

AVALIAÇÃO DE MÉTODOS DE CONVERGÊNCIA NO TREINAMENTO DE REDES NEURAIS ARTIFICIAIS APLICADAS À PREDIÇÃO DE ÍNDICE DE IODO, VISCOSIDADE E DENSIDADE EM BIODIESEL*

EVALUATION OF CONVERGENCE METHODS IN TRAINING OF ARTIFICIAL NEURAL NETWORKS APPLIED TO PREDICTION OF IODINE INDEX, VISCOSITY AND DENSITY IN BIODIESEL

EVALUACIÓN DE MÉTODOS DE CONVERGENCIA EN EL ENTRENAMIENTO DE REDES NEURONALES ARTIFICIALES APLICADAS A LA PREDICCIÓN DEL ÍNDICE DE YODO, LA VISCOSIDAD Y LA DENSIDAD DE BIODIESEL

Isabelle Moraes Amorim Viegas

Graduada em Química Industrial pela Universidade Federal do Maranhão/UFMA

Alex Oliveira Barradas Filho

Doutorando em Engenharia de Eletricidade pela Universidade Federal do Maranhão/UFMA

Delano Brandes Marques

Doutorando em Engenharia de Sistemas Eletrônicos e de Automação na Universidade de Brasília/UNB

Sofiane Labidi

Doutor em inteligência artificial pelo Instituto Frances de Pesquisa em Informática e Automação

Aldaléa Lopes Brandes Marques

Pós-doutora em eletrocatalise aplicada a célula a combustíveis na universidade de Toronto

Edmar Pereira Marques

Pós-doutor em Química pela universidade de York

Allan Kardec Duailibe Barros Filho

Pós-doutor pelo RIKEN (The Institute of Physics and Chemistry/Japão)

RESUMO: Algumas propriedades do biodiesel, como índice de iodo, viscosidade e densidade, podem sofrer variações conforme as estruturas moleculares dos seus ésteres constituintes. O objetivo do presente estudo é avaliar e comparar três métodos de convergência no treinamento supervisionado de redes neurais com arquitetura MLP na predição de propriedades de biodiesel. Os métodos aplicados foram os de BFGS, Gradiente Descendente e Gradiente Conjugado. Dados do LAPQAP e da literatura foram padronizados, organizados e armazenados no Sistema Oleodata, sendo divididos em três partes: 70% para o treinamento da rede, 15% para a fase de validação e 15% para a de teste. As variáveis de entrada foram os percentuais de cada éster de ácido graxo que compõe as amostras de biodiesel, e as variáveis de saída foram o índice de iodo, a viscosidade e a densidade. As seguintes funções de ativação foram previamente testadas: tangente hiperbólica, seno, identidade, exponencial e logística. Além disso, foram fixadas a quantidade de 1000 redes treinadas para cada variação do estudo e 1000 ciclos de treinamento para cada rede. Em seguida, foram variados os métodos de convergência: BFGS, Gradiente Descendente e Gradiente Conjugado. Após a obtenção do método de convergência, um novo treinamento foi feito para a otimização da quantidade de neurônios, variando-se de 5 a 15. Ao final de todos os treinamentos,

* Trabalho premiado durante o XXV Encontro do SEMIC, realizado na UFMA, entre os dias 18 a 22 de novembro de 2013. Artigo recebido em fevereiro de 2014
Aprovado abril de 2014

a rede com melhores desempenhos foi treinada pelo método de BFGS e apresentava 10 neurônios ocul-tos, função logística em ambas as camadas oculta e de saída, com um coeficiente médio superior a 0,88.

Palavras-chave: Parâmetros de Qualidade. Método de BFGS. Método de Gradiente Descendente. Método de Gradiente Conjugado.

ABSTRACT: Some properties of biodiesel, like iodine index, viscosity and density, can vary with the molecular structures of its esters. The present study evaluates and compares three convergence methods of supervised training of neural networks with MLP architecture on prediction of biodiesel properties. The methods applied were BFGS, Descent Gradient and Conjugate Gradient. Data from LAPQAP and from literature were standardized, organized and stored into the Oleodata System, being divided in three parts: 70% for networks training, 15% for validation phase and 15% for test. The input variables were the per-cent of each fatty ester which compose the biodiesel samples, and the output variables were iodine index, viscosity and density. The following activation functions were previously tested: hyperbolic tangent, sine, identity, exponential and logistic. Moreover, it was fixed the quantity of 1000 networks trained for each va-riation of the study and 1000 cycles of training for each network. Then, convergence methods were varied: BFGS, Descent Gradient and Conjugate Gradient. After selected the best convergence method, a new training was carried out for optimization of neurons quantity, ranging from 5 to 15. At the end of training, the network with best performances was trained by BFGS method and presented 10 hidden neurons, logistic function in both hidden and output layers, with a mean coefficient higher than 0,88.

KEYWORDS: Quality Parameters. BFGS Method. Descent Gradient Method. Conjugate Gradient Method.

