

UNIVERSITATEA TEHNICĂ
"GHEORGHE ASACHI" DIN IAȘI
Facultatea de Inginerie Chimică și Protecția Mediului

STUDIUL TRANSFERULUI DE
MASĂ ÎN PROCESE DE
SUBLIMARE

Conducător de doctorat:

Prof. Dr. Ing. Curteanu Silvia

Doctorand:

Ing. Smărândoiu Cristina-Mirela

IAȘI -2015

UNIVERSITATEA TEHNICĂ "GHEORGHE ASACHI" DIN IAȘI
RECTORATUL

Către

Vă facem cunoscut că, în ziua de 04.12.2015 la ora 10.00 în Sala de Consiliu a Facultatii de Inginerie Chimica si Protectia Mediului Iasi, va avea loc susținerea publică a tezei de doctorat intitulată:

"STUDIUL TRANSFERULUI DE MASA IN PROCESE DE SUBLIMARE"

elaborată de doamna **MUNTEANU CRISTINA-MIRELA (SMARANDOIU)** în vederea conferirii titlului științific de doctor.

Comisia de doctorat este alcătuită din:

- | | |
|---|------------------------|
| 1. Prof. Dr. Ing. Dan Cascaval, Univ. Tehnica Gheorghe Asachi Iasi | președinte |
| 2. Prof. Dr. Ing. Silvia Curteanu, Univ. Tehnica Gheorghe Asachi Iasi | conducător de doctorat |
| 3. Conf. Dr. Ch. Ionel Humelnicu, Univ. Al. I. Cuza Iasi | referent oficial |
| 4. CPI Dr. Maria Cazacu, Institutul de Chimie Macromoleculara Petru Poni Iasi | referent oficial |
| 5. Conf. Dr. Ing. Gabriela Lisa, Univ. Tehnica Gheorghe Asachi Iasi | referent oficial |

Cu această ocazie vă invităm să participați la susținerea publică a tezei de doctorat.

RECTOR,

Prof.univ.dr.ing. **ION GIURMA**



Secretar universitate,

Cristina Nagiț
Ing. Cristina Nagiț

Mulțumiri

Cele mai calde mulțumiri și maximă recunoștință domnului Prof. Univ. Dr. Ing. Petrescu Stelian pentru încrederea acordată în acești ani, în care cu suflet, competență și exigență m-a îndrumat în realizarea acestor lucrări. Mulțumiri pentru formarea mea ca inginer chimist și ca om.

Alese gânduri de mulțumire și recunoștință doamnei Prof. Univ. Dr. Ing. Curteanu Silvia pentru susținerea și ajutorul acordat în vederea definitivării acestei lucrări și în formarea mea științifică.

Deosebite mulțumiri pe această cale cadrelor didactice de la Departamentul de Inginerie Chimică a Facultății de Inginerie Chimică și Protecția Mediului Iași: Conf. Dr. Ing. Horoba Liliana, Prof. Dr. Ing. Ioan Mămăligă, Șef lucrări Dr. Ing. Eugenia Iacob-Tudosă, Șef lucrări Dr. Ing. Lisă Cătălin, Ing. Florin Leon, Conf. Dr. Ing. Lisă Gabriela, pentru sprijinul acordat în modelarea proceselor de transfer de masă în sublimare și pentru colaborare pe parcursul perioadei de doctorat.

Mulțumiri prietenilor și colegilor de doctorat pentru sprijin și încurajări.

Mulțumesc familiei pentru toată înțelegerea manifestată și sprijinul acordat în decursul acestor ani.

CUPRINS

Capitolul 1. INTRODUCERE	1
1.1. <i>Obiectivele tezei</i>	1
1.2. <i>Structura tezei</i>	8
Capitolul 2. ASPECTE TEORETICE REFERITOARE LA SUBLIMARE	10
2.1. <i>Aspecte generale privind sublimarea si liofilizarea</i>	10
2.2. <i>Coeficienții de transfer de căldură și masă în sublimare și liofilizare</i>	19
2.3. <i>Determinarea coeficientului de difuzie moleculară și a presiunii de vapori</i>	32
2.4. <i>Transfer de căldură și masă pentru obiecte geometrice complexe</i>	38
Capitolul 3. ASPECTE TEORETICE DESPRE REȚELELE NEURONALE ARTIFICIALE ȘI ALGORITMI EVOLUTIVI. APLICAȚII ÎN INGINERIA CHIMICĂ	
3.1. <i>Rețele neuronale- aspecte generale</i>	49
3.1.1. <i>Tipuri de rețele neuronale</i>	50
3.1.2. <i>Perceptronul multistrat</i>	52
3.1.3. <i>Rețele feed forward generalizate</i>	55
3.1.4. <i>Rețele feed forward modulare</i>	56
3.1.5. <i>Rețele Jordan și Elman</i>	56
3.1.6. <i>Rețele neuronale cu funcții de bază radiale</i>	57
3.1.7. <i>Rețele neuronale de tip Kohonen</i>	58
3.1.8. <i>Rețele neuronale artificiale recurente</i>	59
3.2. <i>Metode de determinare a topologiei unei rețele neuronale</i>	60
3.2.1. <i>Generalități</i>	60
3.2.2. <i>Tipuri de topologii</i>	61
3.2.3. <i>Metode de determinare a topologiei rețelelor neuronale</i>	62
3.2.3.1. <i>Metoda încercare și eroare</i>	63
3.2.3.2. <i>Metode empirice sau statistice</i>	64
3.2.3.3. <i>Metode destructive și constructive</i>	66

3.2.3.3.1. Metode destructive	66
3.2.3.3.2. Regularizarea	67
3.2.3.3.3. Metode constructive	68
3.2.3.4. Metode evolutive	71
3.3. Algoritmi evolutivi	75
3.3.1. Aspecte generale	75
3.3.2. Aplicații ale algoritmilor evolutivi în ingineria chimică	78
3.4. Modelarea proceselor din industria chimică folosind rețele neuronale	80
3.4.1. Modelarea directă a proceselor chimice folosind rețele neuronale	81
3.4.2. Monitorizarea proceselor chimice cu rețele neuronale	84
3.4.3. Modele inferențiale bazate pe rețele neuronale	86
3.4.4. Modelare cu rețele neuronale inverse	87
3.4.5. Reglarea proceselor chimice folosind modele neuronale	88
3.4.6. Proiectare moleculară cu rețele neuronale	89
3.4.7. Optimizarea proceselor chimice bazată pe modele neuronale	90
3.5. Optimizarea proceselor chimice cu algoritmi genetici	91
3.5.1. Optimizarea proceselor chimice cu un singur obiectiv	92
3.5.2. Optimizare multiobiectiv	92
3.5.3. Optimizare multiobiectiv realizată cu funcții scalare	94
3.6. Instrumente hibride- rețele neuronale și algoritmi genetici	96
Capitolul 4. STUDIUL EXPERIMENTAL AL TRANSFERULUI DE MASĂ ÎN PROCESSE DE SUBLIMARE	100
4.1. Sublimare la nivel de particulă individuală fără reacție chimică	100
4.1.1. Studiul cineticii sublimării la nivel de particulă sferică	100
4.1.2. Studiul cineticii sublimării la nivel de particulă cilindrică, paletă, tijă și pastilă	128
4.2. Studiul cineticii sublimării la nivel de particulă individuală în prezența reacției chimice ...	149
4.3. Concluzii parțiale	161
Capitolul 5. MODELAREA ȘI OPTIMIZAREA PROCESULUI DE TRANSFER DE MASĂ ÎN SUBLIMARE	163
5.1. Modelare fenomenologică	163

5.1.1. Sublimare la nivel de particulă individuală fără reacție chimică	163
5.2. <i>Modelare bazată pe rețele neuronale</i>	172
5.2.1. Modelarea sublimării particulelor sferice de naftalină cu rețele neuronale dezvoltate prin încercări succesive	172
5.2.1.1. Baza de date	172
5.2.1.2. Metodologia de modelare	173
5.2.1.3. Procesarea datelor experimentale	175
5.2.1.4. Rezultate de simulare (modelare)	175
5.2.2. Modelarea sublimării particulelor de naftalină cu rețele neuronale dezvoltate cu algoritmul evoluție diferențială	176
5.2.2.1. Metodologie de modelare	177
5.2.2.1.1. Algoritmul evoluție diferențială	177
5.2.2.1.2. Tehnica neuro-evolutivă	180
5.2.2.2. Rezultate de simulare	183
5.3. <i>Optimizarea procesului de sublimare folosind algoritmi evolutivi</i>	191
5.3.1. Metodologia de optimizare	191
5.3.1.1. Algoritm genetic simplu (AGS)	191
5.3.1.2. Algoritm genetic adaptiv	194
5.3.1.3. Tehnica neuro-evolutivă de optimizare (AG-RNA)	194
5.3.2. Rezultate de optimizare	195
5.4. <i>Concluzii parțiale</i>	197
CONCLUZII FINALE	199
Lista figurilor	206
Lista tabelelor	214
ACTIVITATEA ȘTIINȚIFICĂ ÎN CADRUL TEZEI DE DOCTORAT	217
BIBLIOGRAFIE	219

Introducere

Sublimarea este des întâlnită în industria chimică și nu numai. În 1946-1947, americanul E.W. Flasdorf a demonstrat că liofilizarea, procedeu deja cunoscut, poate fi aplicat în bune condiții și produselor alimentare: cafea, suc de portocale, carne ș.a. Cunoscut și sub denumirea de „criosublimare”, liofilizarea este un procedeu de deshidratare prin frig: apa îngheață mai repede decât celelalte componente și este eliminată sub formă de gheață. Tehnica aceasta a fost inventată de francezii Arsene d’Arsonval și F. Bordas la Paris, în 1906, și redescoperită de americanul Shackwell la Saint Louis, în 1909. Primele aplicații ale procedurii au fost în domeniul medical: BCG și penicilina au fost liofilizate. Un laborator elvețian a pus la punct, în 1934, liofilizarea cafelei (Nescafé). Abia în 1955 liofilizarea a intrat în industria alimentară, prin tratarea creveților în Texas și a crabilor în Maryland, SUA.

În industria chimică și farmaceutică, gheața carbonică este foarte des folosită în laboratoarele de cercetare datorită temperaturii foarte scăzute de aproximativ -78.5°C , în scopul încetinerii sau accelerării unor reacții chimice. Gheața carbonică este un foarte bun agent stabilizator pentru o varietate de produse farmaceutice și, fiind ușor de manevrat, se folosește și la transporturi speciale, unde este necesară o temperatură controlată, nefiind nevoie de răcire mecanică (coolere). Principala particularitate a gheții carbonice este că nu se topește ci sublimază (se evaporă), de aceea gheața carbonică este foarte eficientă în tehnologia șablării, folosită din ce în ce mai des și în România. Avantajul șablării cu gheață carbonică este că nu lasă în urmă reziduuri ca și în cazul șablării cu nisip sau alte metode de șablare clasice.

Inteligența artificială, unul dintre domeniile cu cea mai spectaculoasă dezvoltare, în special prin diversitatea aplicațiilor în care sunt folosite tehnicile sale, furnizează instrumente eficiente pentru modelarea și optimizarea proceselor chimice, cele mai utilizate fiind rețelele neuronale și algoritmi evolutivi.

Rețelele neuronale [Tiponuț și Căleanu, 2002] sunt instrumente utile modelării proceselor complexe, puternic neliniare, a căror cunoaștere nu este completă. Analiza modelării fenomenologice clasice pune în evidență dificultățile cu care se confruntă procesele chimice în modelarea matematică, dificultăți legate de constituirea și utilizarea modelului în optimizarea și conducerea automată. Astfel, în sistemele chimice sunt prezente reacții elementare complexe și

specii chimice numeroase, mecanismele de reacție sunt complicate sau neelucidate, constantele cinetice ce intervin sunt în număr mare și au valori incerte, modelele matematice sunt complicate și dificil de rezolvat. Ca urmare, este justificată necesitatea modelării bazată pe rețele neuronale, precum și numeroasele avantaje legate de această tehnică: accesibilitatea metodei din punct de vedere al dezvoltării și utilizării modelelor, evitarea cuantificării mecanismului de reacție, posibilitatea substituirii experimentelor pe bază de predicții, generalitatea metodei care nu este restricționată de tipul de proces.

Algoritmii evolutivi reprezintă strategii de optimizare, preferați datorită flexibilității lor, ușurinței în operare și perspectivei globale pe care o oferă.

Dificultățile legate de optimizarea unui proces chimic sunt determinate, în special, de natura multiobiectiv a problemelor, de metoda de soluționare sau de modelul matematic necesar procedurii de optimizare. Optimizarea proceselor chimice este, cel mai adesea, multiobiectivă, deoarece implică satisfacerea simultană a mai multor obiective, de multe ori contradictorii. Rezolvarea unei astfel de probleme se poate realiza vectorial, obiectivele de realizat fiind componentele unei funcții obiectiv vectoriale, sau scalar, obiectivele fiind combinate ponderat într-o funcție obiectiv scalară.

O procedură de optimizare necesită un model matematic corect pentru procesul studiat. Se pot utiliza modele fenomenologice, bazate pe cuantificarea legilor fizice și chimice ce guvernează sistemul, sau modele empirice, care lucrează cu seturi de date intrare-ieșire. Din acest punct de vedere, inteligența artificială oferă, în principal, două categorii de modele: conexioniste și simbolice. Modelele conexioniste sunt instrumente puternice de prelucrare a cunoștințelor, eficiente mai ales în situații în care percepția și reacția sunt fundamentale și unde regulile explicite nu pot fi aplicate în mod natural sau direct. Principiul care stă la baza constituirii acestor tipuri de modele este învățarea prin exemple, instrumentele reprezentative fiind **rețelele neuronale**.

Obiectivul general al tezei de doctorat “**Studiul transferului de masă în procese de sublimare**” este studiul sublimării prin experiment și simulare bazată pe instrumente ale inteligenței artificiale. Ca obiective specifice se pot enumera:

- Sistematizarea datelor existente în literatură referitoare la separarea solidelor prin sublimare;

- Caracterizarea substanțelor și materialelor utilizate la realizarea experimentelor (clorură de amoniu, naftalină);
- Conceperea și realizarea unei instalații de laborator pentru cercetări experimentale;
- Studiul cineticii procesului de separare a solidelor prin sublimarea cu antrenant:
 - determinarea experimentală a curbelor cinetice de variație a masei în funcție de timp;
 - determinarea gradului de sublimare și a vitezei de uscare în funcție de timp;
 - studiul influenței temperaturii și vitezei fazei gazoase asupra vitezei de sublimare;
 - modelarea cineticii procesului de sublimare bazată pe rețele neuronale;
- Studiul transferului de masă la separarea solidelor prin sublimare:
 - determinarea experimentală a coeficientului de transfer de masă al naftalinei;
 - studiul influenței parametrilor cinetici (temperatura și viteza fazei gazoase) asupra coeficientului de transfer de masă;
 - stabilirea unor ecuații criteriale pentru calculul coeficientului de transfer de masă;
- Studiul transferului de masă însoțit de reacție chimică la separarea solidelor prin sublimare:
 - cinetica procesului;
 - influența parametrilor cinetici (temperatură, dimensiunile particulelor și debitul de fază gazoasă) asupra gradului de sublimare și a vitezei procesului;
- Modelarea matematică a proceselor de separare prin sublimare:
 - elaborarea modelelor matematice fenomenologice pentru separarea prin sublimare;
 - dezvoltarea de modele neuronale, determinate prin metoda încercărilor succesive, pentru sublimarea particulelor sferice de naftalină;
 - proiectarea de modele neuronale optime folosind algoritmi evolutivi pentru sublimarea particulelor de naftalină, de diferite forme și dimensiuni.
- Optimizarea procesului de sublimare:
 - elaborarea unei proceduri AGA – RNA (algoritm genetic adaptiv și model rețea neuronală) pentru determinarea condițiilor de lucru optime care realizează maximizarea (minimizarea) vitezei de sublimare;
 - elaborarea unei proceduri DE – RNA (algoritmul evoluție diferențială și rețea neuronală) și aplicarea acestora pentru determinarea modelului neuronal optim;

- îmbunătățirea metodologiei DE – RNA prin diversificarea algoritmului DE, respective: introducerea auto-adaptării, utilizarea diferitelor metode de inițializare, mutație, crossover.

Pregătirea materialelor necesare realizării experimentelor (naftalină, clorură de amoniu) și instalațiile de laborator utilizate pentru cercetări experimentale s-au realizat la departamentul de Inginerie Chimică, în cadrul Facultății de Inginerie Chimică și Protecția Mediului, Iași.

Utilizând instalații experimentale de laborator realizate pentru sublimarea naftalinei și a clorurii de amoniu, s-a studiat transferul de masă prin determinarea experimentală a coeficientului de transfer de masă al naftalinei, respectiv clorurii de amoniu. De asemenea, s-a studiat influența temperaturii și a vitezei fazei gazoase asupra coeficientului de transfer de masă.

Pentru studiul experimental al transferului de masă în sublimare la sublimarea cu antrenant, când interfața solid-gaz este plană, s-au utilizat particule cilindrice de naftalină fixate în suporturi speciali ce asigură o suprafață plană în contact cu antrenantul. Metoda a fost utilizată pentru determinarea vitezei de sublimare și a coeficientului de transfer de masă la sublimarea naftalinei în prezența aerului cald ca antrenant. S-a studiat și influența temperaturii și a debitului de antrenant asupra vitezei de sublimare și a coeficientului de transfer de masă. Pe baza rezultatelor experimentale, s-a stabilit o ecuație criterială pentru calculul coeficientului individual de transfer de masă. S-a stabilit un model matematic al procesului de sublimare care a permis calcularea duratei procesului sau a înălțimii frontului de sublimare sau a gradului de sublimare în funcție de timp. Verificarea modelului matematic s-a făcut prin compararea datelor obținute experimental cu cele calculate.

Pentru studiul experimental al transferului de masă în regim nestaționar, la sublimarea clorurii de amoniu în strat fix de granule scaldat de antrenant s-a determinat variația gradului de sublimare și a razei frontului de sublimare în timp. Pe baza datelor experimentale s-a determinat viteza de sublimare a clorurii de amoniu. Rezultatele evidențiază existența a două perioade de sublimare: prima perioadă prezintă o viteză crescătoare de sublimare și se desfășoară în regim neizoterm, a doua perioadă are viteza descrescătoare de sublimare și are loc în regim izoterm. S-a studiat influența temperaturii, a debitului de antrenant și a diametrelor granulelor asupra gradului de sublimare și a vitezei de sublimare.

Pentru experimente, s-a utilizat naftalină, iar ca antrenant aer cald. Naftalina este introdusă în stare topită în locul fiecărui suport, locaș de o anumită formă geometrică. Suportul

permite contactul cu antrenantul gazos numai pe o singură față frontală a naftalinei solidificate în locaș. În fiecare experiment se utilizează un singur suport cu naftalină. Temperatura în camera de sublimare, în cursul fiecărui experiment se menține la valoare constantă. Se lucrează la trei valori ale temperaturii: 50°C, 60°C și 70°C și la mai multe valori ale debitului de antrenant (aer): 1500, 2000, 2500, 3000, 3500 m³/h.

Pentru studiul cineticii procesului de sublimare al clorurii de amoniu în regim izoterm, experimentele se efectuează cu granule de clorură de amoniu cu diametrul mediu de 0.1875 și 0.3575 mm. Grosimea stratului de granule din creuzet este cuprinsă între 0.8 și 1 mm.

