

REGRESSÃO MULTIVARIADA APLICADA NA OTIMIZAÇÃO DA PERFORMANCE DE ULTRACENTRÍFUGAS A CONTRACORRENTE – UM CASO PRELIMINAR

Elder Migliavacca
Delvonei Alves de Andrade

Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária
CEP 05508-970 – São Paulo – SP
Tel.: 3817-7599
IPEN/CNEN
emgvacca@usp.br
delvonei@ipen.br

Resumo. A metodologia de matriz de covariância e método de mínimos quadrados são aplicados na determinação de uma curva de ajuste de um conjunto de 173 experimentos realizados com uma ultracentrífuga a contracorrente para a obtenção de uma função de desempenho que define o poder ou capacidade de separação da ultracentrífuga δU em função de variáveis experimentalmente controláveis. São consideradas as incertezas das variáveis que exercem uma influência significativa nos valores do δU , que são o corte θ e o fluxo de alimentação F , determinando assim uma matriz de covariância dos dados experimentais do δU . A obtenção da curva de ajuste se dá através de um programa em linguagem FORTRAN, fornecendo as estimativas dos coeficientes da regressão e a estimativa do qui-quadrado reduzido que indica a qualidade de ajuste do modelo proposto. É feita uma análise de resíduos para determinar a ausência de heteroscedasticidade; verifica-se graficamente como a curva é ajustada aos pontos experimentais e através da construção dos gráficos de superfície, podem-se determinar valores ótimos das variáveis de resposta.

Palavras Chave: Ultracentrifugação, Hexafluoreto de Urânio, Separação Isotópica, Matriz de Covariâncias, Método dos Mínimos Quadrados.

1. INTRODUÇÃO

O processo de separação isotópica por ultracentrifugação gasosa (Jordan, 1980) utiliza o princípio da força centrífuga para criar um gradiente de densidade num gás contendo componentes de diferentes pesos moleculares. O efeito elementar de separação ocorre numa ultracentrífuga, Fig. (1), que separa o material de alimentação (UF_6), em duas frações, uma enriquecida (produto) e outra empobrecida (rejeito) no isótopo de interesse ($^{235}UF_6$). A avaliação do desempenho e capacidade de produção da ultracentrífuga é feita usualmente através do trabalho necessário à separação de isótopos, que é proporcional à quantidade de material processado e ao grau de separação obtido. Denotando por F , P e W , os fluxos das correntes de alimentação, produto e rejeito, e por z , y e x , as respectivas composições do isótopo desejado $^{235}UF_6$, a variável dependente que melhor define a eficiência de separação de qualquer unidade de separação de isótopos é o poder ou capacidade de separação δU que é dado pela seguinte expressão:

$$\delta U = P * \frac{R_p - 1}{R_p + 1} * \ln R_p + W * \frac{R_w - 1}{R_w + 1} * \ln R_w - F * \frac{R_f - 1}{R_f + 1} * \ln R_f \quad (1)$$

onde as variáveis de operação são os fluxos de alimentação F , produto P e rejeito W e as variáveis de resposta do processo são as razões de abundância de produto $R_p=y/(1-y)$ e de rejeito $R_w=x/(1-x)$.

2. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Um ensaio de separação isotópica é executado através da operação de uma ultracentrífuga numa estação de ensaios experimental esquematizada na Fig. (2). A ultracentrífuga recebe um fluxo F de alimentação do gás de processo (UF_6) e promove a sua separação em duas correntes P de produto e W de rejeito, que têm suas composições analisadas por espectrometria de massas e fornecem os respectivos valores das razões de abundância R_p e R_w , permitindo o cálculo do δU através da Eq.(1). Definindo o corte θ como sendo a relação entre os fluxos de produto e de alimentação e fixando uma condição de pressão na linha de retirada de produto, obtêm-se vários pontos experimentais com variação de corte θ e de fluxo F , permitindo obter uma função de desempenho da ultracentrífuga do tipo $\delta U(F, \theta)$.

