centrais

DoE – *Designs of Experiments* (Planeamento Estatístico de Experiências)

DSD – *Definitive Screening Designs*

FD – Plano Fatorial Completo

FD (2 cp) – Plano Fatorial Completo com 2 pontos centrais

FFD [III] – Plano Fatorial Fracionado de resolução III

FFD [III] (2 cp) – Plano Fatorial Fracionado de resolução III com 2 pontos centrais

FFD [IV] – Plano Fatorial Fracionado de resolução IV

FFD [IV] (2 cp) – Plano Fatorial Fracionado de resolução IV com 2 pontos centrais

Plackett – Burman (2 cp) – *Plackett – Burman Designs* com 2 pontos centrais

RSM – *Response Surface Methodology*

SNR – Relação sinal ruído

Capítulo 1

Introdução

Na indústria e em atividades de investigação & desenvolvimento é importante entender o comportamento dos processos, sensores ou até mesmo produtos, para posterior melhoria, modelação (incluindo calibrações) ou otimização dos mesmos. A melhor forma de conhecer este comportamento é através do ajuste de modelos e, para tal, é necessário entender como é que as múltiplas variáveis de entrada afetam a resposta, sendo necessário realizar experiências para poder obter resultados e ajustar os modelos. Aqui surge o Planeamento Estatístico de Experiências, onde foram criadas metodologias que, através do número de variáveis de entrada (fatores) e do tipo de modelo que se pretende ajustar (linear, quadrático, ...), indica as combinações de fatores mais adequada para a realização de experiências. Assim, obtém-se um conjunto de medições que relaciona as variáveis de entrada em diferentes níveis com a resposta.

Neste capítulo é introduzido o contexto histórico bem como algumas aplicações do planeamento estatístico de experiências. No Subcapítulo 2 é descrito em mais detalhe o que se entende por Planeamento Estatístico de Experiências, bem como alguns dos seus princípios. Neste capítulo são ainda explicadas algumas metodologias que serão usadas no decurso desta tese.

Com esta tese, pretende-se identificar em que situações é que cada uma das metodologias se aplica melhor no ajuste de três tipos de modelos: (i) modelo linear, (ii) modelo linear com interações e (iii) modelo quadrático, e perceber quais as mais eficientes em cada ocasião. De forma a conhecer a melhor aplicação de cada metodologia, é escolhido um sistema representativo de cada um dos três modelos. Estes sistemas serão usados para simular as experiências, através da aplicação dos vários tratamentos fornecidos por cada metodologia. Com as respostas obtidas pela simulação, é feito um

ajuste aos três tipos de modelo, admitindo que não se conhece o modelo real. No Capítulo 3 é explicado em mais detalhe a seleção dos modelos de referência, bem como são realizadas as simulações com as diferentes metodologias de modo a que possam ser comparáveis entre si. Neste capítulo ainda são comparados os modelos estimados com os modelos/processos reais. No Subcapítulo 4 é feita uma discussão dos resultados, onde são indicadas as metodologias que melhor estimam cada um dos modelos e, ainda, é apresentado um caso mais realista onde, mais uma vez, se assume conhecido o modelo real e se procede à seleção do melhor plano experimental para realizar as experiências e estimar o respetivo modelo.

Este trabalho permite dar mais confiança a investigadores e engenheiros que usem o planeamento estatístico de experiências para realizar os seus estudos, de forma a poderem saber em que situação cada metodologia melhor se aplica.

1.1 – Contexto Histórico

Ao longo dos anos, tem sido cada vez mais necessário melhorar os processos existentes a fim de os tornar mais eficientes. Para isso, têm sido implementados planos experimentais nos processos de forma a entender como estes operam e o que é possível fazer para os melhorar. Inicialmente, as experiências eram efetuadas variando um fator de cada vez, com a consequência de não serem consideradas quaisquer interações que poderiam existir entre estes. O planeamento estatístico de experiências emergiu assim como metodologia sistemática para conduzir a atividade experimental e facilitar a compreensão dos processos num curto espaço de tempo e com grande economia de recursos.

O Planeamento Estatístico de Experiências moderno surgiu com o trabalho de R. A. Fisher, em conjunto com F. Yates e D. J. Finney, na década de 30 em Inglaterra (na Rothamsted Agricultural Experimental Station), motivado pelos problemas existentes no domínio da agricultura e biologia [1, 2]. Fazer experiências na agricultura é muito moroso e em grande escala, para além de que é muito fácil haver variações indesejáveis durante as experiências. Devido a estes problemas, surgiram alguns princípios que ajudaram a diminuir alguma variabilidade: blocagem, aleatorização e replicação (a trilogia de Fisher).

Além destes princípios, surgiram ainda desenvolvimentos técnicos importantes, como planos ortogonais (garantindo que cada efeito estimado não é afetado pela magnitude e sinal dos outros efeitos [3]), a análise da variância e o plano fatorial fracionado (que permitiu diminuir o número total de experiências a fazer, facilitando muito os estudos na agricultura [como por exemplo na fertilização de plantas]). Para além do trabalho na agricultura e biologia desenvolvido por R. A. Fisher, F. Yates e D. J. Finney, R. C. Bose [1] contribuiu para a teoria da combinação de vários planos experimentais, estimulada por problemas em planos fatoriais fracionados. Ao combinar planos que permitem, por exemplo, fazer a seleção dos fatores, com planos que ajudam a determinar a possível curvatura da resposta, permitiu o estudo com maior eficácia da resposta observada. Este trabalho teve, ainda, aplicações em estudos nas ciências sociais, bem como nas indústrias de têxtil e de lã.

Durante a Segunda Guerra Mundial surgiram problemas relevantes na indústria química, pelo que o planeamento estatístico de experiências evoluiu rapidamente nesta área: G. E. P. Box e os seus colegas de trabalho da Imperial Chemical Industries criaram novos conceitos e técnicas que permitiam otimizar os processos, em vez de simplesmente comparar os vários tratamentos efetuados (como no caso inicial da agricultura) [1]. Para além disso, as experiências nos processos industriais demoram menos tempo e apresentam restrições diversas, levando ao desenvolvimento de novas técnicas para o planeamento de experiências, como o aparecimento de *central composite designs* e mais tarde dos *optimal designs* (estes planos serão explicados com detalhe no Capítulo 2). A análise para estes novos planos depende mais da análise de gráficos e modelos de regressão e o processo de otimização será baseado no ajuste destes modelos.

Com o surgimento da produção em massa, a capacidade de fabricar muitas peças com poucos defeitos tornou-se uma vantagem competitiva, pelo que se tornou importante melhorar a qualidade e produtividade dos produtos a fabricar. G. Taguchi [4] defendeu o uso de planos robustos de forma a melhorar o sistema de uma empresa, tornando o sistema menos sensível a variações. Ao explorar a relação entre os fatores e o ruído é possível desenvolver um sistema menos sensível a variações de ruído, e que seja capaz de produzir dentro das especificações de qualidade desejadas.

Desde 1980 foram surgindo mais técnicas e metodologias que permitem determinar ainda melhor a influência dos vários fatores numa dada resposta e ajustar modelos matemáticos. Estes modelos podem ser lineares, caso em que só apresentam efeitos principais, ou apresentar características mais complexas desde efeitos principais com interações de segunda ordem a efeitos quadráticos (conhecido como modelo quadrático), a [1]. Algumas das técnicas de análise utilizadas durante a construção dos modelos são a análise da variância (ANOVA), e a metodologia de regressão linear. A primeira consiste numa metodologia de testes estatísticos de hipóteses (*F-test*). A segunda baseia-se na estimação de um modelo de regressão linear, onde se testa, de entre outras condições, a hipótese nula de que o coeficiente em questão será zero ($H_0: \beta_1 = 0; H_a: \beta_1 \neq 0$); caso a hipótese H_0 seja rejeitada, conclui-se que o efeito correspondente ao coeficiente afeta significativamente a resposta e entra no modelo; caso contrário este não entra no modelo [5].

Após este breve contexto histórico, no subcapítulo seguinte são enumeradas algumas das aplicações do planeamento de experiências. No Capítulo 2 são explicados alguns dos princípios aqui enunciados, bem como alguns dos planos que foram surgindo ao longo dos anos.

1.2 – Aplicações

As ferramentas descritas anteriormente podem ser usadas para o desenvolvimento de produtos ou processos, assim como para resolução de problemas. Além disso, é possível realizar experiências para melhoria de processos e para descobrir as variáveis de entrada que influenciam uma resposta de forma a colocar novamente um processo em controlo estatístico. Outra aplicação é a redução de custos de fabrico ou de tempo para cada operação do processo, bem como reduzir a variabilidade da resposta (sendo esta um produto final, ou o produto que sai de uma etapa de fabrico). Ainda se pode utilizar estas metodologias para obter uma estimativa mais precisa das condições de operação ótima de um determinado processo ou produto.

Este princípio é aplicado em muitas indústrias diferentes, como por exemplo a eletrónica e semicondutores, indústria aeroespacial e automóvel, em dispositivos médicos, indústrias alimentar, farmacêutica e química.

Um exemplo prático da aplicação do DoE é a indústria farmacêutica onde se desenvolveu um processo catalítico para a produção de Epóxido 1. Neste caso, era necessário otimizar a produção deste composto pelo que se aplicou o planeamento de experiências. Aqui variaram-se os fatores que influenciavam o processo catalítico de forma a obter Epóxido 1 com elevado rendimento, excelente seletividade e pureza quiral. Para mais informações consultar [6].

Outra aplicação de DoE é a eficiência no processamento de receitas médicas na Inglaterra. Aqui sabia-se que o tempo de trabalho do colaborador era importante, bem como a experiência deste, pelo que se fizeram experiências com diferentes colaboradores com diferentes conhecimentos práticos experiências e com limites de tempo para fazer o processamento da receita. Os resultados obtidos permitiram concluir que a velocidade na inserção das receitas era bastante relevante e ainda permitiu estabelecer um desempenho mínimo que novos candidatos para a tarefa deveriam ter. Para mais informação e outros exemplos relacionados com trabalhadores consultar [7].

Capítulo 2

Estado da Arte

2.1 – Introdução ao Planejamento Estatístico de Experiências

A maioria das experiências que permitem entender o processo de fabrico e melhoria de processos envolvem inúmeras variáveis, pelo que surgiram metodologias que permitem facilitar a seleção das condições a testar. Segundo Montgomery (2005), um planejamento estatístico de experiências é um teste ou uma série de testes controlados realizados de modo a alterar as variáveis de entrada para que a sua influência na saída possa ser observada [4]. Um processo, como o representado na Figura 1, pode ser idealizado como sendo uma combinação de métodos, equipamentos e pessoas que transformam um determinado material (variável) num produto final (resposta de qualidade a ser avaliada). Neste contexto podem definir-se tanto variáveis controláveis como variáveis não controláveis, podendo ambas causar variabilidade na resposta. As variáveis controláveis são aquelas que podem ser modificadas ao longo de uma experiência ou processo durante o decurso das experiências. Como estas variáveis poderão afetar a resposta, pretende-se ter um maior conhecimento do seu efeito de forma a permitir melhorar um processo ou serviço. Por sua vez, as variáveis não controláveis são aquelas para as quais não é possível manipular o seu comportamento. Deste modo, mesmo que a sua influência possa ser conhecida, não existe uma forma direta de as alterar a fim de obter a resposta pretendida. Posto isto, o Planejamento Estatístico de Experiências (DoE, do inglês *Design of Experiments*) tem como objetivo último obter um modelo matemático apropriado para descrever um certo fenómeno, utilizando o menor número possível de experiências.

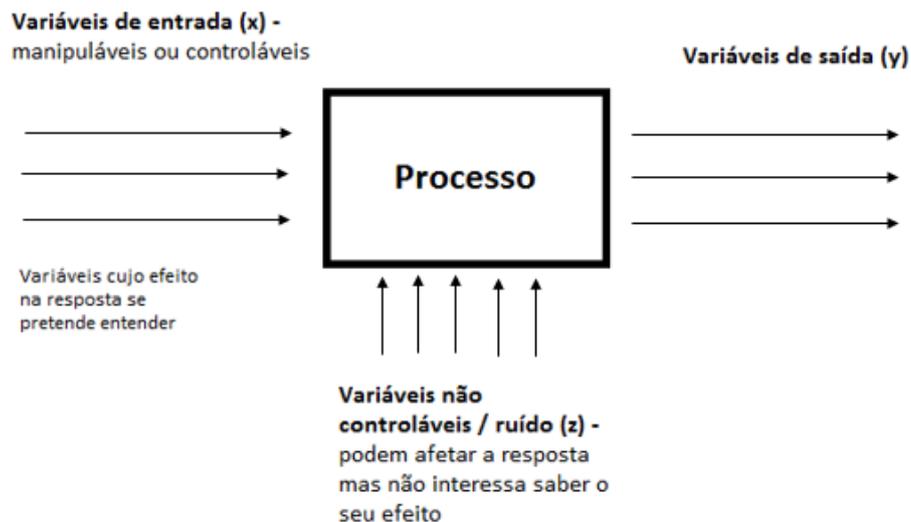


Figura 1 – Modelo geral de um processo, adaptado de Montgomery (2009) [4].

De modo a realizar experiências com informação útil para a geração de modelos, as etapas de seguida apresentadas são recomendadas. Com isto pretende-se estabelecer um procedimento a adotar por uma equipa, de modo a que todos os seus elementos compreendam os objetivos da experiência e consigam planeá-la de forma eficiente.

Etapas de um estudo de Planeamento Estatístico de Experiências [1]:

- 1. Definição do problema** (objetivo bem definido: familiarização, *screening* [seleção de variáveis], otimização, plano robusto, etc.).

Inicialmente, conhece-se o problema (pode ser o mau funcionamento de um equipamento, melhoria de algum processo/equipamento, fabrico de um novo produto, calibração de um sensor, etc.) e decide-se qual o objetivo para resolver o problema.

Um dos objetivos possíveis pode ser a seleção das variáveis de entrada que influenciam a resposta (*screening*), também conhecido por determinação dos fatores ativos. Esta abordagem é muito utilizada quando existe um elevado número de variáveis, mas só algumas serão relevantes.

Uma vez determinados os efeitos ativos, é necessário saber o seu efeito na saída. A relação entre a resposta e estas variáveis é designada por *response surface*. Uma metodologia para a determinar é a designada *response surface methodology* (RSM), que consiste num plano que permite estimar efeitos

quadráticos e interações entre outros fatores. Estas experiências tendem a ser mais exigentes em termos do número de experiências necessárias que as de *screening*.

É possível ainda escolher um valor específico, t , e ajusta-se a resposta, y , para o valor mais próximo de t (t é designado por *nominal-the-best*).

Ainda é possível fazer otimização (descoberta do estado de operação ótimo de um processo, tendo em conta as variáveis importantes), podendo ser minimização ou maximização da variável resposta.

Para além da otimização, ainda é importante para a melhoria de qualidade ter um sistema robusto contra a variação de ruído, pelo que este pode ser mais um objetivo a ter em conta.

2. Escolha da resposta a estudar.

Inicialmente é escolhida qual a variável resposta que se pretende medir, sendo que esta pode ser o rendimento de um processo, o número de peças que saem sem defeito, entre outros.

3. Escolha dos fatores de entrada e dos seus níveis.

Um **fator** é a variável que é estudada na experiência e, para estudar o seu efeito, são usados dois ou mais valores desse fator. Estes valores são referidos como **níveis** e a combinação dos níveis dos fatores corresponde ao **tratamento**. Os fatores podem ser quantitativos ou qualitativos. Os fatores quantitativos são aqueles que apresentam uma escala contínua, como é o caso da temperatura e da pressão, por exemplo. Já os fatores qualitativos são variáveis categóricas, ou seja, ou elas se encontram no sistema ou não, podendo ser a presença ou ausência de uma variável, o tipo de variável ou operador, etc.

De um modo geral, cada fator pode ser observado em vários níveis. As experiências mais utilizadas na indústria são as experiências fatoriais a 2 níveis (2^k), em que cada fator assume apenas dois níveis: um alto e outro baixo ou a presença ou ausência de uma determinada característica. Ainda é possível que o nível do

fator tenha um valor intermédio (ponto central). A nomenclatura usada apresenta-se na Tabela 1. Quando cada fator tem 3 níveis, usa-se o símbolo “+” para o nível alto, “0” para o nível intermédio e “-” para o nível baixo. Estes são os códigos usados no estudo dos efeitos. No entanto, aquando da realização das experiências, cada nível irá corresponder a um valor diferente para cada variável. Por exemplo, se uma das variáveis a estudar for a temperatura e se sabe que esta poderá variar entre 0 e 50 °C, então o nível baixo corresponde a uma experiência com temperatura a 0 °C, um nível intermédio corresponde a uma temperatura de 25 °C e um nível alto corresponde a uma temperatura de 50 °C. Portanto, as experiências serão realizadas com temperaturas de 0, 25 ou 50 °C.

Tabela 1 – Nomenclatura usada para os níveis de um fator. Neste caso, cada fator tem 3 níveis.

	Alto	Intermédio	Baixo
Notação Geométrica	+	0	-
Notação Numérica	+ 1	0	- 1

4. Seleção do modelo a ajustar aos resultados obtidos.

Uma escolha comum para o modelo passa por assumir uma relação linear, na ausência de mais informação sobre o comportamento da resposta aquando da modificação dos fatores de entrada. Uma boa estratégia começa por fazer *screening* de modo a diminuir a lista de potenciais fatores ativos. Após determinação das variáveis importantes, é usual estudar as interações entre os vários fatores e efeitos quadráticos.

Os modelos mais comuns a ajustar são o linear (só os efeitos principais é que entram), quadrático (onde entram os efeitos principais, efeitos de interação de segunda ordem e efeitos quadráticos) ou modelos de regressão completos (onde entram para o estudo todas as possíveis interações de ordem n).

5. Escolha do plano de Planejamento Estatístico de Experiências.

É escolhida a metodologia que irá indicar as combinações dos fatores de entrada que serão usados para fazer as experiências. Alguns exemplos de ferramentas para *screening* são os Fatoriais Completos (a 2 níveis [3] e 3 níveis)¹, Fatoriais Fracionados (também a 2 e 3 níveis)² [8] e *Definitive Screening Designs* (DSD) [9, 10] (DSD ainda permite estimar efeitos não lineares). Exemplos de planos a 3 níveis são o *central composite design* [1, 3] ou *Box-Behnken design* [1, 3, 11]. Para além disso, existem metodologias que foram desenhadas para serem ótimas de acordo com um dado critério, designadas *optimal designs* [12, 13]. Ainda existem outras metodologias para os diferentes objetivos indicados e que não serão discutidas mas que poderão ser encontradas em [1, 14]. A Tabela 2 indica os objetivos de alguns dos planos estudados neste trabalho.

¹ Existem para todos os níveis possíveis, mas aqui só serão explicados a 2 e 3 níveis.

² São uma fração dos Fatoriais Completos e também só serão discutidos os planos com 2 e 3 níveis.

Tabela 2 – Áreas de aplicação de alguns planos de experiências.

Plano Fatorial Completo	2 níveis	<ul style="list-style-type: none"> • Seleção de variáveis ativas • Ajuste a um modelo com todos os efeitos principais e interações de qualquer ordem
	3 níveis	<ul style="list-style-type: none"> • Seleção de variáveis ativas • Ajuste a um modelo quadrático: efeitos principais, interações de ordem n e efeitos quadráticos
Plano Fatorial Fracionado		<ul style="list-style-type: none"> • Seleção de variáveis ativas de baixa ordem • Ajuste a um modelo linear com poucos efeitos ativos e de baixa ordem
<i>Plackett – Burman Designs</i>		<ul style="list-style-type: none"> • Seleção de variáveis ativas de baixa ordem • Ajuste a um modelo linear com poucos efeitos ativos e de baixa ordem (normalmente efeitos principais e interações entre dois fatores)
<i>Box – Behnken Designs</i>		<ul style="list-style-type: none"> • Seleção de variáveis ativas • Ajuste a um modelo quadrático
<i>Central Composite Designs</i>		<ul style="list-style-type: none"> • Seleção de variáveis ativas • Ajuste a um modelo quadrático
<i>Definitive Screening Designs</i>		<ul style="list-style-type: none"> • Seleção de variáveis ativas • Ajuste a um modelo quadrático
<i>D – Optimal Designs</i>		<ul style="list-style-type: none"> • Ajuste a qualquer modelo

6. Realização das experiências.

Uma vez escolhidas as variáveis de entrada a estudar e qual a resposta que se pretende compreender, bem como os níveis que cada variável pode tomar, são planeadas as experiências usando o plano mais adequado ao objetivo escolhido. Este plano irá indicar a combinação entre os vários fatores e são estas combinações que serão usadas para realizar as experiências. A Tabela 3 apresenta

um exemplo, para dois fatores como a temperatura e humidade, onde indica os valores que estas terão na realidade e os valores correspondentes na notação do DoE.

Tabela 3 – Exemplo de 4 experiências a realizar com dois fatores.

Experiência	Temperatura		Humidade	
	Valor real (°C)	Notação Geométrica	Valor real (%)	Notação Geométrica
1	0	–	50	–
2	0	–	75	+
3	25	+	50	–
4	25	+	75	+

Portanto, serão realizadas 4 experiências no total (correspondendo a cada combinação ou tratamento) onde, por exemplo, a experiência 3 será realizada com a temperatura a 25 °C e humidade a 50% (+ –) e é medida a resposta.

7. Análise dos resultados.

Deve ser feito o ajuste dos dados a um modelo e a análise deste. No Subcapítulo 2.1.2 é explicado como são ajustados os modelos.

8. Conclusões (ou nova iteração até se obter uma solução satisfatória).

Baseado na análise dos dados será possível determinar os fatores ativos, bem como determinar qual a melhor combinação relativamente ao objetivo a atingir.

Resumindo, o planeamento estatístico de experiências é dividido por três grandes etapas. A primeira corresponde à seleção do objetivo do problema e escolha do plano mais adequado. A segunda etapa diz respeito à realização das experiências e, por último, a terceira etapa que corresponde à análise dos resultados obtidos e conclusões. Caso os

resultados obtidos não sejam os que se pretendem, volta-se à etapa 1 de forma a obter uma solução satisfatória.

No Subcapítulo 2.1.1 são apresentados alguns princípios a ter em conta quando se realizam experiências. Quando se planeia uma experiência com muitos fatores é necessário ter em conta que nem todos os fatores irão ser importantes, nem terão a mesma importância. Existem alguns princípios que ajudam a planejar as experiências sem as realizar em demasia e ainda permitem facilitar no ajuste dos modelos. Estes princípios serão explicados no Subcapítulo 2.1.1 e, no Subcapítulo 2.1.2 são introduzidos os modelos que são usualmente ajustados os dados.