Pentru studiul experimental al transferului de masă în sublimarea cu antrenant, când interfața solid-gaz este plană, s-au utilizat particule cilindrice de naftalină fixate în suporturi speciali ce asigură o suprafață plană în contact cu antrenantul. Particulele cilindrice sunt obținute prin presarea naftalinei în locașul de formă cilindrică a fiecărui suport de tip nacelă, la presiune de 50 at. Locașul are diametrul $d = 10$ mm, și înălțimea $h = 10$ mm. În fiecare experiment se utilizează un singur suport cu naftalină.

Pentru studiul transferului de masă în sublimarea cu antrenant, când contactul dintre particulă și antrenant are loc pe întreaga suprafață a acesteia, s-au folosit suporturi tip gheară care au fost scufundați în topitura de naftalină pentru obținerea particulelor de dimensiuni dorite.

Studiul transferului de masă în procesul de sublimare fără sau însoțită de reacție chimică este o provocare pentru domeniul științific în dezvoltarea de teorii. Având în vedere că sublimarea este puțin abordată în literatură, se consideră că rezultatele cercetării în acest domeniu pot contribui semnificativ la dezvoltarea cunoștințelor legate de ingineria sistemelor gaz-solid.

O parte distinctă a tezei a fost reprezentată de modelarea și optimizarea sublimării naftalinei. În acest scop, bazele de date utilizate au inclus fie particule de o anumită formă, fie de forme și dimensiuni diferite. Instrumentele folosite au fost modele fenomenologice, rețele neuronale și algoritmi evolutivi, respectiv algoritmi genetici și algoritmul evoluție diferențială. Aceste tehnici au fost aplicate sub forma diferitelor metodologii, urmărindu-se și îmbunătățirea performanțelor lor (apreciate prin erori în faza de testare) prin schimbări efectuate la nivelul etapelor lor.

Astfel, au fost elaborate două modele matematice fenomenologice:

-un model matematic pentru sublimarea însoțită de reacție chimică pentru o granulă sferică aflată în contact direct cu un antrenant gazos (clorura de amoniu și aer) și

-un model matematic pentru sublimarea fără reacție chimică în regim izoterm și staționar.

Modelele obținute au fost verificate prin compararea datelor obținute cu cele existente în literatură. Cu ajutorul lor s-a studiat cinetica procesului de sublimare, precum și influența temperaturii, a dimensiunilor particulelor și a debitului de fază gazoasă asupra gradului de sublimare și a vitezei procesului. Ele au permis, de asemenea, determinarea distribuției presiunii parțiale a substanței ce sublimează pe grosimea stratului limită de difuziune și a variației razei frontului de sublimare în funcție de timp.

De asemenea, au fost dezvoltate modele matematice alternative pentru cinetica procesului de separare a solidelor prin sublimare, cu ajutorul unor metode moderne și de vădită actualitate – rețelele neuronale și algoritmi evolutivi (algoritmul genetic și algoritmul evoluție diferențială). Rețelele neuronale au fost determinate fie prin metoda încercărilor succesive, fie în variantă optimă folosind algoritmul evoluție diferențială. Acesta din urmă a fost modificat prin introducerea auto-adaptării și prin utilizarea diferitelor variante de inițializare, mutație și recombinare în scopul obținerii unor erori cât mai mici în faza de testare.

Optimizarea procesului de sublimare a fost realizată cu o metodologie bazată pe rețele neuronale și algoritmi genetici, concepuți în variantă simplă și adaptivă. Validarea s-a executat prin experimente efectuate la condițiile optime obținute prin simulare.

Din punct de vedere structural, teza este constituită din 6 capitole dintre care capitolul 1 reprezintă introducerea, capitolul 2 cuprinde aspecte teoretice referitoare la sublimare, capitolul 3 include aspecte teoretice despre rețele neuronale artificiale și algoritmi evolutivi, iar următoarele reprezintă contribuția propriu-zisă a tezei: capitolul 4 detaliază experimentele efectuate și rezultatele obținute, iar capitolul 5 prezintă 3 metodologii de modelare și optimizare. Lucrarea conține o serie de scheme ce sintetizează în format grafic subiectele abordate și principalele rezultate obținute, astfel încât este ușor de urmărit modul de organizare a problemelor tratate (considerând concluziile parțiale, concluziile finale și schemele).

Capitolul 1 prezintă o serie de aspecte generale, constituind o introducere în conținutul tezei. Sunt enumerate obiectivele generale ale tezei, detaliate pe subprobleme și este prezentată structura acesteia.

Capitolul 2 reprezintă partea teoretică referitoare la sublimare, respectiv stabilește stadiul

actual al cunoașterii în domeniu, trecând în revistă principalele probleme legate de obiectivele tezei, respectiv: aspecte generale privind sublimarea și liofilizarea, coeficienții de transfer de căldură și masă în sublimare și liofilizare, determinarea coeficienților de difuzie moleculară și a presiunii de vapori, transferul de căldură și masă pentru obiecte geometrice complexe.

Capitolul 3 reprezintă partea teoretică, respectiv stabilește stadiul actual al cunoașterii în domeniul modelării și optimizării cu rețele neuronale și algoritmi evolutivi. Astfel, sunt trecute în revistă probleme precum: tipuri de rețele neuronale, metode de determinare a topologiei optime de rețea, tipuri de modelări cu rețele neuronale, aplicații ale rețelelor neuronale în probleme ale ingineriei chimice, tipuri de probleme de optimizare, algoritmi evolutivi, tehnici neuro-evolutive și aplicații ale acestora în inginerie chimică.

Capitolul 4 prezintă studiul experimental al transferului de masă în procese de sublimare, la nivel de particulă individuală fără reacție chimică și în prezența reacției chimice. S-a studiat cinetica sublimării la nivel de particulă sferică, cilindrică, paletă, tijă și pastilă, când contactul dintre aer (antrenant gazos) și particulă se realizează numai pe o suprafață plană a acesteia sau pe întreaga ei suprafață.

Capitolul 5 cuprinde elaborarea unor metodologii de modelare și optimizare bazate pe rețele neuronale și algoritmi evolutivi. Modelele neuronale au fost dezvoltate prin încercări succesive sau în variantă optimă aplicând algoritmul evoluție diferențială. Ulterior, aceste modele au fost incluse în proceduri de optimizare constituindu-se astfel tehnici hibride neuro-evolutive.

Capitolul 6, reprezentând concluziile generale, evidențiază în mod sintetic îndeplinirea obiectivelor propuse. Concluziile sunt formulate din două puncte de vedere: din punct de vedere experimental și din punct de vedere al modelării și optimizării cu instrumente ale inteligenței artificiale.

La sfârșitul tezei sunt prezentate alfabetic cele 307 referințe, acestea fiind reprezentate de articole consultate și articole proprii, publicate sau în curs de apariție.

Rezultatele cercetărilor proprii din cadrul tezei de doctorat s-au concretizat în 2 articole ISI publicate sau acceptate spre publicare, 1 lucrare BDI precum și 3 participări la manifestări științifice.

2. Aspecte teoretice referitoare la sublimare

2.1. Aspecte generale privind sublimarea și liofilizarea

Procesul de sublimare este des întâlnit în industria chimică. Sublimarea este folosită pentru materiale care nu pot fi ușor purificate prin operații unitare cunoscute. Este folosită frecvent pentru separarea unui component volatil din alți componenți nevolatili, de exemplu, pentru separarea sulfurilor de impurități sau pentru purificarea acidului benzoic. Sublimarea fracționată este analogă distilării cu excepția faptului că sunt separați componenții volatili din faza solidă, mai puțin din faza lichidă. Sublimarea ca instrument de separare poate fi utilizată atunci când: (1) materialul este instabil sau este sensibil la temperatură sau oxidare; (2) este de preferat a se obține un produs solid direct din vapori; (3) produsul ce urmează a fi reacoperit este volatil și căldura sensibilă urmează a fi separată din material; (4) materialul este reacoperit la un punct de topire ridicat; (5) materialul volatil este amestecat cu materiale nevolatile de procentaj înalt.

Tehnica sublimării naftalinei este una din metodele cele mai convenabile pentru a studia transferul de căldură și masă cu multiple aplicații: determinarea coeficienților de transfer de căldură și masă pentru diferite configurații ale spațiului de curgere, pentru diferite forme ale suprafeței probelor fixate sau în mișcare, estimarea presiunii vaporilor sau studiul transferului de căldură pentru obiecte geometrice complexe.

2.2. Coeficienții de transfer de căldură și masă în sublimare și liofilizare

A fost folosită tehnica sublimării naftalinei pentru a obține coeficienții locali de transfer de căldură convectiv sau de masă pe o suprafață ondulantă, eliminându-se astfel erorile datorate conducției peretelui și ale radiației. Ondulațiile testate au fost de mică adâncime în condiții de curgere de la laminar la turbulent, la viteză mică, în aparate de transfer de căldură compacte. Sistemul de măsurare construit special a fost alcătuit dintr-un sistem de trei axe de traversare, un senzor de rezoluție mare și un echipament de turnare. În regiunea părții de turnare există o matriță cu aceleași dimensiuni ca ale cavității ondulate. Golul dintre partea de turnare și partea de colectare a fost umplut cu naftalină topită.

Secțiunea test a constat în trei părți: regiunea canalului de dezvoltare a curgerii, regiunea plană de testare și regiunea canal în sensul curgerii. În figura 2.12. sunt reprezentate detaliile secțiunii plane de testare.

Proba a fost introdusă în canalul de testare și mișcată vertical în direcția z printr-un sistem de traversare cu precizie micrometrică. Coeficientul local de transfer de masă h_m a fost obținut din adâncimea de sublimare dz' prin ecuația:

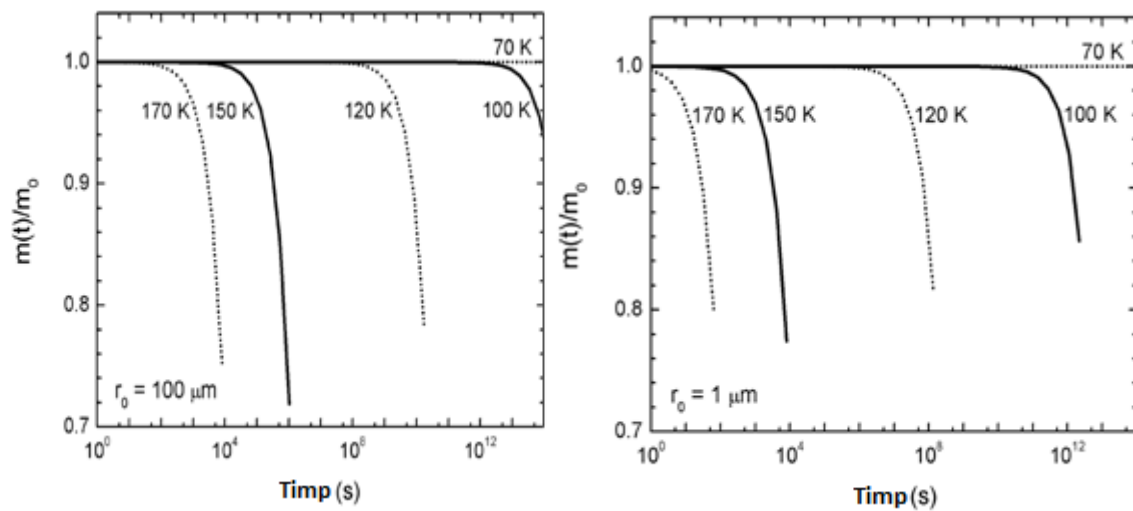


Figura 2.11. Frațiunea de masă inițială (m_0) rămasă după timpul t , când probe sferice de gheață pură cu raza inițială (r_0) de $100\mu\text{m}$ și $1\mu\text{m}$ sunt expuse la temperatura indicată

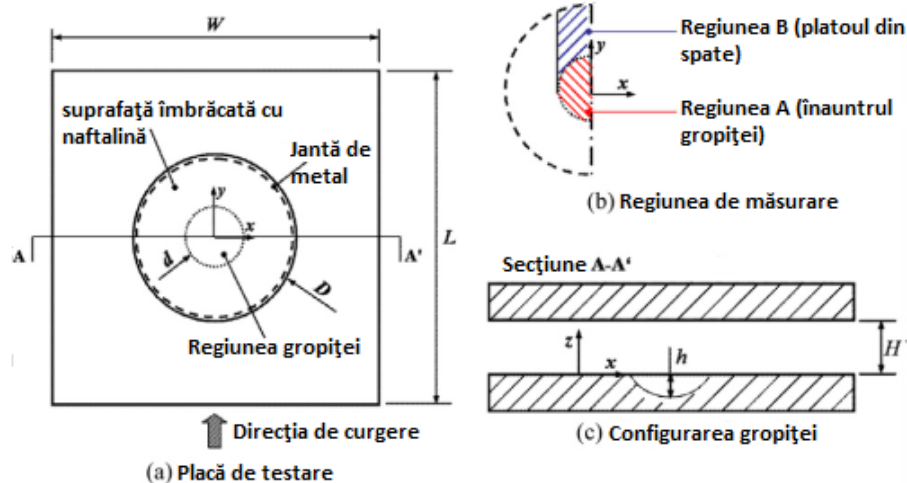


Figura 2.12. Detalii ale secțiunii de testare: (a) secțiunea de testare plană, (b) regiunea de măsurare, (c) configurația ondulației

$$h_m = \frac{\dot{m}}{\rho_{v,W} - \rho_{v,\infty}} = \frac{\rho_s (dz/dr)}{\rho_{v,W}} \quad (2.18)$$

unde $\rho_{v,\infty}$ este densitatea vaporilor de naftalină .

Numărul Sherwood a fost definit bazându-ne pe diametrul hidraulic D_h prin ecuația:

$$Sh = \frac{h_m D_h}{D_{Naph}} \quad (2.19)$$

unde D_{Naph} este difuzivitatea vaporilor de naftalină în aer. Numerele Sherwood medii și medii totale au fost obținute prin integrarea numerică în direcțiile x și y, în regiunea A ce cuprinde numai ondulația și în regiunea B cuprinzând platoul din spate.

Caracteristicile pierderii de presiune în canalul test au fost reprezentate prin factorul de frecare f astfel:

$$f = \frac{\Delta P}{4(1/D_h)(1/2)\rho U_0^2} = \frac{1}{2} \Delta P \frac{D_h}{\rho U_0^2} \quad (2.20)$$

în care ΔP este pierderea de presiune pe unitatea de lungime, ρ este densitatea canalului de aer și U_0 este viteza medie a bulei.

Curgerile secundare induse de ondulație au fost semnificative în cazul curgerii laminare (figura 2.13). Cu cât numărul Reynolds crește, fluctuația vitezei lângă suprafața divizată peste ondulație crește semnificativ, iar în regiunea platoului din spate apar efectele curgerilor vorticale. Fluctuația vitezei în stratul amestecat crește cu adâncimea ondulației.

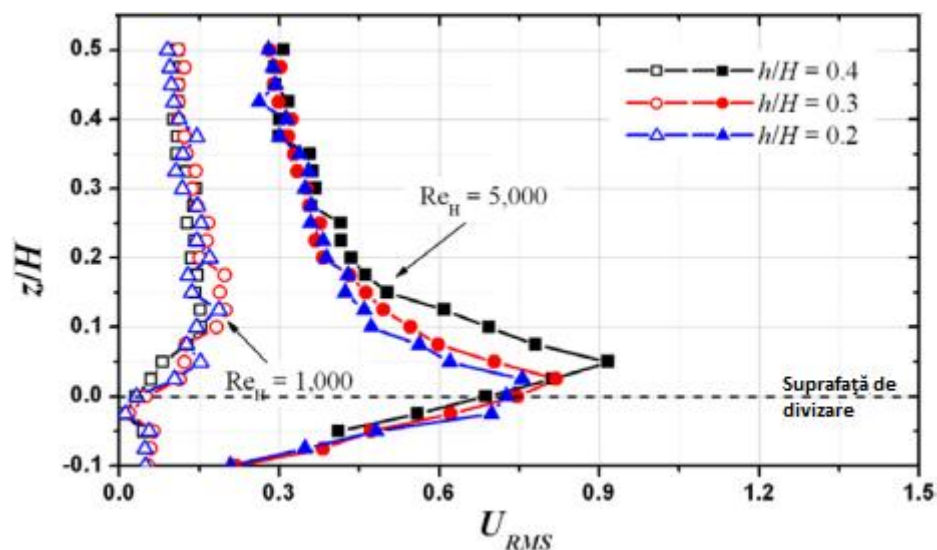


Figura 2.13. Fluctuațiile vitezei peste undulații pentru diferite h/H la $Re_H=1000$ și 5000 .

Figura 2.14 vizualizează curgerea prin fotografiere cu pânză laser perpendiculară și paralelă cu curgerea principală. La curgerea în regim laminar, în timpul generării curgerii recirculării, în cavitatea undulației se formează o pereche de celule vortex, iar în afara undulației o curgere, amândouă constituind modelul curgerii periodice. Acest model devine haotic cu cât numărul Reynolds crește la regimuri de curgere tranzitorii spre turbulent. După cum se vede în figura 2.15, pentru toate numerele Reynolds testate (laminar la turbulent la viteză mică), coeficienții mari de transfer de căldură/masă apar în jurul marginii din spate a undulației și în regiunea platoului din spate datorită reatașării curgerii și curgerilor urmă/vortex.

Numărul Sherwood în curgerea laminară este foarte mic (figura 2.16). În regim de curgere tranzitoriu, la un număr Reynolds de 3000, coeficienții de transfer de căldură/masă cresc semnificativ datorită creșterii fluctuației vitezei peste undulație și datorită curgerilor secundare induse de undulație.

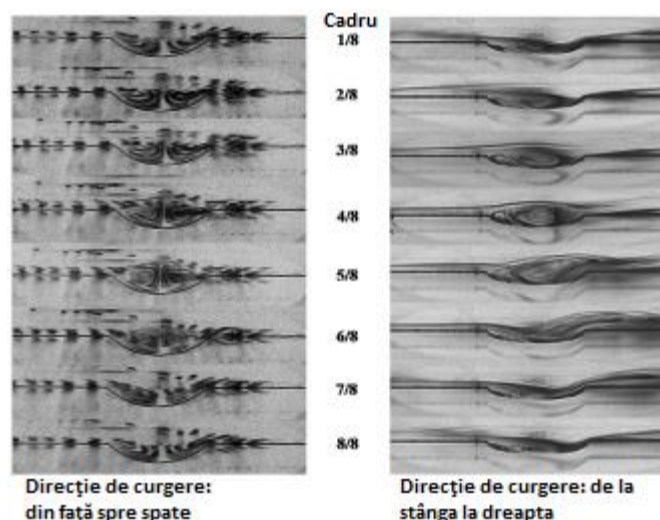


Figura 2.14. Vizualizarea curgerii la $Re_{Dh} = 360$; direcția curgerii- în fața undulației (fotografia din stânga), de la dreapta spre stânga (fotografia din dreapta)

2.3. Determinarea coeficientului de difuzie moleculară și a presiunii de vaporii

Presiunile de vaporii și de sublimare ale componentilor organometalici sunt necesare în câteva procese cum ar fi depunerea vaporilor chimici (CVD). Termobalanțele la presiuni atmosferice sunt deja folosite pentru a studia evaporarea unor asemenea compuși.

