



UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA

**INTELIGÊNCIA COMPUTACIONAL APLICADA À MODELAGEM
MATEMÁTICA DA PRODUÇÃO DE BIOSURFACTANTES POR
ESTERIFICAÇÃO DE ÁCIDOS GRAXOS COM AÇÚCARES**

Lorenzo Giovanni Tonetti

São Carlos - SP

2023



UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA

**INTELIGÊNCIA COMPUTACIONAL APLICADA À MODELAGEM
MATEMÁTICA DA PRODUÇÃO DE BIOSURFACTANTES POR
ESTERIFICAÇÃO DE ÁCIDOS GRAXOS COM AÇÚCARES**

Lorenzo Giovanni Tonetti

Dissertação de mestrado apresentado ao Programa de Pós-graduação em Engenharia Química da Universidade Federal de São Carlos, como parte dos requisitos necessários para obtenção do título de Mestre em Engenharia Química. Área de concentração: Pesquisa e Desenvolvimento de Processos Químicos.

Orientador: Prof. Dr. Ruy de Sousa Júnior

São Carlos - SP

2023



UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS

Centro de Ciências Exatas e de Tecnologia
Programa de Pós-Graduação em Engenharia Química

Folha de Aprovação

Defesa de Dissertação de Mestrado do candidato Lorenzo Giovanni Tonetti, realizada em 16/02/2024.

Comissão Julgadora:

Prof. Dr. Ruy de Sousa Junior (UFSCar)

Profa. Dra. Miriam Maria de Resende (UFU)

Profa. Dra. Rosineide Gomes da Silva Cruz (UFSCar)

O Relatório de Defesa assinado pelos membros da Comissão Julgadora encontra-se arquivado junto ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Química.

Apoio Financeiro

O presente trabalho foi realizado com apoio do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, CNPq.

O presente trabalho foi realizado com apoio da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior – Brasil (CAPES) – Código de Financiamento 001.

Resumo

Devido à crescente demanda por biossurfactantes, os quais são alternativas ecologicamente mais corretas em relação aos surfactantes oriundos de matérias-primas não-renováveis, há uma crescente necessidade por estudos que proponham novos processos para a produção dos mesmos ou que visem à otimização dos processos já existentes. Nesse contexto, a modelagem matemática dos reatores enzimáticos de esterificação de ácidos graxos com açúcares para a produção de biossurfactantes tem se mostrado uma ferramenta útil para o estudo e a otimização do processo. Em particular, as redes neurais artificiais e sistemas nebulosos (ou *fuzzy*) surgem como métodos promissores para o desenvolvimento de modelos para o processo citado. Assim, este trabalho visou ao desenvolvimento de modelos híbridos-neurais e de um modelo *fuzzy* para reatores enzimáticos de esterificação associados à produção de biossurfactantes. No caso da aplicação de redes neurais artificiais, foi considerado o acoplamento das redes a balanços de massa de reator, em modelos híbridos, para inferir as concentrações dos reagentes ao longo do tempo. Para isso, o método clássico de Runge-Kutta pôde ser usado para a integração das equações diferenciais dos balanços materiais. Computacionalmente, construiu-se um algoritmo incorporando balanços materiais, velocidades de reação neurais e integração numérica passo a passo. Já no caso da aplicação da lógica *fuzzy* para modelagem e otimização da conversão da esterificação de ácidos graxos com açúcares, em função de parâmetros operacionais de processo (como tempo, temperatura, razão molar de substratos), procedeu-se a um estudo embasado em um conjunto de dados experimentais, já disponíveis, visando à comparação da previsão de condições operacionais ótimas fornecidas pelo modelo *fuzzy* com aquelas provenientes da metodologia clássica de superfícies de respostas obtidas por modelos de regressões não-lineares. Todo o desenvolvimento computacional foi realizado no software Matlab. Na aplicação dos modelos híbridos-neurais, as redes neurais foram capazes de prever o comportamento do processo de esterificação de xilose em síntese de biossurfactantes, ao aplicá-las em balanços de massa de reatores, obtendo valores de R^2 acima de 0,94, indicando boa capacidade de predição. Os modelos *fuzzy* treinados foram capazes de simular as relações entre as variáveis de entrada sobre a variável de saída, permitindo a construção de diversas combinações de superfícies de respostas e a estimativa da condição operacional ótima de 55°C, RMS de 0:0,2, carga enzimática de 37,5 U/g e com tempo de reação maior ou igual a 60 horas, sendo que a mesma condição foi obtida ao aplicar o algoritmo *particle swarm optimization*, estando condizente com resultados obtidos por estudos prévios. Dessa forma, o presente trabalho demonstrou a eficácia do uso de inteligência computacional na modelagem, simulação e otimização da síntese de biossurfactantes.

Palavras-chaves: Biossurfactantes, Redes neurais artificiais, Lógica fuzzy, ANFIS

Abstract

Because of increasing demand of biosurfactants, which are more environmentally friendly than to surfactants derived from non-renewable raw materials, there is a growing need for studies proposing new processes for their production or aiming at the optimization of existing processes. In this context, the mathematical modeling of enzymatic reactors for the esterification of fatty acids with sugars in the production of biosurfactants has been a useful tool for studying and optimizing the process. In particular, artificial neural networks and fuzzy systems emerge as promising methods for developing models for those process. Thus, this work aimed at the development of hybrid-neural models and a fuzzy model for enzymatic esterification reactors associated with biosurfactant production. In the case of artificial neural networks application, the coupling of networks to reactor mass balances was considered in hybrid models to infer reactant concentrations over time. To achieve this, the classical Runge-Kutta method was employed for the integration of the material balance differential equations. Computationally, an algorithm was constructed incorporating material balances, neural reaction rates, and step-by-step numerical integration. In the case of applying fuzzy logic for modeling and optimizing the conversion of fatty acid esterification with sugars, in function of operational process parameters (such as time, temperature, molar ratio of substrates), a study was conducted based on an available set of experimental data. The aim was to compare the prediction of optimal operational conditions provided by the fuzzy model with those derived from the classical response surface methodology. All computational development was carried out using the Matlab software. In the application of hybrid-neural models, neural networks were able to predict the kinetic behavior of the xylose esterification process in biosurfactant synthesis by applying them to reactor mass balances, obtaining R^2 values above 0.94, indicating a good predictive capacity. The trained fuzzy models were able to simulate the relationships between input variables and the output variable, enabling the construction of various response surface combinations and estimating the optimal operational condition at 55°C, RMS of 0:0.2, enzyme loading of 37.5 U/g, and 60 hours of reaction. The same condition was obtained when applying the particle swarm optimization algorithm, consistent with results from similar studies. Thus, this study demonstrated the capability of computational intelligence in modeling, simulation, and optimization of biosurfactant synthesis.

Key-words: Biosurfactants, Artificial neural networks, Fuzzy logic, ANFIS

Sumário

1	INTRODUÇÃO	1
2	OBJETIVOS	3
2.1	Objetivos específicos	3
3	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	4
3.1	Biossurfactantes	4
3.1.1	Ésteres de ácidos graxos com açúcares	5
3.2	Lipases	6
3.2.1	Lipase B de <i>Pseudozyma (Candida) antarctica</i>	7
3.3	Modelagem fenomenológica da produção de biossurfactantes	7
3.4	Redes Neurais Artificiais	8
3.4.1	Arquitetura de redes neurais	10
3.4.2	Uso de RNAs na produção de biossurfactantes	12
3.5	Lógica <i>fuzzy</i>	13
3.5.1	Descrição	13
3.5.2	Variáveis e valores linguísticos	14
3.5.3	Funções de pertinência	14
3.5.4	Regras <i>fuzzy</i>	15
3.5.5	Sistema de Inferência <i>fuzzy</i>	15
3.5.6	Takagi-Sugeno	16
3.6	ANFIS	16
3.6.1	Uso de ANFIS na indústria química	18
3.7	PSO	19
4	MATERIAL E MÉTODOS	21
4.1	Desenvolvimento da modelagem híbrida-neural utilizando de redes neurais artificiais	21
4.1.1	Aplicação de redes neurais para inferir as velocidades de reação	21
4.1.2	Aplicação de redes neurais para inferir as constantes do modelo de Ping Pong Bi Bi	23
4.2	Desenvolvimento da modelagem por sistemas <i>fuzzy</i>	24
4.3	Otimização dos parâmetros reacionais através do <i>pso</i>	25
5	RESULTADOS E DISCUSSÃO	26
5.1	Desenvolvimento da modelagem por redes neurais artificiais	26

5.1.1	Aplicação de redes neurais artificiais em balanço de massa de reatores .	26
5.1.2	Aplicação de redes neurais artificiais em modelagem fenomenológica (Ping Pong Bi Bi)	37
5.2	Desenvolvimento da modelagem por sistema <i>fuzzy</i>	40
5.3	Aplicação do <i>particle swarm optimization</i> no modelo ANFIS	53
6	CONCLUSÃO	54
	REFERÊNCIAS	55
	APÊNDICE A – VALORES DOS COEFICIENTES DE SAÍDA DO SISTEMA DE INFERÊNCIA NEBULOSA AJUSTADO PELO ANFIS	63

Lista de ilustrações

Figura 1 – Reação de esterificação entre um açúcar e um ácido graxo (GUMEL <i>et al.</i> , 2011).	5
Figura 2 – Representação do mecanismo de reação Ping Pong Bi Bi (AGUILAR, 2018).	8
Figura 3 – Modelo não-linear de um neurônio (HAYKIN, 2007).	9
Figura 4 – Funcionamento do processo de aprendizagem supervisionada por redes neurais.	10
Figura 5 – Grafo arquitetural de uma rede MLP com duas camadas ocultas (HAYKIN, 2007).	11
Figura 6 – Exemplo de uma variável linguística (PEDRYCZ; GOMIDE, 1998).	14
Figura 7 – Sistema de inferência <i>fuzzy</i> genérico.	15
Figura 8 – Estrutura esquemática do ANFIS (FERREIRA, 2022).	17
Figura 9 – Esquema de interação das partículas.	19
Figura 10 – Arquitetura genérica das redes neurais.	22
Figura 11 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA1 para as redes: a-) RNA1-1; b-) RNA1-2 e c-) RNA1-3.	27
Figura 12 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA2 para as redes: a-) RNA2-1; b-) RNA2-2 e c-) RNA2-3.	28
Figura 13 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA3 para as redes: a-) RNA3-1 e b-) RNA3-2.	28
Figura 14 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA4 para as redes: a-) RNA4-1 e b-) RNA4-2.	29
Figura 15 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA5 para as redes a-) RNA5-1 e b-) RNA5-2.	29
Figura 16 – Modelagem cinética das redes RNA1 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA1-1; b-) RNA1-2 e c-) RNA1-3.	32
Figura 17 – Modelagem cinética das redes RNA2 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA2-1; b-) RNA2-2 e c-) RNA2-3.	33
Figura 18 – Modelagem cinética das redes RNA3 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA3-1 e b-) RNA3-2.	33
Figura 19 – Modelagem cinética das redes RNA4 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA4-1 e b-) RNA4-2.	33
Figura 20 – Modelagem cinética das redes RNA1 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA5-1 e b-) RNA5-2.	34
Figura 21 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA1-1; b-) RNA1-2 e c-) RNA1-3.	34

Figura 22 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA2-1; b-) RNA2-2 e c-) RNA2-3.	35
Figura 23 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA3-1 e b-) RNA3-2.	35
Figura 24 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA4-1 e b-) RNA4-2.	36
Figura 25 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA5-1 e b-) RNA5-2.	36
Figura 26 – Gráfico de regressão para o treinamento e validação da rede treinada.	37
Figura 27 – Perfil de consumo de ácido na síntese de biossurfactantes utilizando as constantes cinéticas obtidas pela rede neural treinada referente ao conjunto de dados usado para validação.	39
Figura 28 – Regressão dos dados experimentais com a saída da rede ANFIS para: a-) ANFIS1-1 e b-) ANFIS1-2.	43
Figura 29 – Regressão dos dados experimentais com a saída da rede ANFIS para: a-) ANFIS2-1 e b-) ANFIS2-2.	44
Figura 30 – Regressão dos dados experimentais com a saída da rede ANFIS para: a-) ANFIS3-1 e b-) ANFIS3-2.	44
Figura 31 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS1-1, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.	44
Figura 32 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS1-2, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.	45
Figura 33 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS2-1, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.	45
Figura 34 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS2-2, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.	45
Figura 35 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS3-1, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.	46
Figura 36 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS3-2, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.	46
Figura 37 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS1-1.	47
Figura 38 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS1-2.	48
Figura 39 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS2-1.	49

Figura 40 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS2-2.	50
Figura 41 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS3-1.	51
Figura 42 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS3-2.	52

Lista de tabelas

Tabela 1 – Funções de ativação no <i>Matlab</i> . (MATHWORKS, 2002).	12
Tabela 2 – Especificação de cada conjunto de RNA treinada.	21
Tabela 3 – Condições operacionais do planejamento fatorial.	24
Tabela 4 – Valores dos pesos camada oculta das redes RNA1.	30
Tabela 5 – Valores dos pesos camada oculta das redes RNA2.	30
Tabela 6 – Valores dos pesos da camada oculta das redes RNA3.	30
Tabela 7 – Valores dos pesos da camada oculta das redes RNA4.	31
Tabela 8 – Valores dos pesos da camada oculta das redes RNA5.	31
Tabela 9 – Valores dos pesos da camada de saída. (da rede RNA1)	31
Tabela 10 – Valores dos pesos da camada de saída. (das demais redes)	32
Tabela 11 – Valores dos pesos da camada oculta da rede treinada.	38
Tabela 12 – Valores dos pesos da camada de saída.	38
Tabela 13 – Valores de V_{max} , k_{sugar} e k_{acid} do conjunto de dados para a validação, obtidos a partir da rede neural treinada.	39
Tabela 14 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema <i>fuzzy</i> ajustado pela rede ANFIS1-1.	40
Tabela 15 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema <i>fuzzy</i> ajustado pela rede ANFIS1-2.	41
Tabela 16 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema <i>fuzzy</i> ajustado pela rede ANFIS2-1.	41
Tabela 17 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema <i>fuzzy</i> ajustado pela rede ANFIS2-2.	42
Tabela 18 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema <i>fuzzy</i> ajustado pela rede ANFIS3-1.	42
Tabela 19 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema <i>fuzzy</i> ajustado pela rede ANFIS3-2.	43
Tabela 20 – Condições otimizadas obtidas pelo "pso" das redes ANFIS1.	53
Tabela 21 – Condições otimizadas obtidas pelo "pso" das redes ANFIS2.	53
Tabela 22 – Condições otimizadas obtidas pelo "pso" das redes ANFIS3.	53
Tabela A.1 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno de ordem zero ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS1-1.	63
Tabela A.2 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno de ordem zero ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS1-2.	64
Tabela A.3 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno linear ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS2-1.	65

Tabela A.4 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno linear ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS2-2.	68
Tabela A.5 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno de ordem zero ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS3-1.	71
Tabela A.6 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno de ordem zero ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS3-2.	72

Lista de abreviaturas e siglas

ANN	<i>Artificial neural networks</i>
ANFIS	<i>Adaptative neuro-fuzzy inference system</i>
SFAE	<i>Sugar fatty-acid ester</i>
CalB	Lipase B da <i>Candida anctartica</i>
MLP	<i>Multilayer perceptrons</i>
PSO	<i>Particle swarm optimization</i>
RMS	Razão molar de ácido graxo/xilose
CALB-IM	Lipase B da <i>Candida antarctica</i> imobilizada
CALB-SMMP-octil	Lipase B da <i>Candida antarctica</i> imobilizada em micropartículas magnéticas de sílica com grupos octil
CALB-SMMP-octil-GLU	Lipase B da <i>Candida antarctica</i> imobilizada em micropartículas magnéticas de sílica com grupos octil mais glutaraldeído

1 Introdução

Mediante as necessidades por alternativas mais sustentáveis aos produtos já disponíveis no mercado, os biossurfactantes surgem como uma opção promissora aos surfactantes sintéticos (NITSCHKE; PASTORE, 2002). Assim como os surfactantes sintéticos, os biossurfactantes têm a capacidade de formar micelas e de reduzir as tensões superficiais e interfaciais, sendo adequados para a aplicação comercial (DRAKONTIS; AMIN, 2020).

Os biossurfactantes se destacam em relação aos surfactantes sintéticos devido à sua biodegradabilidade, baixa toxicidade, uso de substratos de origens renováveis e de resíduos de diversos processos de produção, que podem diminuir os custos de fabricação (KRELING *et al.*, 2019). Além disso, os biossurfactantes são mais eficientes por reduzirem ainda mais a tensão superficial em relação aos surfactantes químicos, ou seja, demandam uma concentração inferior para a máxima redução da tensão superficial (CAMEOTRA; MAKKAR, 2004).

A esterificação de ácidos graxos com carboidratos possui um grande interesse comercial (VESCOVI *et al.*, 2017), pois produz ésteres de ácidos graxos de açúcar, que podem ser amplamente utilizados na indústria de alimentos, farmacêutica, cosmética e petroquímica (TORRES *et al.*, 2020). Essa reação pode ser realizada via rota química ou enzimática, sendo que a rota química necessita altas temperaturas e um catalisador alcalino, que pode levar à formação de subprodutos tóxicos (YAN, 2001). Por outro lado, na rota enzimática, a reação ocorre em condições amenas, além de apresentar uma alta seletividade, baixa toxicidade e alta qualidade e pureza do produto (AN *et al.*, 2019).

A modelagem matemática dos reatores enzimáticos de esterificação de ácidos graxos com açúcares para a produção de biossurfactantes pode ser uma ferramenta útil para o estudo e a otimização do processo. Em particular, as redes neurais artificiais e sistemas nebulosos (ou *fuzzy*) surgem como métodos promissores para o desenvolvimento de modelos para o processo citado.

As redes neurais artificiais (RNAs) são uma poderosa técnica para a solução de problemas na engenharia química, capazes de modelar sistemas não-lineares, com um baixo custo computacional (BEIGI *et al.*, 2017). A utilização de ANNs na modelagem matemática de reatores enzimáticos de esterificação tem sido amplamente estudada por diversos autores, com o objetivo de otimizar a produção de biodiesel, ésteres de ácidos carboxílicos aromáticos e, também, de biossurfactantes (MANOHAR; DIVAKAR, 2005; TORRES, 2021; SOLTANI *et al.*, 2022).

O *adaptive neuro-fuzzy inference system* (ANFIS), ou sistema de inferência neuro-fuzzy adaptativo, é uma técnica que combina o poder das redes neurais e do sistema de in-

ferência fuzzy (BETIKU *et al.*, 2016). O ANFIS tem sido apresentado como uma ferramenta poderosa para a otimização dos parâmetros reacionais de reatores enzimáticos para a produção de biossurfactantes e biodiesel (SANTOS *et al.*, 2017; IGHOSE *et al.*, 2017; AHMAD *et al.*, 2016a).

A produção de biossurfactantes por esterificação de ácidos graxos (oleico e láurico) e carboidratos (frutose e lactose) na presença dos solventes terc-butanol e 2-metil-2-butanol, usando como biocatalisadores a lipase comercial B de *Candida antarctica* já foi avaliada experimentalmente por Lima *et al.* (2016), sendo que Torres (2021) realizou a modelagem cinética desse processo por três abordagens distintas: a modelagem fenomenológica semi-mecanística, por utilização de modelo baseado no mecanismo de Ping Pong Bi Bi, o uso de RNAs em uma modelagem cinética empírica e o desenvolvimento inicial de um modelo *fuzzy*.

Nesse contexto, o presente trabalho visa acrescentar ao estudo da modelagem matemática da produção de biossurfactantes, desenvolvendo um modelo híbrido-neural capaz de calcular valores de concentração de xilose ao longo do tempo, utilizando redes neurais para inferir diretamente a velocidade de reação ou para estimar as constantes do modelo cinético de Ping Pong Bi Bi, e completar o modelo *fuzzy* desenvolvido por Torres (2021), acrescentando dados provenientes do planejamento fatorial de Lima *et al.* (2016), possibilitando uma visualização mais ampla do efeito das variáveis de entrada sobre a variável de saída.

2 Objetivos

O objetivo desta dissertação é o desenvolvimento de metodologias para a previsão dos valores de concentrações ao longo do tempo para a esterificação de ácidos graxos com açúcares, pelo uso de redes neurais artificiais, e otimização das condições operacionais por lógica *fuzzy*.

2.1 Objetivos específicos

- Inferir as concentrações dos reagentes ao longo do tempo utilizando modelos híbridos-neurais, com aplicação de redes neurais para fornecer diretamente as velocidades de reação.

- Alternativamente, mapear as constantes para o modelo clássico de Ping Pong Bi Bi utilizando redes neurais. Em ambos os casos, a cinética (neural ou de Ping Pong Bi Bi parametrizada por rede neural) foi acoplada a balanços de massa do reator.

- A lógica *fuzzy*, por sua vez, foi utilizada para criar um modelo visando à previsão de condições operacionais ótimas de processo (tempo, temperatura, razão molar de substratos e carga enzimática), para maximizar a conversão em produto.

3 Revisão bibliográfica

3.1 Biossurfactantes

Os biossurfactantes são moléculas anfipáticas que possuem propriedades hidrofílicas e hidrofóbicas (ADETUNJI; OLANIRAN, 2021; MUKHERJEE *et al.*, 2006). Assim como os surfactantes sintéticos, os biossurfactantes têm a capacidade de formar micelas e de reduzir as tensões superficiais e interfaciais, sendo adequados para a aplicação comercial (DRAKONTIS; AMIN, 2020).

Os biossurfactantes são surfactantes produzidos a partir de micro-organismos ou de suas enzimas, utilizando substratos de fontes renováveis, sendo assim, altamente biodegradáveis em relação aos surfactantes derivados do petróleo (FRANZETTI *et al.*, 2012). Além disso, os biossurfactantes possuem diversas vantagens em relação aos surfactantes sintéticos, como a sua baixa toxicidade, interações benéficas com o ambiente e menor concentração micelar crítica, aumentando a sua eficiência para diversas aplicações (JAHAN *et al.*, 2020).

Devido à crescente demanda por soluções ecológicas, a expectativa é de que a produção de biossurfactantes cresça nos próximos anos, de acordo com as análises de mercado do MarketsandMarkets™ (2023). Segundo as estimativas feitas por esse instituto, o mercado de biossurfactantes atingiu, em 2023, a marca de US\$ 1,3 bilhões, com a expectativa de crescimento até US\$ 2,3 bilhões, em 2028.

Microrganismos como *Pseudomonas*, *Bacillus* e espécies de *Acinetobacter* são capazes de produzir biossurfactantes, sendo que os mesmos também podem ser sintetizados *in vitro* utilizando as enzimas como biocatalizadores (DESAI; BANAT, 1997). Além disso, são utilizadas diversas estratégias para a produção de biossurfactantes, como a imobilização da enzima produtora, o uso de nanopartículas, a coprodução com outro produto industrial e outras estratégias, sendo que pesquisas continuam a ser desenvolvidas com o intuito de tornar os biossurfactantes cada vez mais economicamente viáveis (SINGH *et al.*, 2019).

O processo de síntese de biossurfactantes pode ocorrer por meio da esterificação de açúcares com ácidos graxos, tendo as lipases como principal enzima que catalisa a reação (CANSIAN *et al.*, 2021), sendo amplamente estudada na literatura como um método promissor para a produção de biossurfactantes. Patil *et al.* (2011) avaliou o rendimento da reação de esterificação utilizando diversos substratos (sorbitol, frutose e ácido ascórbico) com ácido oleico e a enzima da *Candida antarctica* para a produção de biossurfactantes, confirmando a síntese por meio de espectroscopia de ressonância magnética nuclear (RMN) e obtendo rendimentos 27%, 21% e 12% para a produção de éster oleico de sorbitol, de frutose e de ácido ascórbico.

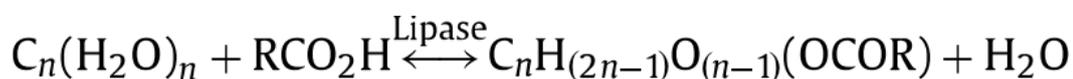
3.1.1 Ésteres de ácidos graxos com açúcares

Os ésteres de ácidos graxos com açúcares (SFAEs) são surfactantes não-iônicos produzidos de fontes renováveis, e por serem inodoros, não possuírem sabor, serem atóxicos e não provocarem irritações ao contato com os olhos ou a pele, são comumente utilizados como emulsificantes de alimentos, produtos de higiene bucal ou em aplicações farmacêuticas e cosméticas (GONCALVES *et al.*, 2023).

A síntese de SFAEs pode ocorrer via processo químico ou enzimático. No processo químico, a reação ocorre em altas temperaturas na presença de um catalisador alcalino, entretanto, o produto não pode ser utilizado na indústria de alimentos devido à necessidade de um solvente tóxico (TAI; BRUNNER, 2009). Na rota enzimática, a reação ocorre em condições amenas, além de apresentar uma alta seletividade, baixa toxicidade e alta qualidade e pureza do produto (AN *et al.*, 2019). Conseqüentemente, a síntese via catálise por lipase é a melhor opção para a produção de ésteres de ácidos graxos com açúcares (GUMEL *et al.*, 2011).

Açúcares e ácidos graxos são os substratos envolvidos na síntese de SFAEs pela reação de esterificação enzimática, como na Figura 1 (GUMEL *et al.*, 2011). A eficiência da reação depende das características dos substratos, em que existem lipases com alta seletividade para ácidos graxos de cadeia média e longa, enquanto outras lipases possuem boa seletividade para ácidos graxos de cadeia curta (ADACHI; KOBAYASHI, 2005).

Figura 1 – Reação de esterificação entre um açúcar e um ácido graxo (GUMEL *et al.*, 2011).



Os ésteres de açúcares são aplicados, em sua maioria, na indústria de alimentos, usados preferencialmente em sua forma sólida (HAYES; SMITH, 2019), para a produção de pães, de chocolate, sorvetes, molhos, maionese e também como substitutos de gorduras e na fabricação de microemulsões e nanoemulsões (HILÁRIO, 2020). Os SFAEs também são usados em outras indústrias, como cosmética, para a produção de máscaras (COLLIN *et al.*, 1998), de shampoos e cremes (KHAN; RATHOD, 2015), e farmacêutica, devido às suas propriedades antimicrobianas, antivirais e anti-inflamatórias (TORRES, 2021).

Na literatura, o estudo da síntese de SFAE por meio da esterificação por lipases é realizado por diversos autores, visando propor técnicas para solucionar as dificuldades encontradas na produção dos SFAEs ou para a otimização dos parâmetros da reação. Sang *et al.* (2008) observaram que a baixa solubilidade dos açúcares em solventes orgânicos e líquidos iônicos dificulta a síntese de SFAE, pois vários solventes capazes de dissolver o açúcar efetivamente são prejudiciais para as lipases. Sendo assim, foi desenvolvido um procedimento capaz de obter uma solução supersaturada de açúcar em um líquido iônico, com uma concentração de glicose 400% maior do que sua saturação, e, utilizando a solução rica em açúcares, a conversão de

substrato aumentou de 8% para 96% com 1 dia de reação, melhorando significativamente a conversão por meio da técnica proposta.

Os estudos de Yan *et al.* (2001) buscaram a otimização dos parâmetros reacionais de um reator de membranas com tanque agitado para a produção de SFAE, utilizando a Lipase B, da *Candida antarctica*, como catalisador. O processo foi otimizado por uma metodologia de superfície de resposta baseado nos 5 parâmetros reacionais avaliados: tempo de reação, razão de substratos, temperatura, razão de solventes e carga de enzima, tendo o rendimento como a variável resposta. Assim, a otimização obteve a condição de 58 horas de reação, 2,7 de razão de substratos, 8,9% de carga enzimática, temperatura de 78°C e razão de solventes de 1,9, alcançando uma conversão de até 93% do substrato.

3.2 Lipases

As lipases são hidrolases, um subgrupo de enzimas com excelente estabilidade e atividade na presença de solventes orgânicos, no qual conseguem atuar em uma ampla variedade de substratos, como triacilgliceróis, ésteres de ácidos graxos, lipídios, óleos sintéticos ou naturais, etc (CAVALCANTE *et al.*, 2021). As lipases catalisam reações como a esterificação, transesterificação (interesterificação, alcoólises e acidólises), aminólise (síntese de amidas), hidrólise e a lactonização, sendo que a atividade de água do meio reacional é um dos fatores determinantes para cada classe de reação (ORTIZ *et al.*, 2019; CARVALHO *et al.*, 2014).

As lipases são amplamente encontradas na natureza, sendo produzidas por microrganismos, animais e vegetais (TREVISAN, 2004). Dependendo da sua origem, podem apresentar massa molecular variando de 19 a 75 kDa e atuar numa ampla faixa de pH (4,0-9,0) e de temperatura, a qual varia do ambiente até 70°C (CORTEZ *et al.*, 2017). Dentre as fontes produtoras de lipase, a produção por culturas de microrganismos é a mais aplicada industrialmente, pois este processo apresenta maior facilidade de controle, maior capacidade produtiva e custo de obtenção reduzido (KATSURAGI *et al.*, 2004). Além dessas vantagens, as lipases microbianas têm sido mais amplamente empregadas em processos industriais do que as derivadas de plantas e animais devido à sua maior termoestabilidade, tolerância a variações de pH e estabilidade em solventes orgânicos (ROMANO *et al.*, 2020).

A alta versatilidade das lipases, reconhecidas como as mais importantes dentre os biocatalisadores na área de biotecnologia, permite a sua aplicação em diferentes indústrias, como a alimentícia, de detergentes, farmacêutica, couro, têxtil, cosmética, papel e de produção de biodiesel (BHARATHI; RAJALAKSHMI, 2019). Na indústria farmacêutica, é utilizado na síntese de intermediários de fármacos (como por exemplo, ibuprofeno e naproxeno e fármacos com atividade anti-inflamatória) e na resolução de misturas racêmicas (BABICZ *et al.*, 2010); na indústria alimentícia, as lipases se tornaram indispensáveis, sendo utilizado na fermentação de alimentos, processamento de frutas, na maturação de queijos e na área de confeitaria (CIOU

et al., 2011), além de ser utilizado também no tratamento de efluentes, síntese de inseticidas e pesticidas e em produtos de limpeza, para a remoção de gordura (RAIZER, 2015). Entretanto, apesar do alto potencial das lipases, seu uso industrial ainda é limitado, pois as estratégias de purificação de culturas microbianas apresentam desvantagens, como a não reprodutibilidade e rendimentos baixos (BORRELLI; TRONO, 2015).

3.2.1 Lipase B de *Pseudozyma (Candida) antarctica*

A lipase B da *Candida antarctica* é uma das enzimas mais estudadas na literatura. A espécie de levedura *Candida antarctica* produz dois tipos de lipases, a lipase A (CalA) e a lipase B (CalB), no qual a CalB é uma das hidrolases mais utilizadas no campo da biocatálise (KUNDYS *et al.*, 2018), por apresentar alta atividade, estabilidade em meio aquoso e não aquoso, alta enantiosseletividade com uma alta variedade de substratos, boa estabilidade térmica, simplicidade no uso, baixo custo, disponibilidade comercial e possibilidade de reuso (ROBERT *et al.*, 2019; ANDERSON *et al.*, 1998; GOTOR-FERNÁNDEZ *et al.*, 2006), enquanto que a CalA é menos estudada, sendo conhecida por aceitar substratos volumosos, como os álcoois terciários (NETO *et al.*, 2023).

A lipase B é produzida pela Novozymes como um recombinante de *Aspergillus oryzae*, sendo estruturalmente semelhante a várias outras lipases. A CalB é formada por 317 aminoácidos e com peso molecular de 33 kDa, pertencendo à família alfa/beta hidrolase dobrada (KIRK; CHRISTENSEN, 2002).