RESUMEN: Algunas propiedades del biodiesel, como índice de yodo, viscosidad y densidad, pueden va-riar con las estructuras moleculares de sus ésteres. El presente estudio evalúa y compara tres métodos de convergencia de entrenamiento supervisado de las redes neuronales con la arquitectura MLP en la predicción de las propiedades del biodiesel. Los métodos aplicados fueron BFGS, Gradiente de Descen-so y Gradiente Conjugado. Los datos de LAPQAP y de la literatura fueron estandarizados, organizado y almacenado en el Sistema de Oleodata, siendo divididos en tres partes: 70% para el entrenamiento de redes, 15% para la fase de validación y 15% para el test. Las variables de entrada fueron el porcentaje de cada éster de grasa que componen las muestras de biodiesel, y las variables de salida fueron el índice de yodo, la viscosidad y la densidad. Las siguientes funciones de activación fueron probadas previamente: tangente hiperbólica, seno, identidad, exponencial y logística. Además, se determinó la cantidad de 1.000 redes entrenadas para cada variación del estudio y 1000 ciclos de formación para cada red. Entonces, los métodos de convergencia fueron variados: BFGS, Gradiente de Descenso y Gradiente Conjugado. Después de seleccionar el mejor método de convergencia, un nuevo entrenamiento fue realizado para la optimización de la cantidad de neuronas, que van de 5 a 15. Al final de la formación, la red con las mejores actuaciones fue entrenada por el método BFGS y presentó 10 neuronas ocultas, la función logística en capas encubiertas y de salida, con un coeficiente medio superior a 0,88.

PALABRAS CLAVE: Parámetros de Calidad. Método de BFGS. Método del Gradiente de Descenso. Método del Gradiente Conjugado.

1 | Introdução

Recentemente, muitos estudos têm avaliado a viabilidade do uso de biocombustíveis alternativos em substituição dos combustíveis fósseis, motivados pela instabilidade do mercado de petróleo e pela sua disponibilidade limitada, além de sérios impactos ambientais causados pelo uso de combustíveis derivados de petróleo (COLARES, 2008; MONTEIRO et al., 2008).

Essas medidas têm impulsionado o desenvolvimento de ferramentas e técnicas para o monitoramento e controle da qualidade de biocombustíveis. O biodiesel é um exemplo do emprego de biomassa para a produção de energia, o qual é definido como uma mistura de alquil-ésteres de cadeia linear, obtida da transesterificação dos triglicerídeos de óleos e/ou gorduras com álcoois de cadeia curta (LÔBO, FERREIRA; CRUZ, 2009). Pode ser misturado ao diesel de petróleo ou utilizado puro, sendo que neste último caso algumas adaptações são necessárias no motor (DERMIBAS, 2009).

A literatura reúne estudos que assinalam algumas vantagens no uso do biodiesel em relação ao diesel mineral, como sua origem de fontes renováveis, maior viscosidade (o que proporciona maior lubrificidade), baixo perigo de explosão, pouca emissão de partículas de carvão e combustão completa (FERRARI, OLIVEIRA; SCABIO, 2005; LEUNG, KOO; GUO, 2006). Além disso, apesar do biodiesel fornecer uma quantidade de energia cerca de 10% menor que o diesel de petróleo (LÔBO, FERREIRA; CRUZ, 2009), o seu desempenho no motor é semelhante ao diesel, em termos de potência e torque (LEUNG; WU; LEUNG, 2010).

1.1 | Propriedades dependentes da composição do biodiesel

A qualidade do biodiesel pode sofrer variações conforme as estruturas moleculares dos seus ésteres constituintes, ou devido à presença de contaminantes oriundos da matéria prima, do processo de produção ou formados durante a estocagem do biodiesel. Uma dessas propriedades é o índice de iodo, que reflete diretamente na quantidade de insaturações nos ésteres (LÔBO; FERREIRA; CRUZ, 2009).

Outras propriedades, as quais são também intrinsecamente ligadas à composição do biodiesel, são a densidade e a viscosidade, que apresentam uma relação diretamente proporcional ao comprimento da cadeia carbônica dos alquil-ésteres. Entretanto, a densidade decresce com o aumento do número de insaturações presentes nas moléculas, enquanto que a viscosidade aumenta com o aumento do grau de saturação (LÔBO; FERREIRA; CRUZ, 2009). Além disso, a viscosidade de ésteres etílicos, por exemplo, é ligeiramente maior que a dos ésteres metílicos (KNOTHE, 2005). Apesar da importância do assunto, a influência da cadeia dos álcoois não está entre os objetivos deste trabalho.

Alta viscosidade ocasiona diminuição no fluxo de injeção e na atomização causando, consequentemente, combustão incompleta gerando formação de depósitos na câmara de combustão (FREIRE, et al., 2012; RAMÍRES et al., VERDUZCO, 2011; LÔBO; FERREIRA; CRUZ, 2009).

O controle de qualidade do biodiesel, através da análise de suas propriedades, é um assunto relevante e indispensável para sua comercialização. A maioria dos países, a exemplo do Brasil que usa oficialmente a Resolução ANP nº 14 de 2012 (RANP 14/2012) para a especificação do biodiesel (ANP, 2012), geralmente usa métodos baseados em normas europeias (EN 14214) e americanas (ASTM D6751). Devido à complexidade e custo dos métodos oficiais que envolvem técnicas instrumentais de análise, a busca por métodos alternativos tem sido um assunto atraente. O uso de ferramentas computacionais e estatísticas tem se mostrado muito útil e eficaz na estimativa destas propriedades, em que o não uso de experimentos pode ser de grande utilidade.

1.2 | Redes neurais artificiais: predição de propriedades de biodiesel

Redes Neurais Artificiais (RNAs) têm sido aplicadas com êxito não só na química, mas em diversas outras áreas tais como a matemática, engenharia, medicina e psicologia. Os bons resultados obtidos e a capacidade de generalização, adaptação e aprendizado das RNAs têm justificado tal tendência (RAMADHAS et al. 2006).