2.4. Transfer de căldură și masă pentru obiecte geometrice complexe

Tehnica de sublimare a naftalinei este una din cele mai utilizate metode de transfer de masă pentru a determina coeficientul local de transfer de masă prin folosirea analogiei dintre transferul de căldură și masă. S-a propus o metodă optică de sublimare a naftalinei care introduce o nouă tehnică de măsurare a grosimii naftalinei.

3. Aspecte teoretice despre rețele neuronale artificiale și algoritmi evolutivi. Aplicații în ingineria chimică

3.1. Rețele neuronale - aspecte generale

Într-o manieră generală, o *rețea neuronală artificială* (ANN) poate fi descrisă ca fiind un mecanism creat pentru a modela procedeul prin care creierul execută o anumită sarcină sau funcție.

3.2. Metode de determinare a topologiei unei rețele neuronale

3.2.2. Tipuri de topologii

Principalele tipuri de topologii sunt:

- **Arbitrară.** Constă într-o mulțime de unități pe care nu este definită nici o relație de ordine. În acest caz nu are importanță nici locul și nici distanța dintre unități. Un model cu o astfel de topologie este modelul Hopfield. De regulă, acestei topologii îi corespunde o conectivitate totală.
- **Pe nivele.** Unitățile sunt împărțite în mai multe submulțimi, numite nivele. În cadrul unui nivel nu are importanță modul de aranjare a unităților. În această categorie intră rețelele feedforward cu unul sau mai multe nivele.
- **Cu structură geometrică.** Unitățile sunt amplasate în nodurile unei grile unidimensionale, bidimensionale sau chiar tridimensionale. În acest caz se poate defini o funcție distanță între unități. În această categorie intră rețelele de tip Kohonen.

3.2.3. Metode de determinare a topologiei rețelelor neuronale

3.2.3.1. Metoda încercare și eroare

Cunoscută ca fiind cea mai utilizată metodă aplicată în practică pentru determinarea arhitecturilor rețelelor neuronale, metoda „încercare și eroare” se rezumă la testarea câtorva topologii, urmată de compararea predicțiilor acestora.

3.2.3.2. Metode empirice sau statistice

Literatura de specialitate prezintă câteva metode de optimizare a parametrilor interni ai rețelelor neuronale în scopul obținerii performanțelor de generalizare cele mai bune .

3.2.3.3. Metode destructive și constructive

3.2.3.3.1. Metode destructive

În metodele **destructive** [Whitely și alții, 1993; Bhat și Mcavoy, 1992], principiul de bază constă în alegerea unei RN inițiale de dimensiuni mari care se supune reducerii până la o dimensiune care îndeplinește criteriile de performanță fixate.

3.2.3.3.2. Regularizarea

Uneori, rețelele neuronale de dimensiuni mari prezintă ponderi a căror contribuție este foarte scăzută în reprezentarea relației intrare-ieșire. Contribuția pe care o au în reducerea erorii de antrenare nu poate fi aceeași în cazul în care RN este alimentată cu noi date de intrare, astfel rezultând o capacitate de generalizare scăzută. O posibilă modalitate de a preîntâmpina un astfel de neajuns îl constituie eliminarea ponderilor care prezintă un aport redus la performanțele rețelei. **Regularizarea** poate constitui o metodă de a impune condiții antrenării RN, astfel încât

ponderile cu o contribuție negativă să fie forțate să convergă la valoarea zero

3.2.3.3.3. Metode constructive

În metodele **constructive** se pornește de la o rețea de dimensiuni reduse și, în mod incremental, aceasta se extinde prin adăugarea mai multor straturi și/sau neuroni, până când se ajunge la performanțele dorite

3.2.3.4. Metode evolutive

Metodele evolutive reprezintă metode paralele prin care se construiește un set larg de rețele cu diferite detalii structurale, iar performanțele acestora sunt evaluate simultan. Pe baza unor reguli de actualizare, se generează un nou set de rețele, superior celui precedent. Repetarea acestei ultime operații conduce la obținerea arhitecturii optime de rețea.

Metodele euristice, ca algoritmi genetici (AG), au fost folosite pe scară largă în determinarea topologiei rețelelor neuronale.

3.4. Modelarea proceselor din industria chimică folosind rețele neuronale

Rețelele neuronale reprezintă instrumente utile modelării și optimizării proceselor complexe, a căror cunoaștere nu este completă. Aplicarea lor în ingineria chimică vizează aspecte legate de tipul rețelei sau de tipul aplicației: modelare, conducerea proceselor, proiectare moleculară, optimizare.

3.4.3. Modele inferențiale bazate pe rețele neuronale

Existența în multe procese industriale a unor variabile care sunt dificil sau imposibil de măsurat „on-line” sau sunt afectate de întârzieri substanțiale impune utilizarea unor modele dinamice. Combinarea informațiilor obținute din măsurători „on-line” și „off-line” cu modele de proces poate permite determinarea inferențială „on-line” a unor variabile. Pentru a memora relația între cele două categorii de variabile pot fi utilizate rețele neuronale, dezvoltându-se astfel modelele inferențiale.

3.4.4. Modelare cu rețele neuronale inverse

Modelarea cu rețele neuronale inverse reprezintă un alt tip de aplicație a rețelelor neuronale, constând în identificarea condițiilor de operare ale procesului în funcție de o serie de parametri finali impuși.

3.4.6. Proiectare moleculară cu rețele neuronale

Proiectarea materialelor presupune modelarea unor interacțiuni importante între unitățile structurale de bază și o serie de proprietăți de interes, precum și identificarea unor structuri

viabile care să conducă la performanța dorită în sinteză.

3.4.7. Optimizarea proceselor chimice bazată pe modele neuronale

Optimizarea proceselor reprezintă un obiectiv important în ingineria chimică și protecția mediului, datorită impunerii unor costuri de operare scăzute, exploatării în condiții economice a instalațiilor, obținerii unui randament ridicat, funcționării instalațiilor în condiții de siguranță, constrângerilor de mediu. Optimizarea este o problemă relativ complicată deoarece presupune existența unui model matematic precis și manevrarea unor proceduri de calcul complexe, consumatoare de resurse de calcul și timp. Formularea problemei de optimizare necesită stabilirea funcției obiectiv și a variabilelor manipulate.

3.5. Optimizarea proceselor chimice cu algoritmi genetici

Algoritmii genetici implicați în problemele de optimizare a proceselor chimice pot rezolva probleme de optimizare cu un singur obiectiv neconstrâns, probleme de optimizare cu un singur obiectiv constrâns și probleme de optimizare multiobiectiv neconstrânse.

3.5.1. Optimizarea proceselor chimice cu un singur obiectiv

Datorită flexibilității, ușurinței în operare, cerințelor minime și a perspectivei globale, algoritmii genetici au fost aplicați cu succes într-o serie de probleme de optimizare cu un singur obiectiv, incluzând controlul proceselor, recunoașterea modelelor din datele de operare ale unui proces multidimensional, în proiectarea instalațiilor chimice în regim staționar sau nestaționar.

3.5.2. Optimizare multiobiectiv

Optimizarea multiobiectiv vizează optimizarea în mod simultan a mai multor obiective contradictorii, obținându-se un set de soluții alternative, denumit setul Pareto. Aceste soluții sunt optime în sensul că nici o soluție nu este mai bună decât o alta din domeniu, comparativ cu toate criteriile stabilite.

3.5.3. Optimizare multiobiectiv realizată cu funcții scalare

Rezolvarea unei probleme multi-obiectiv se poate realiza *vectorial*, obiectivele de realizat fiind componentele unei funcții obiectiv vectoriale [Guria și alții, 2005] sau *scalar*, obiectivele fiind combinate ponderat într-o funcție obiectiv scalară [Leboreiro și Acevedo, 2004].

3.6. Instrumente hibride - rețelele neuronale și algoritmi genetici

Combinarea rețelelor neuronale cu algoritmi genetici este justificată de complexitatea anumitor probleme, putând fi evidențiate două modalități generale de utilizare: 1) folosirea lor drept componente distincte, cum ar fi model de rețea neuronală inclus într-o procedură de

optimizare rezolvată cu un algoritm genetic; 2) utilizarea unuia dintre cele două instrumente pentru îmbunătățirea performanțelor celuilalt; de exemplu, AG poate determina topologia optimă a unei RN, poate realiza estimarea parametrilor de intrare a unei RN sau o RN evaluează funcția de fitness a unui AG pentru convergență rapidă.

4. Studiul experimental al transferului de masă în procese de sublimare

4.1. Sublimare la nivel de particulă individuală fără reacție chimică

4.1.1. Studiul cineticii sublimării la nivel de particulă sferică

În acest capitol se prezintă studiul experimental al cineticii sublimării și transferul de masă la sublimarea cu antrenant gazos. Astfel s-a determinat viteza de sublimare și coeficientul de transfer de masă la sublimarea naftalinei în prezența aerului cald ca antrenant. Experimentele s-au realizat utilizând particule sferice de naftalină fixate pe tije metalice în contact cu antrenantul. S-a studiat, de asemenea, influența temperaturii și a debitului de antrenant asupra vitezei de sublimare.

Determinările experimentale s-au realizat la patru valori ale temperaturii (50, 60, 65 și 70°C) și la patru valori ale debitului de aer (2000, 3000, 4000 și 5000 L/h). Pe baza datelor obținute s-a determinat experimental gradul de sublimare și viteza de sublimare a granulelor sferice de naftalină, precum și raza granulei de naftalină funcție de timp la diferite valori ale temperaturii și la diferite valori ale debitului de antrenant.

Experimental s-a determinat gradul de sublimare, viteza de sublimare a naftalinei în funcție de timp la diferite valori ale temperaturii și diferite valori ale debitului de antrenant, precum și variația razei granulei în timp și în funcție de temperatură, la diferite debite de antrenant. De asemenea, s-a determinat experimental și variația masei granulelor sferice de naftalină în timp pentru temperaturile și debitele specificate mai sus.

În figurile 4.2 - 4.5 sunt reprezentate dependențele gradului de sublimare în timp la diferite debite de antrenant. Dependențele gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi sunt reprezentate în figurile 4.6 - 4.9. În figurile 4.10 - 4.13 sunt redată variațiile vitezei de sublimare în timp la diferite debite de antrenant, iar figurile 4.14 - 4.17 conțin variațiile vitezei de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului. Variația razei granulei de naftalină în timp la diferite temperaturi și debite ale antrenantului este reprezentată în figura 4.18. După cum se poate constata, atât viteza de sublimare, cât și gradul de sublimare crește în timp odată cu

creșterea debitului de antrenant al aerului și a temperaturii. În ceea ce privește raza granulei de naftalină, aceasta scade în mod liniar în timp odată cu creșterea debitului de antrenant și a temperaturii.

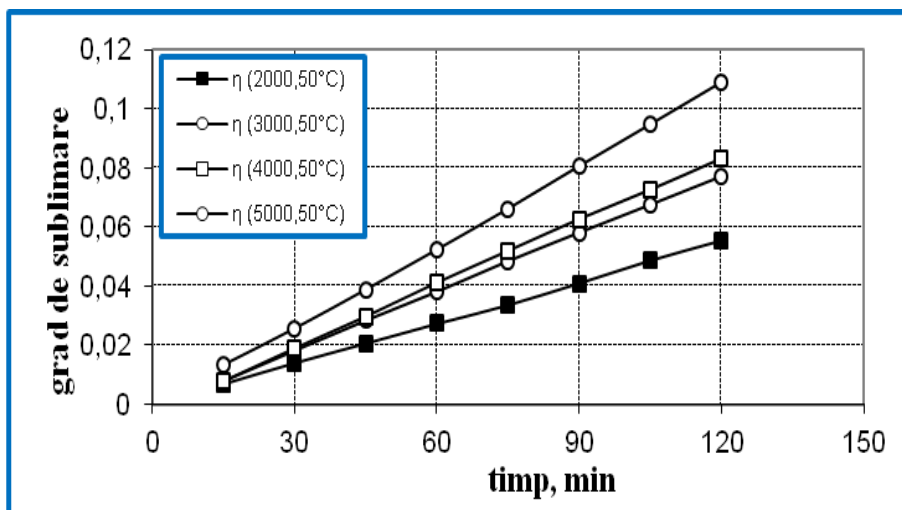


Figura 4.2. Variația gradului de sublimare în timp la diferite debite ale antrenantului și temperatura de 50°C.

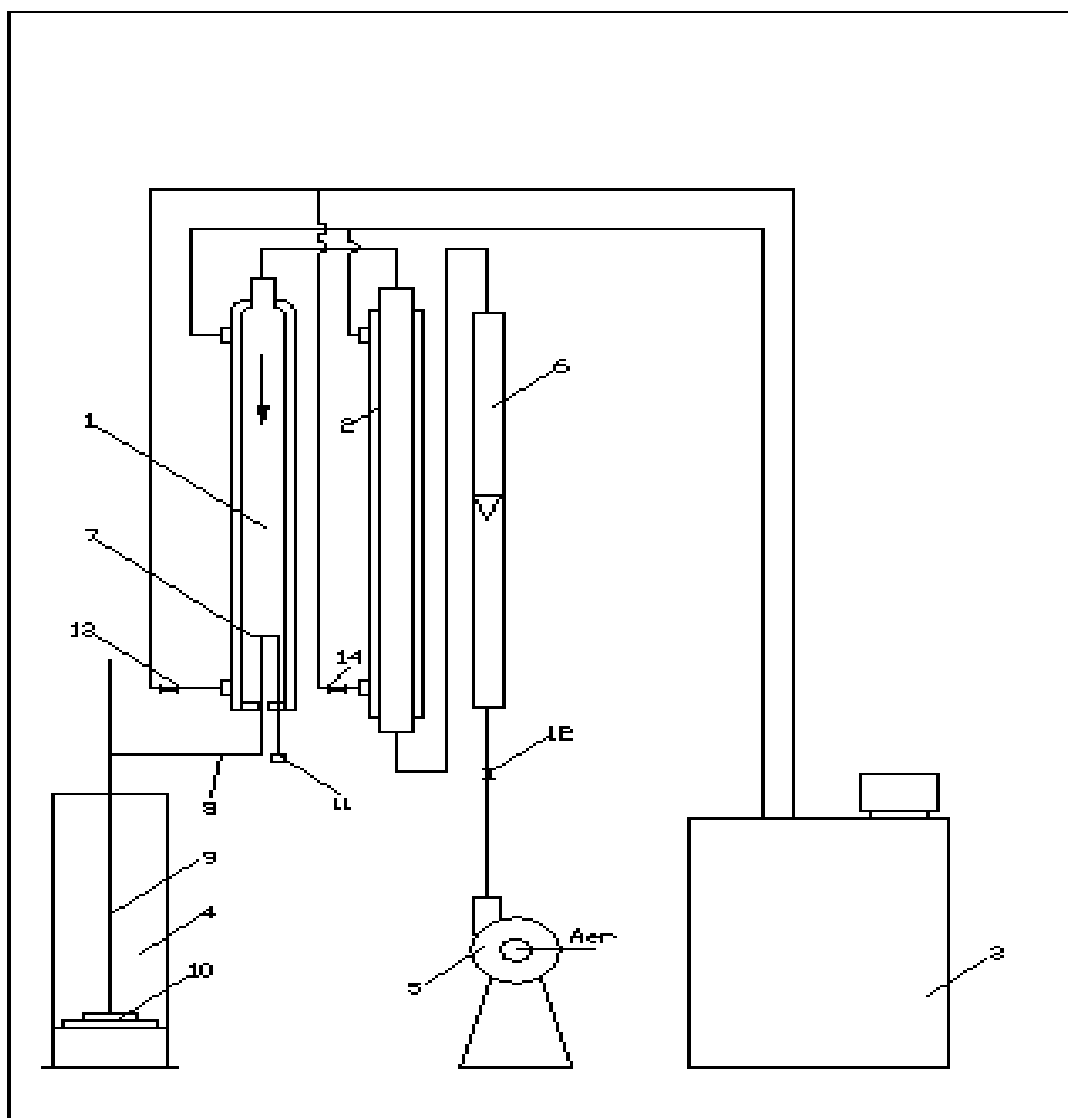


Figura 4.1. Schema instalației experimentale: 1- sublimator; 2-schimbător de căldură; 3-termostat; 4-balanță analitică; 5-ventilator; 6-rotametr; 7-sistem de fixare; 8,9-tije; 10-disc; 11-termometru digital; 12-ventil (aer); 13,14-ventile apă;

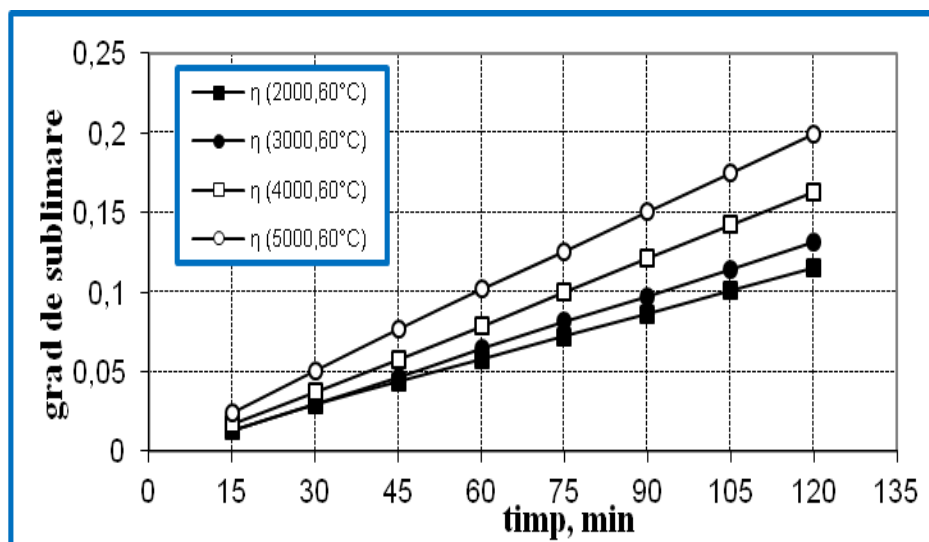


Figura 4.3. Variația gradului de sublimare în timp la diferite debite ale antrenantului și temperatura de 60°C.

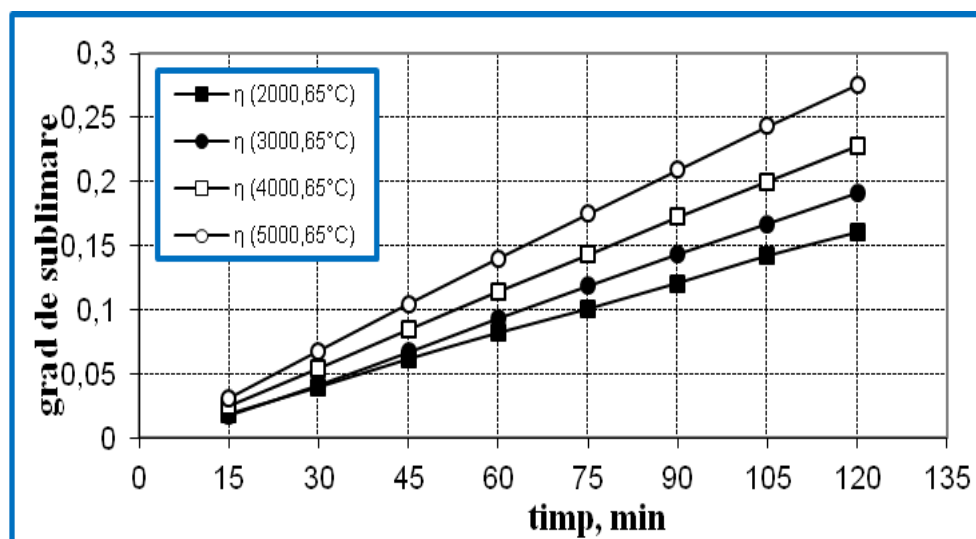


Figura 4.4. Variația gradului de sublimare în timp la diferite debite ale antrenantului și temperatura de 65°C.