O potencial da lipase B da *Candida antarctica* como catalisador para a reação de esterificação, tendo como objetivo a produção de biossurfactantes, é amplamente estudada na literatura, como por exemplo Li *et al.* (2015), que estudou a esterificação da frutose com ácido laurico em meio orgânico utilizando a lipase B da *Candida antarctica* imobilizada comercial para a produção de éster de ácido graxo de açúcar, com o objetivo de demonstrar a influência do meio orgânico no grau de esterificação. Enayati *et al.* (2018) sintetizaram enzimaticamente o éster de ácido graxo de lactose através da enzima comercial lipase B da *Candida antarctica* em solvente orgânico, obtendo uma conversão de 77% com enzimas livres, e de 93% com enzimas imobilizadas, utilizando hexano e acetonitrila como solventes orgânicos.

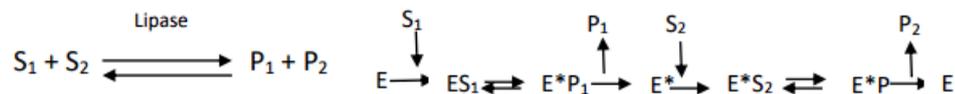
3.3 Modelagem fenomenológica da produção de biossurfactantes

A modelagem fenomenológica relacionada à produção de biossurfactantes pela esterificação é uma ferramenta amplamente utilizada para o estudo cinético da reação. Os estudos de Martínez *et al.* (2011), por exemplo, desenvolvem a modelagem matemática da esterificação enzimática entre o poliglicerol com ácidos graxos para a produção de biossurfactantes, utilizando

um modelo pseudo segunda ordem com o modelo de Langmuir para a adsorção dos ácidos, obtendo assim, um erro de até 10% para a reação entre o poliglicerol e ácidos graxos, com a lipase NOVOZYM-435 como catalisador.

É também possível a aplicação de mecanismos de reação desenvolvidos para reações bioquímicas, especificamente para o caso da produção de biossurfactantes, em que o modelo de Ping Pong Bi Bi é o mecanismo mais aceito para descrever as reações catalisadas por lipases (AGUILAR, 2018). Em particular, na reação de esterificação com açúcares, a lipase se liga a uma molécula de ácido graxo formando uma versão acilada da enzima, um complexo intermediário acil-enzima, e liberando água. A acil-enzima se liga ao açúcar e uma ligação éster é formada com um dos grupos hidroxila disponível no substrato, finalmente liberando a enzima (TORRES, 2021).

Figura 2 – Representação do mecanismo de reação Ping Pong Bi Bi (AGUILAR, 2018).



Na Figura 2, é apresentado o mecanismo de reação Ping Pong Bi Bi, sem inibição, para reações com dois substratos e dois produtos, catalisada por uma lipase. O primeiro substrato (S_1) forma o primeiro complexo (ES_1) com a enzima gerando o primeiro produto (P_1). A enzima forma logo o complexo com o segundo substrato ($E * S_2$) para gerar o segundo produto (P_2) (AGUILAR, 2018).

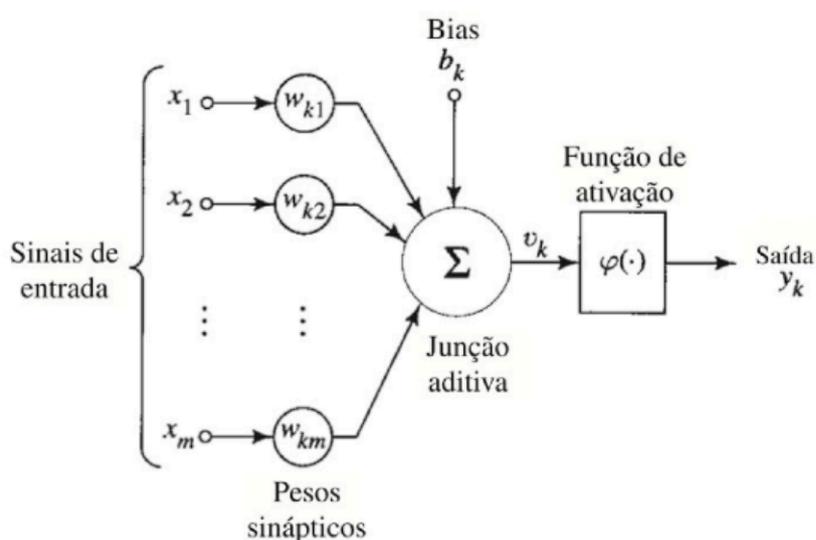
Lopresto *et al.* (2014) estudou a cinética da reação de esterificação entre o ácido octanóico com hexanol, utilizando a lipase B imobilizada como catalisador e o n-decano como solvente, para a produção de octanoato de hexil, e observou que a reação segue o padrão do mecanismo de Ping Pong Bi Bi com inibição por ambos os substratos e, baseado nesse modelo, estimou os parâmetros cinéticos da reação, validando o modelo utilizando a curva dos dados experimentais com os resultados obtidos na aplicação do modelo. Todavia, também é conveniente pensar na aplicação de outras abordagens, como por exemplo, modelos caixa preta e caixa cinza, para relacionar as variáveis do processo.

3.4 Redes Neurais Artificiais

As redes neurais artificiais (RNAs) são uma abordagem caixa preta, inspiradas em um modelo simplificado do cérebro humano, utilizadas para modelagem e simulação de problemas não-lineares e complexos (BEIGI *et al.*, 2017). As RNAs têm sido aplicadas com sucesso na Engenharia Química com o objetivo de correlacionar o método analítico com as propriedades dos produtos, e, especificamente, na modelagem de processos para prever o desempenho da produção e condições operacionais (CAVALCANTI *et al.*, 2021).

As RNAs utilizam conjuntos de nós matemáticos, os neurônios, interligados entre si por meio de pesos ajustáveis, para formarem uma rede, capaz de modelar relações funcionais complexas e de armazenar conhecimento por meio de um processo de aprendizagem. A Figura 3 apresenta os três elementos básicos do modelo neural: um conjunto de sinapses, caracterizada por um peso ou força própria; um somador, com sinais ponderados pelas respectivas sinapses do neurônio e uma função de ativação para restringir a amplitude da saída de um neurônio (SHA; EDWARDS, 2007; HAYKIN, 2007). A aprendizagem ocorre pela utilização de um algoritmo, o qual consiste em um procedimento com o objetivo de modificar os pesos da rede de forma a minimizar uma função objetivo (HAYKIN, 2007).

Figura 3 – Modelo não-linear de um neurônio (HAYKIN, 2007).



As principais razões do sucesso na aplicação de redes neurais é o baixo custo operacional comparado a outros métodos e a capacidade de resolver problemas envolvendo sistemas não-lineares complexos (HIMMELBLAU, 2008), a habilidade em aprender, a não-linearidade, a natureza massivamente paralela, a tolerância a falhas e o seu poder de generalização (HAYKIN, 2007), além da capacidade de prever os resultados sem a necessidade de conhecimentos físicos e químicos que regem o processo (PIRDASHTI *et al.*, 2013).

O objetivo de uma RNA é computar valores de saída a partir de valores de entrada por uma série de cálculos internos, por meio dos neurônios (SADRZADEH *et al.*, 2008), possuindo uma abordagem de rápida implementação, com excelentes resultados, tendo a habilidade de processar um grande número de dados (NELLES, 2001).

Nas últimas décadas, um grande número de estudos que avalia o uso das RNAs na área de Engenharia Química foram publicados, com o objetivo de prever as propriedades moleculares, realizar diagnóstico de falhas, controle preditivo e otimização de um processo. Os estudos visaram à aplicação das RNAs nas áreas da termodinâmica, fenômenos de transportes, cinética e catálise, análise e otimização de processos e na área de segurança e controle de processos (CAVALCANTI *et al.*, 2021).

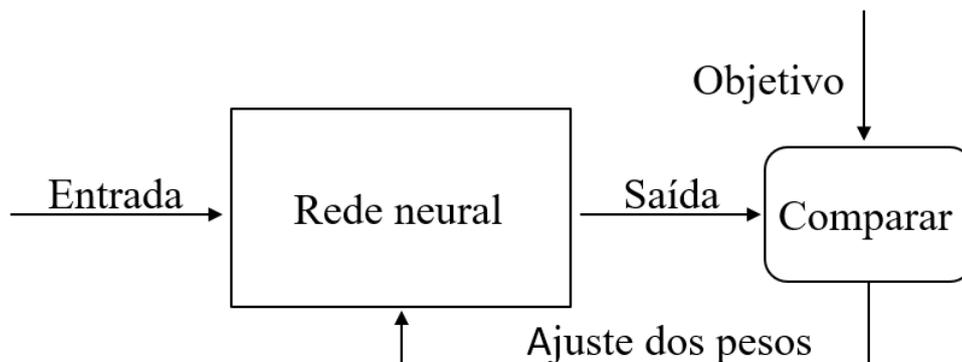
3.4.1 Arquitetura de redes neurais

As redes neurais são compostas por elementos simples operando em paralelo, podendo ser treinadas a partir do ajuste dos valores das conexões (pesos) entre os elementos. Uma rede neural simples é formada por um conjunto de neurônios, e as mais complexas por camadas de neurônios, em uma rede multicamadas. As camadas ocultas consistem em camadas posicionadas entre a camada de entrada e a camada de saída (MATHWORKS, 2002). O valor de saída do neurônio é produzido após a chamada da função de ativação, por meio de variáveis de entrada, que são ponderadas pelo pesos e somadas, formando o argumento dessa função (HAYKIN, 2007).

A propriedade mais importante de uma rede neural é a habilidade de aprender a partir de seu ambiente e de melhorar o seu desempenho por um método de aprendizagem. Uma rede neural aprende acerca do seu ambiente utilizando um processo iterativo de ajustes aplicados nas suas conexões (pesos sinápticos) e níveis de viés (ou "bias") (HAYKIN, 2007).

A rede neural é treinada a partir de um algoritmo de aprendizagem. Na aprendizagem supervisionada, a rede neural é treinada a partir de valores de entrada e de saída para aproximar uma função, ajustando os valores dos pesos dessas conexões, para que uma determinada informação de entrada leve a uma saída específica (BISHOP, 2006). A rede é ajustada por meio da comparação entre a saída e o alvo, como apresentado na Figura 4.

Figura 4 – Funcionamento do processo de aprendizagem supervisionada por redes neurais.



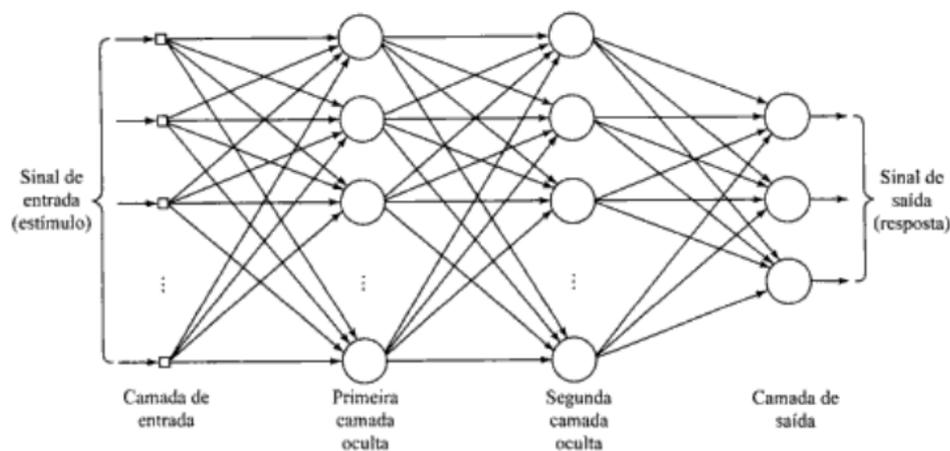
A arquitetura de uma RNA depende do tipo de problema no qual a rede deve ser utilizada e é definida, entre outros fatores, pelo número de camadas, podendo ser com camada única ou múltiplas camadas, pelo número de nós em cada camada, pelo tipo de conexão entre os nós (por realimentação ou alimentação adiante, isto é, *feedback* ou *feedforward*) ou pela sua topologia (recorrentes e não-recorrentes) (KOVÁCS, 2006).

Uma das arquiteturas de redes neurais mais utilizadas são as redes do tipo perceptrons de múltiplas camadas (ou *multilayer perceptron*, MLP), que consistem em um conjunto de unidades sensoriais (nós de fonte), e são formadas por uma camada de entrada, uma ou mais camadas ocultas de nós computacionais e uma camada de saída de nós. Os MLP têm sido aplicados com

sucesso para resolver diversos problemas, por meio do seu treinamento de forma supervisionada com um algoritmo de retropropagação de erro, ou *error back-propagation* (HAYKIN, 2007).

Perceptrons de múltiplas camadas possuem três características distintas: o modelo de cada neurônio da rede inclui uma função de ativação não-linear; possuem uma ou mais camadas de neurônios ocultos e exibem um alto grau de conectividade. A Figura 5 apresenta a arquitetura de perceptrons de múltiplas camadas com duas camadas ocultas (HAYKIN, 2007).

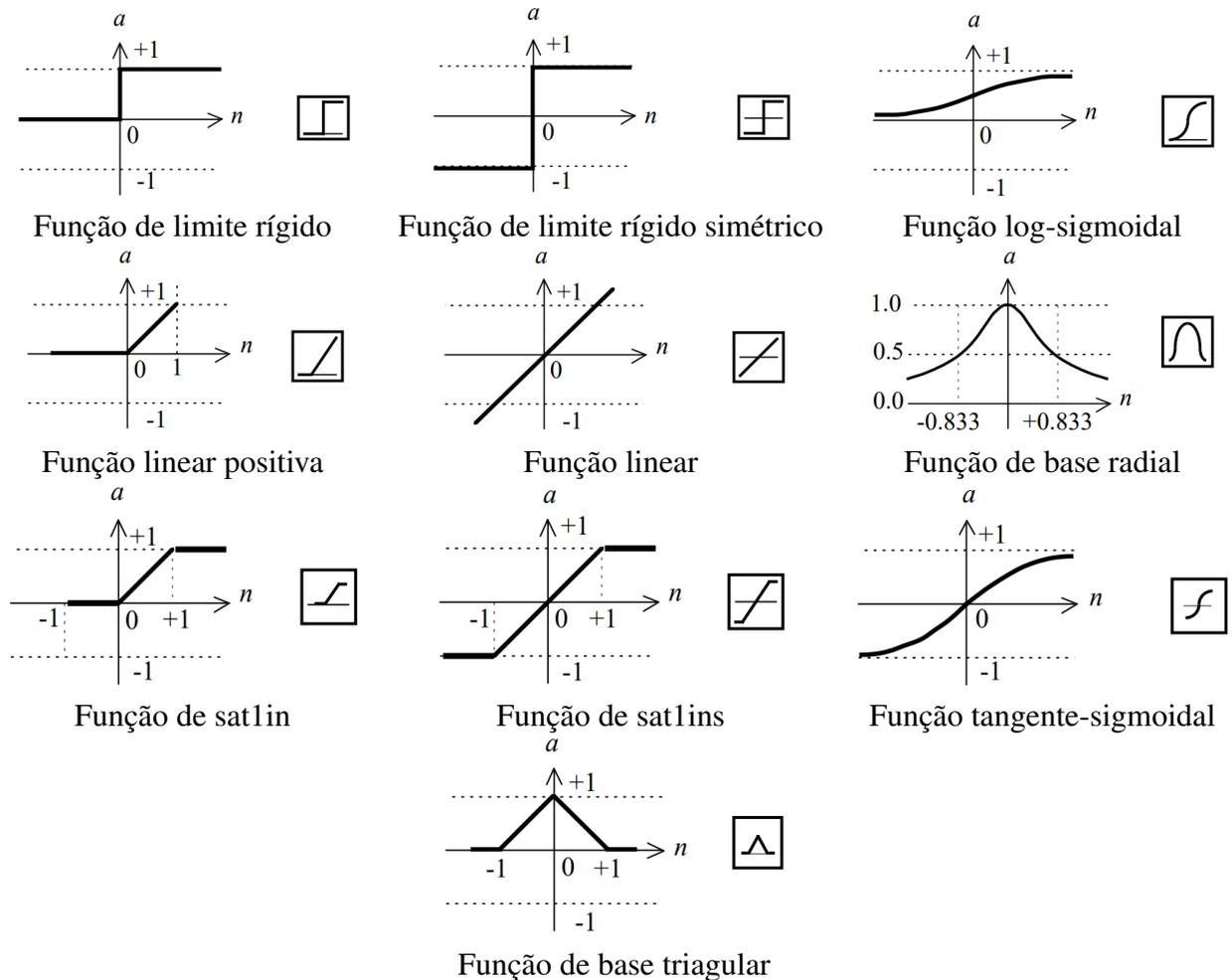
Figura 5 – Grafo arquitetural de uma rede MLP com duas camadas ocultas (HAYKIN, 2007).



A aprendizagem por retropropagação de erro consiste de dois passos pelas das diferentes camadas da rede: um passo para frente, a propagação, e um passo para trás, a retropropagação. A retropropagação é uma técnica específica para implementar do gradiente descendente no espaço de pesos para uma rede de múltiplas camadas alimentada adiante (HAYKIN, 2007). O algoritmo é similar à regra da cadeia do cálculo diferencial e ajusta os valores dos pesos e vieses até se obter o menor valor de erro entre a simulação da rede neural e os valores-alvo. A importância da retropropagação é tão grande que na literatura é frequentemente utilizada como sinônimo do método de treino aplicado ou como arquitetura da rede neural (ou seja, a rede MLP) (NELLES, 2001).

A função de ativação representa o efeito que a entrada interna e o estado atual da ativação exercem na definição do próximo estado de ativação da unidade (FLECK *et al.*, 2016). A Tabela 1 apresenta uma lista com as funções de transferências utilizadas no *software Matlab*. A função de transferência log-sigmoidal é a mais utilizada em redes neurais com retropropagação, principalmente devido à sua diferenciabilidade (MATHWORKS, 2002).

Tabela 1 – Funções de ativação no *Matlab*. (MATHWORKS, 2002).



3.4.2 Uso de RNAs na produção de biossurfactantes

Diversos autores estudam o uso de redes neurais artificiais na produção de biossurfactantes, como, por exemplo, os estudos de Pal *et al.* (2009), em que foi realizada a otimização da produção de biossurfactantes pela bactéria *Rhodococcus erythropolis* por meio de duas técnicas: o uso de rede neurais e da metodologia clássica de superfície de resposta, avaliando a concentração dos reagentes como variáveis de entrada e o rendimento de biossurfactantes como variável de resposta, obtendo um erro próximo de 3% no uso da rede neural e de 6% no uso da abordagem clássica.

Nos estudos de Ahmad *et al.* (2016b), foi empregado o uso de redes neurais artificiais para estimar o rendimento da produção de biossurfactantes por uma cepa da bactéria *Klebseilla sp.*, a redução da tensão superficial e o índice de emulsificação. Para isso, foi elaborado um planejamento experimental, usado para a modelagem e otimização por rede neural, que avalia a influência da temperatura, pH, período de incubação e a fonte do carbono, nitrogênio e hidrocarbonetos sobre as variáveis de respostas. A rede neural mais eficiente apresentou baixo erro absoluto, obtendo 0,030 g/L no rendimento de biossurfactante, 31,67% no índice de emulsificação

e 21,6 dyne/cm de tensão superficial, enquanto que os resultados experimentais apresentaram, respectivamente, valores de 0,038 g/L, 31,68% e 21,5 dyne/cm.

Torres *et al.* (2020) construíram modelos cinéticos neurais utilizando dados experimentais de esterificações de xilose com ácidos oleico e/ou láurico, realizadas com emprego do biocatalisador CALB-IM T2-350 e de derivados da CalB imobilizada em micropartículas magnéticas de sílica, com grupos octil ou com grupos octil mais glutaraldeído, treinando cinco redes neurais artificiais, uma para cada tipo de biocatalisador e ácidos, e mais duas novas redes, treinadas com o agrupamento dos dados em relação ao tipo de biocatalisador. Os resultados obtidos pelas redes treinadas indicaram uma ótima capacidade de previsão, comprovada pelos valores de R-quadráticos superiores a 0,97, demonstrando o potencial do uso das redes neurais em modelos cinéticos.

3.5 Lógica *fuzzy*

3.5.1 Descrição

A lógica *fuzzy*, ou nebulosa, é uma metodologia computacional na qual são utilizadas expressões linguísticas ao invés de apenas valores numéricos, o que possibilita a solução de problemas por meio de técnicas de comunicação humana. Enquanto na teoria clássica de conjuntos um elemento pode pertencer ou não a um conjunto, no sentido de que uma declaração só pode ser considerada verdadeira (representado pelo valor 1) ou falsa (representada pelo valor 0), na lógica nebulosa o raciocínio segue uma abordagem em que os valores extremos correspondem a limites e a variável também pode assumir valores dentro do intervalo (NELLES, 2001).

Na prática, a lógica *fuzzy* é um tipo de modelagem que utiliza variáveis linguísticas como valores de entrada do modelo com limites difusos ao invés de valores discretos (SOLTANIAN; BEIGZADEH, 2023). A lógica *fuzzy* tem a capacidade de lidar com a entrada de dados qualitativos utilizando um sistema de regras com abordagem de inferência, fornecendo uma conclusão unificada, através de um conjunto de premissas mistas e usando regras Se-Então (PAL; MANDAL, 1991).

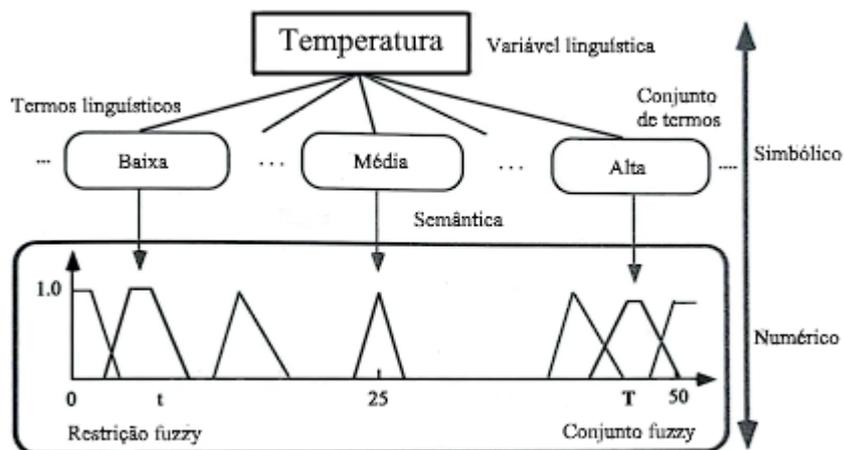
As principais vantagens no uso da lógica *fuzzy* são a capacidade de resolver sistemas não-lineares complexos, a sua flexibilidade e tolerância com dados imprecisos e a possibilidade de aplicar-la conjuntamente com uma técnica de modelagem ou controle convencional (MATHWORKS, 2018). Além disso, os sistemas *fuzzy* são adequados para um raciocínio incerto ou aproximado, especialmente para sistemas com modelo matemático difícil de se obter (FULLÉR, 2000).

3.5.2 Variáveis e valores linguísticos

Em contraste com a ideia tradicional variável, cujo significado comum presume que os valores são numéricos, a variável linguística é uma variável cujos valores são nomes de conjuntos *fuzzy*, fornecendo uma maneira sistemática de aproximação de fenômenos complexos (PEDRYCZ; GOMIDE, 1998; GONÇALVES, 2016).

Por exemplo, na Figura 6, a variável linguística é a *temperatura*, que pode assumir valores numéricos entre 0 a 50, e os termos associados à *temperatura* são os termos linguísticos, que podem ser *muito baixo*, *baixo*, *não muito baixo*, *médio*, *não muito alto*, *alto* e assim por diante, onde cada valor de temperatura está associado a um termo da variável linguística *temperatura*. O conjunto *fuzzy* associado a cada termo da variável linguística *temperatura* é definido por meio de uma função de pertinência. Em termos gerais, a semântica de uma variável linguística produz um mapeamento que associa cada termo de temperatura a um conjunto *fuzzy* correspondente (PEDRYCZ; GOMIDE, 1998).

Figura 6 – Exemplo de uma variável linguística (PEDRYCZ; GOMIDE, 1998).



Logo, valores de uma variável linguística podem ser termos em uma linguagem especificada, construída a partir de designações próprias (baixo, médio, alto), de conectivos lógicos (negação não, conectivos e/ou) e de modificadores (muito, pouco) (SANDRI; CORREA, 1999).

3.5.3 Funções de pertinência

Funções de pertinência *fuzzy* representam os aspectos fundamentais de todas as ações teóricas e práticas de sistemas *fuzzy*. A função de pertinência é uma função numérica que atribui valores de pertinência *fuzzy* para valores discretos de uma variável, dentro do intervalo numérico de todos os possíveis valores reais que a variável específica pode assumir (SIMOES; SHAW, 2007).

A princípio, qualquer função cujos valores de saída estejam entre 0 e 1 pode descrever uma função de pertinência associada a um conjunto *fuzzy*, dependendo do contexto em que é

utilizado. Na prática, os conjuntos *fuzzy* são representados por famílias de funções parametrizadas, sendo as mais comuns as triangulares, as sigmoidais, as trapezoidais, a Gaussiana e a exponencial (PEDRYCZ; GOMIDE, 1998).

3.5.4 Regras *fuzzy*

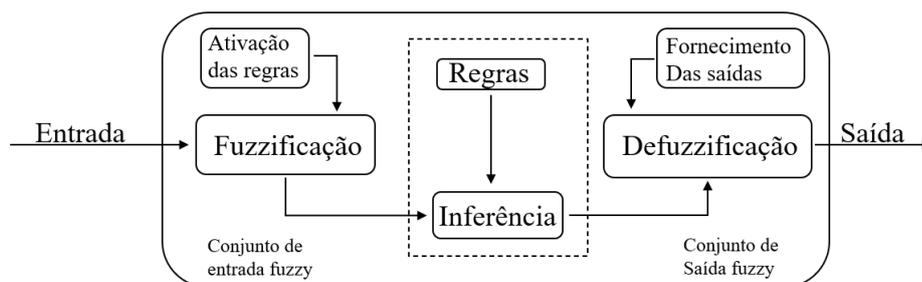
As regras *fuzzy* são regras utilizadas para operar na forma de sentenças linguísticas, e se constituem em um aspecto fundamental no desempenho de um sistema de inferência *fuzzy*. Tais regras são criadas a partir de um raciocínio coerente do operador com o que se deseja manusear e obter, baseado em observações. Para isso, este raciocínio deve ser dividido em duas etapas: avaliar o antecedente da regra e aplicar o resultado no consequente. Cada "situação" é expressa por uma regra e são comumente utilizadas as regras do tipo *if-then* (ou se-então). A regra *if-then* é representada como na Equação 1, em que *a* é a condição e *b* é a consequência da regra (consequente) (SIMOES; SHAW, 2007; MARRO *et al.*, 2000).

$$\text{If } \langle a \rangle \text{ then } \langle b \rangle \quad (1)$$

3.5.5 Sistema de Inferência *fuzzy*

A inferência *fuzzy* é um processo de avaliação de entradas com o objetivo de, por meio das regras previamente definidas e das entradas, obter conclusões utilizando-se a teoria de conjunto *fuzzy*. A Figura 7 apresenta um sistema de inferência *fuzzy*, o qual é alimentado por uma entrada precisa, ou não-*fuzzy*, resultado de um conjunto de dados ou medições, e em seguida passa para um estado de *fuzzificação*, na qual ocorre a ativação das regras para determinado dado, e passa pela fase da inferência, que é responsável pelo processamento dos dados *fuzzy* de entrada, junto com as regras, inferindo sobre a saída do modelo de processo. Em seguida, o conjunto *fuzzy* obtido passa pelo estágio de *defuzzificação*, no qual a interpretação da informação ocorre, com o objetivo de obter uma saída precisa do processo (TANSCHKEIT, 2004; MARRO *et al.*, 2000; NELLES, 2001).

Figura 7 – Sistema de inferência *fuzzy* genérico.



3.5.6 Takagi-Sugeno

Dentre os diversos modelos de inferência, os que mais se destacam são do tipo Mamdani, Takagi-Sugeno e Singleton, nos quais, dentre eles, o modelo Takagi-Sugeno é capaz de aproximar sistemas dinâmicos não lineares com uma combinação de vários sistemas lineares (NELLES, 2001; MACHADO, 2003).

Os modelos *fuzzy* do tipo Takagi-Sugeno têm a capacidade de aproximar uniformemente qualquer função em um domínio compacto, tendo a capacidade de ser um aproximador universal. A forma proposta por Takagi e Sugeno consiste em um sistema baseado em regras *If-Then*, no qual o termo antecedente envolve variáveis linguísticas, enquanto que o termo consequente admite a forma de funções que mapeiam as variáveis de entrada e saída, geralmente sendo uma função linear das entradas. A Equação 2 apresenta uma regra genérica de um sistema *fuzzy* do tipo Takagi-Sugeno (NELLES, 2001; MACHADO, 2003).

$$R_i : SE u_1 = A_{i1} E \dots E u_p = A_{ip} ENTÃO y = f_i(u_1, u_2, \dots, u_p) \quad (2)$$

3.6 ANFIS

O *adaptive neuro-fuzzy inference system* (ANFIS), ou sistema de inferência neuro-*fuzzy* adaptativo, é uma técnica que combina o poder das redes neurais e do sistema de inferência *fuzzy* (BETIKU *et al.*, 2016), sendo aplicado para modelagem e controle de diversos processos, como na captura de CO_2 , tratamento de águas residuais, craqueamento térmico, solubilização de gás em polímeros, planta de destilação de etanol, entre outras possíveis aplicações (SADI *et al.*, 2014).

O ANFIS é uma categoria de rede neural que funciona de maneira similar ao sistema de inferência *fuzzy*, produzindo as regras *fuzzy* e as funções de pertinências automaticamente. Uma típica rede ANFIS é composta por nós conectados dependentes de parâmetros, que são alterados por regras de aprendizado, reduzindo o erro (JANG, 1993).

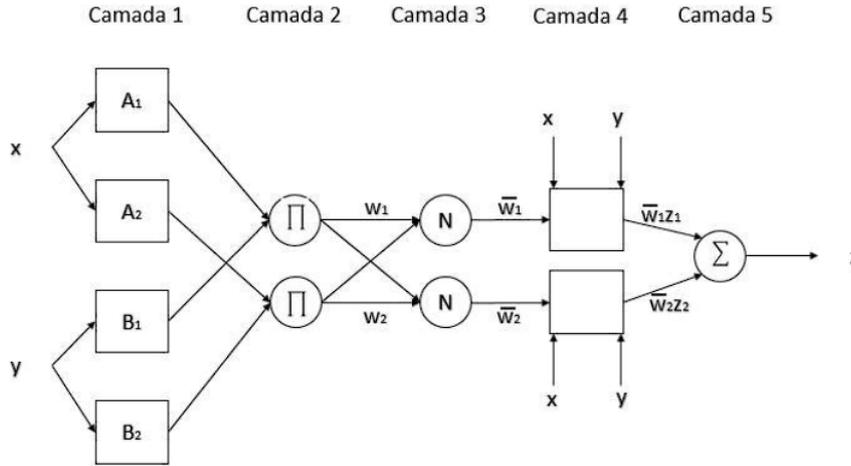
As redes neuro-*fuzzy* e as redes neurais artificiais possuem características em comum. Entretanto, os sistemas possuem diferenças entre si; no sistema neuro-*fuzzy* os nós apresentam funções diferentes dos nós nas redes neurais, desempenhando papéis diferentes em camadas diferentes, além de terem mais camadas do que as redes neurais tradicionais (ESFE, 2018). A Figura 7 representa um sistema com duas variáveis de entrada (x, y), uma variável de saída (z) e a aplicação de duas regras típicas *SE-ENTÃO* do tipo Takagi-Sugeno:

$$\text{Regra 1 : SE "x" é } A_1 \text{ E "y" é } B_1, \text{ ENTÃO : } z_1 = p_1.x + q_1.y + r_1$$

$$\text{Regra 2 : SE "x" é } A_2 \text{ E "y" é } B_2, \text{ ENTÃO : } z_2 = p_2.x + q_2.y + r_2$$

Em que A_1, A_2, B_1, B_2 são conjuntos *fuzzy* modelados por funções de pertinência distintas (parâmetros não-lineares) e p_1, p_2, q_1, q_2, r_1 e r_2 são parâmetros lineares dos consequentes z_1 e z_2 . Os quadrados na Figura 8 representam nós variáveis e o círculos, nós fixos.