Na área de predição, atualmente têm sido publicados diversos trabalhos referentes às propriedades de biodiesel, através de abordagens tanto de modelos lineares como de modelos não lineares (SU et al. 2011; NADAI et al. 2013; SALDANA et al. 2012; BAPTISTA et al. 2008; BAM-GBOYE; HANSEN, 2008). Essas pesquisas contribuem para assegurar a qualidade das propriedades do biodiesel determinadas pelo Regulamento Técnico nº 4 da RANP 14/2012 (ANP, 2012). Nesse sentido, a aplicação de técnicas para a predição das propriedades do biodiesel, como Análise dos Componentes Principais (PCA) (ABDI; WILLIAMS, 2010), Regressão por Mínimos Quadrados Parciais (PLS) (BALABIN; SAFIEVA; LOMAKINA 2007), Comparison of linear and nonlinear calibration models based on near infrared (NIR) spectroscopy data for gasoline properties prediction, e RNAs (KUMAR; BANSAL, 2010), dentre outros, está cada vez mais atraindo a atenção de pesquisadores (BALABIN; LOMAKINA, 2011) Support vector machine regression (SVR/LS-SVM) - an alternative to neural networks (ANN) for analytical chemistry? Comparison of nonlinear methods on near infrared (NIR) spectroscopy data (BALABIN; LOMAKINA; SAFIEVA, 2011) Neural network (ANN) approach to biodiesel analysis: analysis of biodiesel density, kinematic viscosity, methanol and water contents using near infrared (NIR) spectroscopy.

RNAs são ferramentas computacionais compostas de unidades básicas de processamento de informação, os neurônios artificiais, os quais simulam o comportamento de neurônios biológicos (CERQUEIRA; ANDRADE; POPPI, 2001). São empregadas na solução de problemas complexos através da capacidade de aprender por meio de um conjunto reduzido de exemplos, e possuem uma vasta gama de aplicações, dentre as quais podem se destacar o reconhecimento de padrões, o agrupamento de dados e o campo da predição (GONÇALVES et al., 2010).

Multilayer Perceptrons (MLP), ou Perceptron Multicamadas, é uma das arquiteturas mais populares de redes neurais, que apresenta uma camada com unidades de entrada, conectada a uma ou mais unidades intermediárias, chamadas camadas ocultas, e uma camada de unidades de saída (JAIN; MAO; MOHIUDDIN, 1996).

No paradigma de aprendizado supervisionado, a saída gerada pela rede é comparada à saída desejada através da equação (1), que é a função de custo dos erros quadráticos a ser minimizada (SOS, do inglês *Sum of Squares*), onde $d^{(1)}, d^{(2)}, \dots, d^{(p)}$ são os valores de saída dos exemplos de treinamento (saídas desejadas) e $y^{(1)}, y^{(2)}, \dots, y^{(p)}$ são os valores calculados pela rede. O treinamento se sucede até que o erro esteja abaixo de um limiar pré-definido ou até que o número de **iterações** ou ciclos seja atingido (JAIN; MAO; MOHIUDDIN, 1996).

$$\text{Equação (1)} \quad E = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^p \| y^{(i)} - d^{(i)} \|^2$$

O objetivo do presente estudo é avaliar três métodos aplicados de RNAs que usam arquitetura MLP na predição de propriedades do biodiesel.

Os métodos envolvem o aceleração de convergência da fase de treinamento supervisionado de RNAs com arquitetura do tipo MLP. São eles: Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno (BFGS),

Gradiente Descendente e Gradiente Conjugado. Na sequência desse ajuste e otimização preliminar, um treinamento será aplicado na predição das propriedades índice de iodo, viscosidade e densidade de biodiesel.

1.3 | Métodos de convergência

O método de BFGS é um método quase-Newton que usa a aproximação quadrática de Taylor da função objetivo, cuja ideia é fazer uma aproximação iterativa da inversa da matriz Hessiana H_i . A aproximação atual H_i é utilizada a cada iteração para definir a próxima direção descendente do método. Idealmente, as aproximações convergem para a inversa da matriz Hessiana e são feitas por meio da equação 2, onde q_i e p_i são vetores determinados por outras equações (SILVA, 1998).

$$\text{Equação (2)} \quad H_{i+1} = H_i + \frac{p_i p_i^T}{p_i^T q_i} \left[1 + \frac{q_i^T H_i q_i}{p_i^T q_i} \right] - \frac{H_i q_i p_i^T + p_i q_i^T H_i}{p_i^T q_i}$$

O método do Gradiente Descendente é um método de primeira ordem, onde unicamente o gradiente local determina a direção de minimização. Seja θ_i o vetor de pesos, α_i um escalar que define o passo de ajuste e d_i a direção de ajuste, todos definidos na iteração i , a equação (3) de ajuste dos pesos pelo método do Gradiente Descendente é definida por (SILVA, 1998):

$$\text{Equação (3)} \quad \theta_{i+1} = \theta_i + \alpha_i d_i, \quad i \geq 0$$

O método do Gradiente Conjugado se baseia no Gradiente Descendente, porém escolhe a direção de busca d_i , o passo α_i e o coeficiente de momento β_i mais eficientemente utilizando informações de segunda ordem. É projetado para apresentar taxas de convergência maiores que as do método do Gradiente Descendente. Seja J o *Jacobiano*, a equação a seguir (4) representa o ajuste de pesos a partir de direções Q-conjugadas (SILVA, 1998).

$$\text{Equação (4)} \quad \theta_{i+1} = \theta_i - \frac{d_i^T \nabla J(\theta_i)}{d_i^T Q d_i} d_i$$

2 | Materiais e métodos

Um banco de dados gerados a partir de resultados obtidos pelo Laboratório de Análises e Pesquisa em Química Analítica de Petróleo e Biocombustíveis (LAPQAP) e da literatura foi usado no presente estudo, inseridos, inicialmente, no Sistema Oleodata. O Sistema Oleodata é um trabalho desenvolvido em parceria entre o Laboratório de Sistemas Inteligentes (LSI) e o LAP-

QAP, que permite armazenar, organizar, padronizar e compartilhar dados e resultados obtidos no processo de qualificação de óleos vegetais, produção de biodiesel a partir de matrizes vegetais e outras aplicações da área de biotecnologia.