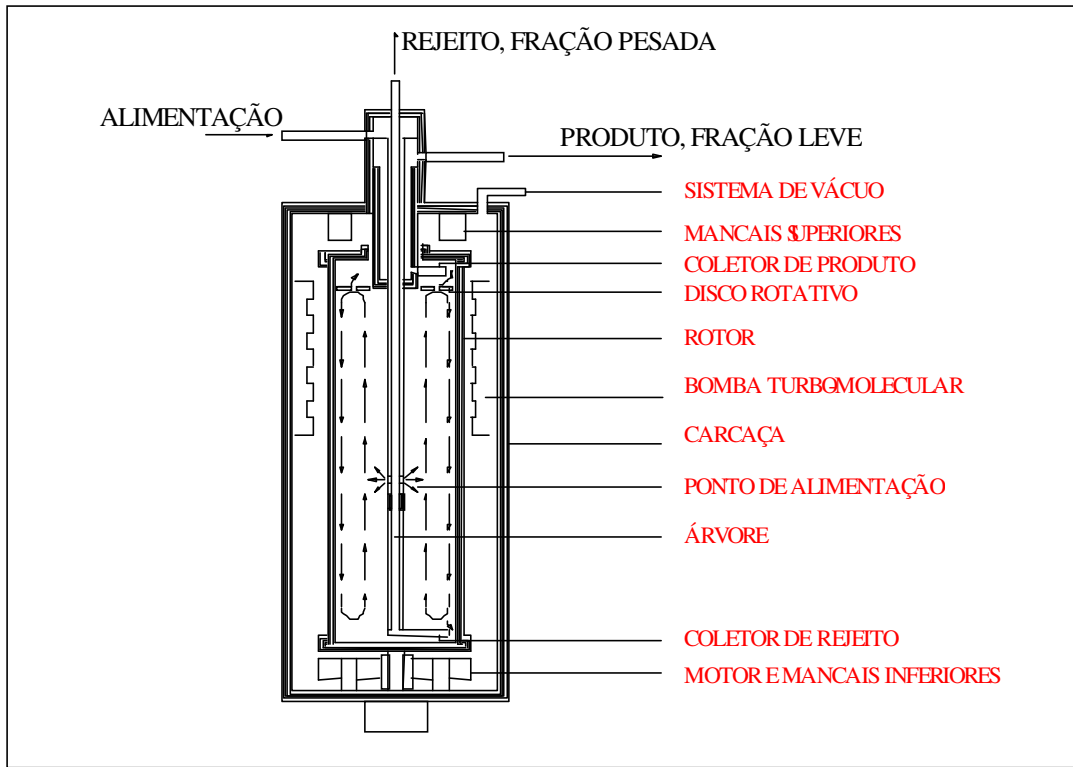


Figura 1. Esquema de uma centrífuga a contracorrente.