2.1.1 – Princípios Básicos do Planeamento Estatístico de Experiências

Fisher deparou-se com problemas nas experiências da agricultura e biologia que levaram ao desenvolvimento dos princípios de replicação, aleatorização, blocagem hierarquia e hereditariedade.

As réplicas permitem observar a variabilidade da resposta para cada tratamento, bem como estimar a significância dos efeitos; estas permitem ainda obter uma melhor estimativa para o efeito de cada fator (maior precisão), permitindo um maior poder para determinar diferenças nos tratamentos. Estes dois factos são demonstrados por Fisher [2].

A aleatorização das combinações de fatores permite garantir que a recolha dos dados é independente (já que os métodos estatísticos requerem variáveis aleatórias distribuídas aleatoriamente) e ainda evita a interferência sistemática de fatores de ruído/incontroláveis. Como tal, deve-se aleatorizar a ordem pela qual os tratamentos são aplicados para realizar as experiências.

A replicação e a aleatorização usadas em conjunto permitem validar a significância dos efeitos calculados, uma vez que permitem determinar as incertezas associadas aos efeitos e garantir que não existem fatores incontroláveis a influenciar de formas diferentes os vários fatores.

Por fim, a blocagem é utilizada com o objetivo de aumentar a precisão de uma experiência. Em certos processos, pode-se controlar e avaliar, sistematicamente, a

variabilidade resultante da presença de alguns fatores conhecidos, que levam à perturbação do sistema, mas sem interesse real para o estudo. Um exemplo disto é quando uma certa tarefa é efetuada por duas pessoas diferentes, levando à não homogeneidade dos dados. Para evitá-la, trata-se cada pessoa como se fosse um bloco e assim podem estudar-se os fatores que realmente interessam. Ao comparar os tratamentos no mesmo bloco, o efeito dos blocos será eliminado quando comparados os tratamentos, levando a uma experiência mais eficiente. Outros exemplos de blocos são dias, semanas, manhã versus tarde, lotes... É de notar que para que a blocagem seja eficaz, os tratamentos devem ser dispostos de modo que a variação dentro de cada bloco seja inferior à variação entre blocos. Portanto, ao comparar os tratamentos dentro do bloco, elimina-se o efeito que o bloco poderia ter na resposta, o que torna a experiência mais eficiente [1]. Aqui é possível aplicar a aleatorização aos blocos, o que vai permitir reduzir a influência de variáveis desconhecidas.

No conceito do DoE é ainda usado o princípio da esparsidade que indica que apenas alguns efeitos de primeira ordem bem como algumas interações de baixa ordem se encontram ativos, ou seja, que influenciam a resposta. Este é um princípio especialmente tido em conta quando se escolhe um plano fatorial fracionado (de qualquer nível), uma vez que muitos dos efeitos dos fatores são confundidos (i.e., são determinados como sendo o mesmo efeito), admitindo-se que só alguns efeitos de baixa ordem é que são significativos [4].

Além disso, há o princípio da hierarquia que diz que no modelo de regressão os efeitos de primeira ordem (principais) representam a maior fonte de variabilidade na maioria dos processos e sistemas. Os efeitos de segunda ordem (interações e efeitos quadráticos) que são usualmente compostos pelos efeitos principais relevantes (i.e., que acrescentam variabilidade ao sistema) são a segunda fonte a criar maior variabilidade [14].

Por fim, existe o princípio da hereditariedade onde se observou que fatores com efeitos principais baixos tendem a não ter efeitos de interação significativos. Portanto, quando se tem uma interação entre dois fatores significativa, isto quer dizer que pelo menos um dos efeitos principais correspondente também será significativo [15]. Este princípio é muito utilizado na seleção do modelo ajustado, havendo dois tipos:

hereditariedade forte e fraca. Um modelo com hereditariedade forte tem a propriedade de que se este contém interações entre dois fatores, então também inclui os efeitos principais de ambos, ou seja, se a interação AB está presente no modelo, então os efeitos principais A e B também estão. Por outro lado, uma hereditariedade fraca apenas requer que um dos dois efeitos principais esteja presente no modelo caso a sua interação já se encontre neste [14].

Estes três princípios são comumente usados nas experiências de *screening*.

2.1.2 – Modelo de Regressão Linear

Durante a modelação das experiências, pretende-se determinar a relação entre os fatores (desde relações lineares – x_1, x_2 –, interações – x_1x_2, x_2x_3 – ou quadráticas – x_1x_1, x_2x_2 – por exemplo) e a resposta (y). Para tal, é frequente recorrer a um modelo de regressão linear. Neste caso, considera-se que a resposta y tem sempre associado um erro ε_i com média 0 e variância σ_i^2 (isto é, $\varepsilon \sim N(0, \sigma_i^2)$) que representa uma aleatorização intrínseca ao modelo. Assumindo que x_k são fatores quantitativos, um modelo de efeitos principais para N experiências é expresso da seguinte forma:

$$y_n = \beta_0 + \beta_1 x_{n1} + \dots + \beta_k x_{nk} + \varepsilon_i, \quad n = 1, \dots, N$$

$$y_n = \beta_0 + \sum_{i=1}^k \beta_i x_{ni} + \varepsilon_i \quad (1)$$

y_n é o valor da resposta para a experiência n ; x_{nk} corresponde ao valor de cada fator k para a experiência n e β_i diz respeito aos coeficientes de regressão para cada fator k . Estes coeficientes são os que se pretendem calcular.

Caso se queira obter um modelo de segunda ordem, são incluídos os efeitos quadráticos e os efeitos de interação entre 2 fatores, isto é, para N experiências:

$$y_n = \beta_0 + \sum_{i=1}^k \beta_i x_{ni} + \sum_{i=1}^k \beta_{ii} x_{nii}^2 + \sum_{i=1}^{k-1} \sum_{j=i+1}^k \beta_{ij} x_{ni} x_{nj} + \varepsilon_i \quad n = 1, \dots, N \quad (2)$$

y_n é o valor da resposta para a experiência n ; x_{nk} corresponde aos valores de cada fator k para a experiência n ; x_{nii}^2 diz respeito ao valor do fator quadrático k , enquanto

que $x_{ni}x_{nj}$ corresponde aos efeitos de interação entre o fator i e j , para a experiência n . Neste caso, os parâmetros β_i correspondem aos coeficientes de regressão para os efeitos principais, β_{ii} para os efeitos quadráticos e β_{ij} para os efeitos de interação entre os fatores i e j [16].

Estes parâmetros correspondem à variação da resposta quando x_k varia do nível 0 para o nível 1, isto é, varia-se o fator k de um valor intermédio para um valor máximo. Note-se que o valor de cada parâmetro corresponde a metade do respetivo efeito, uma vez que o efeito corresponde à alteração na resposta quando se varia o fator de -1 para 1 .

Devido aos princípios da esparsidade, hereditariedade e hierarquia, só alguns dos efeitos são significativos, pelo que serão só estes a entrar no modelo definido pela Equação (2). Para determinar os efeitos significativos avalia-se o seu valor de prova (*p-value*). O *p-value* corresponde ao menor nível de significância que levará à rejeição da hipótese nula H_0 [4]. Portanto, para determinar se um efeito é significativo, é testada a hipótese nula tal que:

$$\begin{cases} H_0: \mu = 0 \\ H_1: \mu \neq 0 \end{cases} \quad (3)$$

Quando este tiver um valor inferior a 5% (corresponde a um nível de significância de 5%) assume-se que o efeito é significativo, caso contrário este não afeta a resposta, portanto não entra no modelo.

Outra forma de representar o modelo dos efeitos principais é pela notação matricial [1]:

$$Y = X\beta + \varepsilon \quad (4)$$

Onde $Y = (y_1, \dots, y_N)^T$ é um vetor $N \times 1$ das respostas medidas, $\beta = (\beta_0, \beta_1, \dots, \beta_k)^T$ é um vetor $(k+1) \times 1$ dos coeficientes de regressão (corresponde aos k fatores e à interseção), $\varepsilon = (\varepsilon_1, \varepsilon_2, \dots, \varepsilon_N)^T$ é um vetor $N \times 1$ dos erros e, por fim, X é a matriz do modelo de $N \times (k+1)$ dada por

$$X = \begin{pmatrix} 1 & x_{11} & \cdots & x_{1k} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 1 & x_{N1} & \cdots & x_{Nk} \end{pmatrix} \quad (5)$$

A mesma representação pode ser obtida para o modelo de segunda ordem, onde X terá uma coluna de 1, e as restantes colunas serão para os fatores principais, as interações entre dois fatores e os efeitos quadráticos. Prova-se que os coeficientes de regressão estimados via mínimos quadráticos, são dados por [1]:

$$\hat{\beta} = (X^T X)^{-1} X^T Y \quad (6)$$

2.2 – Metodologias de DoE para *Screening* de fatores

Neste subcapítulo são descritos alguns dos métodos usados na seleção de fatores ativos, isto é, das variáveis que mais afetam a resposta. Para além da apresentação dos métodos, serão referidas algumas das suas vantagens e desvantagens.

2.2.1 – Plano Fatorial Completo

O Plano Fatorial Completo (conhecido por *full factorial design*) apresenta todas as combinações possíveis entre os níveis dos vários fatores [3, 4, 17]. Ao contrário de planos que variam um fator de cada vez (onde se assume que os fatores afetariam a resposta de forma aditiva), um plano fatorial permite determinar quaisquer interações que possam existir entre os vários fatores [3].

Após estabelecer as combinações de fatores a testar, são feitas as respetivas experiências e recolhem-se os resultados (respostas). As experiências deverão ser feitas aleatoriamente, de modo a garantir que as variáveis externas à experiência (não controláveis) influenciam de maneira igual a resposta, como explicado no Subcapítulo 2.1.1. Quando possível, este plano deve incluir réplicas, o que permite utilizar mais informação para estimar a variância do erro da experiência e investigar se o modelo ajustado se adequa ao observado.

Após obter os dados da resposta, calculam-se os efeitos principais, interações e efeitos quadráticos (só podem ser determinados quando são adicionados pontos centrais à experiência).

Como referido anteriormente, os níveis de cada fator são alterados (de alto para baixo) consoante ditado por este plano e, de seguida, os efeitos que cada combinação têm na resposta são calculados. Cada fator é representado por uma letra maiúscula (A, B, C, etc.). Usa-se ainda a nomenclatura compacta (notação com letra minúscula) para representar cada tratamento (combinações dos vários níveis): se aparecer uma destas letras, então o respetivo fator está no seu nível alto; se a letra estiver ausente, o fator correspondente está no seu nível baixo e quando todos os fatores estão nos seus níveis baixos, a experiência é representada por “ (1) ”. Exemplo: (1) – todos os fatores estão no seu nível baixo; a – o fator A está no nível alto e o fator B está no nível baixo; b – o fator B está no nível alto e o fator A está no nível baixo; ab – os fatores A e B estão ambos no nível alto.

2.2.1.1 – Plano a 2 níveis

As combinações obtidas pelo plano fatorial completo são para todos os 2 níveis de cada fator, totalizando 2^k experiências. Relembrando, um nível corresponde ao valor que o fator pode contemplar e que será alterado consoante o que o tratamento indicar. Na Tabela 4 é apresentada uma combinação completa de 3 fatores (temperatura, concentração e catalisador), obtendo um número total de experiências de $2^3 = 8$. Nesta tabela é também apresentada a resposta, que neste caso corresponde ao rendimento do processo. Os dois primeiros fatores são quantitativos e dizem respeito à temperatura (160 ou 180 °C, correspondendo aos níveis - 1 e + 1) e à concentração (20 ou 40%, correspondendo aos níveis - 1 e + 1). O último fator é qualitativo e corresponde a um catalisador (A ou B).

Tabela 4 – Plano fatorial completo a 2 níveis, adaptado de Box, G. E. P. *et al* (2005) [3].

Ensaio	T (°C)	C (%)	K (A ou B)	Rendimento (%)
1	-	-	-	60
2	-	+	-	72
3	-	+	+	54
4	-	-	+	68
5	+	-	-	52
6	+	-	+	83
7	+	+	-	45
8	+	+	+	80

A forma mais simplificada de calcular todos os efeitos (principais, interação entre dois e três fatores) corresponde ao cálculo dos contrastes. Para tal, usa-se a tabela de sinais apresentada na Tabela 5. Nesta tabela, a segunda coluna corresponde à interseção (média de todas as observações), as três colunas seguintes correspondem à matriz do modelo e as restantes correspondem às interações (que são a multiplicação das respetivas colunas).

Tabela 5 – Contrastes para um plano fatorial completo 2^3 .

Ensaio	Interseção	T	C	K	TC	TK	CK	TCK	Rendimento
1	+	-	-	-	+	+	+	-	60
2	+	+	-	-	-	-	+	+	72
3	+	-	+	-	-	+	-	+	54
4	+	+	+	-	+	-	-	-	68
5	+	-	-	+	+	-	-	+	52
6	+	+	-	+	-	+	-	-	83
7	+	-	+	+	-	-	+	-	45
8	+	+	+	+	+	+	+	+	80

Para calcular o contraste de cada fator basta multiplicar a coluna respetiva ao fator pela coluna da resposta. Por exemplo, para a coluna de T multiplica-se (- + - + - + - +) por (60 72 54 68 52 83 45 80) para dar T = (- 60 + 72 - 54 + 68 - 52 + 83 - 45 + 80). O efeito será:

$$Efeito_i = \frac{\text{contraste}}{n2^{k-1}}, \text{ para } n \text{ réplicas} \quad (7)$$

Para os restantes efeitos usa-se o mesmo raciocínio, obtendo-se a Tabela 6. A determinação de um efeito também pode ser feita através da diferença entre o total de todas as observações no nível superior e nível inferior do respetivo fator. A forma mais usual de determinar os efeitos é pela Equação (7), no entanto, o valor que aparece no modelo será dividido por dois (pois este corresponde ao valor do coeficiente). Neste caso existem $2^k - 1$ graus de liberdade para estimar os efeitos, o que permite estimar todos os efeitos possíveis.

É importante agora determinar que efeitos realmente afetam a resposta. Uma regra pouco rígida diz que os efeitos que são duas ou três vezes maiores que o desvio padrão são significativos. Outra solução mais precisa usa o rácio $t = \frac{\text{efeito}}{SE_{\text{efeito}}}$ (SE_{efeito} corresponde ao desvio padrão do efeito) com distribuição *t*-Student com k graus de liberdade (neste exemplo, são 8 graus de liberdade). Portanto, um valor significativo de t a um nível $\alpha = 5\% = 0.05$ é $> 2,3$, isto é, $\Pr(|t| > 2,3) = 0,05$. Na Tabela 6 é possível observar que os efeitos importantes serão T, C e TK. Um valor comum para o nível de significância é $\alpha = 5\%$, mas este valor depende da confiança que o utilizador pretende na estimação dos efeitos.

Tabela 6 – Efeitos calculados pela equação (6) e respetivos desvios padrão, adaptado de Box, G. E. P. *et al* (2005) [3].

Efeito com desvio padrão	
Efeitos principais	
Temperatura, T	23,0 ± 1,4
Concentração, C	-5,0 ± 1,4
Catalisador, K	1,5 ± 1,4
Interações entre dois fatores	
T x C	1,5 ± 1,4
T x K	10,0 ± 1,4
C x K	0,0 ± 1,4
Interação entre três fatores	
T x C x K	0,5 ± 1,4

Muitas vezes, é impossível realizar todas as experiências que um plano fatorial 2^k indica sobre condições homogêneas. Por exemplo, pode não ser possível aplicar todas as combinações usando o mesmo material. Quando este problema aparece, é possível utilizar a blocagem, que permite eliminar variação indesejada que poderá causar condições não constantes ou homogêneas. Quando há réplicas e poucas variáveis, é possível realizar todas as experiências de uma réplica num bloco (cada bloco corresponde a uma réplica diferente). Por exemplo, uma experiência fatorial 2^3 com duas réplicas pode ser realizada em dois blocos. No entanto, nem sempre existem réplicas com todas as experiências [4]. Nesse caso, pode recorrer-se à confusão de efeitos que faz com que algumas interações sejam indistinguíveis ou confundidas nos blocos. Assim, qualquer diferença entre blocos será cancelada, pois as interações usadas para a confusão serão as de maior ordem uma vez que estas não devem ser significativas para a resposta. Para mais informações consultar [1, 4]. Na Tabela 7 são apresentadas algumas vantagens e desvantagens que se podem ter no uso destes planos.

Tabela 7 – Vantagens e desvantagens dos planos fatoriais completos a 2 níveis.

Vantagem [3]	Desvantagem
Requerem relativamente poucas experiências por cada fator estudado	À medida que o número de fatores aumenta, o número de experiências aumenta com uma potência de 2, o que se pode tornar dispendioso e difícil de concretizar
Estes planos podem ser aumentados, isto é, podem ser realizadas mais experiências quando necessário	Quando já se tem um elevado número de fatores, torna-se difícil realizar mais experiências devido a custos e por vezes há falta de material
Permitem determinar todos os efeitos principais e efeitos de interação entre fatores	Caso se queira saber a curvatura do modelo ajustado, isto é, os efeitos quadráticos, é necessário fazer mais experiências e nem sempre é comportável em termos de orçamento para o plano em questão
É fácil de observar e interpretar os dados obtidos, usando gráficos	
No caso de os fatores serem quantitativos, apesar de não se explorar uma maior região do fator, já se torna uma grande aproximação a dois níveis e permite entender qual a direção a tomar nas próximas experiências	
Fazem parte do plano fatorial fracionado, pois para este último são usadas frações do plano fatorial completo a dois níveis	

2.2.1.2 – Plano a 3 níveis

Os planos fatoriais completos a dois níveis permitem determinar efeitos principais e interações de qualquer ordem. No entanto, quando se pretende determinar efeitos quadráticos, é usual acrescentar pontos centrais a estes planos, o que muitas vezes é

suficiente pois estes efeitos são muito pequenos quando comparados com os principais. Contudo, quando os efeitos quadráticos são relativamente importantes, estes planos a dois níveis não chegam para os determinar, pelo que surgem os planos fatoriais completos a 3 níveis (existem a qualquer nível, mas estes dois são os mais comuns na indústria).

Os Planos Fatoriais de três níveis correspondem a uma combinação de todos os fatores, podendo ter um número total de 3^k experiências, onde k é o número total de fatores. Neste caso, cada fator tem 3 níveis, um mínimo, outro intermédio e um máximo. A Tabela 8 mostra um exemplo de um plano fatorial completo a 3 níveis.

Tabela 8 – Exemplo de um plano fatorial completo 3^2 .

Ensaio	A	B
1	-	-
2	-	0
3	-	+
4	0	-
5	0	0
6	0	+
7	+	-
8	+	0
9	+	+

Estes planos permitem estudar a possível curvatura da resposta, ou seja, determinar os efeitos quadráticos, algo que no plano fatorial completo a dois níveis só seria possível quando se acrescentam pontos centrais, o que implicaria a realização de mais experiências.

A grande desvantagem destes planos é o número de experiências subir exponencialmente com o aumento do número de fatores, o que não é ideal pois grande parte do orçamento é esgotado apenas na seleção de fatores ativos e nem sempre há recursos suficientes para a execução de todas as experiências. Deste modo, a fim de reduzir o número de experiências, é possível fazer uma fração do plano fatorial completo, ficando assim um plano fatorial fracionado com 3 níveis. Isto acarreta a desvantagem da

ocorrência de confusão (existência de correlação igual a 1) e correlação (podendo ter valores entre zero e um) entre efeitos, como será descrito no Capítulo 2.2.2.

Dois planos bastante conhecidos na área do planeamento de experiências com 3 níveis são o *Central Composite Design* (CCD) e o *Box-Behnken Design* (BBD).

Central Composite Designs

Os *central composite designs* (Box e Wilson, 1951) são dos planos mais utilizados na determinação de modelos quadráticos. Estes são compostos por três conjuntos de pontos [1] [3] [18].

- (i) Plano fatorial completo 2^k , ou uma fração, com valores de $x_i = \pm 1, i = 1, \dots, k$. Estes pontos são designados por *cube points*, havendo um total de n_c pontos.
- (ii) n_c pontos centrais: $x_i = 0$ para $i = 1, \dots, k$.
- (iii) Conjunto de *star* ou *axial points*, formando um total de $n_a = 2k$ pontos. Cada duas experiências tem o formato: $(\pm\alpha, 0, 0, \dots), (0, \pm\alpha, 0, 0 \dots) \dots$

Na Figura 2 (a) encontra-se o formato que um plano fatorial completo 2^3 com um ponto central; (b) apresenta um conjunto de *star points* com outro ponto central e, por último, (c) apresenta o *central composite design*.

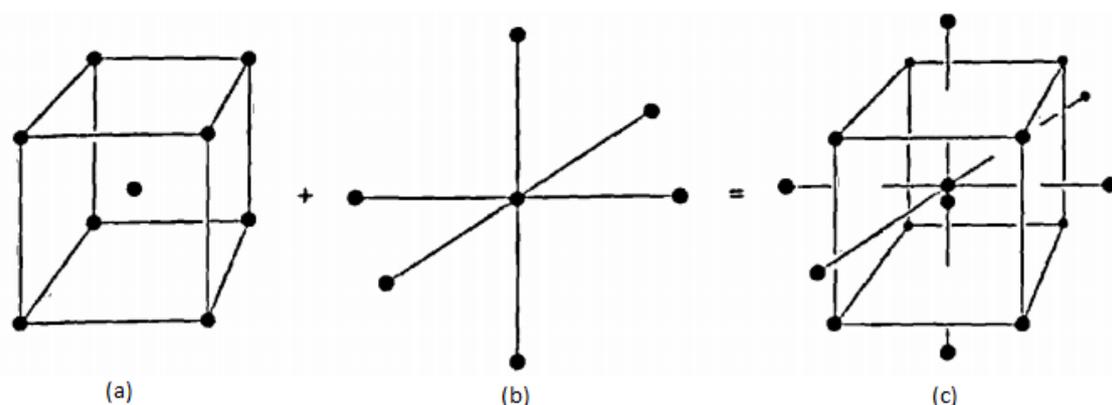


Figura 2 – (a) plano 2^3 com um ponto central; (b) *star points* (c) *central composite design*, adaptado de Box, G.E.P. *et al* (2005) [3].

Dependendo do número de fatores, k , e de quantas experiências se pretende realizar, é escolhido o melhor plano fatorial, podendo ser completo ou fracionado. Para além disso, são determinados quantos pontos centrais se pretende usar, n_c , e, por fim, é determinado o valor de α . Este encontra-se entre 1 e \sqrt{k} . Considerando o caso extremo em que $\alpha = 1$, os *star points* situam-se nas faces de um cubo, passando o plano a designar-se por *face center cube*. Esta escolha tem a vantagem de este plano só requerer três níveis (± 1 ou 0), pelo que se torna mais favorável para quando existe limitação nos valores que cada fator pode assumir.