Figura 8 – Estrutura esquemática do ANFIS (FERREIRA, 2022).



Segundo Beigi *et al.* (2022), na Camada 1 ocorre a fuzificação dos dados; sendo calculado o grau de pertinência em cada nó; $\mu_{A_1}(x)$, $\mu_{A_2}(x)$, $\mu_{B_1}(x)$ e $\mu_{B_2}(x)$, de acordo com seus respectivos conjuntos *fuzzy*. O resultado da saída de cada nó é obtido a partir da respectiva função de pertinência. No caso da utilização de função do tipo gaussiana, o grau de pertinência $\mu_{A_i}(x)$, por exemplo, é dado pela Equação 3, onde \bar{x} e σ são parâmetros ajustáveis.

$$\mu_{A_i}(x) = e^{\left(\frac{-(x - \bar{x})^2}{2 \cdot \sigma^2}\right)}, \quad i = 1, 2 \quad (3)$$

A saída de cada nó fixo da Camada 2 é a força de "disparo" da regra obtida a partir da multiplicação simples entre os graus de pertinência (Equação 4), onde ocorre a aplicação do método do produto do operador lógico E .

$$w_i = \mu_{A_i}(x) \cdot \mu_{B_i}(y) \quad i = 1, 2 \quad (4)$$

Na Camada 3 é realizada a normalização dos dados em cada nó pelo cálculo da média ponderada das forças de "disparo" de cada regra encontrada na camada anterior (Equação 5).

$$\bar{w}_i = \frac{w_i}{w_1 + w_2} \quad i = 1, 2 \quad (5)$$

A saída de cada nó da Camada 4 é calculada pela Equação 6, que contém os parâmetros ajustáveis p_i, q_i e r_i .

$$\bar{w}_i \cdot z_i = \bar{w}_i \cdot (p_i \cdot x + q_i \cdot y + r_i) \quad , i = 1, 2 \quad (6)$$

Por fim, na última camada é feita a soma dos nós, gerando um único valor final de saída, dado pela Equação 7.

$$z = \sum_i \bar{w}_i \cdot z_i = \frac{w_1 \cdot z_1 + w_2 \cdot z_2}{w_1 + w_2}, i = 1, 2 \quad (7)$$

O equacionamento do ANFIS aqui apresentado considerou uma entrada com apenas duas variáveis de um modelo Takagi-Sugeno de primeira ordem. Entretanto, o mesmo conceito pode ser empregado para n variáveis de entrada.

3.6.1 Uso de ANFIS na indústria química

O ANFIS é utilizado na simulação e otimização de reações químicas, dentre elas, a síntese do biodiesel, como nos estudos de Saxena *et al.* (2018), que aplicou o ANFIS na modelagem e otimização da produção de biodiesel a partir do óleo da semente de *Acacia concinna*, avaliando o rendimento e as propriedades do biodiesel. Foram avaliados a razão metanol/óleo, razão do catalizador KOH, temperatura e tempo reacional, obtendo 8,3:1, 0,95%, 65°C e 37,5 minutos, respectivamente, de valores ótimos, com rendimento de 17,2%, reduzindo a viscosidade 18,26% e valor de ácido graxo livre de 57,3%. Outros autores que utilizam o ANFIS na produção de biodiesel são Kumar *et al.* (2018) e Ighose *et al.* (2017), realizando a modelagem e otimização da transesterificação com valores de R^2 próximos de 1, indicando que o treinamento do ANFIS se ajustou bem aos dados experimentais.

Na produção de biossurfactantes, o ANFIS é utilizado na simulação e otimização da reação de esterificação, utilizando diversos substratos e catalisadores biológicos. Ahmad *et al.* (2016a) compara o ajuste da modelagem por meio de uma rede neural e do ANFIS em relação aos dados experimentais, na produção do biossurfactante por meio da bactéria *Klebseilla* sp. FKOD36, no qual o ANFIS se ajustou ligeiramente melhor aos dados experimentais (com valores de R^2 de 0,96 a 0,99) do que a rede neural (com valores de R^2 de 0,95 a 0,99).

Outros autores comparam as técnicas de modelagem, como o método clássico de superfície de resposta (RSM) e o uso de redes neurais artificiais (ANN) com o ANFIS, como nos estudos de Esonye *et al.* (2022), Ishola *et al.* (2017) e Betiku *et al.* (2016), nos quais os autores concluem que o ANFIS possui excelente capacidade para previsão, modelagem e otimização na produção de biossurfactantes.

Torres (2021) utilizou o ANFIS na reação de esterificação para a produção de biossurfactantes, por meio dos ácidos oleico e láurico com frutose e lactose, utilizando a lipase B de *Candida antarctica* imobilizada, tendo sido construídos modelos *fuzzy* para cada um dos 3 tipos de catalisadores, utilizando como variáveis linguísticas de entrada o tipo de ácido, temperatura, tempo de reação e a razão molar de substratos para prever a conversão do processo de esterificação. Os resultados indicaram maiores valores de conversão de xilose a partir de 45 horas

$$v_i^{k+1} = w.v_i^k + y_1.u_1.(p_i^k - x_i^k) + y_2.u_2.(p^g - x_i^k) \quad (9)$$

O primeiro termo da equação representa a influência do momento da partícula, cujo objetivo é conduzir o movimento inercial a partir da velocidade atual, sendo formado por um peso w , também chamado de peso inercial, e o antigo vetor de velocidade v_i^k .

O segundo termo representa a influência da memória da partícula (ou informação local), que se refere ao comportamento cognitivo da partícula obtido a partir da tendência natural das partículas de retornar ao seu máximo local, sendo composto pelo parâmetro y_1 , um termo real auto-ajustável no intervalo, normalmente de $[0,1]$, também chamado de fator de aceleração cognitivo; pelo vetor u_1 , um vetor \mathbb{R}^n , com distribuição aleatórias no intervalo $[0,1]$ e pelo termo p_i^k , que representa o ótimo local identificado pela partícula i .

O terceiro termo representa a influência do enxame (ou informação global) e refere-se aos comportamento do enxame de compartilhar informações entre as partículas, com o objetivo de seguir o sucesso de indivíduos mais promissores em direção ao máximo global, e sendo composto pelo parâmetro y_2 , também chamado de fator de aprendizagem social, que, assim como y_1 , é um número auto-ajustado dentre do intervalo $[0,1]$; pelo vetor u_2 , similar ao vetor u_1 , e pelo termo p^g , que é o máximo global identificado pelo enxame de partículas. A soma dos três termos resulta no vetor de velocidade atualizado v_i^{k+1} .

O PSO tem potencial uso na modelagem e otimização da reação de esterificação para a produção de biossurfactantes. Bustamante *et al.* (2023) aplicaram o PSO no estudo da produção de biossurfactantes com o objetivo de ajustar os parâmetros cinéticos de 4 diferentes modelos, obtendo, para o modelo de Contois, coeficientes de determinação superiores a 0,97 em todos os parâmetros obtidos. Os estudos de Dhanarajan *et al.* (2014) aplicaram o PSO para a otimização das condições reacionais da produção de biossurfactantes, avaliando o pH, a temperatura, a velocidade de agitação e de aeração, obtendo como condição ótima, respectivamente, de 6,7, 33°C, 458 rpm e 128 $L.h^{-1}$, com a resposta otimizada de produção do biossurfactante de 46%.

4 Material e métodos

4.1 Desenvolvimento da modelagem híbrida-neural utilizando de redes neurais artificiais

4.1.1 Aplicação de redes neurais para inferir as velocidades de reação

Para o desenvolvimento das redes neurais artificiais, foram utilizados dados fornecidos por Lima *et al.* (2016), referentes à cinética de sínteses de ésteres de xilose e ácidos graxos obtidos pela esterificação de ácido oleico ou láurico em meio de álcool terc-butílico. As condições nas quais os experimentos foram realizados são: 300 rpm de agitação, 1g de peneira molecular, razão molar de ácido graxo/xilose (RMS) de 5:1 (ou 1:0,2), carga de atividade de 37,5 U/g de ácido e concentração inicial de xilose de 20mM, coletando dados cinéticos desde o começo da reação até completar 72 horas, realizando os experimentos com ambos os ácidos graxos e nas temperaturas de 46°C e 55°C. Os biocatalisadores empregados foram a lipase comercial B de *Candida antarctica* imobilizada (CALB-IM-T2-350) e derivados da CalB imobilizada em micropartículas magnéticas de sílica (SMMPs) com grupos octil (CALB-SMMP-octil) ou com grupos octil mais glutaraldeído (CALB-SMMP-octil-GLU).

Com o objetivo de construir a rede neural para a aplicação do modelo híbrido-neural, foram utilizados os valores de concentração de xilose (mM) e temperatura da reação, nas quais as redes foram agrupadas com base no tipo de ácido graxo (oleico ou láurico) e de biocatalisador (CALB-IM, CALB-SMMP-octil ou CALB-SMMP-octil-GLU). A variável resposta utilizada como alvo no treinamento das redes foi a taxa de consumo de açúcar ($mmol.L^{-1}.h^{-1}$), calculada pelo método da derivada numérica a partir dos dados experimentais de concentração e tempo. A Tabela 2 apresenta os conjuntos de redes neurais treinadas com dados experimentais para as duas temperaturas, de 46°C e 55°C.

Tabela 2 – Especificação de cada conjunto de RNA treinada.

Rede neural	Biocatalisador	Ácido graxo
RNA1-i	CALB-IM-T2-350	Oleico
RNA2-i		Láurico
RNA3-i	CALB-SMMP-octil-GLU	Láurico
RNA4-i		Oleico
RNA5-i		Láurico

Para desenvolver o modelo híbrido-neural, foi realizado o acoplamento das redes a balanços de massa de reatores, com o objetivo de inferir sobre as concentrações dos reagentes ao longo do tempo. Como os experimentos foram realizados em um reator de batelada, a Equação 10 representa o balanço de massa para esse tipo de reator.

$$\frac{dX}{dt} = -\Gamma_X \quad (10)$$

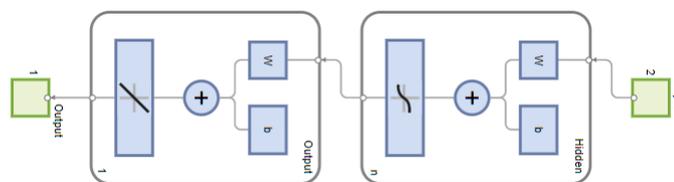
Sendo Γ_X é a velocidade de consumo de xilose, X é a concentração de xilose e t é o tempo de reação. Na implementação do modelo híbrido-neural, Γ_X é a saída da rede neural, portanto, é possível obter valores de concentração de xilose ao longo do tempo pela solução da equação diferencial, e, para isso, o método clássico de Runge-Kutta pode ser usado para a sua integração. A aplicação do método de integração foi realizada pela sub-rotina "ode15s", no software *Matlab*.

A construção e o treinamento das redes neurais foram realizados utilizando a função "feedforwardnet" do software *Matlab*, que também possibilita dividir os dados para o treinamento, a validação e o teste, sendo separados em 50%, 25% e 25%, respectivamente, garantindo, assim, pelo menos três dados para cada etapa do treinamento.

Dessa forma, foram utilizadas, nesse trabalho, redes neurais do tipo *feed-forward* constituídas por uma camada de entrada, uma camada oculta e um neurônio na de saída, e treinadas pela função "trainlm", que aplica o método de Levenberg-Marquardt. Como critérios de desempenho do modelo, foram avaliados os coeficientes de determinação da etapa de treinamento da rede e, também, da resposta final do modelo híbrido-neural.

O número de neurônios presentes na camada oculta normalmente depende do tipo e da complexidade do problema, sendo que a arquitetura ideal é definida a partir da realização de testes. A Figura 10 apresenta um esquema de uma arquitetura genérica das redes treinadas, indicando as funções de transferência utilizadas em cada camada, sendo a sigmoide para a camada oculta e a linear na camada de saída.

Figura 10 – Arquitetura genérica das redes neurais.



4.1.2 Aplicação de redes neurais para inferir as constantes do modelo de Ping Pong Bi Bi

Para o desenvolvimento da rede neural para inferir as constantes do modelo de Ping Pong Bi Bi, foram utilizados os valores das constantes cinéticas para a reação de esterificação da lactose e frutose com ácido oleico ou láurico, fornecidos por Torres (2021), obtidos por meio de uma otimização paramétrica pelo método clássico de Levenberg-Marquardt. As condições nas quais as constantes cinéticas foram estimadas são: 72 horas de reação, 250 rpm de agitação, razão molar de ácido:açúcar de 1:1 e 1:2, concentração inicial de açúcar de 25mM e 50mM em 10 mL de solvente orgânico (sendo terc-butanol ou 2-metil-2-butanol), temperatura de 45°C e 55°C, carga de biocatalisador de 0,25g e 0,5g e 1,5g de peneira molecular.

O desenvolvimento deste novo modelo híbrido-neural e a construção do perfil de consumo de ácido na reação foram realizados a partir do acoplamento das redes à equação de Ping Pong Bi Bi sem inibição, representada na Equação 11, sendo suas constantes fornecidas pela rede neural.

$$v = - \left(\frac{d[FA]}{dt} \right) = \frac{v_{max} \cdot [FA] \cdot [S]}{k_{sugar} \cdot [FA] + k_{acid} \cdot [S] + [FA] \cdot [S]} \quad (11)$$

Sendo que $[FA]$ é a concentração de ácido graxo, $[S]$ é a concentração de açúcar, v_{max} representa a velocidade máxima da reação e k_{sugar} e k_{acid} são as constantes cinéticas de Michaelis-Menten para o açúcar e o ácido graxo, respectivamente. Assim, é possível obter valores de ácidos graxos ao longo do tempo resolvendo o balanço material do reator batelada (Equação 2), e para isso, o método clássico de Runge-Kutta, por meio da sub-rotina "ode15s", no *software Matlab*, pode ser utilizado para a integração da equação diferencial correspondente ao citado balanço.

A construção e o treinamento da rede neural foram realizados de maneira semelhante a anteriormente, utilizando o *software Matlab*, com a função "feedforwardnet", construindo redes do tipo *feed-forward*, com uma camada de entrada, uma camada oculta e um neurônio de saída, treinada pela função "trainlm" e adotando os mesmos critérios de treinamento. Entretanto, os dados foram separados em 75% para o treinamento e 25% para o teste, sem dados separados para a validação. O número de neurônios testados na camada oculta foi entre 2 e 10. Um conjunto de dados em separado foi considerado para a validação desta abordagem híbrido-neural.

4.2 Desenvolvimento da modelagem por sistemas *fuzzy*

Para o desenvolvimento da modelagem *fuzzy* do ANFIS, foram utilizados os dados cinéticos fornecidos por Lima *et al.* (2016) para a esterificação da xilose com ácidos graxos (oleico ou láurico) em meio de álcool terc-butílico, cujas condições experimentais eram de 300 rpm de agitação, 1g de peneira molecular, razão molar de ácido graxo/açúcar de 1:0,02, 20mM de xilose e carga enzimática de 37,5 U/g de ácido, coletando dados desde o começo da reação até completar 72 horas, realizando o experimento para as temperaturas de 46°C e 55°C para cada tipo de biocatalisador utilizado, sendo eles a CALB-IM-T2-350, CALB-SMMP-octil e CALB-SMMP-octil-GLU.

Além dos dados cinéticos fornecidos por Lima *et al.* (2016), também foram utilizados nessa etapa dados experimentais originados de um planejamento experimental, cujas condições operacionais estão na Tabela 3, com o tempo de reação de 48 horas, os quais foram utilizados em conjunto com os dados da cinética para a construção dos modelos *fuzzy*.

Tabela 3 – Condições operacionais do planejamento fatorial.

Ácido graxo	Láurico	Oleico	
Temperatura	40,6	46,0	51,3
Razão ácido/açúcar (RMS)	0,60	1,00	1,39
Carga enzimática	30,10	37,50	44,90

A ferramenta *Neuro Fuzzy Designer*, do *software Matlab*, foi utilizada para a construção do modelo, a qual permite a criação do modelo ANFIS por meio de interfaces gráficas de usuário. Os conjuntos de dados foram separados por tipo do catalisador utilizado, obtendo 3 modelos distintos, sendo para a ANFIS1 o CALB-IM-T2-350; para a ANFIS2 o CALB-SMMP-octil e para a ANFIS3 o CALB-SMMP-octil-GLU. Com o objetivo de melhorar a qualidade do ajuste, foram acrescentados dados a partir de uma interpolação feita na cinética no tempo de 36 horas.

Os dados de entrada do ANFIS foram organizados em um arquivo, no qual as colunas representam, respectivamente, o valor para o ácido graxo, temperatura, RMS, carga enzimática, tempo e conversão de xilose, e cada linha representa um dos dados dos experimentos. Esses dados foram carregados no *software*, e, em conjunto com a ferramenta *Neuro Fuzzy Designer*, definiu-se os valores linguísticos do modelo e a função de pertinência utilizada, a gaussiana (*gaussmf*), cuja relação é dada pela Equação 12 a seguir.

$$f(x, \sigma, \zeta) = e^{-\frac{(x-\zeta)^2}{2\sigma^2}} \quad (12)$$

Sendo σ é o desvio padrão e ζ é a média entre os valores de entrada x . Os valores linguísticos foram definidos conforme melhor se ajustavam, sendo fixados apenas 2 para o tipo

de ácido graxo, por apenas dois ácidos serem utilizados nos experimentos.

Após a etapa de treinamento, foi verificado o desempenho da rede obtida com relação aos dados experimentais por meio de uma regressão, e após verificar se a rede reproduz corretamente os dados experimentais, gera-se a curva cinética com o ANFIS, para observar se o perfil da curva obtida apresenta ou não *overfitting*. A Equação 13 apresenta a constante de saída do modelo Takagi-Sugeno de ordem zero, o qual representa as redes do grupo ANFIS1 e ANFIS3, podendo ser considerado uma simplificação do modelo Takagi-Sugeno linear, em que a representa o parâmetro ajustável.

$$f(AG, T, RMS, Ativ, t)_i = a \quad (13)$$

A Equação 14 apresenta as constantes de saída do modelo Takagi-Sugeno de ordem 1 ou linear, o qual representa a rede do grupo ANFIS2, em que a, b, c, d, e e f são os parâmetros ajustáveis. Os valores das funções de pertinência e constantes de saída de todas as redes ANFIS podem ser encontrados nos apêndices.

$$f(AG, T, RMS, Ativ, t)_i = a.AG + b.T + c.RMS + d.Ativ + e.t + f \quad (14)$$

4.3 Otimização dos parâmetros reacionais através do *pso*

A partir das redes ANFIS treinadas, o uso do algoritmo *particle swarm optimization* foi empregado com o objetivo de avaliar a condição operacional otimizada da reação de esterificação da xilose em cada conjunto de redes e para cada ácido graxo. Para isso, o *software Matlab* pode ser utilizado, utilizando a rotina *pso*, que possibilita a aplicação do algoritmo na rede *fuzzy*. Devido à natureza da rotina de buscar o mínimo global, a saída da rede ANFIS foi definida como negativo para assim, buscar o máximo global da rede.

5 Resultados e discussão

5.1 Desenvolvimento da modelagem por redes neurais artificiais

5.1.1 Aplicação de redes neurais artificiais em balanço de massa de reatores

As redes neurais foram treinadas com o objetivo de inferir a velocidade de consumo de xilose na reação de esterificação, na síntese de biossurfactantes, tendo como entrada da rede informações sobre concentração e temperatura.

Os conjuntos de dados de entrada e saída foram divididos aleatoriamente para as etapas de treinamento (50% do total), de teste (25%) e de validação da rede (25%). No treinamento, a rede usou os dados experimentais para aprender os comportamentos dos dados, enquanto que a validação foi realizada para verificar a capacidade de generalização da rede, utilizando alguns dados, e o teste foi feito para avaliar o desempenho do modelo neural.

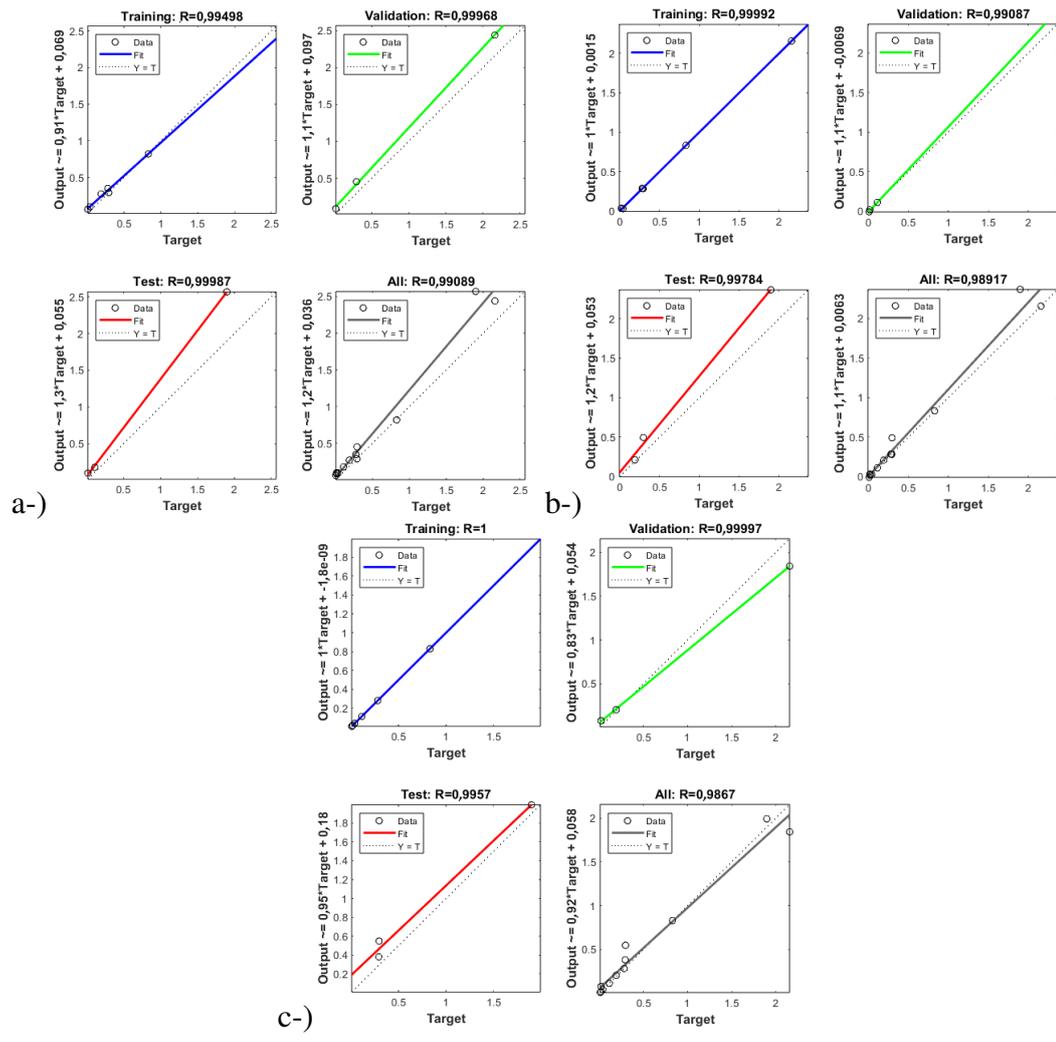
O critério adotado no teste foi o valor de coeficiente de determinação (R^2), obtido da comparação do valor da saída da rede e do valor experimental da variável de saída, e também da resposta do modelo-híbrido. Para que a rede seja considerada promissora, os valores de R^2 final de todas as etapas e da cinética necessitam ser superiores ao valor de 0,95, e caso a rede não cumpra esse critério, o programa realiza o treino novamente, até que o valor de todos os coeficientes de determinação seja superior a esse valor. Além disso, é desejado que as curvas de regressão se aproximem da reta diagonal, ou seja, se aproximando da equação $y = x$, requerendo uma inspeção visual nas curvas obtidas.

O número de neurônios na camada oculta foi determinado seguindo os mesmos critérios do treinamento, sendo avaliado o comportamento final da rede no modelo híbrido, existindo a possibilidade da rede ser promissora com duas quantidades distintas de neurônios, ou serem diferentes apenas devido à aleatoriedade da inicialização do treino, e, por esses motivos, para cada conjunto de dados existem mais de uma rede.

As Figuras 11-15 apresentam os gráficos de regressão para as etapas de treinamento, validação e teste para as redes RNA1, RNA2, RNA3, RNA4 e RNA5, respectivamente, além da regressão de todas as etapas em conjunto.

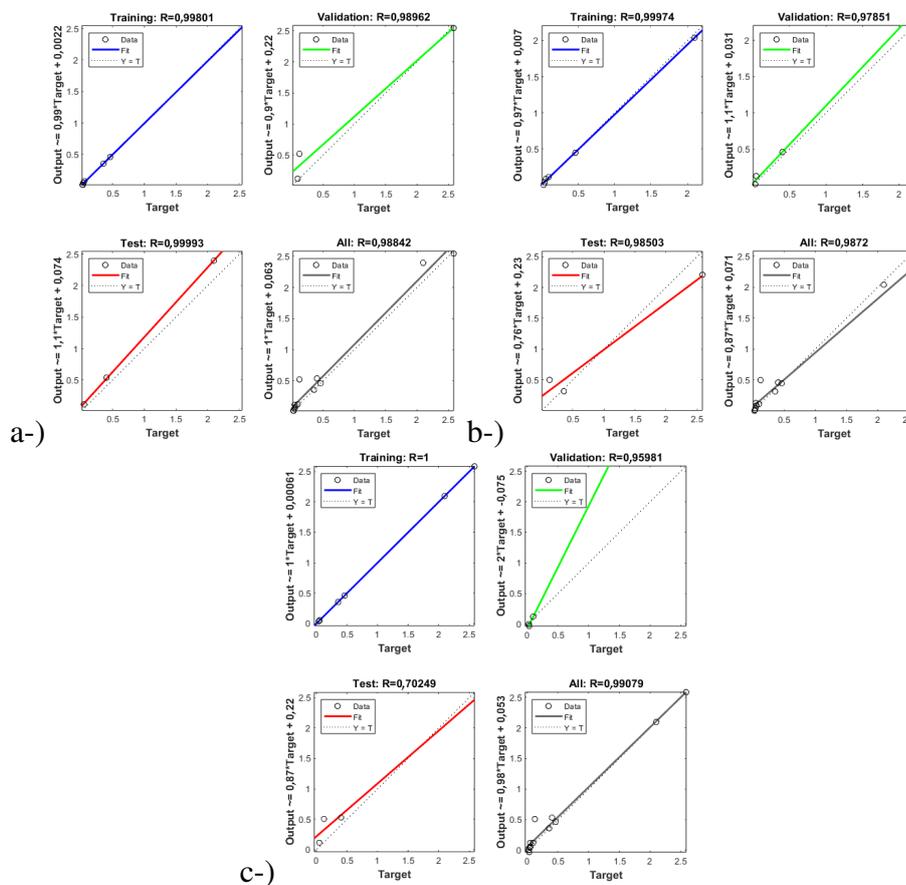
A Figura 11 apresenta o resultado da regressão para as redes neurais treinadas com o conjunto de dados referente à esterificação da xilose com o ácido oleico, catalisada pela CALB-IM-T2-350. As redes RNA1-1 e RNA1-2 possuem dois neurônios na camada oculta, enquanto que a RNA1-3 possui três neurônios, e acima de três neurônios as redes treinadas apresentaram *overfitting*.

Figura 11 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA1 para as redes: a-) RNA1-1; b-) RNA1-2 e c-) RNA1-3.



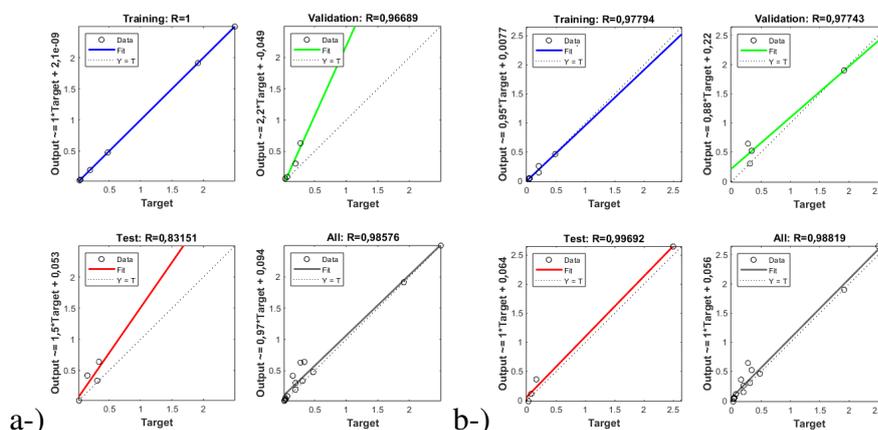
Na Figura 12, são apresentados os gráficos de regressão das redes neurais treinadas com o conjunto de dados do experimento de produção de biossurfactantes com o ácido láurico, catalisada pela enzima CALB-IM-T2-350. Ambas as redes RNA2-1 e RNA2-2 possuem dois neurônios e a RNA2-3 possui três neurônios, pois nenhuma rede com mais de três neurônios desempenhou bem no modelo híbrido.

Figura 12 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA2 para as redes: a-) RNA2-1; b-) RNA2-2 e c-) RNA2-3.



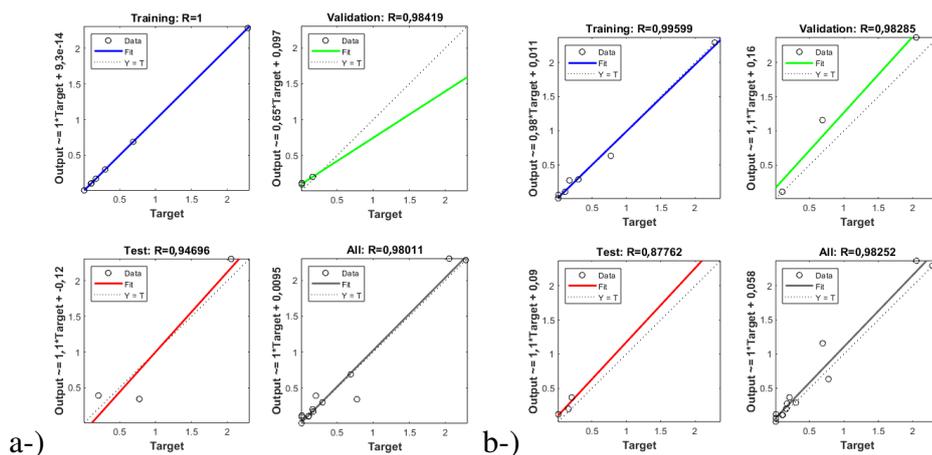
Na Figura 13, são apresentadas as curvas de regressão para as redes produzidas no treinamento por meio de dados da reação de esterificação da xilose com ácido oleico, catalisada pela enzima CALB-IM-SMMP-octil. A rede RNA3-1 possui três neurônios na camada oculta e a RNA3-2 foi treinada com cinco neurônios, sendo que para quatro neurônios, nenhuma rede promissora foi gerada pelo treinamento, assim como para mais de cinco neurônios.

Figura 13 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA3 para as redes: a-) RNA3-1 e b-) RNA3-2.