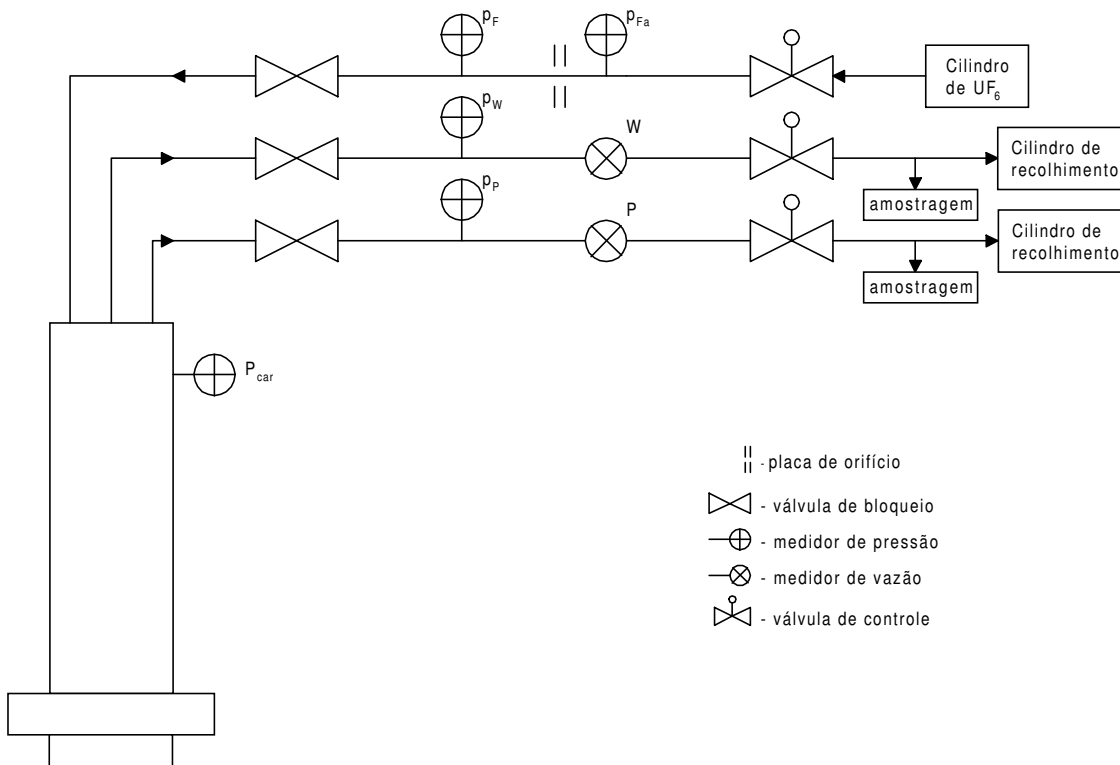


Figura 2. Esquema de uma Estação de Ensaio Instrumentada.

3. METODOLOGIA DE MÍNIMOS QUADRADOS COM MATRIZ DE COVARIÂNCIA

As medidas das variáveis R_p , R_w , P e W , envolvidas no cálculo do δU da ultracentrífuga, apresentam incertezas correlacionadas, determinando uma covariância entre elas. Essas incertezas são propagadas na Eq.(1) e permitem obter a incerteza final do δU segundo a expressão (Cowan,1998):

$$(\sigma_{\delta U})^2 \approx \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial \delta U}{\partial x_i} \right)^2 \sigma_i^2 \quad (2)$$

onde x_i representam as variáveis independentes R_p , R_w , P e W e σ_i^2 são as suas respectivas variâncias. As variâncias de R_p e R_w são obtidas diretamente da análise por espectrometria de massas e as variâncias de P e W são calculadas através de curvas de calibração dos medidores de fluxo mássico.

Cada elemento da matriz de covariâncias dos dados experimentais do δU é calculado através da expressão:

$$(V_{\delta U})_{ij} = \sum_{l=1}^L \rho_{lji} e_{il} e_{jl} \quad (i, j = 1, n) \quad (3)$$

onde e_{il} , e_{jl} são as magnitudes das incertezas parciais de cada variável independente R_p , R_w , P e W , e ρ_{lji} são os parâmetros de micro-correlação entre essas incertezas, para cada efeito l , atribuído a cada variável independente. A análise do processo permite determinar valores para essas micro-correlações com segurança. O ajuste dos dados experimentais do δU através de uma função de desempenho do tipo $\delta U(F, \theta)$ é feito através da relação entre δU e (F, θ) , que pode ser escrita segundo um polinômio de segunda ordem do tipo:

$$Y = \beta_0 + \sum \beta_i x_i + \sum \beta_{ii} x_i^2 + \sum \beta_{ij} x_i x_j + \sum \beta_{iii} x_i^2 x_j + \sum \beta_{ijj} x_i^2 x_j^2 \quad i \neq j \quad (4)$$

onde Y é a resposta (δU), β_i são os coeficientes da equação e x_i e x_j são as variáveis controladas (F , θ). Esta equação pode ser usada para avaliar os efeitos linear, quadrático e de interação entre essas variáveis, determinando a formação da matriz projeto A , que contém todas as variáveis explicativas do modelo ajustado. A expressão (4) é linear nos parâmetros β_i e embora se possa proceder o ajuste por mínimos quadrados para qualquer função, os valores resultantes para o qui-quadrado e para os estimadores, possuem nesse caso propriedades desejáveis, a saber: os estimadores e sua variâncias podem ser obtidos analiticamente, os mesmos possuem "bias" zero e variância mínima, não importando o número de experimentos e a função de distribuição dos valores experimentais. A aplicação do método dos mínimos quadrados (Smith, 1981 e 1993) com matriz de covariância, equivale a obter o valor mínimo para a forma quadrática Q :