Para a situação em que $\alpha = \sqrt{k}$, os pontos irão cair numa região esférica, em conjunto com os pontos do plano fatorial escolhido. Neste caso, a eficiência é aumentada, contudo, com o aumento do número de fatores, k , esta região ficará maior e os *star points* estão muito longe dos pontos centrais e poderá não haver informação suficiente para a determinação do modelo quadrático com eficiência.

A escolha do número de pontos centrais está relacionada com o valor de α . Para $\alpha = \sqrt{k}$, é necessário pelo menos um ponto central para que se possam estimar os parâmetros do modelo quadrático. Quando α é próximo de 1, um ou dois pontos centrais deverão ser suficientes para a estimativa dos parâmetros do modelo. Entre estes extremos, devem ser considerados dois a quatro pontos centrais [1].

Box – Behnken Designs

Box e Behnken (1960) desenvolveram uma família de planos de três níveis que permitem estimar modelos quadráticos através da combinação de planos fatoriais com dois níveis com planos incompletos com blocagem (*incomplete block designs*). Por exemplo, para um plano com três fatores é, inicialmente, construído um *incomplete block design* com três tratamentos (correspondendo a um fator cada um) e três blocos, como se pode observar na Tabela 9.

Tabela 9 – *Incomplete Block Design* para $k = 3$ fatores, adaptado de Wu, C.F. *et al* (2009) [1].

Tratamento			
Bloco	1	2	3
1	X	X	
2	X		X
3		X	X

Para cada bloco, substitui-se o X por cada coluna obtida por um plano fatorial completo de 2^2 (Tabela 10) e, onde não se encontra X, acrescentam-se zeros.

Tabela 10 – Plano fatorial completo de 2^2 .

x_1	x_2
- 1	- 1
- 1	+ 1
+ 1	- 1
+ 1	+ 1

A construção do *Box-Behnken design* é realizada desta forma, adicionando-se pontos centrais, caso seja necessário. O resultado obtido para este exemplo encontra-se na Tabela 11.

Tabela 11 – *Box-Behnken design* para 3 fatores, com um ponto central, adaptado de Wu, C.F. *et al* (2009) [1].

x_1	x_2	x_3
- 1	- 1	0
- 1	+ 1	0
+ 1	- 1	0
+ 1	+ 1	0
- 1	0	- 1
- 1	0	+ 1
+ 1	0	- 1
+ 1	0	+ 1
0	- 1	- 1
0	- 1	+ 1
0	+ 1	- 1
0	+ 1	+ 1
0	0	0

À medida que o número de fatores aumenta, o número de experiências dos planos fatoriais completos a dois níveis aumenta consideravelmente, pelo que, quando possível, usam-se planos fatoriais fracionados também a dois níveis (estes serão descritos no Capítulo 2.2.2).

Também nestes planos é possível fazer blocagem quando as experiências não podem ser realizadas em condições homogêneas, para mais informações consultar [11].

Uma grande vantagem destes planos é o facto de só requerer três níveis para cada fator. Em contraste, os *central composite designs* (CCD) requerem cinco níveis para cada fator, com a exceção para o valor de $\alpha = 1$, onde os níveis serão três para cada fator [1].

2.2.2 – Plano Fatorial Fracionado a 2 níveis

À medida que o número de fatores a estudar aumenta, o número de experiências nos planos fatoriais completos aumenta consideravelmente. Contudo, é sensato assumir que interações de ordem elevada são insignificantes e que, normalmente, só se está interessado em estudar efeitos principais e interações de baixa ordem. Deste modo, Finney [8] propôs em 1943 fazer uma fração das experiências determinadas no plano fatorial completo (designado por Plano Fatorial Fracionado, em inglês *fractional factorial design*), onde determinadas interações são assumidas como insignificantes e, como tal, apenas é utilizado um subconjunto de todos os tratamentos possíveis neste plano.

Neste tipo de planos, é usada uma fração de 2^{-p} com p geradores dos fatoriais completos, apresentando todas as 2^{k-p} combinações (k fatores e p geradores), com um total de $2^{k-p} - 1$ graus de liberdade para calcular os efeitos, pelo que é evidente que as medidas destes efeitos não podem ser independentes.

Para k fatores, os primeiros $k - p$ correspondem a combinações de um plano fatorial completo (2^{k-p}) e os restantes fatores, correspondentes a p , serão uma combinação de alguns dos $k - p$ fatores já obtidos [1].

Considerando uma experiência de 2^{5-1} , os primeiros $k - p = 5 - 1 = 4$ fatores são obtidos por um plano fatorial completo 2^4 e, o último fator, $p = 1$, irá corresponder ao fator E e será uma combinação de BCD, para este caso. Como a última coluna do plano será usada para estimar o efeito E, esta também será usada para estimar o efeito BCD,

pelo que E será confundido com BCD, podendo escrever-se a seguinte igualdade: $E = BCD$ ou $I = BCDE$, onde I corresponde a uma coluna de 1's. A

Tabela 12 apresenta todas as combinações para o plano em questão. Neste caso, os graus de liberdade existentes para calcular os efeitos são $2^{5-1} - 1 = 15$ e não $2^5 = 32$, pelo que se observa que o efeito E não é o único a ser confundido com um efeito de interação de ordem elevada.

Para saber que efeitos se confundem, multiplica-se o efeito pela igualdade $I = BCDE$, tendo em conta que $A^2 = 1 = B^2 \dots$ e que $AI = A$. Portanto, $BI = B(BCDE) \rightarrow B = CDE$. Na Tabela 13 é apresentada a estrutura de confusão para o plano 2^{5-1} , que indica os efeitos que se confundem entre si.

Tabela 12 – Exemplo de um plano 2^{5-1} .

Ensaio	Fatores				
	A	B	C	D	E = BCD
1	-	-	-	-	-
2	+	-	-	-	-
3	-	+	-	-	+
4	+	+	-	-	+
5	-	-	+	-	+
6	+	-	+	-	+
7	-	+	+	-	-
8	-	+	+	-	-
9	-	-	-	+	+
10	+	-	-	+	+
11	-	+	-	+	-
12	+	+	-	+	-
13	-	-	+	+	-
14	+	-	+	+	-
15	-	+	+	+	+
16	+	+	+	+	+

Tabela 13 – Estrutura de confusão de um plano fatorial fracionado de 2^{5-1} .

B = CDE	C = BDE	D = BCE	E = BCD
CB = DE	BD = CE	BE = CD	
A = BCDEA	AB = CDEA	AC = BDEA	AD = BCEA
AE = BCDA	ABC = DEA	ABD = CEA	ABE = CDA

Note-se que quando se calcula o efeito A, por exemplo, não se está só a estimar este efeito, mas sim a soma do efeito A com o efeito BCDEA, apesar de este último, pelo princípio da esparsidade, ser insignificante. A informação da Tabela 13 e $I = BCDE$ (a interseção I é confundida com o efeito BCDE) contém toda a informação necessária para estimar todos os 31 efeitos.

Contudo, pode assumir-se que os efeitos principais A, B, C, D e E são estimáveis uma vez que o efeito que se confunde com cada um deles poderá ser considerado insignificante, isto é, $B = CDE \cong B$.

No que diz respeito a interações que se confundem com outras interações da mesma ordem, não é possível saber qual destas poderá ser mais significativa, pelo que poderá ser necessário efetuar mais experiências para desvendar esta ambiguidade. No caso das interações que se confundem com outras de ordem diferente, pode assumir-se que as que poderão ser mais significativas serão as de menor ordem (princípio da esparsidade).

Para o cálculo do efeito usa-se a seguinte equação:

$$Efeito_i = \frac{\text{contraste}}{n2^{k-p-1}}, \text{ para } n \text{ réplicas} \quad (8)$$

Estes pressupostos só permitem saber a confusão que existe entre os efeitos e calculá-los, ficando por determinar quais afetarão a resposta.

O tamanho da “palavra” que se iguala a I (que é a interação que se confunde com a interseção), corresponde à resolução do plano que, neste caso específico, corresponde à resolução IV (indicada abaixo). A resolução é a capacidade de separar os efeitos principais das interações de baixa ordem. Um plano é de resolução R se o efeito de ordem

O não for confundido com outros efeitos de ordem inferior a $R - O$. Por exemplo, um plano de resolução IV, os efeitos principais ($O = 1$) não se confundem com efeitos de ordem inferior a $4 - 1 = 3$, isto é, não se confundem com efeitos de primeira e segunda ordem, como se pode observar na Tabela 13.

A lista seguinte indica algumas das resoluções mais utilizadas [1].

- Resolução III: os efeitos principais não são confundidos com outros efeitos principais, mas são confundidos com interações de segunda ordem; interações de segunda ordem também confundem-se entre si;

- Resolução IV: os efeitos principais não se confundem com outros efeitos principais nem com interações de segunda ordem; interações de segunda ordem confundem-se umas com as outras;

- Resolução V: efeitos principais não se confundem uns com os outros, nem com interações de segunda ou terceira ordem; interações de segunda ordem não se confundem umas com as outras; efeitos de interação de terceira ordem confundem-se umas com as outras e com interações entre dois fatores;

- Resolução VI: efeitos principais não se confundem com quaisquer efeitos de ordem inferior ou igual a 4; interações entre dois fatores não se confundem com efeitos de ordem inferior ou igual a 3; interações entre três fatores ainda se confundem umas com as outras, mas não se confundem com interações de segunda ordem.

O tratamento destes planos é exatamente o mesmo que é usado para os fatoriais completos, tendo em conta que não se conseguem determinar todos os efeitos, mas que os efeitos determinados são, na sua grande maioria, os mais significativos para o modelo a ajustar.

Uma grande vantagem destes planos é o facto de se poderem realizar menos experiências para determinar os efeitos que realmente influenciam a resposta. No entanto, estes não permitem determinar com certeza quais os efeitos de interação (no caso de resolução IV) que são significativos para a resposta, uma vez que se confundem uns com os outros. Portanto, muitas vezes é necessário realizar mais experiências para resolver a ambiguidade entre alguns dos efeitos, bem como no caso da determinação da

curvatura da resposta, uma vez que estes planos não estão desenhados para determinar efeitos quadráticos.

Para exemplos de planos fatoriais fracionados (quer a dois, quer a três níveis) com ou sem a aplicação de blocagem, consultar [3, 18].

2.2.3 – Plackett – Burman Designs

Em Londres, durante a Segunda Guerra Mundial, existiam armas antiaéreas que disparavam constantemente de modo a abater aviões inimigos. No entanto, para além de fazerem mais barulho com o disparo das bombas, estas dificilmente acertavam num avião inimigo. Os planos apresentados de seguida (*Plackett – Burman Designs*) foram desenvolvidos para ajudar a desenvolver um detonador de proximidade, onde bastava que um projétil passasse perto de um avião inimigo para que este fosse destruído. De forma a desenvolver esta arma em tempo útil, era necessário selecionar e estudar um grande número de variáveis o mais rápido possível. Apesar dos planos fatoriais fracionados serem usados para a seleção de variáveis ativas, o número de experiências aumenta com a potência de 2 (4, 8, 16, 32, 64, 128 ...), observando-se que as lacunas entre estes números fica cada vez maior à medida que o número de fatores aumenta. Assim, foi necessário desenvolver planos que preenchessem estas lacunas. Em 1946, Plackett e Burman [3] desenvolveram uma nova classe de planos a dois níveis. Os planos foram obtidos para qualquer n múltiplo de 4, em particular, foram obtidos planos para $n = 12, 20, 24, 28, 36, \dots$

Para obter estes planos define-se uma matriz \mathbf{X} de ± 1 com k fatores e N experiências e uma matriz $\mathbf{D} = (\mathbf{1}, \mathbf{X})$ (esta matriz \mathbf{D} corresponde a uma coluna de uns concatenada com a matriz \mathbf{X}), e o plano obtém-se de tal forma que $\mathbf{D}'\mathbf{D}$ seja diagonal, sendo usado um algoritmo para determinar o plano [18].

Na Tabela 14 é possível observar um exemplo de um plano com 12 experiências.

Tabela 14 – Exemplo de um plano Plackett – Burman, adaptado de Box, G.E.P. *et al* (2005) [3].

Experiência	Fator										
	A	B	C	D	E	F	G	H	J	K	L
1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1
2	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1
3	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1
4	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1
5	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1
6	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1
7	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1
8	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1
9	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1
10	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1
11	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1
12	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1

2.2.4 – Definitive Screening Design

Em 2011, Jones e Nachtsheim [9] propuseram um novo plano para Planeamento Estatístico de Experiências que tem três níveis, para fatores quantitativos. Estes podem ser usados na seleção de fatores ativos (*screening*) e ainda permitem determinar efeitos quadráticos. Mais tarde, em 2013, Jones e Nachtsheim [10] melhoraram estes planos, acrescentando fatores qualitativos.

Nos dois próximos capítulos, estes planos são explicados, bem como algumas vantagens e desvantagens conhecidas.

2.2.4.1 – Fatores quantitativos

Definitive Screening Designs foram desenvolvidos em 2011 para fatores quantitativos, levando a um número total de experiências $2k + 1$. A estrutura geral encontra-se na Tabela 15. Usa-se $x_{i,j}$ para indicar o valor do fator j na experiência i . Cada experiência tem exatamente um fator no nível intermédio, 0, e os restantes nos valores

extremos. Os valores ± 1 nas experiências ímpares são determinados usando métodos numéricos [19] de modo a estabelecer planos ortogonais para os efeitos principais, isto é, que cada efeito principal estimado não é afetado pela magnitude e sinal dos outros efeitos; as experiências pares resultam numa operação em espelho da experiência anterior às mesmas, isto é, se a experiência 1 com 4 fatores tem o tratamento (0 + - +), então a experiência 2 terá o tratamento (0 - + -). Para além disso, há também uma experiência com todos os fatores no nível intermédio.

Tabela 15 – Estrutura geral de um plano DSD para k fatores quantitativos, adaptado de Jones, B. e Nachtsheim (2011) [9].

Par (<i>foldover</i>)	Ensaio (i)	Níveis dos fatores				
		$x_{i,1}$	$x_{i,2}$	$x_{i,3}$...	$x_{i,k}$
1	1	0	± 1	± 1	...	± 1
	2	0	∓ 1	∓ 1	...	∓ 1
2	3	± 1	0	± 1	...	± 1
	4	∓ 1	0	∓ 1	...	∓ 1
3	5	± 1	± 1	0	...	± 1
	6	∓ 1	∓ 1	0	...	∓ 1
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
k	2k - 1	± 1	± 1	± 1	...	0
	2k	∓ 1	∓ 1	∓ 1	...	0
Ponto central	2k + 1	0	0	0	...	0

Estes planos apresentam as seguintes propriedades [6]:

- Só são realizadas $2k + 1$ experiências (duas vezes o número de fatores mais uma);
- Ao contrário do Plano Fatorial Fracionado com resolução III, o DSD permite calcular todos os efeitos principais e estes são independentes dos efeitos de interação entre dois fatores. Como resultado, a estimativa dos efeitos principais não é confundida com quaisquer interações entre dois fatores ativos;
- Ao contrário de planos com resolução IV, as interações entre dois fatores não são completamente confundidas com outras interações de segunda ordem, apesar de poderem ser correlacionadas;

- No DSD, todos os efeitos quadráticos podem ser estimados em modelos compostos por termos de efeitos lineares e quadráticos, o que não acontece em planos de resolução III, IV e V quando se adicionam pontos centrais;
- Os efeitos quadráticos são ortogonais com os efeitos principais e não são completamente confundidos com efeitos de interação (apesar de poderem ser correlacionados). No entanto, à medida que o número de fatores aumenta, esta propriedade nem sempre se verifica;
- Com 6 a 16 fatores, o DSD permite estimar todos os modelos quadráticos envolvendo 3 ou menos fatores com níveis bastante elevados de eficiência estatística;
- Semelhantemente, com 17 a 20 fatores, o DSD permite estimar eficientemente todos os possíveis modelos de segunda ordem (efeitos principais, de interação e quadráticos) envolvendo 4 ou menos fatores;
- Com 21 a (pelo menos) 32 fatores, o DSD permite estimar de forma eficiente modelos quadráticos completos para 5 ou menos fatores.

São os primeiros cinco pontos apresentados em cima que permitem usar o termo “*Definitive Screening*”.

Em 2012, usaram-se matrizes de conferência [20] para construir DSD ortogonais para um número total de fatores par e superior a 4. Uma matriz \mathbf{C} $k \times k$ diz-se matriz de conferência quando satisfazer a igualdade $\mathbf{C}'\mathbf{C} = (k - 1) I_{k \times k}$ com $\mathbf{C}_{ii} = 0$ para $i = 1, 2, \dots, k$ e $\mathbf{C}_{ij} \in \{-1, 1\}$, para $i \neq j, i, j = 1, 2, \dots, k$. O plano de *Definitive Screening Design*, \mathbf{D} , será construído da seguinte forma

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} \mathbf{C} \\ -\mathbf{C} \\ \mathbf{0} \end{pmatrix}, \text{ onde } \mathbf{0} \text{ é um vetor de zeros } 1 \times k \quad (9)$$

Usando matrizes de conferência são obtidos os mesmos planos que anteriormente descritos para k par, tendo as mesmas propriedades que eles:

- Estima todos os efeitos principais e efeitos quadráticos;
- Todos os efeitos principais são ortogonais a todos os efeitos quadráticos;

- Todos os efeitos principais são ortogonais a todas as interações entre dois fatores.

É de salientar que usando estas matrizes para calcular DSD, todos os efeitos principais são sempre ortogonais a todos os efeitos quadráticos.

O método proposto, como referido, só funciona para um número par de fatores, obtendo um número total de $2k + 1$ experiências. Quando k for ímpar, é sugerido eliminar a última coluna de uma matriz de conferência de $(k + 1) \times (k + 1)$. Contudo, usando esta sugestão há que ter em conta que vão existir mais duas experiências do que o necessário, ou seja, haverão $2k + 1 + 2$ experiências e deixa de ser um *definitive design* por definição.

Uma desvantagem do DSD obtido em 2011 é o facto de só ser possível utilizar fatores quantitativos.

2.2.4.2 – Fatores quantitativos e qualitativos

Em 2011, Jones e Nachtsheim desenvolveram planos que permitem estimar até aos efeitos quadráticos, mas depararam-se logo com um problema: não era possível usar fatores qualitativos (ou categóricos) a 2 níveis. Em 2013 conseguiram encontrar uma solução, introduzindo estes fatores e usando matrizes de conferência para obter os planos.

Atualmente, estes planos podem indicar as combinações de 3 níveis de fatores quantitativos com adição de combinações de 2 níveis de fatores qualitativos. Para um número total de fatores superior a 4, o número total de experiências é $2k + 2$, para k par e $2k + 4$, para k ímpar, enquanto que para um número total de fatores inferior ou igual a 4, o número de experiências é 13, pois só é possível obter matrizes de conferência usando uma já existente com 6 fatores. A Tabela 16 apresenta um exemplo de DSD.

Este tipo de plano que combina tratamentos com 3 níveis e tratamentos com 2 níveis é designado por *mixed – level screening designs*. Abordagens semelhantes a estas podem ser encontradas em [21, 22].

Ainda é possível realizar experiências em blocos [23] para DSD com ou sem fatores categóricos a dois níveis, para além de que o tamanho dos blocos não necessita de ser igual, isto é, o número de experiências em cada bloco poderá não ser o mesmo.

Para construir um plano com blocos é necessário ter em conta que cada par de experiências deve estar no mesmo bloco, por exemplo, o par (0 + + +) (0 – – –) terá de estar no bloco 1.

Tabela 16 – Exemplo de um Plano DSD com 4 fatores contínuos e 2 fatores categóricos, adaptado de Jones, B. e Nachtsheim (2013) [10].

Ensaio	Fatores Contínuo				Fatores categóricos	
1	0	+	+	+	+	+
2	0	-	-	-	-	-
3	+	0	+	-	-	+
4	-	0	-	+	+	-
5	+	+	0	+	-	-
6	-	-	0	-	+	+
7	+	-	+	0	+	-
8	-	+	-	0	-	+
9	+	-	-	+	+	+
10	-	+	+	-	-	-
11	+	+	-	-	+	+
12	-	-	+	+	-	-
13	0	0	0	0	-	-
14	0	0	0	0	+	+

2.2.5 – D-Optimal Designs

Quando se tem um orçamento limitado para um elevado número de fatores, ou mesmo com poucos fatores, mas pouco tempo para executar as experiências, ou até mesmo quando não é possível realizar todas as experiências indicadas por um plano

fatorial fracionado, é necessário ter planos que se adequem a estas situações [12]. Os *D-Optimal designs* são construídos de forma a minimizar a variância dos coeficientes estimados. Ao minimizar a variância, os *d-optimal designs* maximizam o determinante $\mathbf{X}'\mathbf{X}$, onde \mathbf{X} corresponde à matriz do modelo, isto é, corresponde aos efeitos principais, interações ou efeitos quadráticos que entrarão no modelo.

Os *d-optimal designs* são gerados consoante o modelo que se pretende ajustar, ou seja, existem diferentes planos caso a relação entre a resposta e as variáveis seja linear, quadrática, etc.

Estes planos são desenvolvidos através da aplicação de algoritmos específicos [13, 19, 24] que vão introduzindo e retirando pontos ao plano e calculando o determinante de $\mathbf{X}'\mathbf{X}$ até que este seja maximizado.

Jones e Nachtsheim aplicaram um algoritmo (*coordinate exchange algorithm* [19]) de forma a obter uma combinação de valores ± 1 , através da maximização do determinante $|\mathbf{X}'\mathbf{X}|$ da matriz de informação para modelos compostos por todos os efeitos lineares e quadráticos, de forma a obter outra classe de planos ótimos. Contudo, a nova classe que criaram ficou conhecida como *Definitive screening designs* [23].

Capítulo 3

Casos de Estudo

Com esta tese pretende determinar-se em que condições cada tipo de plano é mais adequado, assim como averiguar a veracidade dos seus pressupostos, identificando as suas vantagens e desvantagens. Para tal, recorreu-se à simulação de processos com três tipos de estruturas diferentes: (i) processo linear, onde só efeitos principais é que são importantes para a resposta; (ii) processo linear com interações, onde são significativos efeitos principais e efeitos de interação entre dois fatores diferentes; (iii) processo quadrático, com efeitos principais, efeitos de interação entre dois fatores diferentes e efeitos quadráticos (interação entre o mesmo fator). Ao longo dos casos de estudo, um processo corresponde a uma lei que explica um determinado fenómeno real. Estes são os que irão ser usados para posterior comparação com os modelos estimados. Um modelo diz respeito à lei que é estimada tendo em conta a resposta obtida.