Os dados foram divididos em três partes: a primeira consistiu no conjunto de treinamentos da rede e foi formada com 70% dos dados; a segunda e a terceira foram os grupos de validação e de teste, ambos compostos por 15% dos dados.

As variáveis de entrada, utilizadas no treinamento das redes neurais, foram os percentuais de cada éster de ácido graxo que compõem as amostras de biodiesel: C8:0, C10:0, C12:0, C14:0, C16:0, C18:0, C18:1, C18:2, C18:3, C20:0, C20:1, C22:1 e C18:1 OH (derivado do ácido ricinoléico). Nessa notação, CXX:Y, XX indica a quantidade de carbonos e Y corresponde às insaturações presentes na molécula do éster. As variáveis de saída foram o índice de iodo, a viscosidade e a densidade.

Um treinamento exploratório prévio foi feito para testar as seguintes funções de ativação da única camada oculta e da de saída: tangente hiperbólica, seno, identidade, exponencial e logística. A quantidade de neurônios ocultos foi variada aleatoriamente de 5 a 15, e esse treinamento foi conduzido com o método de BFGS (casualmente escolhido). A tabela 1 apresenta as especificações dos parâmetros de todos os treinamentos de RNAs feitos neste trabalho.

Tabela 1 - Especificações dos parâmetros de treinamento das RNAs

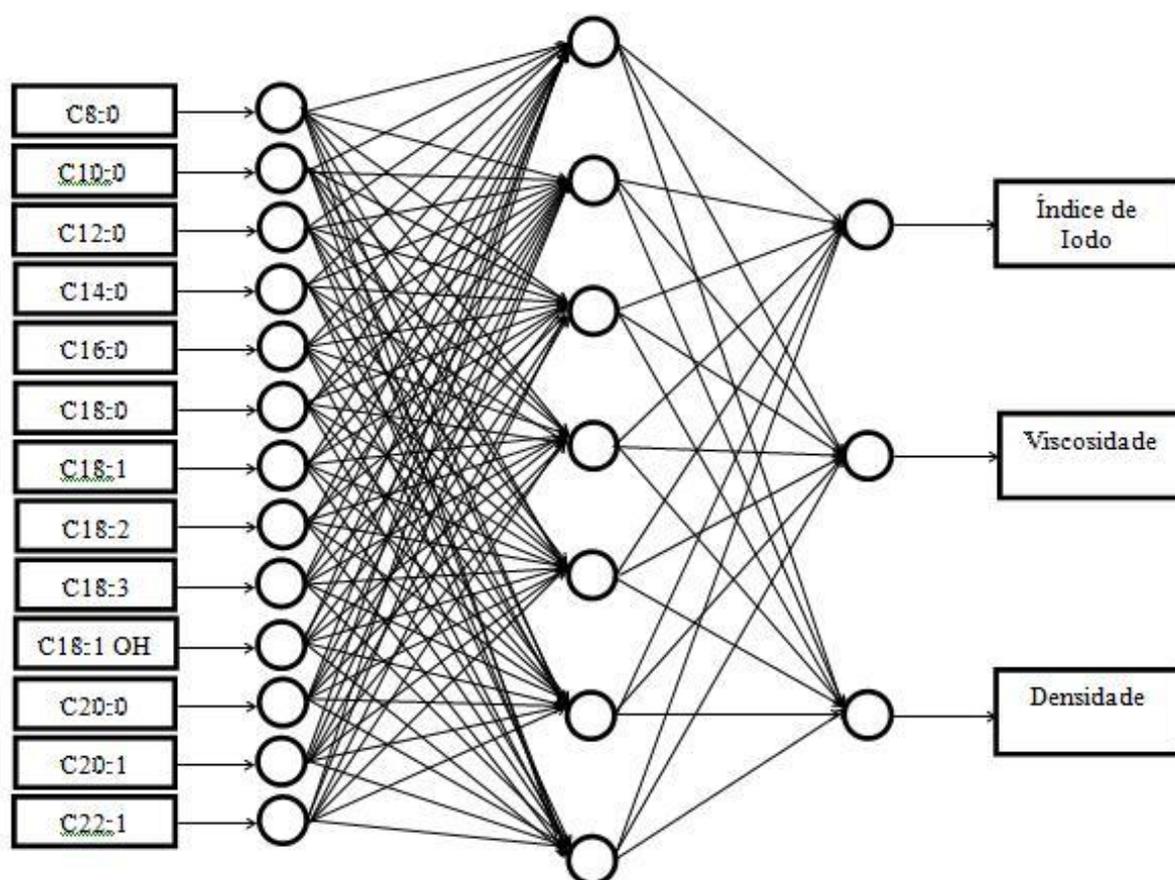
Parâmetros	Treinamento exploratório	Treinamento comparativo entre métodos	Treinamento de otimização da quantidade de neurônios
Variáveis de entrada	C8:0, C10:0, C12:0, C14:0, C16:0, C18:0, C18:1, C18:2, C18:3, C20:0, C20:1, C22:1 e C18:1 OH	C8:0, C10:0, C12:0, C14:0, C16:0, C18:0, C18:1, C18:2, C18:3, C20:0, C20:1, C22:1 e C18:1 OH	C8:0, C10:0, C12:0, C14:0, C16:0, C18:0, C18:1, C18:2, C18:3, C20:0, C20:1, C22:1 e C18:1 OH
Variáveis de saída	Índice de iodo, Viscosidade, Densidade	Índice de iodo, Viscosidade, Densidade	Índice de iodo, Viscosidade, Densidade
Funções de ativação: camada oculta	Tangente Hiperbólica, Seno, Identidade, Exponencial, Logística	Logística	Logística
Funções de ativação: camada de saída	Tangente Hiperbólica, Seno, Identidade, Exponencial, Logística	Logística	Logística
Método de convergência	BFGS	BFGS, Gradiente Descendente, Gradiente Conjugado	BFGS
Quantidade de neurônios ocultos	5-15	7	5-15
Ciclos de treinamento	200	1000	1000
Quantidade de redes treinadas	1000	1000	1000
Função de erro	SOS	SOS	SOS

