Université Yahia
Farés de Médéa

LBMPT
Médéa - Algérie

T H È S E de Doctorat

Pour l'obtention du grade de docteur délivré par

L'UniversitéYahia Farès de Médéa

Spécialité en « Génie des Procédés »

Option : modélisation des phénomènes de transport en sciences de l'eau et d'environnement.

Présentée et soutenue publiquement par

M me : MELZI Naima

PREDICTION NEURONALE DES COEFFICIENTS PERTINENTS DES PHENOMENES DE TRANSPORT : VISCOSITE, CONDUCTIVITE ET DIFFUSION MOLECULAIRE.

Jury

M. Mohamed Nadjib Bouaziz	Professeur, Université de Médéa	Président
M. Othmane BENKORTBI	Professeur, Université de Médéa	Examinateur
M. Ykhlef LAIDANI	Maître de Conférences (A), Université de Chlef	Examinateur
M. Salah HANINI	Professeur, Université de Médéa	Directeur de thèse
M. Maamar LAIDI	Maître de Conférences (A), Université de Médéa	Co- Directeur de thèse

T H È S E

Laboratoire de Biomatériaux
et Phénomènes de Transport

DEDICACE

Je dédie ce modeste travail à mes très chers et
aimables parents qui sont toute ma fierté et à qui
Je dois tout ce que je suis aujourd'hui et, à ceux
que j'aime tant et qui sont ma joie de vivre.

À ***Mon mari Rami.***

À ***mes enfants Haythem-aya.***

À ***Ma belle mère.***

À ***toute ma famille, à mes chers frères***
(Abdelrahim-Djamel) et à mes sœurs
(Imane, Leila, Farida) qui m'ont escorté durant
Les moments les plus pénibles de ce long chemin.

À ***Soumia Mokhtari.***

À ***mes très chères amies:***
(B. Nacira - M. Djamila - M. Yamina - F. Nassiba - F. Soumia-
M. Yamina- Z. Nada - S. Amina - G. Leila- M. Soumia - B. Mounira-M. Hajira)
A tous mes amies, pour leur amitié, leur soutien moral, et leurs conseils.

À ***mes cousines:***
(H .Wahiba, B. Malik, B. Nessrine).

À ***ma nièce (A. Sarah).***

À ***tous ceux que j'aime, et tous ceux qui m'aiment.***
Je dédie ce modeste travail.

Remerciements et gratitude

Tout d'abord, je tiens à remercier ALLAH Tout Puissant pour toutes les merveilles qu'il fait dans ma vie et pour m'avoir donné le courage, la force et la patience d'achever ce modeste travail.

Je tiens à remercier mon directeur de thèse, Monsieur Salah HANINI, Professeur à l'UYFM, qui m'a guidé avec grande patience tout au long de l'élaboration de ce travail, pour ses aides précieuses qui ont judicieusement éclairés mon chemin vers l'aboutissement et la réussite de la concrétisation de ma thèse de Doctorat.

J'adresse également mes plus grands remerciements au, Docteur Latifa KHAOUANE, Maître de Conférences (A) à l'UYFM, pour son aide, son accompagnement et son éclairage technique. Je lui donne les remerciements les plus sincères.

J'adresse également mes plus grands remerciements au, Docteur Maamar LAIDI, Maître de Conférences (A) à l'UYFM. Je ne peux conclure sans un mot de remerciements à mon Co- Directeur de thèse de doctorat.

Je tiens également à présenter ma profonde gratitude à AMMI Yamina, Maître de Conférences (A) à l'Université de Relizane, Algeria.

Je remercie Monsieur Mohamed Nadjib Bouaziz, Professeur à l'UYFM, pour l'honneur qu'il me fait de présider le jury de ma soutenance.

Je remercie aussi les honorables membres de jury, Professeur. BENKORTBI Othmane et Dr. LAIDANI Ykhlef, Maître de Conférences (A) à l'Université de Chlef Pour avoir accepté d'évaluer ce travail.

Merci à tous ceux qui m'ont aidé de près ou de loin durant ces années de recherches et d'études.

ملخص

التنبؤ العصبي للمعاملات المؤثرة على خصائص النقل : اللزوجة ، والناقلية الحرارية وانتشار الجزيئات.

في هذه الدراسة ، تم استخدام الشبكة العصبية الاصطناعية (RNA) لتطوير نماذج تنبؤية لتقدير خواص النقل عند ضغوط متعددة على نطاق واسع من درجات الحرارة والمواد الغازية.

في هذا السياق ، قمنا بتطوير سبعة نماذج عصبية من نوع feedforward، نموذجان لحساب لزوجة الغازات القطبية والغازات غير القطبية، ثلاثة نماذج عصبية لتقدير الناقلية الحرارية للغازات أحادية الذرة والغازات متعددة الذرات (القطبية وغير القطبية). وتم تخصيص آخر نموذجين لحساب معامل انتشار الغاز (Q^2_{ext}).

تم استخدام مجموعة من 243 نقاط البيانات للزوجة، و 338 نقاط البيانات للتوصيل الحراري، و 1252 نقاط البيانات لمعامل الانتشار لاختبار الشبكات العصبية. واستخدم 70% و15% و15% من إجمالي البيانات على التوالي للتدريب، والتحقق من صحة، واختبار النماذج السبعة. وتظهر النتائج تعديلا جيدا بين القيم المتوقعة والتجريبية لكل نموذج؛ تم العثور على ارتباطات جيدة ((R=0.992 للغازات غير القطبية، R=0.991 للغازات القطبية) للزوجة؛ (R = 0.997 بالنسبة للغازات الأحادية، R=0.988 بالنسبة للغازات القطبية متعددة الذرات ، R= 0.993 بالنسبة للغازات المتعددة الذرات غيرالقطبية) لناقلية الحرارية؛ (R = 0.982 لRN1، R=0.984 لRN2) للانتشار).

وفي الأخير قمنا بدراسة تقييمية لهذه النماذج بمقارنتها بنماذج أخرى منشورة في بحوث علمية, ولقد كشفت هذه الدراسة عن دقة وكفاءة النماذج العصبية المصممة والمثلى للتنبؤ بخصائص النقل.

كلمات المفاتيح: التنبؤ; شبكات الخلايا العصبية الاصطناعية ; اللزوجة; الغاز القطبي; الناقلية الحرارية; معامل الانتشار.

Résumé

Prédiction neuronale des coefficients pertinents des phénomènes de transport : viscosité, conductivité et diffusion moléculaire.

Dans cette étude, un réseau de neurones artificiels (RNA) a été utilisé pour développer des modèles prédictifs permettant d'estimer des propriétés de transport à des pressions multiples, sur une large plage de températures et de substances gazeuses.

Dans ce contexte, nous avons développé sept modèles neuronaux du type feedforward. Deux modèles destinés au calcul de la viscosité des gaz polaires et des gaz non polaires, trois modèles neuronaux pour l'estimation de la conductivité thermique des gaz monoatomiques et des gaz polyatomiques (polaires et non polaires), et les deux derniers modèles réservés au calcul du coefficient de diffusion des gaz.

Un ensemble de 243 points de données pour la viscosité, 338 points de données pour la conductivité thermique, 1252 points de données pour le coefficient de diffusion ont été utilisés pour tester les réseaux de neurones. 70%, 15% et 15% de l'ensemble des données ont été utilisés respectivement pour l'apprentissage, la validation et le test des sept modèles. Les résultats montrent un bon ajustement entre les valeurs prédites et expérimentales pour chaque modèle; de bonnes corrélations ont été trouvées ((R =0,992 pour les gaz non polaires, R=0,991 pour les gaz polaires) concernant la viscosité ; (R = 0,997 pour les gaz monoatomiques, R = 0,988 pour les gaz polyatomiques polaires, R =0,993 pour les gaz polyatomiques non polaires) concernant la conductivité; (R = 0,982 pour RN1, R = 0,984 pour RN2) concernant la diffusivité).

En fin, nous avons effectué une étude comparative entre les modèles neuronaux et les modèles proposés dans la littérature. Cette étude a révélé la précision et l'efficacité des modèles neuronaux conçus et optimisés pour la prédiction des propriétés de transport.

Mots-clés : Prédiction; réseaux de neurones artificiels; viscosité; gaz polaires; conductivité thermique; coefficient de diffusion.

Summary

Neuronal prediction of relevant coefficients of transport phenomena: viscosity, conductivity and molecular diffusion.

In this study, an artificial neural network (ANN) has been used to develop predictive models for the estimation of transport properties at multiple pressures over a large field of temperatures and gaseous substances.

In this context, we have developed seven feed-forward neural models. Two models are destined to calculate the viscosity of polar and no polar gases, three models for estimating the thermal conductivity of monatomic and polyatomic gases (both polar and no polar gases), the last two models are reserved to calculate the diffusion coefficient of gases.

A set of 243 data points for viscosity, 338 data points for thermal conductivity, 1252 data points for diffusion coefficient were used to test the neural networks. 70%, 15% and 15% of the total data were used for training, validation, and testing of the seven models, respectively. Results show a good fit between the predicted and experimental values for each model; good correlations were found ((R =0.992 for non-polar gases, R=0.991 for polar gases) for viscosity; (R = 0.997 for monoatomic gases, R = 0.988 for polar polyatomic gases, R = 0.993 for non-polar polyatomic gases) for conductivity; (R = 0,982 for RN1, R = 0,984 for RN2) for diffusivity).

In end, we carried out a comparative study between the neuronal models and the models suggested in the literature. This study revealed the precision and the effectiveness of the neuronal models designed and optimized for the prediction of transport properties.

Keywords: Prediction; artificial neural networks; viscosity; polar gases; thermal conductivity; diffusion coefficient.

Table des matières

Abréviations *i*

Liste de tableaux *V*

Liste de figures *Vii*

Liste des travaux et activités de recherches *ix*

Introduction générale *1*

Chapitre I: Généralité sur les propriétés de transport des gaz

I.1. Introduction *03*

I.2. Propriétés de transport des gaz *03*

I.2.1. Définition générale *03*

I.2.2. Analogies physiques *04*

I.2.3. Viscosité *05*

I.2.3.1. Généralités *05*

I.2.3.2. Dimensions et unité *05*

I.2.3.3. Méthodes expérimentales de mesure *06*

I.2.3.4. Applications *08*

I.2.3.5. Aspect théorique et modèles proposés *09*

I.2.3.5.1. L'équation de Stefan – Maxwell *09*

I.2.3.5.2. Modèle de Golubev *12*

I.2.3.5.3. Modèle de Thodos *12*

I.2.3.5.4. Modèle de Reichenberg *13*

I.2.4. Conductivité *14*

I.2.4.1. Généralités *14*

I.2.4.2. Dimensions et unité *15*

I.2.4.3. Méthodes expérimentales de mesure *15*

I.2.4.4. Application *18*

I.2.4.5. Aspect théorique et modèles proposés *18*

I.2.4.5.1. Modèle d'Eucken *18*

I.2.4.5.2. Modèle d'Eucken modifié *19*

I.2.4.5.3. Modèle de Bromley *21*

I.2.4.5.4. Modèle de Misic-Thodos *21*

I.2.4.5.5. Modèle de Roy Thodos *22*
I.2.5. Coefficients de diffusion *22*
I.2.5.1. Généralités *22*
I.2.5.2. Dimensions et unité *24*
I.2.5.3. Méthodes expérimentales de mesure *24*
I.2.5.3.1. Coefficient de diffusion mutuelle ou d'interdiffusion *24*
I.2.5.3.2. Coefficient de diffusion propre et d'autodiffusion *25*
I.2.5.4. Application *26*
I.2.5.5. Aspect théorique et modèles proposés *26*
I.2.5.5.1. L'équation de Stefan – Maxwell *26*
I.2.5.5.2. L'équation de Chapman – Enskog *27*
I.2.5.5.3. Wilke et Lee *27*
I.2.5.5.4. L'équation de Gilliland *27*
I.2.5.5.5. L'équation de Hirschfelder – Bird – Spotz (HBS) *27*
I.2.5.5.6. Chen et Othmer *28*
I.2.5.5.7. Huang et al *28*
I.3. Méthodes d'apprentissages statistiques *29*
I.3.1. Régression linéaire multiple (RLM) *29*
I.3.2. Réseaux de neurones artificiels (RNA) *29*
I.3.2.1. Le modèle neurophysiologique « Neurone Biologique » *29*
I.3.2.2. Neurone Artificiel "Formel" *31*
I.3.2.3. Analogie *33*
I.3.2.4. Architecture d'un réseau de neurones *34*
I.3.2.5. Perceptron Multicouche « PMC » *34*
I.3.2.6. Fonctions d'activation « Fonction de Transfert » *36*
I.4. Conclusion *36*

Chapitre II : Revue critique de la littérature.