A combinação das experiências a simular será fornecida pelas seguintes metodologias: *Plackett – Burman designs*, Plano Fatorial Completo a dois níveis, Plano Fatorial Fracionado a dois níveis de resolução III e IV, *Definitive Screening designs*, *Central Composite designs*, *Box – Behnken designs* e *D – Optimal Designs*. Na Tabela 17 está indicado um resumo do número total de experiências que cada um dos planos apresenta para a simulação das experiências com 5 e 10 fatores e a quais destes foram acrescentados dois pontos centrais. Em todos os planos, exceto o *D-optimal*, o número de experiências não varia de processo para processo. Nesta tabela são apresentadas o número de experiências dependendo do processo para o plano *D-optimal*.

Após a simulação das experiências, pretende-se ajustar os dados e estimar os modelos de forma a poderem ser comparados com os processos (reais), isto é, se escolhem corretamente os efeitos ativos e respetivas magnitudes. Nos subcapítulos

seguintes são explicados todos os detalhes da escolha dos processos, simulação das experiências e estimativa dos modelos.

Tabela 17 – Número mínimo de experiências para cada plano, para 5 e 10 fatores.

Ferramenta	Número de Fatores	
	m = 5	m = 10
<i>Box – Behnken Design</i> (BBD) com dois pontos centrais	42	162
<i>Central Composite Design</i> (CCD) com dois pontos centrais	28	150
D-Optimal	Principal 12 Interações: 20 Quadrático: 28	Principal: 16 Interações: 60 Quadrático: 72
<i>Definitive Screening Design</i> (DSD)	13	21
Plano Fatorial Fracionado de resolução 3, com 2 pontos centrais (FFD [III] (2 cp))	10	18
Plano Fatorial Fracionado de resolução 4, com 2 pontos centrais (FFD [IV] (2 cp))	18	34
Plano Fatorial Completo, com 2 pontos centrais	34	1026
<i>Plackett – Burman Design</i> , com 2 pontos centrais	14	22

3.1 – Escolha do processo real

Relembrando, qualquer processo (linear, linear e interações ou quadrático) tem a estrutura indicada na Equação (10). Nesta representação, Y corresponde ao vetor resposta, β corresponde aos coeficientes de regressão com k fatores, X corresponde à matriz do plano com k fatores por N experiências e, por último, $\varepsilon \sim N(0, \sigma_i^2)$ diz respeito ao erro:

$$Y = X\beta + \varepsilon \quad (10)$$

Dada a estrutura dos processos, é necessário escolher quantas variáveis irão entrar nos processos, pelo que se escolheu 5 fatores ou 10 fatores. Esta escolha foi realizada

seguinte o que é usual encontrar na literatura. Além disso, escolhem-se dois valores diferentes de fatores de forma a determinar se as metodologias conseguem estimar os modelos com muitos ou poucos fatores.

De seguida, é escolhida a magnitude para os coeficientes tendo em conta o efeito que representa, isto é, se o coeficiente pertencer a um efeito principal, a sua magnitude terá um valor, se este pertencer a um efeito de interação entre dois fatores diferentes, o valor será outro e o mesmo para o caso de ser um efeito quadrático. Antes de mais é necessário lembrar que os efeitos principais são os mais importantes num modelo, pelo que terão maior magnitude que os restantes, como explicado pelo princípio da hierarquia no Capítulo 2.1.1. Para além disso, os efeitos de interação são mais frequentes que os efeitos quadráticos, pelo que terão uma magnitude superior aos quadráticos, mas inferior aos principais. Neste estudo, os efeitos do mesmo tipo (todos os principais, ou todos os de interação, ou quadráticos) têm magnitudes diferentes.

Tendo isto em conta, os efeitos principais podem ser ± 2 , ± 4 ou ± 6 ; os efeitos de interação entre dois fatores podem ser ± 2 ou ± 4 , tal como os efeitos quadráticos.

Esta simulação é realizada de forma a determinar se as metodologias conseguem estimar de forma correta estes coeficientes porque, apesar de não ser muito provável no mundo real, é algo que pode acontecer e permite dar mais confiança ao investigador neste tipo de casos.

A magnitude dos coeficientes terá valores positivos e valores negativos, de forma a simular corretamente o que acontece na realidade. O sinal destes é escolhido aleatoriamente.

Num caso real, o modelo estimado contém uma interseção, mas como esta pode ser facilmente removida por normalização dos dados, será considerada como sendo igual a zero, sem perda de generalidade.

Escolhido o número de fatores e as magnitudes respetivas aos efeitos, é necessário determinar quantos termos irão entrar em cada um dos três processos. Pelo princípio da esparsidade (Capítulo 2.1.1), só 20% de todos os possíveis efeitos são espectáveis de ser ativos. Designando por **processo principal** o processo que contenha apenas efeitos principais; **processo de interações** aquele que contenha efeitos principais e efeitos de interação entre dois fatores diferentes e, por fim, **processo quadrático** aquele que

contém efeitos principais, efeitos de interação entre dois fatores diferentes e efeitos quadráticos, é possível observar na Tabela 18 quantos termos cada um destes processos poderá ter no máximo.

Tabela 18 – Número máximo de termos que cada processo pode ter, para 5 e 10 fatores.

Tipo de Processo	Número de Fatores	
	m = 5	m = 10
Principal	5 termos	10 termos
Interações	5 principais + 10 interações = 15 termos	10 principais + 45 interações = 55 termos
Quadrático	5 principais + 10 interações + 5 quadráticos = 20 termos	10 principais + 45 interações + 10 quadráticos = 65 termos

Usando o princípio da esparsidade, para 5 fatores, só haveria 1 efeito importante no processo principal, 3 efeitos importantes no processo de interações e 4 efeitos importantes no processo quadrático. Como se pretende avaliar se a estimativa é feita em dois valores de importância, isto é, por exemplo 2 ou 5 fatores importantes, tal não seria possível para os primeiros dois processos, já que seriam poucos e muito próximos. Decide-se, então, que o princípio da esparsidade não será aplicado neste caso e são escolhidos como efeitos importantes 2 ou 5 para qualquer processo real.

Para além disso, para 10 fatores, pelo princípio da esparsidade haveria 2 efeitos importantes no processo principal, 11 no processo de interações e 13 no processo quadrático. Neste caso, nos últimos dois processos seria possível escolher dois valores para o número de efeitos importantes. Deste modo, para 10 fatores escolheram-se os casos de 3 ou 10 efeitos importantes.

Tendo em conta as características (apresentadas acima) que cada um dos processos terá de ter, falta construí-los. No caso do processo principal, são escolhidos 2 dos 5 fatores e 3 dos 10 fatores para serem importantes. Aqui são escolhidos os primeiros e de forma seguida, visto que a ordem onde estes se encontram no processo não afeta a estimativa do mesmo. O outro nível de importância a estudar implica que todos os fatores são importantes, isto é, 5 fatores importantes e 10 fatores importantes.

Para os outros dois processos, é necessário relembrar o princípio da hereditariedade (Capítulo 2.1.1), onde se diz que havendo efeitos principais significativos

também tendem a existir interações significativas com esses efeitos. Como existem poucos efeitos importantes em duas das situações (2 importantes para 5 fatores e 3 importantes para 10 fatores), haverá casos em que se terá uma hereditariedade fraca, isto é, onde um dos efeitos principais se encontra no modelo para que haja uma interação. Tendo em conta este princípio, são escolhidos os efeitos que entram nos processos, lembrando que existem mais efeitos principais ativos que os restantes, bem como mais efeitos de interações que efeitos quadráticos.

No caso do processo de interações para 5 fatores, dos 2 efeitos importantes, 1 será principal e o outro será uma interação. Para 5 efeitos ativos 3 efeitos são principais e 2 são efeitos de interação.

Para o processo de interações com 10 fatores com 3 efeitos ativos, 2 destes serão principais e o outro será uma interação. Para 10 efeitos ativos 7 efeitos são principais e 3 são interações.

No processo quadrático a escolha dos efeitos é semelhante ao anterior: para 5 fatores com 2 efeitos importantes, onde 1 é principal e o outro é quadrático. Para 5 efeitos ativos, 2 são principais, duas interações e um quadrático.

No processo quadrático com 10 fatores em que 3 são ativos, a opção estudada é um efeito principal, uma interação e um quadrático. No caso de 10 efeitos ativos, a opção a estudar é com 5 efeitos principais, 3 interações e 2 quadráticos.

Após definido o número dos efeitos para cada processo, este é calculado tendo em conta as magnitudes.

Nas equações abaixo, é apresentado um exemplo para cada um dos processos reais:

$$\text{Processo Principal (2 efeitos ativos)} \quad y = b_1x_1 + b_2x_2 + e$$

$$\text{Processo de Interações (3 efeitos ativos):} \quad y = b_1x_1 + b_2x_2 + b_{12}x_{12} + e$$

Processo Quadrático (10 efeitos ativos):

$$y = b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_4x_4 + b_5x_5 + b_{12}x_{12} + \\ + b_{13}x_{13} + b_{14}x_{14} + b_{15}x_{15} + b_{11}x_1^2 + e$$

A Tabela 19 apresenta um resumo das magnitudes que cada coeficiente terá em cada um dos processos, tendo em conta o número de efeitos importantes, para 5 fatores. Na Tabela 20 são apresentadas as magnitudes para 10 fatores. O sinal da magnitude dos efeitos é escolhido aleatoriamente.

Tabela 19 – Magnitude dos coeficientes que entrarão nos três processos, para **5** fatores.

	Número de Efeitos ativos	β_i	β_{ij}	β_{ii}
Processo Principal	2	$\pm 4, \pm 6$	0	0
	5	$\pm 2, \pm 2, \pm 4, \pm 4, \pm 6$	0	0
Processo de Interações	2	± 6	± 4	0
	5	$\pm 2, \pm 4, \pm 6$	$\pm 2, \pm 4$	0
Processo Quadrático	2	± 6	0	± 4
	5	$\pm 4, \pm 6$	$\pm 2, \pm 4$	± 4

Tabela 20 - Magnitude dos coeficientes que entrarão nos três processos, para **10** fatores.

	Número de Efeitos ativos	β_i	β_{ij}	β_{ii}
Processo Principal	3	$\pm 2, \pm 4, \pm 6$	0	0
	10	$\pm 2, \pm 2, \pm 2, \pm 2, \pm 2$ $\pm 4, \pm 4, \pm 4, \pm 6, \pm 6$	0	0
Processo de Interações	3	$\pm 4, \pm 6$	± 4	0
	10	$\pm 2, \pm 2, \pm 2, \pm 4$ $\pm 4, \pm 6, \pm 6$	$\pm 2, \pm 4, \pm 4$	0
Processo Quadrático	3	± 6	± 4	± 4
	10	$\pm 2, \pm 2, \pm 4, \pm 4, \pm 6$	$\pm 2, \pm 4, \pm 4$	$\pm 2, \pm 4$

3.2 – Simulação das Experiências

Após a escolha dos processos, é necessário simular as experiências. Para que as experiências se aproximem o mais possível da realidade terá de ser acrescentada alguma variabilidade, uma vez que esta poderia surgir durante as medições, devido a variações na matéria-prima ou variação natural ao processo. Por muito iguais que as condições de medida pareçam ser, os resultados medidos nunca serão completamente iguais.

De forma a definir o erro experimental, a sua variância, σ^2 , é mantida constante e igual a um. Como tal, a relação sinal ruído (SNR) é semelhante para todos os planos e as respostas simuladas por cada plano serão afetadas pelo ruído de forma similar.

Para cada um dos processos a estudar, são gerados coeficientes diferentes consoante o que foi explicado no subcapítulo anterior. A estes coeficientes são multiplicados os valores que os diferentes fatores têm para cada um dos tratamentos e é somado o ruído, tal como está representado na Equação (10) do Subcapítulo 3.1. Os valores dos fatores são fornecidos pelos oito planos. Atendendo que existe um *software* que fornece estes planos, este é usado para obter as combinações para cada situação. Com o *software*, JMP Pro 12[®] da SAS Institute Inc. [25], é possível obter os seguintes planos: *Definitive Screening Design* para 5 e 10 fatores, *D – Optimal design* para 5 e 10 fatores, Plano Fatorial completo para 5 e 10 fatores e *Plackett – Burman Designs* para 5 e 10 fatores, Plano fatorial fracionado para 10 fatores (qualquer resolução) e o Plano fatorial fracionado de resolução IV para 5 fatores. Os restantes planos são obtidos através de funções do MATLAB[®] [26] que os determinam para 5 e 10 fatores. Estes não foram determinados pelo JMP Pro 12[®] pois, no caso dos planos *Box – Behnken* e *Central Composite*, este *software* só fornece as combinações até 8 fatores e no caso do plano fatorial fracionado de resolução III para 5 fatores, pois o JMP não permite determinar para esta resolução. Quer os planos fatoriais completos, quer os fracionados e os *Plackett – Burman* terão dois pontos centrais (duas experiências todas no nível intermédio) de forma a poder estudar a possível curvatura dos fatores. Para além disso, os planos de *Box- Behnken* e os *central composite designs* também serão analisados com dois pontos centrais e ainda sem pontos centrais.

Uma vez que o objetivo deste estudo é determinar se os planos estimam corretamente os modelos (isto é, se conseguem chegar corretamente aos processos), não se fazem quaisquer réplicas, pois estas só iriam facilitar a estimativa dos mesmos e ainda, num caso real, poderia não haver orçamento para as executar. Para além disso, no caso do plano fatorial completo com 10 fatores, onde existem 1026 experiências, que já são bastante elevadas e difíceis de concretizar, acrescentar réplicas seria impossível.

Apesar de não se realizarem réplicas, a ordem de simulação das experiências é aleatória, o que se assemelha a uma situação real.

Assim, as experiências são simuladas usando cada um dos oito planos, tendo em conta o processo que se está a estudar. Para cada plano, a simulação das experiências é repetida 10 000 vezes, isto é, cada plano tem um número total de N experiências a realizar, mas cada conjunto de N experiências é repetido 10 000 vezes por forma a ter uma amostra considerável para o estudo. Estas 10 000 repetições não se assemelham com as réplicas explicadas no Subcapítulo 2.1.1; as réplicas fazem parte da mesma experiência global que irá dar uma certa quantidade de respostas que depois serão usadas para estimar o modelo. Neste caso, o que se terá são 10 000 conjuntos de respostas diferentes e, portanto, 10 000 estimações do modelo dentro da mesma categoria de processo real.

3.3 – Determinação dos coeficientes

Uma vez simuladas as experiências, é necessário ajustar os resultados a um modelo. Aqui, assume-se que não se conhece o processo real, mas sim o seu formato, isto é, que é um processo principal, de interações ou quadrático. Apesar de se saber o formato do processo, a estimativa dos coeficientes não tem esta informação em conta.

A determinação dos coeficientes é obtida através do *stepwise regression* [1, 27]. Este é um método que permite adicionar e remover parâmetros, neste caso coeficientes de regressão, a um modelo, com base na sua significância estatística. O método começa com um modelo inicial e depois vai inserindo ou removendo termos ao modelo consoante o *p-value* do teste f-parcial. Se um termo não estiver de momento no modelo, a hipótese nula será que o termo terá um coeficiente nulo se adicionado ao modelo. Havendo evidências suficientes para rejeitar esta hipótese (*p-value* inferior a 0,05), o termo é adicionado ao modelo. Por outro lado, se o coeficiente estiver de momento no modelo, a hipótese nula é que o termo tem um coeficiente nulo. Ora, se houver evidências suficientes para aceitar esta hipótese (*p-value* superior a 0,05), o termo é removido do modelo.

Este método encontra-se no MATLAB® (*stepwisefit*) e funciona da seguinte forma:

1. Determinação de todos os coeficientes;
2. Ajuste dos coeficientes a um modelo inicial;

3. Se alguns termos que não se encontrem no modelo tiverem *p-values* menores que um determinado valor, é adicionado o termo que tiver menor *p-value* e repete-se o procedimento. Isto quer dizer que são adicionados os termos que tiverem pouca probabilidade de terem um coeficiente nulo. Caso não existam termos com *p-values* inferiores a 0,05, procede-se para o passo 4;

4. Se algum termo que se encontre no modelo tiver um *p-value* superior ao valor escolhido acima (ou seja, é improvável que a hipótese de que o coeficiente seja zero possa ser rejeitada), é removido aquele que tiver valor superior e procede-se para o passo 3. Caso contrário, o modelo está determinado.

O JMP também apresenta a opção de determinação e escolha dos coeficientes através de uma *stepwise regression*. Assim, antes de iniciar as simulações, simulou-se um caso específico no JMP e o mesmo caso no MATLAB e observou-se que os critérios de inserir e remover os coeficientes são diferentes nos dois softwares. O JMP adiciona os coeficientes ao modelo para testar até um *p-value* = 0,25 enquanto que o MATLAB insere para teste um *p-value* até 0,10 e depois são recalculados os *p-values*. Para além disso, o JMP remove os coeficientes que apresentem um *p-value* superior a 0,15 enquanto que o MATLAB remove os coeficientes ao modelo estimado que apresentem um *p-value* superior a 0,05. Para ter resultados semelhantes aos obtidos pelo JMP, decidiu-se que serão utilizados os *p-values* que este usa. Portanto, o *stepwisefit* vai introduzir no modelo apenas aqueles coeficientes que tenham um *p-value* inferior a 0,15, os restantes coeficientes serão nulos. Inicialmente, esta função determina todos os coeficientes possíveis que podem entrar nos modelos através da Equação (6) do Subcapítulo 2.1.2 e posteriormente determina quais entram no modelo e quais não entram (estes últimos apesar de terem um valor, passam a ser zero devido à hipótese nula ter sido aceite). Para além da magnitude dos coeficientes, esta função ainda indica o desvio padrão de cada um deles.

Antes de utilizar esta função para a determinação dos coeficientes e ajuste do modelo, é necessário entender se esta os calcula corretamente. Para tal, escolheu-se um

plano fornecido pelo JMP, simularam-se as experiências pelo MATLAB (como explicado no Subcapítulo 3.2) e determinaram-se os coeficientes pelo *stepwisefit* e pelo JMP. O JMP calcula os coeficientes segundo a Equação (6) e, para um plano fatorial fracionado de 5 níveis e resolução IV, o cálculo dos coeficientes pelo *stepwisefit* foi igual ao determinado pelo JMP, podendo-se concluir que a determinação dos coeficientes é correta. Ainda é necessário entender se o ajuste do modelo é correto, isto é, se o *stepwisefit* escolhe corretamente os efeitos ativos. Para tal, usam-se as respostas simuladas pelo MATLAB e introduzem-se no JMP e este determina os efeitos ativos e, ao mesmo tempo, determinam-se pelo *stepwisefit* e comparam-se os resultados.

O JMP usa o conceito de gráfico de probabilidade normal para determinar os efeitos que são ativos. Para construir um gráfico de probabilidade normal é necessário ordenar os coeficientes de menor magnitude para maior. Os coeficientes ordenados são depois traçados contra a frequência observada acumulada $([i - 0,5]/n)$, onde $i = 1, \dots, n$ observações [4]. Esta frequência acumulada consiste numa função de distribuição cumulativa de uma variável aleatória normal (do inglês *cumulative distribution function, cdf*). Portanto, o gráfico obtido corresponde a todos os coeficientes estimados em função desta distribuição cumulativa. Ao ajustar uma linha reta a estes pontos, os efeitos que saem desta linha são os significativos e, portanto, são os que entram no modelo. Isto deve-se porque se assume que os coeficientes estimados são normalmente distribuídos com média igual aos coeficientes e, sob a hipótese nula de que todos os coeficientes são zero, então as médias de todos os coeficientes estimados são zero. O gráfico de probabilidade normal resultante dos coeficientes estimados será uma linha reta. No entanto, este gráfico está a testar se todos os coeficientes têm a mesma distribuição (isto é, a mesma média), pelo que se existirem alguns efeitos que não sejam nulos, os coeficientes respetivos tendem a ser maiores que os restantes e não caem sobre esta linha reta, visto não seguirem esta distribuição [1].

Na Figura 3 encontra-se um exemplo de um gráfico de probabilidade normal determinado pelo JMP com um plano de *Plackett - Burman* de 5 fatores, para um modelo linear. Nesta é possível observar que só o fator 1 e o fator 2 é que afetam a resposta, isto é, são ativos. Pode-se tirar esta conclusão pois estes não se encontram sob a linha reta (linha a azul). A linha vermelha tem declive 1.

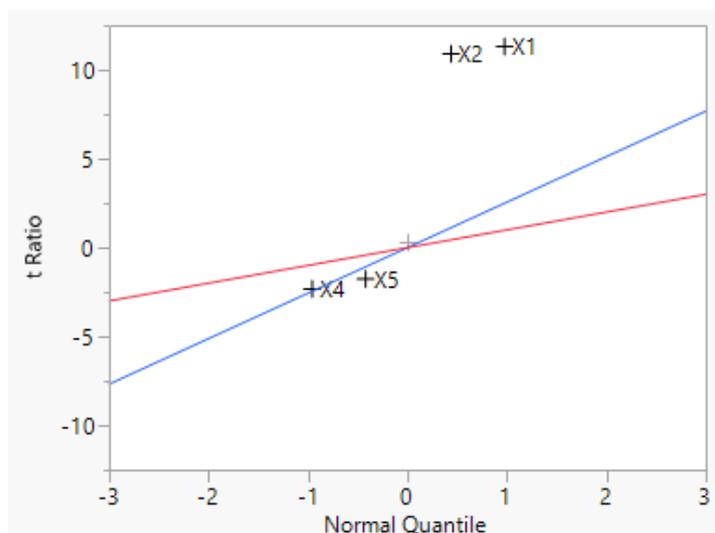


Figura 3 – Gráfico de probabilidade normal usando o plano *Plackett – Burman* para simular as experiências obtido pelo JMP Pro 12.

Na Tabela 21 encontra-se a estimativa dos coeficientes pelo JMP, que é exatamente igual à estimativa dos coeficientes pelo *stepwisefit*. É de notar que os três coeficientes que o *stepwisefit* estimou como sendo zero, devem-se ao facto de estes não entrarem no modelo, mas caso entrassem também teriam o mesmo valor que o obtido pelo JMP.

Tabela 21 – Coeficientes estimados pelo JMP e pela função do MATLAB.

Coeficientes estimados	JMP	<i>Stepwisefit</i>
X_1	6,6592854	6,659285
X_2	6,4190346	6,419035
X_3	0,1978288	0
X_4	- 1,329612	0
X_5	- 0,999919	0

Ainda existe outra forma de determinar os modelos que explicam determinado fenómeno. Em Março de 2016, Bradley Jones propôs uma nova análise para os *definitive screening designs* que indica que os modelos serão ajustados inicialmente para os efeitos lineares e, posteriormente para os restantes [28]. Esta divisão pode ser feita pois os efeitos principais são ortogonais aos efeitos de segunda ordem. De forma a ajustar

separadamente os modelos, é necessário ter duas colunas com a resposta, em que uma permite identificar efeitos principais e a outra permite identificar os restantes. Uma vez que existe ortogonalidade entre os efeitos principais e os restantes, as duas colunas também são ortogonais uma com a outra e a sua soma leva à resposta original.