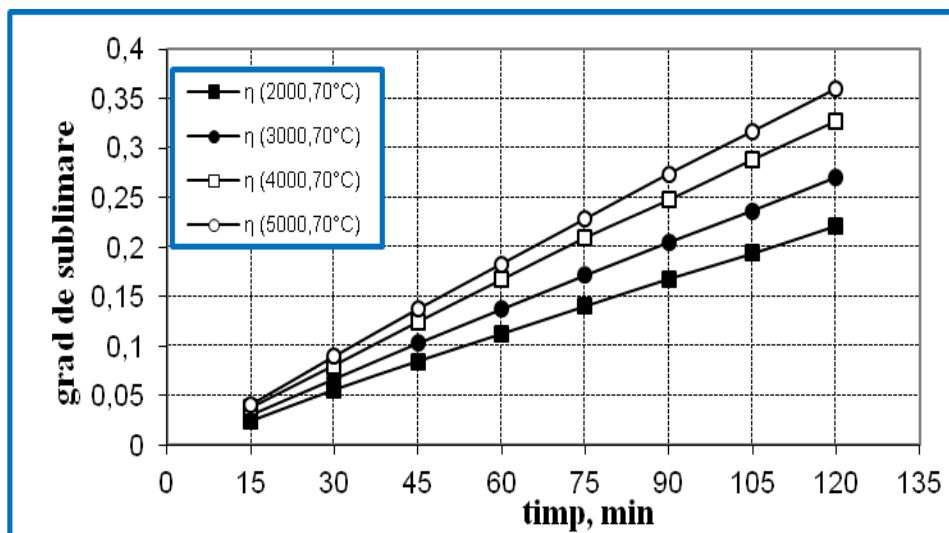


Figura 4.5. Variația gradului de sublimare în timp la diferite debite ale antrenantului și temperatura de 70°C.

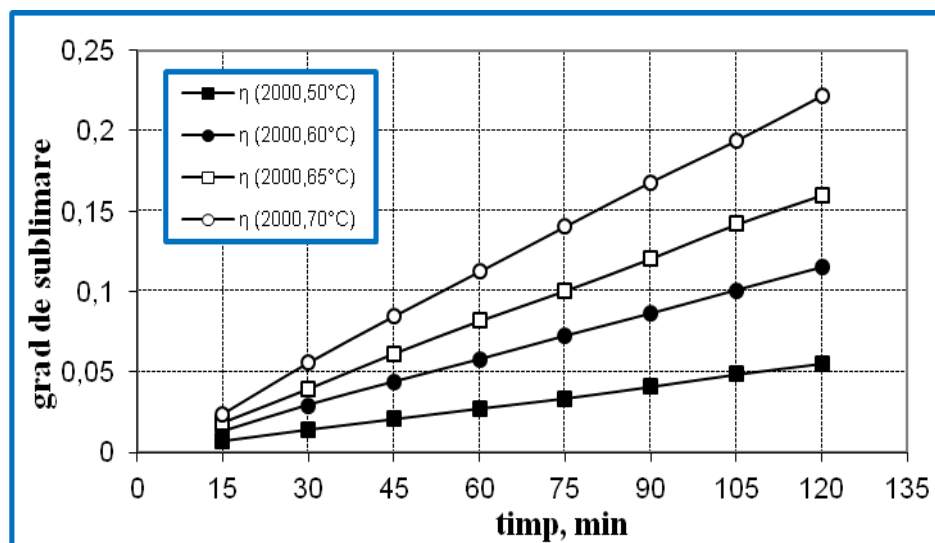


Figura 4.6. Variația gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și debitul de 2000 L/h.

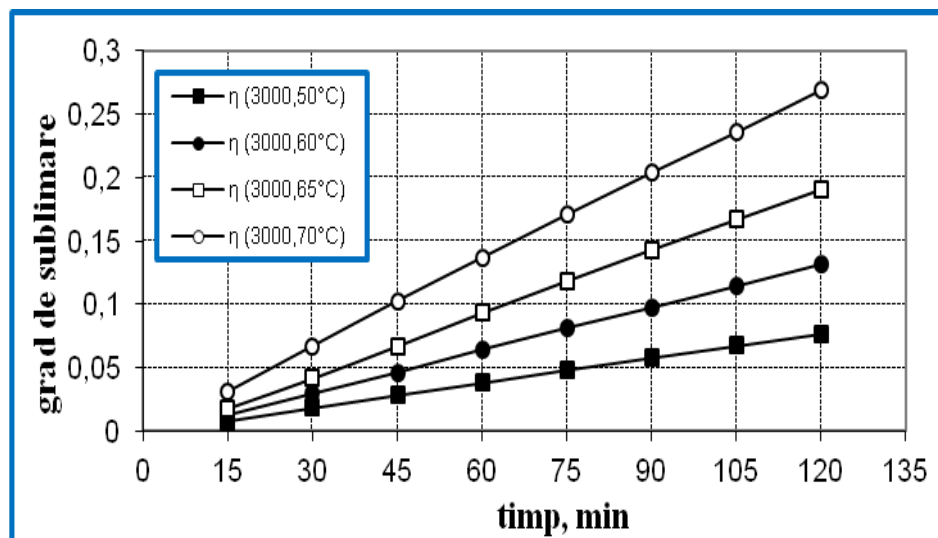


Figura 4.7. Variația gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și debitul de 3000 L/h.

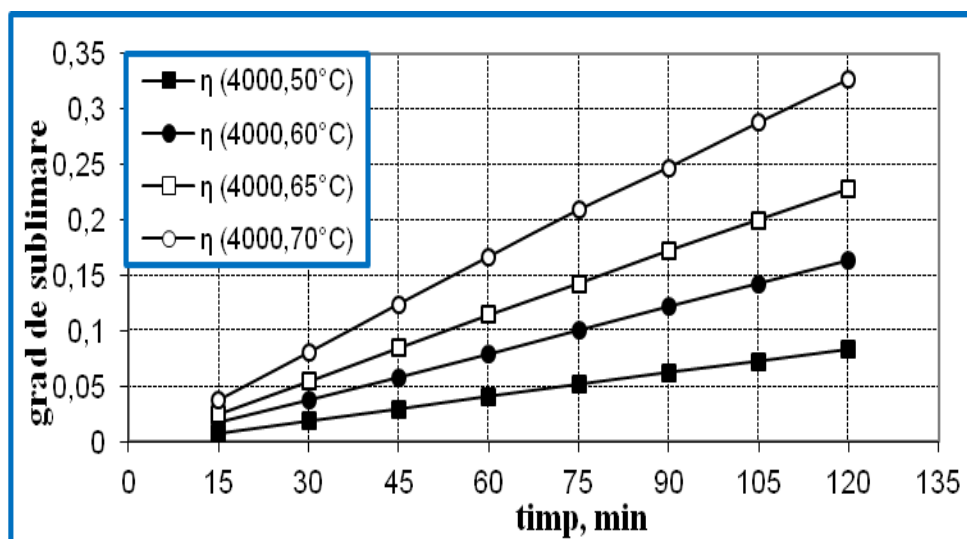


Figura 4.8. Variația gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și debitul de 4000 L/h.

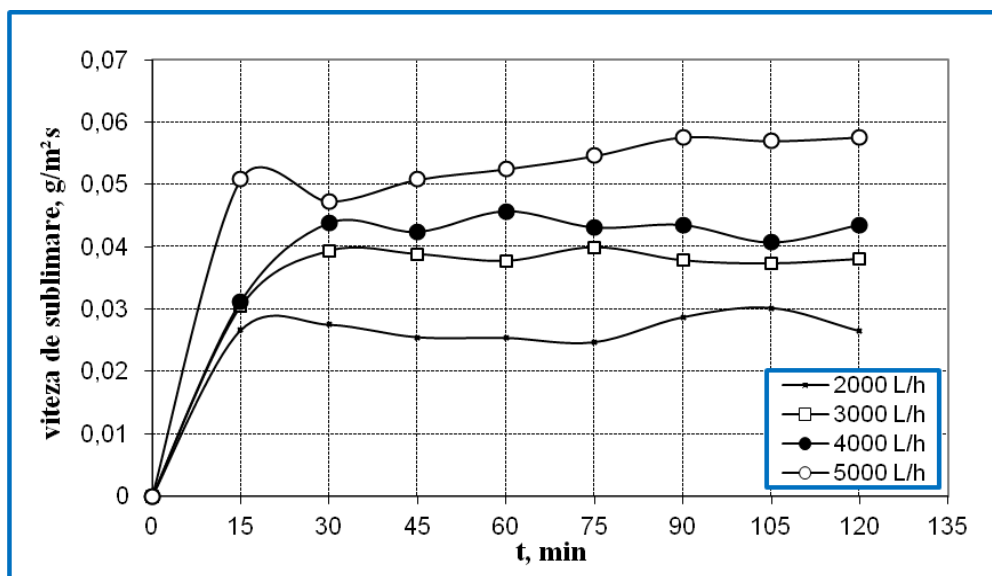


Figura 4.10. Variația vitezei de sublimare în timp la diferite debite de antrenant și temperatura de 50°C.

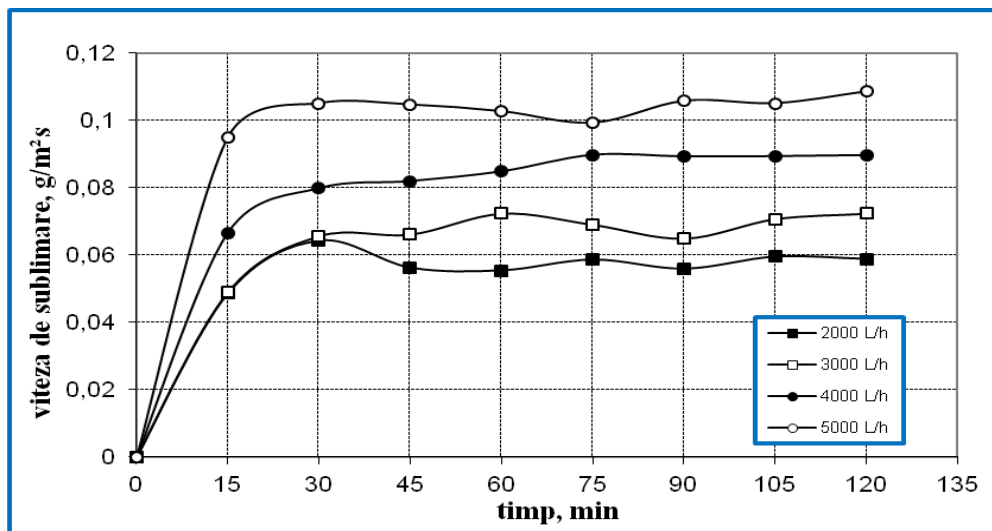


Figura 4.11. Variația vitezei de sublimare în timp la diferite debite de antrenant și temperatura de 60°C.

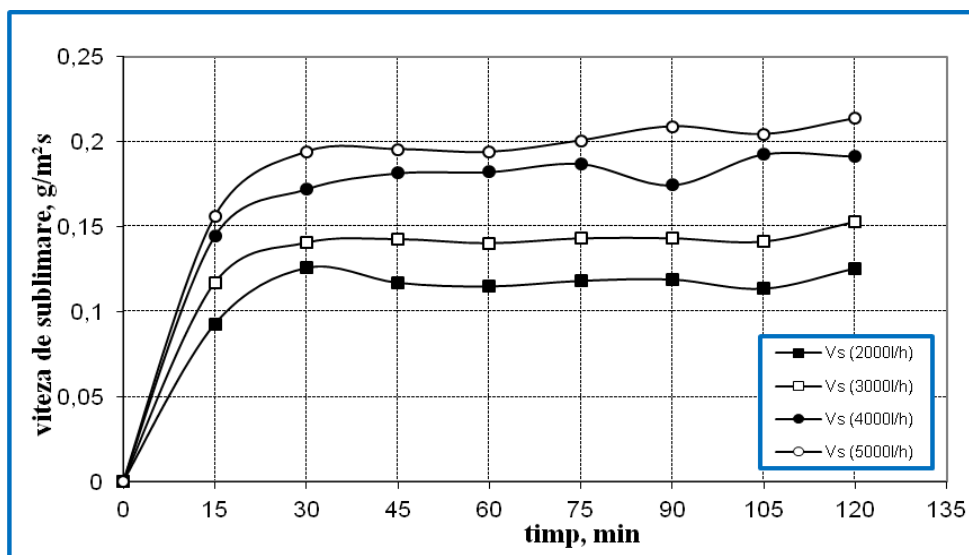


Figura 4.13. Variația vitezei de sublimare în timp la diferite debite de antrenant și temperatura de 70°C.

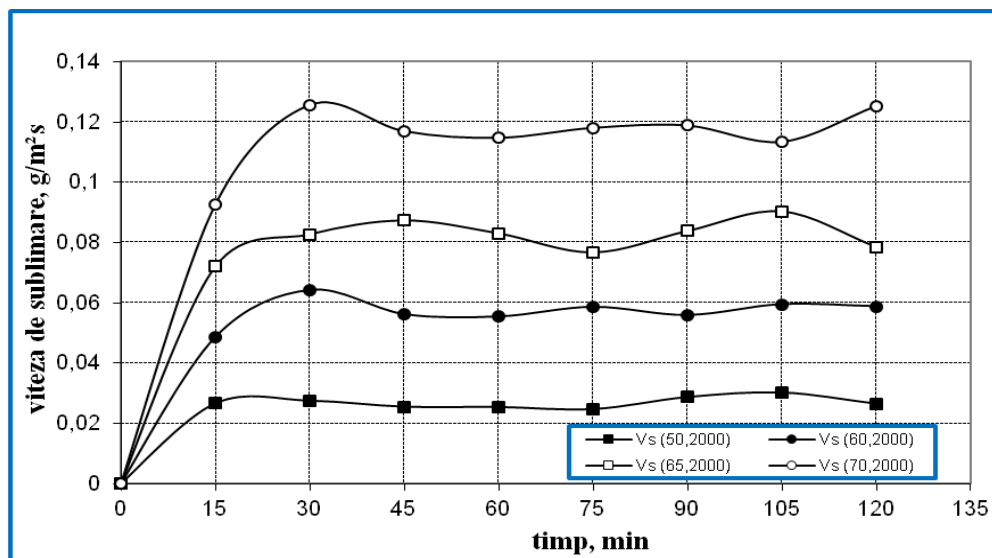


Figura 4.14. Variația vitezei de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și un debit de 2000 L/h.

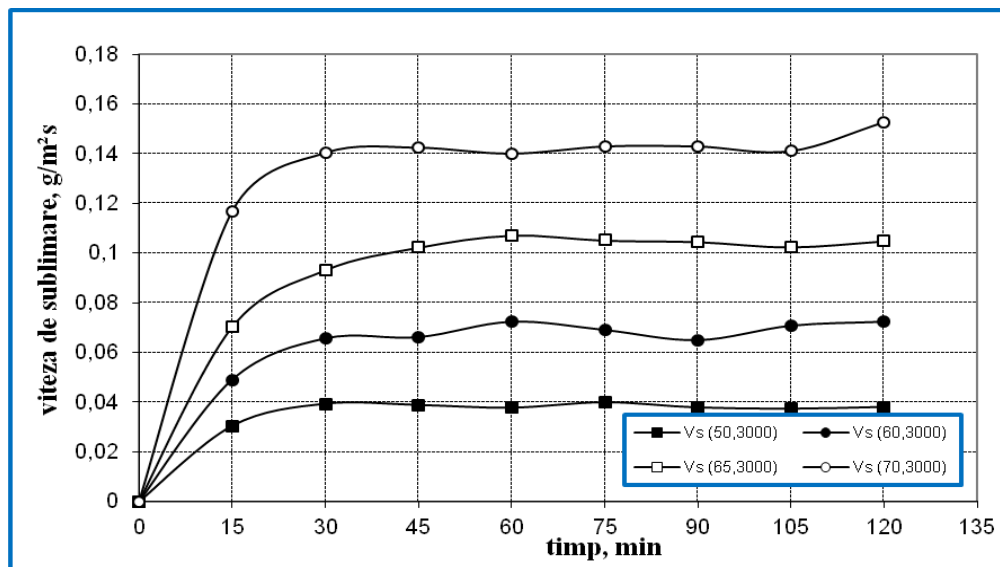


Figura 4.15. Variația vitezei de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și un debit de 3000 L/h.

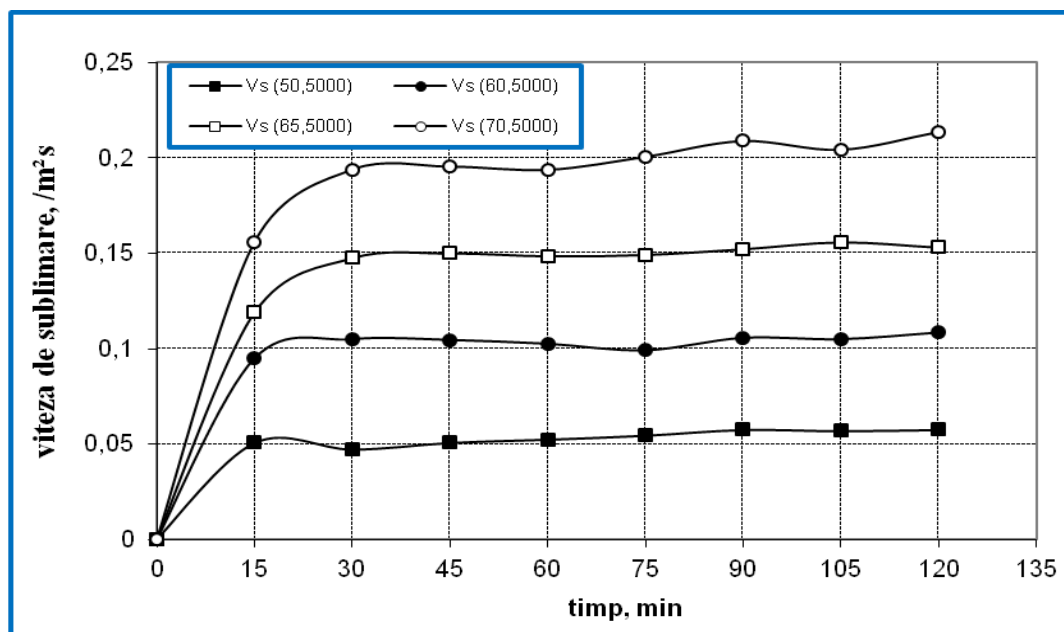


Figura 4.17. Variația vitezei de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și un debit de 5000 L/h.