II.1. Introduction *38*
II.2. Revue des travaux des coefficients de transport (viscosité dynamique, conductivité thermique et diffusivité moléculaire) *38*
II.2.1. Viscosité dynamique *38*
II.2.2. Conductivité thermique *49*
II.2.3. Diffusivité moléculaire *61*
II.3. Conclusion *64*

Chapitre III: Matériels et méthodes

III.1. Introduction *65*
III.2. Méthodologie de calcul *65*
III.2.1. Viscosité *66*
III.2.1.1. Collecte des données, prétraitement et analyse *67*
III.2.1.2. Sélection des entrées du modèle neuronal *68*
III.3. Conductivité thermique *70*
III.3.1. Méthodologie de calcul de la conductivité thermique des gaz *70*
III.3.1.1. Collecte des données, prétraitement et analyse *70*
III.3.1.2. Sélection des entrées du modèle neuronal *71*
III.4. Diffusivité Moléculaire *73*
III.4.1. Méthodologie de calcul du coefficient de diffusion des gaz *73*
III.4.1.1. Collecte des données, prétraitement et analyse *73*
III.4.1.2. Sélection des entrées du modèle neuronal *74*
III.5. Conclusion *76*

Chapitre IV. Résultats et discussion

IV.1. Introduction *77*
IV.2. Première contribution : la Viscosité *77*
IV.2.1. Performances des modèles –RN *77*
IV.2.2. Comparaison entre les réseaux neuronaux et les modèles empiriques *81*
IV.2.3. Expressions mathématiques des modèles neuronaux optimisés *83*
IV.3. Deuxième contribution: la conductivité *84*
IV.3.1. Performances des modèles –RN *84*
IV.3.2. Comparaison entre les réseaux neuronaux et les modèles empiriques *89*
IV.3.3. Expressions mathématiques des modèles neuronaux optimisés. *91*
IV.4. Troisième contribution : le coefficient de diffusion *93*
IV.4.1. Modèles RN *93*
IV.4.1.1. Performances des modèles –RN *93*
IV.4.1.2. Régressions linéaires multiples *96*
IV.4.2. Comparaison *97*
IV .4.2.1. Comparaison entre les réseaux neuronaux et les régressions linéaires multiples *97*
IV .4.2.2. Comparaison entre les réseaux neuronaux et les modèles *98*

empiriques

IV.4.3. Expressions mathématiques des modèles neuronaux optimisés *98*

IV.5. Conclusion *100*

Conclusion générale *101*

Références bibliographiques *103*

Abréviations

Symbole	Signification
EQM	**E**rreur **Q**uadratique **M**oyenne
ERM	**E**rreur **R**elative **M**oyenne
LM	**L**evenberg-**M**arquard
REQM	**R**acine **C**arrée de l'**E**rreur **Q**uadratique **M**oyenne
RLM	**R**égression **L**inéaire **M**ultiple
RNA	**R**éseaux de **N**eurones **A**rtificiels.
RN	**R**éseau de **N**eurones

Nomenclatures et symboles

Lecture	Désignation	Unité
$\mathbf{b_i}$	Biais du neurone.	(-)
F	Fonction d'activation du neurone.	(-)
n	Nombre d'entrées du neurone.	(-)
S	Vecteur de sorties du neurone.	(-)
$\mathbf{w_i}$	Poids synaptiques du neurone.	(-)
$\mathbf{x_i}$	Entrées du neurone.	(-)
D, $\mathbf{D_{AB}}$	Coefficient de diffusion moléculaire,	[$m^2.s^{-1}$]
$\mathbf{f_{int}}$	Facteur d'interaction énergétique interne.	(-)
$\mathbf{f_p}$	Facteur correctif caractéristique des corps polaires.	(-)
$\mathbf{h^*}$	Groupement adimensionnel caractéristique de l'état quantique de la molécule.	(-)
k	Constante de Boltzmann, (k = 1,380 662.10–23),	[$J.K^{-1}$]
M, $\mathbf{M_A}$, $\mathbf{M_B}$	Masse molaire,	[$g.mole^{-1}$]
P	Pression,	[bar]
$\mathbf{P_c}$	Pression critique,	[bar]
$\mathbf{P_v}$	Pression de vapeur à (Tr = 0.7)	[bar]
R	Constante des gaz parfaits (R= 8.314),	[$J.mole^{-1}.K^{-1}$]
T	Température,	[K]
$\mathbf{T_b}$	Température d'ébullition,	[K]
Tc	Température critique,	[K]
T*	Température réduite, $T^* = \frac{kT}{\varepsilon_{AB}}$	(-)
$\mathbf{V_c}$	Volume critique,	(-)
$\mathbf{V_p}$	Potentiel électrique,	(-)
$\mathbf{Z_c}$	Facteur de compressibilité au point critique.	(-)

Lettres Grecques

Lecture	Désignation	Unité
γ	Conductivité électrique,	[-Ohm]
$\boldsymbol{\varepsilon}$	Paramètre d'énergie dans le potentiel d'interaction,	[J]
$\boldsymbol{\mu}$	Moment dipolaire,	[Debye]
$\boldsymbol{v}$	Viscosité cénimatique,	[$m^2.s^{-1}$]
$\boldsymbol{\delta}$	Paramètre de polarité.	(-)
$\boldsymbol{\varphi}$	Densité de flux thermique,	[$W.m^{-2}$]
ρ	Masse volumique.	[$Kg.m^{-3}$]
λ	Conductivité thermique,	[$W.m^{-1}.K^{-1}$]
$\boldsymbol{\omega}$	Facteur acentrique de Pitzer.	(-)

$\boldsymbol{\Omega_D}$	Intégrale de collision (Cas de la viscosité).	(-)
$\boldsymbol{\Omega_V}$	Intégrale de collision (Cas de la diffusivité).	(-)
$\boldsymbol{\eta}$	Viscosité dynamique,	[Pa.s]
η_c^*	viscosité au point critique,	[Pa.s]
ξ	Constante spécifique à chaque substance.	(-)

Indices et exposants

Lecture	**Désignation**
AB	Diffusion de l'espèce A dans l'espèce B
c	Critique
D	Diffusivité
i	Neurone i
j	Neurone j
p	Pression
cal	Calculée
exp	Expérimentale
H	Cachée (Hidden)
I	Entrée (Input)
O	Sortie (Output)

Liste des tableaux

Numéro	Titre du tableau	Page
	Chapitre I	
Tableau I.1	Etude comparative des différentes grandeurs	5
Tableau I.2	Correspondance entre les modèles neuronaux biologiques et artificiels	33
Tableau I.3	Fonctions de transfert usuelles	36
	Chapitre III	
Tableau III.1	Analyse statistique des données d'entrée et de sortie.	68
Tableau III.2	Entrées et sortie utilisées pour le développement des modèles (**RN1**, **RN2**).	70
Tableau III.3	Analyse statistique des données d'entrées et de sortie.	71
Tableau III.4	Entrées et sorties utiliser pour le développement de modèles de réseaux de neurones (RN1 et RN2).	73
Tableau III.5	Analyse statistique des données d'entrée et de sortie.	74
Tableau III.6	Entrées et sorties utiliser pour le développement de modèles de réseaux de neurones (RN1 et RN2).	75
	Chapitre IV	
Tableau IV.1	Structure du réseau utilisé dans la modélisation de la viscosité des gaz.	77
Tableau IV.2	Structure du réseau neuronal utilisé dans la modélisation de la conductivité des gaz.	85
Tableau IV.3	Structure du réseau neuronal utilisé dans la modélisation de la diffusivité des gaz.	93
Tableau IV.4	Comparaison des modèles RNA optimisés avec les modèles de la littérature.	98

Liste des Figures

Numéro	Titre de la figure	Page
	Chapitre I	
Figure I.1	Les différentes méthodes de mesure. a) Viscosimètre à cylindre coaxial. b) Viscosimètre à chute de bille. c) Viscosimètre à capillaire. d) Viscosimètre à oscillations.	8
Figure I.2	Dispositif classique de la méthode des cylindres coaxiaux.	17
Figure I.3	Dispositif de mesure de la diffusivité des gaz.	25
Figure I.4	Schéma d'un neurone biologique.	30
Figure I.5	Schéma d'un neurone artificiel.	32
Figure I.6	Schéma de comparaison entre un neurone biologique et un neurone artificiel.	33
Figure I.7	Perceptron multicouche	35
	Chapitre II	
Figure II.1	Nombre de publications traitant la modélisation de la viscosité.	49
Figure II.2	Nombre de publications traitant la modélisation de la conductivité thermique.	61
Figure II.3	Nombre de publications traitant la modélisation de la diffusivité moléculaire.	63
	Chapitre III	
Figure III.1	Organigramme de la procédure développée dans ce travail.	66
Figure III.2	Représentation des pourcentages de division de la base de données.	67
Figure III.3	Procédure de la sélection des variables d'entrées.	69
Figure III.4	Procédure de la sélection des variables d'entrées.	72
Figure III.5	Procédure de la sélection des variables d'entrées.	75
	Chapitre IV	
Figure IV.1	Comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées pour : (a) viscosité des gaz non polaires (RN1), (b) viscosité des gaz polaires (RN2).	79
Figure IV.2	Architecture finale du réseau de neurone optimal de type feedforward pour la prédiction de la viscosité ((a) gaz non polaires (b) gaz polaires).	81
Figure IV.3	Comparaison entre les modèles en termes de la racine de l'erreur quadratique moyenne: (a) gaz non polaires (RN1), (b) gaz polaires (RN2).	82
Figure IV.4	Représentation schématique du RN optimisé.	84
Figure IV.5	Comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées pour : (a) conductivité des gaz monoatomiques (RN1), (b) conductivité des gaz polyatomiques polaires (RN2), (c) conductivité des gaz polyatomiques non polaires (RN3).	87
Figure IV.6	Architecture finale du réseau de neurone optimal de type feedforward pour la prédiction de la conductivité ; (a) gaz monoatomiques (RN1), (b) gaz polyatomiques polaires (RN2), (c) gaz polyatomiques non polaires (RN3).	89

Figure IV.7	Comparaison entre les modèles en termes de la racine de l'erreur quadratique moyenne: (a) gaz monoatomiques (RN1), (b) gaz polyatomiques polaires (RN2), (c) gaz polyatomiques non polaires (RN3).	91
Figure IV.8	Représentation schématique du RN optimisé.	92
Figure IV.9	Comparaison entre les valeurs expérimentales et calculées pour l'ensemble des données : (a) RN1, (b) RN2.	95
Figure IV.10	Architecture finale du réseau de neurone optimal de type feedforward pour la prédiction de coefficient de diffusion des gazes binaires.	95
Figure IV.11	Comparaison entre les valeurs expérimentales et calculées pour l'ensemble des données : (a) RLM1, (b) RLM2.	96
Figure IV.12	Comparaison entre les réseaux neuronaux et les modèles de régression linéaire multiple.	97
Figure IV.13	Représentation schématique du RN optimisé.	99

Liste des travaux et activités de recherches

Publications soumises:

- Article publié

Melzi N., Khaouane L., Hanini S., Ammi Y., Laidi M et Zentou H. **(2019)**. " *Comparative Study of Predicting the Molecular Diffusion Coefficient for Polar and Non-polar Binary Gas Using Neural Networks and Multiple Linear Regressions*". *Journal of Chemists and Chemical Engineers of Croatia.* 68 (11-12) 573−582. ISSN: 00229830.

Melzi N., Khaouane L., Hanini S., Y Laidi., Ammi Y et Zentou H. **(2020)**. "*Optimization methodology of artificial neural network models for predicting molecular diffusion coefficients for polar and non-polar binary gases*" *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*. 61(2) : 207-216 : ISSN : 0021-8944.

Communications internationales avec comité de lecture :

Melzi N., Khaouane L., Hanini S., et Laidi M. **(2018)**. " *Correlating of Thermal Conductivity of monatomic Gases Using Artificial Neural Networks*". International Conference on Applied Smart Systems (ICASS'2018). Le 24-25 November 2018, Médéa, ALGERIA.

INTRODUCTION GENERALE

L'estimation des coefficients pertinents des phénomènes de transport: « viscosité, conductivité et diffusion moléculaire dans la phase liquide et gazeuse » est cruciale dans la conception et la simulation des processus impliquant le transfert de masse tels que : l'extraction liquide-liquide, l'absorption et la diffusion de gaz, les réactions chimiques dans les réacteurs, la distillation ...etc ; Par exemple, les coefficients de diffusion binaire de gaz sont nécessaires dans la conception des réacteurs en phase gazeuse ,et dans d'autres domaines tels que : la chimie, les sciences de combustion, les études de pollution de l'air intérieur et les interactions atmosphère-biosphère, etc (Gosse 1991).

La détermination de ces coefficients occupe une nécessité majeure pour la recherche scientifique et l'industrie, à titre d'exemple, les coûts et les performances des échangeurs de chaleur peuvent être modifiés d'une façon significative par une mauvaise connaissance de la conductivité thermique ; Il en est de même pour la diffusivité et la viscosité (Gavril, Atta *et al*. 2004).

La théorie cinétique des gaz a permis d'établir les formules de calcul de ses trois propriétés « viscosité, conductivité et diffusion moléculaire dans la phase liquide et gazeuse » dont l'application est certes valide, mais très contraignante car elle contient plusieurs paramètres qui sont souvent très difficiles à rassembler, tels que : l'achèvement de la collision (Ω) et les paramètres de Lennard-Jones (ε / k et σ) (Gosse 1991),

Concernant les procédures expérimentales, elles sont très délicates et coûteuses et elles ne se font que dans des laboratoires spécialisés.

Pour tenter de résoudre ces problèmes, actuellement les chercheurs développent des méthodes et des logiciels pour avoir une meilleure capacité de traité et de modélisé les connaissances qui permettent de diminuer le coût de ces recherches qui est souvent étonnant, aussi bien un gain du temps (un laboratoire pharmaceutique dépense au moins 800 millions de dollars sur une période de 12 à 15 ans).

L'intelligence humaine est une faculté remarquable qui nous permet d'exercer de multiples activités dites cognitives, Comme apprendre, comprendre, évaluer, critiquer, juger, connaître, planifier, analyser, choisir, mémoriser et communiquer. Il est passionnant d'essayer de décrire ces mécanismes, de les comprendre et éventuellement de les simuler. L'intelligence artificielle (IA) s'intéresse à la fois aux descriptions abstraites de 1'intelligence humaine et à la possibilité de réaliser des systèmes artificiels dont le comportement correspondent à ces descriptions.

Les réseaux de neurones artificiels sont l'un de ces systèmes, malgré qu'il soit loin de pratiquer les fonctions d'un cerveau humain, mais il arrive à achever d'une manière non

complète certaine de ces fonctions, Ces dernières années, l'utilisation des réseaux de neurones artificiels s'est développée dans de nombreuses disciplines (Sciences économiques, environnement, biologie et médecine…) (Beale, Hagan *et al*. 2010), et ils sont présentés comme une alternative intéressante dans l'estimation des propriétés de transports.