Esta é uma análise interessante e pode ser realizada depois da análise da *stepwise regression* de forma a determinar qual é melhor. É de notar que esta nova análise só pode ser aplicada em planos que tenham os tratamentos em espelho, tal como o plano *Definitive Screening Design*.

3.4 – Determinação de outros parâmetros relevantes ao estudo

Um parâmetro muito relevante que permite confirmar se os coeficientes estimados se aproximam ou não dos coeficientes reais é a potência. Num teste estatístico, a potência representa a probabilidade de rejeitar H_0 quando esta é falsa [29-31]. Ou seja, a potência indica a capacidade de detetar um efeito quando este de facto existe. Por exemplo, uma potência elevada indica que as médias dos coeficientes tendem a ser diferentes do assumido na hipótese nula. A potência é conhecida como $1 - \beta$, onde β é a probabilidade de falhar na rejeição de H_0 caso esta seja falsa (falso negativo). Este β também é conhecido como um erro do tipo II. A potência depende de três parâmetros: o nível de significância α (erro do tipo I: probabilidade de rejeitar a hipótese nula quando esta é verdadeira), o tamanho da amostra e o tamanho do efeito (representa a magnitude do efeito sob a hipótese alternativa). O nível de confiança escolhido é $\alpha = 0,05$, o tamanho da amostra depende do plano escolhido e o tamanho do efeito corresponde à média dos coeficientes estimados usando cada plano.

Neste trabalho não só se pretende saber se os coeficientes estimados são diferentes de zero, mas também determinar se estes se aproximam do real. Para tal, considera-se o seguinte teste de hipótese:

$$\begin{cases} H_0: \beta = \beta_{real} \\ H_1: \beta \neq \beta_{real} \end{cases} \quad (11)$$

Deste modo, pretende-se que a potência seja o menor possível pois, caso contrário, a estimação é pior, isto é, uma potência power elevada indicaria que o coeficiente estimado seria diferente do real. De forma a ser mais fácil de entender, na Figura 4 representa-se o nível de confiança, o erro do tipo II e a potência. Neste caso, pretende-se que as duas distribuições estejam o mais sobrepostas possível uma vez que a média do coeficiente estimado deverá ser bastante próximo do valor do coeficiente real. Portanto, a potência será baixa quando o coeficiente é bem estimado, de preferência que se encontre próxima de 0,05, valor correspondente à percentagem de vezes que a hipótese nula é rejeitada (significância do teste).

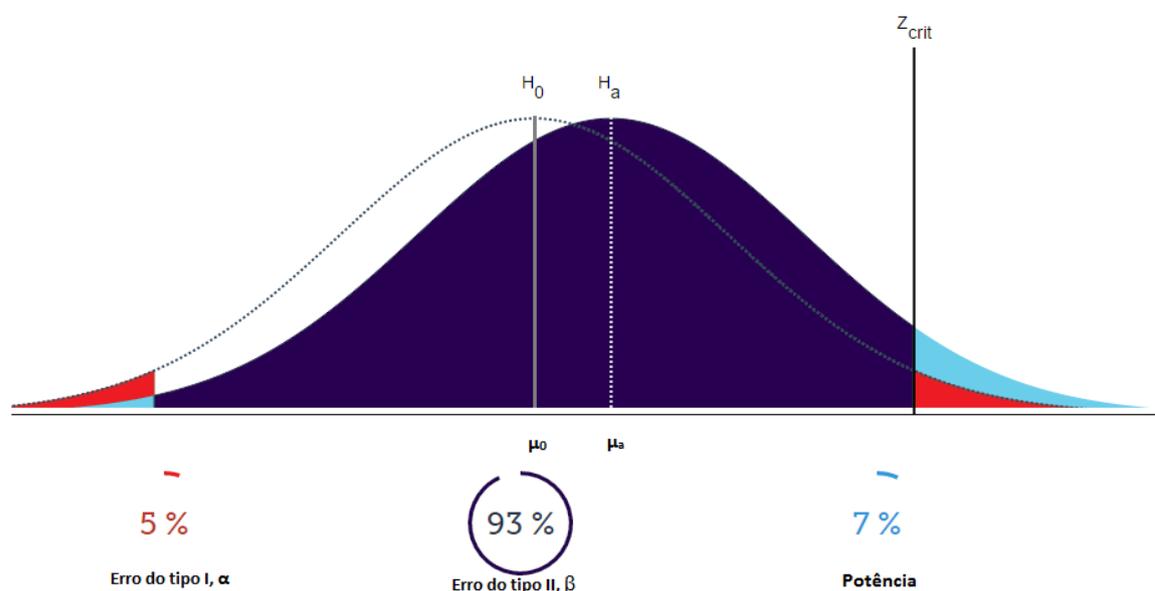


Figura 4 – Potência e probabilidade do erro do tipo I e do tipo II para o caso de a hipótese nula ser verdadeira.

3.5 – Resultados

Neste capítulo são representados os 12 casos que foram estudados para cada um dos planos. Em cada subcapítulo são apresentados gráficos de barras que permitem visualizar os coeficientes que são bem ou mal estimados. Estes gráficos representam a potência de cada coeficiente estimado e ainda é apresentado o valor ótimo que a potência deve ter. Este valor corresponde a 0,05 e é o nível de confiança do teste de hipóteses.

Os resultados obtidos dizem respeito a simulações com o desvio padrão do ruído constante e igual a um, isto é, o desvio padrão dos coeficientes será diferente para cada um dos planos e a relação sinal ruído será semelhante. As magnitudes dos coeficientes variam dentro do mesmo tipo de efeito, isto é, para efeitos principais, as magnitudes podem ser ± 2 , ± 4 ou ± 6 e para os efeitos de interação e efeitos quadráticos as magnitudes podem ser ± 2 ou ± 4 .

Os capítulos seguintes serão divididos por tipo de processo, número de fatores e quantidade de efeitos ativos.

3.5.1 – Processo Principal

Neste tipo de processo, independentemente do número de fatores (5 ou 10), todos os planos conseguem estimar corretamente os coeficientes, pois têm uma potência próxima de 0,05, quer para muitos efeitos ativos, quer para poucos. Dado este resultado, o único critério que permite determinar o melhor plano para estimar processos principais é aquele que tem um menor número de experiências, pois este consegue estimar o modelo independentemente do número de fatores e da quantidade de efeitos ativos.

A Tabela 22 indica o resumo dos resultados obtidos e ainda sugere o melhor plano tendo em conta o elevado desempenho e o baixo número de experiências.

Tabela 22 – Resumo da potência e planos sugeridos para cada um dos processos principais.

Tipo de processo	Resultados	Sugestão do melhor plano
5 fatores – 2 efeitos ativos	Potência ~ 0,05	Plano Fatorial Fracionado de resolução III (10 exp.)
5 fatores – 5 efeitos ativos	Potência ~ 0,05	<i>Definitive Screening Design</i> (13 exp.)
10 fatores – 3 efeitos ativos	Potência ~ 0,05	Plano Fatorial Fracionado de resolução III (18 exp.)
	<i>D-optimal</i> tem 5 coeficientes com potência ~ 0,05 e 5 com potência = 1	
10 fatores – 10 efeitos ativos	Plano fatorial fracionado de resolução III e dois pontos centrais tem 5 coeficientes com potência ~ 0,05 e 5 com potência > 0,50 Restantes têm potência ~ 0,05	<i>Definitive Screening Design</i> (21 exp.)

3.5.1.1 – Processo com 5 fatores

3.5.1.1.1 – Processo com 2 fatores ativos

O processo real com 2 efeitos ativos usado para o estudo é $y = -6x_1 - 4x_2 + e$, onde e corresponde ao ruído. Para todos os planos, é feita uma representação dos gráficos de barras para a potência, como o apresentado na Figura 5. Nesta figura, são exemplificados em mais detalhe os resultados obtidos para o plano *Box-Behnken* sem pontos centrais [BBD (0 cp)]. Desta figura conclui-se que o plano BBD (0 cp) estima corretamente os coeficientes, uma vez que tem uma potência próxima de 0,05 para todos os coeficientes. Para além disso, existem poucos *outliers* (aproximadamente 11% dos coeficientes que não se encontram no processo são estimados por todos os planos) no caso dos coeficientes diferentes de zero e, apesar de existirem alguns coeficientes que deveriam ter sido estimados a zero (para fatores sem importância), estes continuam a ser

maioritariamente bem estimados como nulos. Os *outliers* são coeficientes que foram adicionados ao modelo quando, na verdade, tal não deveria acontecer. O facto de existirem poucos *outliers* significa que o plano insere poucas vezes coeficientes cuja magnitude é relativamente diferente da magnitude dos que se encontram no processo. Quanto aos outros planos, para 2 efeitos ativos, o gráfico de barras é semelhante: a potência dos coeficientes encontra-se junto ao valor de referência.

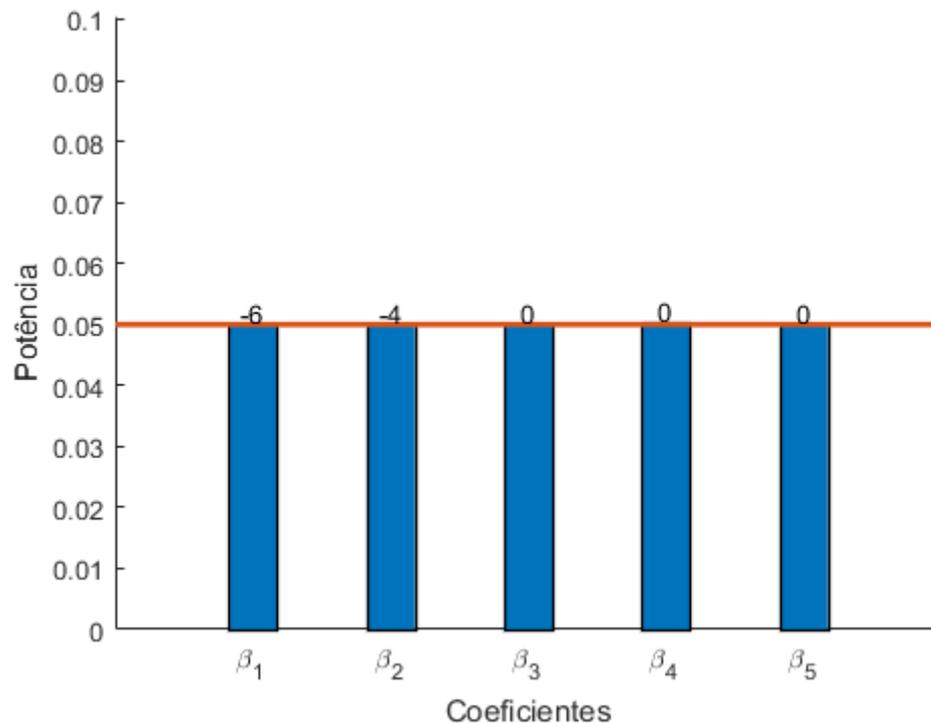


Figura 5 – Gráfico de barras para o plano *Box-Behnken* sem pontos centrais para o processo $y = -6x_1 - 4x_2 + e$. A linha laranja corresponde à significância do teste e valor ótimo para a potência de cada coeficiente. Acima das barras é apresentado o valor do coeficiente do processo principal.

3.5.1.1.2 – Processo com 5 fatores ativos

Relativamente ao processo principal com 5 fatores ativos, o processo obtido é: $y = -6x_1 - 4x_2 + 4x_3 - 2x_4 - 2x_5 + e$.

Como descrito acima, todos os planos conseguem estimar corretamente os coeficientes. Mais uma vez, isto é corroborado pela representação dos gráficos de barras, aqui exemplificados para DSD na Figura 6. Daqui, conclui-se que todos os coeficientes são bem estimados, uma vez que se encontram próximos da linha laranja. Os restantes planos

exceto o fatorial fracionado de resolução III apresentam a mesma estrutura, o que indica que todos têm elevado desempenho. O plano fatorial fracionado de resolução III apresenta uma potência próxima de 0,05 para os coeficientes com magnitude de ± 4 e ± 6 e os coeficientes com magnitude de ± 2 têm uma potência de aproximadamente 0,06. Estes têm um elevado desempenho, mas começa-se a observar alguma dificuldade por parte deste plano na estimativa de coeficientes com baixa magnitude. Nesta situação, sugere-se que o melhor plano seja o *Definitive Screening Design* pois este consegue estimar com elevado desempenho todos os coeficientes, incluindo aqueles que apresentem magnitude mais baixa (duas vezes o desvio padrão).

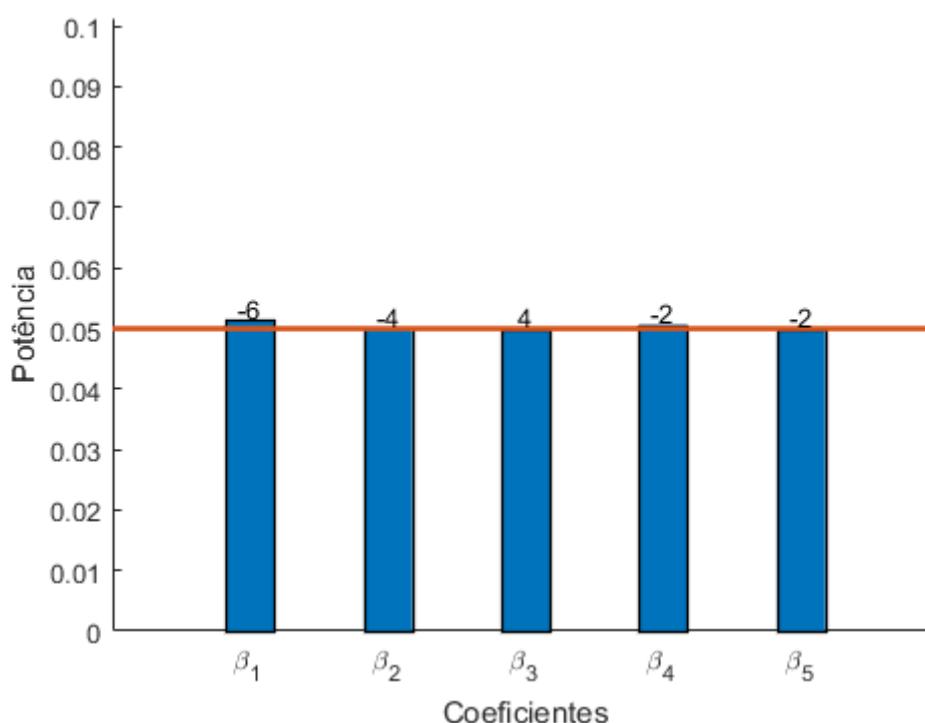


Figura 6 – Gráfico de barras com o plano DSD para o processo $y = -6x_1 - 4x_2 + 4x_3 - 2x_4 - 2x_5 + e$. Os valores acima das barras correspondem às magnitudes dos coeficientes do processo; a linha laranja corresponde ao nível de confiança.

3.5.1.2 – Processo com 10 fatores

Neste capítulo considera-se o caso em que os planos terão 10 fatores e o modelo a estimar espera-se que seja principal.

3.5.1.2.1 – Processo com 3 fatores ativos

O processo principal escolhido para as simulações com 10 fatores é $y = -6x_1 + 4x_2 - 2x_3 + e$.

Como nas situações acima, os coeficientes são bem estimados, podendo-se observar mais facilmente na Figura 7 para o plano *Plackett-Burman*, onde é possível tirar as mesmas conclusões que foram obtidas para o processo principal com 5 fatores: em média, o plano estima os coeficientes próximos do valor real do processo. Todos os gráficos de barras são semelhantes a este, apresentando uma potência inferior a 0,06. O plano D-optimal aparenta ter o melhor desempenho uma vez que todos os coeficientes se encontram sobre a linha laranja. O plano DSD é o que apresenta mais *outliers* (cerca de 13% para coeficientes que não entram no processo, enquanto que os restantes planos têm 10% de *outliers*) para os coeficientes iguais a zero.

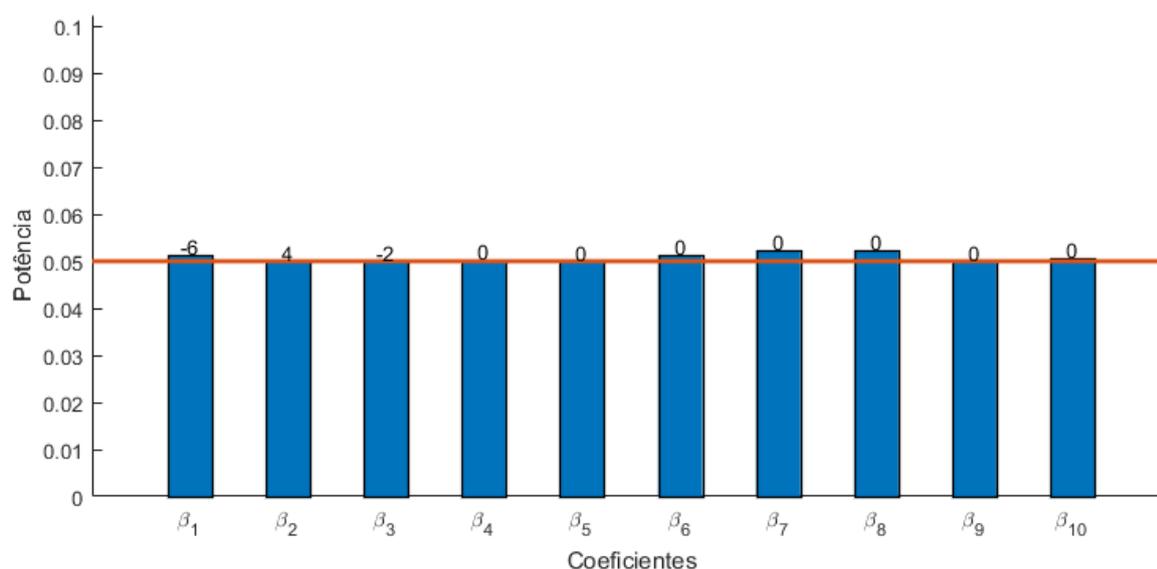


Figura 7 – Gráfico de barras para o plano *Plackett-Burman* para o processo: $y = -6x_1 + 4x_2 - 2x_3 + e$. A linha laranja corresponde ao nível de confiança do teste de hipóteses e os valores acima das barras são as magnitudes dos coeficientes do processo.

3.5.1.2.2 – Processo com 10 efeitos ativos

Nesta situação, o processo real corresponde a $y = -6x_1 - 6x_2 + 4x_3 - 4x_4 + 4x_5 - 2x_6 + 2x_7 - 2x_8 - 2x_9 - 2x_{10} + e$. Todos os coeficientes são bem estimados, sendo que todos os planos têm uma potência próxima de 0,05, à exceção do plano D-

optimal que não consegue estimar os 5 últimos coeficientes (a potência destes é 1), como se pode observar na Figura 8. Ainda existe outra exceção: o plano fatorial fracionado com dois pontos centrais e resolução III, este consegue estimar todos os coeficientes com magnitude superior a ± 4 com potência próxima de 0,05 contudo, os 5 coeficientes que têm magnitude de ± 2 são mal estimados, com potência acima de 0,50. Uma vez que não há distinção entre os restantes planos, o plano a escolher seria o que tivesse menor número de experiências.

Pela Figura 8, comprova-se que o plano *D-optimal* apresenta um mau desempenho, uma vez que 5 dos 10 coeficientes tem uma potência = 1 e muito acima do nível de confiança. O plano fatorial fracionado de resolução III tem um gráfico semelhante ao *D-optimal* com a exceção da altura das últimas 5 barras que apresentam uma potência próxima de 0,50. Os restantes planos apresentam resultados semelhantes ao da Figura 7 apresentada acima, onde o plano que se aproxima mais da linha laranja é o fatorial completo. Contudo, este tem 1026 experiências, o que pode ser difícil de realizar numa situação real. Deste modo, apesar de o plano fatorial completo conseguir estimar os coeficientes com maior precisão, este não seria o plano de eleição para fornecer a combinação das experiências. Um dos melhores planos seria um dos que tem menos experiências, tal como o plano DSD, ou o plano *Plackett-Burman* ou ainda um dos planos fatoriais fracionados.

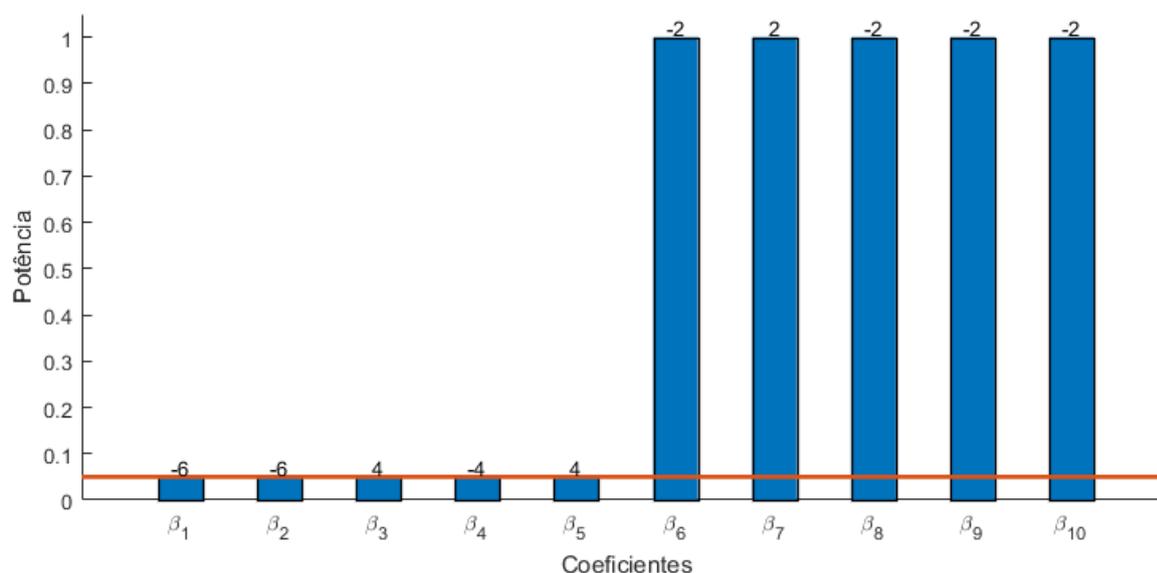


Figura 8 – Gráfico de barras para o plano *D-optimal* com o processo real: $y = -6x_1 - 6x_2 + 4x_3 - 4x_4 + 4x_5 - 2x_6 + 2x_7 - 2x_8 - 2x_9 - 2x_{10} + e$. A linha laranja corresponde ao valor ideal da potência e os valores acima das barras correspondem aos coeficientes do processo principal.