$$Q = (\delta U_{\text{exp}} - \delta U_{\text{calc}})^t * V_{\delta U}^{-1} * (\delta U_{\text{exp}} - \delta U_{\text{calc}}) \quad (5)$$

onde $\delta U_{\text{calc}} = A\beta$, com β sendo o vetor das estimativas dos coeficientes da equação ajustada. Nas condições em que: (i) os dados experimentais do poder de separação (δU) sejam distribuídos de acordo com uma normal com matriz de covariância conhecida, permitindo então utilizar a estatística qui-quadrado; (ii) a função de ajuste representada pela Eq.(4) seja linear nos coeficientes β_i , possibilitando a obtenção de uma solução analítica para a Eq.(5) e (iii) a forma funcional da função de ajuste, representada pela Eq.(4) seja correta, isto é permite obter o desvio mínimo entre os valores experimentais e os valores preditos, então a forma quadrática Q segue uma distribuição qui-quadrado que permite avaliar a qualidade do ajuste obtido (Cowan, 1998).

Minimizando a Eq.(5), o vetor β é obtido através da expressão matricial:

$$\beta = V_{\beta} A^t V_{\delta U}^{-1} \delta U_{\text{exp}} \quad (6)$$

onde a matriz de covariância da solução β é dada através da expressão:

$$V_{\beta} = (A^t V_{\delta U}^{-1} A)^{-1} \quad (7)$$

permitindo obter as variâncias e covariâncias das estimativas dos coeficientes da curva ajustada aos pontos experimentais. A obtenção da curva de ajuste se dá através de um programa em linguagem FORTRAN (Migliavacca, 2004).

4. RESULTADOS

Os dados experimentais utilizados neste trabalho foram obtidos em ensaios com uma única ultracentrífuga, fixando-se a pressão na linha de retirada de produto e variando-se o corte θ em 7 níveis e o fluxo de alimentação F , resultando um total

de 173 experimentos válidos. Os dados sensíveis dos experimentos foram codificados e são apresentados em unidades arbitrárias. Os valores experimentais das razões isotópicas R_F , R_P e R_W , e dos fluxos F, P e W, com as respectivas incertezas; os valores experimentais do poder de separação δU e corte θ , estão apresentados na Tab. (1). Na Tab. (2), estão apresentadas as estimativas dos coeficientes da equação ajustada, onde os coeficientes não significativos foram excluídos, os valores das suas variâncias e covariâncias no triângulo superior, suas correlações no triângulo inferior, os valores do qui-quadrado e qui-quadrado reduzido, juntamente com a probabilidade de exceder esse valor.

Tabela 1. Valores codificados das variáveis e suas incertezas

exp	R_F (x10 ⁻⁰⁴)	R_P (x10 ⁻⁰³)	R_W (x10 ⁻⁰⁴)	σ_{R_F} (x10 ⁻⁰⁶)	σ_{R_P} (x10 ⁻⁰⁷)	σ_{R_W} (x10 ⁻⁰⁷)	P	W	σ_P	σ_W	θ	δU
1	9.8086	1.1982	8.9588	1.1900	4.2337	4.1101	67.478	75.853	0.124	0.734	0.4631	1.02
2	9.8114	1.1622	9.0964	2.3143	12.1834	0.7963	98.048	102.216	0.112	0.675	0.4995	1.01
3	9.8114	1.1645	9.0994	2.3143	15.8560	8.6754	97.547	102.216	0.112	0.675	0.4945	1.03
4	9.8114	1.1619	9.1356	2.3143	6.6741	28.5177	98.048	102.216	0.112	0.675	0.4922	0.98
5	9.8014	1.1784	9.0483	2.0429	18.4626	1.3692	86.021	90.278	0.116	0.700	0.4790	1.04
6	9.8014	1.1779	9.0272	2.0429	6.7377	12.4331	85.018	91.273	0.117	0.698	0.4837	1.05
7	9.8014	1.1729	9.0604	2.0429	19.3306	5.8728	86.021	90.278	0.116	0.700	0.4863	0.99
...
173	9.8971	1.0970	8.1057	0.5257	1.5282	5.0529	80.5081	22.1319	0.118	0.883	0.7863	0.50