Notre travail s'inscrit dans ce contexte, l'objectif consiste à développer un réseau de neurone artificiel « type feedforward » pour modéliser les coefficients thermo-physiques des gaz. Cette approche semble offrir un nouvel espace de modélisation tout à fait original, elle est inspirée du traitement de l'information effectué par le cerveau ; En effet, ces réseaux de neurones artificiels (RNA) demeure toujours un vif intérêt dans la plupart des domaines d'ingénierie non seulement pour leur attirante capacité d'apprentissage mais aussi pour leur flexibilité et leur bonne performance, par rapport aux approches classiques, ils sont capables d'approximer des relations complexes et fortement non linéaires entre un vecteur de variables d'entrées *x* et une sortie *y*, Ce qui est parfaitement le cas pour les propriétés de transport des gaz.

Ce travail est divisé en quatre chapitres :

- Le premier chapitre est scindé en deux parties. Dans la première partie; nous présentant les propriétés de transport des gaz, Une synthèse bibliographique nous a permis de définir ces propriétés, de donner leur fondement théorique. la deuxième partie est basée sur les méthodes d'apprentissage statistiques (la régression linéaire multiple et les réseaux de neurones artificiels).
- Le deuxième chapitre est consacré à la présentation de la revue critique de la littérature sur la modélisation des propriétés de transport des gaz.
- Nous présentons dans le troisième chapitre les matériels et les différentes procédures de modélisation utilisés : Nous examinons d'abord la base de données collectées. Ensuite, nous présentons la procédure de développement et d'optimisation de l'architecture des modèles neuronaux de type feedforward employés.
- Le quatrième chapitre renferme les différents résultats obtenus : Dans un premier temps, nous présentons les architectures optimales des modèles neuronaux ainsi que leurs performances de prédiction. Ensuite nous extrayons des formules mathématiques à partir de ces modèles. Une comparaison est donnée à la fin de ce chapitre.

Enfin une conclusion générale qui rassemble les principaux résultats obtenus et les perspective.

CHAPITRE I

GENERALITES SUR LES PROPRIETES DE TRANSPORT DES GAZ ET LES METHODES STATISTIQUES APPROPRIEES.

I.1. Introduction

Le coefficient de viscosité gouverne le transport de quantité de mouvement produit par la présence d'un gradient dans la vitesse moyenne des particules. Le coefficient de conduction thermique gouverne le transport d'énergie cinétique produite par des gradients de température, enfin le coefficient de diffusion gouverne les transports de masse produits par les gradients de concentration (le Neindre 1991), ses trois propriétés particulières sont liées au mouvement d'agitation des molécules ; donc elles sont désignées comme étant des propriétés de transport. En effet, ces grandeurs apparaissent dans tous les phénomènes mettant en jeu des transferts de quantité de mouvement, d'énergie ou d'espèce chimique qui sont les corollaires des forces de cohésion du fluide, (Gosse 1991).

La détermination de ces coefficients demeure une nécessité capitale pour la recherche scientifique et l'industrie. À titre d'exemple, une mauvaise connaissance de la conductivité thermique peut modifier d'une façon significative les coûts et les performances des échangeurs de chaleur. Il en est de même pour la diffusivité et la viscosité. Les procédures expérimentales sont très délicates et coûteuses et elles ne se font que dans des laboratoires spécialisés. En revanche les approches théoriques, relativement accessibles, sont de plus en plus sollicitées pour l'estimation de ses propriétés de transport des gaz.

Ce chapitre est scindé en deux parties. La première partie; est présentation des fondements théoriques et quelques exemples de la détermination expérimentales des trois coefficients à savoir la viscosité dynamique, la conductivité thermique et la diffusion moléculaire. Cependant, la deuxième partie est consacrée aux méthodes d'apprentissage statistiques (la régression linéaire multiple et les réseaux de neurones artificiels). Une conclusion est donnée à la fin de ce chapitre.

I.2. Propriétés de transport des gaz

I.2.1. Définition générale

On dit que chaque propriété de transport est définie par une loi gradient de proportionnalité entre un flux et un gradient (Gosse 1991). Si le gaz est soumis à un gradient de vitesse $\left(\frac{du}{dy}\right)$, il en résulte un flux de quantité de mouvement qui se traduit par une contrainte de cisaillement τ (loi de Newton) :

$$\vec{\tau} = -\eta \frac{\overrightarrow{du}}{dy} \qquad \text{(I.1)}$$

La viscosité dynamique η [Pa. s] est le coefficient de proportionnalité entre τ et $\frac{du}{dy}$.

La conductivité thermique λ [W. K^{-1}. m^{-1}] est le coefficient liant la densité de flux thermique φ dans la direction x au gradient de température $\frac{dT}{dx}$ (loi de Fourier)

$$\vec{\phi} = -\lambda \frac{\overrightarrow{dT}}{dx} \qquad \text{(I.2)}$$

De même, le coefficient de diffusion D_{AB} exprime la proportionnalité entre la densité de flux dans la direction x et le gradient de concentration de l'espèce chimique A, diluée dans le gaz porteur dont l'espèce chimique est B (loi de Fick)

$$\overrightarrow{N_A} = -D_{AB} \frac{\overrightarrow{dC}}{dx} \qquad \text{(I.3)}$$

I.2.2. Analogies physiques

La loi de Newton et celle de Fourier sont analogues à la loi de Fick en ce qui concerne la diffusion et à la loi d'Ohm en électricité. Le tableau suivant met en évidence les analogies entre les différentes grandeurs;

$$\overrightarrow{N_A} = -D_{AB} \overrightarrow{grad C_A} \qquad \text{(I.4)}$$

Tableau I.1 : Etude comparative des différentes grandeurs, (Gosse 1991).

loi de Newton	**loi de Fourier**	**loi de Fick**	**loi d'Ohm**
$\vec{\tau} = -\eta \overrightarrow{grad\,\mu}$	$\vec{\phi} = -\lambda \overrightarrow{gradT}$	$\vec{N}_A = -D_{AB} \overrightarrow{gradC}$	$\vec{J} = -\gamma \overrightarrow{gradV_P}$
$\vec{\tau}$: densité de courant de quantité de mouvement, [N. m^{-2}]	$\vec{\phi}$: densité de courant thermique, [W. m^{-2}].	$\overrightarrow{N_A}$: densité de courant particulaire, [mole. m^{-2}.s^{-1}] .	J : densité de courant électrique, [A. m^{-2}].
η : viscosité dynamique, [Pa. s]	λ : conductivité thermique, [W. k^{-1}m^{-1}]	D : coefficient de diffusion, [m^{2}.s^{-1}]	γ : conductivité électrique, [Ohm^{-1}.m^{-2}]
u: vitesse, [m. s^{-1}]	T: température, [K]	C: concentration, [mole. m^{-3}]	V_p : potentiel électrique, [Volt]

I.2.3.Viscosité

I.2.3.1. Généralités

La viscosité est la mesure de la résistance à l'écoulement du fluide et c'est une propriété essentielle pour l'étude de la dynamique des flux de fluides, (AlQuraishi et Shokir 2011) en effet, cette grandeur apparaissent dans tous les phénomènes mettant en jeu des transferts de quantité de mouvement, d'énergie ou d'espèce chimique qui sont les corollaires des forces de cohésion du fluide. (Gosse 1991) La théorie cinétique des gaz a permis d'établir des formules pour le calcul de cette propriété dont l'application est certes valable, mais très astreignante parce qu'elle comporte plusieurs paramètres qui sont souvent très difficiles à rassembler, comme l'intégrale de collision (Ω) (Hirschfelder, Bird *et al*. 1949) et les paramètres de Lennard-Jones $\left(\frac{\varepsilon}{K} et\ \sigma\right)$, (Reid, Prausnitz *et al*. 1985).

I.2.3.2. Dimensions et unités

Revenons à présent sur la viscosité dynamique μ du fluide, qui a pour dimension:

$$[\eta] = \frac{F}{S}\frac{L}{U} = \frac{MLt^{-2}L}{L^2Lt^{-1}} = ML^{-1}t^{-1} \qquad \text{(I.5)}$$

L'unité correspondante est donc le kg. m^{-1}. s^{-1} ou encore Pa. s.

L'unité de viscosité dynamique est la décapoise (da Po) qui est celle d'un fluide opposant une résistance de 1 Newton par mètre carré au glissement, dans son plan au sein du fluide, d'un élément plan animé d'un mouvement uniforme, la variation de vitesse des couches fluides parallèles sur le plan de l'élément étant de 1 mètre par seconde par mètre d'épaisseur du fluide suivant une direction perpendiculaire à ce plan. Autrement dit, la contrainte de frottement est de $1N.m^{-2}$ lorsque le gradient de vitesse latérale est de $1m.s^{-1}$ par mètre (Bouzidi 2005).

1 Pascal. seconde = 1 Poiseuille = 10. Poise

On définit également la viscosité cinématique *v:*

$$v = \frac{\eta}{\rho} \tag{I.6}$$

Les dimensions sont:

$$\eta = \frac{ML^{-1}t^{-1}}{ML^{-3}} = L^{+2}t^{-1} \tag{I.7}$$

Dans le système CGS, *v* s'exprime donc en cm^2/s ou Stockes (Sk).

Dans le système international (Boardman, Wild *et al*.) ou dans le système MKSA, l'unité de viscosité cinématique est le *myriastockes* (*ma Sk*) ou $[m^2.s^{-1}]$ qui est la viscosité cinématique d'un fluide dont la viscosité dynamique vaut 1 décapoise et la masse volumique 1 kilogramme par mètre cube.

I.2.3.3. Méthodes expérimentales de mesure

La mesure d'une propriété de transport comme la viscosité se fait essentiellement avec des viscosimètres capillaires, à cylindres coaxiaux, cône-plan, plan-plan, ou encore à chute de bille. Le premier modèle de viscosimètre mesure le temps de vidange, c'est-à-dire la durée que met une certaine quantité de liquide à s'écouler dans le capillaire (voir le panneau (c) de la figure I.1). Les viscosimètres à cylindres coaxiaux, cône-plan, plan-plan sont ce qu'on appelle des viscosimètres rotatifs qui diffèrent par leur géométrie. Les deux dernières sont notamment difficiles à utiliser pour des liquides ayant des faibles viscosités car il n'y a pas de bords qui permettent d'éviter que le liquide ne s'échappe. Quant à la première (voir le panneau (a) de la

figure I.1), le principe est de placer le liquide à étudier entre deux cylindres coaxiaux (l'un mobile, l'autre fixe). Lorsque le cylindre mobile est entraîné en rotation, il se crée un gradient de vitesses à l'intérieur du fluide, proportionnel à la vitesse de rotation. Le fluide exerce alors une contrainte sur le cylindre mobile en lui imposant une certaine résistance, directement mesurée par un capteur. Deux variantes existent: à contrainte ou à déformation imposée. Enfin, un viscosimètre à chute de bille mesure le temps de chute d'une bille soumise à la gravité dans un tube rempli avec l'échantillon à tester (voir les panneaux (b) et (e) de la figure I.1). Ici, Nous ne citons que les méthodes les plus connues mais le développement des méthodes de mesure de la viscosité constitue à lui seul un domaine de recherche. Ces moyens de mesure sont principalement employés sous conditions de pression et de température proches des conditions ambiantes, et comme nous avons pu le voir, impliquent déjà à ce niveau un certains nombres de difficultés, (Meyer 2017).

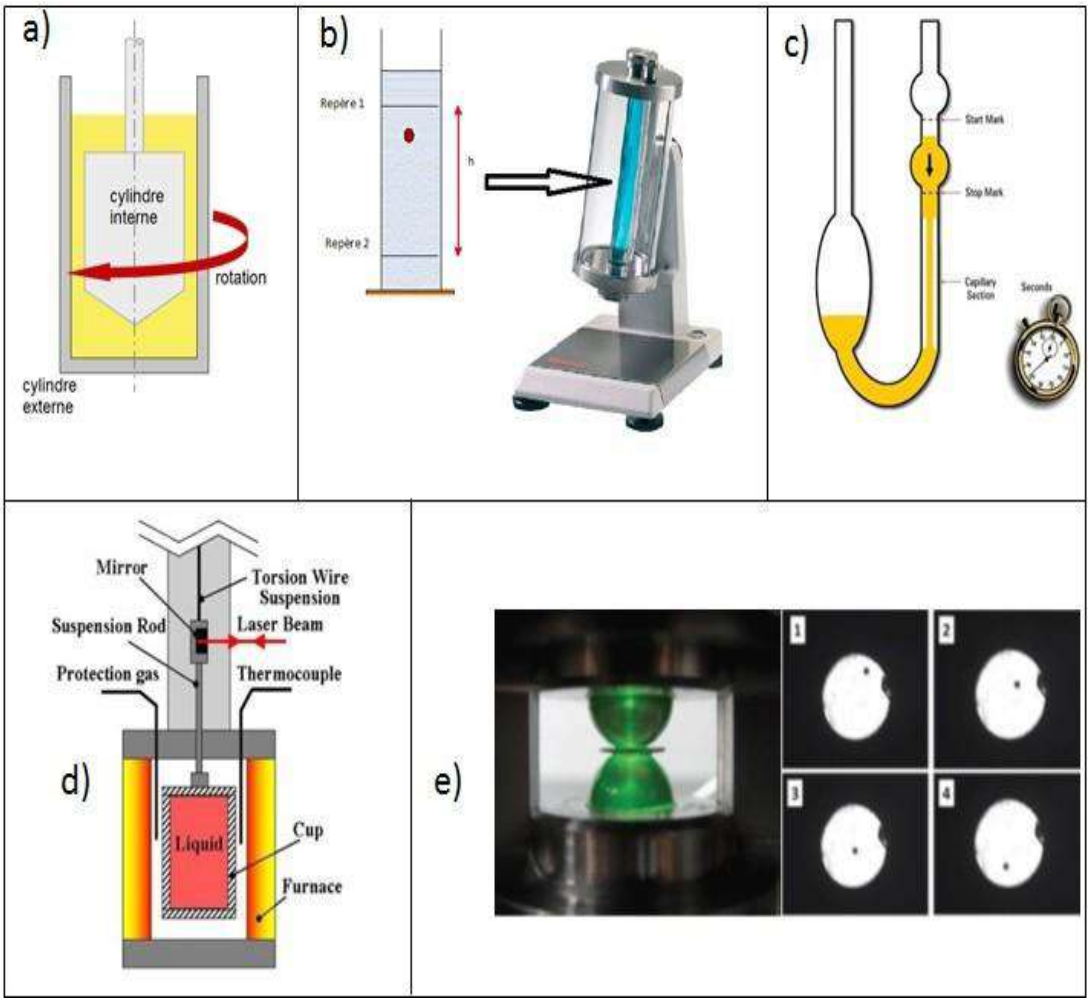


Figure I.1 : Les différentes méthodes de mesure. a) Viscosimètre à cylindre coaxial. b) Viscosimètre à chute de bille. c) Viscosimètre à capillaire. d) Viscosimètre à oscillations. e) Viscosimètre à chute de bille utilisant une enclume-saphir, (Meyer 2017).