3.5.2 – Processo com Interações

Neste subcapítulo serão estudados processos de interações, ou seja, processos cujos efeitos ativos são principais e efeitos de interação entre dois fatores diferentes. Quando o número de fatores é 5, o melhor plano é o DSD, uma vez que, dos planos que têm potência baixa, é o que tem menor número experiências. No que diz respeito a processos com 10 fatores, caso existam poucos efeitos ativos, pode-se usar o plano DSD ou o plano *Plackett-Burman*. Caso exista um número considerável de efeitos ativos (próximo do número de fatores), o plano DSD não é bom podendo-se escolher o plano *Plackett-Burman*, visto ser o plano com menor número de experiências e com potência semelhante aos restantes planos que conseguem estimar todos os coeficientes corretamente.

A Tabela 23 indica um resumo dos resultados obtidos, sugerindo para cada um dos casos estudados para o processo com interações o melhor plano, tendo em conta que se pretende o menor número de experiências e a menor potência possível.

Tabela 23 – Resumo da potência e planos sugeridos para cada um dos processos com interações.

Tipo de processo	Resultados	Sugestão do melhor plano
5 fatores – 2 efeitos ativos	Plano fatorial fracionado de resolução III não consegue estimar muitos coeficientes Restantes potência ~ 0,05	<i>Definitive Screening Design</i> (13 exp.)
5 fatores – 5 efeitos ativos	Plano fatorial fracionado de resolução III não consegue estimar muitos coeficientes Restantes potência ~ 0,05	<i>Definitive Screening Design</i> (13 exp.)
10 fatores – 3 efeitos ativos	Planos fatoriais fracionados de resolução III e IV não conseguem estimar muitos coeficientes Restantes têm potência ~ 0,05	<i>Definitive Screening Design</i> (21 exp.)
10 fatores – 10 efeitos ativos	Planos fatoriais fracionados de resolução III e IV não conseguem estimar muitos coeficientes <i>Definitive screening design</i> potência > 0,10 Restantes têm potência ~ 0,05	<i>Plackett-Burman</i> (26 exp.)

3.5.2.1 – Processo com 5 fatores

No que diz respeito ao processo de interações com 5 fatores, os coeficientes são bem estimados para 2 e 5 efeitos ativos (uma vez que a potência se aproxima de 0,05), exceto o plano fatorial fracionado de resolução III que não consegue estimar muitos dos coeficientes. Visto isto, o melhor plano para determinar processos de interação até 5 fatores será aquele que tiver menos experiências, por exemplo o plano DSD.

3.5.2.1.1 – Processo com 2 efeitos ativos

O processo utilizado para simular as experiências é: $y = -6x_1 + 4x_1x_2 + e$. Figura 9 dá destaque ao plano fatorial fracionado de resolução III com dois pontos centrais, onde

se observa que este estima corretamente alguns dos coeficientes, outros não consegue incluir no modelo e existem dois que têm potência próxima de 0,25. Este ainda estima erroneamente 15% dos coeficientes que deveriam ser zero. Posto isto, este plano não é adequado para estimar modelos com efeitos lineares e interações, uma vez que tem baixa resolução. O plano fatorial fracionado com dois pontos centrais e resolução IV tem cerca de 22% de *outliers*. Todos os planos, exceto o DSD e os dois fatoriais fracionados, apresentam uma percentagem de *outliers* estimados de cerca de 13% (ou seja, foram adicionados ao modelo quando não deviam), enquanto que para o DSD exibe uma pequena diferença: o número de *outliers* na estimativa de efeitos principais (cerca de 23%) é superior ao número de *outliers* na estimativa de efeitos de interação (cerca de 10%). Mais uma vez, o plano *D-optimal* é o que apresenta a potência mais próxima do limite ótimo.

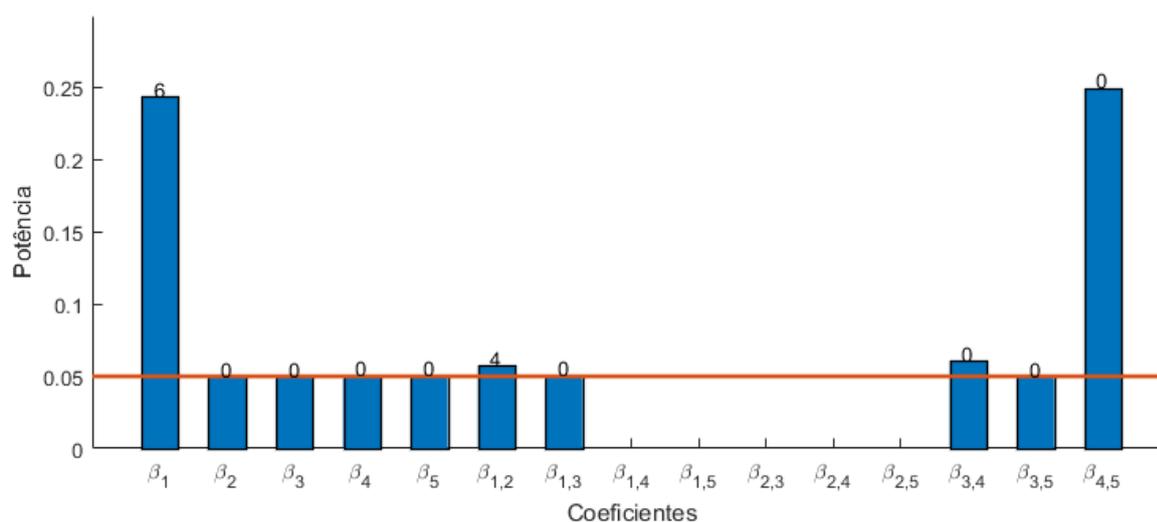


Figura 9 – Gráfico de barras para o plano fatorial fracionado de resolução III com dois pontos centrais para o processo $y = -6x_1 + 4x_1x_2 + e$. A linha laranja corresponde ao valor ideal da potência e os valores acima das barras dizem respeito às magnitudes dos coeficientes do processo de interações.

3.5.2.1.2 – Processo com 5 efeitos ativos

O processo usado para o estudo é $y = 6x_1 + 4x_2 + 2x_3 + 4x_1x_2 - 2x_1x_3 + e$. Neste caso, os coeficientes também são bem estimados. De forma a observar isto mais facilmente, representa-se na Figura 10 o plano CCD (0 cp). Daqui verifica-se que este plano consegue estimar os coeficientes que se encontram no processo. Os restantes planos têm

uma estrutura semelhante a este, todos têm uma potência inferior a 0,06, com a exceção do plano fatorial fracionado de resolução III que também não consegue estimar muitos dos coeficientes. Apesar de o plano DSD ter uma potência baixa, existem mais efeitos principais (19%) adicionados ao modelo que não se encontram no processo do que efeitos de interação (8%). Os restantes planos estão semelhantes a este, à exceção dos planos CCD, D-optimal e fatorial completo que apresentam um intervalo da estimativa semelhante para todos os coeficientes, o que leva a concluir que estes conseguem estimar de igual forma todos os coeficientes. Além disso, o plano fatorial fracionado de resolução IV insere cerca de 20% dos coeficientes quando não devia, enquanto que os restantes adicionam cerca de 12%, independentemente se o efeito é principal ou de interação (exceto o plano DSD).

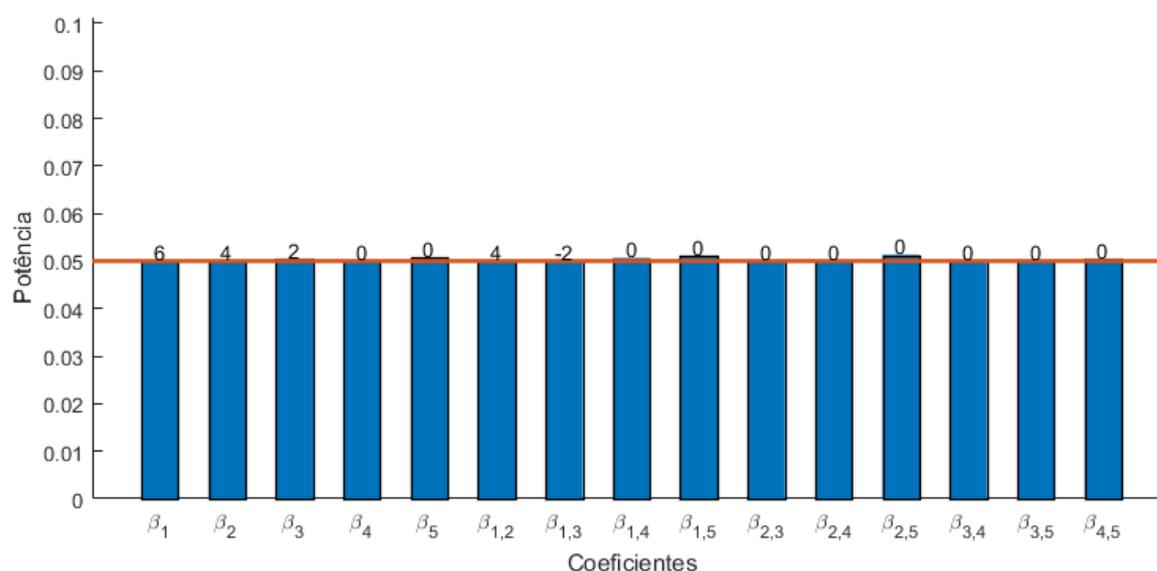


Figura 10 – Gráfico de barras para o plano *central composite design* sem pontos centrais usando o processo de interações $y = 6x_1 + 4x_2 + 2x_3 + 4x_1x_2 - 2x_1x_3 + e$ para comparação. A linha laranja corresponde ao valor ótimo da potência e os valores acima da barra dizem respeito a cada um dos coeficientes do processo.

3.5.2.2 – Processo com 10 fatores

3.5.2.2.1 – Processo com 3 efeitos ativos

No que diz respeito a processos com 10 fatores dos quais 3 são ativos, o processo real é: $y = 6x_1 + 4x_2 - 4x_1x_2 + e$. A maioria dos planos apresenta uma potência de

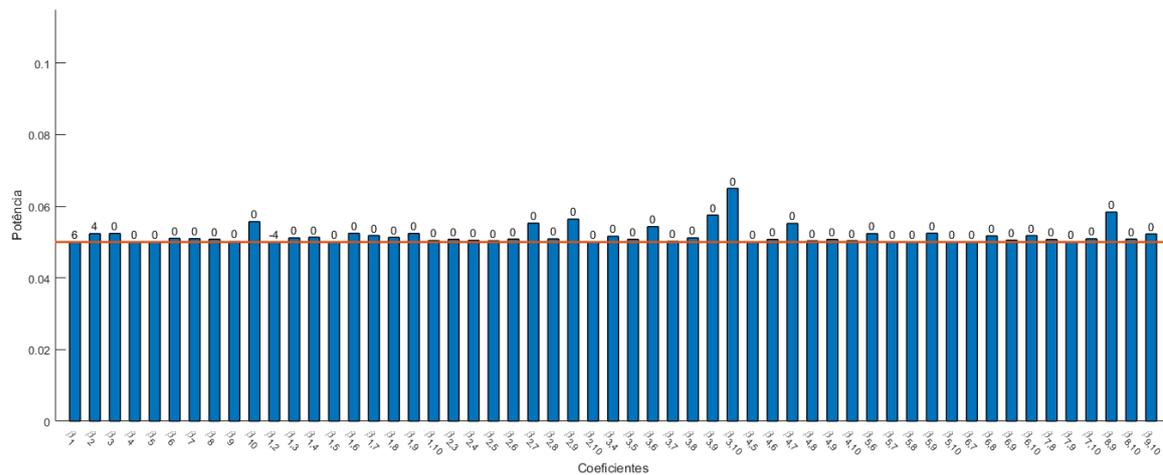


Figura 12 – Gráfico de barras para o plano *central composite design* com dois pontos centrais, usando o processo: $y = 6x_1 + 4x_2 - 4x_1x_2 + e$. Os valores acima de cada barra correspondem ao valor de cada coeficiente do processo e a linha laranja diz respeito ao valor ideal da potência.

3.5.2.2.2 – Processo com 10 efeitos ativos

No que respeita ao processo de interações com 10 efeitos ativos, o processo obtido é: $y = 6x_1 - 6x_2 + 4x_3 + 4x_4 - 2x_5 - 2x_6 + 2x_7 - 4x_1x_2 + 4x_1x_3 - 2x_1x_4 + e$. A maioria dos planos consegue estimar corretamente os coeficientes, apresentando uma potência próxima de 0,05. Destes destacam-se os planos *D-optimal*, *Plackett-Burman*, *central composite design* com dois pontos centrais e sem pontos centrais bem como o *Box-Behnken* e ainda o plano fatorial completo com dois pontos centrais.

Por sua vez, os planos fatoriais fracionados com dois pontos centrais de resolução III (FFD [III] (2 cp)) e IV (FFD [IV] (2 cp)) não conseguem estimar algumas interações. Para além disso, o plano fatorial fracionado não estima corretamente a interação entre o fator 1 e o fator 2, apresentando uma potência de 0,514.

O plano DSD é o pior plano, pois estima erroneamente 31 coeficientes de interação. Destes, 18 apresentam uma potência acima de 0,700 onde 3 correspondem às três interações que entram no processo; 6 das interações mal estimadas apresentam uma potência entre 0,300 e 0,699 e, por fim, 7 apresentam uma potência entre 0,100 e 0,299 (observar Figura 13). O plano DSD inseriu erradamente 41 interações ao modelo onde cerca de 30 aparecem no modelo até 10% das vezes e as restantes aparecem entre 12 a 18%, exceto a interação β_{56} que entra no modelo 64,05% das vezes. Para além disso, este

plano ainda estima cerca de 36% *outliers* para os efeitos principais que não se encontram no processo, isto é, aproximadamente 36% das vezes estes coeficientes são erradamente inseridos no modelo. Além disso, das três interações que se encontram no processo, duas delas só são inseridas no modelo 40% das vezes.

Pela Figura 13, observa-se que o plano DSD tem muita dificuldade em estimar os coeficientes corretamente. Na Figura 14 é apresentada a correlação entre os fatores da matriz do modelo. Nesta observa-se que existe muita correlação entre alguns efeitos de interação, o que explica porque é que alguns deles foram mal estimados.

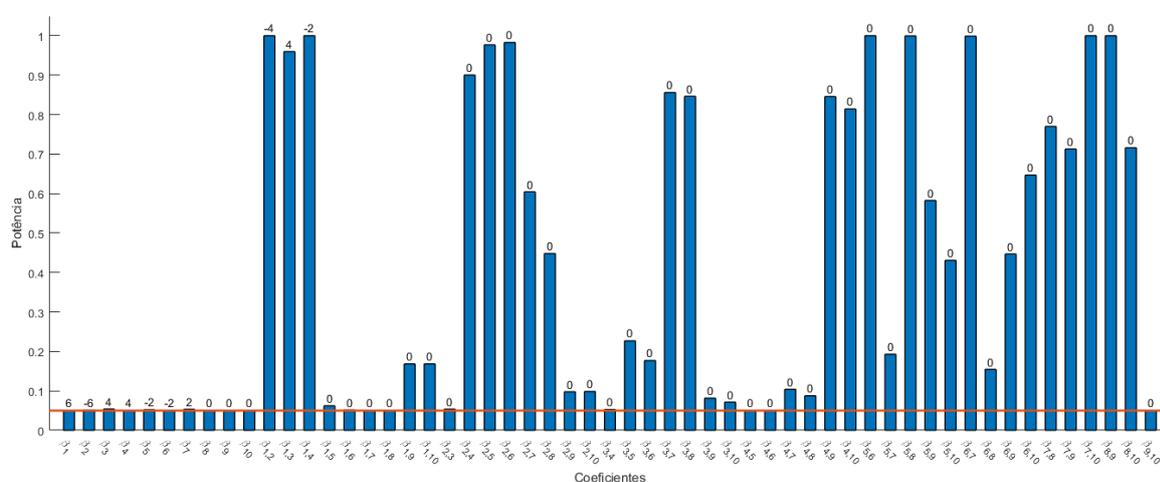


Figura 13 – Gráfico de barras para o plano DSD com o processo real: $y = 6x_1 - 6x_2 + 4x_3 + 4x_4 - 2x_5 - 2x_6 + 2x_7 - 4x_1x_2 + 4x_1x_3 - 2x_1x_4 + e$. Os valores representados em cima das barras correspondem ao valor real dos coeficientes e a linha laranja corresponde ao nível de significância do teste de hipóteses (valor ideal para a potência).

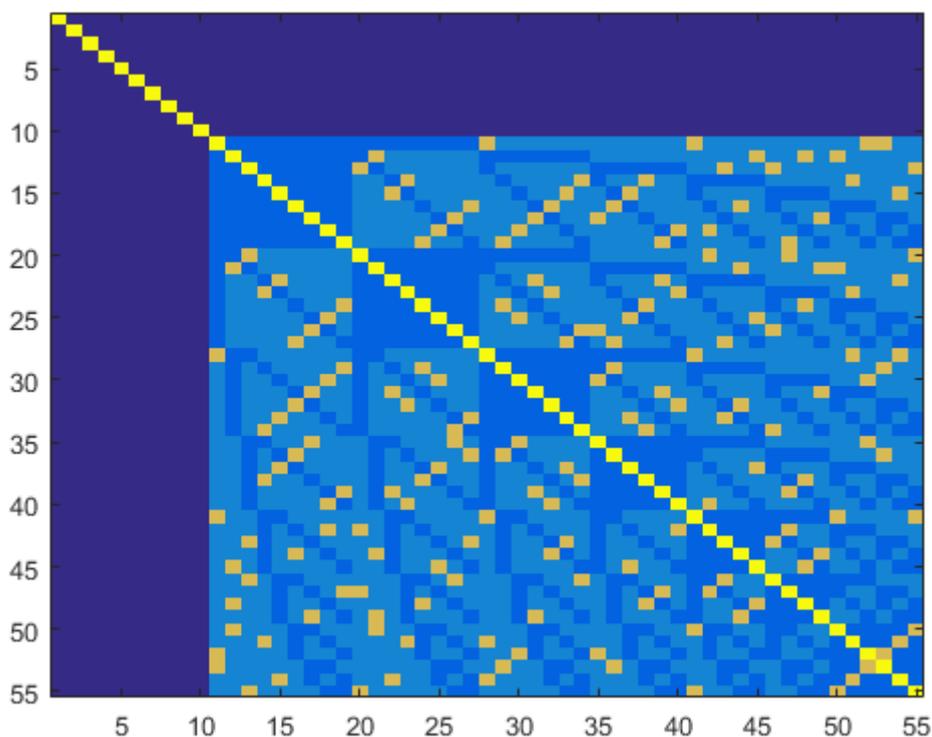


Figura 14 – Correlação dos fatores do modelo para o plano DSD.

3.5.3 – Processo Quadrático

Neste capítulo serão estudados os processos quadráticos: estes apresentam efeitos principais, efeitos de interação entre dois fatores diferentes e efeitos quadráticos.

Os planos FFD [III] (2 cp), FFD [IV] (2 cp), FD (2 cp) e os *Plackett-Burman* também são usados neste estudo. Estes quatro planos conseguem estimar corretamente todos os coeficientes, à exceção dos coeficientes dos efeitos quadráticos. Este resultado é o previsto, uma vez que estes planos não foram desenhados para estimar modelos quadráticos. Posto isto, estes planos não serão discutidos nos subcapítulos seguintes.

Caso se saiba que existem poucos efeitos importantes, de tal forma que sejam inferiores ao número de fatores, o plano DSD é o plano de eleição, pois consegue estimar todos os coeficientes corretamente com potência próxima de 0,05.

Na situação em que exista um número de efeitos ativos próximo do número de fatores em estudo, o plano DSD demonstrou não ser adequado pois não consegue estimar os coeficientes de interação e quadráticos corretamente.

Na Tabela 24 é apresentado um resumo das potências dos planos estudados e ainda são sugeridos os planos com melhor desempenho e menor número de experiências.

Tabela 24 – Resumo da potência e planos sugeridos para cada um dos processos quadráticos.

Tipo de processo	Resultados	Sugestão do melhor plano
5 fatores – 2 efeitos ativos	Potência ~ 0,05	<i>Definitive Screening Design</i> (13 exp.)
5 fatores – 5 efeitos ativos	<i>Definitive Screening Design</i> tem 12 coeficientes com potência > 0,10 Restantes têm potência ~ 0,05	<i>D-optimal</i> (28 exp.)
10 fatores – 3 efeitos ativos	Potência ~ 0,05	<i>Definitive Screening Design</i> (21 exp.)
10 fatores – 10 efeitos ativos	<i>Definitive screening design</i> que têm 35 coeficientes com potência > 0,10 Restantes têm potência ~ 0,05	<i>D-optimal</i> (72 exp.)

3.5.3.1 – Processo com 5 fatores

Neste subcapítulo todos os processos estudados têm 5 fatores. Dos 5 fatores, são estudados processos com 2 ou 5 efeitos ativos.

Caso o número de efeitos ativos seja inferior ao número de fatores, todos os planos estimam corretamente o modelo, no entanto, o plano DSD é o mais adequado, pois tem o menor número de experiências que os restantes planos. Na situação em que o número de efeitos ativos é próximo do número de fatores, o plano DSD não permite estimar uma grande quantidade de coeficientes, enquanto que os restantes planos (*D-optimal*, *central composite designs* com ou sem pontos centrais e *Box-Benhken* com ou sem pontos centrais) inserem corretamente os coeficientes no modelo. Assim, o melhor plano será aquele que tenha um menor número de experiências, o *D-optimal*.

3.5.3.1.1 – Processo com 2 efeitos ativos

Nesta situação, o processo em estudo tem dois efeitos ativos: $y = 6x_1 - 4x_1^2 + e$.

Relativamente aos planos, todos conseguem estimar corretamente os coeficientes, apresentando uma potência próxima de 0,05 como se pode observar na Figura 15. Atendendo a estes planos, todos têm um gráfico de barras semelhante ao apresentado na Figura 15 para o plano *Box-Behnken* sem pontos centrais, onde todos os coeficientes têm uma potência junto à linha ótima. Uma vez que todos os planos têm um desempenho semelhante, pode-se analisar o número de *outliers*. Para este plano (e ainda o BBD (2 cp)), cerca de 14% dos coeficientes inseridos no modelo (principais e interações) não deveriam ter sido estimados e, para os coeficientes de efeitos quadráticos, cerca de 12% foram inseridos erroneamente. Os planos *D-optimal*, *central composite designs* com ou sem pontos centrais inserem incorretamente 18% dos coeficientes (principais, interações e quadráticos), aproximadamente. Relativamente ao plano DSD, no caso da estimativa dos coeficientes de efeitos principais, existem cerca de 30% de *outliers*, enquanto que para os restantes coeficientes (de interação e quadráticos) existem 11% *outliers*.