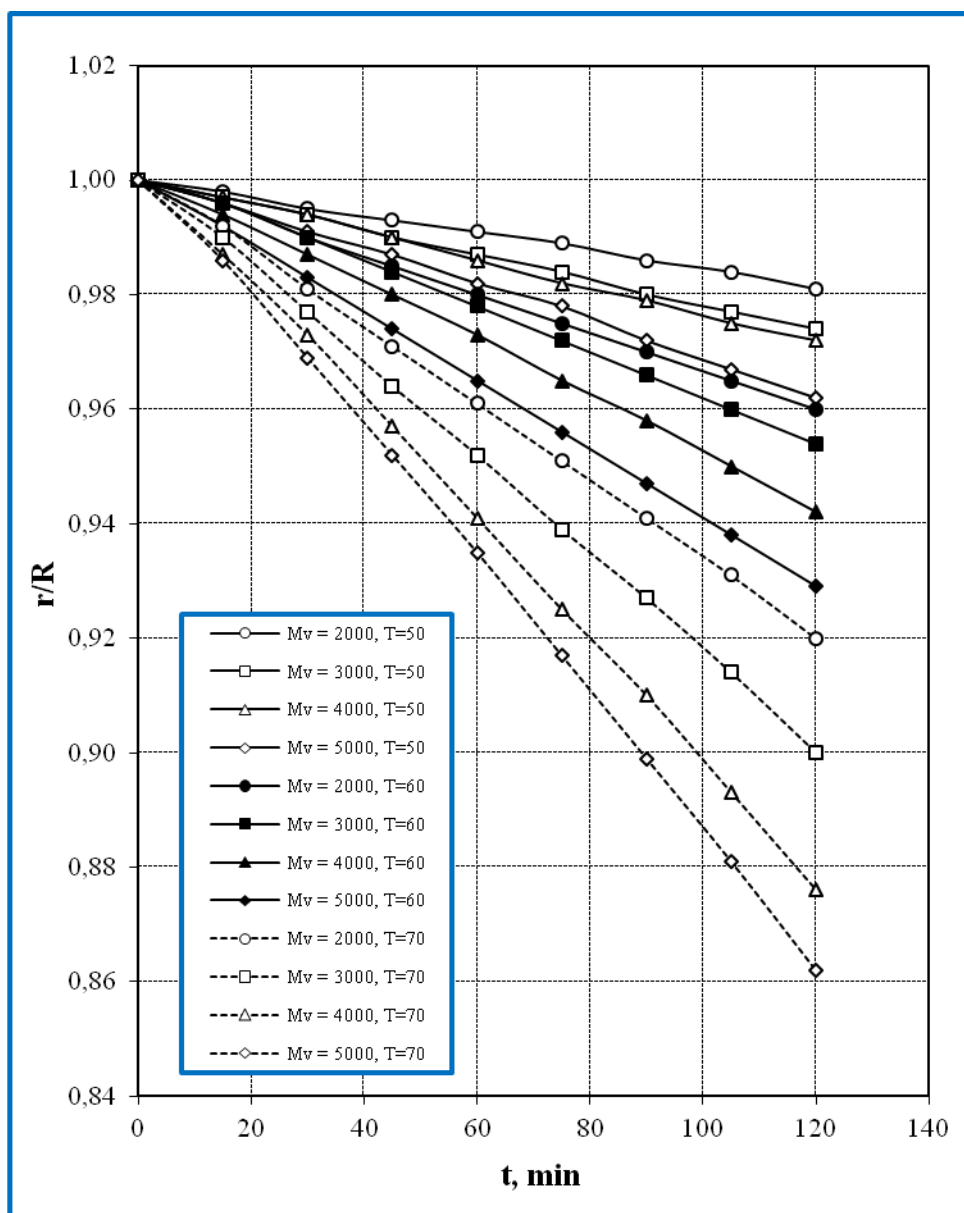


Figura 4.18. Variația razei particulei de naftalină în timp la diferite temperaturi și diferite debite ale antrenantului.

4.1.2. Studiul cineticii sublimării la nivel de particulă cilindrică, paletă, tijă și pastilă

Studiul experimental al transferului de masă la sublimarea cu antrenant, când interfața solid-gaz este plană, s-a realizat cu ajutorul instalației prezentate în figura 4.25. Pentru determinările experimentale, s-au utilizat particule cilindrice, paleți și pastile de naftalină fixate în suporturi speciali ce asigură o suprafață plană în contact cu antrenantul. Metoda este utilizată pentru determinarea vitezei de sublimare și a coeficientului de transfer de masă la sublimarea naftalinei în prezența aerului cald ca antrenant. Un alt obiectiv al acestui subcapitol este analiza influenței temperaturii și a debitului de antrenant asupra vitezei de sublimare și a coeficientului de transfer de masă.

În figurile 4.26 - 4.32 sunt reprezentate dependențele gradului de sublimare în timp la diferite debite de antrenant și la diferite temperaturi.

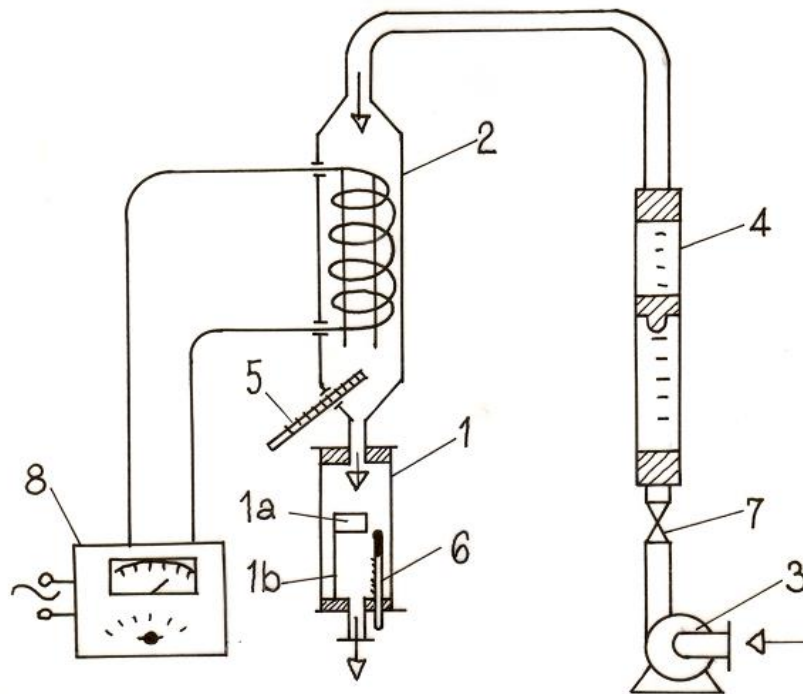


Figura 4.25. Instalație pentru studiul transferului de masă la sublimarea cu antrenant:

1-cameră de sublimare; 2-cameră de încălzire; 3-ventilator de aer; 4-rotametr; 5,6-termometre;
7-conductă pentru reglarea debitului de aer; 8-autotransformator.

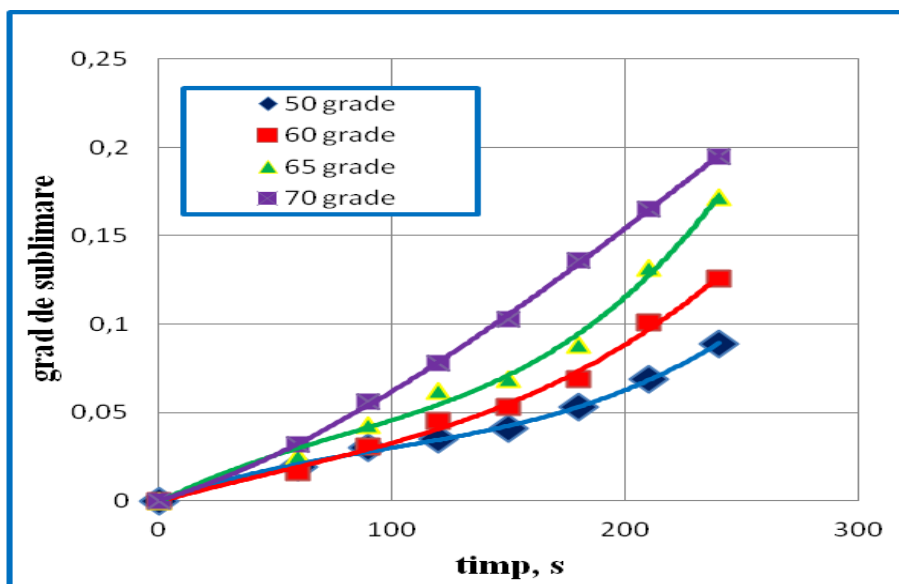


Figura 4.26. Variația gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și un debit de $0,34 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ pentru pastile mici de naftalină.

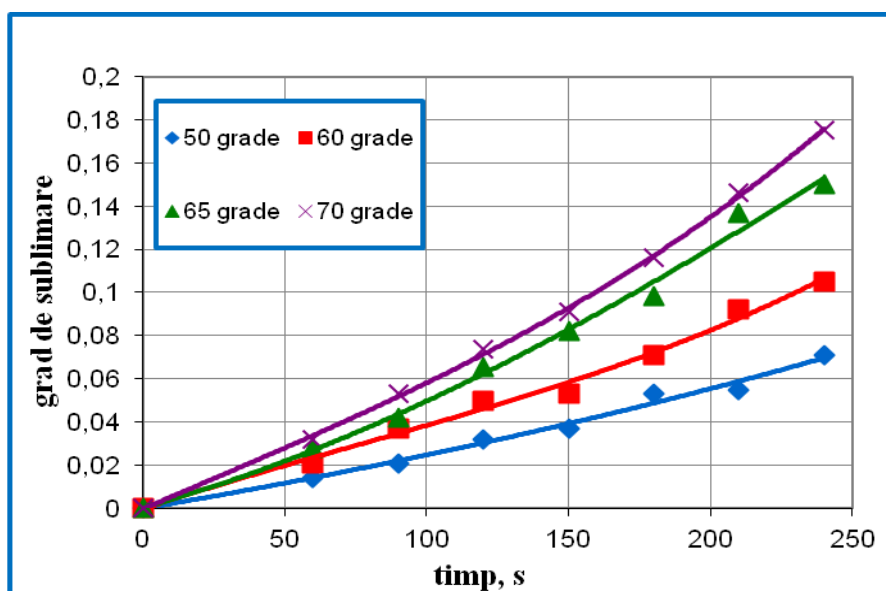


Figura 4.27. Variația gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și un debit de $0,861 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ pentru palete de naftalină.

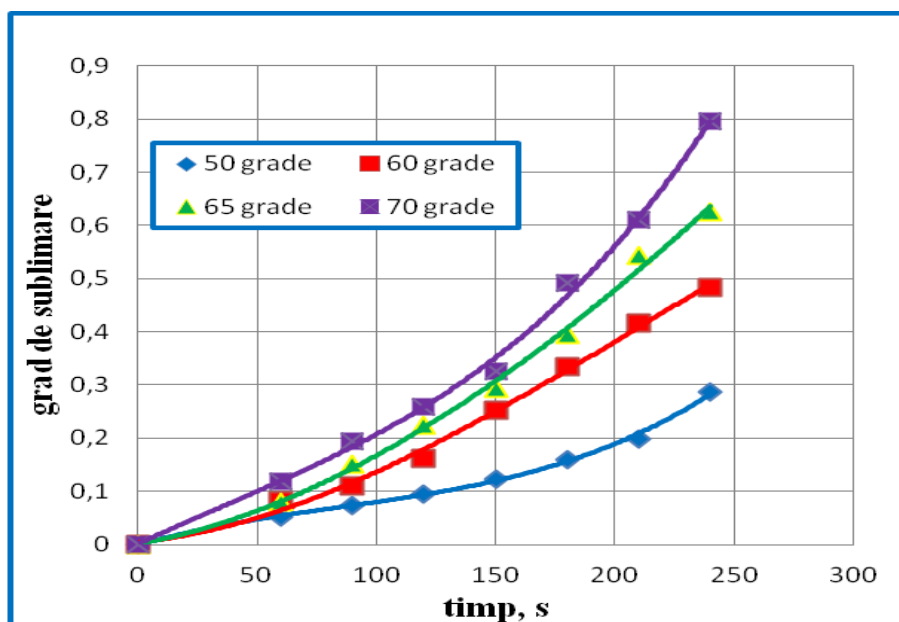


Figura 4.28. Variația gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și un debit de $1,92 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ pentru pastile mici de naftalină.

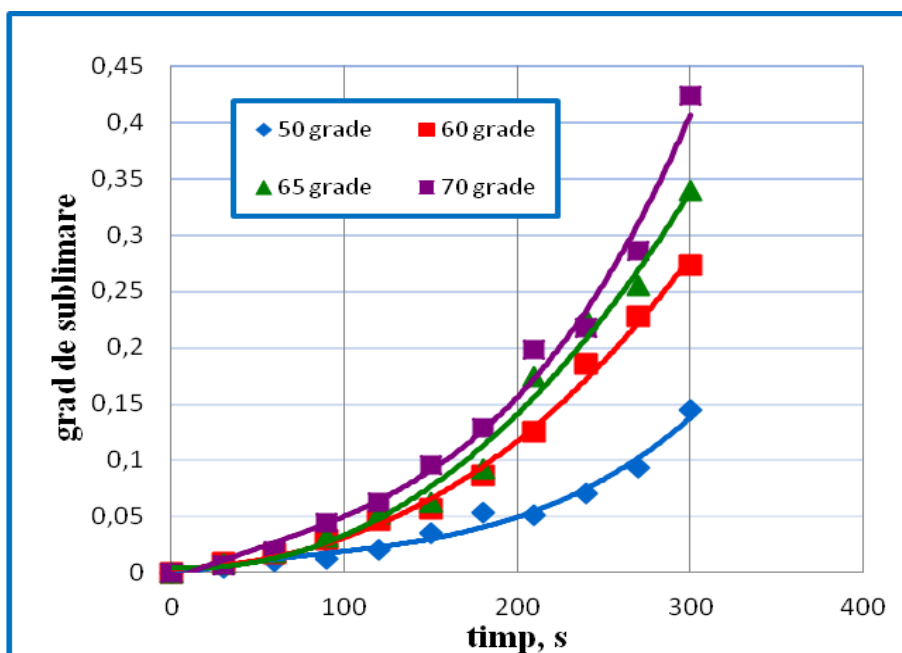


Figura 4.29. Variația gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și un debit de $3,129 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ pentru tije de naftalină.

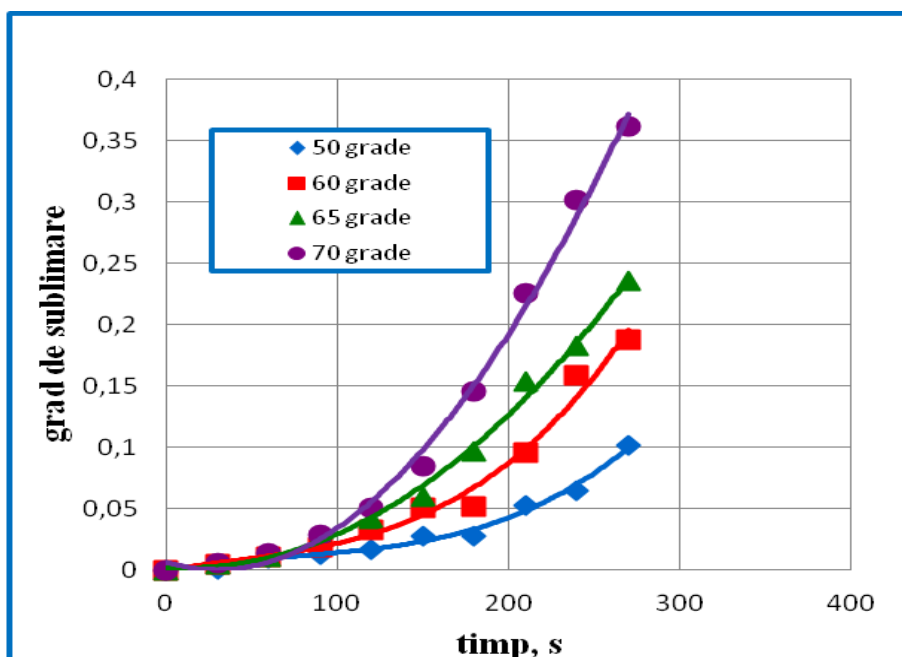


Figura 4.30. Variația gradului de sublimare în timp la diferite temperaturi ale antrenantului și un debit de $4,592 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ pentru tije de naftalină.

Rezultatele obținute indică faptul că debitul și temperatura aerului influențează pozitiv viteza de sublimare și gradul de sublimare, viteza de sublimare crescând în timp odată cu creșterea temperaturii.

4.2. Studiul cineticii sublimării la nivel de particulă individuală în prezența reacției chimice

În acest subcapitol s-a studiat cinetica procesului de sublimare a clorurii de amoniu în strat fix de granule scăldat de antrenant. Ca antrenant s-a utilizat aer uscat. Pe baza datelor experimentale s-a evidențiat influența temperaturii și a debitului de antrenant asupra vitezei procesului de sublimare.

Cinetica procesului de sublimare a clorurii de amoniu s-a realizat cu ajutorul instalației experimentale din figura 4.47. Reactorul (1) este confecționat dintr-un tub de cuarț de diametru $0,06 \text{ m}$ prevăzut cu două racorduri (2, 3) pentru intrarea, respectiv evacuarea fazei gazoase. Încălzirea cuptorului se realizează cu ajutorul unei rezistențe de superkanthal (4), dispusă pe un manșon de azbest și care este alimentat de la o sursă de curent alternativ, prin intermediul unui autotransformator (5).

În interiorul tubului de cuarț se află montată o tijă din electroceramică (6), care este fixată la capătul de jos de brațul unei balanțe analitice (7). Pe capătul superior al tijei se fixează creuzetul pentru proba (8). Acest creuzet permite utilizarea atât a granulelor de dimensiuni mari, cât și a stratului fin de particule micronice. Totodată, forma constructivă a creuzetului permite ca, în cazul utilizării unui strat monogranular de solid, gazul purtător să „spele” toată suprafața exterioară a granulelor. Ansamblul format din cuptor, izolație și legături electrice se află montat pe un suport (9) care permite mișcarea cuptorului în plan vertical, astfel încât creuzetul să poată fi manevrat ușor. De asemenea, instalația este prevăzută cu un sistem de condiționare și măsurare a debitului de aer utilizat ca antrenant.

Experimental s-a determinat variația masei stratului fix de granule de NH_4Cl în timp. Pe baza valorilor obținute s-a calculat cu ajutorul relației (4.5) gradul de sublimare și rezultatele obținute au fost prelucrate sub forma curbelor $\eta = f(t)$. Aceste dependențe sunt prezentate în figurile 4.48, 4.49, 4.50, 4.51, 4.52 și 4.53. După cum se poate constata, la durate mici, gradul de sublimare are valori foarte mici, iar la valori mai mari creșterea gradului de sublimare în timp este mult mai însemnată.

Temperatura influențează pozitiv valoarea gradului de sublimare, indiferent de debitul de antrenant. Cea mai semnificativă creștere a gradului de sublimare se înregistrează la debite mici de aer (50 l/h) când temperatura se modifică de la 340 la 360 °C.

În ceea ce privește debitul de antrenant, acesta are o influență pozitivă la valori mici asupra gradului de sublimare, însă la valori mari debitul de antrenant influențează negativ gradul de sublimare.

Debitul de antrenant influențează viteza de sublimare în același mod ca și gradul de sublimare. Prin urmare, la creșterea debitului de antrenant crește viteza de sublimare în general, însă această creștere este nesemnificativă.