Fonte: Elaborada pelos autores

A função logística foi selecionada para a única camada oculta de neurônios e para a camada de saída. Além disso, foram fixadas a quantidade de 7 neurônios ocultos, 1000 redes treinadas para cada variação do estudo e 1000 ciclos de treinamento para cada rede. A função de erro, a ser minimizada na fase de treinamento, é a SOS (equação 1).

Na etapa subsequente, foi feito o treinamento, conforme parâmetros acima especificados, variando-se os seguintes métodos de convergência: BFGS, Gradiente Descendente e Gradiente Conjugado. O esquema da figura 1 apresenta o modelo de RNA utilizado nesse treinamento comparativo.

Figura 1 – Topologia da MLP utilizada na predição das propriedades viscosidade, período de indução, densidade e índice de iodo em biodiesel



Fonte: Elaborada pelos autores

Após a obtenção do método de convergência, um novo treinamento foi feito para a otimização da quantidade de neurônios que pudesse generalizar melhor o conjunto de dados utilizado para alimentar as redes. Nesse sentido, foram feitos treinamentos separadamente para cada número de neurônio testado, de 5 a 15.

3 | Resultados e discussão

Um treinamento exploratório inicial mostrou que a melhor rede obtida teve por função de ativação de ambas as camadas oculta e de saída a função logística, com 7 neurônios na camada oculta. O coeficiente médio obtido nesse estudo, entre os coeficientes de treinamento, de validação e de teste, foi de 0,878528, com erro médio igual a 0,029852.

Por ter apresentado o melhor desempenho, a quantidade de 7 neurônios ocultos, inicialmente, e a função logística de ativação foram fixados para o treinamento comparativo entre os métodos. A quantidade de épocas (ciclos) também foi aumentada para 1000, com o objetivo de proporcionar um treinamento efetivo através do processo exaustivo de treinamento.

Os resultados obtidos no treinamento de RNAs para comparar os métodos de BFGS, Gradiente Descendente e Gradiente Conjugado são apresentados na tabela 2, onde consta somente o melhor resultado de cada treinamento.

Tabela 2 - Melhor resultado obtido no treinamento de cada método de convergência estudado

Método	Coeficiente de correlação				Erro			
	Treinamento	Validação	Teste	Média	Treinamento	Validação	Teste	Média
BFGS	0,925692	0,951225	0,763862	0,880259	0,008148	0,010555	0,068841	0,029181
Gradiente Descendente	0,907684	0,941494	0,476996	0,775391	0,011454	0,020993	0,065571	0,032673
Gradiente Conjugado	0,830733	0,871519	0,842381	0,848211	0,021289	0,031987	0,065060	0,039445

Fonte: Elaborada pelos autores

Como critério de comparação preestabelecido, foram obtidos os coeficientes médios de treinamento, validação e teste para os métodos de BFGS (0,880259), Gradiente Descendente (0,775391) e Gradiente Conjugado (0,842381). A partir desses resultados, pôde-se notar que o método de BFGS se sobressaiu, considerando-se primeiramente o seu maior coeficiente médio, como também o menor erro médio (0,029181). Isto quer dizer que as redes treinadas por esse método absorveram bem a relação entre a composição do biodiesel e as propriedades índice de iodo, viscosidade e densidade. Contudo, não se pode afirmar o mesmo para a velocidade de convergência dos treinamentos comparativos, uma vez que isso não foi objetivo deste trabalho.

O método de Gradiente Conjugado também apresentou bom desempenho, um pouco inferior ao do BFGS. Entretanto, os erros médios obtidos para os métodos de Gradiente Conjugado e de Gradiente Descendente foram bastante semelhantes, de aproximadamente 0,03. Observa-se, porém, que o coeficiente de teste do método de Gradiente Descendente foi baixo (0,476996), o que leva a inferir que as redes treinadas por esse método não generalizaram bem os dados das amostras e não são muito adequadas para a predição das propriedades estudadas.

O método de BFGS foi selecionado para os treinamentos conseguintes a fim de otimizar o número de neurônios ocultos, os quais foram feitos separadamente. A tabela 3 exibe o melhor resultado para a topologia com cada quantidade, variando de 5 a 15 neurônios.

O treinamento com a topologia contendo 10 neurônios ocultos apresentou o maior coeficiente médio (0,881119). Como pode ser observado, as redes cujos neurônios variam de 5 a 10, apresentaram comportamento crescente no que concerne aos coeficientes médios, porém, a partir de 11 neurônios na camada oculta, os coeficientes começam a decair chegando ao menor coeficiente, o qual foi obtido pela rede com 15 neurônios ocultos (0,849328). Este comportamento pode ser atribuído à perda da capacidade de generalização, ocasionada pelo superdimensionamento na rede (*overfitting*).