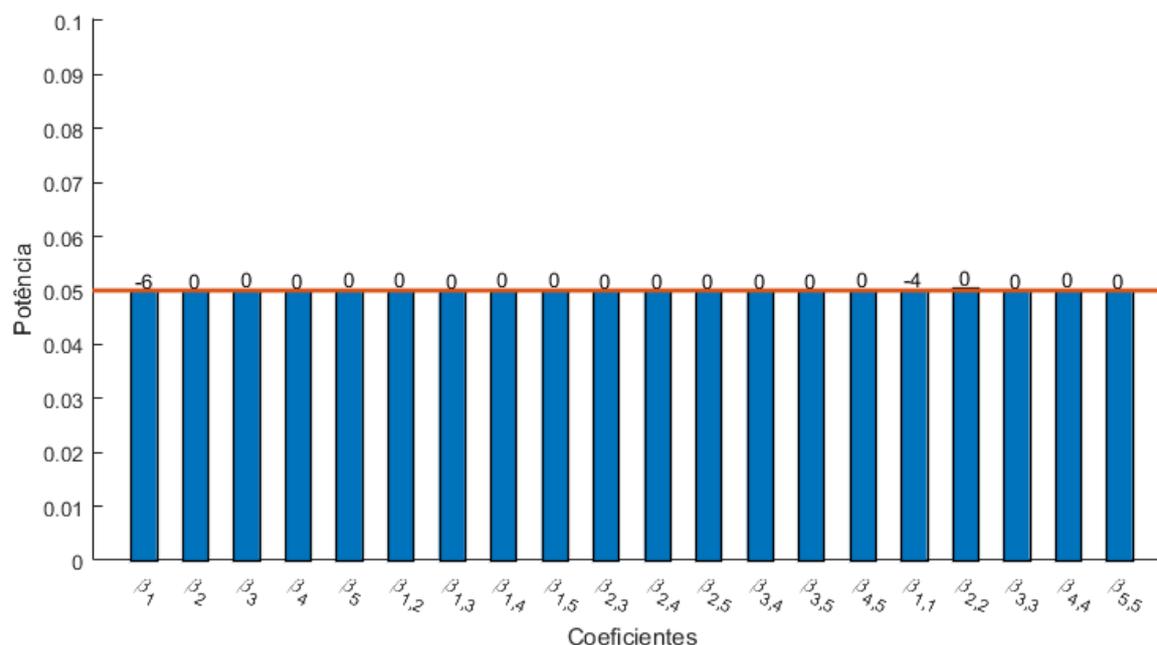


Figura 15 – Gráfico de barras para o plano *Box-Behnken* sem pontos centrais com o processo real: $y = 6x_1 - 4x_1^2 + e$. Os valores acima de cada barra correspondem às magnitudes dos coeficientes que se encontram no processo quadrático. A linha laranja apresenta o valor ideal para a potência.

3.5.3.1.2 – Processo com 5 efeitos ativos

O processo obtido para este estudo é $y = 6x_1 + 4x_2 + 4x_1x_2 + 2x_1x_3 - 4x_1^2 + e$. Todos os planos (exceto os planos fatoriais fracionados com dois pontos centrais e resolução III ou IV, fatoriais completos e *Plackett-Burman*, que não são adequados para estimar os processos quadráticos) conseguem estimar corretamente os coeficientes, com potência = 0,05, aproximadamente. Contudo, o plano DSD não estima corretamente 12 de 20 coeficientes (destes 12 coeficientes, quatro têm potência superior a 0,50) como se pode observar na Figura 16. Os únicos coeficientes que este plano consegue estimar com uma potência próxima de 0,05 são os efeitos principais, os restantes (exceto duas interações) têm uma potência superior a 0,10.

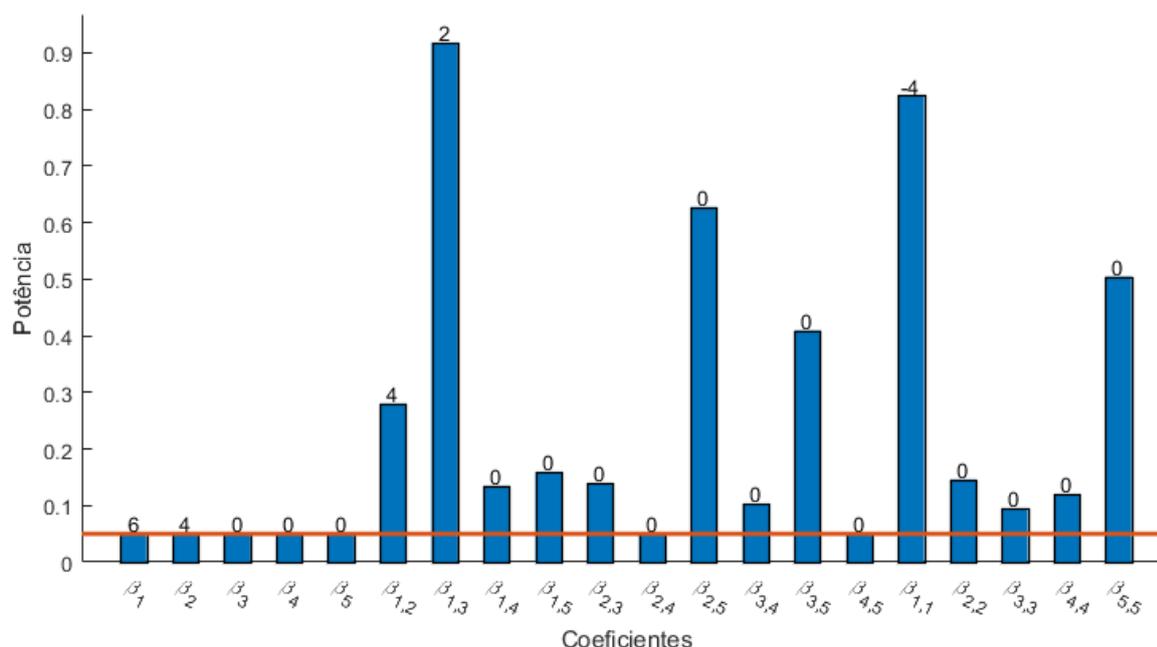


Figura 16 – Gráfico de barras para o plano *definitive screening design* para o processo: $y = 6x_1 + 4x_2 + 4x_1x_2 + 2x_1x_3 - 4x_1^2 + e$. A linha laranja corresponde ao valor ideal para a potência e os valores no gráfico são as magnitudes dos coeficientes que estão no processo quadrático indicado.

Relativamente aos *outliers*, ou seja, ao número de coeficientes que são inseridos no modelo quando, na verdade, estes não se encontram no processo, o plano *Box-Behnken* com ou sem pontos centrais estima cerca de 13% dos coeficientes principais e de interação incorretamente, bem como estima 11% dos efeitos quadráticos. Para o plano

CCD (0 cp), 19% são *outliers* de efeitos principais e de interação, enquanto que 16% são quadráticos; para o plano CCD (2 cp), a percentagem é de 17% para efeitos principais e interações e 15% para efeitos quadráticos. Estes resultados indicam que, apesar de a média dos coeficientes ser bem estimada, os planos escolhem mais vezes incorretamente efeitos principais e de interação do que efeitos quadráticos. De igual modo, o plano *D-optimal* estima incorretamente 17% dos coeficientes que não entram no processo. Por fim, o plano DSD estima incorretamente 23% dos efeitos principais (apesar de apresentarem uma potência próxima de 0,05 como referido acima), e os restantes variam entre 7% (coeficiente β_{34}) a 30% (coeficiente β_{13}) ou até 20% para efeitos quadráticos (como por exemplo o β_{55}). Para além disso, o efeito quadrático que se encontra no processo só é inserido 74,08% das vezes, enquanto que os restantes planos inserem sempre.

Assim, o melhor plano nesta situação será o *D-optimal*, uma vez que tem menos experiências que os restantes.

3.5.3.2 – Processo com 10 fatores

Relembrando, os planos fatoriais e o *Plackett-Burman* não permitem estimar efeitos quadráticos, pelo que não serão estudados neste caso. Sabendo que o número de efeitos ativos é inferior ao número de fatores, todos os planos estimam corretamente os modelos e o plano DSD é o melhor pois tem muito menos experiências (21 experiências) que os restantes (o plano seguinte com menos experiências tem 72).

Quando o número de efeitos ativos é igual ou superior ao número de fatores, o melhor plano é o *D-optimal*, uma vez que é o plano que tem o menor número de experiências (72 experiências) e tem uma potência próxima de 0,05. Nesta situação, o plano *definitive screening design* tem um péssimo desempenho, introduzindo muitos coeficientes quando estes são zero e introduzindo poucas vezes alguns dos coeficientes que se encontram no processo.

3.5.3.2.1 – Processo com 3 efeitos ativos

O processo real usado neste estudo é: $y = 6x_1 + 4x_1x_2 + 4x_1^2 + e$. Todos os planos conseguem determinar corretamente os coeficientes, com uma potência próxima de 0,05, existindo alguns coeficientes que têm uma potência próxima de 0,08. Todos os planos têm a estrutura do gráfico de barras semelhante ao da Figura 17 para o *D-optimal*. Este mostra que os coeficientes são maioritariamente bem estimados e com uma média próxima do valor real.

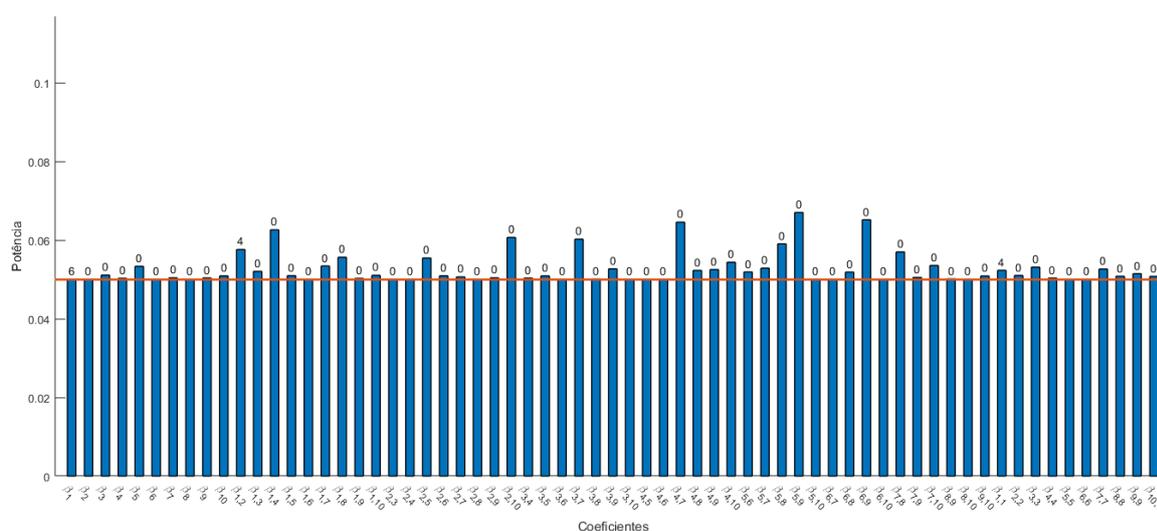


Figura 17 – Gráfico de barras para o plano *D-optimal* para o processo: $y = 6x_1 + 4x_1x_2 + 4x_1^2 + e$. A linha laranja indica o limite ótimo que a potência deve ter e os valores acima das barras indicam a magnitude dos coeficientes do processo indicado.

Para os planos BBD e CCD com ou sem pontos centrais, foram estimados cerca de 13% dos coeficientes (de efeitos principais e de interações) incorretamente, enquanto que os efeitos quadráticos foram mal estimados cerca de 11% das vezes. Relativamente ao plano *D-optimal*, este insere erroneamente qualquer coeficiente que não se encontra no modelo aproximadamente 23% das vezes. No que diz respeito ao plano DSD, este comporta-se melhor que os restantes na estimação dos coeficientes, para efeitos de interação (8%) e quadráticos (12%), isto é, estima erradamente menos vezes que os restantes planos, no entanto, adiciona 71% dos coeficientes principais ao modelo, quando estes não se encontram no processo.

3.5.3.2.2 – Processo com 10 efeitos ativos

O processo utilizado para estimar os modelos é $y = -6x_1 + 4x_2 + 4x_3 + 2x_4 + 2x_5 + 4x_1x_2 + 4x_1x_3 - 2x_1x_4 + 4x_1^2 + 2x_2^2 + e$. De todos os planos, o único que não consegue estimar corretamente os coeficientes é o DSD, onde não estima 35 dos 65 coeficientes (só consegue estimar corretamente os efeitos principais e não consegue determinar os restantes coeficientes), podendo-se observar na Figura 18. Relativamente aos outros planos, estes apresentam uma potência de 0,05 exceto o plano CCD sem pontos centrais que estima todos os coeficientes corretamente exceto o coeficiente β_{22} que tem uma potência = 0,166. A Figura 19 corrobora este resultado para este plano.

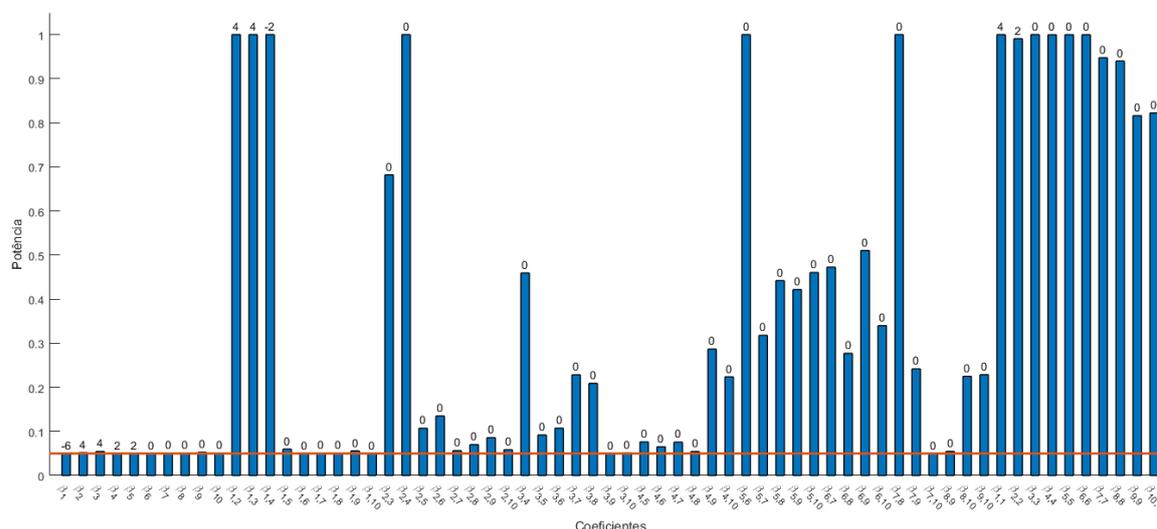


Figura 18 – Gráfico de barras para o plano DSD com o processo: $y = -6x_1 + 4x_2 + 4x_3 + 2x_4 + 2x_5 + 4x_1x_2 + 4x_1x_3 - 2x_1x_4 + 4x_1^2 + 2x_2^2 + e$. Os valores acima de cada barra correspondem aos coeficientes do processo quadrático e a linha laranja diz respeito ao valor ideal para a potência.

Os planos CCD e BBD com ou sem pontos centrais inserem no modelo incorretamente 13% dos coeficientes de efeitos principais e de interações e cerca de 11% para os efeitos quadráticos. O plano *D-optimal* estima incorretamente todos os coeficientes aproximadamente 22% das vezes. O plano DSD é o pior de todos no que diz respeito à estimação de coeficientes que não se encontram no processo: este insere no modelo cerca de 57% dos coeficientes de efeitos principais, 8% de coeficientes de

interações (na verdade, este é o melhor valor comparado com os restantes planos) e 20% de coeficientes de efeitos quadráticos. Este plano só insere cerca de 12% para o β_{11} e 40% para o β_{22} ; relativamente às interações que estão no processo, o DSD introduz 25% o coeficiente β_{12} , 51% o β_{13} e o β_{14} já consegue estimar 9% das vezes.

Para além disso, existem três coeficientes que entraram muitas vezes (entre 30 a 90%) no modelo, apesar de não aparecerem no processo. Assim, conclui-se que este plano não consegue estimar modelos cujo número de efeitos ativos seja próximo ou superior ao número de fatores.

Tendo em conta estes resultados, o melhor plano para estimar modelos quadráticos com muitos efeitos ativos é o *D-optimal*, pois, dos restantes, é o que apresenta um menor número de experiências (72 experiências).

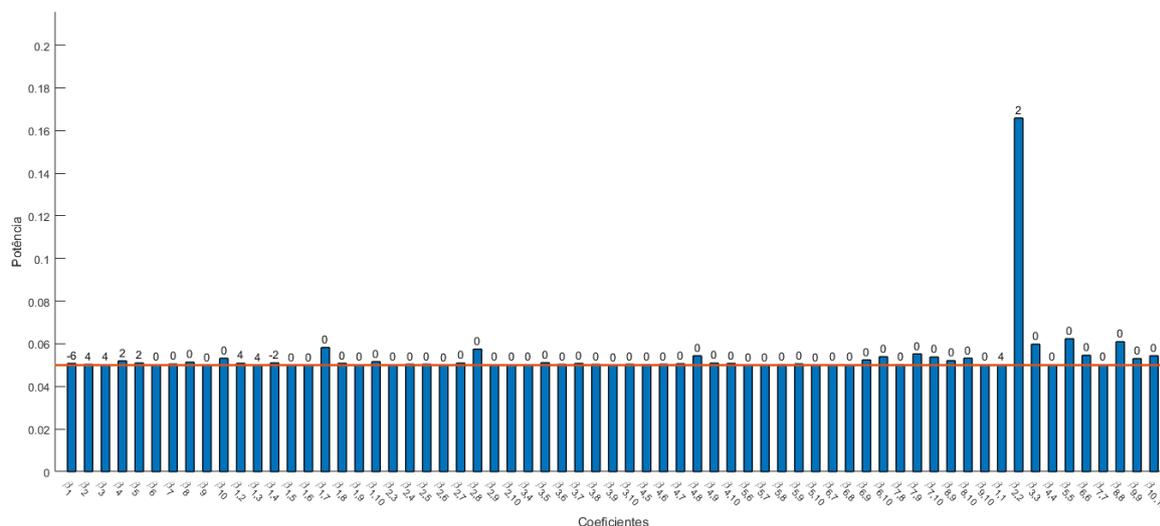


Figura 19 – Gráfico de barras para o plano *Central composite designs* sem pontos centrais com o processo: $y = -6x_1 + 4x_2 + 4x_3 + 2x_4 + 2x_5 + 4x_1x_2 + 4x_1x_3 - 2x_1x_4 + 4x_1^2 + 2x_2^2 + e$. A linha laranja corresponde ao valor ótimo para a potência e os valores acima das barras correspondem às magnitudes de cada coeficiente do processo quadrático.

Capítulo 4

4.1 – Discussão dos Resultados

O estudo pretende comparar oito planos: *central composite designs*, *Box-Behnken designs*, *Plackett-Burman designs*, planos fatoriais completos, planos fatoriais fracionados de resolução III e IV, *definitive screening designs* e *d-optimal designs*.

Ao longo da análise foram comparados os planos de *Box-Behnken* e os *central composite designs* na situação em que têm ou não pontos centrais. Primeiro, conclui-se que o número de pontos centrais não influencia o ajuste dos modelos, isto é, a estimativa dos coeficientes é igual para todas as situações. Assim, caso se pretenda utilizar algum destes planos, aconselha-se a não usar pontos centrais na situação em que o orçamento é importante. Segundo, estes planos estimam corretamente todos os coeficientes, à exceção do plano *central composite design* quando estima um modelo quadrático de 10 fatores, onde 10 efeitos são importantes. Este resultado leva a concluir que, para muitos fatores e com efeitos ativos iguais ou próximos do número de fatores, o plano CCD pode ter alguma dificuldade em estimar um ou outro coeficiente.

Relativamente à estimativa de modelos principais, observou-se que todos os planos têm um elevado desempenho com a exceção do plano *D-optimal* e do plano fatorial fracionado de resolução III. Estes dois não conseguem estimar 5 dos 10 coeficientes do processo $y = -6x_1 - 6x_2 + 4x_3 - 4x_4 + 4x_5 - 2x_6 + 2x_7 - 2x_8 - 2x_9 - 2x_{10} + e$. Isto pode significar que o número de experiências não é suficiente para realizar uma boa estimativa, pois existem 10 fatores e todos são ativos e o *D-optimal* tem apenas 16 experiências enquanto que o plano fatorial fracionado de resolução III indica 10 experiências. Uma vez que todos os planos demonstram um bom desempenho, seria interessante realizar o mesmo estudo de forma a que a relação sinal ruído seja menor de

modo a verificar a evolução do desempenho em situações mais adversas. Note-se que a simulação realizada nesta tese tem em conta que o SNR é constante para cada plano (isto é, o desvio padrão do ruído é igual a um para todos), o que implica que a dificuldade na estimativa dos coeficientes difere de plano para plano consoante a matriz *design*. Assim, seria interessante fixar o desvio padrão dos coeficientes, por exemplo 1, de forma a identificar o plano que consegue ter um bom desempenho (potência aproximadamente 0,05) mas com maior ruído associado. Deste modo, seria possível identificar o plano mais robusto ao ruído.

No que diz respeito à estimativa de modelos de interações, isto é, modelos onde efeitos principais e interações entre dois fatores diferentes são importantes, quase todos os planos têm um bom desempenho quando o estudo é com poucos fatores (5 variáveis). Só o plano fatorial fracionado de resolução III é que não consegue estimar alguns dos coeficientes, mesmo quando o número de efeitos ativos é mais baixo. Nesta situação é necessário ter em conta o número de vezes que cada plano escolhe erroneamente os coeficientes. Assim, o plano que inclui menos vezes os coeficientes no modelo quando eles não se encontram no processo é o *Definitive Screening Design*, independentemente se o número de efeitos ativos é próximo ou não do número de fatores.