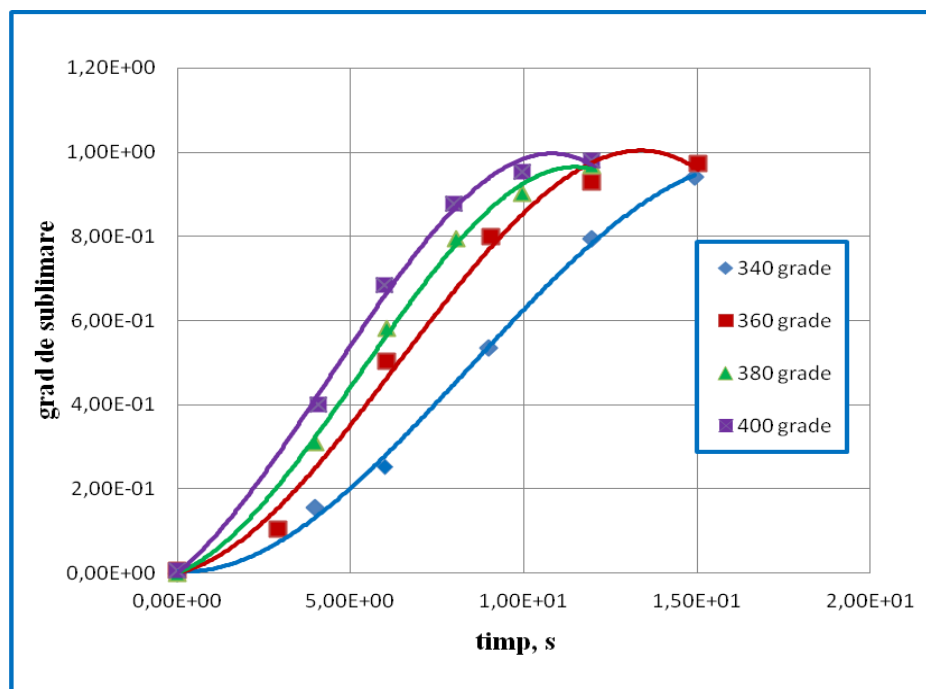


Figura 4.48. Dependența $\eta = f(t)$, $M_v = 20$ l/h, $d_p = 0.1875$ mm

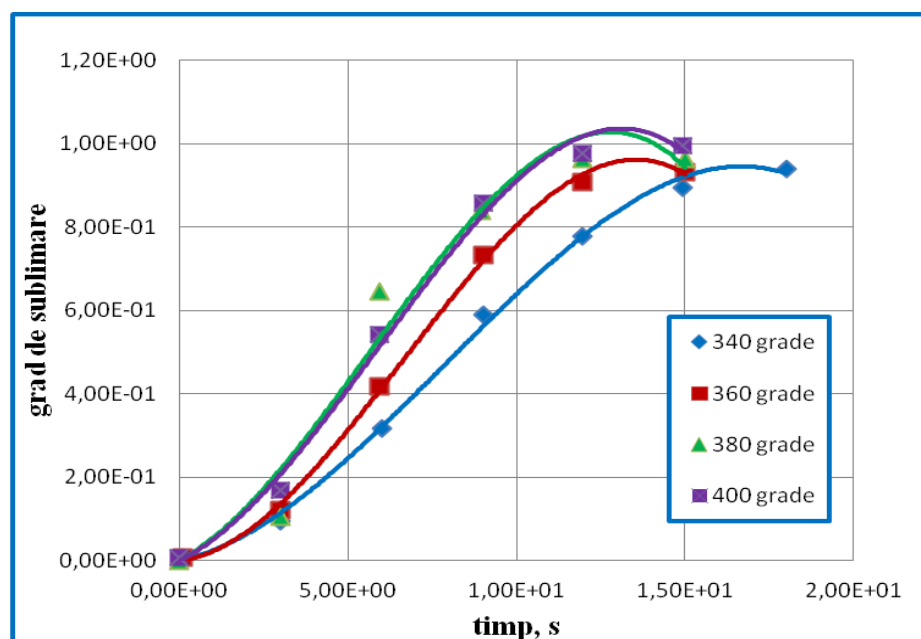


Figura 4.49. Dependența $\eta = f(t)$, $M_v = 50$ l/h, $d_p = 0.1875$ mm.

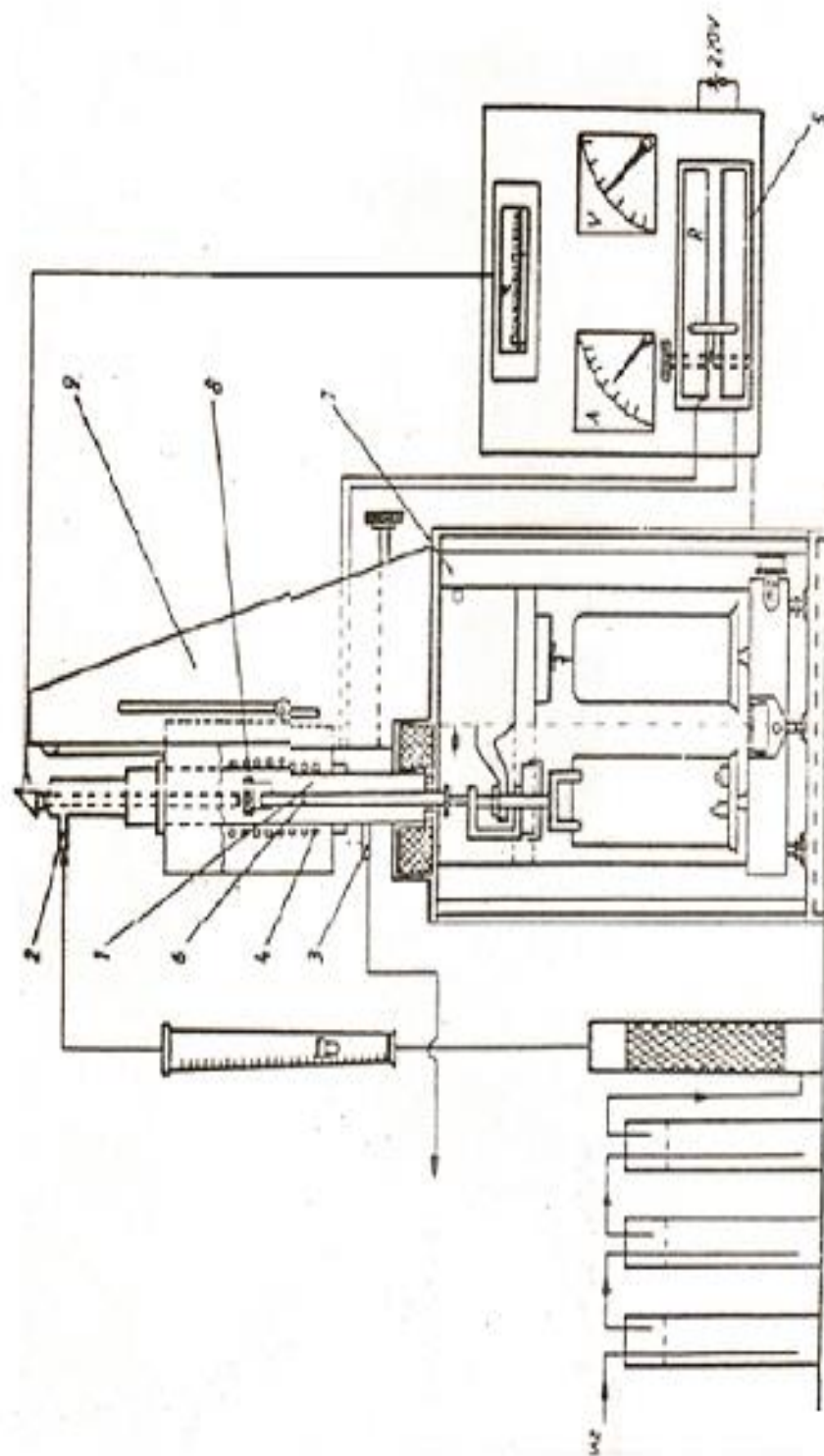


Figura 4.47 Schema instalației experimentale pentru studiul cineticii procesului de sublimare al clorurii de amoniu 1-reactor, 2-3-racorduri, 4-racorduri, 5-autotransformator 6-tijă, 7-balanta analitică, 8-creuzet, 9-suport

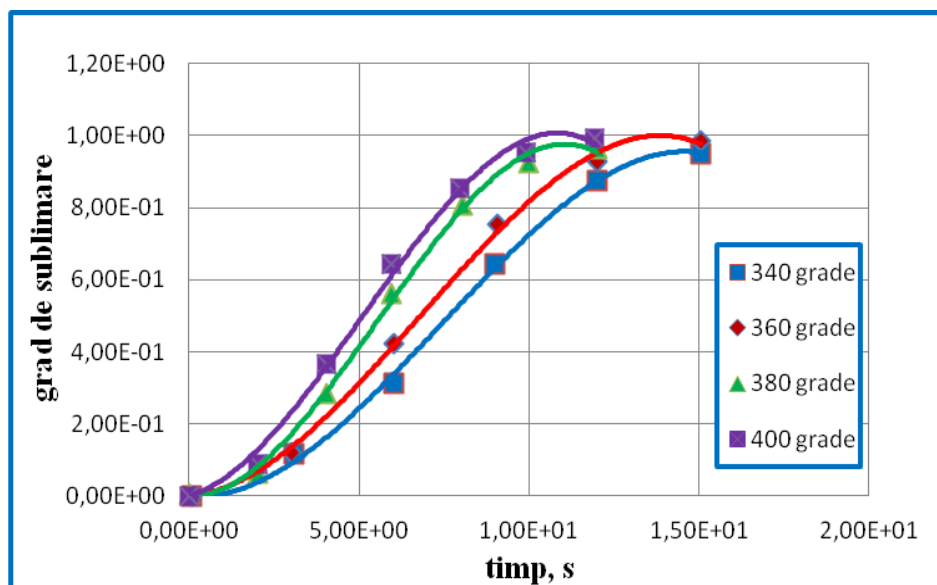


Figura 4.51. Dependența $\eta = f(t)$, $M_v = 20 \text{ l/h}$, $d_p = 0.3575 \text{ mm}$

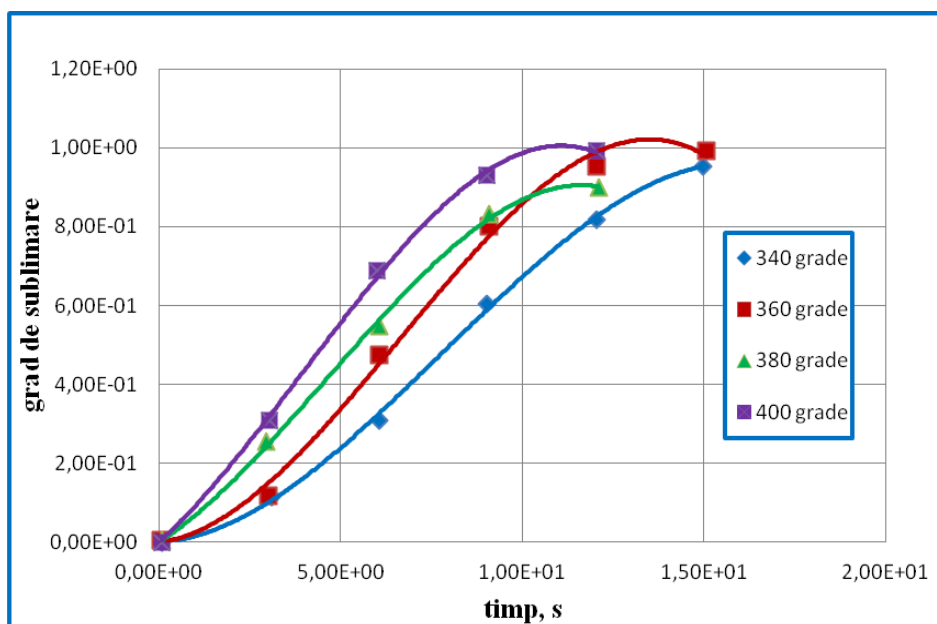


Figura 4.52. Dependența $\eta = f(t)$, $M_v = 50 \text{ l/h}$, $d_p = 0.3575 \text{ mm}$

5. Modelarea și optimizarea procesului de transfer de masă în sublimare

5.1. Modelare fenomenologică

5.1.1. Sublimare la nivel de particulă individuală fără reacție chimică

Procesul de sublimare a naftalinei poate fi descris de ecuația de transfer de masă:

$$N_A = K_A \cdot A \cdot \Delta Y_{med} \quad [\text{mol/s}] \quad (5.1)$$

în care:

N_A este cantitatea de naftalină ce sublimează într-o secundă [mol/s];

K_A – coeficientul global de transfer de masă [$\text{mol}/(\text{s} \cdot \text{m}^2 \cdot \Delta C)$];

A – suprafața de transfer de masă [m^2];

ΔY_{med} – potențialul transferului de masă [ΔC].

S-a preferat ecuația în termeni de presiune:

$$N_A = K_P \cdot A \cdot \Delta P_{med} \quad (5.2)$$

deoarece ΔP_{med} se poate calcula ca fiind diferența între presiunea de vapori a naftalinei la suprafața particulei și presiunea de vapori a naftalinei în antrenantul gazos.

Presiunea de vapori a naftalinei la suprafața particulei s-a calculat cu relația:

$$p_v(t) = 133.3 \cdot 10^{\left(10.0896 - \frac{2626.61}{t + 273.33}\right)} \quad [\text{Pa}] \quad (5.3)$$

Presiunea de vapori a naftalinei în antrenantul gazos are în schimb o valoare mică, la limită fiind considerată nulă.

Stabilirea modelului fenomenologic pentru particulele cilindrice de naftalină, pastile mari, tije și palete de naftalină fixate în suporturi speciali ce asigură o suprafață plană în contact cu antrenantul s-a realizat cu ajutorul unor programe realizate în Mathcad.

Pentru determinarea coeficientului global de transfer de masă K_P s-a folosit o ecuație criterială de forma:

$$Sh = a + b \cdot Re^c \cdot Sc^d \quad (5.4)$$

în care valorile constantelor a , b , c și d au fost stabilite prin încercări după ce inițial au fost utilizate valori din literatură [Frössling, 1938].

Ecuația de inițializare considerată a fost:

$$Sh = 2 + 0.5 \cdot Re^{0.5} \cdot Sc^{0.33} \quad (5.5)$$

Criteriul Sherwood s-a determinat cu următoarea expresie:

$$Sh = \frac{k_g \cdot l}{D_{naf}} \quad (5.6)$$

unde:

k_g este coeficient individual de transfer de masă;

l este o dimensiune caracteristică a particulei de obicei diametrul acesteia, sau diametrul echivalent dacă particula nu este sferică;

D_{naf} - este coeficientul de difuzie al vaporilor de naftalină în aer pentru care s-a folosit o valoare determinată în literatură ($6.28 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 / \text{s}$).

Coeficientul global K_p a fost determinat cu relația:

$$K_p = k_g \frac{P}{R \cdot T} \quad (5.7)$$

în care:

P - presiunea de lucru în instalație, s-a considerat presiunea atmosferică

$$P = 1.033 \cdot 10^5 \text{ Pa};$$

R - constanta universală a gazelor;

T - temperatura gazului antrenant [K].

Criteriul Reynolds s-a calculat cu următoarea relație:

$$Re = \frac{\rho_{aer} \cdot v_m \cdot l}{\eta_{aer}} \quad (5.8)$$

în care:

ρ_{aer} -densitatea antrenantului (aer) calculată la temperatura de lucru;

η_{aer} -vîscozitatea antrenantului (aer) calculată la temperatura de lucru;

v_m -viteza medie a antrenantului (aer) calculată din debitul de antrenant raportat la secțiunea în care s-a introdus proba;

l - dimensiunea caracteristică a probei, funcție de natura probei și poziția de amplasare a acesteia.

Criteriul Schmidt a fost calculat cu expresia:

$$Sc = \frac{\eta_{aer}}{\rho_{aer} \cdot D_{naf}} \quad (5.9)$$

cu semnificația mărimilor prezentată mai sus. Criteriul Schmidt fiind un criteriu al proprietăților ce depinde de temperatura de lucru nu și de o dimensiune a probei a fost considerat la o putere ce nu s-a modificat în model, și anume 0.33.

Pe baza condițiilor inițiale ale experimentelor, s-au stabilit parametrii de inițializare. Astfel, s-au determinat atât dimensiunile inițiale ale particulelor, cât și masa acestora și parametrii de curgere ai gazului (densitatea, vâscozitatea, viteza medie), inclusiv temperatura.

Pentru dimensiunile particulei s-au considerat importante diametrul, d și înălțimea, h și raportul lor (h/d).

S-a stabilit intervalul de timp de eșantionare de o secundă.

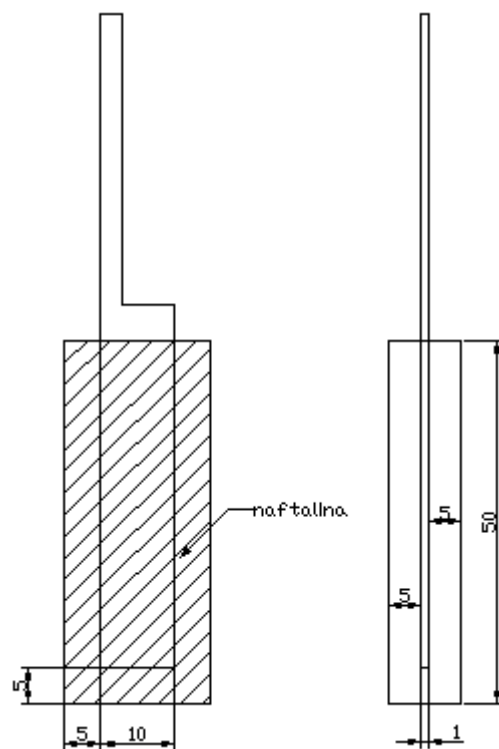


Figura 5.3. Secțiune prin pastile tip paletă imersate în naftalină.

S-a calculat cantitatea de naftalină ce sublimează în timp de o secundă de pe suprafața particulei și apoi s-au determinat noile dimensiuni ale particulei astfel:

- Dacă sublimarea are loc numai de pe o față a particulei scaldată de aer atunci se reduce înălțimea h a particulei, ceea ce presupune scăderea grosimii stratului de naftalină.
- Dacă sublimarea decurge de pe întreaga suprafață atunci are loc scăderea și a diametrului particulei, însă s-a păstrat factorul de formă al particulei (raportul h/d constant).