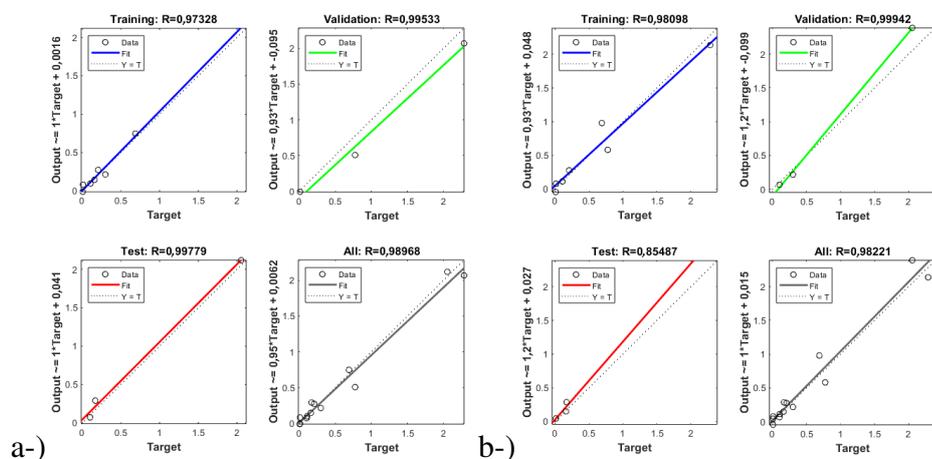
A Figura 14 demonstra os gráficos de regressão obtidos no processo de treinamento da rede neural com os dados da esterificação da xilose com ácido oleico, catalisada pela enzima CALB-IM-SMMP-octil-GLU. Nesse caso, ambas as redes RNA4-1 e RNA4-2 possuem três neurônios na camada oculta, e para dois ou mais de três neurônios o treinamento das redes não forneceu resultados que pudessem satisfazer as condições propostas.

Figura 14 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA4 para as redes: a-) RNA4-1 e b-) RNA4-2.



Por fim, a Figura 15 possui os gráficos de regressão do treinamento da rede neural com os dados da síntese dos biossurfactantes através do ácido láurico e da enzima CALB-IM-SMMP-octil-GLU. A rede RNA5-1 possui dois neurônios na camada oculta, enquanto que a rede RNA5-2 possui três neurônios, e nenhuma rede com mais de três neurônios apresentou resultados promissores.

Figura 15 – Gráficos de regressão para treinamento, validação e teste da RNA5 para as redes a-) RNA5-1 e b-) RNA5-2.



De modo geral, todas as redes apresentaram o valor de R^2 acima de 0,98, devido ao critério adotado pelo treinamento, e algumas apresentaram acima de 0,99. Além disso, as curvas mantiveram comportamentos próximos da reta diagonal, indicando que o treinamento teve

sucesso em todas as etapas, para todas as redes obtidas. Nas Tabelas 4-8, são apresentados os pesos da camada oculta.

Tabela 4 – Valores dos pesos camada oculta das redes RNA1.

Redes	Variável	0	1	2
Neurais	Neurônio	Viés	T	[X]
RNA1-1	1	-1,05496	2,434567	0,221409
	2	0,516203	1,534406	0,445438
RNA1-2	1	2,146599	-1,22551	-1,61602
	2	2,524871	-1,60303	1,550444
RNA1-3	1	-2,42044	1,513867	1,897035
	2	-0,22879	0,65865	-2,18553
	3	-1,16608	-2,24385	-2,10021

Tabela 5 – Valores dos pesos camada oculta das redes RNA2.

Redes	Variável	0	1	2
Neurais	Neurônio	Viés	T	[X]
RNA2-1	1	0,41422	-1,91174	-0,29592
	2	-1,48469	-1,74640	0,848769
RNA2-2	1	0,415081	-1,60871	-0,21941
	2	3,496626	0,015028	-1,34129
RNA2-3	1	2,721432	-2,39213	1,658518
	2	0,690995	2,911608	-0,15372
	3	2,551568	-1,29716	-2,14787

Tabela 6 – Valores dos pesos da camada oculta das redes RNA3.

Redes	Variável	0	1	2
Neurais	Neurônio	Viés	T	[X]
RNA3-1	1	-2,60183	0,693698	-2,15723
	2	-0,49013	2,517609	0,174799
	3	2,383699	2,348920	-0,27782
RNA3-2	1	3,243549	-1,42493	-2,76112
	2	1,561504	-1,65734	2,658797
	3	0,621000	-3,20477	-0,50208
	4	1,561912	0,031268	3,133695
	5	-3,12447	-1,98313	-2,42616

Tabela 7 – Valores dos pesos da camada oculta das redes RNA4.

Redes	Variável	0	1	2
Neurais	Neurônio	Viés	T	[X]
RNA4-1	1	-3,61625	1,429862	1,130465
	2	0,819293	-2,6421	-0,01763
	3	-2,98056	-0,2477	-1,45038
RNA4-2	1	3,855774	-1,80518	-0,28046
	2	-0,61239	2,494257	0,294527
	3	-2,76606	-1,1869	-2,04145

Tabela 8 – Valores dos pesos da camada oculta das redes RNA5.

Redes	Variável	0	1	2
Neurais	Neurônio	Viés	T	[X]
RNA5-1	1	0,829305	-2,68457	-0,47717
	2	2,545644	0,420176	2,339106
RNA5-2	1	3,452629	-1,90850	-0,18381
	2	-0,71305	1,944501	0,297035
	3	-2,36230	-1,39213	-1,76447

Nas Tabelas 9 e 10, são apresentados os valores dos pesos da camada de saída, além dos respectivos números de neurônios. Os valores das tabelas determinam a estrutura única de cada rede neural modelada.

Tabela 9 – Valores dos pesos da camada de saída. (da rede RNA1)

Rede	Neurônio da camada oculta			
Neural	Bias	1	2	3
RNA1-1	0,229583946	1,077453538	0,159859439	
RNA1-2	1,650357567	-1,402864026	-1,317141629	
RNA1-3	0,035328169	0,921691433	0,825978093	-0,890711577

Tabela 10 – Valores dos pesos da camada de saída. (das demais redes)

Rede	Neurônio da camada oculta					
	Bias	1	2	3	4	5
RNA2-1	-0,00832	-1,03465	0,002980			
RNA2-2	-0,12785	-0,9373	-0,00105			
RNA2-3	0,815981	-0,72991	0,170653	-1,00448		
RNA3-1	-0,37677	-0,36193	0,966864	0,071556		
RNA3-2	-0,02860	-0,45141	0,149990	-0,67540	-0,26057	-0,25494
RNA4-1	-0,74505	-0,11465	-1,00985	-0,71366		
RNA4-2	0,205029	-0,19143	1,023734	-0,04837		
RNA5-1	0,229206	-1,19972	-0,02296			
RNA5-2	0,517919845	-0,51479	1,054418	-0,06406		

Após a definição das redes neurais, foram realizados testes para verificar a capacidade de predição da rede em inferir a cinética da reação de esterificação da xilose, em ambas as temperaturas do experimento. Além disso, é importante visualizar se a rede apresenta *overfitting* ou outro comportamento indesejado, como por exemplo, as curvas cinéticas se cruzarem. As Figuras 16-20 apresentam os resultados da modelagem cinética das redes nas temperaturas de 46°C e 55°C.

Figura 16 – Modelagem cinética das redes RNA1 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA1-1; b-) RNA1-2 e c-) RNA1-3.

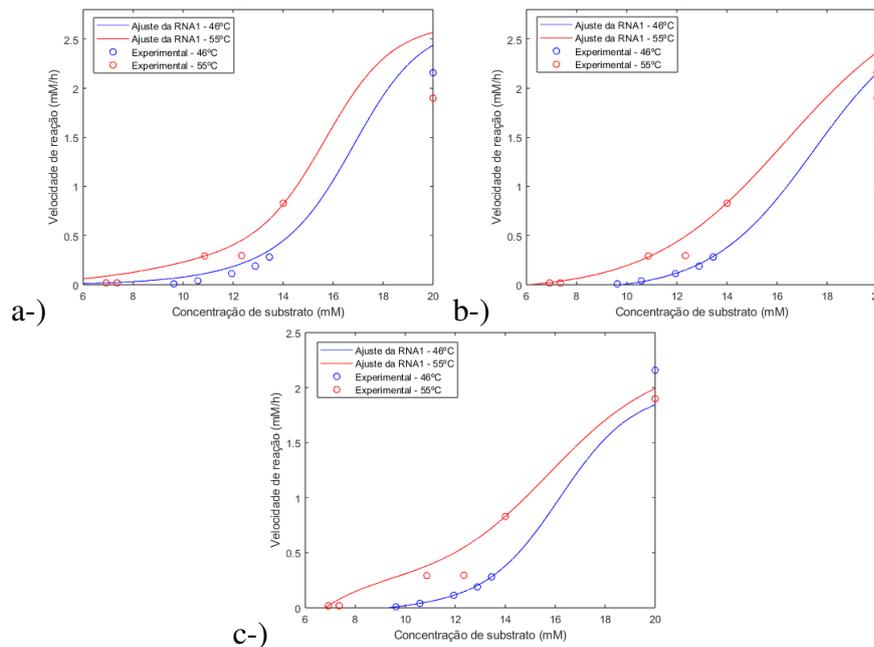


Figura 17 – Modelagem cinética das redes RNA2 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA2-1; b-) RNA2-2 e c-) RNA2-3.

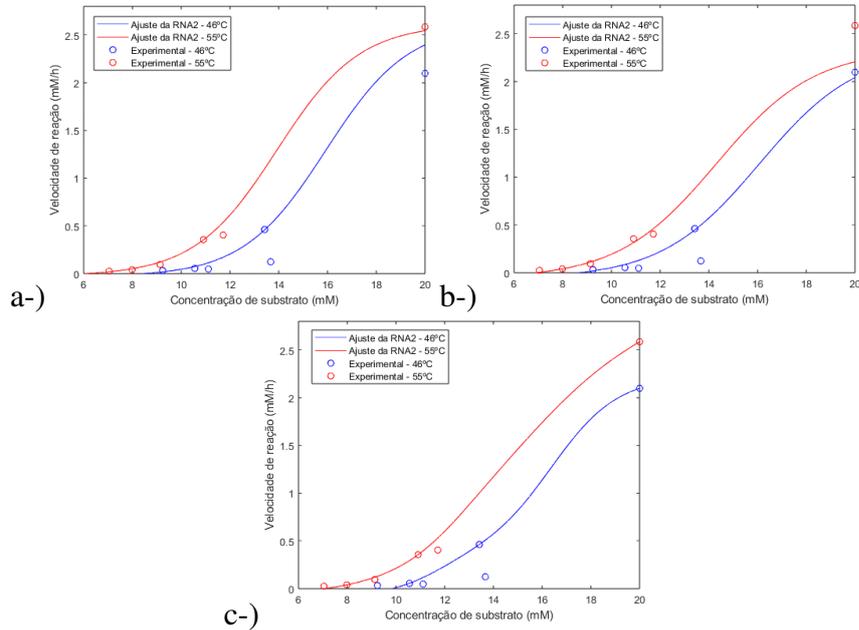


Figura 18 – Modelagem cinética das redes RNA3 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA3-1 e b-) RNA3-2.

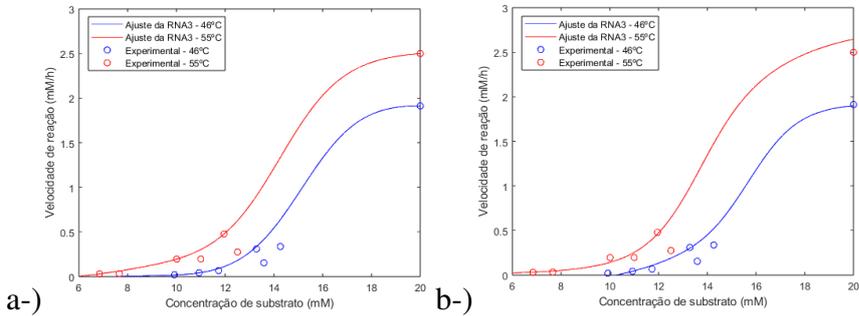


Figura 19 – Modelagem cinética das redes RNA4 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA4-1 e b-) RNA4-2.

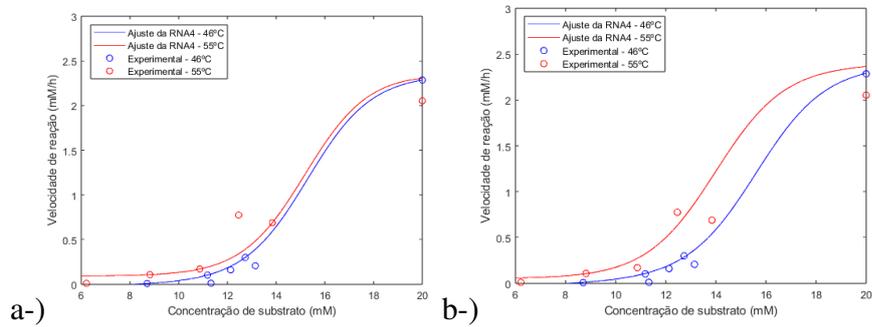
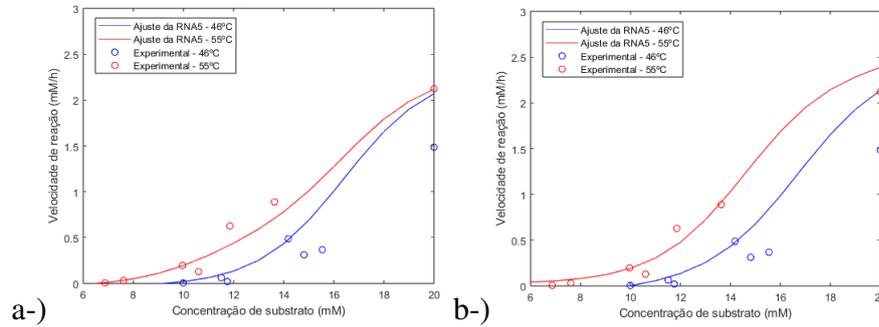


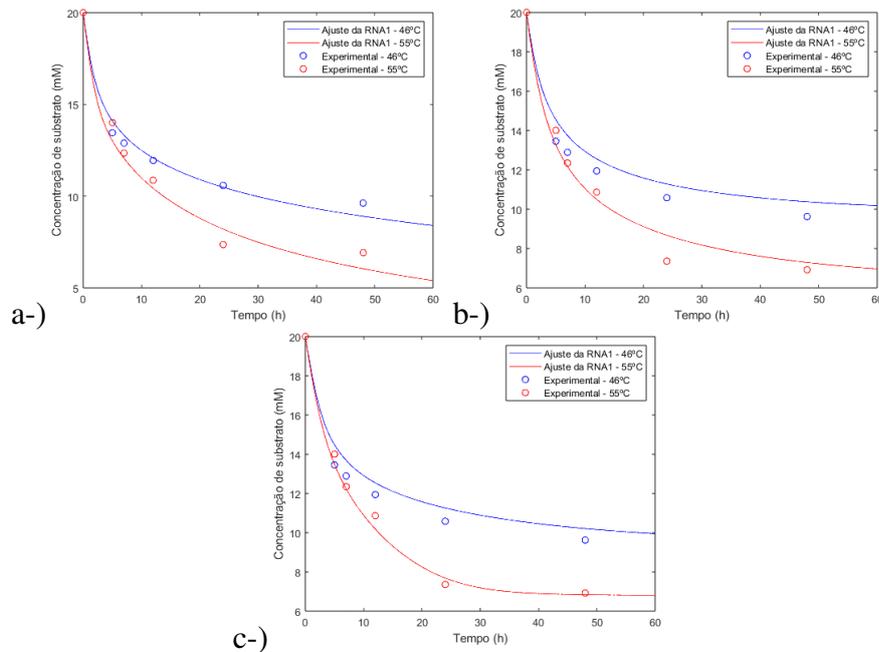
Figura 20 – Modelagem cinética das redes RNA1 nas temperaturas de 46°C e 55°C, para as redes: a-) RNA5-1 e b-) RNA5-2.



As redes neurais desenvolvidas foram acopladas a balanços de massa de reator, em modelo híbrido, para inferir as concentrações dos reagentes ao longo do tempo, utilizando o método de Runge-Kutta para a integração numérica. Para isso, aplica-se a Equação 1 em conjunto com essas redes e solucionam-se as equações diferenciais por meio da sub-rotina "ode15s", onde, nas Figuras 20-24, são apresentados os resultados da saída do modelo híbrido.

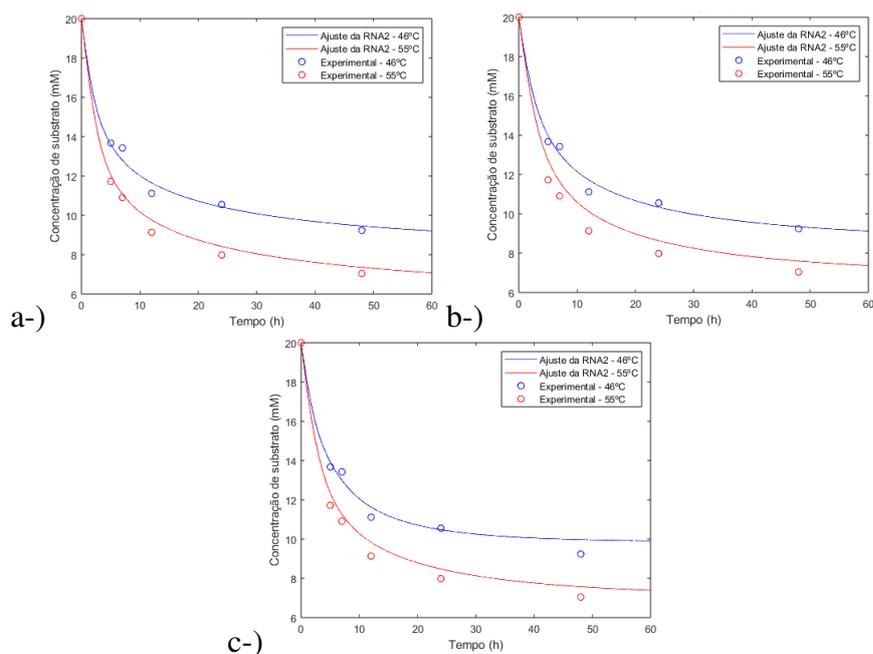
Na Figura 21, é apresentado o resultado do modelo híbrido para as redes RNA1, nos quais os coeficientes de determinação do modelo com os dados experimentais, para as temperaturas de 46°C e 55°C são, respectivamente, 0,9831 e 0,9766 para a RNA1-1, 0,9519 e 0,9781 para a RNA1-2 e 0,9592 e 0,9924 para a RNA1-3.

Figura 21 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA1-1; b-) RNA1-2 e c-) RNA1-3.



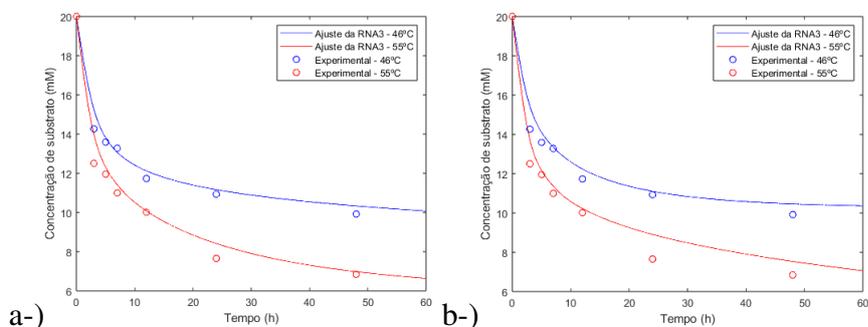
A Figura 22 demonstra as curvas resultantes do modelo híbrido para as redes RNA2, nos quais os coeficientes de determinação do modelo com os dados experimentais, para as temperaturas de 46°C e 55°C são, respectivamente, 0,9741 e 0,9935 para a RNA2-1, 0,9914 e 0,9962 para a RNA2-2 e 0,9756 e 0,9816 para a RNA2-3.

Figura 22 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA2-1; b-) RNA2-2 e c-) RNA2-3.



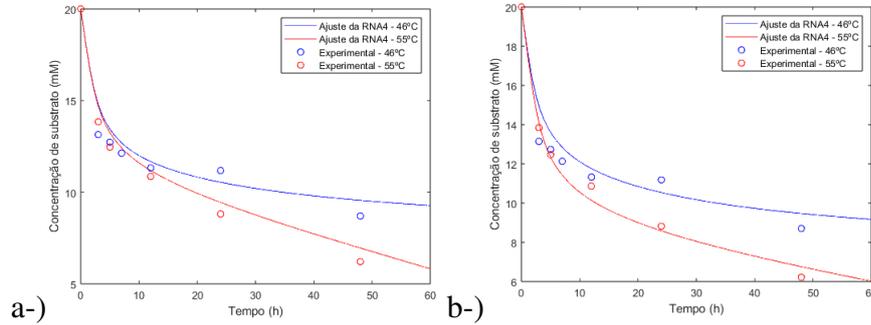
A Figura 23 apresenta os gráficos gerados pelo modelo híbrido para as redes RNA3, nos quais os coeficientes de determinação do modelo com os dados experimentais, para as temperaturas de 46°C e 55°C são, respectivamente, 0,9778 e 0,9728 para a RNA3-1 e 0,9663 e 0,967 para a RNA3-2.

Figura 23 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA3-1 e b-) RNA3-2.



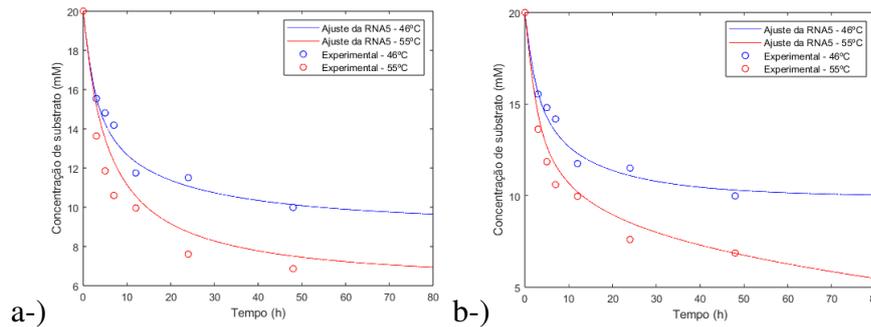
Na Figura 24, as curvas obtidas pelo modelo híbrido para as redes RNA4, nos quais os coeficientes de determinação do modelo com os dados experimentais, para as temperaturas de 46°C e 55°C são, respectivamente, de 0,9362 e 0,9789 para a RNA4-1 e 0,9249 e 0,9916 para a RNA4-2.

Figura 24 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA4-1 e b-) RNA4-2.



A Figura 25 apresenta a saída do modelo híbrido para as redes RNA5, onde os coeficientes de determinação do modelo com os dados experimentais foram, para as temperaturas de 46°C e 55°C são, respectivamente, 0,9678 e 0,9708 para a RNA5-1 e 0,9797 e 0,9711 para a RNA5-2.

Figura 25 – Curvas de resposta da modelagem híbrido-neural nas temperaturas de 46°C e 55°C, utilizando as redes: a-) RNA5-1 e b-) RNA5-2.



De modo geral, os resultados obtidos pelo modelo híbrido satisfazem plenamente as condições impostas como critério do treinamento, no qual o valor de R^2 deve ser maior que 0,95 (com exceção das redes do grupo RNA4, para as quais o critério teve que ser ligeiramente reduzido, para manter a suavidade da curva), e as curvas geradas não apresentam comportamentos inesperados, como o *overfitting*. Dessa forma, observa-se que a aplicação do balanço de massa em conjunto com as redes neurais obteve sucesso em construir curvas cinéticas capazes de inferir a concentração de xilose ao longo da reação de esterificação para a produção de biossurfactantes com plena eficiência.

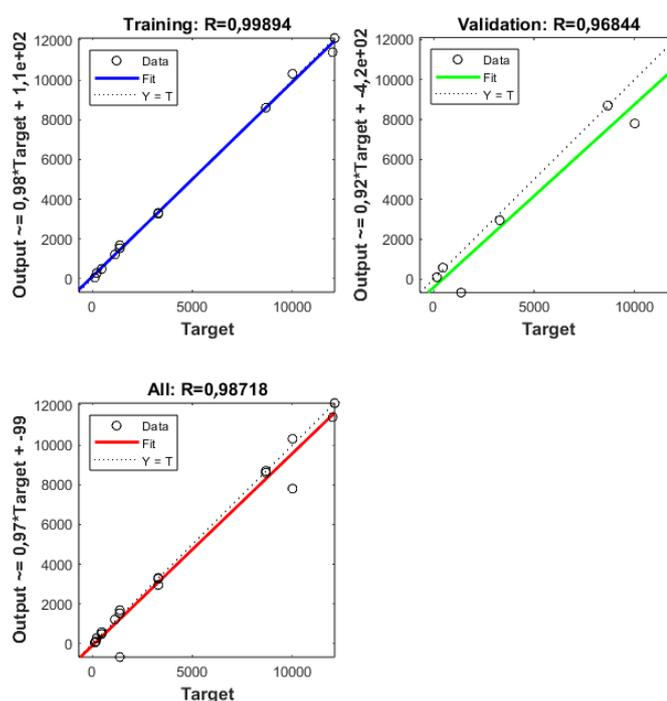
5.1.2 Aplicação de redes neurais artificiais em modelagem fenomenológica (Ping Pong Bi Bi)

A rede neural para a aplicação em modelagem fenomenológica foi treinada com o objetivo final de inferir as constantes cinéticas de um conjunto de dados experimentais separados apenas para a validação, ou seja, um experimento cujos parâmetros reacionais não foram incluídos na etapa de treinamento da rede. Tal condição utilizada para a validação foi referente ao conjunto 7 descrito por Torres (2021), referentes aos dados de Lima *et al.* (2016), sendo de: razão molar de ácido:açúcar de 0,5, o açúcar sendo a frutose, com concentração de 50mM, com ácido oleico, em meio com terc-butanol e temperatura de 45°C, e massa de biocatalisador de 0,25g (utilizando o biocatalisador CALB-IM-T2-350).

Os conjuntos de dados experimentais de entrada e saída foram separados aleatoriamente para as etapas de treinamento (75% do total) e de validação (25%), sendo nenhum dado utilizado para teste (devido ao número reduzido de informações para o treino). Como critério de treinamento, foi adotado o valor mínimo de coeficiente de determinação de 0,95 para cada uma das constantes cinéticas do modelo de Ping Pong Bi Bi. O número de neurônios na camada oculta foi determinado seguindo esse critério, sendo avaliados de dois a dez neurônios, avaliando também o desempenho final do modelo híbrido.

A Figura 26 apresenta os gráficos de regressão para as etapas de treinamento e validação e das etapas conjuntas da rede neural treinada. A única quantidade de neurônios na camada oculta da rede que se ajustou aos critérios estabelecidos foi nove neurônios, devido à complexidade do problema, sendo a quantidade adotada para a rede treinada.

Figura 26 – Gráfico de regressão para o treinamento e validação da rede treinada.



A rede treinada apresentou valores de R^2 acima de 0,97 em ambas as etapas do treinamento, apresentando curvas de regressão com características próximas da reta diagonal. Além disso, ao final do treinamento, os valores de R^2 foram de 0,9900 para o V_{max} , de 0,9740 para o k_{sugar} e de 0,9995 para o k_{acid} se adequando ao critério estabelecido. A Tabela 11 apresenta os valores dos pesos da camada de oculta. As variáveis consideradas foram: a razão molar de ácido/açúcar (RMS), temperatura (T), tipo de açúcar (Açúcar), concentração de açúcar inicial (C_0), tipo de catalisador (Cat), tipo de ácido graxo (Ác), tipo de solvente (Solv) e a massa inicial de biocatalisador (M_0).

Tabela 11 – Valores dos pesos da camada oculta da rede treinada.

Variável	0	1	2	3	4	5	6	7	8
Neurônio	Viés	RMS	T	Açúcar	C_0	Cat	Ác	Solv	M_0
1	2,048	-0,714	0,519	0,285	0,236	-0,170	-1,160	0,578	-0,130
2	-1,408	0,191	0,979	0,292	0,139	-0,787	-0,761	0,527	-0,890
3	1,139	-0,788	0,589	-0,794	-0,405	0,637	-0,767	-0,175	0,762
4	0,469	-0,107	0,030	-0,001	0,424	-0,982	-0,879	0,629	1,169
5	0,091	-0,047	-0,889	0,622	0,149	0,608	0,848	-0,769	-0,443
6	-0,593	-0,756	0,538	-0,212	-0,765	0,085	1,030	-0,663	-0,512
7	1,019	0,929	-0,381	-1,122	0,622	-0,075	-0,896	0,140	-0,125
8	1,507	0,962	0,306	0,658	-0,928	-0,854	-0,083	-0,401	0,082
9	-1,686	-0,276	0,991	0,364	0,236	0,513	-1,214	0,353	0,926

Na Tabela 12, estão os valores dos pesos da camada de saída de todos os 9 neurônios da rede neural treinada.

Tabela 12 – Valores dos pesos da camada de saída.

Variável	Neurônio da camada oculta									
	Viés	1	2	3	4	5	6	7	8	9
V_{max}	-0,121	0,265	-0,248	-0,511	-0,654	-1,098	0,079	0,812	-0,324	0,693
k_{sugar}	0,564	-0,256	0,568	-0,484	-1,022	-0,326	0,352	0,401	0,267	-0,137
k_{acid}	0,106	-0,061	-0,403	0,16	-0,898	-0,017	0,776	-0,063	0,051	-0,009

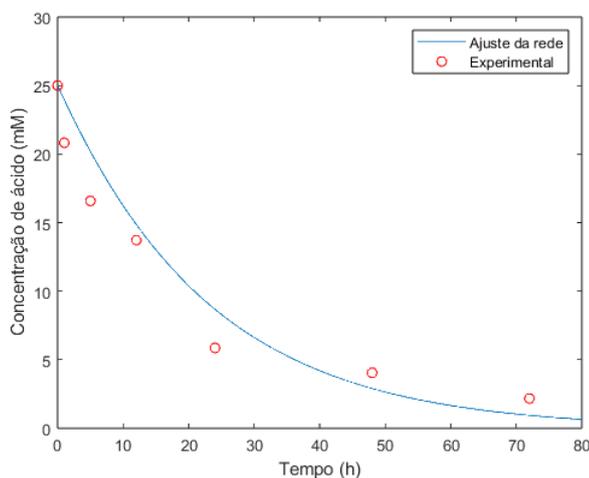
Após o treinamento, é possível utilizar a rede para estimar as constantes de Ping Pong Bi Bi na condição do conjunto de validação. Dessa forma, a Tabela 13 apresenta os valores das constantes cinéticas calculadas pela rede neural treinada para a condição utilizada para a validação.

Tabela 13 – Valores de V_{max} , k_{sugar} e k_{acid} do conjunto de dados para a validação, obtidos a partir da rede neural treinada.

$V_{max}(mmol.L^{-1}.h^{-1})$	$k_{sugar}(mmol.L^{-1})$	$k_{acid}(mmol.L^{-1})$
187,6	773,9	3956,2

Obtendo os valores de V_{max} , k_{sugar} e k_{acid} , foi possível a aplicação no modelo de Ping Pong Bi Bi, pelo método de Runge-Kutta para a integração numérica, obtendo-se a Figura 27, que representa a concentração de ácido ao longo da reação, como resultado da aplicação do modelo híbrido-neural.

Figura 27 – Perfil de consumo de ácido na síntese de biossurfactantes utilizando as constantes cinéticas obtidas pela rede neural treinada referente ao conjunto de dados usado para validação.



A curva obtida do modelo híbrido-neural simulou muito bem os dados experimentais do conjunto de validação. Além disso, o coeficiente de determinação do modelo híbrido-neural com os dados experimentais foi de 0,9408, indicando um desempenho final da rede muito bom, demonstrando que a aplicação da modelagem fenomenológica em conjunto com redes neurais foi capaz de inferir a concentração de ácido graxo ao longo da reação de síntese de biossurfactantes com sucesso.