Tabela 2. Estimativas dos coeficientes, matrizes de covariância e de correlação

	coeficientes	β_0	β_1	β_2	β_{11}	β_{22}	β_{112}
β_0	-0,2845	0,005	-3,98E-04	-2,86E-05	4,36E-03	0,0000	3,80E-06
β_1	2,8816	-0,042	0,018	-2,07E-05	-2,7E-03	0,0000	2,31E-05
β_2	8,857E-03	-0,811	-0,319	2,33E-07	2,60E-05	0,0000	0,0000
β_{11}	-3,9892	0,453	-0,168	-0,399	0,017	0,0000	0,0000
β_{22}	-2,75E-05	0,582	0,171	-0,899	0,422	1,73E-12	0,0000
β_{112}	3,458E-03	-0,109	-0,365	0,329	-0,727	-0,412	2,28E-07
R^2	0,9931	χ^2	177,16	χ^2_{red}	1,06	$P(\chi^2 > 177,16)$	39,8%

Após a obtenção da equação do modelo reduzido, o valor do coeficiente de determinação (R^2) é mostrado na Tab. (2). Nas Fig. (3) e (4) estão apresentados os gráficos dos resíduos em função das variáveis controladas, permitindo avaliar o grau de heteroscedasticidade (Vasconcellos e Portella, 2001) dos resíduos do modelo de regressão.

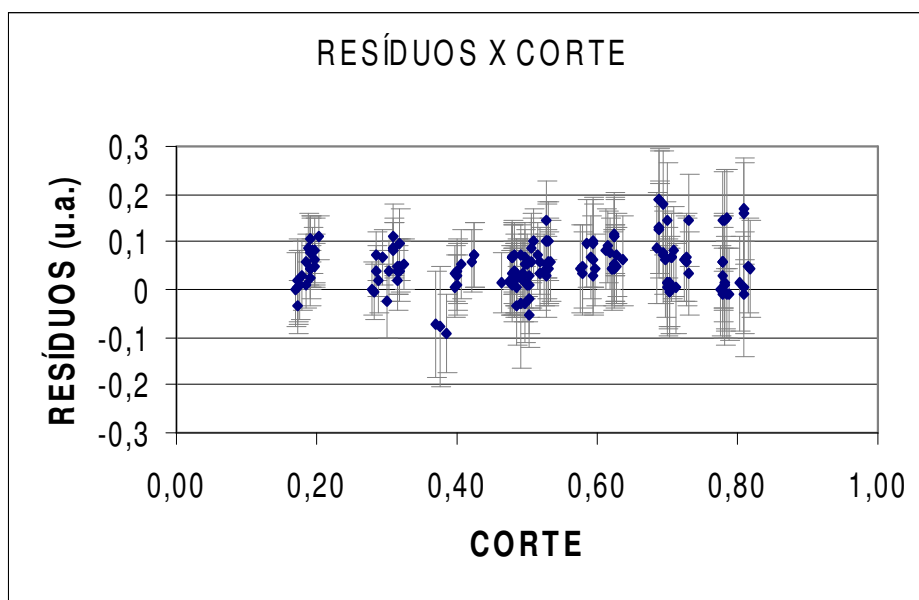


Figura 3. Resíduos em função de θ .