I.2.3.4. Applications

La connaissance de la viscosité est fondamentale dans nombreux domaines:
En métrologie des fluides, que ceux-ci soient des gaz, des liquides ou des pâtes, dans l'emploi des peintures, dans la mesure du débit, dans le calcul des coefficients de transfert thermique et dans le contrôle des processus chimiques, dans la compréhension des phénomènes de lubrification, dans l'agroalimentaire, dans le transport des fluides, etc. Si la mesure de la

viscosité sur échantillons peut servir au contrôle de fabrication, la mesure continue permet d'en surveiller et réguler le processus (Le Neindre 2004, Dupuis 2008).

I.2.3.5. Aspect théorique et modèles proposés

La viscosité du gaz η est en fonction de la température, indépendamment de la pression, il augmente avec l'augmentation de la température, (Reid, Prausnitz *et al*. 1985). Ces variations sont assez bien décrites, avec divers degrés de précision, par les équations empiriques suivantes de la théorie cinétique du gaz, qui sont utilisées pour la prédiction des valeurs de η. Certaines de ces corrélations ont été présentées dans ce qui suit:

1.2.3.5.1. L'équation de Stefan – Maxwell (Liner et Weissman 1972),

Stefan – Maxwell présente la relation suivante :

$$\eta = 26.69 * 10^{-6} \frac{\sqrt{MT}}{\sigma^2 \Omega v} \qquad \text{(I.8)}$$

Pour pouvoir employer cette relation dans l'estimation de la viscosité, il est nécessaire d'abord de connaître la longueur caractéristique σ et l'intégrale de collision Ω_v. Il faut noter que l'intégrale de collision Ω_v est égal à l'unité pour les molécules qui ne présentent aucune force d'attraction entre elles (Reid et Prausnitz 1977). Les intégrales de collision ont des valeurs différentes selon le choix du modèle d'interaction (potentiel 12-6 de Lennard-Jones pour les gaz non polaires, potentiel 12-6-3 de Stockmayer pour les gaz polaires (Gosse 1991).

Gaz non polaire

Les intégrales de collision des gaz non polaires sont décrites par les équations suivantes :

- Pour le calcul de la viscosité, l'intégrale de collision est nommée $\Omega_{V,}$ qui est donné par la formule suivante:

$$\Omega_v = \left[\frac{A}{(T^*)^B} \right] + \frac{C}{\exp(DT^*)} + \frac{E}{\exp(FT^*)} \qquad \text{(I.9)}$$

Avec $T^* = \frac{kT}{\varepsilon_{AB}}$ (Paramètre sans dimension appelé aussi température réduite),

où A = 1.16145, C = 0.5287, F = 2.43787, D = 0.77320, B = 0.14874, E = 2.16178.

ε Paramètre d'énergie dans le potentiel d'interaction, [Joule]

- Et pour le calcul du coefficient de diffusion**,** l'intégrale de collision est nommé $\boldsymbol{\Omega_D}$, il est donné par la formule suivante:

$$\Omega_D = \left[\frac{A'}{T^{*B'}}\right] + \frac{C'}{\exp(D'T^*)} + \frac{E'}{\exp(F'T^*)} + \frac{G}{\exp(HT^*)} \quad \text{(I.10)}$$

Avec $A' = 1.06036$, $C' = 0.19300$, $F' = 1.52996$, $D' = 0.47635$, $G = 1.76474$, $B' = 0.15610$,

$E' = 1.03587$, $H = 3.89411$.

Pour certains gaz, les paramètres $\left(\frac{\varepsilon}{K} et\ \sigma\right)$ appelés aussi paramètres de Lennard-Jones ne sont pas disponibles dans la littérature, nous pouvons les approcher par des équations empiriques établies en fonction des constantes critiques et du facteur acentrique de Pitzer, proposées dans la littérature, (Perry Robert, Green Don *et al*. 1997).

$$\sigma\left(\frac{p_c}{T_c}\right) = 2.3551\text{-}0.087\omega \quad \text{(I.11)}$$

$$\frac{\xi}{KT_c} = 0.7915 + 0.1693\omega \quad \text{(I.12)}$$

$$\sigma\left(\frac{p_c}{T_c}\right) = 13.56\text{+}9.6\omega\text{+}6.26\omega^2 - \omega^3 \quad \text{(I.13)}$$

$$\frac{(\xi / K)}{T_c} = 0.753\text{-}0.468\omega - 0.277\omega^2 \text{+}0.462\omega^3 \quad \text{(I.14)}$$

Avec

ω : facteur acentrique,

T_C [K]: température critique,

P_C [bar]: pression critique,

K [J/K]: constante de Boltzmann = $1.380662\ 10^{-23}$

La pression critique et la température critique sont des données tabulées et généralement, disponibles dans la bibliographie. Par contre le facteur acentrique n'est disponible que dans certaines bibliographies spécialisées souvent inaccessibles. Quelques auteurs ont pu approcher ce paramètre, qui représente l'acentricité ou la non-sphéricité des molécules, par des corrélations, (Perry Robert, Green Don *et al*. 1997):

$$\omega = -\log P_{vpr}(T_r=0.7) - 1.000 \quad \text{(I.15)}$$

Avec ω: facteur acentrique

$T_r = \frac{T}{T_c}$ (température réduite)

P_V: pression de vapeur à ($T_r = 0.7$), [bar]

La relation (1.14) est la plus utilisée mais il en existe d'autres. Edminster (Edminister 1968) propose pour l'évaluation de ω l'équation suivante:

$$\partial = \frac{3}{7}\frac{\theta}{1-\theta}\log(Pc) - 1 \quad \text{(I.16)}$$

Avec

$\theta = \frac{T_b}{Tc}$

T_b: température d'ébullition, [K]

Lee et Kesler proposent une autre corrélation encore plus encombrante (Lee et Kesler 1975) :

$$\omega = \frac{-lnPc - 5.92714 + 6.096\,\theta^{-1} + 1.2886 ln\theta - 0169347\,\theta^{6}}{15.2518 - 15.6875\,\theta^{-1} - 13.4721 ln\theta + 0.43577\,\theta^{6}} \quad \text{(I.17)}$$

Gaz polaire

Pour les molécules polaires d'un gaz pur, l'interaction dépend de leur orientation relative en même temps que de leur distance et du moment dipolaire μ. Dans les intégrales d'interaction sont considérées toutes les orientations possibles et l'effet moyen fait apparaître, outre les paramètres σ et $\frac{\varepsilon}{k}$, le paramètre de polarité, sans dimension, δ lier au moment dipolaire μ par (Gosse 1991) :

$$\delta = 3.66210^{3}\frac{\mu^{2}}{\sigma^{3}\left(\frac{\varepsilon}{K}\right)} \quad \text{(I.18)}$$

Pour l'évaluation des intégrales de collision, Brokaw (Brokaw 1969) propose les relations suivantes :

- pour le calcul de la viscosité :

$$\Omega v = \Omega v(pour\ \delta = 0) + 0.2\frac{\delta^2}{T^*} \quad (I.19)$$

- pour le calcul du coefficient de diffusion:

$$\Omega_D = \Omega_D(pour\ \delta = 0) + 0.19\frac{\delta^2}{T^*} \quad (I.20)$$

Ω_V (pour δ = 0) et **Ω_D (pour δ = 0)** correspondent aux intégrales de collision des gaz non polaires.

Les paramètres σ et $\frac{\varepsilon}{K}$ peuvent être déterminés à partir des équations (I.11 et I.13).

1.2.3.5.2. Modèle de Golubev (Golubev 1970)

Golubev élabore l'équation suivante :

$$\eta = \begin{cases} \eta_C^* T_r^{0.965}\ for Tr\pi 1 \\ \eta_c^* T_r^{0.71+0.29/T_r}\ for T_r\phi 1 \end{cases} \quad (I.21)$$

Où η_c^* est la viscosité au point critique, en [Pa.s], T_r est la température réduite (K)

$$\eta_c^* = \frac{3.5M^{\frac{1}{2}}P_c^{\frac{2}{3}}10^{-7}}{T_c^{\frac{1}{6}}} \quad (I.22)$$

où T_C est une température critique (K) et P_C: pression critique, [bar].

1.2.3.5.3. Modèle de Thodos, (Flynn et Thodos 1962)

Thodos exprime la formule de la viscosité selon la polarité des gaz:

a- les gaz non polaires :

Dans le cas des gaz non polaires**,** la viscosité est exprimée par l'égalité suivante**:**

$$\eta\xi = 4.61T_r^{0.61} - 2.04\exp(-0.449T_r) + 1.94\exp(-4.058T_r) + 0.1 \quad (I.23)$$

b- les gaz polaires :

Dans le cas des gaz polaires**,** la viscosité est exprimée selon le nombre des liaisons d'hydrogène**:**

- Gaz présentant des liaisons d'hydrogène (pont d'hydrogène), Tr<2.0,

$$\eta\xi = (0.755T_r - 0.055)Z_c^{\frac{-5}{4}} \quad \text{(I.24)}$$

- Gaz ne présentant pas des ponts d'hydrogène, Tr<2.5,

$$\eta\xi = (1.90T_r - 0.29)^{\frac{4}{5}} Z_c^{\frac{-2}{3}} \quad \text{(I.25)}$$

Avec

$$\xi = T_r^{\frac{1}{6}} M^{\frac{-1}{2}} P_c^{\frac{-2}{3}} \quad \text{(I.26)}$$

et Z_c est le facteur de compressibilité au point critique.

L'équation de Thodos ne devrait pas être également employée pour l'hydrogène, l'hélium ou les gaz halogènes.

1.2.3.5.4. Modèle de Reichenberg, (Reichenberg 1975)

Reichenberg propose l'équation suivante :

$$\eta = \frac{a^* T_r}{\left[1 + 0.36T_r(T_r - 1)\right]^{\frac{1}{6}}} \quad \text{(I.27)}$$

Dans beaucoup de cas, le paramètre a^* est numériquement tout à fait semblable à η_c^* déterminer à partir de l'équation (I.22) Cependant, pour les composés organiques,

Reichenberg recommete d'employer:

$$a^* = \frac{M^{\frac{1}{2}} T_c 10^{-7}}{\sum_i \eta_g C_g}, \text{ en [Pa.s]} \quad \text{(I.28)}$$

Où

n_g : nombre de groupement fonctionnel dans une molécule.

C_g : représente la contribution de chaque groupement fonctionnel (la référence (Reid, 1977) donne un tableau des valeurs de *cg* et *ng*).

I.2.4. Conductivité

I.2.4.1. Généralités

La conductivité thermique λ (souvent notée *k* dans les pays anglo-saxons) est la grandeur qui caractérise la diffusion de la chaleur dans les milieux sans mouvement macroscopique de matière. La diffusion de la chaleur s'effectue des parties chaudes vers les parties froides (Laurent et Vuillermoz 1993).

En 1811, Fourier propose une formulation locale de cette loi, donc valable en tout point : $\phi = -\lambda \overrightarrow{grad T}$ (I.29)

Où λ est la conductivité thermique (en [**W. m^{-1}. K^{-1}**]). C'est une grandeur positive qui dépend de l'état thermodynamique du fluide, c'est-à-dire de sa composition moléculaire, de sa masse volumique et de sa température. λ doit être défini pour cet état, qui n'est pas nécessairement l'état initial.

En exprimant la conservation de l'énergie interne pour un volume unité limité par une surface fermée et en supposant les variations de masse volumique du fluide négligeable au cours du temps, ainsi que les mouvements internes du fluide par convection naturels, et en supposant les gradients faibles, l'équation de Fourier (I.31) s'écrit :

$$\rho C_P \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \Delta^2 T \quad \text{(I.30)}$$

Δ^2 : Symbole du Laplacien,

C_P : Capacité thermique massique du fluide à pression constante, [J. Kg^{-1}. K^{-1}],

ρ : Sa masse volumique, [Kg. m^{-3}].

Cette relation fondamentale (I.29) est à la base de toutes les méthodes expérimentales de mesure de la conductivité thermique (Le Neindre 1996).

En règle générale, les métaux qui sont bons conducteurs l'électricité ont bon conducteurs thermiques.

Les liquides conduisent en général moins bien la chaleur que les solides, sauf lorsque ce sont des métaux liquides (mercure, sodium liquide, etc.).

La conductivité thermique des gaz dépend de la pression mais aussi fortement de la température et de la masse molaire M du gaz. La relation suivante donne un bon ordre de grandeur :

$$\lambda = A\sqrt{\frac{T}{M}} \qquad \text{(I.31)}$$

Où A est une constante.

La conductivité thermique dépend de la nature physico-chimique du matériau, la nature de la phase considérée (solide, liquide, gaz) et de la température (Taine et Petit 2003).

I.2.4.2. Dimensions et unité (Poling, Prausnitz *et al*. 2001)

La conductivité thermique s'exprime en **W. m^{-1}. K^{-1}**.

I.2.4.3. Méthodes expérimentales de mesure (Tufeu 1971, Le Neindre 1996)

Les procédures de détermination expérimentale sont classées en deux catégories :

***a*)** les méthodes stationnaires, pour lesquelles $\frac{\partial T}{\partial t} = 0$; le champ de température est déterminé par la solution de l'équation de Laplace :

$$\Delta^2 T = 0 \qquad \text{(I.32)}$$

Qui est intégrée pour une géométrie donnée ;

***b*)** les méthodes non stationnaires, pour lesquelles le champ de température est obtenu par la solution de l'équation (I.30). La mesure essentielle est celle de l'histoire de la température du fluide en fonction du temps.