5.2 Desenvolvimento da modelagem por sistema *fuzzy*

A aplicação da lógica *fuzzy* na modelagem matemática da produção de biossurfactantes pela esterificação da xilose se deu por meio de um conjunto de dados originados de um planejamento fatorial e de outro conjunto de dados cinéticos. Esses conjuntos de dados foram classificados baseados no catalisador utilizado, gerando um conjunto de redes *fuzzy* para cada catalisador distinto. Além disso, cada conjunto de rede ANFIS apresenta duas redes distintas, as quais se diferem nos valores linguísticos (granularidade) em que são formadas. Nas Tabelas 14-19, são apresentados os valores dos parâmetros das funções de pertinência na entrada do sistema *fuzzy* ajustado pelo ANFIS, para cada rede desenvolvida.

Tabela 14 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema *fuzzy* ajustado pela rede ANFIS1-1.

V. Linguística	V. linguístico	σ	ζ
AG	Oleico	0,794065448	0,258238098
	Laurico	0,153781442	1,258680752
	Baixo	3,430934468	36,85527543
Temperatura	Médio	3,687746987	45,98688014
	Alto	3,846848867	54,98852722
	Baixo	0,944831157	-0,063165514
RMS	Médio	0,71511177	2,012270408
	Alto	0,702036412	5,06877334
Atividade	Baixo	4,691332467	24,75905922
	Médio	5,275708888	37,49228842
	Alto	4,694589787	50,23647727
tempo	Baixo	8,023048603	-22,67341341
	Médio	36,97242646	30,70226331
	Alto	23,28861102	49,0062098

Tabela 15 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema *fuzzy* ajustado pela rede ANFIS1-2.

V. Linguística	V. linguístico	σ	ζ
AG	Oleico	0,790801375	0,254864158
	Laurico	0,148503314	1,260314857
	Baixo	3,439972913	36,87125359
Temperatura	Médio	3,64200206	46,02016196
	Alto	3,878232522	54,97717609
	Baixo	0,954920278	-0,061299658
RMS	Médio	0,717457565	2,01184428
	Alto	0,704897823	5,068557113
Atividade	M. Baixo	3,491855081	25,00685645
	Baixo	3,528310888	33,36611174
	Alto	3,530671863	41,64696494
	M. Alto	3,480848128	50,00196393
tempo	Baixo	8,315519657	-22,70905266
	Médio	36,46383411	30,23800535
	Alto	23,08947473	50,5164616

Tabela 16 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema *fuzzy* ajustado pela rede ANFIS2-1.

V. Linguística	V. linguístico	σ	ζ
AG	Laurico	0,308179	-0,04101
	Oleico	0,334899	1,033025
	Baixa	3,803254	36,99207
Temperatura	Média	3,822683	46,00025
	Alta	3,816761	55,00219
	Baixo	0,980319	0,328406
RMS	Médio	0,862655	2,642631
	Alto	0,991688	4,999953
Atividade	Baixa	5,285622	24,99039
	Média	5,308338	37,49998
	Alta	5,285747	50,00954
tempo	Baixa	12,83512	-41,5613
	Alta	14,50957	27,11271

Tabela 17 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema *fuzzy* ajustado pela rede ANFIS2-2.

V. Linguística	V. linguístico	σ	ζ
AG	Laurico	0,291501	-0,04552
	Oleico	0,317129	1,038511
Temperatura	Baixa	3,793578	36,98801
	Média	3,825107	46,00138
	Alta	3,814164	55,00332
RMS	Baixo	0,975825	0,328152
	Médio	0,817982	2,641785
	Alto	0,991741	4,99993
Atividade	Muito Baixo	3,534446	24,99862
	Baixo	3,539364	41,6662
	Alto	3,539333	33,33353
	Muito Alto	3,534843	50,0011
tempo	Baixa	12,83956	-41,5423
	Alta	14,48775	27,12379

Tabela 18 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema *fuzzy* ajustado pela rede ANFIS3-1.

V. Linguística	V. linguístico	σ	ζ
AG	Oleico	0,298708739	-0,044705466
	Laurico	0,280904716	1,04550011
	Baixo	2,986626563	36,71142507
Temperatura	Médio	3,35258977	45,88782816
	Alto	4,232383606	54,82194444
RMS	Baixo	0,706378938	0,25915749
	Médio	0,672787222	2,336691582
	Alto	1,021058711	4,98998576
Atividade	M. Baixo	3,377638858	25,00704904
	Baixo	4,017923037	33,90332868
	Alto	1,479023644	42,7372246
	M. Alto	3,317403045	50,04005269
tempo	Baixo	6,33828904	-15,22849017
	Médio	33,82017388	28,93080118
	Alto	24,44363262	45,47687429

Tabela 19 – Valores dos parâmetros das funções de pertinência de entrada do sistema *fuzzy* ajustado pela rede ANFIS3-2.

V. Linguística	V. linguístico	σ	ζ
AG	Oleico	0,257431116	-0,059435368
	Laurico	0,434223448	0,994395267
	Baixo	3,145841614	36,77609804
Temperatura	Médio	3,477835334	45,98477927
	Alto	3,998388278	54,93726671
	Baixo	0,644714533	0,28892809
RMS	Médio	0,682237849	2,358028247
	Alto	1,058547137	4,976344146
	M. Baixo	3,513116645	25,0834067
Atividade	Baixo	3,91153613	33,88890835
	Alto	2,297998681	42,37290557
	M. Alto	3,441396937	49,97427525
	M. Baixo	5,224500397	-11,53747207
tempo	Baixo	25,6653298	22,34499569
	Alto	20,79725302	28,20552174
	M. Alto	16,12337994	59,09386034

Com os modelos treinados pelo ANFIS, foi testada a capacidade do modelo de simular os dados do experimento. Para isso, foi realizada uma regressão dos dados provenientes do modelo com os dados experimentais, em que, nas Figuras 28-30, são apresentadas essas regressões, separadas pelos conjuntos de redes, com os respectivos valores de R^2 .

Figura 28 – Regressão dos dados experimentais com a saída da rede ANFIS para: a-) ANFIS1-1 e b-) ANFIS1-2.

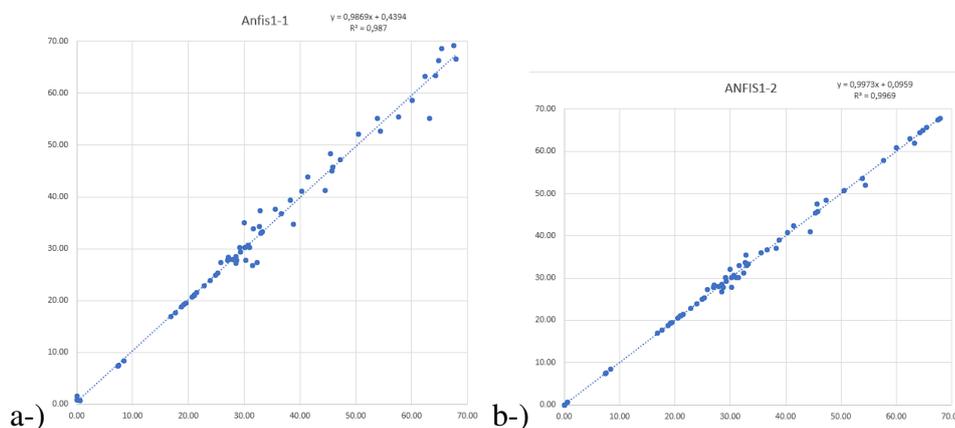


Figura 29 – Regressão dos dados experimentais com a saída da rede ANFIS para: a-) ANFIS2-1 e b-) ANFIS2-2.

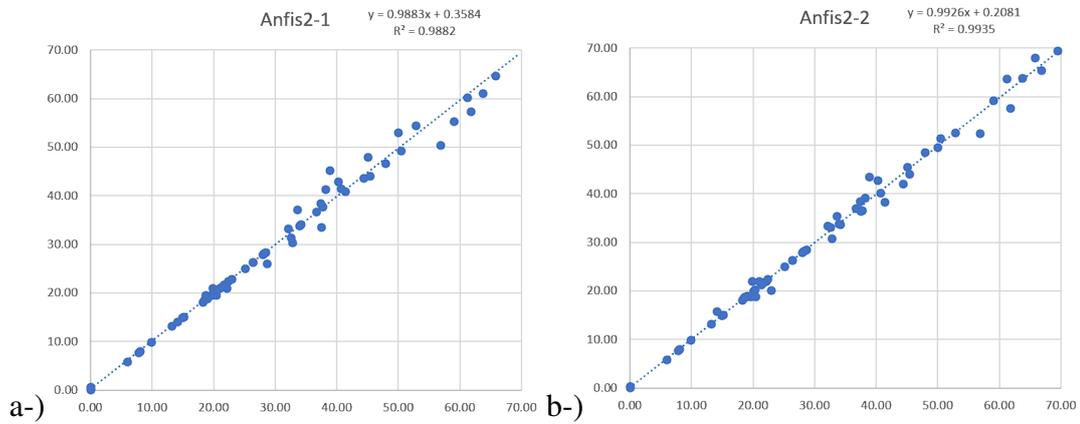
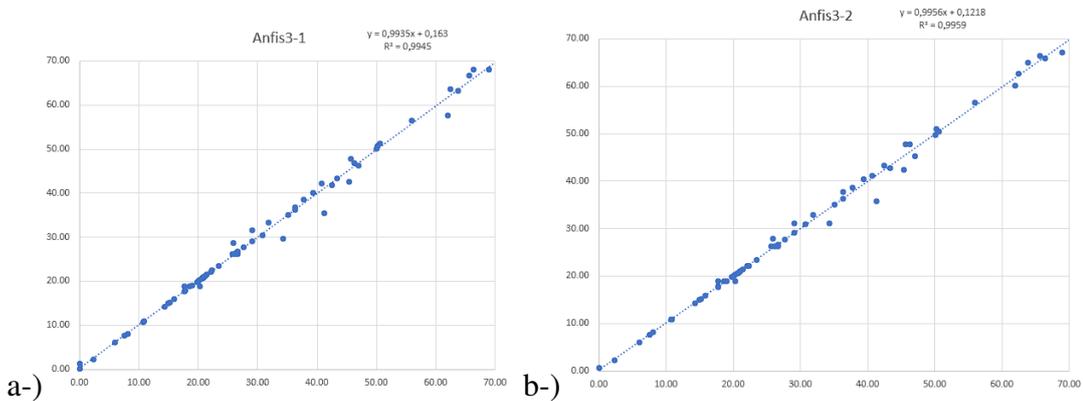


Figura 30 – Regressão dos dados experimentais com a saída da rede ANFIS para: a-) ANFIS3-1 e b-) ANFIS3-2.



Os valores do coeficiente de determinação próximos ou superiores a 0,98 indica que o treinamento foi eficaz em preparar a rede para inferir os dados experimentais precisamente. A partir dos modelos, foram construídas as Figuras 31-36, que consistem nas cinéticas resultantes da previsão do modelo *fuzzy*, nas temperaturas de 46°C e 55°C, e os dados experimentais, para cada modelo desenvolvido.

Figura 31 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS1-1, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.

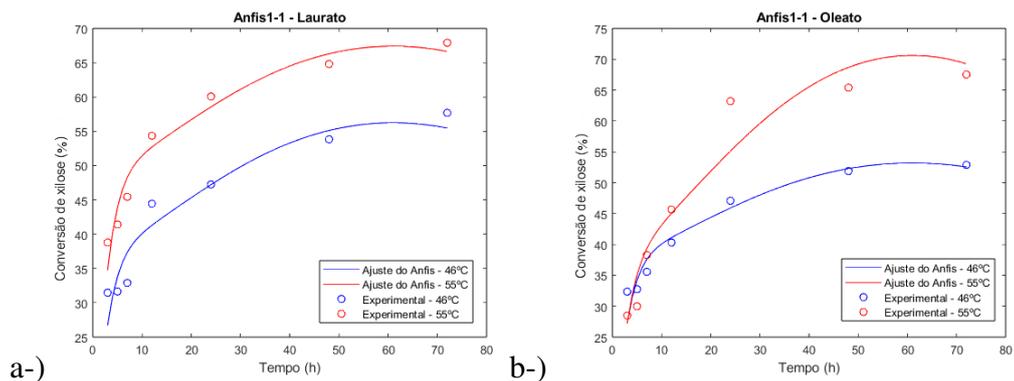


Figura 32 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS1-2, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.

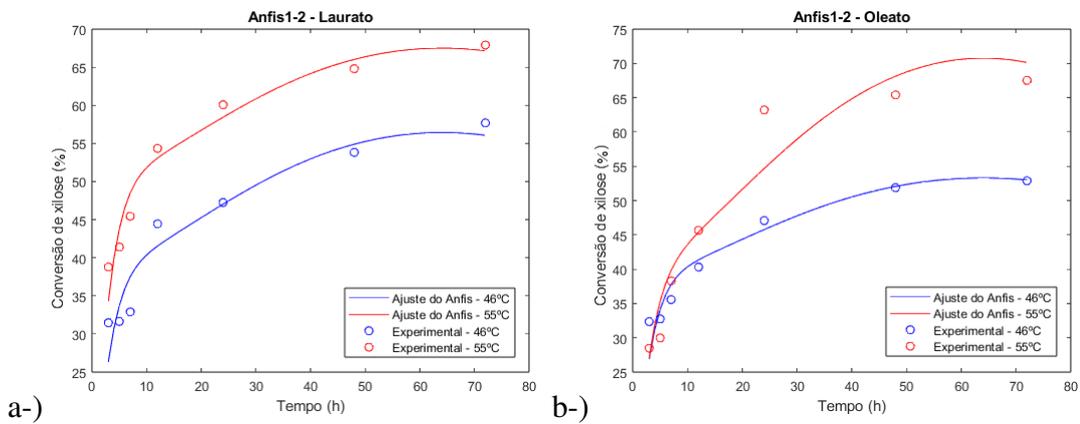


Figura 33 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS2-1, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.

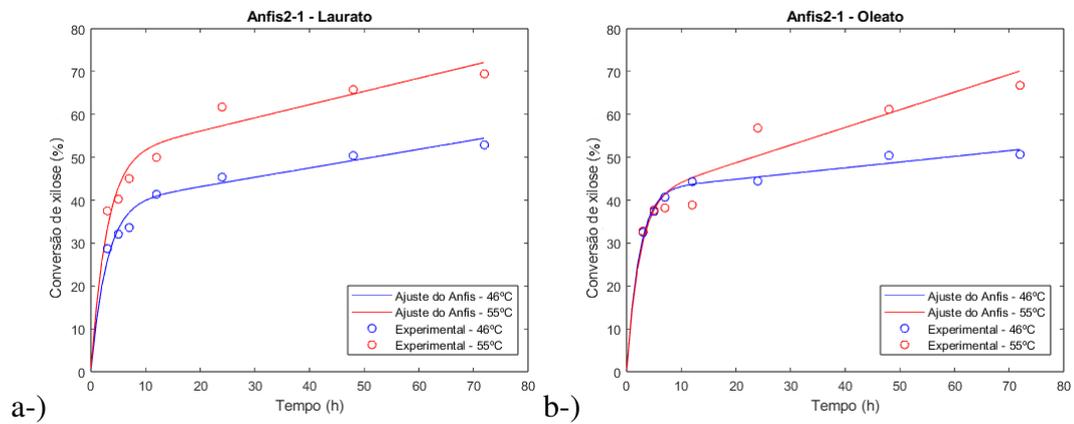


Figura 34 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS2-2, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.

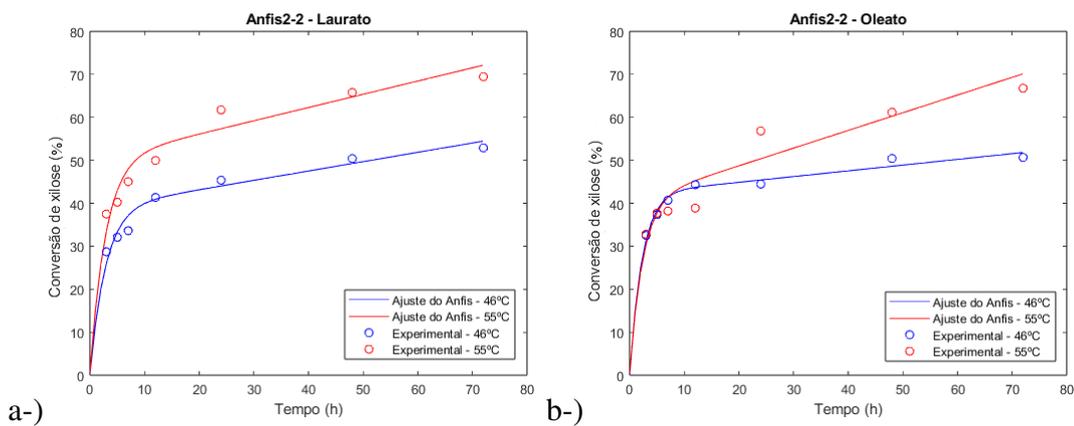


Figura 35 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS3-1, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.

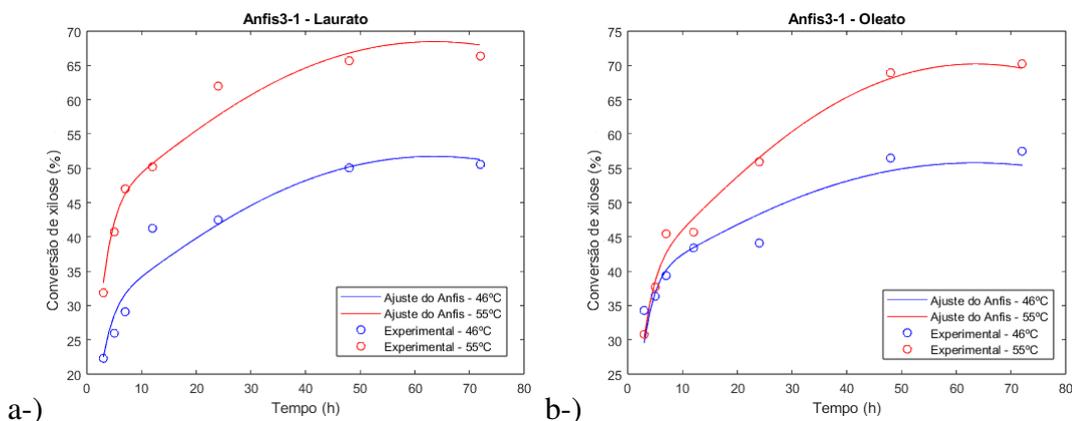
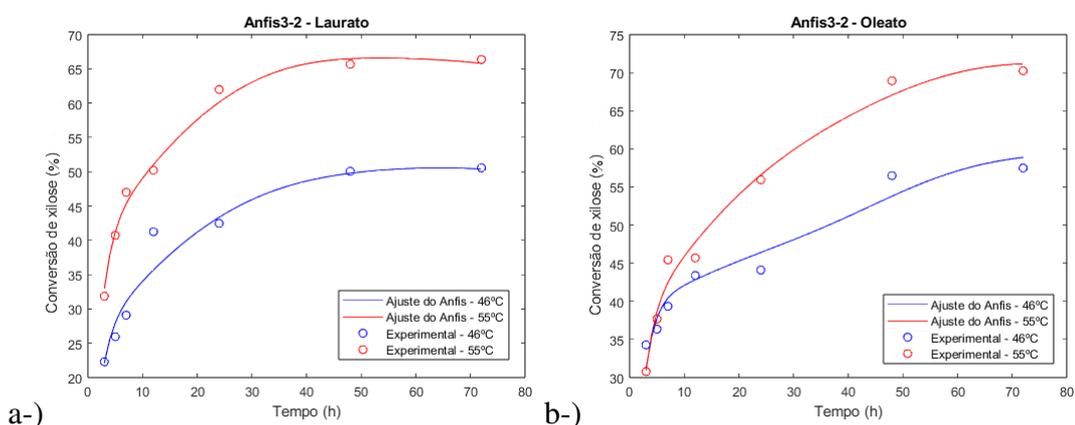


Figura 36 – Modelagem ANFIS nas temperaturas de 46°C e 55°C, para a rede ANFIS3-2, com: a-) ácido láurico e b-) ácido oleico.



A modelagem *fuzzy* possui uma alta capacidade de inferir a variável de saída a partir de um valor de entrada dentro do seu domínio. Neste sentido, foram desenvolvidos gráficos de superfície de resposta a partir de combinações entre as variáveis de entrada, sendo avaliadas a temperatura em função do tempo, a razão ácido/açúcar em função da carga enzimática e a temperatura em função da razão ácido/açúcar, no qual as Figuras 37-42 apresentam as superfícies, separadas para cada modelo. As superfícies de respostas tiveram como entrada a razão ácido/açúcar de 5,0, temperatura de 55°C, carga de 37,50 U/g e tempo de 48 horas, quando essas variáveis eram constantes, permitindo uma visualização completa do modelo *fuzzy*.

Figura 37 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS1-1.

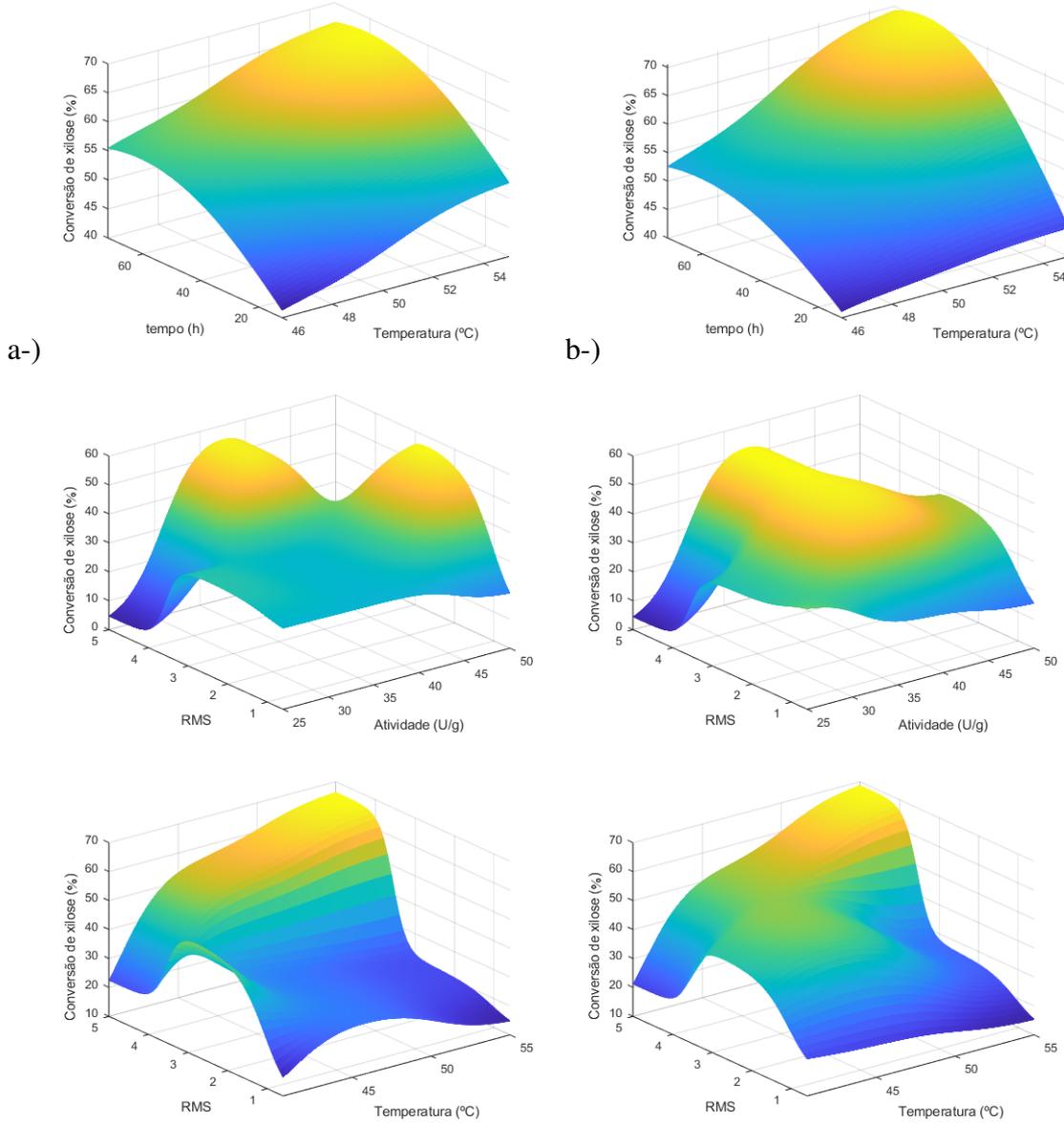


Figura 38 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS1-2.

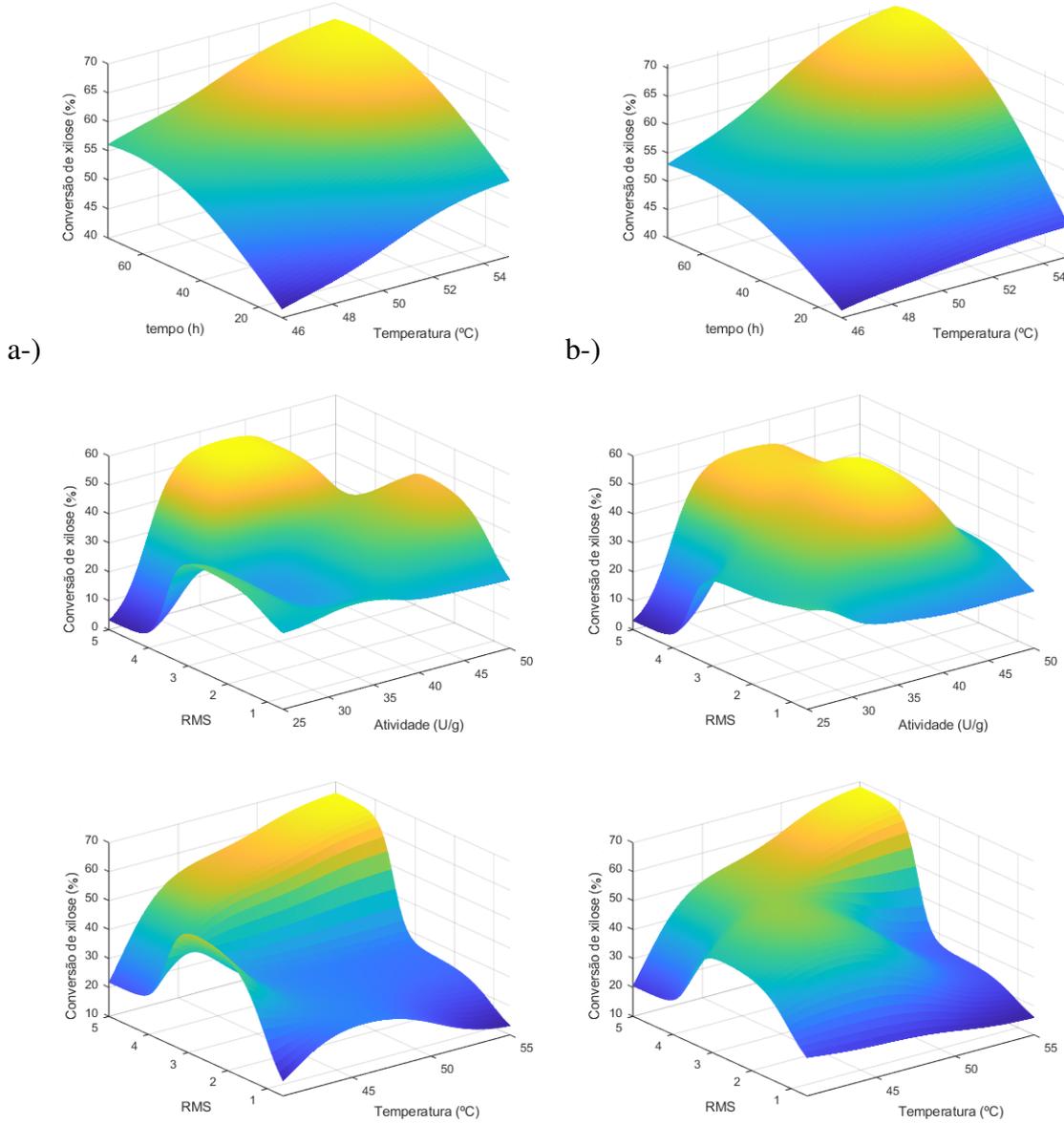


Figura 39 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS2-1.

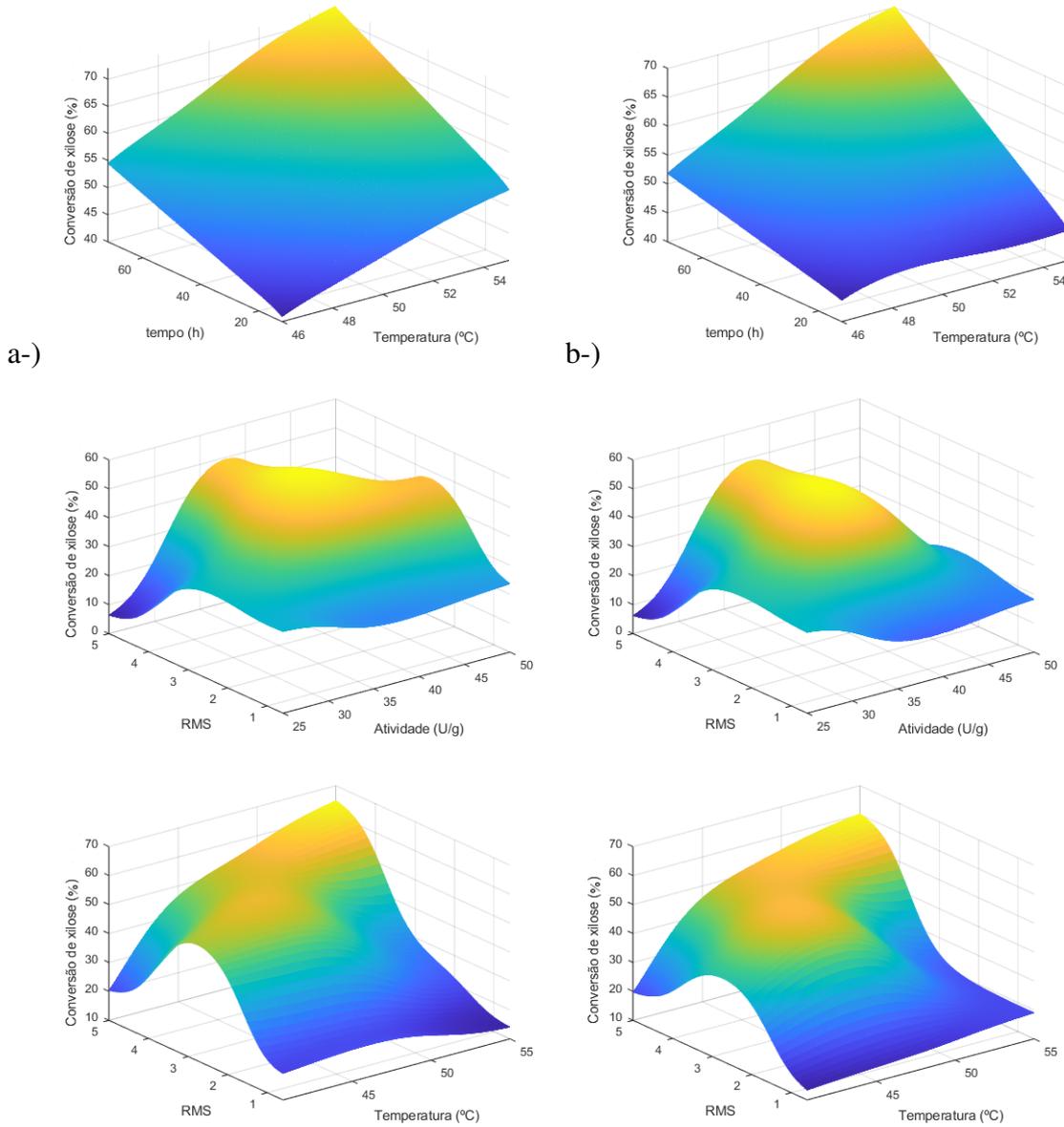


Figura 40 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS2-2.