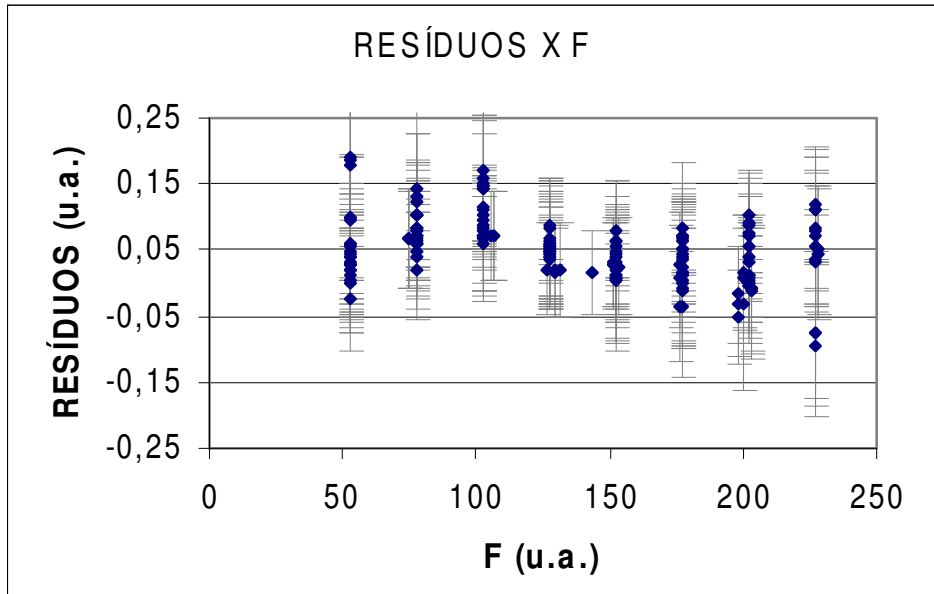


Figura 4. Resíduos em função de F.

As Fig. (5) e (6) permitem verificar o quão satisfatoriamente a curva teórica se ajusta aos pontos experimentais e finalmente na Fig. (7) está mostrada a superfície de resposta do δU em função de F e θ que permite visualizar o comportamento do poder de separação δU no processo da ultracentrifugação e encontrar os valores ótimos das variáveis operacionais controladas.

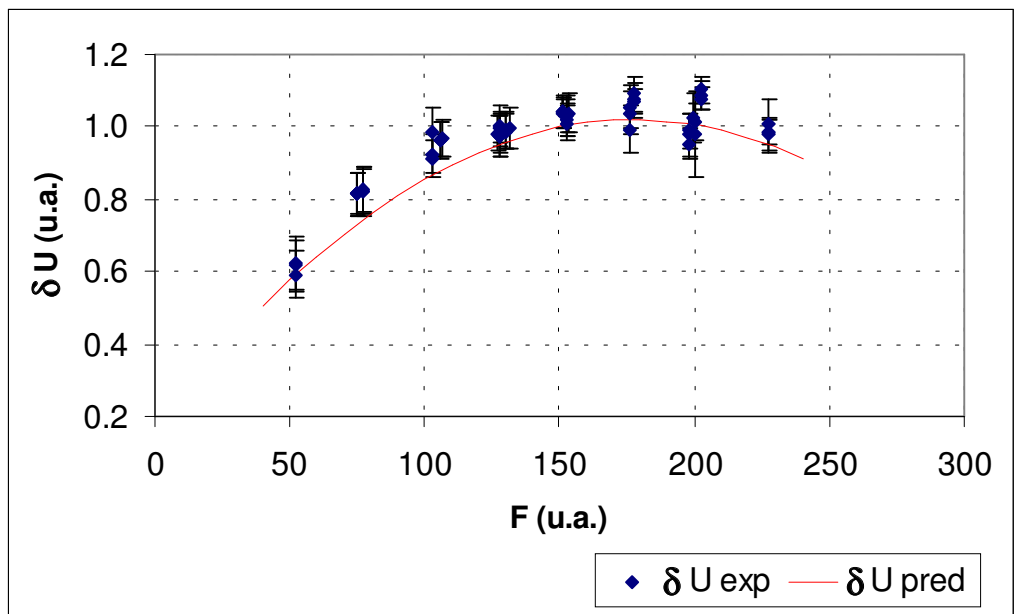


Figura 5. δU em função de F .