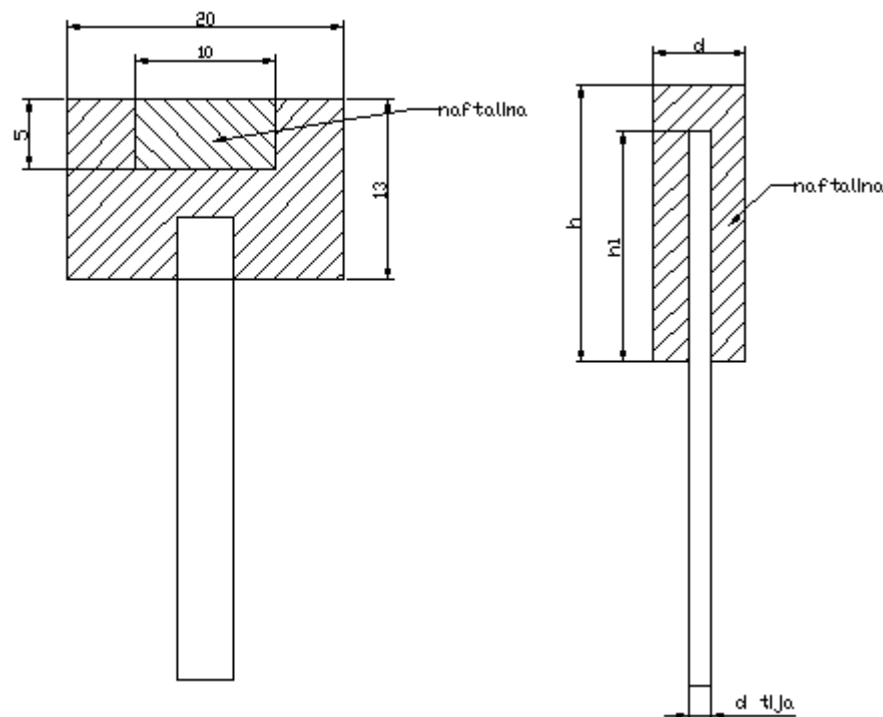


Figura 5.4. Secțiune prin pastile tip paletă imersate în naftalină.

După calcularea masei particulei și a dimensiunilor geometrice, s-a determinat volumul particulei astfel încât modificarea de masă să corespundă și cu modificarea volumului. S-a considerat că noile dimensiuni sunt calculate corect dacă eroarea de calcul a iterației este sub o valoare acceptabilă de 1% din acel parametru recalculat.

Modelul fenomenologic conceput a permis și determinarea masei de naftalină pierdute după un interval de 10 secunde de la începerea modelării, acest timp fiind necesar pentru atenuarea oscilațiilor ce pot apărea la inițializarea calculului.

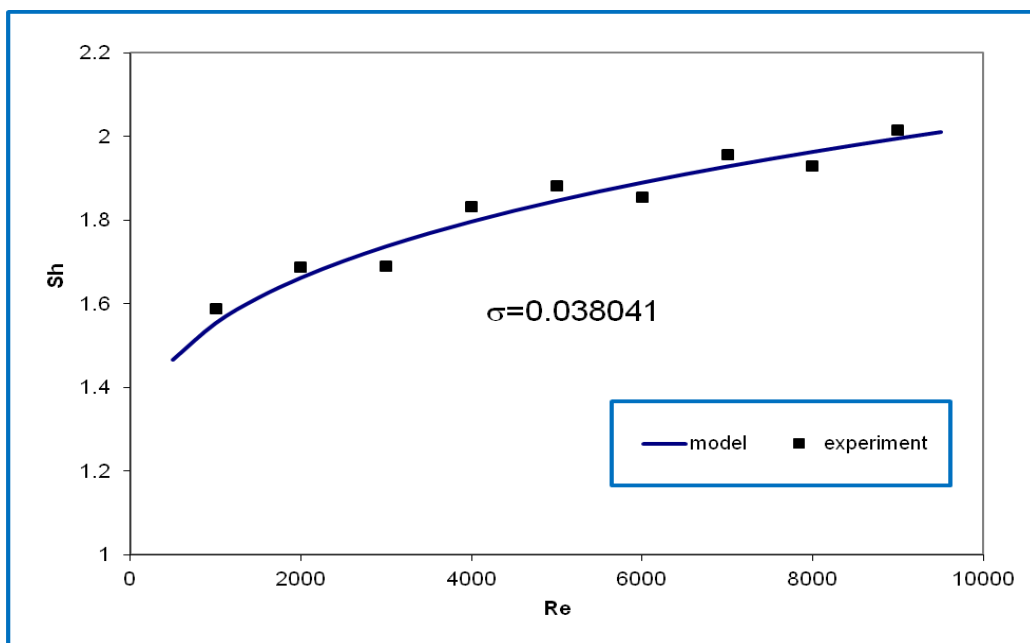


Figura 5.5. Verificarea modelului fenomenologic construit pentru tije

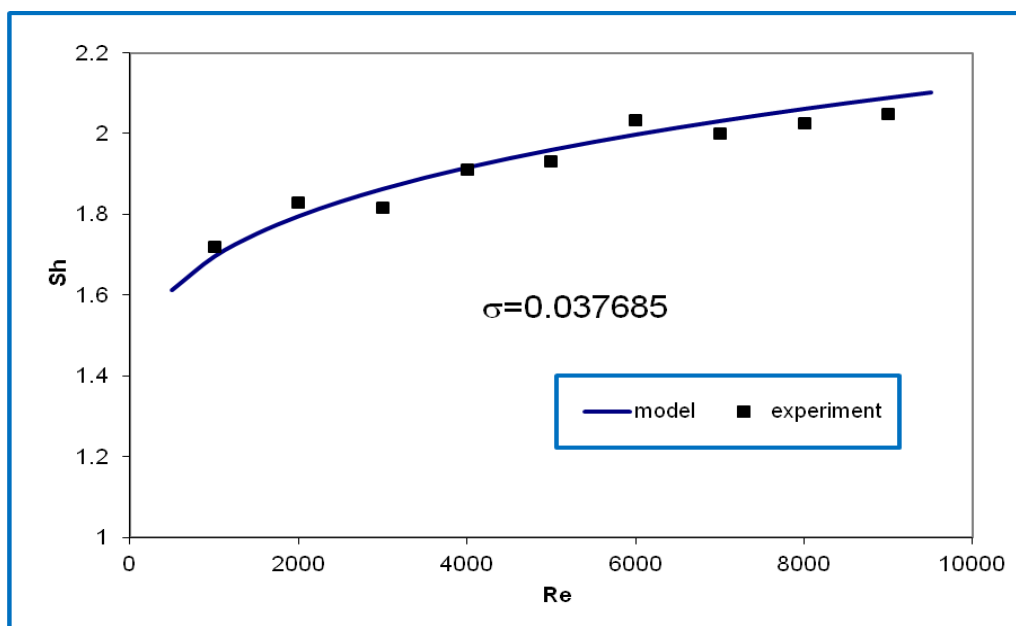


Figura 5.6. Verificarea modelului fenomenologic construit pentru pastile mici

5.2. Modelare bazată pe rețele neuronale

5.2.1. Modelarea sublimării particulelor sferice de naftalină cu rețele neuronale

Același proces a fost abordat și prin simulare, dezvoltând o metodologie de modelare și optimizare bazată pe instrumente ale inteligenței artificiale, respectiv rețele neuronale și

algoritmi genetici. Scopul acestei metode a fost determinarea condițiilor optime de lucru care conduc la maximizarea sau minimizarea vitezei de sublimare.

Rezultatele bune obținute demonstrează eficiența *metodei neuro-evolutive* proiectate.

5.2.1.2. Metodologia de modelare

În cazul de față, s-a propus o metodologie generală și eficientă bazată pe rețele neuronale artificiale și algoritmi genetici pentru modelarea și optimizarea procesului de sublimare a naftalinei sub formă de particule sferice.

Revenind la sublimarea particulelor sferice de naftalină, orientarea spre modelare cu rețele neuronale a avut în vedere abilitatea acestor modele de a învăța ce se întâmplă în proces fără a fi necesară cunoașterea temeinică a legilor fizice și chimice ce guvernează sistemul. Prin urmare, comparativ cu posibilele modele fenomenologice, și presupunând că se obțin rezultate satisfăcătoare cu ambele tipuri de modele, avantajul RNA provine din caracterul lor general legat de principiul de operare de tip „black box”. Astfel, este necesar doar un set de date ce conțin valori pentru intrări și ieșiri, iar modelul va fi capabil să facă predicții pentru date „nevazute” (date care nu au fost incluse în setul de antrenare, dar sunt situate în domeniul investigat). S-au ales și testat rețele neuronale de tip MLP pentru a evalua performanțele procesului de sublimare a naftalinei, cuantificate prin viteza de sublimare. Motivul alegerii acestui tip de rețea neuronală se bazează pe structura sa simplă, ușurința în proiectare și antrenare, predicțiile bune pe care le poate furniza și pe posibilitatea de combinare cu alte tehnici de simulare (în acest caz algoritmi genetici).

5.2.1.4. Rezultate de simulare (modelare)

Setul de date experimentale a fost împărțit în date de antrenare (2/3) și de testare - restul de 1/3. Antrenarea rețelelor neuronale s-a făcut prin metoda încercărilor succesive, combinată cu algoritmul de propagare înapoi. Acest lucru s-a aplicat unor modele neuronale de diferite tipuri și configurații.

Rezultatele prezentate în tabelul 5.2 conțin eroarea medie pătratică (MSE) și coeficientul de corelație între datele experimentale și cele de simulare (r) atât pentru antrenare, cât și pentru faza de validare. Rețelele neuronale au fost antrenate 1000 de epoci în toate cazurile evidențiate în tabel. De asemenea, sunt incluse valorile medii obținute prin repetarea procedurii de modelare de câte zece ori pentru fiecare caz în parte.

Tabelul 5.2. Câteva rețele neuronale dezvoltate pentru predicția vitezei de sublimare a naftalinei

Topologie	Erori la antrenare	Erori la testare
MLP(3:10:1)	MSE = 0.00347494 r = 0.99298369	MSE = 0.30491332 r = 0.90598949
MLP(3:20:1)	MSE = 0.00285205 r = 0.99413245	MSE = 0.27174911 r = 0.93332420
MLP(3:15:5:1)	MSE = 0.00313537 r = 0.99345621	MSE = 0.26584775 r = 0.92997811
MLP(3:30:10:1)	MSE = 0.00201338 r = 0.99589341	MSE = 0.30395279 r = 0.90937532

5.2.2. Modelarea sublimării particulelor de naftalină cu rețele neuronale dezvoltate cu algoritmul evoluție diferențială

Aplicând algoritmi evolutivi la determinarea topologiei rețelelor neuronale se obțin așa numitele *metode neuro-evolutive*. Din grupul algoritmilor evolutivi, algoritmul evoluție diferențială (DE) reprezintă un instrument cu convergență rapidă și rezultate bune comparativ cu alți algoritmi EA, în particular cu algoritmi genetici.

5.2.2.1. Metodologie de modelare

5.2.2.1.1. Algoritmul evoluție diferențială

DE este o euristică care poate fi aplicată diferitelor tipuri de probleme practice.

În abordarea noastră, parametrii algoritmului evoluează în același timp cu indivizii, deci nu se aplică formule și mecanisme deosebite pentru determinarea valorilor lor. Ideea acestei **strategii adaptive** s-a bazat pe includerea parametrilor F și Cr în vectorul țintă, valorile lor schimbându-se numai când fitness-ul vectorului încercare este mai mare decât al celui țintă. Astfel, se folosesc numai parametrii ce determină cei mai buni indivizi și timpul de calcul se păstrează aproximativ același ca în strategiile clasice.

5.2.2.1.2. Tehnica neuro-evolutivă

În această secțiune, algoritmul DE, proiectat în diverse variante, a fost aplicat pentru determinarea rețelei neuronale optime care modelează dependența vitezei de sublimare funcție de timp, temperatură și debitul agentului de antrenare, pentru diferite forme și dimensiuni ale particulelor de naftalină.

Numărul de intrări și ieșiri este fixat și determinat de caracteristicile bazei de date utilizate. În consecință, numărul de intrări este 3 corespunzând timpului, temperaturii și debitului agentului de antrenare, iar numărul de ieșiri este egal cu 1 – viteza de sublimare.

În abordarea prezentă, pentru a obține mai multe variante DE, au fost testate mai multe tipuri de *inițializări*.

Au fost testate două variante de bază: DE/Rand/1/Bin și DE/Rand/2/Bin în care vectorul de bază pentru *mutație* este ales *aleatoriu* (Rand), mutația este realizată cu *unul sau doi termeni diferențiali* (1, 2) și *tipul de crossover* este *binomial* (Bin). De asemenea, este inclusă în algoritm o *strategie auto-adaptivă* în care factorul mutație și viteza de crossover au fost transformate la fel ca soluțiile (indivizii) algoritmului DE.

5.2.2.2. Rezultate de simulare

Pentru fiecare dintre cele două variante DE, respectiv DE/Rand/1/Bin și DE/Rand/2/Bin și pentru fiecare dintre cele patru tipuri de inițializare alese (Random, Halton, Gauss, Cauchy) s-au făcut câte 50 de simulări. Rezultatele constau în rețelele neuronale obținute, aranjate descrescător după performanță, deci începând cu cea mai bună, precum și valoarea fitness-ului, MSE în faza de antrenare (MSE_{tr}), MSE în faza de testare (MSE_{test}) și topologia (Topol) pentru fiecare rețea neuronală.

Comparații între datele experimentale și cele de simulare sunt redată experimental pentru cele patru tipuri de inițializare în figurile 5.9 – 5.12. Rezultate similare sunt date și pentru varianta DE/Rand/2/Bin, în care mutația este caracterizată de doi termeni diferențiali.

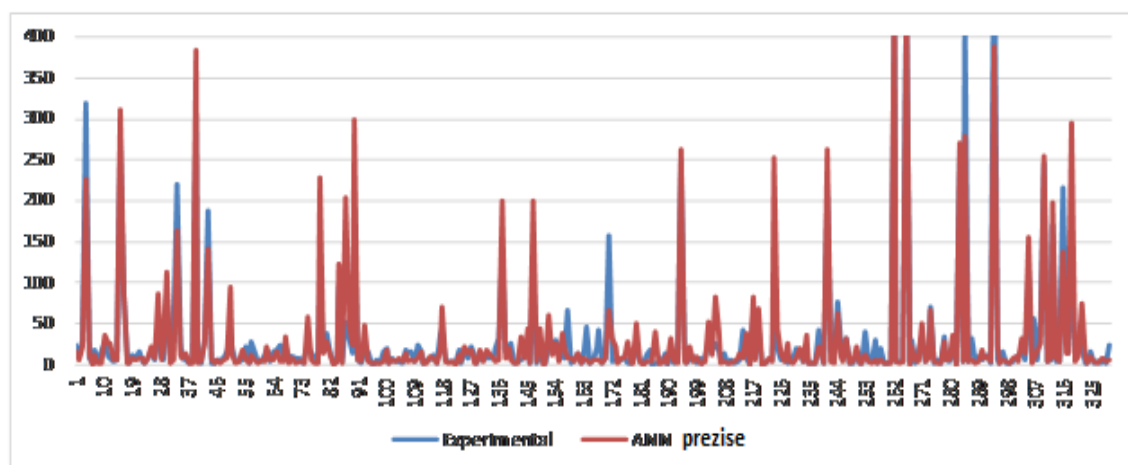


Figura 5.9. Date experimentale și de simulare furnizate de MLP(7:15:7:1) corespunzătoare DE/Rand/1/Bin și inițializării Random.

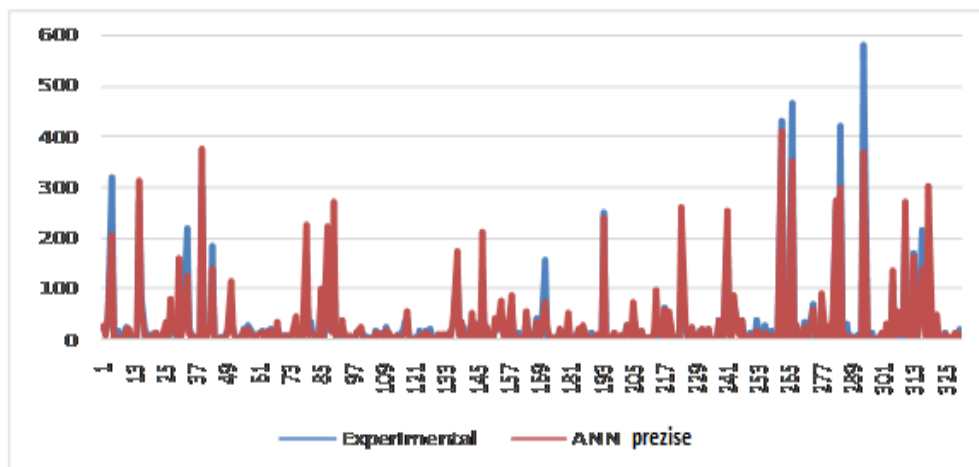


Figura 5.10. Date experimentale și de simulare furnizate de MLP(7:12:7:1) corespunzătoare DE/Rand/1/Bin și inițializării Halton points.

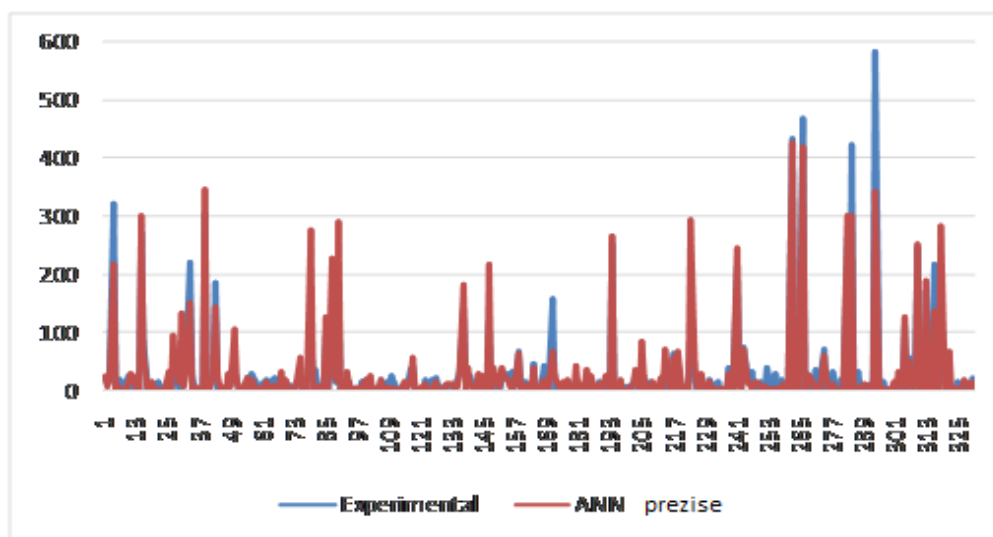


Figura 5.11. Date experimentale și de simulare furnizate de MLP(7:16:1) corespunzătoare DE/Rand/1/Bin și inițializării Gauss

5.3. Optimizarea procesului de sublimare folosind algoritmi evolutivi

5.3.1. Metodologia de optimizare

Modelul neuronal dezvoltat și prezentat în secțiunile precedente a fost inclus într-o procedură de optimizare rezolvată cu AG. Algoritmul genetic a fost aplicat în două variante, *simplic* și *adaptiv*, printr-o implementare proprie.

5.3.1.1. Algoritm genetic simplu (AGS)

În prezenta teză s-a folosit pentru selecție o variantă a *metodei ruletă-roată* [J.E. Baker, 1987] care începe cu un număr mic aleator și alege viitorii candidați din restul populației. Se eșantionează soluțiile prin alegerea lor pe intervale, astfel încât membrii populației să nu satureze spațiul disponibil. Astfel, membrii cu fitness mai prost au, totuși, șansa de a fi aleși și se reduce caracterul abuziv al metodei de selecție bazat pe fitness.

Principalele etape ale AG sunt prezentate în figura 5.17.