A tabela 4 apresenta, resumidamente, a análise individual dos coeficientes de treinamento dos parâmetros de saída, para a rede com 10 neurônios ocultos (MLP 13-10-3) treinada através do método de BFGS, com a função logística para ativação das camadas oculta e de saída.

Tabela 3 - Resultados obtidos nos treinamentos para otimização do número de neurônios ocultos

Método	Coeficiente de correlação				Erro			
	Treinamento	Validação	Teste	Média	Treinamento	Validação	Teste	Média
5	0,920532	0,955632	0,700960	0,859041	0,008818	0,011281	0,070096	0,030065
6	0,925892	0,954500	0,722892	0,867761	0,008140	0,009895	0,070554	0,029530
7	0,923943	0,945107	0,743162	0,870738	0,008311	0,011754	0,069390	0,029818
8	0,922005	0,940109	0,754498	0,872204	0,008713	0,013633	0,070229	0,030858
9	0,921500	0,949794	0,753102	0,874799	0,008749	0,011383	0,069257	0,029796
10	0,924773	0,943733	0,774852	0,881119	0,008244	0,012011	0,069955	0,030070
11	0,922729	0,938854	0,763594	0,875059	0,008552	0,013387	0,068729	0,030223
12	0,922845	0,950507	0,745558	0,872670	0,008580	0,011875	0,070029	0,030161
13	0,921838	0,948604	0,766225	0,878889	0,008702	0,012832	0,069536	0,030356
14	0,876776	0,907377	0,845408	0,876520	0,013942	0,030045	0,065474	0,036487
15	0,920983	0,944420	0,682581	0,849328	0,008735	0,012469	0,068296	0,029834

Fonte: Elaborada pelos autores

Tabela 4 - Coeficiente de correlação de treinamento de cada parâmetro

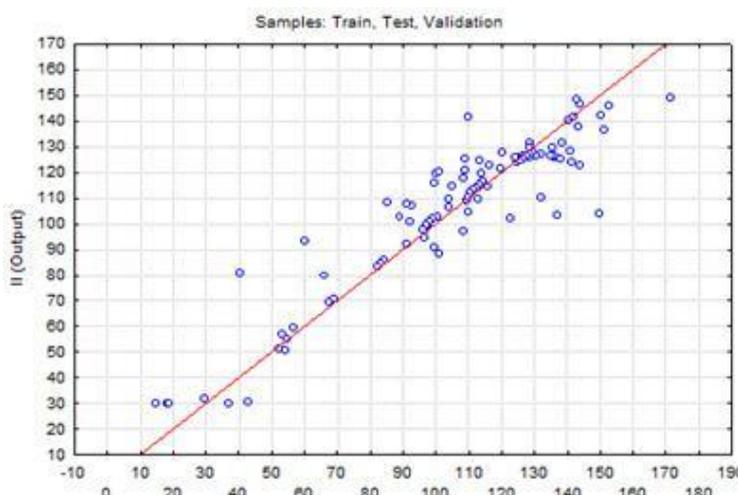
Coeficiente de correlação de Treinamento			
II	Viscosidade	Densidade	Média
0,925738	0,964259	0,753361	0,881119

Fonte: Elaborada pelos autores

Através dos dados da tabela 4, po-de-se afirmar que o modelo de rede selecionado, contendo 10 neurônios ocultos, teve os melhores desempe-nhos para as propriedades índice de iodo e viscosidade. Por outro lado, a densidade apresentou o menor coe-ficiente. As Figuras 2, 3 e 4 apresen-tam uma relação gráfica entre os va-lores preditos e os valores reais, para as propriedades índice de iodo (II), viscosidade e densidade, respectiva-mente.

Pode-se observar, nas figuras 2 e 3, que as propriedades índice de iodo e viscosidade apresentaram resulta-dos bastante uniformes e bem distri-buídos ao longo da reta de correla-

Figura 2 - Gráficos de correlação entre os valores preditos (Output) e os valores reais (Target) para índice de iodo

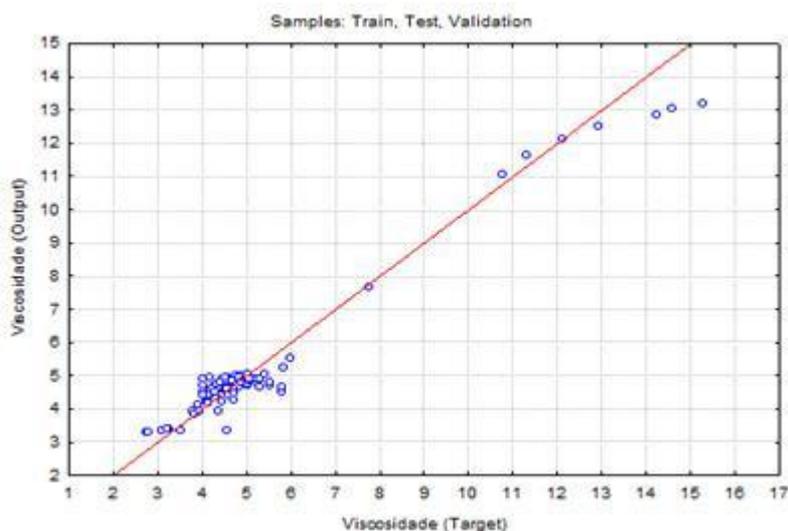


Fonte: Elaborada pelos autores

ção entre os valores preditos e os reais, com poucas amostras com comportamentos anômalos (*outliers*), o que pode ser responsável pelo seus bons coeficientes de correlação, em comparação a outros modelos de predição de viscosidade em biodiesel encontrados na literatura (KRISNANGKURA et al., 2012).