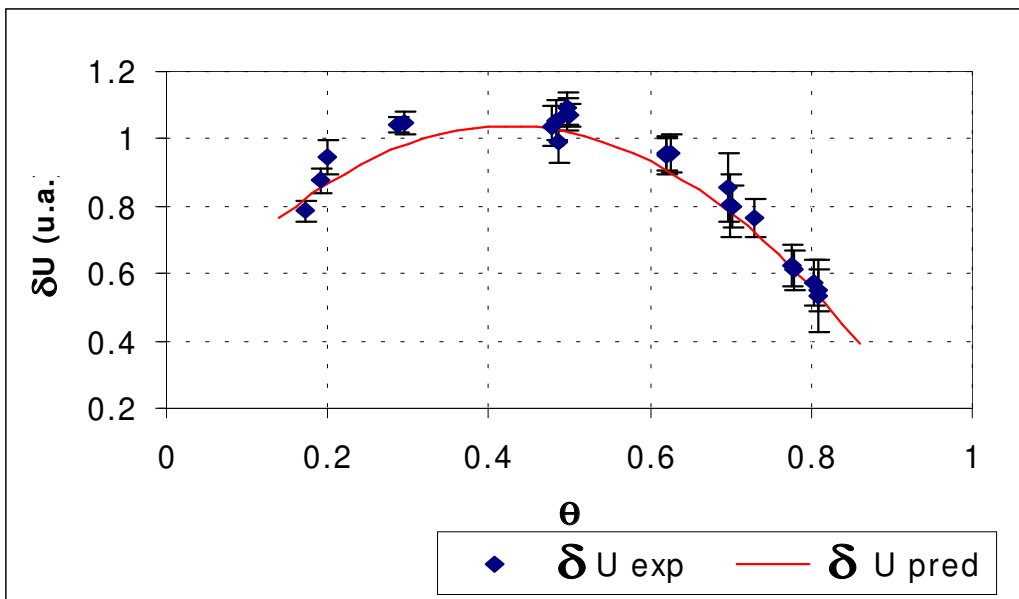


Figura 6. δU em função de θ .

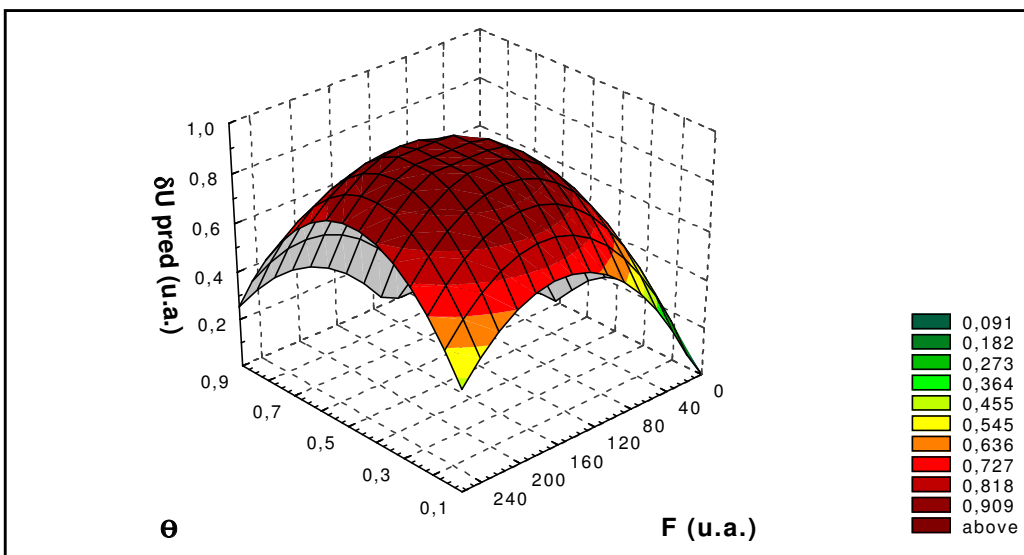


Figura 7. δU em função de F e θ .