La méthode sera absolue si un modèle mathématique complet décrit le procédé de mesure, avec des corrections adéquates au modèle idéal. La méthode sera relative si la conductivité thermique est déterminée à partir de celle d'un autre fluide utilisé comme étalon. Dans ce qui suit, nous allons nous limiter au développement d'une seule méthode celle des cylindres coaxiaux. C'est une méthode stationnaire, qui mesure le flux de chaleur échangé par conduction entre deux surfaces cylindriques adjacentes, séparées par un faible intervalle contenant l'échantillon fluide. Chacune des surfaces est maintenue à une température constante.

Dans cette méthode la convection est minimisée, sauf près du point critique du fluide, en utilisant un faible espace annulaire (typiquement de 0,2 à 0,3 mm). En outre, le flux de chaleur rayonné est fortement réduit, en choisissant des matériaux de faible émissivité pour

fabriquer les cylindres: l'argent est idéal pour cette réalisation, car il a une faible émissivité, une grandeur conductivité thermique et présente une bonne résistance à la plupart des agents chimiques.

Son principe consiste en une fine couche de fluide homogène de conductivité thermique uniforme λ, enfermée entre deux cylindres coaxiaux de longueur infinie. Le rayon externe du cylindre intérieur est r_1 et le rayon interne du cylindre extérieur est r_2. Le flux de chaleur uniforme émis dans le cylindre intérieur se propage radialement à travers l'échantillon vers le cylindre extérieur. Après l'établissement d'un régime stationnaire, les températures de la surface externe du cylindre intérieur et de la surface interne du cylindre extérieur seront respectivement T_1 et T_2. La quantité de chaleur transportée par conduction, par unité de temps et par unité de longueur, à travers la couche fluide est donnée par la loi de Fourier :

$$\phi = \frac{2\pi\lambda}{\ln(r_2 / r_1)}(T_1 - T_2) \qquad \text{(I.33)}$$

La conductivité thermique est déterminée à partir de la relation (I.33) en mesurant le flux de chaleur ϕ passant à travers l'échantillon et la différence de températures $\Delta T = T_1 - T_2$. Cette valeur de λ correspond à la température moyenne $T = (T_1+T_2)/2$. En pratique, la longueur des cylindres n'est pas infinie et les extrémités du cylindre ont des formes très variées : planes, coniques ou sphériques, à travers lesquelles le flux de chaleur doit être considéré.

Dans la cellule à cylindres coaxiaux représentée schématiquement sur la (figure I.2) (extrémités planes), la chaleur est produite sur l'axe du cylindre intérieur ou émetteur A, de diamètre $2r_1$ et de longueur L, et conduite radialement vers un second cylindre extérieur ou récepteur B, de diamètre $2r_2$, à travers un espace annulaire E, d'épaisseur d, rempli du fluide étudié. Une partie de la chaleur est aussi transportée vers les cylindres d'extrémité ou anneaux de *Garde* G, séparés de l'émetteur par un intervalle *i* approximativement égal à d.

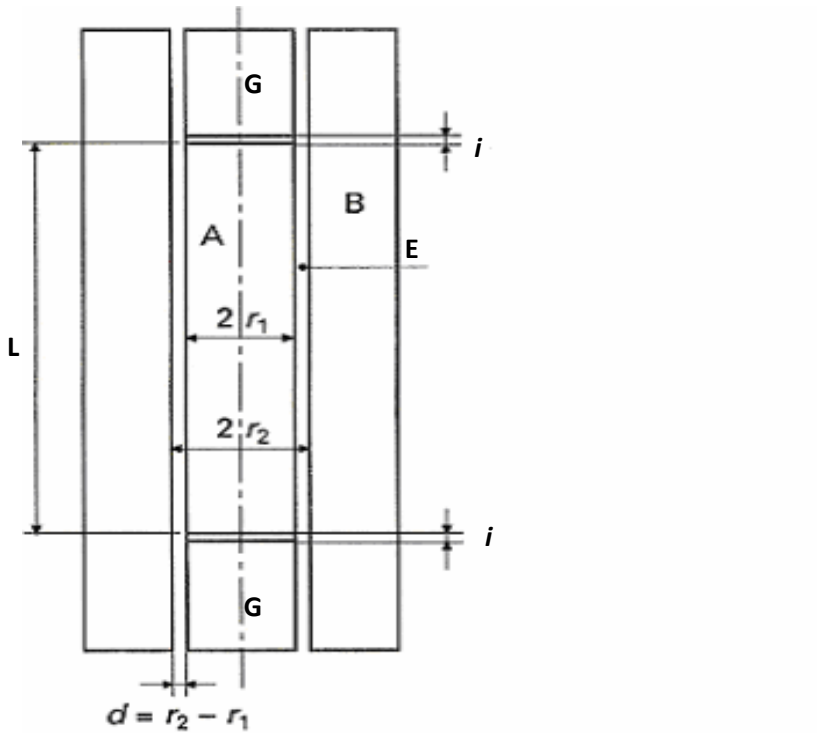


Figure I.2: Dispositif classique de la méthode des cylindres coaxiaux, (Tufeu 1971).

Si ces pièces de garde sont maintenues exactement à la même température que l'émetteur, toute la chaleur est transmise radialement et la conductivité thermique du fluide est définie par l'équation (I.31). Par contre, si les surfaces internes du cylindre B et des pièces d'extrémité G sont à une température uniforme T_2, et si la surface externe du cylindre intérieur A à une température uniforme T_1, la conductivité thermique du fluide est déterminée par l'équation:

$$\lambda = A\frac{\phi}{\Delta T} \qquad \text{(I.34)}$$

Où ϕ est la quantité de chaleur totale produite dans le cylindre émetteur.

Ici, A est une constante qui dépend de la géométrie de la cellule. Quand la constante A est déterminée à partir des caractéristiques géométriques de la couche fluide, la méthode est absolue. Quand elle est calculée en remplissant l'espace annulaire par un fluide étalon, la méthode est relative.

I.2.4.4. Application

La conductivité thermique des gaz est l'une des plus importantes propriétés thermiques, car il est nécessaire dans l'analyse de la chaleur équipement de transfert. (Eslamloueyan et Khademi, 2009). Notamment, une bonne connaissance de la conductivité thermique peut être modifiée, de façon significative, les coûts et les performances des échangeurs de chaleur. Des données sur la conductivité thermique sont nécessaires pour la modélisation mathématique et la simulation informatique du processus de transfert de chaleur.

En outre, la conductivité thermique fait apparaître un certain nombre de grandeurs thermiques comme la diffusivité thermique, le nombre de Nusselt, le nombre de Knudsen, le nombre de Rayleigh, etc. (Le Neindre 1996).

I.2.4.5. Aspect théorique et modèles proposés

La conductivité thermique λ pour un gaz est en fonction de la température, de la pression et de la composition. La pression basse saturée pour le gaz, λ est proportionnelle à la pression, bien que l'effet soit relativement faible aux pressions basse et modérée, augmente avec la température, (Reid *et al* 1987). Ces disparités sont toutes décrites, avec divers degrés de précision, par les équations empiriques suivantes de l'hypothèse cinétique des gaz, qui sont utilisées pour la prédiction des valeurs de λ. Certaines de ces corrélations ont été présentées dans ce qui suit :

Le modèle des sphères rigides propose pour la conductivité thermique d'un gaz monoatomique, pour lequel n'intervient que l'énergie de translation, l'expression suivante (Reid et Prausnitz 1977, Gosse 1991):

$$\lambda' = \frac{15R}{4M}\eta \qquad \text{(I.35)}$$

Si η est en unités MKS (c'est-à-dire en [Pa. s]), $R = 8{,}314$ [J · mol^{-1}· K^{-1}] (constante des gaz parfaits) et M doit être compté en [kg · mol^{-1}]; alors λ' est obtenu en [W. m^{-1}.K^{-1}].

I.2.4.5.1. Modèle d'Eucken (Le Neindre 1998)

Pour un gaz polyatomique, Eucken propose une loi qui peut s'écrire :

$$\lambda = \frac{R}{M}\left[\frac{15}{4} + \left(\frac{C_p{}^0}{R} - \frac{5}{2}\right)\eta\right] \qquad \text{(I.36)}$$

Le second terme à l'intérieur des crochets représente la contribution au transfert d'énergie par les degrés de liberté autres que de translation. La capacité thermique molaire à pression constante du gaz à l'état parfait C_p^0y est comptée dans les mêmes unités que R (soit J · mol^{-1}· K^{-1}). Elle a été estimée par la corrélation suivante (Reid et Prausnitz 1977):

$$C_P^0 = 4.18\ (A + BT + CT^2 + DT^3) \qquad \text{(I.37)}$$

A, *B*, *C* et *D* sont des constantes propres à chaque gaz.

I.2.4.5.2. Modèle d'Eucken modifié (Le Neindre 1996)

L'expression (I.37) a été retouchée ensuite en :

$$\lambda = \frac{R}{M}\left[\frac{15}{4} + Sc^{-1}\left(\frac{C_p^{\ 0}}{R} - \frac{5}{2}\right)\eta\right] \qquad \text{(I.38)}$$

dite formule d'Eucken modifiée.

Où Sc le nombre de Schmidt du gaz pur, soit:

$$Sc = \frac{\eta}{\rho D} = \frac{5\Omega_D}{\Omega_V} \qquad \text{(I.39)}$$

Des chercheurs ont constaté sur un ensemble d'exemples un fait général: les résultats expérimentaux sont mieux approchés à basse température par la formule d'Eucken et, à température élevée, par la formule modifiée.

La conductivité thermique est donc comprise entre les deux limites que constitue la formule d'Eucken, à basse température, et la formule modifiée, à haute température. La formule d'Eucken (I.36) suppose qu'il n'y a pas d'interaction entre les degrés de liberté internes tandis que la forme modifiée (I.38) admet l'interaction avec un ajustement instantané des degrés de liberté.

Les expériences conduisent à penser que l'échange des énergies internes se fait avec relaxation. Des calculs théoriques effectués dans cette idée ne peuvent être exploités parce que la connaissance du temps caractéristique de relaxation n'est pas maîtrisée.

On pose ici que la conductivité thermique (Svehla 1962):

$$\lambda = \frac{R}{M}\left[\frac{15}{4} + f_{\text{int}}\left(\frac{C_P^0}{R} - \frac{5}{2}\right)\eta\right] \qquad \text{(I.40)}$$

avec

$$f_{int} = \left[1 + (Sc^{-1} - 1) \exp\left(\frac{h^*}{\sqrt{T^*}} \right) \right] \tag{I.41}$$

où h^*est un groupement adimensionnel caractéristique de l'état quantique de la molécule; pratiquement, h^*vaut (Reid et Prausnitz 1977) :

$$h^* = \frac{43.76}{\sigma \sqrt{M \left(\frac{\varepsilon}{K} \right)}} \tag{I.42}$$

Avec σ en [Å], $\frac{\varepsilon}{K}$ en [K]et M en [g. mol^{-1}].

La relation (I.41) exprime une progressivité depuis l'état figé ($f_{int} = 1$), relation (I.36), jusqu'à un état de transfert aisé des énergies internes ($f_{int} = Sc^{-1}$) lorsque la température augmente, relation (I.38).

Il doit être noté que Svehla (Svehla 1962) donne des tables de conductivité thermique qui s'appuient sur la formule d'Eucken modifiée (I.38). Compte tenu de ce qui précède, elles ne peuvent être retenues que si la température du gaz non polaire est suffisamment élevée.

Si le calcul de la viscosité des gaz polaires ne pose pas de problème nouveau, il n'en est pas de même pour la conductivité thermique. On remarque que, pour les gaz très polaires, celle-ci peut être très inférieure à la valeur calculée par application de la formule simple d'Eucken (I.36) qui, donne une valeur planchée pour les gaz non polaires. Plus précisément, l'expression (I.40) conviendrait pour les gaz très polaires à condition de prendre un coefficient f_{int} plus faible que celui donné par (I.41). Tout se passe comme si l'échange des énergies internes était moins efficace. Une analyse des données expérimentales conduit à écrire pour la conductivité thermique (Poling, Prausnitz *et al*. 2001):

$$\lambda = \frac{R}{M} \left[\frac{15}{4} + f_P f_{\text{int}} \left(\frac{C_P^0}{R} - \frac{5}{2} \right) \eta \right] \tag{I.43}$$

Avec f_{int} calculé à partir de l'équation (I.41), et :

$$f_{\text{int}} = \exp\left(-11 h^{*2} \frac{\sigma}{T^*} \right) \tag{1.44}$$

On peut dire que la formule (I.42), établie empiriquement, constitue un critère

supplémentaire pour décider de l'assimilation d'un corps polaire à un corps non polaire. Ainsi, pour le chloroforme, h^*calculé par l'équation (I.42) est égal à 0,04 ; et à 200 K (T^*= *200/340 =0,588*), la formule (I.43) conduit à : f_p = *1* à 10^{-3}près. Le chloroforme est vraiment assimilable à un gaz non polaire. De même pour l'acétate d'éthyle à 457 K $\left(h^* = 0.039 \text{ et } f_p = 1\right)$(Bouzidi 2005)

I.2.4.5.3. Modèle de Bromley (Bromley 1952)

- Pour les gaz monoatomiques, bromley propose une loi qui peut s'écrire :

$$\lambda = \frac{10.54 C_V}{M}\eta \qquad (1.45)$$

- Pour les gaz polyatomiques, la conductivité des gaz est décrite par les équations suivantes:

- Molécules linéaires

$$\lambda = \frac{14.186}{M}\left[1.3C_V + 3.5 - \frac{0.7}{T_r}\right]\eta \qquad (1.46)$$

- Molécules non linéaires

$$\lambda = \frac{4.186}{M}\left[1.3C_V + 3.66 - 0.3C_{ir}\frac{0.69}{T_r} - 3\alpha\right]\eta \qquad (1.47)$$

Avec

λ : conductivité thermique à basse pression, [W. K $^{-1}$. m^{-1}] ; η : viscosité, [Pa. s].