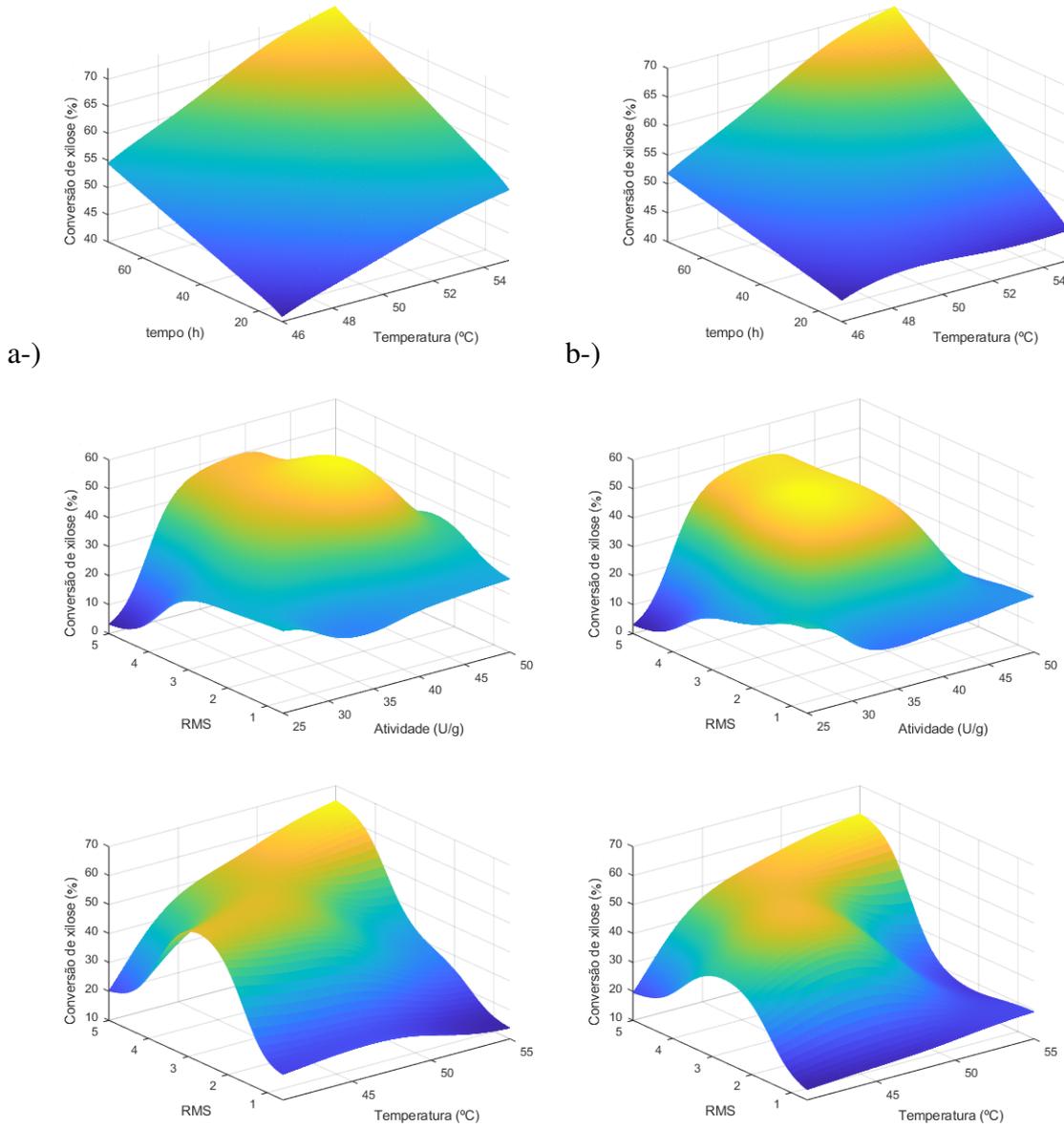


Figura 41 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS3-1.

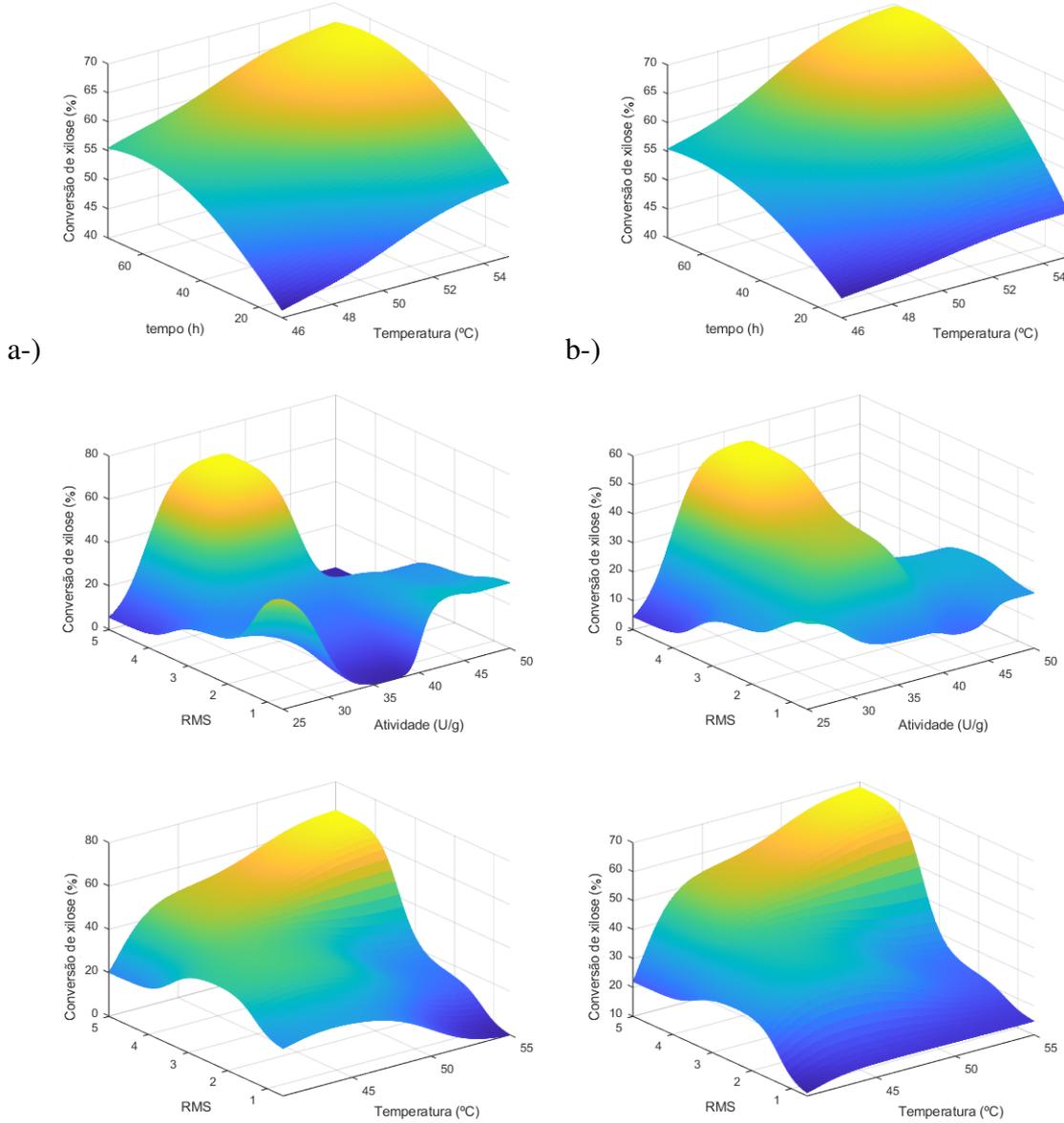
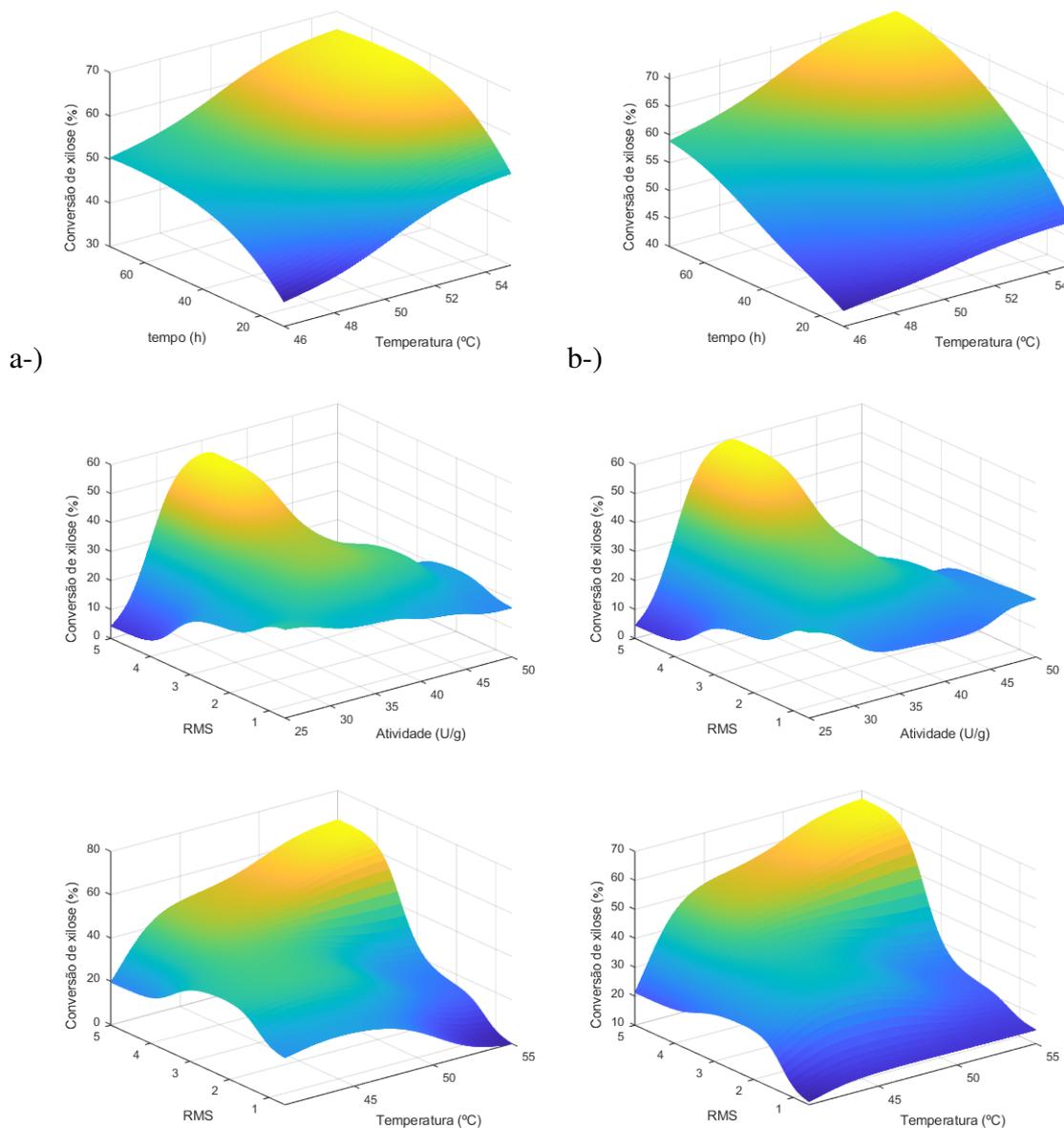


Figura 42 – Superfícies de conversão de xilose em função das variáveis independentes desenvolvidas pelo modelo ANFIS referente aos ácido láurico (a) e ácido oleico (b) da rede ANFIS3-2.



Os resultados obtidos apresentam a região com máxima conversão, nas seguintes condições: acima de 48 horas, temperatura de 55°C, razão ácido/açúcar de 1:0,2 e carga enzimática de 37,5 U/g, mesmo variando os valores linguísticos e o biocatalisador utilizado, sendo condizente com os resultados obtidos por (TORRES, 2021). Além disso, os máximos locais que aparecem nas regiões de valores de RMS abaixo de 1:0,2 representam a condição ótima dos dados obtidos no planejamento fatorial de Lima *et al.* (2016). Dessa forma, foi demonstrada a capacidade do ANFIS como uma ferramenta que pode ser empregada para verificar os efeitos das variáveis de entrada em reações de síntese enzimática de biossurfactantes.

5.3 Aplicação do *particle swarm optimization* no modelo ANFIS

Foi aplicado o algoritmo *particle swarm optimization* nos modelos *fuzzy* construídos visando à otimização das condições operacionais para a síntese de biossurfactantes. A otimização foi realizada por meio do comando "particleswarm", no *Matlab*. As Tabelas 20-22 apresentam as condições otimizadas obtidas pelo algoritmo de otimização em cada um dos modelos desenvolvidos.

Tabela 20 – Condições otimizadas obtidas pelo "pso" das redes ANFIS1.

Rede	Ácido graxo	Temperatura (°C)	RMS	Carga enz. (U/g)	tempo (h)	Conversão (%)
ANFIS1-1	Láurico	55	5	37,49403	61,04525	67,41049
	Oleico	55	5	37,49413	61,04507	70,62303
ANFIS1-2	Láurico	55	5	37,48785	64,93187	69,19739
	Oleico	55	5	37,48769	63,714	70,16746

Tabela 21 – Condições otimizadas obtidas pelo "pso" das redes ANFIS2.

Rede	Ácido graxo	Temperatura (°C)	RMS	Carga enz. (U/g)	tempo (h)	Conversão (%)
ANFIS2-1	Láurico	55	5	37,8257	72	72,2084
	Oleico	55	5	37,8257	72	70,1438
ANFIS2-2	Láurico	55	5	39,2995	72	72,7375
	Oleico	55	5	39,2995	72	70,0332

Tabela 22 – Condições otimizadas obtidas pelo "pso" das redes ANFIS3.

Rede	Ácido graxo	Temperatura (°C)	RMS	Carga enz. (U/g)	tempo (h)	Conversão (%)
ANFIS3-1	Láurico	55	5	36,90347	63,57272	68,58631
	Oleico	55	5	36,90348	63,57318	70,33832
ANFIS3-2	Láurico	55	5	35,30329	53,40411	73,92405
	Oleico	55	5	35,30336	53,40336	76,16419

As condições ótimas encontradas pelo programa apresentam valores próximos ao ponto com maior conversão (temperatura de 55°C, RMS de 5, carga enzimática de 37,5 U/g e 72 horas de reação), indicando que tanto o "pso" quanto o modelo *fuzzy* são ferramentas muito eficazes na otimização das condições operacionais.

6 Conclusão

O treinamento das redes neurais foi eficaz em produzir redes capazes de inferir os dados experimentais. Ao aplicar o modelo híbrido-neural, as redes neurais foram capazes de prever o comportamento cinético do processo de esterificação de xilose em síntese de biossurfactantes, aplicando-se aos balanços de massa de reator.

Os modelos *fuzzy*, por sua vez, foram capazes de simular as relações entre as variáveis de entrada (temperatura, tempo, RMS e carga enzimática) sobre a variável de saída (conversão de xilose), permitindo a construção de diversas combinações de superfícies de resposta.

A aplicação do algoritmo *particle swarm optimization* nos modelos *fuzzy* demonstrou a capacidade dessa técnica de otimização em estimar a condição operacional otimizada de modelos *fuzzy*. Dessa forma, os resultados apontam que a modelagem *fuzzy* é uma ferramenta poderosa, tanto na modelagem e simulação, quanto na otimização de processos de sínteses enzimáticas de biossurfactantes.

O uso de inteligência computacional da modelagem, simulação e otimização da síntese de biossurfactantes obteve sucesso em ambas as abordagens (redes neurais e lógica *fuzzy*), apresentando alta capacidade em reproduzir os dados experimentais e em prever novas condições de processo.

Referências

- ADACHI, S.; KOBAYASHI, T. Synthesis of esters by immobilized-lipase-catalyzed condensation reaction of sugars and fatty acids in water-miscible organic solvent. *Journal of Bioscience and Bioengineering*, v. 99, n. 2, 2005.
- ADETUNJI, A. I.; OLANIRAN, A. O. Production and potential biotechnological applications of microbial surfactants: An overview. *SAUDI JOURNAL OF BIOLOGICAL SCIENCES*, v. 28, n. 1, p. 669–679, JAN 2021. ISSN 1319-562X.
- AGUILAR, M. C. V. *Modelagem fenomenológica da síntese enzimática de biodiesel etanólico utilizando lipase solúvel*. Tese (Doutorado) — Universidade Federal de São Carlos, 2018.
- AHMAD, Z.; ARSHAD, M.; CROWLEY, D.; KHOSHNEVISAN, B.; YOUSEFI, M.; IMRAN, M.; HUSSAIN, S. Comparative efficacy of ANN and ANFIS models in estimating biosurfactant production produced by *Klebseilla sp. FKOD36*. *Stochastic Environmental Research and Risk Assessment*, v. 30, n. 1, 2016.
- AHMAD, Z.; CROWLEY, D.; MARINA, N.; JHA, S. K. Estimation of biosurfactant yield produced by *Klebseilla sp. FKOD36* bacteria using artificial neural network approach. *Measurement: Journal of the International Measurement Confederation*, v. 81, 2016. ISSN 02632241. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1016/j.measurement.2015.12.019>>.
- AN, D.; ZHANG, X.; LIANG, F.; XIAN, M.; FENG, D.; YE, Z. Synthesis, surface properties of glucosyl esters from renewable materials for use as biosurfactants. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, Elsevier, v. 577, n. May, p. 257–264, 2019. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2019.05.079>>.
- ANDERSON, E. M.; LARSSON, K. M.; KIRK, O. One biocatalyst - many applications: The use of *Candida antarctica* B-lipase in organic synthesis. *Biocatalysis and Biotransformation*, v. 16, n. 3, 1998. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.3109/10242429809003198>>.
- BABICZ, I.; LEITE, S. G.; SOUZA, R. O.; ANTUNES, O. A. Lipase-catalyzed diacylglycerol production under sonochemical irradiation. *Ultrasonics Sonochemistry*, v. 17, n. 1, 2010. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2009.07.005>>.
- BEIGI, M.; TORKI-HARCHEGANI, M.; MAHMOODI-ESHKAFTAKI, M. Prediction of paddy drying kinetics: A comparative study between mathematical and artificial neural network modelling. *Chemical Industry and Chemical Engineering Quarterly*, v. 23, n. 2, 2017. Disponível em: <<https://doi.org/10.2298/CICEQ160524039B>>.
- BEIGI, M.; TORKI, M.; SAFARINIA, H.; KAVEH, M.; SZYMANEK, M.; KHALIFE, E.; DZIWULSKA-HUNEK, A. Prediction of Almond Nut Yield and Its Greenhouse Gases Emission Using Different Methodologies. *Applied Sciences (Switzerland)*, v. 12, n. 4, 2022. ISSN 20763417.
- BETIKU, E.; ODUDE, V. O.; ISHOLA, N. B.; BAMIMORE, A.; OSUNLEKE, A. S.; OKELEYE, A. A. Predictive capability evaluation of RSM, ANFIS and ANN: A case of reduction of high free fatty acid of palm kernel oil via esterification process. *Energy Conversion and Management*, v. 124, 2016. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.enconman.2016.07.030>>.

- BHARATHI, D.; RAJALAKSHMI, G. Microbial lipases: An overview of screening, production and purification. *Biocatalysis and Agricultural Biotechnology*, v. 22, 2019. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.bcab.2019.101368>>.
- BISHOP, C. M. *Pattern recognition and machine learning Solutions to exercis.* [S.l.: s.n.], 2006. v. 4. ISSN 10179909.
- BORRELLI, G. M.; TRONO, D. *Recombinant lipases and phospholipases and their use as biocatalysts for industrial applications.* 2015. Disponível em: <<https://doi.org/10.3390/ijms160920774>>.
- BUSTAMANTE, R. A.; OLIVEIRA, J. S.; SANTOS, B. F. d. Modeling biosurfactant production from agroindustrial residues by neural networks and polynomial models adjusted by particle swarm optimization. *Environmental Science and Pollution Research*, v. 30, n. 3, 2023.
- CAMEOTRA, S. S.; MAKKAR, R. S. Recent applications of biosurfactants as biological and immunological molecules. *Current Opinion in Microbiology*, Elsevier Current Trends, v. 7, n. 3, p. 262–266, jun 2004. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.mib.2004.04.006>>.
- CANSIAN, A. B. M.; TARDIOLI, P. W.; FURLAN, F. F.; JUNIOR, R. D. S. Modeling and simulation of the biosurfactant production by enzymatic route using xylose and oleic acid as reagents. *CHEMICAL INDUSTRY & CHEMICAL ENGINEERING QUARTERLY*, v. 28, n. 4, p. 265–276, 2021.
- CARVALHO, N. B.; LIMA, Á. S.; SOARES, C. M. *Uso de sílicas modificadas para imobilização de lipases.* 2014. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.5935/0100-4042.20140304>>.
- CAVALCANTE, F. T. T.; NETO, F. S.; FALCÃO, I. Rafael de A.; SOUZA, J. Erick da S.; JUNIOR, L. S. de M.; da Silva Sousa, P.; ROCHA, T. G.; SOUSA, I. G. de; de Lima Gomes, P. H.; SOUZA, M. C. M. de; SANTOS, J. C. dos. Opportunities for improving biodiesel production via lipase catalysis. *Fuel*, v. 288, 2021. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1016/j.fuel.2020.119577>>.
- CAVALCANTI, F. M.; KOZONOE, C. E.; André Pacheco, K.; Maria de Brito Alves, R. Application of Artificial Neural Networks to Chemical and Process Engineering. In: *Deep Learning Applications*. [s.n.], 2021. Disponível em: <<https://www.intechopen.com/chapters/75690>>.
- CIOU, J. F.; WANG, P. Y.; WU, A. C.; TSAI, S. W. Lipase-catalyzed alcoholytic resolution of (R,S)-flurbiprofenyl azolides for preparation of (R)-NO-flurbiprofen ester prodrugs. *Process Biochemistry*, v. 46, n. 4, 2011. ISSN 13595113. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.procbio.2011.01.017>>.
- COLLIN, N.; FELARDOS, C.; AYGAT-CANO, C. *Cosmetic composition including a film-forming polymer and sugar esters.* [S.l.]: Francisco Carlos Rodrigues Silva, 1998.
- CORTEZ, D.; De Castro, H.; ANDRADE, G. Potential catalytic of mycelium-bound lipase of filamentous fungi in biotransformation processes. *Química Nova*, v. 40, n. 1, 2017. ISSN 16787064. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.21577/0100-4042.20160163>>.
- DESAI, J. D.; BANAT, I. M. Microbial production of surfactants and their commercial potential. *Microbiology and Molecular Biology Reviews*, v. 61, n. 1, p. 47–64, 1997. Disponível em: <<https://doi.org/10.1128/mmbr.61.1.47-64.1997%0A>>.

DHANARAJAN, G.; MANDAL, M.; SEN, R. A combined artificial neural network modeling-particle swarm optimization strategy for improved production of marine bacterial lipopeptide from food waste. *Biochemical Engineering Journal*, v. 84, 2014.

DRAKONTIS, C. E.; AMIN, S. Biosurfactants: Formulations, properties, and applications. *Current Opinion in Colloid and Interface Science*, Elsevier Ltd, v. 48, p. 77–90, 2020. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.cocis.2020.03.013>>.

ENAYATI, M.; GONG, Y.; GODDARD, J. M.; ABBASPOURRAD, A. Synthesis and characterization of lactose fatty acid ester biosurfactants using free and immobilized lipases in organic solvents. *Food Chemistry*, Elsevier, v. 266, p. 508–513, nov 2018. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2018.06.051>>.

ESFE, M. H. Thermal conductivity modeling of aqueous CuO nanofluids by adaptive neuro-fuzzy inference system (ANFIS) using experimental data. *Periodica Polytechnica Chemical Engineering*, v. 62, n. 2, 2018. ISSN 15873765. Disponível em: <<https://doi.org/10.3311/PPch.9670>>.

ESONYE, C.; Chimamkpan, Augustine, S.; Gabriel, Chukwu, E.; GERALD, U. Adaptive neuro-fuzzy inference system-genetic algorithm versus response surface methodology-desirability function algorithm modelling and optimization of biodiesel synthesis from waste chicken fat. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, Elsevier, v. 136, p. 104389, jul 2022. ISSN 1876-1070. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.jtice.2022.104389>>.

FERREIRA, C. M. *Modelagem matemática e simulação computacional aplicadas ao estudo de processos de co-digestão anaeróbia de glicerol e/ou melão*. 80 p. Tese (Dissertação de Mestrado) — Universidade Federal de São Carlos (Ufscar), 2022.

FLECK, L.; TAVARES, M. H. F.; EYNG, E.; HELMANN, A. C.; ANDRADE, M. A. d. M. Artificial Neural Networks: Basic Principles. *Revista Eletrônica Científica Inovação e Tecnologia*, v. 1, n. 13, 2016.

FRANZETTI, A.; GANDOLFI, I.; RAIMONDI, C.; BESTETTI, G.; BANAT, I. M.; SMYTH, T. J.; PAPACCHINI, M.; CAVALLO, M.; FRACCHIA, L. Environmental fate, toxicity, characteristics and potential applications of novel bioemulsifiers produced by *Variovorax paradoxus 7bCT5*. *Bioresource Technology*, v. 108, 2012. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.biortech.2012.01.005>>.

FULLÉR, R. *Introduction to Neuro-Fuzzy Systems*. 1. ed. Berlin: Physica Heidelberg, 2000. 289 p.

GONCALVES, M. C. P.; CANSIAN, A. B. M.; TARDIOLI, P. W.; SAVILLE, B. A. Production of sugars from mixed hardwoods for use in the synthesis of sugar fatty acid esters catalyzed by immobilized-stabilized derivatives of *Candida antarctica* lipase b. *BIOFUELS BIOPRODUCTS & BIOREFINING-BIOFPR*, v. 17, n. 5, p. 1236–1250, 2023.

GONÇALVES, A. P. *Aplicação de lógica fuzzy em guerra eletrônica*. 2016.

GOTOR-FERNÁNDEZ, V.; BUSTO, E.; GOTOR, V. *Candida antarctica* lipase B: An ideal biocatalyst for the preparation of nitrogenated organic compounds. *Advanced Synthesis and Catalysis*, v. 348, n. 7-8, 2006. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1002/adsc.200606057>>.

- GUMEL, A. M.; ANNUAR, M. S.; HEIDELBERG, T.; CHISTI, Y. *Lipase mediated synthesis of sugar fatty acid esters*. 2011. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.procbio.2011.07.021>>.
- HAYES, D. G.; SMITH, G. A. Sugar Esters. In: *Biobased Surfactants: Synthesis, Properties, and Applications*. [s.n.], 2019. cap. 10. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/C2016-0-03179-0>>.
- HAYKIN, S. *Redes neurais: princípios e prática*. 2. ed. Porto Alegre: [s.n.], 2007.
- HILÁRIO, F. F. *ÉSTERES DE AÇÚCAR: SÍNTESE, PROPRIEDADES E APLICABILIDADE NA INDÚSTRIA DE ALIMENTOS*. Tese (Doutorado) — Universidade Federal da Paraíba, 2020. Disponível em: <https://repositorio.ufpb.br/jspui/bitstream/123456789/20241/1/FabrineFelipeHilário_Dissert.pdf>.
- HIMMELBLAU, D. M. *Accounts of experiences in the application of artificial neural networks in chemical engineering*. 2008. Disponível em: <<https://doi.org/10.1021/ie800076s>>.
- IGHOSE, B.; ADELEKE, I. A.; DAMOS, M.; Adeola Junaid, H.; Ernest Okpalaeke, K.; BETIKU, E. Optimization of biodiesel production from *Thevetia peruviana* seed oil by adaptive neuro-fuzzy inference system coupled with genetic algorithm and response surface methodology. *Energy Conversion and Management*, v. 132, 2017. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.enconman.2016.11.030>>.
- ISHOLA, N. B.; ADEYEMI, O. O.; ADESINA, A. J.; ODUDE, V. O.; OYETUNDE, O. O.; OKELEYE, A. A.; SOJI-ADEKUNLE, A. R.; BETIKU, E. Adaptive neuro-fuzzy inference system-genetic algorithm vs. response surface methodology: A case of optimization of ferric sulfate-catalyzed esterification of palm kernel oil. *Process Safety and Environmental Protection*, Elsevier, v. 111, p. 211–220, oct 2017. ISSN 0957-5820. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.psep.2017.07.004>>.
- JAHAN, R.; BODRATTI, A. M.; TSIANOU, M.; ALEXANDRIDIS, P. Biosurfactants, natural alternatives to synthetic surfactants: Physicochemical properties and applications. *Advances in Colloid and Interface Science*, v. 275, 2020. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.cis.2019.102061>>.
- JANG, J. S. R. ANFIS: Adaptive-Network-Based Fuzzy Inference System. *IEEE Transactions on Systems, Man and Cybernetics*, v. 23, n. 3, 1993. Disponível em: <<https://ieeexplore.ieee.org/document/256541>>.
- KATSURAGI, Y.; FLICKINGER, B.; YASUKAWA, T.; MATSUO, N.; TOKIMITSU, I. *Diacylglycerol Oil*. [S.l.: s.n.], 2004.
- KENNEDY, J.; EBERHART, R. Particle swarm optimization. In: *Proceedings of ICNN'95 - International Conference on Neural Networks*. [S.l.: s.n.], 1995. v. 4, p. 1942–1948 vol.4.
- KHAN, N. R.; RATHOD, V. K. Enzyme catalyzed synthesis of cosmetic esters and its intensification: A review. *Process Biochemistry*, v. 50, n. 11, 2015. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.procbio.2015.07.014>>.
- KIRK, O.; CHRISTENSEN, M. W. Lipases from *Candida antarctica*: Unique biocatalysts from a unique origin. *Organic Process Research and Development*, v. 6, n. 4, 2002. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1021/op0200165>>.

KOVÁCS, Z. L. *Redes Neurais Artificiais: Fundamentos e Aplicações*. 4. ed. São Paulo: [s.n.], 2006. 163 p.

KRELING, N. E.; ZAPAROLI, M.; MARGARITES, A. C.; ZAMPIERI, D.; COLLA, L. M. Biosurfactant production: Intracellular manoproteins and extracellular sophorolipids by *Saccharomyces cerevisiae*. *Engenharia Sanitaria e Ambiental*, v. 24, n. 6, p. 1209–1219, 2019. Disponível em: <<https://doi.org/10.1590/S1413-41522019167957>>.

KUMAR, S.; JAIN, S.; KUMAR, H. Performance evaluation of adaptive neuro-fuzzy inference system and response surface methodology in modeling biodiesel synthesis from jatropa–algae oil. *Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization and Environmental Effects*, v. 40, n. 24, 2018. ISSN 15567230. Disponível em: <<https://doi.org/10.1080/15567036.2018.1515277>>.

KUNDYS, A.; BIALECKA-FLORJAŃCZYK, E.; FABISZEWSKA, A.; MALAJOWICZ, J. *Candida antarctica* lipase b as catalyst for cyclic esters synthesis, their polymerization and degradation of aliphatic polyesters. *Journal of Polymers and the Environment*, v. 26, n. 1, 2018. ISSN 15662543. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1007/s10924-017-0945-1>>.