5. CONCLUSÕES

O método de mínimos quadrados com matriz de covariância demonstrou ser uma ferramenta eficiente na determinação de uma curva de ajuste do poder de separação de uma ultracentrífuga em função de variáveis experimentalmente controladas. O valor do qui-quadrado reduzido obtido indicou uma boa concordância entre a dispersão dos dados experimentais do δU e as estimativas das incertezas contidas na sua matriz de covariância. O modelo conseguiu explicar satisfatoriamente os dados experimentais, através do valor do coeficiente de determinação obtido ($R^2 = 0,9931$). Nas Fig. (3) e (4), é possível verificar que não há padrões visíveis dos resíduos com as variáveis de controle e finalmente, é mostrado nos gráficos das curvas de resposta, Fig. (5) e (6), que o modelo teórico se ajusta bem aos dados experimentais. Na Fig. (7), pode-se visualizar a curvatura do δU : (i) em função do corte θ , com máximo valor na região do corte do processo simétrico, condição ideal para operação da ultracentrífuga em cascata e (ii) em função do fluxo de alimentação F , apesar deste manter uma relação linear com δU , no entanto, como verifica-se experimentalmente que o fator de enriquecimento da ultracentrífuga decresce com o aumento do fluxo de alimentação, o poder de separação δU também passa por um máximo em relação a F , explicitando o seu significado como figura de mérito, que é um compromisso com a qualidade da separação

obtida, representada pelo fator de enriquecimento, e a quantidade de separação efetuada, representada pelos fluxos materiais.

Este trabalho está inserido numa análise com escopo maior (Migliavacca, 2004), onde se dispõe de mais 700 experimentos com variação do nível de pressão de retirada de produto, resultando no desenvolvimento de uma dissertação de mestrado no IPEN, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

6. REFERÊNCIAS

- Jordan, I. “Separação dos isótopos de urânio pelo processo da centrifugação em fase gasosa”, Informação IPEN 3 - IPEN-Inf-3, 1980.
- Cowan, G. “Statistical data analysis”, New York,N.Y.: Oxford University Press, 1998.
- Smith, D.L. “Covariance Matrices and Applications to the Field of Nuclear Data. Data and Measurements Series”, Argonne National Laboratory. Nov. 1981. (ANL/NDM-62).
- Smith, D.L. “A least-squares computational tool kit. Nuclear Data and Measurements Series”, Argonne National Laboratory. Apr. 1993. (ANL/NDM-128).
- Migliavacca, E. “Modelagem do Comportamento Separativo de Ultracentrífugas por Regressão Multivariada com Matriz de Covariância”, São Paulo, SP, 2004. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- Vasconcellos, M.T.L.; Portela, M.C. “Índice de Massa Corporal e sua relação com variáveis nutricionais e sócio-econômicas: um exemplo de uso de regressão linear para um grupo de adultos brasileiros. Cad. Saúde Pública”, Rio de Janeiro, nov.-dez. 2001, vol. 17, n.6, p.1425-1436.

MULTIVARIATE REGRESSION APPLIED TO THE PERFORMANCE OTIMIZATION OF A COUNTERCURRENT ULTRACENTRIFUGE - A PRELIMINARY STUDY.

Elder Migliavacca
Delvonei Alves de Andrade

Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária.
CEP 05508-970 – São Paulo – SP
Tel.: 3817-7599
IPEN/CNEN
emgvacca@usp.br
delvonei@ipen.br

Keywords. *Ultracentrifuge, Uranium Hexafluoride, Isotopic Separation, Covariance Matrix, Least-squares Method.*

Abstract. In this work, the least-squares methodology with covariance matrix is applied to determine a data curve fitting in order to obtain a performance function for the separative power δU of a ultracentrifuge as a function of variables that are experimentally controlled. The experimental data refer to 173 experiments on the ultracentrifugation process for uranium isotope separation. The experimental uncertainties related with these independent variables are considered in the calculation of the experimental separative power values, determining an experimental data input covariance matrix. The process control variables, which significantly influence the δU values, are chosen in order to give information on the ultracentrifuge behaviour when submitted to several levels of feed flow F and cut θ . After the model goodness-of-fit validation, a residual analysis is carried out to verify the assumed basis concerning its randomness and independence and mainly the existence of residual heteroscedasticity with any regression model variable. The response curves are made relating the separative power with the control variables F and θ , to compare the fitted model with the experimental data and finally to calculate their optimized values.