C_v: Chaleur spécifique à volume constant, [J. mole^{-1}. K^{-1}] ; M : masse moléculaire, [g. mole^{-1}].

T_r: température réduite, T/T_c ; α: coefficient d'interaction des collisions moléculaires, [J. mole^{-1}.K^{-1}], voir référence (Reid et Prausnitz 1977).

C_{ir}: contribution à la chaleur spécifique des mouvements de rotation interne des molécules, [J. mole^{-1}.K^{-1}], voir référence (Reid et Prausnitz 1977).

I.2.4.5.4. Modèle de Misic-Thodos (Misic et Thodos 1961, Monchick et Mason 1961)

Misic et Thodos se sont basés sur l'analyse dimensionnelle pour donner leur modèle, une approche tout à fait différente d'autres auteurs dont les modèles sont tous fondés sur la théorie cinétique des gaz.

$$\lambda = f(M^a T_c^b T^c P_c^d V_c^e C_p^f R^g) \quad (1.48)$$

- Pour le méthane, et les hydrocarbures aromatiques avec $T_r<1$

$$\lambda = 4.4510^{-6} T_r \frac{C_P}{T} \quad (1.49)$$

- Pour le reste des hydrocarbures et $T_r \geq 1$

$$\lambda = (10^{-6})(14.52T_r + 15.4)^{\frac{2}{3}} \frac{C_P}{T} \quad (1.50)$$

Avec

$$T = \frac{T_C^{\frac{1}{6}} M^{\frac{1}{2}}}{P_C^{\frac{2}{3}}} \quad (I.51)$$

I.2.4.5.5. Modèle de Roy-Thodos (Roy, Thodos *et al*. 1970**)**

Ce modèle constitue une extension du modèle précédent :

$$\lambda = \frac{1}{T}\left((\lambda T_{tr}) + (\lambda T_{\text{int}})\right) \quad (I.52)$$

$$(\lambda T)_{tr} = 99.610^{-6}\left(e^{0.0464Tr} + e^{-0.2412Tr}\right) \quad (I.53)$$

$$(\lambda T)_{\text{int}} = \tau f(T_r) \quad (I.54)$$

$F(T_r)$ et ζ sont donnés dans la référence (Reid et Prausnitz 1977) sous forme de tableaux**.**

ζ: constante spécifique à chaque substance.

I.2.5. Coefficients de diffusion

I.2.5.1. Généralités

La diffusion moléculaire est le mécanisme du transfert d'un constituant au sein d'une phase par migration de molécules de ce constituant sous l'influence d'un gradient de concentration. Dès qu'il existe un gradient de concentration dans un fluide, celui-ci va spontanément évoluer par diffusion vers un état de concentrations uniformes correspondant à l'équilibre thermodynamique des phases liquides et gaz (Jamnongwong 2010).

Les idées de base sur la diffusion furent émises par Fick en 1855 en ce qui concerne les liquides (Turq et Simonin 1990), mais se généralisent au cas des gaz et des solides.

L'hypothèse fondamentale de la loi de Fick est défini le flux de matières J_A d'une espèce A qui diffuse par rapport au mélange des deux constituants A et B, vers des zones à faible concentration en A. Cette loi indique que le flux molaire de matière est proportionnel au gradient de concentration volumique molaire et au coefficient de diffusion (ou diffusivité) D_{AB} (Jamnongwong 2010)

$J_{(A)}= -D_{AB}$ .grad (Boardman, Wild *et al*.) (I.55)

La deuxième forme de l'équation de Fick intègre le phénomène de transfert par le fluide. Le flux devient la somme d'un phénomène de convection et de diffusion.

$J_A=U_Z.C_A=D_{AB}$ grad. (Boardman, Wild *et al*.) . (I.56)

Soit après développement

$J_A=U_Z.C_A-D_{AB}$ grad. (Boardman, Wild *et al*.) (I.57)

Une équation similaire peut être établie pour le constituant B

Le flux d'un constituant A par rapport à une surface fixe est donc la somme d'un terme de flux convectif et d'un terme de flux diffusif superposé au mouvement d'ensemble.

Les coefficients de diffusion pour un mélange binaire de A et B sont généralement définis par :

$$J_{A}^{M} = -CD_{AB}\frac{dx_A}{dZ} \quad (I.58)$$

$$J_{B}^{M} = -CD_{BA}\frac{dx_B}{dZ} \quad (I.59)$$

Depuis$(dx_A/dz) + (dx_B/dz) = 0$, on a $D_{AB} = D_{BA}$.

Le coefficient de diffusion représente alors la proportionnalité entre le flux d'un A relié a un champ sans flux molaire net et celui du gradient : c (dx_A/dz).

Avec la définition du volume molaire partiel il peut être démontré que pour un système binaire isobarique et isothermal ;

$$J_A^V = -D_{AB}\frac{dC_A}{dZ}$$

et, $J_B^V = -D_{AB}\frac{dC_B}{dZ}$ (I.60)

Lorsque les flux sont définis en relation avec les champs sans le volume d'un flux net, le potentiel est alors la concentration du gradient.

D_{AB} dans l'équation (I.59) est identique a celui définit dans l'équation (I.60).

Quand $\overline{V}_A \approx \overline{V}_B \approx V$ comme pour les gaz idéaux : $J_A^V \approx J_A^M$, $J_B^V \approx J_B^M$

Lorsqu'un atome se déplace parmi des atomes de même nature, on parle d'autodiffusion. Par exemple, on parlera d'autodiffusion du fer pour désigner la migration d'un atome de fer dans un cristal de fer.

Lorsque l'on a deux milieux homogènes différents de l'on met en contact, on parle d'interdiffusion.

I.2.5.2. Dimensions et unités

Ce coefficient s'exprime en m^2/s (longueur^2 / temps) en unités du SI, et en cm^2/s en unités de CGS.

I.2.5.3. Méthodes expérimentales de mesure

Il existe de très nombreuses méthodes pour mesurer les coefficients de diffusion : elles varient avec l'état physique de la phase dans laquelle se produit le phénomène. Les mesures sont toujours difficiles et souvent peu précises.

Dans le cas des fluides (gaz et liquides), il faut éviter les autres causes d'homogénéisation du milieu et en particulier les phénomènes de convections susceptibles d'apparaître du fait des vibrations mécaniques ou des gradients thermiques.

Diverses méthodes s'appuient sur les formules de définition des lois de Fick, nous indiquerons en ce qui suit deux procédés de mesure du coefficient de diffusion des gaz.

I.2.5.3.1. Coefficient de diffusion mutuelle ou d'interdiffusion

L'une des méthodes les plus classiques consiste à remplir deux tubes identiques, respectivement avec les gaz *A* et *B*, dans les mêmes conditions de températures et de pression.

Les ouvertures des deux tubes sont amenées au contact, de telle sorte qu'aucun mouvement mécanique ou de convection ne puisse se produire. Ces tubes étant supposés verticaux, le tube inférieur doit renfermer le gaz le plus dense, figure I.3. On laisse la diffusion s'effectuer pendant un temps convenable, puis les mélanges gazeux de chaque tube sont analysés. On en déduit D_{AB}. Il faut bien remarquer que le coefficient de diffusion mutuelle ainsi obtenu est celui qui correspond à des proportions égales des deux gaz ($x_A = x_B$). On a bien utilisé des tubes de longueurs différents, mais l'imprécision des mesures n'a généralement pas permis de faire des études des variations quantitatives de D_{AB} avec x_A car, si le principe de la méthode est fort simple, la réalisation en est très délicate (Boardman, Wild *et al*. 1937).

Le montage le plus classique est celui de Boardman et Wild (Boardman, Wild *et al*. 1937), pour lequel Obermayer (Liner et Weissman 1972) a construit des tables qui permettent d'utiliser simplement la solution de l'équation de diffusion correspondante.

De telles mesures ont permis de vérifier plusieurs résultats prévus par la théorie cinétique (Marrero, Mason *et al*. 1972, Reid et Prausnitz 1977). En particulier, pour des gaz proches de l'état parfait. D_{AB} est inversement proportionnel à la pression et il est proportionnel à la température.

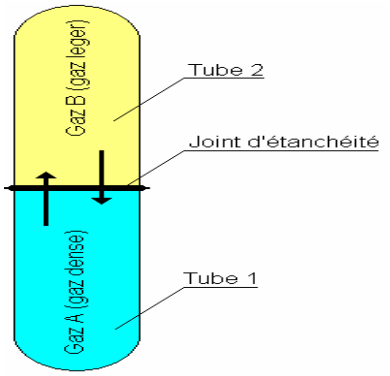


Figure I.3 : Dispositif de mesure de la diffusivité des gaz, (Boardman, Wild *et al*. 1937).

I.2.5.3.2. Coefficient de diffusion propre et d'autodiffusion

Le principe de la détermination expérimentale est celui de la méthode Boardman et Wild mais, dans ce cas, les deux compartiments sont remplis du même mélange *AB*, l'un des deux compartiments contenant également un isotope radioactif soit de *A*, soit de *B*.

A défaut d'isotopes radioactifs, on peut mesurer approximativement le coefficient

d'autodiffusion D^* en remplissant respectivement les tubes avec les corps *A* et *B*, dont les masses moléculaires et les formules chimiques sont aussi voisines que possibles.

I.2.5.4. Application (Eslamloueyan, Khademi *et al*. 2010)

L'estimation des coefficients de diffusion dans les phases liquide et gazeuse est cruciale dans la conception et la simulation de processus impliquant le transfert de masse tel que l'extraction liquide – liquide, la lixiviation, l'absorption des gaz, les réacteurs, les tours à plateaux. Par exemple, diffusion binaire des coefficients de gaz sont nécessaires dans la conception des réacteurs en phase gazeuse. Certains autres domaines où la diffusivité des gaz joue un rôle important sont changements globaux, chimie atmosphérique, science de la combustion, études de pollution de l'air intérieur et interactions atmosphère-biosphère.

La diffusion est également un facteur majeur d'élargissement des pics en chromatographie.

I.2.5.5. Aspect théorique et modèles proposés

La diffusivité de masse D_{AB} d'un système binaire est en fonction de la température, de la pression et de la composition. Les données disponibles sur le D_{AB} pour la plupart des mélanges binaires sont par ailleurs assez limitées en termes de portée et de précision (Gavril, Atta *et al*. 2004). À basse pression saturée pour mélange gazeux binaire, le D_{AB} est inversement proportionnel à la pression, augmente avec l'augmentation de la température et a une composition presque indépendante en ce qui concerne une paire de gaz spécifique (Giddings et Seager 1960). Ces disparités sont toutes décrites, avec divers degrés de précision, par les équations empiriques suivantes de la théorie cinétique des gaz, qui sont utilisées pour la prédiction des valeurs D_{AB}. Certaines de ces corrélations ont été présentées dans ce qui suit:

I.2.5.5.1. L'équation de Stefan – Maxwell (Liner et Weissman 1972)

Stefan – Maxwell cite l'expression qui suit :

$$D_{AB}=\frac{a}{n\sigma_{AB}^2}\left[\frac{8RT}{\pi}\left(\frac{1}{M_A}+\frac{1}{M_B}\right)\right]^{\frac{1}{2}} \qquad \text{(I.61)}$$

I.2.5.5.2. L'équation de Chapman – Enskog, (Giddings et Seager 1960) (om manquée).

Chapman – Enskog présente l'équation suivante :

$$D_{AB} = \frac{0.002667T^{\frac{3}{2}}}{PM_{AB}^{\frac{1}{2}}\sigma_{AB}^{2}\Omega_{D}},\ \sigma_{AB} = \frac{(\sigma A + \sigma B)}{2}. \qquad \text{(I.62)}$$

Où P est la pression de gaz (atm), T est la température absolue (K) et σ_{AB} est le diamètre de collision entre A et B (A). Le terme Ω_D est l'intégrale de collision.

M_A et M_B sont les masses moléculaires du gaz A et du gaz B, respectivement (g / mol).

I.2.5.5.3. Wilke et Lee, (Wilke, Lee *et al*. 1955).

Wilke et Lee proposent l'égalité qui suit :

$$D_{AB} = \frac{\left[3.03 - \left(\frac{0.98}{M_{AB}^{\frac{1}{2}}}\right)\right](10^{-3})T^{\frac{3}{2}}}{PM_{AB}^{\frac{1}{2}}\sigma_{AB}^{2}\Omega_{D}} \qquad \text{(I.63)}$$

I.2.5.5.4. L'équation de Gilliland, (Gilliland et Chemistry 1934).

Gilliland propose la relation suivante :

$$D_{AB} = \frac{0.0043T^{1.5}(1/M_A + 1/M_B)^{\frac{1}{2}}}{P\left[(V)_A^{\frac{1}{3}} + (V)_B^{\frac{1}{3}}\right]^2} \qquad \text{(I.64)}$$

Où V_A et V_B sont les volumes molaires au point d'ébullition (cm^3). Les valeurs de V_A et V_B peuvent être obtenus expérimentalement ou par des méthodes de contribution du groupe.

I.2.5.5.5. L'équation de Hirschfelder – Bird – Spotz (HBS), (Hirschfelder, Bird *et al*. 1949)

Hirschfelder élabore la formule suivante :

$$D_{AB} = \frac{0.00816T^{1.5}\left(\frac{1}{M_A}+\frac{1}{M_B}\right)^{\frac{1}{2}}}{P\sigma_{AB}^2\Omega_D} \qquad \text{(I.65)}$$

Le terme Ω_D est l'intégrale de collision dépendant de manière complexe de la température et de l'énergie d'interaction des molécules en collision, σ_{AB}. Hirschfelder *et al*. suivait l'approche cinétique de Chapman– Enskog associée à la fonction de potentiel intermoléculaire de Lennard – Jones (Hirschfelder, Bird *et al*. 1949). Ω_{AB} les valeurs en tant que rôle de la diminution de la température, k étant la constante de Boltzmann, ont été tabulées (Bird 1960).

Le principal inconvénient de l'équation HBS est la difficulté rencontrée dans l'évaluation de σ_{AB} et Ω_D.