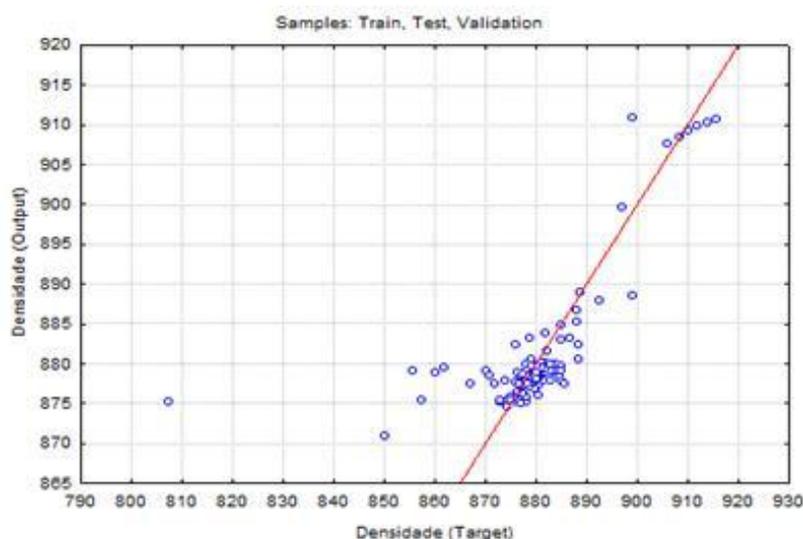
O mesmo não ocorre com a propriedade densidade, que exibiu resultados muito distantes da reta de correlação entre os valores preditos e os valores reais. Tal fato explica o menor coeficiente, obtido para a densidade.

Figura 3 - Gráficos de correlação entre os valores preditos (Output) e os valores reais (Target) para viscosidade



Fonte: Elaborada pelos autores

Figura 3 - Gráficos de correlação entre os valores preditos (Output) e os valores reais (Target) para viscosidade



Fonte: Elaborada pelos autores

Pode-se observar, nas figuras 2 e 3, que as propriedades índice de iodo e viscosidade apresentaram resultados bastante uniformes e bem distribuídos ao longo da reta de correlação entre os valores preditos e os reais, com poucas amostras com comportamentos anômalos (*outliers*), o que pode ser responsável pelo seus bons coeficientes de correlação, em comparação a outros

modelos de predição de viscosidade em biodiesel encontrados na literatura (KRISNANGKURA et al., 2012).

O mesmo não ocorre com a propriedade densidade, que exibiu resultados muito distantes da reta de correlação entre os valores preditos e os valores reais. Tal fato explica o menor coeficiente, obtido para a densidade.

4 | Considerações finais

As redes neurais MLP treinadas com o método de BFGS apresentaram o melhor comportamento, seguidas do método de Gradiente Conjugado, na predição das propriedades índice de iodo, viscosidade e densidade, no que concerne aos desempenhos de treinamento, validação e teste. Porém, é importante ressaltar que a velocidade de convergência não foi considerada nesse estudo.

As RNAs treinadas pelo método de Gradiente Descendente não generalizaram bem os dados das amostras e não se mostraram muito adequadas para a predição das propriedades estudadas.

Em uma etapa subsequente, realizou-se uma otimização do número de neurônios na única camada oculta, numa variação de 5 a 15, para o método BFGS. A partir desses treinamentos, os melhores resultados foram obtidos para redes com 10 neurônios ocultos, sendo que a partir da quantidade de 11 neurônios, os coeficientes médios de desempenho começam a decair. Nessa rede (MLP 13-10-3), a função logística foi empregada para ativação das camadas oculta e de saída.

Os coeficientes de correlação obtidos para os modelos de RNAs otimizados, de aproximadamente 0,88, asseguram a viabilidade da aplicação do método de BFGS, como também do método de Gradiente Conjugado, na predição de índice de iodo, viscosidade e densidade em biodiesel, as quais são propriedades intrinsecamente ligadas à composição dos ésteres, principalmente as duas primeiras.

Agradecimentos

Os autores agradecem aos apoios financeiros concedidos pelas agências de fomento (ANP--PRH UFMA n°39, FINEP, FAPEMA, CNPq), ao LAPQAP/UFMA, pelos dados concedidos e a todos que ajudaram diretamente ou indiretamente com o presente trabalho.