LI, L.; JI, F.; WANG, J.; LI, Y.; BAO, Y. Esterification degree of fructose laurate exerted by *Candida antarctica* lipase B in organic solvents. *Enzyme and Microbial Technology*, Elsevier, v. 69, p. 46–53, feb 2015. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.enzmictec.2014.12.003>>.

LIMA, L. N.; VIEIRA, G. N. A.; KOPP, W.; TARDIOLI, P. W.; GIORDANO, R. L. Mono- and heterofunctionalized silica magnetic microparticles (SMMPs) as new carriers for immobilization of lipases. *Journal of Molecular Catalysis B: Enzymatic*, v. 133, 2016. ISSN 18733158.

LOPRESTO, C. G.; CALABRÒ, V.; WOODLEY, J. M.; TUFVESSON, P. Kinetic study on the enzymatic esterification of octanoic acid and hexanol by immobilized *Candida antarctica* lipase B. *Journal of Molecular Catalysis B: Enzymatic*, v. 110, 2014. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1016/j.molcatb.2014.09.011>>.

MACHADO, E. R. M. D. *Modelagem e controle de sistemas fuzzy Takagi-Sugeno*. 190 p. Tese — Universidade Estadual Paulista, 2003. Disponível em: <<http://hdl.handle.net/11449/101978>>.

MANOHAR, B.; DIVAKAR, S. An artificial neural network analysis of porcine pancreas lipase catalysed esterification of anthranilic acid with methanol. *Process Biochemistry*, v. 40, n. 10, 2005. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.procbio.2005.03.045>>.

MARKETSANDMARKETS™. *Biosurfactants Market - Global Forecast to 2028*. 2023. Disponível em: <<https://www.marketsandmarkets.com/Market-Reports/biosurfactant-market-163644922.html>>.

MARRO, A. A.; SOUZA, A. M. d. C.; CAVALCANTE, E. R. d. S.; BEZERRA, G. S.; NUNES, R. d. O. *Lógica Fuzzy: Conceitos e aplicações*. Natal, 2000.

MARTÍNEZ, M.; OLIVEROS, R.; ARACIL, J. Synthesis of biosurfactants: Enzymatic esterification of diglycerol and oleic acid. 1. kinetic modeling. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, v. 50, n. 11, 2011. Disponível em: <<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/ie102560b>>.

MATHWORKS. *Neural network Toolbox User's Guide*. [S.l.: s.n.], 2002.

MATHWORKS. *Fuzzy Logic Toolbox User's Guide*. [S.l.: s.n.], 2018.

MUKHERJEE, S.; DAS, P.; SEN, R. Towards commercial production of microbial surfactants. *Trends in Biotechnology*, v. 24, n. 11, p. 509–515, 2006. ISSN 0167-7799.

NELLES, O. *Nonlinear system identification: from classical approaches to neural networks and fuzzy models*. [S.l.: s.n.], 2001.

NETO, L. G.; MILAGRE, C. D. F.; MILAGRE, H. M. S. Enantioselective transesterification of a propargyl tertiary alcohol by *Candida antarctica* lipase a: A reaction medium engineering approach. *RESULTS IN CHEMISTRY*, v. 5, JAN 2023. ISSN 2211-7156.

NITSCHKE, M.; PASTORE, G. M. Biosurfactantes: Propriedades e aplicações. *Química Nova*, v. 25, n. 5, p. 772–776, 2002. Disponível em: <<https://doi.org/10.1590/S0100-40422002000500013>>.

ORTIZ, C.; FERREIRA, M. L.; BARBOSA, O.; Dos Santos, J. C.; RODRIGUES, R. C.; BERENGUER-MURCIA, Á.; BRIAND, L. E.; FERNANDEZ-LAFUENTE, R. Novozym 435: The "perfect" lipase immobilized biocatalyst? *Catalysis Science and Technology*, v. 9, n. 10, 2019. Disponível em: <<https://doi.org/10.1039/C9CY00415G>>.

PAL, M. P.; VAIDYA, B. K.; DESAI, K. M.; JOSHI, R. M.; NENE, S. N.; KULKARNI, B. D. Media optimization for biosurfactant production by *Rhodococcus erythropolis* MTCC 2794: Artificial intelligence versus a statistical approach. *Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology*, v. 36, n. 5, 2009. ISSN 13675435. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1007/s10295-009-0547-6>>.

PAL, S. K.; MANDAL, D. P. Fuzzy Logic and Approximate Reasoning: An Overview. *IETE Journal of Research*, v. 37, n. 5-6, 1991. ISSN 0377-2063. Disponível em: <<https://doi.org/10.1080/03772063.1991.11437008>>.

PATIL, D.; LEONARDIS, A.; NAG, A. Synthesis of biosurfactants from natural resources. *Journal of Food Biochemistry*, v. 35, n. 3, 2011. Disponível em: <<https://doi.org/10.1111/j.1745-4514.2010.00414.x>>.

PEDRYCZ, W.; GOMIDE, F. *An Introduction to Fuzzy Sets: Analysis and Design*. The MIT Press, 1998. ISBN 9780262281348. Disponível em: <<https://doi.org/10.7551/mitpress/3926.001.0001>>.

PIRDASHTI, M.; CURTEANU, S.; KAMANGAR, M. H.; HASSIM, M. H.; KHATAMI, M. A. Artificial neural networks: applications in chemical engineering. *Reviews in Chemical Engineering*, v. 29, p. 205–239, 2013. Disponível em: <<https://doi.org/10.1515/revce-2013-0013>>.

RAIZER, E. *Uso de Ultrassom na Síntese de Diacilglicerol via Hidrólise Enzimática do Óleo de Girassol*. Tese (Doutorado) — Universidade Estadual do Oeste do Paraná, 2015.

ROBERT, J. M.; BETANCUR, M. O.; MACHADO, A. C. O.; ARRUDA, A.; REIS, V. C. B.; ALMEIDA, R. V.; TORRES, F. A. G.; ALEGRE, P. F.; VALERO, F.; FREIRE, D. M. G. Increase of *Candida antarctica* lipase B production under PGK promoter in *Pichia pastoris*: effect of multicopies. *Brazilian Journal of Microbiology*, v. 50, n. 2, 2019.

ROMANO, I. P.; SANTOS, V. S.; LOUZADA, A. C. L. P.; JUNIOR, R. C. P.; CARMO, E. J.; MOTA, A. J.; BARROSO, H. d. S.; JUNIOR, I. I.; PEREIRA, J. O.; FILHO, S. A.; ZANOTTO, S. P. Avaliação da biomassa de fungos amazônicos como fonte de lipases para biocatálise. *Química Nova*, v. 43, n. 2, 2020. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.21577/0100-4042.20170470>>.

- SADI, M.; AHARI, J. S.; ZARRINPASHNE, S. Application Of Adaptive Neuro Fuzzy Inference System To Modeling Oxidative Coupling Of Methane Reaction At Elevated Pressure. *Journal of Petroleum Science and Technology*, v. 4, p. 43–55, 2014. Disponível em: <https://jpst.ripi.ir/article_400.html>.
- SADRZADEH, M.; MOHAMMADI, T.; IVAKPOUR, J.; KASIRI, N. Separation of lead ions from wastewater using electrodialysis: Comparing mathematical and neural network modeling. *Chemical Engineering Journal*, v. 144, n. 3, 2008. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.cej.2008.02.023>>.
- SANDRI, S.; CORREA, C. Lógica nebulosa. *Instituto Tecnológico da Aeronáutica - ITA. V Escola de Redes Neurais.*, 1999.
- SANG, H. L.; DUNG, T. D.; SUNG, H. H.; CHANG, W. J.; KOO, Y. M. Lipase-catalyzed synthesis of fatty acid sugar ester using extremely supersaturated sugar solution in ionic liquids. *Biotechnology and Bioengineering*, v. 99, n. 1, 2008.
- SANTOS, B. F.; PONEZI, A. N.; FILETI, A. M. Development of artificial intelligence models to monitor biosurfactant concentration in real-time using waste as substrate in bioreactor through fermentation by *Bacillus subtilis*. *Chemical Engineering Transactions*, v. 57, 2017. Disponível em: <<https://doi.org/10.3303/CET1757169>>.
- SAXENA, V.; KUMAR, N.; SAXENA, V. K. Biodiesel synthesis from *Acacia concinna* seed oil: A comprehensive study. *Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization and Environmental Effects*, v. 40, n. 17, 2018. ISSN 15567230.
- SHA, W.; EDWARDS, K. L. The use of artificial neural networks in materials science based research. *Materials & Design*, Elsevier, v. 28, n. 6, p. 1747–1752, 2007. ISSN 0261-3069. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.matdes.2007.02.009>>.
- SIMOES, M. G.; SHAW, I. *Controle e Modelagem Fuzzy*. [S.l.: s.n.], 2007.
- SINGH, P.; PATIL, Y.; RALE, V. Biosurfactant production: emerging trends and promising strategies. *Journal of Applied Microbiology*, v. 126, n. 1, p. 2–13, 2019.
- SOLTANI, S.; SHOJAEI, T. R.; KHANIAN, N.; Shean Yaw Choong, T.; ASIM, N.; ZHAO, Y. Artificial neural network method modeling of microwave-assisted esterification of PFAD over mesoporous $TiO_2 - ZnO$ catalyst. *Renewable Energy*, v. 187, 2022. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.renene.2022.01.123>>.
- SOLTANIAN, S.; BEIGZADEH, R. Computational fluid dynamics and fuzzy logic for modeling conical spiral heat exchangers. *Chemical Engineering & Technology*, 2023. Disponível em: <<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/ceat.202200488>>.
- TAI, H. P.; BRUNNER, G. Sugar fatty acid ester synthesis in high-pressure acetone–CO₂ system. *The Journal of Supercritical Fluids*, Elsevier, v. 48, n. 1, p. 36–40, feb 2009. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.supflu.2008.09.009>>.
- TANSCHKEIT, R. Sistemas fuzzy. *Departamento de Engenharia Elétrica, Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro*, p. 338–353, 2004.
- TCHOMTÉ, S. K.; GOURGAND, M. Particle swarm optimization: A study of particle displacement for solving continuous and combinatorial optimization problems. *International Journal of Production Economics*, v. 121, n. 1, 2009. ISSN 09255273.

TORRES, A. d. C. L. *Modelagem Matemática para Sínteses Enzimáticas de Biosurfactantes Catalisadas por Lipases Imobilizadas*. Tese (Doutorado) — Universidade Federal de São Carlos, 2021.

TORRES, A. d. C. L.; LIMA, L. N.; TARDIOLI, P. W.; JÚNIOR, R. S. Mathematical modeling of enzymatic syntheses of biosurfactants catalyzed by immobilized lipases. *Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis*, Springer International Publishing, v. 130, n. 2, p. 699–712, 2020. Disponível em: <<https://doi.org/10.1007/s11144-020-01812-w>>.

TREVISAN, H. Enzimas como agente biotecnológicos. In: SAID, S.; PIETRO, R. C. L. R. (Ed.). *Lipase*. [S.l.]: Legis Summa, 2004. cap. 7, p. 115–135.

VESCOVI, V.; SANTOS, J. B. C.; TARDIOLI, P. W. Porcine pancreatic lipase hydrophobically adsorbed on octyl-silica: A robust biocatalyst for syntheses of xylose fatty acid esters. *Biocatalysis and Biotransformation*, v. 35, n. 4, 2017. Disponível em: <<https://doi.org/10.1080/10242422.2017.1335717>>.

WANG, D.; TAN, D.; LIU, L. Particle swarm optimization algorithm: an overview. *Soft Computing*, v. 22, n. 2, 2018. ISSN 14337479.

YAN, Y. *Enzymatic Production Of Sugar Fatty Acid Esters*. Tese (Doutorado) — University of Stuttgart, 2001.

YAN, Y.; BORNSCHEUERA, U. T.; STADLER, G.; LUTZ-WAHL, S.; REUSS, M.; SCHMID, R. D. Production of sugar fatty acid esters by enzymatic esterification in a stirred-tank membrane reactor: Optimization of parameters by response surface methodology. *JA-OCS, Journal of the American Oil Chemists' Society*, v. 78, n. 2, 2001. Disponível em: <<https://doi.org/10.1007/s11746-001-0235-x>>.

APÊNDICE A – Valores dos coeficientes de saída do sistema de inferência nebulosa ajustado pelo ANFIS

Tabela A.1 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno de ordem zero ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS1-1.

f_i	a	f_i	a	f_i	a	f_i	a	f_i	a
1	$6,47 \cdot 10^{-7}$	34	$2,431 \cdot 10^{-5}$	67	0,35862	100	1,2692274	133	44,8892
2	17,5748141	35	11,303415	68	19,9857	101	0,0326246	134	1,11393
3	19,58918549	36	12,598979	69	22,2836	102	0,0281075	135	1,20379
4	$2,58 \cdot 10^{-5}$	37	0,0067258	70	0,00904	103	50,719961	136	$4,8 \cdot 10^{-6}$
5	0,296173345	38	32,229982	71	23,6682	104	1,3029546	137	97,7009
6	0,330120603	39	35,924281	72	26,3812	105	1,1223605	138	108,899
7	$6,52 \cdot 10^{-7}$	40	0,2687722	73	55,1259	106	1,2790329	139	0,00019
8	42,66863199	41	25,455501	74	1,1001	107	0,0326123	140	10,9118
9	47,55917999	42	28,38104	75	2,3409	108	0,0280301	141	12,1626
10	0,000180413	43	0,0067778	76	2202,903	109	$2,6 \cdot 10^{-05}$	142	$4,8 \cdot 10^{-6}$
11	0,814290323	44	58,547103	77	43,9636	110	60,863984	143	26,3398
12	0,907627216	45	65,257792	78	93,5458	111	67,840027	144	29,3588
13	0,007209539	46	41,313863	79	55,5518	112	0,0010393	145	0,00133
14	61,48956412	47	0,7792356	80	1,10868	113	23,091316	146	40,0723
15	68,53752667	48	2,0840251	81	2,35903	114	25,737972	147	44,6644
16	0,000181807	49	1650,9551	82	$7,41 \cdot 10^{-7}$	115	$2,62 \cdot 10^{-5}$	148	0,0531
17	45,11897342	50	31,138369	83	77,9185	116	7,8453633	149	33,1638
18	50,29037755	51	83,279336	84	86,8493	117	8,7445748	150	36,9972
19	1,1082023	52	41,633034	85	$2,96 \cdot 10^{-5}$	118	0,0072518	151	0,00134
20	0,020819281	53	0,7853087	86	80,3054	119	17,64455	152	146,471
21	0,056544874	54	2,1001845	87	89,5098	120	19,666908	153	163,26
22	44,28518967	55	$3,21 \cdot 10^{-5}$	88	$7,46 \cdot 10^{-7}$	121	0,2897928	154	8,16276
23	0,831823041	56	15,985833	89	47,1276	122	121,69541	155	0,5649
24	2,259447419	57	17,818081	90	52,5292	123	135,64352	156	4,3199
25	1,116763738	58	0,0012862	91	0,000206	124	0,0073079	157	326,195
26	0,021064714	59	11,782133	92	3,1550	125	22,383258	158	22,5699
27	0,057076002	60	13,132591	93	3,51669	126	24,948765	159	172,633
28	$2,41 \cdot 10^{-5}$	61	$3,24 \cdot 10^{-5}$	94	0,008257	127	44,545021	160	8,22582
29	27,46962652	62	20,84619	95	21,95908	128	1,1053674	161	0,56891
30	30,61811176	63	23,235517	96	24,47602	129	1,1945392	162	4,35366
31	0,000963936	64	0,0089744	97	0,000208	130	1780,0763		
32	27,72424037	65	21,959059	98	134,3591	131	44,173549		
33	30,90193632	66	24,476121	99	149,7589	132	47,737157		

Tabela A.2 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno de ordem zero ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS1-2.

f_i	a	f_i	a	f_i	a	f_i	a	f_i	a
1	$-8,9.10^{-8}$	45	25,268307	89	23,38232	133	-0,1241	177	41,5491
2	-42,779	46	$-3,06.10^{-6}$	90	26,177929	134	0,0042	178	-4,02312
3	-47,883	47	19,9187536	91	-0,277945	135	0,0031	179	0,13872
4	$-2,7.10^{-7}$	48	22,2949885	92	24,719046	136	-37,63	180	0,1308
5	6,044	49	-0,0006926	93	27,674092	137	1,335	181	$-6,98.10^{-7}$
6	6,765	50	36,8653559	94	-0,0008756	138	1,0095	182	115,554
7	$-2,7.10^{-5}$	51	41,2632817	95	26,673103	139	-37,50	183	129,339
8	-13,175	52	-0,2099136	96	29,855127	140	1,330	184	-0,0002
9	-14,746	53	16,3599135	97	-5,3532926	141	1,0057	185	57,7323
10	$-8,5.10^{-8}$	54	18,3185415	98	0,1486637	142	-0,118	186	64,61971
11	-52,1	55	-0,2091957	99	0,2849161	143	0,0039	187	-0,0002
12	-58,315	56	35,4910515	100	-1622,3961	144	0,0028	188	-7,1904
13	$-1,9.10^{-5}$	57	39,7319308	101	45,042489	145	$-3,37.10^{-6}$	189	8,04814
14	-5,578	58	-0,0006591	102	86,334355	146	68,82	190	$-6,64.10^{-7}$
15	-6,243	59	46,9688043	103	-1616,8477	147	77,031	191	75,3449
16	-0,0058	60	52,5720336	104	44,888451	148	-0,001	192	84,3332
17	48,355	61	-4,0291539	105	86,039104	149	-30,83	193	-0,0001
18	54,124	62	0,10741992	106	-5,0940462	150	-34,515	194	23,7070
19	-0,0058	63	0,25363222	107	0,1414666	151	-0,001	195	26,5353
20	79,148	64	-1221,0959	108	0,2711208	152	-21,71	196	-0,0455
21	88,59	65	32,5467113	109	$9,91.10^{-8}$	153	-24,308	197	-49,3612
22	$-1,8.10^{-5}$	66	76,8575412	110	-99,600284	154	$-3,21.10^{-6}$	198	-55,219
23	10,819	67	-1216,9199	111	-111,48223	155	12,21	199	-0,0453
24	12,109	68	32,435446	112	$-3,00.10^{-5}$	156	13,67	200	85,0236
25	-0,111	69	76,594743	113	54,389362	157	-0,0007	201	95,1973
26	0,0029	70	-3,8340322	114	60,877815	158	6,694	202	-0,0001
27	0,0071	71	0,10224019	115	$-2,99.10^{-5}$	159	7,492	203	91,065
28	-33,92	72	0,24137447	116	135,17808	160	-0,2202	204	101,929
29	0,9015	73	$-4,279.10^{-6}$	117	151,30433	161	125,64	205	-0,8744
30	2,1574	74	22,4077005	118	$-9,43.10^{-8}$	162	140,62	206	-0,0572
31	-33,804	75	25,0808577	119	57,040554	163	-0,2195	207	0,5279
32	0,898	76	-0,0012942	120	-63,845284	164	128,086	208	-265,002
33	2,1501	77	8,07833832	121	$-2,13.10^{-5}$	165	143,36	209	-17,363
34	-0,106	78	9,04208333	122	-86,477072	166	-0,00069	210	160,0006
35	0,0028	79	-0,0012898	123	-96,793472	167	-33,18	211	-264,09
36	0,0068	80	10,6478002	124	-0,0064693	168	37,138	212	-17,303
37	$-3,2.10^{-6}$	81	11,9180726	125	8,1608135	169	-4,227	213	159,45
38	24,61	82	$-4,06.10^{-6}$	126	9,1342854	170	0,1457	214	-0,832
39	27,54	83	23,4455765	127	-0,0064471	171	0,1374	215	-0,0543
40	-0,00097	84	26,2425485	128	-106,79109	172	-1281,321	216	0,50254
41	32,605	85	-0,0009203	129	-119,53096	173	44,205		
42	36,495	86	26,3475996	130	$-2,03.10^{-7}$	174	41,6917		
43	-0,00097	87	29,4907928	131	-146,63240	175	-1276,939		
44	22,575	88	-0,2788994	132	-164,12511	176	44,054		

Tabela A.3 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno linear ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS2-1.

f_i	a	b	c	d	e	f
1	$-6,50 \cdot 10^{-11}$	$-7,89 \cdot 10^{-7}$	$-8,57 \cdot 10^{-8}$	$-6,43 \cdot 10^{-7}$	$-1,80 \cdot 10^{-6}$	$-1,71 \cdot 10^{-8}$
2	$-7,96 \cdot 10^{-6}$	-0,22407	-0,0402	-0,1636	-0,26484	-0,00552
3	$-1,07 \cdot 10^{-9}$	$-1,30 \cdot 10^{-5}$	$-1,41 \cdot 10^{-6}$	$-1,06 \cdot 10^{-5}$	$-2,95 \cdot 10^{-5}$	$-2,82 \cdot 10^{-7}$
4	$9,10 \cdot 10^{-6}$	0,133492	-0,82969	0,170528	0,196757	0,004099
5	$-6,50 \cdot 10^{-11}$	$-7,89 \cdot 10^{-7}$	$-8,58 \cdot 10^{-8}$	$-6,43 \cdot 10^{-7}$	$-1,80 \cdot 10^{-6}$	$-1,72 \cdot 10^{-8}$
6	$-4,68 \cdot 10^{-6}$	-0,08328	-0,04622	-0,09418	-0,09647	-0,00201
7	$-1,33 \cdot 10^{-7}$	-0,00161	-0,00017	-0,00131	-0,00366	$-3,50 \cdot 10^{-5}$
8	$9,89 \cdot 10^{-7}$	0,405354	0,026429	0,301174	0,47924	0,009985
9	$-2,18 \cdot 10^{-6}$	-0,02648	-0,00288	-0,02158	-0,06026	-0,00058
10	$2,07 \cdot 10^{-5}$	0,421711	0,202609	0,370997	0,505704	0,010546
11	$-1,33 \cdot 10^{-7}$	-0,00161	-0,00017	-0,00131	-0,00366	$-3,50 \cdot 10^{-5}$
12	$2,57 \cdot 10^{-5}$	0,180934	0,018086	0,199298	0,214156	0,004462
13	$-5,54 \cdot 10^{-6}$	-0,06732	-0,00732	-0,05488	-0,1532	-0,00146
14	$1,70 \cdot 10^{-7}$	0,00373	$-1,32 \cdot 10^{-5}$	0,002916	0,002837	$8,60 \cdot 10^{-5}$
15	$-9,12 \cdot 10^{-5}$	-1,1078	-0,12041	-0,90306	-2,52109	-0,02408
16	$2,79 \cdot 10^{-6}$	0,034841	-0,00114	0,028482	0,015319	0,000762
17	$-5,54 \cdot 10^{-6}$	-0,06733	-0,00732	-0,05489	-0,15323	-0,00146
18	$2,71 \cdot 10^{-7}$	0,002778	$-4,64 \cdot 10^{-5}$	0,002482	0,001711	$6,26 \cdot 10^{-5}$
19	$-1,12 \cdot 10^{-9}$	$-1,40 \cdot 10^{-5}$	$-1,50 \cdot 10^{-6}$	$-1,13 \cdot 10^{-5}$	$-3,21 \cdot 10^{-5}$	$-3,01 \cdot 10^{-7}$
20	$2,07 \cdot 10^{-5}$	0,317419	-0,83906	0,153333	0,289258	0,006026
21	$-1,84 \cdot 10^{-8}$	-0,00023	$-2,48 \cdot 10^{-5}$	-0,00019	-0,00053	$-4,95 \cdot 10^{-6}$
22	$5,87 \cdot 10^{-6}$	0,234521	-14,0054	0,170176	0,209856	0,004372
23	$-1,12 \cdot 10^{-9}$	$-1,40 \cdot 10^{-5}$	$-1,51 \cdot 10^{-6}$	$-1,13 \cdot 10^{-5}$	$-3,21 \cdot 10^{-5}$	$-3,01 \cdot 10^{-7}$
24	$9,00 \cdot 10^{-6}$	0,180313	-0,83955	0,150694	0,158272	0,003297
25	$-2,28 \cdot 10^{-6}$	-0,02857	-0,00307	-0,02302	-0,06556	-0,00061
26	$1,93 \cdot 10^{-5}$	0,251017	0,197033	0,181593	0,297398	0,006207
27	$-3,75 \cdot 10^{-5}$	-0,47011	-0,05052	-0,37888	-1,07889	-0,0101
28	$3,54 \cdot 10^{-5}$	0,397808	3,113955	0,346657	0,421755	0,008969
29	$-2,28 \cdot 10^{-6}$	-0,02857	-0,00307	-0,02303	-0,06557	-0,00061
30	$1,17 \cdot 10^{-5}$	0,364986	0,199582	0,34406	0,36725	0,007662
31	$-9,55 \cdot 10^{-5}$	-1,19519	-0,12843	-0,96326	-2,74296	-0,02569
32	$2,91 \cdot 10^{-6}$	0,036784	-0,00094	0,029595	0,015823	0,000794
33	-0,00157	-19,6681	-2,11352	-15,8514	-45,1381	-0,4227
34	$4,69 \cdot 10^{-5}$	0,592106	-0,01595	0,477231	0,244074	0,012725
35	$-9,55 \cdot 10^{-5}$	-1,19538	-0,12846	-0,96341	-2,74339	-0,02569
36	$2,89 \cdot 10^{-6}$	0,037352	-0,00093	0,030301	0,016207	0,000802
37	$-7,89 \cdot 10^{-10}$	$-1,64 \cdot 10^{-5}$	$-1,50 \cdot 10^{-6}$	$-1,13 \cdot 10^{-5}$	$-4,16 \cdot 10^{-5}$	$-3,00 \cdot 10^{-7}$
38	$7,57 \cdot 10^{-6}$	0,321511	-0,05118	0,186152	0,303837	0,00633
39	$-1,30 \cdot 10^{-8}$	-0,00027	$-2,47 \cdot 10^{-5}$	-0,00019	-0,00068	$-4,94 \cdot 10^{-6}$
40	$9,67 \cdot 10^{-6}$	0,065511	-0,86466	0,065272	0,08327	0,001735
41	$-7,89 \cdot 10^{-10}$	$-1,64 \cdot 10^{-5}$	$-1,50 \cdot 10^{-6}$	$-1,13 \cdot 10^{-5}$	$-4,16 \cdot 10^{-5}$	$-3,00 \cdot 10^{-7}$
42	$1,35 \cdot 10^{-5}$	0,312477	-0,03851	0,277724	0,2939	0,006123
43	$-1,61 \cdot 10^{-6}$	-0,03338	-0,00306	-0,02298	-0,08477	-0,00061
44	$2,18 \cdot 10^{-5}$	-0,05969	0,009688	-0,03519	-0,05551	-0,00115

45	$-2,65 \cdot 10^{-5}$	-0,54928	-0,05042	-0,37813	-1,39499	-0,01008
46	$9,47 \cdot 10^{-6}$	0,163316	0,198106	0,163662	0,150392	0,003266
47	$-1,61 \cdot 10^{-6}$	-0,03338	-0,00306	-0,02298	-0,08478	-0,00061
48	$-8,15 \cdot 10^{-6}$	0,410445	0,02325	0,360022	0,383988	0,008008
49	$-6,73 \cdot 10^{-5}$	-1,39649	-0,12818	-0,96135	-3,5466	-0,02564
50	$2,14 \cdot 10^{-6}$	0,042234	0,003597	0,029102	0,021039	0,000775
51	-0,00111	-22,9807	-2,10932	-15,8199	-58,3629	-0,42186
52	$3,38 \cdot 10^{-5}$	0,700882	0,059357	0,482621	0,351701	0,012865
53	$-6,73 \cdot 10^{-5}$	-1,39672	-0,1282	-0,9615	-3,54717	-0,02564
54	$2,02 \cdot 10^{-6}$	0,04419	0,003651	0,030723	0,022865	0,000813
55	$-1,94 \cdot 10^{-8}$	$-9,00 \cdot 10^{-7}$	$-9,79 \cdot 10^{-8}$	$-7,34 \cdot 10^{-7}$	$4,31 \cdot 10^{-6}$	$-1,96 \cdot 10^{-8}$
56	-0,00238	-0,09757	-0,00405	-0,07266	-0,11657	-0,00243
57	$-3,20 \cdot 10^{-7}$	$-1,48 \cdot 10^{-5}$	$-1,61 \cdot 10^{-6}$	$-1,21 \cdot 10^{-5}$	$7,08 \cdot 10^{-5}$	$-3,22 \cdot 10^{-7}$
58	0,00272	0,091638	-0,04624	0,109125	0,132275	0,002756
59	$-1,94 \cdot 10^{-8}$	$-9,00 \cdot 10^{-7}$	$-9,79 \cdot 10^{-8}$	$-7,34 \cdot 10^{-7}$	$4,31 \cdot 10^{-6}$	$-1,96 \cdot 10^{-8}$
60	-0,0014	-0,05828	0,006668	-0,06574	-0,06798	-0,00142
61	$-3,96 \cdot 10^{-5}$	-0,00184	-0,0002	-0,0015	0,008782	$-3,99 \cdot 10^{-5}$
62	0,000296	0,015938	0,001447	0,011918	0,018296	0,000382
63	-0,00065	-0,03022	-0,00328	-0,02463	0,144517	-0,00066
64	0,006181	0,252529	0,021717	0,268253	0,300278	0,006272
65	$-3,96 \cdot 10^{-5}$	-0,00184	-0,0002	-0,0015	0,008783	$-3,99 \cdot 10^{-5}$
66	0,007669	0,312849	0,012235	0,345449	0,369922	0,007708
67	-0,00166	-0,07683	-0,00835	-0,06263	0,367418	-0,00167
68	$5,08 \cdot 10^{-5}$	0,00236	0,000231	0,001919	0,000438	$5,15 \cdot 10^{-5}$
69	-0,02728	-1,26431	-0,13742	-1,03066	6,046228	-0,02748
70	0,000834	0,038535	0,003788	0,031653	0,006877	0,00084
71	-0,00166	-0,07684	-0,00835	-0,06264	0,367476	-0,00167
72	$8,11 \cdot 10^{-5}$	0,003584	0,000273	0,003298	0,001886	$8,17 \cdot 10^{-5}$
73	$-3,34 \cdot 10^{-7}$	$-1,56 \cdot 10^{-5}$	$-1,69 \cdot 10^{-6}$	$-1,26 \cdot 10^{-5}$	$7,36 \cdot 10^{-5}$	$-3,37 \cdot 10^{-7}$
74	0,006204	0,303826	-0,04509	0,153688	0,300275	0,006256
75	$-5,50 \cdot 10^{-6}$	-0,00026	$-2,77 \cdot 10^{-5}$	-0,00021	0,001211	$-5,55 \cdot 10^{-6}$
76	0,001754	0,100029	-0,93563	0,072125	0,086015	0,001792
77	$-3,34 \cdot 10^{-7}$	$-1,56 \cdot 10^{-5}$	$-1,69 \cdot 10^{-6}$	$-1,26 \cdot 10^{-5}$	$7,36 \cdot 10^{-5}$	$-3,37 \cdot 10^{-7}$
78	0,002691	0,143828	-0,05121	0,128094	0,130523	0,002719
79	-0,00068	-0,03187	-0,00344	-0,02578	0,150147	-0,00069
80	0,005774	0,288144	0,020873	0,171095	0,278904	0,005827
81	-0,01123	-0,52451	-0,05656	-0,42422	2,470822	-0,01131
82	0,01058	0,482694	0,227952	0,393766	0,498369	0,010657
83	-0,00068	-0,03188	-0,00344	-0,02578	0,150171	-0,00069
84	0,003491	0,132018	0,017959	0,158093	0,169952	0,003557
85	-0,02854	-1,3335	-0,14381	-1,07854	6,281796	-0,02876
86	0,00087	0,040721	0,003977	0,032714	0,008582	0,000877
87	-0,46964	-21,9442	-2,36646	-17,7484	103,3733	-0,47329
88	0,014014	0,654937	0,06504	0,529614	0,126806	0,014124
89	-0,02854	-1,33372	-0,14383	-1,07871	6,282801	-0,02877