I.2.5.5.6. Chen et Othmer (Othmer, Chen *et al*. 1962)

Chen et Othmer fournissent l'approximation la plus explicite de l'équation HBS en utilisant la valeur critique de température T_C et de volume, V_C:

$$D_{AB} = \frac{0.43\left(\frac{T}{100}\right)^{1.81}\left(\frac{1}{M_A}+\frac{1}{M_B}\right)^{\frac{1}{2}}}{\left[\left(\frac{V_{CA}}{100}\right)0.4+\left(\frac{V_{CB}}{100}\right)0.4\right]^2 P\left(\frac{T_{CB}T_{CA}}{10^4}\right)^{0.1405}} \qquad \text{(I.66)}$$

Les valeurs de T_C et de V_C peuvent être estimées de différentes manières (Hirschefelder, Curtiss *et al*. 1954)

I.2.5.5.7. Huang *et al,* (Eslamloueyan, Khademi *et al*. 2010).

Ils ont étudié les conséquences de la pression et de la température sur la diffusivité des gaz. Sur la base de leurs données expérimentales, ils ont modifié l'équation d'Arnold comme suit:

$$D_{AB} = \frac{5.06T^{1.75}\left(\frac{1}{M_A}+\frac{1}{M_B}\right)^{\frac{1}{2}}}{P^{1.286}\left[V_A^{\frac{1}{3}}+V_B^{\frac{1}{3}}\right]^2} \qquad \text{(I.67)}$$

I.3. Méthodes d'apprentissages statistiques

Au cours de la dernière décennie; les algorithmes d'apprentissage statistique ont suscité beaucoup d'intérêt dans le milieu académique et au sein d'entreprises de diverses industries. Ils ont été implantés avec succès pour l'accomplissement des tâches prédictives reliées à des processus statistiques observés pour lesquels on peut identifier plusieurs variables explicatives (Hamadache 2014). Cette étude se concentre sur une classe particulière de ces algorithmes : la régression linéaire multiple et les réseaux de neurones artificiels (Ammi 2016).

I.3.1. Régression linéaire multiple (RLM)

La régression linéaire multiple (MLR) est l'une des techniques statistiques utilisées pour étudier une relation linéaire entre un groupe de variables prédictives X_i et une réponse Y_i (Ul-Saufie, Yahya *et al*. 2011, Soares dos Santos, Mendes *et al*. 2016). Un modèle de régression multiple peut être représenté par l'équation suivante :

$$Y_i = A_0 + \sum_{i=1}^{n} A_i X_i \tag{I.68}$$

où Y_i représente la sortie; X_i représente les entrées; A_i représente les coefficients; A_0 est la constante (appelée intercepté) et n le nombre d'entrées (Sousa, Martins *et al*. 2007).

I.3.2. Réseaux de neurones artificiels (RNA)

I.3.2.1. Le modèle neurophysiologique « Neurone Biologique »

La naissance des réseaux de neurones est directement issue des recherches neurobiologiques. Avant de décrire les réseaux formels, il convient donc de s'intéresser aux cousins biologiques. le système nerveux central (Changeux 1991) est constitué de quelque cent milliards de neurones fortement interconnectés entre eux. Chaque neurone est connecté à environ une dizaine de milliers d'autres par l'intermédiaire de systèmes, en générale constituée d'un axone, d'une synapse et d'une dendrite (la synapse étant en réalité l'espace entre le bout de l'axone et le corps de la dendrite et dans lequel circulent les neurons-transmetteurs); comme on a sur la figure (I.4).

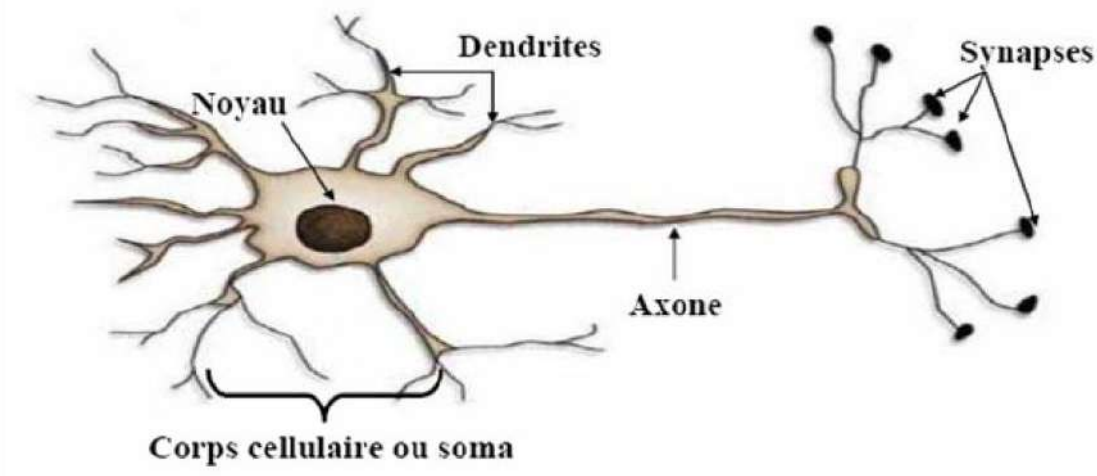


Figure I.4 : Schéma d'un neurone biologique; (Si Moussa 2010).

Le neurone est une cellule constituée principalement de trois parties qui; au regard du transfert d'information; ont un rôle fonctionnel bien défini. Ce sont : Le corps cellulaire; les dendrites; et l'axone.

1. **Corps cellulaire :** qui contient le noyau de la cellule nerveuse, il est le centre de traitement des informations et de commande du neurone, les messages reçus à partir des dendrites sont interprétés et la réponse est envoyée à travers l'axone.
2. **Dendrites :** ce sont de fines extensions tubulaires qui se ramifient autour du neurone et forment une sorte de vaste arborescence. Les signaux envoyés au neurone sont captés par les dendrites.
3. **Axone :** c'est le long de l'axone que les signaux partent du neurone. Contrairement aux dendrites qui se ramifient autour du neurone ; l'axone est plus long et se ramifie à son extrémité où il se connecte aux dendrites des autres neurones ; son rôle est de transmettre l'activité neuronale générée par le corps cellulaire aux dendrites d'autres cellules aux voisinages.
4. **Synapse** : La synapse est la jonction de l'axone d'un neurone aux dendrites d'un autre qui communique l'information, en la pondérant par un poids synaptique, à un autre neurone, elle est essentielle dans le fonctionnement du système nerveux.

Contrairement aux dendrites qui se ramifient autour du neurone ; l'axone est plus long et se ramifie à son extrémité où il se connecte aux dendrites des autres neurones ; son rôle est de transmettre l'activité neuronale générée par le corps cellulaire aux dendrites d'autres cellules aux voisinages.

Dans un neurone l'information ne se transmet que dans un seul sens : des dendrites vers l'axone.

Chaque neurone reçoit des informations sous forme d'impulsion électrique : les influx nerveux provenant de toutes les ramifications des dendrites. À partir de tous ces signaux, il décide d'émettre ou non un signal. S'il émet un signal, il le fait grâce à la sortie du neurone ; l'axone. La synapse est donc le lieu de passage des impulsions d'un neurone à l'autre. Ce passage d'informations est réalisé par des procédés chimiques, car un influx nerveux ne peut pas passer directement d'un corps cellulaire à l'autre. Les vecteurs de cette transmission sont les neurotransmetteurs. Une synapse peut être inhibitrice ou excitatrice. Dans le premier cas le neurone émetteur aura tendance à l'activer. De plus, par sa géométrie, son lieu de ramification, les structures des processus chimiques…; une synapse est caractérisée par l'efficacité avec laquelle elle assure la liaison ; (Poulard 1996).

On considère qu'à chaque ramification de dendrites, la somme des influx est effectuée. La somme des influx des neurones émetteurs pondérés par les efficacités synaptiques semble donc arriver à l'organe central de décision du neurone. Celui-ci est caractérisé par un seuil. Si signal reçu est supérieur à ce seuil, le neurone génère alors un influx nerveux qu'il émet par l'intermédiaire de ses axones vers d'autres neurones ; (Poulard 1996):

Comme nous le verrons dans la suite de ce chapitre, dans le cadre des réseaux de neurones, les procédés d'apprentissage développés depuis le début du connexionnisme n'ont en général plus rien à voir avec la biologie. Le modèle de neurone comme unité élémentaire de calcul a été plus ou moins conservé, mais les processus d'apprentissage sont des développements mathématiques abstraits et aucunement basés sur des réalités biologiques.

I.3.2.2. Neurone Artificiel "Formel"

Le premier modèle de neurone formel fut présenté en 1943, par MC Culloch et Pitts; deux chercheurs de l'université de Chicago. Ce modèle reproduit exactement les caractéristiques du modèle de neurone biologique présenté ci-dessus. C'est une unité à sortie binaire, soit il est actif, soit il inactif (sortie à 1 ou à 0). Pour calculer sa sortie; le neurone calcule d'abord son entrée totale en faisant la somme de toutes ses entrées pondérées par les poids synaptiques correspondants. Ensuite il compare l'entrée totale à un seuil qui est une valeur caractéristique de chaque neurone. Si l'entrée totale est supérieure au seuil alors le neurone s'active; sinon est inactif; (Lippmann 1987).

Un neurone est une fonction algébrique non linéaire paramétrée, à valeurs bornées. Il est commode de représenter graphiquement un neurone comme indiqué sur la figure I.5. Les variables sur lesquelles opère le neurone sont habituellement désignées sous le terme d'entrée du neurone; et la valeur de la fonction sous celui de sortie (Dreyfus, Martinez *et al*. 2002).

Le neurone artificiel (figure I.5) reçoit les entrées qui sont analogues aux impulsions électrochimiques que les dendrites de neurones biologiques reçoivent d'autres neurones. Il est donc un opérateur mathématique très simple qui traduit la représentation mathématique d'un neurone biologique. Selon, (Dreyfus 2005)" un neurone est une fonction algébrique non linéaire; paramétrée; à valeur bornée". Il possède des entrées qui peuvent être les sorties d'autres neurones; ou des entrées de signaux extérieurs; et une sortie. La valeur de la sortie résulte du calcul de la somme des entrées; pondérées par des coefficients (dits poids synaptiques) et du calcul d'une fonction non linéaire bornée de cette somme pondérée. Cette fonction (dite fonction d'activation) est le plus souvent une fonction sigmoïde, mais peut également être une gaussienne; un échelon.

La première étude systématique du neurone artificiel est due au neuropsychiatre W. S. Mc Culloch et W. Pitts (Lippmann 1987) qui; s'inspirant de leurs travaux sur les neurones biologiques; proposèrent en 1943.

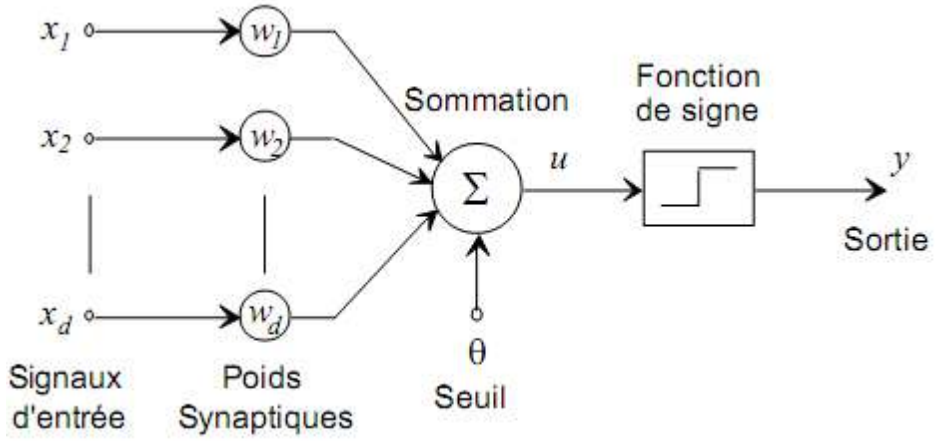


Figure I.5 : Schéma d'un neurone artificiel; (Lippmann 1987).

Le neurone reçoit une combinaison d'entrées (variables x_i) et les pondère grâce à des valeurs réelles appelées coefficients synaptiques ou poids synaptiques (paramètres W_i). Ces coefficients peuvent être positifs, et l'on parle alors de synapses excitatrices, ou négatifs pour des synapses inhibitrices. Le neurone calcule ainsi une somme (appelée potentiel *u*) de ses entrées pondérées par les poids (équation I.69). Ce potentiel *u* auquel est ajouté un terme

constant ou « biais »; noté ici « b »; devient l'argument d'une fonction d'activation f qui calcule la sortie y (équation I.70).

$$u = w_0 . b + \sum_{i=1}^{s} w_i x_i \quad \text{(I.69)}$$

$$y = f(u) \quad \text{(I.70)}$$

I.3.2.3.Analogie

La figure I.6 résume la correspondance entre le neurone artificiel et le neurone biologique. On remarque dans cette description schématique, que chaque composant ou constituant du neurone artificiel trouve son inspiration biologique.