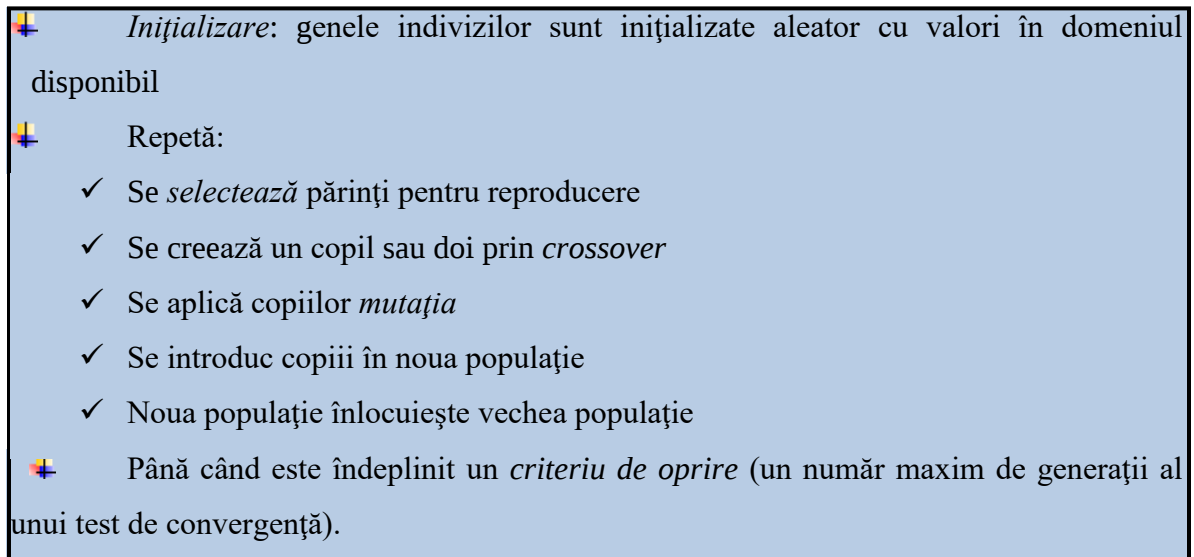


Figura 5.17. Etapele AG aplicat pentru optimizarea sublimării naftalinei

5.3.1.2. Algoritm genetic adaptiv

O metodă de a evita dificultățile cu care se confruntă parametrii unui AG (menționate în secțiunea precedentă) este adaptarea probabilităților recombinării și mutației la problema de optimizare formulată. În același timp, se realizează îmbunătățirea performanței algoritmului și va fi prevenită convergența prematură la un optim local.

5.3.1.3. Tehnica neuro-evolutivă de optimizare (AG-RNA)

Pentru procesul în studiu, este necesar un model MLP (3:x:[y]:1), în care cele trei intrări sunt: timpul, t , temperatura agentului de antrenare, T , și debitul agentului de antrenare, M , iar ieșirea este reprezentată de viteza de sublimare, v_s . Rețeaua poate avea unul sau două straturi ascunse cu x și, posibil, y neuroni intermediari.

Datorită capacității de interpolare a modelului neuronal, în cadrul procesului de optimizare se realizează căutarea în spațiul soluției într-un mod flexibil. Procedura de optimizare este redată în figura 5.18.

- ✚ Un cromozom este inițializat sau evoluează cu trei gene de valoare reală, corespunzătoare intrărilor t , T și M .
- ✚ Se calculează funcția de fitness corespunzătoare aplicând aceste trei valori ca intrări ale rețelei neuronale; funcția de fitness este ieșirea rețelei, v_s , când se cere valoarea minimă, sau $1/v_s$, când obiectivul optimizării este reprezentat de maximizarea vitezei de sublimare a naftalinei.
- ✚ Cromozomul este procesat în continuare cu ajutorul operatorilor genetici ai algoritmului.

Figura 5.18. Etapele optimizării AGA - RNA aplicată sublimării naftalinei

Scopul algoritmului AGA este acela de a găsi valorile minime și maxime ale v_s , precum și condițiile care duc la aceste valori. Criteriul de stop al procedurii constă în numărul maxim de generații.

5.3.2. Rezultate de optimizare

Pentru a evalua performanța algoritmului genetic adaptiv folosit pentru maximizarea sau minimizarea vitezei de sublimare, s-a realizat o comparație cu un algoritm genetic simplu, folosind o probabilitate pentru crossover de 90% și o probabilitate a mutației de 2%, precum și *tehnica elitismului*, conform căreia cel mai bun individ din populație este copiat direct în următoarea populație.

AGA are aceeași configurație ca și AG, cu deosebirea că probabilitățile crossover-ului și mutației sunt determinate în mod dinamic în timpul execuției algoritmului. Valorile constantelor $k_1 = 1$ și $k_2 = 0.5$ sunt sugerate de Srinivas [Srinivas și Patnaik, 1994].

CONCLUZII FINALE

Teza de doctorat abordează un domeniu actual și atractiv al ingineriei chimice și anume studiul experimental al transferului de masă în proces de sublimare, modelarea și optimizarea procesului de sublimare utilizând rețele neuronale și algoritmi evolutivi.

Studiul experimental al lucrării de față vizează:

6.1. Studiul cineticii sublimării la nivel de particulă individuală fără reacție chimică

În acest scop s-au avut în vedere următoare aspecte:

6.1.1. Pentru studiul cineticii sublimării la nivel de particulă sferică

S-a stabilit o metodă pentru determinarea experimentală a vitezei de sublimare și a coeficientului de transfer de masă. Astfel, s-a determinat viteza de sublimare și coeficientul de transfer de masă la sublimarea naftalinei în prezența aerului cald ca antrenant. Experimentele s-au realizat utilizând particule sferice de naftalină fixate pe tije metalice în contact cu antrenantul. S-a studiat, de asemenea, influența temperaturii și a debitului de antrenant asupra vitezei de sublimare.

Datele obținute în urma experimentelor efectuate în această lucrare evidențiază următoarele:

- gradul de sublimare și viteza de sublimare cresc cu creșterea debitului de antrenant și a temperaturii;

- raza granulei scade liniar în timp cu creșterea debitului de antrenant și a temperaturii;

- gradul de sublimare și viteza de sublimare crește cu creșterea temperaturii și cu creșterea debitului de antrenant.

6.1.2. Pentru studiul cineticii sublimării la nivel de particulă cilindrică, paletă, tijă și pastilă

Pentru determinările experimentale, s-au utilizat particule cilindrice, paleți și pastile de naftalină fixate în suporti speciali ce asigură o suprafață plană în contact cu antrenantul. Metoda este utilizată pentru determinarea vitezei de sublimare și a coeficientului de transfer de masă la sublimarea naftalinei în prezența aerului cald ca antrenant și pentru studiul influenței temperaturii și a debitului de antrenant asupra vitezei de sublimare și a coeficientului de transfer de masă.

Datele obținute în urma experimentelor efectuate evidențiază următoarele:

- gradul de sublimare crește cu creșterea temperaturii și a debitului de aer;

- viteza de sublimare crește cu creșterea temperaturii și a debitului de aer;
- viteza de sublimare crește accentuat cu creșterea temperaturii și cu creșterea timpului de contact dintre antrenant și particulele de diferite forme.

6.2. Studiul cineticii sublimării la nivel de particulă individuală în prezența reacției chimice

S-a studiat cinetica procesului de sublimare a clorurii de amoniu în strat fix de granule încălzit de antrenant. Ca antrenant s-a utilizat aer uscat. Pe baza datelor experimentale s-a evidențiat influența temperaturii și a debitului de antrenant asupra vitezei procesului de sublimare.

Datele obținute în urma experimentelor evidențiază următoarele:

- gradul de sublimare crește cu creșterea temperaturii indiferent de debitul de antrenant;
- debitul de antrenant are o influență pozitivă asupra gradului de sublimare la valori mici, la valori mari ale debitului el influențează negativ gradul de sublimare;
- la timpi mici gradul de sublimare are valori foarte mici, la valori mai mari ale timpului crește gradul de sublimare;
- raza frontului de sublimare scade lent în timp, urmată de o scădere mai accentuată la valori mai mari ale timpului.

6.3. Modelarea și optimizarea procesului de transfer de masă în sublimare

S-a realizat un model matematic care corelează criteriul Sherwood cu variația criteriilor Schmidt și Reynolds. Ecuația criterială obținută pentru fiecare tip de particulă permite de asemenea, calculul coeficientului individual de transfer de masă. Deviațiile standard calculate sunt mai mici de 0,04 pentru tije, pastile mari și mici și mai mici de 0,08 pentru palete.

Același proces a fost abordat și prin simulare, dezvoltând o metodologie de modelare și optimizare bazată pe instrumente ale inteligenței artificiale, respectiv rețele neuronale și algoritmi genetici. Scopul acestei metode a fost determinarea condițiilor optime de lucru care conduc la maximizarea sau minimizarea vitezei de sublimare,

S-a propus o metodologie generală și eficientă bazată pe rețele neuronale artificiale și algoritmi genetici pentru modelarea și optimizarea procesului de sublimare a naftalinei sub formă de particule sferice.

S-au ales și testat rețele neuronale de tip MLP pentru a evalua performanțele procesului de sublimare a naftalinei, cuantificate prin viteza de sublimare. În modelare s-au folosit 150 de

date experimentale, considerând ca principale variabile timpul, temperatura agentului de antrenare și debitul agentului de antrenare.

Algoritmul DE, proiectat în diverse variante, a fost aplicat pentru determinarea rețelei neuronale optime care modelează dependența vitezei de sublimare funcție de timp, temperatură și debitul agentului de antrenare, pentru diferite forme și dimensiuni ale particulelor de naftalină. Pentru a obține mai multe variante DE, au fost testate mai multe tipuri de *inițializări*.

Au fost testate două variante de bază: DE/Rand/1/Bin și DE/Rand/2/Bin în care vectorul de bază pentru *mutație* este ales *aleatoriu* (*Rand*), mutația este realizată cu *unul sau doi termeni diferențiali* (1, 2) și *tipul de crossover* este *binomial* (*Bin*). De asemenea, este inclusă în algoritm o *strategie auto-adaptivă* în care factorul mutație și viteza de crossover au fost transformate la fel ca soluțiile (indivizii) algoritmului DE.

Pentru fiecare dintre cele două variante DE, respectiv DE/Rand/1/Bin și DE/Rand/2/Bin și pentru fiecare dintre cele patru tipuri de inițializare alese (Random, Halton, Gauss, Cauchy) s-au făcut câte 50 de simulări. Toate rețelele neuronale furnizează rezultate satisfăcătoare, dar, dacă ar trebui selectată una dintre ele pe baza celor mai mici erori aceasta ar fi MLP(7:6:6:1), corespunzătoare inițializării Cauchy.

Cinetica sublimării și transferul de masă la sublimarea cu antrenant gazos pentru particulele sferice de naftalină a fost selectat pentru a realiza optimizarea cu instrumente ale inteligenței artificiale – algoritmi genetici, combinați cu rețele neuronale. Scopul optimizării a fost determinarea condițiilor optime în care se realizează maximizarea sau minimizarea (după cerințele procesului) vitezei de sublimare a particulelor sferice de naftalină.

Algoritmul genetic a fost aplicat în două variante, *simplu* și *adaptiv*, printr-o implementare proprie.

Pentru a evalua performanța algoritmului genetic adaptiv folosit pentru maximizarea sau minimizarea vitezei de sublimare, s-a realizat o comparație cu un algoritm genetic simplu, folosind o probabilitate pentru crossover de 90% și o probabilitate a mutației de 2%, precum și *tehnica elitismului*, conform căreia cel mai bun individ din populație este copiat direct în următoarea populație.

PUBLICAȚII CE VIZEAZĂ OBIECTIVELE REZOLVATE ÎN TEZĂ

• Lucrări ISI

1. Smărândoiu M., Mămăligă I., Petrescu S., Mass transfer in sublimation process, Studia Universitatis Babeș- Bolyai, Chemia, LIV, 54 (1), pp. 203-213, 2009, factor de impact 0.191.
2. Curteanu S., Smărândoiu M., Horoba D., Leon F., Naphtalene sublimation. Experiment and optimisation based on neuro-evolutionary methodology, Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 2013, 20 (2014) 1608–1611, factor de impact 3.512.
3. Drăgoi Elena-Niculina, Smărândoiu M., Curteanu S., Neural networks developed with Differential Evolution algorithm applied for modeling a sublimation process, prepared for Engineering Application of Artificial Intelligence.
4. Catalin Lisa, Mirela Smarandoiu, Silvia Curteanu The mass transfer between a single naphthalene particle and air. The estimation of the mass transfer coefficients, Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, in curs de redactare.

• Lucrări BDI

1. Mihăilă G, Petrescu S., Vînturache C., Smărândoiu M., An experimental study of the ammonium chloride sublimation, Anal. Șt. Univ. Al. I. Cuza Iași, Tom. 5, p 159-166, 1997.

• Participări la manifestări științifice (comunicări, postere)

1. Petrescu S., Smărândoiu M., Mămăligă I., Ispas I., Transfer de masă solid- gaz la sublimare, Simpozionul performanțe în Chimia Mileniului III, București, 2-3 Noiembrie 2005.
2. Smărândoiu M., Galben I., Mămăligă I., Petrescu S., Experimental study of mass transfer in sublimation, Zilele academice Timișene, Ediția a X a, 24-25 Mai 2007, Simpozion Inginerie Chimică, Timișoara, Romania.
3. Sârcu M., Smărândoiu M., Tudose E., Petrescu S., Modelarea matematică a procesului de sublimare cu antrenant, Zilele Facultății de Inginerie Chimică și Protecția mediului, Iași, 17-19 Noiembrie 2010, Univ. Tehnică Gh. Asachi Iași, P-S2-9.

BIBLIOGRAFIE SELECTIVĂ

1. Abbas, T., Awais, M.M., Lockwood, F.C., An artificial intelligence treatment of devolatilization for pulverized coal and biomass in co-fired flames, Combustion and Flame, 132, 305–318, 2003.
2. Adebisi OA, Corripio AB. Dynamic neural networks partial least squares (DNNPLS) identification of multivariable processes. Comput Chem Eng 2003; 27: 143 – 155.

3. Aijun, L., Hejun, L., Kezhi, L., Zhengbing, G., Applications of neural networks and genetic algorithms to CVI processes in carbon/carbon composites, *Acta Materialia*, 52, 299–305, 2004.

9. Arnold, S.J., H. Simon, J. Barlow, S. Belcher, M. Bell, J.W. Boddy, R. Britter, H. Cheng, R. Clark, R.N. Colville, S. Dimitroulopoulou, A. Dobre, B. Greally, S. Kaur, A. Knights, T. Lawton, A. Mekepeace, D. Martin, M. Neophytou, M. Neville, M. Nieuwenhuijsen, G. Nickless, C. Price, A. Robins, D. Shallcross, P. Simmonds, R.J. Smalley, J. Tate, A.S. Tromlin, H. Wang, P. Walsh, *Sci. Total Environ.* 332, 139-153, 2004.

10. Ash T. Dynamic node creation in backpropagation networks. *Connection Sci.* 1989; 1: 365–375.

22. Belarbi K, Bettou K, Mezaache A. Fuzzy neural networks for estimation and fuzzy controller design: simulation study for a pulp batch digester. *J Process Control* 2000; 10: 35 – 41.

34. Capdevila C, Garc í a-Mateo C, Caballero FG, Andr e s CGd. Proposal of an empirical formula for the austenitising temperature. *Mater Sci Eng A* 2004; 386: 354 – 361.

35. Carcano, E.C., Bartolini, P., Muselli, M., Piroddi, L., Jordan recurrent neural network versus IHACRES in modelling daily streamflows, *Journal of Hydrology*, 362, 291– 307, 2008.

36. Castillo, P. A.; Merelo, J. J.; Prieto, A.; Rivas, V.; Romero, G. G- Prop: Global optimization of multilayer perceptrons using Gas. *Neurocomputing* 2000, 35, 149.

55. Curteanu, S., Cartwright, H. Neural networks applied in chemistry. I. Determination of the optimal topology of multilayer perceptron neural networks. *J. Chemom.*, in press. doi:10.1002/cem.1401.

56. Curteanu S, Hugh C. *Neural networks applied in chemistry. I. Determination of the optimal topology of multilayer perceptron neural networks*, *Journal of chemometrics*, 2011

57. Curteanu S. *Direct and inverse neural network modeling in free radical polymerization*. *Cent. Eur. J. Chem.* 2004; 2: 113–140.

58. Curteanu, S., 2004. Direct and inverse neural network modeling in free radical polymerization. *Central European Journal of Chemistry*, 2 (1), 113–140.

59. Curteanu S, Petrila C. *Neural network based modeling for semibatch and nonisothermal free radical polymerization*. *Int. J. Quantum Chem.* 2006; 106: 1445–1456.

60. Curteanu S, Piuleac C, Godini K, Azaryan G. Modeling of electrolysis process in wastewater treatment using different types of neural networks. *Chem Eng J* 2011; 172: 267 – 276.

61. Curteanu S, Leon F. *Hybrid neural network models applied to a free radical polymerization process*. *Polym. Plast. Technol. Eng.* 2006; 45:1013–1023.

62. Curteanu S, Leon F. Optimization strategy based on genetic algorithms and neural networks applied to a polymerization process. *Int. J. Quantum Chem.* 2007; 108: 617–630.
63. Curteanu S, Petrila C. Neural network based modeling for semi-batch and nonisothermal free radical polymerization. *Int J Quantum Chem* 2006; 106: 1445 – 1456.
64. Curteanu S, Leon F. Hybrid neural network models applied to a free radical polymerization process. *Polym-Plast Technol* 2006; 45: 1013 – 1023.
65. Curteanu S, Dumitrescu A, Mihailescu C, Simionescu B. Neural network modeling applied to polyacrylamide based hydrogels synthesized by single step process. *Polym-Plast Technol* 2008a; 47: 1061 – 1071.
66. Curteanu, S.; Cartwright, H. Neural networks applied in chemistry. I. Determination of the optimal topology of neural networks. *J. Chemom.* 2011, 25, 527.
67. Curteanu S, Dumitrescu A, Mihailescu C, Simionescu B. Neural network modeling applied to polyacrylamide based hydrogels synthesized by single step process. *Polym. Plast. Technol. Eng.* 2008a; 47: 1061–1071.
68. Curteanu, S. and Petrila, C., 2006. Neural network based modeling for semi-batch and nonisothermal free radical polymerization. *International Journal of Quantum Chemistry*, 106 (6), 1445–1456.
91. Fahlman, S.E., Lebiere, C., The cascade-correlation learning architecture in D.S. Touretzky, *Advances in neural information processing systems* 2, 524-532, San Mateo, CA: Morgan Kaufmann, 1990.
92. Fang, X., Qi, G., Guo, M., Pan, M., Chen, Y., An improved integrated electronic nose for online measurement of VOCs in indoor air, *Annual International Conference of the IEEE Engineering in Medicine and Biology - Proceedings*, 7 VOLS, art. no. 1617079, 2894-2897, 2005.
93. Felipe-Sotelo, M., Cal-Prieto, M.J., Gomez-Carracedo, M.P., Andrade, J.M., Carlosena, A., Prada, D., Handling complex effects in slurry-sampling-electrothermal atomic absorption spectrometry by multivariate calibration, *Analytica Chimica Acta* 571, 315-323, 2006.
117. Guler, M.O., Artir, R., Modular neural network modeling of compressive strength of high-alumina bricks by using tangent function, *Materials and Design*, 28, 112–118, 2007.