Referências

- ABDI, H.; WILLIAMS, L. J. Principal component analy-sis. *Wiley Interdisciplinary Reviews: Computational Statistics*, v. 2, n. 4, 433–459, 2010.
- AGÊNCIA NACIONAL DE PETRÓLEO, GÁS NATURAL E BIOCOMBUSTÍVEIS. Resolução ANP nº14, de 11 de maio de 2012. Regulamento Técnico ANP nº 04/2012. Diário Oficial da União, Brasília, DF, 18 maio 2012. Disponível em: <http://nxt.anp.gov.br/nxt/gateway.dll/leg/resolucoes_anp/2012/maio/ranp%2014%20-%202012.xml>. Acesso em: 23 set. 2013.
- BALABIN, R. M.; LOMAKINA, E. I. Support vector machine regression (SVR/LS-SVM) - an alternative to neural networks (ANN) for analytical chemistry?: comparison of nonlinear methods on near infrared (NIR) spectroscopy data. *Analyst*, v. 136, n. 8, p. 1703–1711, Apr. 2011.
- BALABIN, R. M.; LOMAKINA, E. I.; SAFIEVA, R. Z. Neural network (ANN) approach to biodiesel analy-sis: analysis of biodiesel density, kinematic viscosity, methanol and water contents using near infrared (NIR) spectroscopy. *Fuel*, v. 90, n. 5, p. 2007-2015, May 2011..
- BALABIN, R. M.; SAFIEVA, R. Z.; LOMAKINA, E. I. Comparison of linear and nonlinear calibration models based on near infrared (NIR) spectroscopy data for gasoline properties prediction. *Chemometr. Intell. Lab. Syst.*, v. 88, n. 2, p. 183-188, Sept. 2007.
- BAMGBOYE, A. I.; HANSEN, A. C. Prediction of cetane number of biodiesel fuel from the fatty acid methyl ester (FAME) composition. *International Agrophysics*, v. 22, n. 1, p. 21-29, 2008.
- BAPTISTA, P. et al. Multivariate near infrared spectroscopy models for predicting the iodine value, CFPP, kinematic viscosity at 40°C and density at 15°C of biodiesel. *Talanta*, v.77, n. 1, p. 144-151, Oct. 2008.
- COLARES, J. F. A Brief History of Brazilian Biofuels Legislation. *Syracuse Journal of Internacional Law & Commerce*, v. 35, n. 2, p. 101-116, Jun. 2008.
- CERQUEIRA, E. O. de ; ANDRADE, J. C. de; POPPI, R. J. Redes neurais e suas aplicações em calibração multivariada. *Química Nova*, v. 24, n. 6, p. 864-873., nov./dez. 2001.
- DERMIBAS, A. Political, economic and environmental impacts of biofuels: a review. *Applied Energy*, v. 86, p. 108-117, nov. 2009.
- FERRARI, R. A.; OLIVEIRA, V. da. S.; SCABIO, A. Biodiesel de soja: taxa de conversão em ésteres etílicos, caracterização físico-química e consumo em gerador de energia. *Química Nova*, v. 28, n. 1, p. 19-23, jan./fev. 2005.
- FREIRE, L. M. S. et al. Evaluation of the oxidative stability and flow properties of quaternary mixtures of vegetable oils for biodiesel production. *Fuel*, v. 95, p. 126-130, may 2012.
- GONÇALVES, R. M. et al. Modelagem preditiva de linha de costa utilizando redes neurais artificiais. *Bol. Ciênc. Geod.*, Curitiba, v. 16, n. 3, p. 420-444, jul-set 2010.
- JAIN, A. K.; MAO, J.; MOHIUDDIN, K. M. Artificial neural networks: a tutorial. *Computer*, v. 29, n. 3, p. 31-44, 1996.
- KNOTHE, G. Dependence of biodiesel fuel properties on the structure of fatty acid alkyl esters. *Fuel Processing Technology*, v. 86, n. 10, p. 1059-1070, june 2005.
- KRISNANGKURA, K. et al. An empirical approach for predicting kinematic viscosities of biodiesel blends. *Fuel*, v. 89, n. 10, p. 2775-2780, oct. 2010.
- KUMAR, J.; BANSAL, A. Application of artificial neural network to predict properties of diesel – biodiesel blends. *Kathmandu University Journal of Science, Engineering and Technology*, v. 6, n. 2, p. 98-103, 2010.
- LEUNG, D. Y. C.; KOO, B. C. P.; GUO, Y. Degradation of biodiesel under different storage conditions. *Bioresource Technology*, v. 97, n. 2, p. 250-256, jan. 2006.
- LEUNG, D. Y. C.; WU, X.; LEUNG, M. K. H. A review on biodiesel production using catalyzed transesterification. *Applied Energy*, v. 87, n. 4, p. 1083-1095, apr. 2010.
- LÔBO, I. P.; FERREIRA, S. L. C.; DA CRUZ, R. S. Biodiesel: parâmetros de qualidade e métodos analíticos. *Química Nova*, v. 32, n. 6, p. 1596-1608, 2009.
- MONTEIRO, M. R. et al. Critical review on analytical methods for biodiesel characterization. *Talanta*, v. 77, n. 2, p. 593-605, dec. 2008.
- NADAI, D. V. et al. Inference of the biodiesel cetane number by multivariate techniques. *Fuel*, v. 105, p. 325–330, mar. 2013.
- RAMADHAS, A. S. et al. Artificial neural networks used for the prediction of the cetane number of biodiesel. *Renew. Energ.*, v. 31, n. 15, p. 2524-2533, dec. 2006.
- SALDANA, D. A. et al. Prediction of density and viscosity of biofuel compounds using machine learning methods. *Energy Fuels*, v. 24, n. 4, p. 2416-2426, 2012.
- SILVA, L. N. de. C. Análise e síntese de estratégias de aprendizado para redes neurais artificiais. 1998. 248f. Dissertação (Mestrado em Engenharia Elétrica) – Faculdade de Engenharia Elétrica e de Computação, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 1998.
- SU, Y. et al. Selection of prediction methods for thermo-physical properties for process modeling and product design of biodiesel manufacturing. *Industrial Engineering Chemistry Research*, v. 50, n. 11, p. 6809–6836, apr. 2011.
- RAMÍRES-VERDUZCO, L. F. R. et al. Prediction of the density and viscosity in biodiesel blends at various temperatures. *Fuel*, v. 90, n. 5, p. 1751-1761, may. 2011.
- ZHANG, W. et al. Predicting the dynamic and kinematic viscosities of biodiesel–diesel blends using mid- and near-infrared spectroscopy. *Applied Energy*, v. 98, p. 122-127, oct. 2012.