90	0,000863	0,040186	0,003968	0,032701	0,008242	0,00087
91	$-2,36.10^{-7}$	$-1,29.10^{-5}$	$-1,19.10^{-6}$	$-8,94.10^{-6}$	$4,39.10^{-5}$	$-2,38.10^{-7}$
92	0,002264	0,116539	0,006783	0,067359	0,111284	0,002318
93	$-3,88.10^{-6}$	-0,00021	$-1,96.10^{-5}$	-0,00015	0,000723	$-3,92.10^{-6}$
94	0,00289	0,145847	-0,05392	0,118175	0,139437	0,002905
95	$-2,36.10^{-7}$	$-1,29.10^{-5}$	$-1,19.10^{-6}$	$-8,94.10^{-6}$	$4,40.10^{-5}$	$-2,38.10^{-7}$
96	0,004044	0,209581	-0,00482	0,184625	0,196633	0,004097
97	-0,00048	-0,02638	-0,00243	-0,01824	0,089638	-0,00049
98	0,006516	0,333149	0,01032	0,195522	0,312254	0,006505
99	-0,00792	-0,43418	-0,04002	-0,30016	1,475084	-0,008
100	0,002832	0,144786	0,018039	0,067816	0,137176	0,00286
101	-0,00048	-0,02639	-0,00243	-0,01824	0,089652	-0,00049
102	-0,00244	-0,12171	-0,00288	-0,10651	-0,1136	-0,00237
103	-0,02013	-1,10385	-0,10175	-0,76312	3,750239	-0,02035
104	0,00064	0,035023	0,00312	0,024063	0,03079	0,000647
105	-0,33123	-18,165	-1,67438	-12,5578	61,71395	-0,33488
106	0,010112	0,554727	0,050744	0,383221	0,486455	0,010224
107	-0,02013	-1,10403	-0,10177	-0,76324	3,750839	-0,02035
108	0,000603	0,033134	0,003068	0,022797	0,029022	0,00061

Tabela A.4 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno linear ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS2-2.

f_i	a	b	c	d	e	f
1	$-1,55.10^{-12}$	$-3,88.10^{-8}$	$-4,22.10^{-9}$	$-3,17.10^{-8}$	$-8,71.10^{-8}$	$-8,44.10^{-10}$
2	$-6,39.10^{-6}$	-0,323431	0,002625238	-0,241801	-0,384075317	-0,008002
3	$-4,05.10^{-10}$	$-1,01.10^{-5}$	$-1,10.10^{-6}$	$-8,24.10^{-6}$	$-2,27.10^{-5}$	$-2,20.10^{-7}$
4	$3,42.10^{-6}$	0,02060965	-0,633978635	0,191452	0,098468906	0,002051
5	$-4,05.10^{-10}$	$-1,01.10^{-5}$	$-1,10.10^{-6}$	$-8,24.10^{-6}$	$-2,27.10^{-5}$	$-2,20.10^{-7}$
6	$4,70.10^{-6}$	0,13742281	-0,640068375	0,091936	0,236668187	0,004931
7	$-1,56.10^{-12}$	$-3,89.10^{-8}$	$-4,23.10^{-9}$	$-3,17.10^{-8}$	$-8,73.10^{-8}$	$-8,46.10^{-10}$
8	$-6,07.10^{-6}$	-0,2671638	-0,000780619	-0,295946	-0,316585174	-0,006596
9	$-2,31.10^{-9}$	$-5,77.10^{-5}$	$-6,28.10^{-6}$	$-4,71.10^{-5}$	-0,000129534	$-1,26.10^{-6}$
10	$1,17.10^{-6}$	0,24665911	0,009635198	0,182527	0,291330702	0,006069
11	$-6,02.10^{-7}$	-0,0150356	-0,001634238	-0,012257	-0,033735039	-0,000327
12	$5,44.10^{-6}$	0,56700079	0,141042346	0,450944	0,682801932	0,014231
13	$-6,02.10^{-7}$	-0,0150368	-0,001634367	-0,012258	-0,03373771	-0,000327
14	$1,45.10^{-5}$	0,36725113	0,133747685	0,394851	0,44654513	0,009309
15	$-2,31.10^{-9}$	$-5,78.10^{-5}$	$-6,29.10^{-6}$	$-4,71.10^{-5}$	-0,000129752	$-1,26.10^{-6}$
16	$5,99.10^{-6}$	0,13781312	0,00567253	0,152271	0,162746926	0,003391
17	$-1,47.10^{-7}$	-0,0036833	-0,000400346	-0,003003	-0,008264209	$-8,01.10^{-5}$
18	$1,06.10^{-8}$	0,00128311	$4,15.10^{-5}$	0,000959	0,001428496	$3,13.10^{-5}$
19	$-3,84.10^{-5}$	-0,9592658	-0,104263669	-0,781978	-2,152280592	-0,020853
20	$1,19.10^{-6}$	0,03185468	0,000246595	0,025858	0,014819279	0,0007
21	$-3,84.10^{-5}$	-0,9593418	-0,104271923	-0,782039	-2,152450985	-0,020854
22	$1,23.10^{-6}$	0,03092888	0,000214266	0,025619	0,013722498	0,000677
23	$-1,48.10^{-7}$	-0,0036895	-0,00040102	-0,003008	-0,008278116	$-8,02.10^{-5}$
24	$3,26.10^{-8}$	0,00078033	$2,40.10^{-5}$	0,00083	0,000834014	$1,89.10^{-5}$
25	$-2,72.10^{-11}$	$-7,01.10^{-7}$	$-7,53.10^{-8}$	$-5,65.10^{-7}$	$-1,59.10^{-6}$	$-1,51.10^{-8}$
26	$1,06.10^{-5}$	0,32267817	-0,030490404	0,149381	0,277191036	0,005775
27	$-7,09.10^{-9}$	-0,0001826	$-1,96208.10^{-5}$	-0,000147	-0,000413371	$-3,92.10^{-6}$
28	$2,70.10^{-6}$	0,26318288	-11,08802627	0,124954	0,181674791	0,003785
29	$-7,09.10^{-9}$	-0,0001826	$-1,96224.10^{-5}$	-0,000147	-0,000413404	$-3,92.10^{-6}$
30	$3,34.10^{-6}$	0,26741592	-11,08681138	0,17687	0,201655637	0,004201
31	$-2,73.10^{-11}$	$-7,02.10^{-7}$	$-7,55.10^{-8}$	$-5,66.10^{-7}$	$-1,59.10^{-6}$	$-1,51.10^{-8}$
32	$4,80.10^{-6}$	0,21372493	-0,031847878	0,172448	0,171876523	0,003581
33	$-4,05.10^{-8}$	-0,0010428	-0,00011205	-0,00084	-0,002360765	$-2,24.10^{-5}$
34	$5,69.10^{-6}$	0,22796417	0,015072997	0,154034	0,252232514	0,005255
35	$-1,05.10^{-5}$	-0,2715718	-0,029181557	-0,218862	-0,614823486	-0,005836
36	$1,71.10^{-5}$	0,34552732	2,045388051	0,243473	0,385227689	0,008133
37	$-1,05.10^{-5}$	-0,2715933	-0,029183867	-0,218879	-0,61487216	-0,005837
38	$1,51.10^{-5}$	0,43997719	2,047352071	0,422254	0,444817245	0,009375
39	$-4,05.10^{-8}$	-0,0010445	-0,000112238	-0,000842	-0,002364738	$-2,24.10^{-5}$
40	$3,56.10^{-6}$	0,26021244	0,01565309	0,249758	0,264854538	0,005518
41	$-2,58.10^{-6}$	-0,066528	-0,007148724	-0,053615	-0,15061579	-0,00143
42	$9,99.10^{-8}$	0,00297753	$5,36.10^{-5}$	0,002295	0,001892693	$6,58.10^{-5}$
43	-0,000672	-17,326158	-1,861770469	-13,96328	-39,22546712	-0,372354
44	$2,05.10^{-5}$	0,53350444	0,006195964	0,429764	0,221148963	0,011468

45	-0,000673	-17,32753	-1,861917862	-13,96438	-39,22857254	-0,372384
46	$2,05 \cdot 10^{-5}$	0,53397797	0,0062044	0,430604	0,221436483	0,011474
47	$-2,59 \cdot 10^{-6}$	-0,06664	-0,007160754	-0,053706	-0,150869249	-0,001432
48	$9,28 \cdot 10^{-8}$	0,00317282	$5,71 \cdot 10^{-5}$	0,002732	0,001997198	$6,80 \cdot 10^{-5}$
49	$-1,92 \cdot 10^{-11}$	$-8,19 \cdot 10^{-7}$	$-7,52 \cdot 10^{-8}$	$-5,64 \cdot 10^{-7}$	$-2,06 \cdot 10^{-6}$	$-1,50 \cdot 10^{-8}$
50	$6,20 \cdot 10^{-6}$	0,49695519	0,005031877	0,290641	0,466545728	0,00972
51	$-5,01 \cdot 10^{-9}$	-0,0002133	$-1,96 \cdot 10^{-5}$	-0,000147	-0,000537579	$-3,91 \cdot 10^{-6}$
52	$4,85 \cdot 10^{-6}$	0,117083	-0,685211682	-0,005037	0,160374483	0,003341
53	$-5,01 \cdot 10^{-9}$	-0,0002133	$-1,96 \cdot 10^{-5}$	-0,000147	-0,000537622	$-3,91 \cdot 10^{-6}$
54	$5,28 \cdot 10^{-6}$	0,02438714	-0,675903412	0,174252	0,073634744	0,001534
55	$-1,93 \cdot 10^{-11}$	$-8,20 \cdot 10^{-7}$	$-7,53 \cdot 10^{-8}$	$-5,65 \cdot 10^{-7}$	$-2,07 \cdot 10^{-6}$	$-1,51 \cdot 10^{-8}$
56	$6,05 \cdot 10^{-6}$	0,44029037	0,009935849	0,387257	0,412780304	0,0086
57	$-2,86 \cdot 10^{-8}$	-0,0012179	-0,000111784	-0,000838	-0,003070121	$-2,24 \cdot 10^{-5}$
58	$5,21 \cdot 10^{-6}$	0,08205371	0,002436161	0,048046	0,077115315	0,001607
59	$-7,46 \cdot 10^{-6}$	-0,3171878	-0,029112349	-0,218343	-0,799563799	-0,005822
60	$9,35 \cdot 10^{-6}$	0,02636399	0,127432664	0,00438	0,028956408	0,000681
61	$-7,46 \cdot 10^{-6}$	-0,3172129	-0,029114653	-0,21836	-0,799627099	-0,005823
62	$-2,38 \cdot 10^{-6}$	0,37118544	0,137331899	0,349134	0,351526405	0,007401
63	$-2,87 \cdot 10^{-8}$	-0,00122	-0,000111972	-0,00084	-0,003075288	$-2,24 \cdot 10^{-5}$
64	$-1,18 \cdot 10^{-6}$	0,26706814	0,007750908	0,234117	0,250065282	0,00521
65	$-1,83 \cdot 10^{-6}$	-0,0777028	-0,007131769	-0,053488	-0,195872369	-0,001426
66	$7,93 \cdot 10^{-8}$	0,00269969	0,000216333	0,001828	0,001484802	$4,99 \cdot 10^{-5}$
67	-0,000476	-20,236442	-1,857354993	-13,93016	-51,01181759	-0,371471
68	$1,48 \cdot 10^{-5}$	0,62673267	0,054358081	0,431337	0,315010534	0,011504
69	-0,000476	-20,238044	-1,857502036	-13,93127	-51,01585611	-0,3715
70	$1,48 \cdot 10^{-5}$	0,62836773	0,054405947	0,432914	0,316518622	0,011536
71	$-1,83 \cdot 10^{-6}$	-0,0778335	-0,007143771	-0,053578	-0,196201987	-0,001429
72	$5,04 \cdot 10^{-8}$	0,0035572	0,000240173	0,002664	0,002284957	$6,66 \cdot 10^{-5}$
73	$-9,59 \cdot 10^{-10}$	$-4,43 \cdot 10^{-8}$	$-4,81 \cdot 10^{-9}$	$-3,61 \cdot 10^{-8}$	$2,11 \cdot 10^{-7}$	$-9,63 \cdot 10^{-10}$
74	-0,003941	-0,1593849	-0,000669913	-0,121612	-0,190999134	-0,003979
75	$-2,50 \cdot 10^{-7}$	$-1,15 \cdot 10^{-5}$	$-1,25 \cdot 10^{-6}$	$-9,40 \cdot 10^{-6}$	$5,50 \cdot 10^{-5}$	$-2,51 \cdot 10^{-7}$
76	0,002111	0,04966037	0,055801145	0,140099	0,101781656	0,00212
77	$-2,50 \cdot 10^{-7}$	$-1,15 \cdot 10^{-5}$	$-1,25 \cdot 10^{-6}$	$-9,40 \cdot 10^{-6}$	$5,50 \cdot 10^{-5}$	$-2,51 \cdot 10^{-7}$
78	0,002902	0,08224409	0,064744877	0,055065	0,140397125	0,002925
79	$-9,60 \cdot 10^{-10}$	$-4,44 \cdot 10^{-8}$	$-4,82 \cdot 10^{-9}$	$-3,62 \cdot 10^{-8}$	$2,11 \cdot 10^{-7}$	$-9,64 \cdot 10^{-10}$
80	-0,003743	-0,1523421	0,003927992	-0,168833	-0,181173081	-0,003774
81	$-1,43 \cdot 10^{-6}$	$-6,58 \cdot 10^{-5}$	$-7,16 \cdot 10^{-6}$	$-5,37 \cdot 10^{-5}$	0,000313828	$-1,43 \cdot 10^{-6}$
82	0,000725	0,03101033	0,001208625	0,022386	0,036176473	0,000754
83	-0,000371	-0,0171487	-0,001863937	-0,01398	0,081731563	-0,000373
84	0,003355	0,13473481	-0,004041715	0,119349	0,163837923	0,003423
85	-0,000371	-0,0171501	-0,001864085	-0,013981	0,081738034	-0,000373
86	0,008924	0,3597769	0,004027559	0,386958	0,430032384	0,008969
87	$-1,43 \cdot 10^{-6}$	$-6,60 \cdot 10^{-5}$	$-7,17 \cdot 10^{-6}$	$-5,38 \cdot 10^{-5}$	0,000314356	$-1,43 \cdot 10^{-6}$
88	0,003693	0,15072971	0,005526742	0,166636	0,17803462	0,003709
89	$-9,09 \cdot 10^{-5}$	-0,004201	-0,000456616	-0,003425	0,020022111	$-9,13 \cdot 10^{-5}$
90	$6,56 \cdot 10^{-6}$	0,00028839	$2,04 \cdot 10^{-5}$	0,000222	0,000209232	$6,71 \cdot 10^{-6}$
91	-0,023685	-1,09408	-0,118918369	-0,891888	5,214437672	-0,023784
92	0,000731	0,03370988	0,003840191	0,02749	0,005868566	0,000734
93	-0,023687	-1,0941666	-0,118927784	-0,891958	5,21485049	-0,023786
94	0,000756	0,03473296	0,003875883	0,028724	0,007075996	0,00076
95	$-9,11 \cdot 10^{-5}$	-0,0042081	-0,000457385	-0,00343	0,020055804	$-9,15 \cdot 10^{-5}$

96	$2,01 \cdot 10^{-5}$	0,00083561	$3,94 \cdot 10^{-5}$	0,000887	0,000856824	$2,02 \cdot 10^{-5}$
97	$-1,68 \cdot 10^{-8}$	$-7,82 \cdot 10^{-7}$	$-8,43 \cdot 10^{-8}$	$-6,32 \cdot 10^{-7}$	$3,67 \cdot 10^{-6}$	$-1,69 \cdot 10^{-8}$
98	0,00656	0,32816409	0,013452443	0,162451	0,31620108	0,006588
99	$-4,37 \cdot 10^{-6}$	-0,0002036	$-2,20 \cdot 10^{-5}$	-0,000165	0,000955669	$-4,39 \cdot 10^{-6}$
100	0,001668	0,11700289	0,811133403	0,064051	0,080929792	0,001686
101	$-4,37 \cdot 10^{-6}$	-0,0002036	$-2,20 \cdot 10^{-5}$	-0,000165	0,000955745	$-4,39 \cdot 10^{-6}$
102	0,002058	0,13335052	0,809447095	0,078826	0,099756041	0,002078
103	$-1,68 \cdot 10^{-8}$	$-7,83 \cdot 10^{-7}$	$-8,44 \cdot 10^{-8}$	$-6,33 \cdot 10^{-7}$	$3,68 \cdot 10^{-6}$	$-1,69 \cdot 10^{-8}$
104	0,002962	0,16127239	0,008694508	0,149432	0,142996313	0,002979
105	$-2,50 \cdot 10^{-5}$	-0,0011627	-0,000125378	-0,00094	0,005457837	$-2,51 \cdot 10^{-5}$
106	0,003512	0,17084952	0,00408412	0,100572	0,169751749	0,003537
107	-0,006503	-0,3028032	-0,032652668	-0,244895	1,42140604	-0,006531
108	0,010548	0,50074323	-0,128491283	0,364135	0,500438812	0,010587
109	-0,006503	-0,3028271	-0,032655253	-0,244914	1,42151857	-0,006531
110	0,009302	0,40282283	-0,130320312	0,373827	0,440915262	0,009346
111	$-2,50 \cdot 10^{-5}$	-0,0011646	-0,000125589	-0,000942	0,005467021	$-2,51 \cdot 10^{-5}$
112	0,002196	0,08831625	0,002457189	0,102277	0,106651658	0,002223
113	-0,001593	-0,0741789	-0,007999056	-0,059993	0,348207572	-0,0016
114	$6,17 \cdot 10^{-5}$	0,00290224	0,000274644	0,002212	0,001085044	$6,20 \cdot 10^{-5}$
115	-0,41488	-19,318708	-2,083225831	-15,62419	90,68507823	-0,416645
116	0,012648	0,58914487	0,066958226	0,476204	0,117601773	0,012703
117	-0,414913	-19,320237	-2,083390757	-15,62543	90,69225761	-0,416678
118	0,012644	0,58874555	0,066955587	0,476284	0,117339675	0,012698
119	-0,001596	-0,0743037	-0,008012517	-0,060094	0,348793543	-0,001603
120	$5,73 \cdot 10^{-5}$	0,00260014	0,000269368	0,002231	0,000871336	$5,76 \cdot 10^{-5}$
121	$-1,19 \cdot 10^{-8}$	$-6,48 \cdot 10^{-7}$	$-5,97 \cdot 10^{-8}$	$-4,48 \cdot 10^{-7}$	$2,19 \cdot 10^{-6}$	$-1,19 \cdot 10^{-8}$
122	0,003824	0,19624153	0,007276153	0,114177	0,185764107	0,00387
123	$-3,09 \cdot 10^{-6}$	-0,0001688	$-1,56 \cdot 10^{-5}$	-0,000117	0,000570708	$-3,11 \cdot 10^{-6}$
124	0,002994	0,14048076	0,058456443	0,065247	0,144486352	0,00301
125	$-3,09 \cdot 10^{-6}$	-0,0001688	$-1,56 \cdot 10^{-5}$	-0,000117	0,000570753	$-3,11 \cdot 10^{-6}$
126	0,003256	0,15354176	0,047525389	0,171838	0,156643103	0,003263
127	$-1,19 \cdot 10^{-8}$	$-6,49 \cdot 10^{-7}$	$-5,98 \cdot 10^{-8}$	$-4,49 \cdot 10^{-7}$	$2,20 \cdot 10^{-6}$	$-1,20 \cdot 10^{-8}$
128	0,003732	0,1925378	0,001141108	0,170469	0,181095102	0,003773
129	$-1,77 \cdot 10^{-5}$	-0,0009639	$-8,88 \cdot 10^{-5}$	-0,000666	0,00325932	$-1,78 \cdot 10^{-5}$
130	0,003217	0,16500702	0,004508539	0,096682	0,154778221	0,003225
131	-0,0046	-0,2510305	-0,023137014	-0,173528	0,848837511	-0,004627
132	0,005771	0,29242193	$4,62 \cdot 10^{-5}$	0,172864	0,277103162	0,005774
133	-0,0046	-0,2510503	-0,023138846	-0,173541	0,848904712	-0,004628
134	-0,001466	-0,0772586	-0,010489248	-0,064097	-0,068739151	-0,001431
135	$-1,77 \cdot 10^{-5}$	-0,0009655	$-8,90 \cdot 10^{-5}$	-0,000667	0,003264804	$-1,78 \cdot 10^{-5}$
136	-0,000728	-0,0363118	-0,001216209	-0,03141	-0,033756881	-0,000703
137	-0,001127	-0,0614959	-0,005667968	-0,04251	0,207943149	-0,001134
138	$4,89 \cdot 10^{-5}$	0,00262629	0,000196298	0,00174	0,002345627	$4,92 \cdot 10^{-5}$
139	-0,293464	-16,015633	-1,476131276	-11,07098	54,15545867	-0,295226
140	0,009137	0,49866926	0,046084948	0,344475	0,437276057	0,009191
141	-0,293487	-16,016901	-1,476248138	-11,07186	54,15974607	-0,29525
142	0,009104	0,49702233	0,046042309	0,343406	0,43573312	0,009159
143	-0,001129	-0,0615994	-0,005677506	-0,042581	0,20829308	-0,001136
144	$3,11 \cdot 10^{-5}$	0,00171556	0,000171522	0,00115	0,00149302	$3,14 \cdot 10^{-5}$

Tabela A.5 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno de ordem zero ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS3-1.

f_i	a	f_i	a	f_i	a	f_i	a	f_i	a
1	$-8,78.10^{-13}$	45	14,8586	89	13,0089	133	-0,00726	177	0,34775
2	-36,751537	46	$-8,47.10^{-11}$	90	15,1948	134	0,012260	178	-0,6907
3	-42,854512	47	12,6898	91	-0,0007	135	0,014768	179	0,14747
4	$-5,4.10^{-10}$	48	14,7971	92	24,1440	136	-4,54936	180	0,21821
5	16,5798326	49	-0,00027	93	28,1534	137	0,316405	181	$-1,5.10^{-10}$
6	19,3330863	50	17,6229	94	-0,0003	138	0,664463	182	23,9780
7	$-1,5.10^{-12}$	51	20,5495	95	21,2484	139	-0,01285	183	27,9598
8	0,78408842	52	-0,1718	96	24,7770	140	0,098655	184	-1.10^{-7}
9	0,91429446	53	38,284	97	-1,1159	141	0,115873	185	13,2684
10	$-6,4.10^{-13}$	54	44,666	98	0,14009	142	-0,00535	186	15,4718
11	0,582285	55	-0,00048	99	0,26715	143	0,086218	187	$-2,8.10^{-10}$
12	0,67897948	56	29,0517	100	-698,79	144	0,100884	188	17,7302
13	$-2,098.10^{-6}$	57	33,8761	101	29,9738	145	$-1,5.10^{-10}$	189	20,6745
14	4,45337001	58	-0,0002	102	99,9464	146	29,86072	190	$-1,1.10^{-10}$
15	5,19289875	59	25,833	103	-1,9752	147	34,81940	191	16,7133
16	-0,001314	60	30,123	104	0,21285	148	$-9,70.10^{-8}$	192	19,4887
17	32,5696933	61	-0,6939	105	0,43191	149	12,75791	193	-0,0003
18	37,9784194	62	0,10363	106	-0,8232	150	14,87649	194	12,2228
19	$-3,71.10^{-6}$	63	0,2195	107	0,14808	151	$-2,7.10^{-10}$	195	14,2526
20	29,4873979	64	-434,54	108	0,24924	152	8,763068	196	-0,2390
21	34,3840877	65	14,3659	109	$-1,2.10^{-12}$	153	10,21826	197	19,5207
22	$-1,54.10^{-6}$	66	78,542	110	-27,596	154	$-1,1.10^{-10}$	198	22,7965
23	25,8364233	67	-1,2282	111	-32,179	155	17,54289	199	-0,0006
24	30,1268305	68	0,19725	112	$-7,5.10^{-10}$	156	20,45607	200	25,6105
25	-0,0053054	69	0,40467	113	7,34933	157	-0,00037	201	29,8634
26	0,02839765	70	-0,5119	114	8,56977	158	15,2488	202	-0,0002
27	0,03387869	71	0,15577	115	$-2,1.10^{-12}$	159	17,78113	203	22,7391
28	-3,3221181	72	0,25443	116	2,91826	160	-0,23189	204	26,5152
29	0,2497324	73	$-1,84.10^{-10}$	117	3,40286	161	38,11162	205	-0,9649
30	0,77042039	74	52,1889	118	$-8,8.10^{-13}$	162	44,45598	206	0,09501
31	-0,0093902	75	60,8554	119	2,55618	163	-0,00065	207	0,24869
32	0,16114072	76	$-1,15.10^{-7}$	120	2,98066	164	21,95014	208	-604,25
33	0,18925436	77	-1,5679	121	$-2,8.10^{-6}$	165	25,59523	209	20,5431
34	-0,0039138	78	-1,8283	122	1,64772	166	-0,00027	210	110,303
35	0,14110043	79	$-3,26.10^{-10}$	123	1,92134	167	21,60217	211	-1,7079
36	0,16509619	80	31,7276	124	-0,0017	168	25,18946	212	0,19566
37	$-1,14.10^{-10}$	81	36,9963	125	19,6162	169	-0,93630	213	0,47222
38	27,1128674	82	$-1,36.10^{-10}$	126	22,8738	170	0,112424	214	-0,7118
39	31,6152413	83	28,1351	127	-5.10^{-6}	171	0,193786	215	0,14598
40	$-7,19.10^{-8}$	84	32,807	128	18,0170	172	-586,286	216	0,27195
41	23,9691367	85	-0,00044	129	21,0089	173	29,98588		
42	27,9494613	86	18,2206	130	$-2,1.10^{-6}$	174	74,22196		
43	$-2,03.10^{-10}$	87	21,2463	131	15,8008	175	-1,65717		
44	12,7425703	88	-0,2763	132	18,4247	176	0,203069		

Tabela A.6 – Valores das constantes de Takagi-Sugeno de ordem zero ajustados pelo ANFIS da rede ANFIS3-2.

f_i	a								
1	$-3,1.10^{-14}$	59	18,204	117	-0,30405	175	10,0769	233	-87,723
2	-34,6775	60	22,59	118	9,283827	176	12,5094	234	4,05617
3	-36,3337	61	$-1,8.10^{-12}$	119	9,836604	177	-0,0212	235	13,0267
4	-45,1043	62	13,74	120	12,14171	178	0,02612	236	12,1514
5	-1.10^{-11}	63	14,398	121	-0,04916	179	0,02930	237	-1,1652
6	19,18050	64	17,87	122	23,87115	180	0,03551	238	0,19325
7	20,09651	65	-0,0005	123	25,02886	181	-7,1557	239	0,31907
8	24,94762	66	18,55	124	31,05937	182	0,46449	240	0,34270
9	$-1,7.10^{-12}$	67	19,437	125	-0,00065	183	1,13977	241	$-3,8.10^{-12}$
10	2,215833	68	24,12	126	17,29222	184	1,12311	242	22,4595
11	2,321655	69	-0,18	127	18,11828	185	-1,1569	243	23,5321
12	2,882081	70	36,09	128	22,49172	186	0,20556	244	29,2126
13	$-2,3.10^{-14}$	71	37,91	129	-1,62853	187	0,32098	245	$-1,3.10^{-9}$
14	-6,44339	72	47,006	130	0,081947	188	0,35128	246	12,0274
15	-6,75111	73	-0,029	131	0,671840	189	-0,0153	247	12,6018
16	-8,38077	74	32,18	132	0,462575	190	0,08638	248	15,6438
17	$-6,8.10^{-6}$	75	33,73	133	-548,599	191	0,09191	249	-2.10^{-10}
18	5,648925	76	41,87	134	-28,3830	192	0,11347	250	17,4764
19	5,918707	77	-0,00038	135	167,6579	193	$-4,10^{-12}$	251	18,3110
20	7,347424	78	19,79	136	83,00305	194	28,6240	252	22,7312
21	-0,00230	79	20,74	137	-88,6989	195	29,9910	253	$-2,7.10^{-12}$
22	31,03840	80	25,74	138	-4,39440	196	37,2306	254	14,1375
23	32,52194	81	-0,96	139	27,31132	197	$-1,4.10^{-9}$	255	14,8127
24	40,37171	82	0,0407	140	13,67332	198	12,5195	256	18,3884
25	-0,00037	83	0,547	141	-1,17824	199	13,1174	257	-0,0008
26	30,25242	84	0,381	142	0,088419	200	16,2838	258	12,4263
27	31,69739	85	-324,5	143	0,516597	201	$-2,2.10^{-10}$	259	13,0200
28	39,34873	86	-36,1	144	0,372561	202	11,0910	260	16,1628
29	$-4,9.10^{-6}$	87	132,1	145	$-5,4.10^{-14}$	203	11,6207	261	-0,2782
30	16,68460	88	63,76	146	-24,0462	204	14,4258	262	16,9106
31	17,48141	89	-52,4	147	-25,1946	205	$-2,9.10^{-12}$	263	17,8196
32	21,70126	90	-5,60	148	-31,2763	206	18,2316	264	22,0661
33	-0,01235	91	21,6	149	$-1,8.10^{-11}$	207	19,1023	265	-0,0449
34	0,053475	92	10,61	150	7,716958	208	23,7135	266	25,5919
35	0,062626	93	-0,697	151	8,085500	209	-0,0008	267	26,8305
36	0,073865	94	0,093	152	10,03726	210	15,8676	268	33,2983
37	-4,16315	95	0,462	153	$-2,9.10^{-12}$	211	16,6255	269	-0,0005
38	-0,25178	96	0,359	154	4,606385	212	20,6387	270	16,5039
39	1,958575	97	$-4,1.10^{-12}$	155	4,826373	213	-0,3007	271	17,2923
40	1,124624	98	54,92	156	5,991414	214	36,6972	272	21,4663
41	-0,67311	99	57,54	157	$-3,9.10^{-14}$	215	38,4798	273	-1,4903
42	0,183868	100	71,43	158	-1,91432	216	47,7547	274	0,02632
43	0,551969	101	$-1,4.10^{-9}$	159	-2,00574	217	-0,0486	275	0,57068
44	0,473933	102	-7,99	160	-2,48991	218	25,8674	276	0,41376

45	-0,00894	103	-8,37227	161	$-1,2 \cdot 10^{-5}$	219	27,1076	277	-502,05
46	0,148163	104	-10,3932	162	2,4753	220	33,6490	278	-26,627
47	0,160012	105	$-2,2 \cdot 10^{-10}$	163	2,5936	221	-0,0006	279	155,052
48	0,195831	106	29,0993	164	3,219	222	17,0971	280	93,2161
49	$-2,45 \cdot 10^{-12}$	107	30,489	165	-0,0039	223	17,9136	281	-81,173
50	26,48193	108	37,848	166	17,6241	224	22,2378	282	-4,1040
51	27,74663	109	$-3 \cdot 10^{-12}$	167	18,466	225	-1,6106	283	25,2800
52	34,44441	110	28,319	168	22,923	226	0,18900	284	15,3330
53	$-8,25 \cdot 10^{-10}$	111	29,672	169	-0,0006	227	0,35917	285	-1,0782
54	24,07346	112	36,834	170	17,571	228	0,37207	286	0,08668
55	25,22314	113	-0,0009	171	18,410	229	-542,56	287	0,48375
56	31,31177	114	19,7109	172	22,854	230	23,9974	288	0,38733
57	$-1,33 \cdot 10^{-10}$	115	20,6525	173	$-8,5 \cdot 10^{-6}$	231	79,4278		
58	17,37441	116	25,637	174	9,6176	232	73,7386		