Para 10 fatores com o número de efeitos ativos igual a 3, todos os planos têm um bom desempenho exceto os dois planos fatoriais fracionados. É de salientar que este resultado se deve ao facto de a resolução destes planos ser demasiado baixa, visto que para a resolução IV, só não existe confusão entre os efeitos principais e si mesmos e ainda com efeitos de interação de segunda ordem; qualquer interação é confundida. Os resultados mostram exatamente o explicado acima: os planos só conseguem estimar os efeitos principais e a maioria dos efeitos de interação nem são determinados, devido a esta confusão. Na situação exposta no subcapítulo 3.5.2.2.1 que indica que o plano FFD [IV (2 cp) não estima corretamente a primeira interação que entra no processo devendo-se ao facto de esta se confundir com a interação β_{89} .

Para 10 fatores com o número de efeitos ativos igual a 10, todos os planos apresentam um elevado desempenho à exceção dos dois fatoriais fracionados e do *Definitive Screening Design*. No que diz respeito aos planos fatoriais fracionados, os

resultados estão conforme o esperado, uma vez que existe confusão entre efeitos e estes não conseguem ser estimados separadamente. O plano *definitive screening design* tem um mau desempenho pois, como existem muitos fatores ativos, este não os consegue estimar todos porque o número de graus de liberdade é reduzido.

Ainda é necessário ter em conta o número de *outliers*: os planos que, em geral, apresentam menos *outliers* (aproximadamente 12%) são os *Box-Behnken* e os *central composite designs*, de seguida são os *D-optimal*. No entanto, o plano *definitive screening design* tem menos *outliers* nas três situações em que tem um elevado desempenho.

Sugere-se ao leitor que tenha em conta o número de efeitos que considera importante e a percentagem de *outliers* para a escolha dos planos, bem como o número de experiências que pretende realizar.

Respeitante aos planos fatoriais fracionados, aconselha-se que estes tenham no mínimo uma resolução V, pois assim garante-se que não existe confusão dos efeitos principais entre si e com interações de segunda ou terceira ordem e os efeitos de interação de segunda ordem não se confundem entre si.

Na estimativa dos modelos quadráticos, os dois planos fatoriais fracionados, o plano fatorial completo e o *Plackett-Burman* não permitem estimar os efeitos quadráticos. Estes foram usados para realizar as simulações, e os resultados corroboram este facto.

Quando o número de fatores é baixo (5 fatores), é necessário fazer uma pequena distinção no número de efeitos ativos para permitir obter as conclusões. Quando existem menos efeitos ativos do que fatores, todos os planos apresentam um elevado desempenho. Tendo em conta que a potência destes planos é aproximadamente 0,05, tornou-se oportuno observar a percentagem de *outliers*. O plano que apresenta uma percentagem mais baixa de *outliers* (perto de 11%) para efeitos de interação e quadráticos é o *definitive screening design*; a percentagem de efeitos principais que foram inseridos no modelo quando não deviam é mais baixa para o plano *Box-Behnken* (14% para o BBD versus 30% para o DSD). É necessário ter estes resultados em conta quando se pretende escolher o plano mas, nesta situação, aconselha-se o uso do plano DSD pois este tem uma diferença muito grande de experiências (13 experiências) relativamente ao plano seguinte

(*D-optimal* com 28 experiências). Caso o número de experiências não seja relevante, aconselha-se o uso do plano *Box-Behnken* por apresentar menos *outliers*.

Quando o número de efeitos ativos é próximo do número de fatores (5 efeitos ativos), todos os planos têm elevado desempenho à exceção do plano *definitive screening design*. Isto acontece, pois o plano não tem graus de liberdade suficientes para determinar tantos efeitos ativos, portanto é logo descartado para a situação em que o número de efeitos importantes é próximo do número de fatores (onde existem poucos fatores). Relativamente à percentagem de *outliers*, o plano com menos *outliers* é o *Box-Behnken* (13%), seguido do *D-optimal* (17%) e *central composite design* (18%). O plano DSD apresenta coeficientes com poucos *outliers* (ainda menos que os outros planos), mas os principais e uma das interações tem uma percentagem próxima de 20%. Como o DSD já tem um mau comportamento, isto é estima incorretamente os coeficientes, a percentagem de *outliers* não influencia na tomada de decisão. Assim, os melhores planos são o *Box-Behnken* e o *D-optimal*, pois apresentam uma percentagem de *outliers* baixa e, destes dois, escolhe-se consoante o número de experiências seja importante.

Para um número de fatores igual a 10, também é necessário fazer distinção entre o número de efeitos importantes. Se existirem menos efeitos importantes (3 efeitos ativos) do que fatores, todos os planos apresentam um elevado desempenho e o melhor plano será aquele que tem um número de *outliers* mais baixo. Quando os *outliers* são efeitos de interação ou quadráticos, o melhor plano é o DSD com aproximadamente 8%. Se estes forem relativos a efeitos principais, o plano DSD já tem cerca de 70% *outliers* e o melhor é o *Box-Behnken* (13%), seguido do *central composite design* (14%) e *D-optimal* (22%). Assim, se o número de experiências N não é importante, aconselha-se o uso dos planos BBD ou CCD; se este número, N , afetar, aconselha-se o uso do plano *D-optimal*.

Na situação em que o número de efeitos ativos é próximo do número de fatores (10 efeitos ativos), o plano DSD não consegue estimar muitos dos efeitos corretamente e entende-se que este não se pode aplicar neste caso. Para além disso, o plano *central composite design* não conseguiu estimar um efeito quadrático que entra no processo, mostrando que este também começa a ter dificuldades na estimativa de coeficientes de efeitos quadráticos quando existem muitos efeitos ativos. Por fim, os planos têm um bom desempenho e aconselha-se o leitor a usar o plano BBD na situação em que o número de

experiências não afeta o orçamento, pois estima menos *outliers* que o *D-optimal* (12% versus 23% do *D-optimal*).

Como estudo complementar, também foi realizada uma análise ao plano DSD onde os coeficientes são os mesmos para cada situação do processo quadrático mas a magnitude dos efeitos quadráticos ativos substituída por 2, isto é, aqueles efeitos quadráticos que tenham uma magnitude de -4 passam a ter uma magnitude de -2 . Esta substituição permite determinar se o plano DSD se comporta da mesma forma e ainda consegue estimar estes coeficientes com magnitude mais baixa. O que se observou foi que estes efeitos nunca são estimados e o plano tem um desempenho ainda pior. Assim pode-se concluir que a magnitude dos coeficientes dos efeitos quadráticos terá de ser acima ou igual à magnitude dos efeitos de interação, isto é, 4 vezes o desvio padrão do ruído.

Uma vez que os planos não são muito genéricos, isto é, estes não foram desenhados para todos os casos apresentados no Subcapítulo 3.5, é difícil escolher um plano que se destaque no fim deste estudo. Esta dificuldade deve-se ao facto de ser necessário ter em conta se o leitor pretende ignorar a percentagem elevada de *outliers* de alguns planos a favor do número de experiências. Portanto, cada caso terá de ser estudado individualmente como realizado acima e, cabe ao leitor fazer a escolha mais sensata.

Tendo em conta toda esta discussão, no subcapítulo seguinte é apresentado um caso prático onde são indicadas as condições necessárias para a escolha do melhor plano. Após a escolha do plano, são simuladas as experiências como explicado no Subcapítulo 3.2 e verifica-se se o plano escolhido determinou corretamente o modelo.

4.2 – Caso Prático

Uma vez determinadas as condições de aplicação de cada um dos planos, procede-se a um exemplo prático. Neste caso, o estudo a realizar é semelhante, isto é, usa-se um processo real para simular as experiências com o plano mais indicado para a situação e depois os resultados são ajustados. O processo real não é uma equação escolhida de acordo com os princípios do DoE, mas sim a equação obtida no caso prático. Assim, este processo será comparado com o modelo estimado de forma a corroborar as conclusões obtidas.

O caso prático [32] diz respeito à otimização de uma técnica que permite extrair analitos/componentes químicos de amostras (*Headspace – Solid Phase Microextraction*, HS – SPME) usando um plano ótimo de planeamento de experiências que permite quantificar a presença de dois compostos presentes na cerveja. Estes compostos são designados por *vicinal diketones* (VDK) e são produzidos pelo fermento durante a fermentação da cerveja. Usando a cromatografia gasosa associada a espectrometria de massa (GC – MS) em conjunto com o HS – SPME é possível determinar a presença de VDK e quantificá-los. Inicialmente foram selecionados os fatores que se pensa que afetam o funcionamento do HS – SPME, obtendo-se a lista apresentada na Tabela 25.

Tabela 25 – Fatores com respetivas magnitudes para otimizar o desempenho de extração do HS – SPME, adaptado de Leça *et al* (2015) [32].

Fator	Qualitativo/Quantitativo	Nível
Tipo de fibra	Qualitativo	{L ₁ – tipo 1, L ₂ – tipo 2, L ₃ – tipo 3}
Volume da amostra	Qualitativo	{5, 10}
Tempo de pré-incubação	Quantitativo	[0, 10]
Tempo de extração	Quantitativo	[5, 25]
Temperatura de extração	Quantitativo	[30, 50]
Agitação	Qualitativo	{L ₁ – Sim, L ₂ – Não}

Neste caso prático, pretende-se determinar o modelo ótimo de funcionamento do HS – SPME. O modelo obtido por Leça *et al* (2015) [32] é apresentado na Tabela 26 e será a base para a construção do processo de interações. Uma vez que o tipo de fibra é

qualitativo e a simulação só foi realizada para fatores quantitativos, os termos que dizem respeito a este fator não serão considerados neste estudo, aparecendo aqueles que têm o símbolo “ # ” na Tabela 26. Ainda existem outros dois fatores qualitativos: a agitação e o volume da amostra. A agitação também será desprezada na simulação e o volume da amostra será considerado como quantitativo.

Tabela 26 – Termos do modelo de interações para otimização do HS – SPME, adaptado de Leça *et al* (2015) [32].

Termo	Estimativa	Desvio padrão
Interseção #	2.228.533	99.982,21
Tipo de fibra [L ₁]	-1.454.499	146.721,3
Tipo de fibra [L ₂]	913.620,59	141.551,6
Volume da amostra [5 ml] #	355.669,69	99.221,17
Tipo de fibra [L ₁] * volume da amostra [5 ml]	- 432.678	143.497,8
Tipo de fibra [L ₂] * volume da amostra [5 ml]	687.234,14	141.018,1
Tempo de incubação * temperatura de extração #	- 431.314	104.597,3
Tempo de extração * volume da amostra#	328.093,19	103.677,2

A Equação (12) representa o processo de interações utilizado para realizar a simulação das experiências e posterior comparação.

$$S = 2.228.533 + 355.669,69x_1 + 328.093,19x_1x_3 - 431.314x_2x_4 + e \quad (12)$$

S corresponde à resposta: soma da área dos picos; x_1 corresponde ao volume da amostra; x_1x_3 diz respeito à interação tempo de extração * volume da amostra, x_2x_4 corresponde à interação tempo de incubação * temperatura de extração e, por fim, é adicionada a interseção.

Como se pretende aproximar a simulação à situação real, o desvio padrão dos coeficientes estimados terá de ser semelhante, pelo que se escolheu um desvio padrão do erro de 10 000, o que permitiu obter um desvio padrão dos coeficientes próximo do real. As experiências simuladas serão realizadas segundo explicado no Subcapítulo 3.2 para cada plano, obtendo-se um conjunto de 10 000 modelos. Não obstante, neste caso, a interseção é incluída no processo.

Seguindo as linhas de orientação discutidas no estudo anterior (Subcapítulo 4.1), prevê-se que o melhor plano seja o *Definitive Screening Design*. Este plano é o mais adequado para determinar modelos de interações com um número reduzido de fatores e um número de efeitos ativos idêntico. No entanto as experiências são simuladas com todos os planos de forma a confirmar esta adequação. Para além disso, DSD é o plano que tem menos experiências (13 experiências), uma potência próxima de 0,05 e poucos *outliers*. Não é aconselhável usar os planos fatoriais fracionados, mesmo tendo só 10 experiências cada, pois estes têm dificuldade em estimar as interações e este processo tem interações importantes.

A Figura 20 apresenta a potência para o plano DSD e é possível observar que o DSD consegue estimar corretamente todos os coeficientes. A percentagem de *outliers* para todos os planos situa-se abaixo dos 10% e o DSD estima erradamente 8% das vezes, enquanto que o *central composite design* ou o *Box-Behnken design* estimam incorretamente cerca de 7% das vezes. Estes dados comprovam que o plano DSD é uma boa escolha pelo facto de, com menos experiências, conseguir estimar corretamente os coeficientes e não inserir muitas vezes os coeficientes que não se encontram no processo prático.

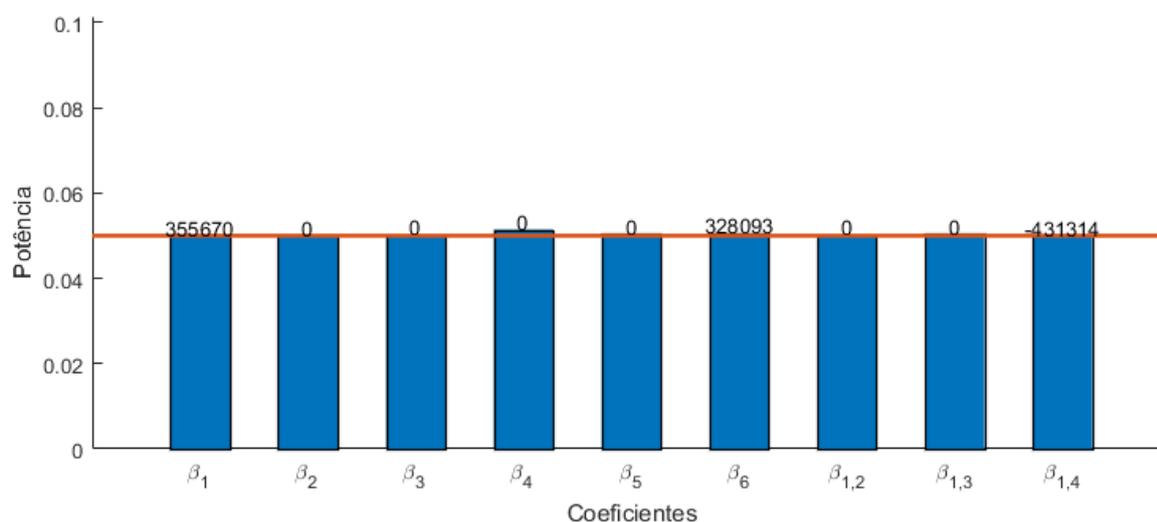


Figura 20 – Gráfico de barras para o plano DSD para o processo $S = 2.228.533 + 355.669,69x_1 + 328.093,19x_1x_3 - 431.314x_2x_4 + e$. A linha laranja corresponde ao valor ótimo que a potência deve ter e os valores acima das barras são as magnitudes do processo prático.

Capítulo 5

Conclusões e Trabalho Futuro

Este estudo permitiu dar mais confiança na escolha dos planos mais indicados para o tipo de modelos a estimar e quantidade de fatores e efeitos ativos.

Dado que os planos estudados não são genéricos, não é possível escolher um que apresente um melhor desempenho globalmente no entanto, o plano *Definitive Screening Design* apresenta uma potência próxima de 0,05 para 9 dos 12 casos simulados.

No que respeita aos planos *Box-Behnken* e *Central Composite Designs*, observou-se que o número de pontos centrais não influencia a capacidade de estimar corretamente os modelos. Estes apresentam um elevado desempenho em todas as situações, no entanto, incluem alguns *outliers* aos modelos. Relembrando, um *outlier* corresponde a um efeito ajustado ao modelo e que não se encontra no processo. O único plano que apresentou um baixo desempenho foi o *central composite* que não conseguiu estimar um efeito quadrático que se encontrava no processo, na situação em que o modelo tinha 10 fatores importantes.

Relativamente aos planos fatoriais (fracionados e completos), estes só têm um bom desempenho na estimativa de processos principais. Estes planos foram desenhados para estimar até efeitos de interação. Contudo, estes foram usados para simular experiências e estimar processos quadráticos de modo a confirmar a sua aplicabilidade e tal foi verificado. Os processos de interações não são estimados corretamente por estes planos uma vez que estes tinham resolução baixa, existindo correlação entre os efeitos. Já o plano fatorial completo consegue estimar o processo, no entanto, este necessita de muitas experiências para obter estes resultados. Os planos *Plackett-Burman* são relativamente bons na estimativa de modelos principais, contudo, estes têm um desempenho relativamente baixo e semelhante ao dos planos fatoriais fracionados.

O plano *D-optimal* tem um desempenho elevado em 11 dos 12 processos, no entanto, em alguns deles, apresentam mais *outliers* que os planos *Box-Behnken*, os *central composite designs* ou os *definitive screening designs*. Para além disso, este plano tem um elevado número de experiências e é preferível escolher um plano com um desempenho semelhante e com menos experiências.

Ainda seria interessante repetir este estudo por forma a que a relação entre o sinal e o ruído fosse menor, o que permitiria conhecer a evolução do desempenho em situações adversas. Futuramente seria um caso a analisar e a simulação seria semelhante à realizada neste estudo com a diferença do desvio padrão do ruído e dos coeficientes. Nesta situação, o desvio padrão do ruído seria calculado tendo em conta o desvio padrão dos coeficientes, onde este último (o desvio padrão dos coeficientes) seria igual para todos, o que implica que a dificuldade na estimativa dos coeficientes seja semelhante para todos os planos.

Adicionalmente, sugere-se determinar os modelos usando o plano *Definitive Screening Design* para simular experiências de forma a poder comparar com o método de *stepwise regression*. Esta comparação irá permitir determinar qual o método de análise que tem um melhor desempenho na estimação de modelos.

Referências

1. Wu, C.-F. and M. Hamada, *Experiments : planning, analysis, and optimization*. 2nd ed. Wiley series in probability and statistics. 2009, Hoboken, N.J.: Wiley.
2. Fisher, R.A., *The design of experiments*. 3rd ed. 1942, Edinburgh: Oliver and Boyd.
3. Box, G.E.P., J.S. Hunter, and W.G. Hunter, *Statistics for experimenters : design, innovation, and discovery*. 2nd ed. Wiley series in probability and statistics. 2005, Hoboken, N.J.: Wiley-Interscience.
4. Montgomery, D.C., *Introduction to statistical quality control*. 5th ed. 2009, Hoboken, N.J.: John Wiley.
5. Neter, J., W. Wasserman, and M.H. Kutner, *Applied linear regression models*. 1983, Homewood, Ill.: R.D. Irwin.
6. Collier, S., *DOE Improves Throughput in Manufacturing of Key Intermediate*. Pharmaceutical Manufacturing, 2013.
7. Anderson, M.J.A., Jiju; Coleman, Shirley Y.; Johnson, Rachel T.; Montgomery, Douglas C., *Design of Experiments for Non-Manufacturing Processes: Benefits, Challenges, and Some Examples*. Journal of Engineering Manufacture, 2011.
8. Finney, D.J., *The Fractional Replication of Factorial Arrangements* Annals of Eugenics, 1943.
9. Jones, B. and C.J. Nachtsheim, *A Class of Three-Level Designs for Definitive Screening in the Presence of Second-Order Effects*. Journal of Quality Technology, 2011. 43, N. 1.
10. Jones, B. and C.J. Nachtsheim, *Definitive Screening Designs with Added Two-Level Categorical Factors*. Journal of Quality Technology, 2013. 45, N. 1.
11. Behnken, D.W.a.B., G. E. P., *Some New Three Level Designs for the Study of Quantitative Variables*. Technometrics, 1960. 2, N.4.
12. Atkinson, A.C. and A.N. CDoney, *The Construction of Exact D-Optimal Experimental Designs with Application to Blocking Response Surface Designs*. Biometrika, 1989.
13. Fedorov, V.V., G. Montepiedra, and C.J. Nachtsheim, *Optimal design and the model validity range*. Journal of Statistical Planning and Inference, 1998. 72.
14. Goos, P. and B. Jones, *Optimal design of experiments : a case study approach*. 2011, Hoboken, N.J.: Wiley.

15. Hamada, M. and C.F.J. Wu, *Analysis of Design Experiments with complex aliasing*. Journal of Quality Technology, 1991: p. 1-23.
16. Sanchez, S.M. *Work Smarter, Not Harder: Guidelines for Designing Simulation Experiments*. in *Winter Simulation Conference*. 2005.
17. Cochran, W.G. and G.M. Cox, *Experimental designs*. 2d ed. A Wiley publication in applied statistics. 1957, New York,: Wiley.
18. John, P.W.M., *Statistical design and analysis of experiments*, in *Classics in applied mathematics* 22. 1998, Society for Industrial and Applied Mathematics: Philadelphia, Pa.
19. Meyer, R.K. and C.J. Nachtsheim, *The Coordinate-Exchange Algorithm for Constructing Exact Optimal Experimental Designs*. Technometrics, 1995. 37, N.1.
20. Xiao, L.L., D.K.J. Lin, and F.S. Bai, *Constructing Definitive Screening Designs Using Conference Matrices*. Journal of Quality Technology, 2012. 44, N. 1.
21. Xu, H., *An Algorithm for Constructing Orthogonal and Nearly-Orthogonal Arrays With Mixed Levels and Small Runs*. Technometrics, 2002.
22. Wang, J.C. and C.F.J. Wu, *Nearly Orthogonal Arrays Eith Mixed Levels and Small Runs*. Technometrics, 1992.
23. Jones, B. and C.J. Nachtsheim, *Blocking Schemes for Definitive Screening Designs*. Technometrics, 2016. 58, N. 1.
24. Knodler, K., et al., *Genetic Algorithms Can Improve the Construction of D-Optimal Experimental Designs*. 2001.
25. *JMP PRO®*, Version <12>. SAS Institute Inc., Cary, NC, 1989-2016.
26. *MATLAB and Statistics Toolbox Release 2016a*, The MathWorks, Inc., Natick, Massachusetts, United States.
27. Draper, N.R. and H. Smith, *Applied regression analysis*. 3rd ed. Wiley series in probability and statistics Texts and references section. 1998, New York: Wiley.
28. Jones, B., *Analysis of Definitive Screening Designs*. 2016, JMP Discovery Conference, SAS Institute Inc.
29. Cohen, J., *Statistical power analysis for the behavioral sciences*. 2nd ed. 1988, Hillsdale, N.J.: L. Erlbaum Associates.
30. Cashen, L.H. and S.W. Geiger, *Statistical Power and the Testing of Null Hypotheses: A Review of Contemporary Management Research and Recommendations for Future Studies*. Organizational Research Methods, 2004. 7, N.2.
31. Dyba, T., V.B. Kampenes, and D.I.K. Sjøberg, *A systematic review of statistical power in software engineering experiments*. Information and Software Technology 2005.
32. Leça, J.M., A.C. Pereira, and e. al, *Optimal design of experiments applied to headspace solid phase microextraction for the quantification of vicinal diketones in beer through chromatography-mass spectrometric detection*. Analytica Chimica Acta, 2015. 887.