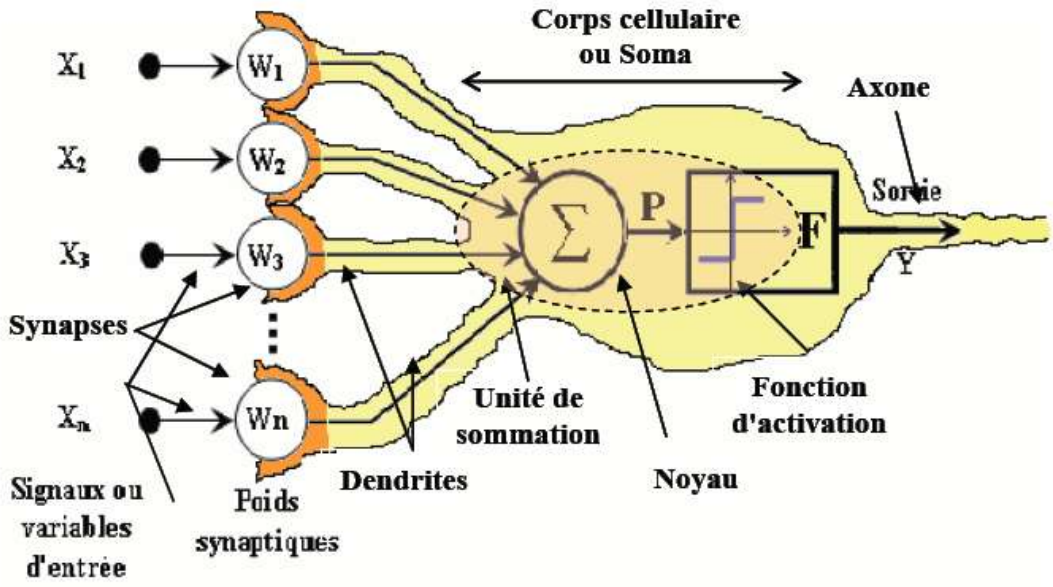


Figure I.6 : Schéma de comparaison entre un neurone biologique et un neurone artificiel (Si Moussa 2010).

Tableau I.2. Correspondance entre les modèles neuronaux biologiques et artificiels (Beale, Hagan *et al*. 2010);

Cerveau	**Réseau de neurones**
Neurone	Elément processeur
Dendrites	Somme pondérée
Corps cellulaire	Fonction d'activation
Axone	Fonction de sortie
Synapse	Poids

I.3.2.4. Architecture d'un réseau de neurones

L'organisation des réseaux de neurones peut se faire à partir de deux grandes catégorie d'architecture : les réseaux statiques et les réseaux dynamiques. (Khaouane 2013, Hamadache 2014, Ammi 2016)

- Les réseaux statique (non bouclés): Ils réalisent une (ou plusieurs) fonction(s) algébrique(s) des entrées ; par composition des fonctions réalisées par chaque neurone. Les réseaux de neurones non bouclés sont des outils statiques utilisés principalement pour effectuer des tâches d'approximation de fonctions non linéaires, de modélisation de processus statiques non linéaires.
- Les réseaux dynamique (bouclés): Ils constituent quant à eux un système dynamique "à temps discret" ; régi par une (ou plusieurs) équation(s) aux différences non linéaires; résultant de la composition des fonctions réalisées par chacun des neurones et des retards associés à chacune des connexions. Ils sont utilisés pour effectuer des tâches de modélisation et d'adaptation de systèmes dynamiques, de commande de processus ou de filtrage.

Dans notre étude; nous avons adopté le modèle le plus couramment utilisé; le Perceptron Multi- couches (PMC); illustré par la figure I.7 et dont les principes sont exposés dans ce qui suit.

I.3.2.5. Perceptron Multicouche « PMC »

Il y a de nombreuses applications de RNA dans l'analyse de données; l'identification de modèle et la commande [(Jack, Neti *et al*. 2002) ; (Benahmed 2002)]. Parmi différents types de RNA; le perceptron multicouches (noté **MLP : M**ulti **L**ayer **P**erceptron en anglais) sont tout à fait populaires et utilisés pour le travail actuel (Les réseaux *feedforward)*. Ici une brève introduction à PMC la perfection (voir la figure I.7).

Un réseau PMC se compose d'une couche d'entrée de neurones de source; une ou plusieurs couches cachées et d'une couche de sortie. Le nombre des neurones dans la couche d'entrée et de sortie dépend du nombre de variables d'entrée et de nombre des classes désirées respectivement. Le nombre de couches cachées et le nombre de neurones dans chaque couche cachée affectent les possibilités de généralisation du réseau.

Pour un plus petit nombre de couches cachées et de neurones; l'exécution peut ne pas être proportionnée. Considérant qu'avec trop de neurones cachés peuvent avoir le risque de sur ajustement de précision des données. Il y a diverses méthodes; heuristiques et

systématiques; pour choisir le nombre de couches cachées et de neurone [(Jack, Neti *et al.* 2000)].

La figure I.7 montre une architecture typique de PMC se composant de trois couches ; de *M*, *N* et *O* pour l'entrée; la couche cachée et la couche de sortie; respectivement. Le vecteur d'entrée $X = [x_1 x_2 .. \quad x_N]^T$ est transformé à un vecteur intermédiaire des variables cachées *U* par utilisation de fonction d'activation f_j: la sortie u_j du $j^{ème}$ neurones de la couche cachée est obtenue comme suit :

$$u_j = \left[\sum_{i=1}^{n} w_{i;j}^{1} x_i + b_j^1\right] \qquad \text{(I.71)}$$

Où b_j^1 et $w_{i;j}^1$ représentent respectivement le biais et le poids entre le $j^{éme}$ neurone de la couche cachée et le $i^{éme}$ neurone de la couche d'entrée. L'indice supérieur 1 représente le raccordement (premier) entre les neurones des couches entrée/cachée. Le vecteur de sortie désirée $y = [y_1 y_2 .. \quad y_N]^T$ du réseau est obtenu à partir du vecteur des variables intermédiaires *U* par une fonction d'activation f_2 de la couche de sortie. Par exemple; la sortie du neurone *k* peut être exprimée comme suit :

$$y_k = f_2\left[\sum_{I=1}^{n} w_{i;k}^{1} x_I + b_k^1\right] \qquad \text{(I.72)}$$

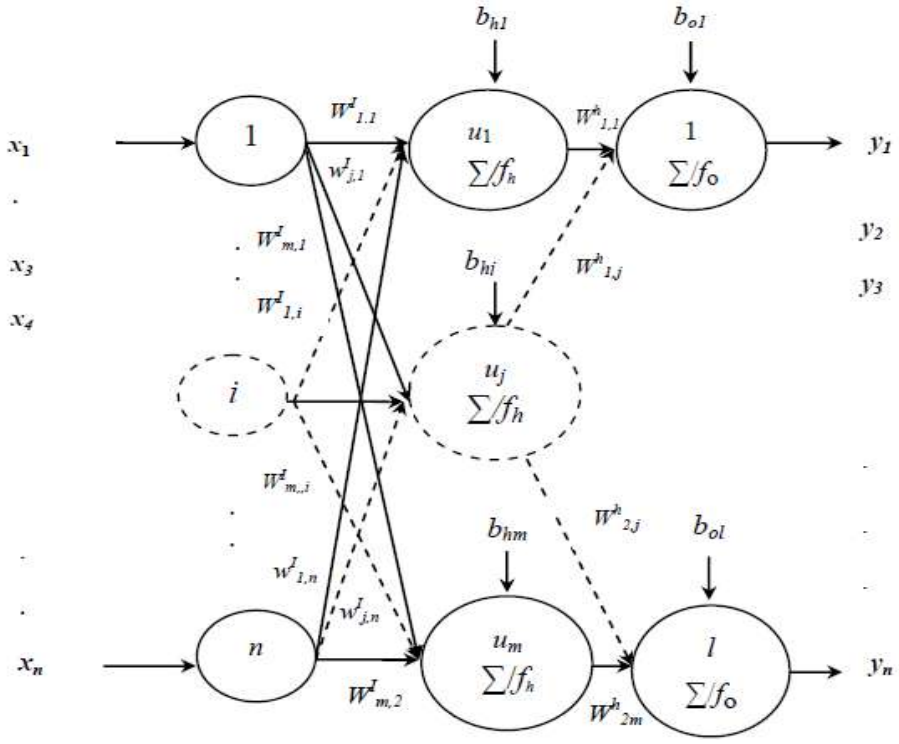


Figure I.7. Perceptron multicouche; PMC. [(Jack, Neti et *al.* 2000) ; (Benahmed 2002)].

Où l'indice supérieur 2 dénote le raccordement (secondaire) entre les neurones des couches cachée/sortie. Il y a plusieurs formes des fonctions d'activation f_1 et f_2 tels que la fonction sigmoïde; la tangente hyperbolique et la fonction linéaire.

I.3.2.6. Fonctions d'activation « Fonction de Transfert »

La fonction d'activation calcule la valeur de l'état du neurone qui est transmise aux neurones avals. La fonction d'activation sert aussi à introduire une non-linéarité dans le fonctionnement du neurone. A la différence des neurones biologiques dont l'état est binaire, la plupart des fonctions de transfert sont continues, offrant une infinité de valeurs possibles comprises dans l'intervalle [0; +1] ou [-1; +1]. Il existe de nombreuses formes possibles pour la fonction de transfert. Le tableau I.3 résume quelques fonctions de transfert utilisées dans le programme de calcul techniques MATLAB®(Hagan, Demuth *et al*. 1996).

Tableau I.3 : Fonctions de transfert usuelles ; *a = f(n)* (Beale, Hagan *et al*. 2010).

Nom de la fonction	**Relation entrée / sortie**	**Fonction MATLAB® correspondante**
Linéaire	$a = n$	*purelin*
Logistique (Sigmoïde logarithmique)	$a = \frac{1}{1+e^{-n}}$	*logsig*
Exponentielle	$a = e^{-a}$	Exponential
Tangentes hyperbolique sigmoïdes	$a = \frac{e^{+n} - \mathrm{e}^{-n}}{e^{+n} + \mathrm{e}^{-n}}$	*tansig*

I.4. Conclusion

Au terme de ce chapitre, nous pouvons conclure que ;

- Les coefficients de transport (viscosité dynamique, conductivité thermique et diffusivité moléculaire), bien que nécessaire pour l'étude des phénomènes de transport, les démarches de leur détermination demeurent une opération tant sur le

plan théorique que sur le plan expérimental. Par voie de conséquence, une recherche dans le sens d'apporter une amélioration à la façon de leurs estimations est plus que nécessaire au vu de leur importance.

- Les réseaux de neurones artificiels (RNA) et les régressions linéaires multiples (RLM) soient très appliqués dans le domaine du génie des procédés en raison de la précision des résultats qu'ils produisent et de la simplicité relative de la mise en œuvre.

CHAPITRE II

REVUE CRITIQUE DE LA LITTERATURE

II.1. Introduction

Ce chapitre est consacré à une revue des travaux des coefficients de transport (viscosité dynamique, conductivité thermique et diffusivité moléculaire). Une conclusion est donnée en fin de ce chapitre qui présente une synthèse par laquelle se justifie l'objectif de ce travail.

II.2. Revue de la littérature sur l'utilisation des coefficients de transport (viscosité dynamique, conductivité thermique et diffusivité moléculaire).

De nombreux rapports décrivent l'utilisation des réseaux des neurones artificiels dans la prédiction des coefficients de transport, ces déclarations se sont généralement limitées aux liquides plutôt qu'aux gaz. Dans cette partie de la revue bibliographique, on parlera de la littérature scientifique consacrée à la modélisation des trois propriétés (viscosité dynamique, conductivité thermique et diffusivité moléculaire). Sur la base de la revue de la littérature nous somme intéressés sur quelques travaux importants présentés ci-après.

II.2.1. Viscosité dynamique

Homer et al. 1999, ont développé une méthode prédictive, basée sur les réseaux de neurones artificiels (RNA) et les propriétés physiques d'équilibre pour, la viscosité, la densité, la chaleur de vaporisation, le point d'ébullition et le facteur acentrique de Pitzer pour les hydrocarbures liquides organiques purs sur une large gamme de températures (réduite) (0,45–0,7). Un comité RNA a été formé, utilisant dix propriétés physico-chimiques et structurelles combinées à la température absolue comme entrées, pour corréler et prédire la viscosité. Un groupe de 281 composés, de structures diverses, a été arbitrairement ordonné en un ensemble de 200 composés, qui ont été utilisés pour former le comité RNA cependant, un groupe de 81 composés, ont été utilisés pour tester la performance prédictive du comité RNA. La viscosité et les données d'entrée pour chaque composé individuel ont été compilées en moyenne à quarante températures différentes, allant des points de fusion aux points d'ébullition pour chacun des composés choisis. L'écart moyen absolu de la viscosité, prédit par le comité RNA, était de ± 7,9%, ce qui se réduit à ± 6,5% lorsque les données corrélées sont également prises en compte. Ces valeurs sont presque un facteur 2 mieux que les autres méthodes prédictives et sont inférieures à l'écart moyen absolu expérimental d'environ ± 10%, citées par la base de données de référence DIPPR (AIChE, 1994). Dans une étude préliminaire, un comité

distinct RNA a également été utilisé pour prédire la viscosité des composés de liaison hautement polaires et hydrogènes, des acides aliphatiques, des alcools et des amines. L'écart moyen absolu prévu pour les amines, les alcools et les acides aliphatiques était de ± 8,9%. Bien qu'ils aient traité principalement la viscosité du liquide, la même méthodologie a été appliquée à la densité du liquide, à la chaleur de vaporisation, au point d'ébullition et au facteur acentrique de Pitzer. L'écart moyen absolu moyen prévu pour ses propriétés d'équilibre était respectivement de ± 0,71%, ± 1,04%, ± 0,39% et ± 5,6%. Egalement, une tentative d'utiliser le l'RNA a été faite pour déterminer les dépendances hiérarchiques de la viscosité sur les paramètres moléculaires et structuraux fondamentaux.

Bouzidi et al. 2007, ont basé sur les réseaux neuronaux artificiels (RNA) du type Multi-layer Perceptron (MLP) pour estimer la viscosité à pression modérée pour les gaz purs non polaires sur une large gamme de températures. Un groupe de 52 gaz non polaires a été utilisé pour former et tester les performances de RNA.

Les données de viscosité et d'entrée pour chaque gaz individuel ont été compilées en moyenne à cinquante températures différentes, allant des points d'ébullition pour chacun des gaz choisis à 1100 K. L'erreur absolue maximale de viscosité prédite par le RNA était d'environ 15 %.

Bouzidi et al. 2008, ont présenté un modèle de réseau neuronal artificiel (RNA) pour la prédiction de la viscosité du gaz polaire. Le modèle était adéquat pour modéliser la viscosité avec une erreur relative moyenne de 5.70%.

Omole et al. 2009, ont utilisé le réseau neuronal artificiel (RNA) pour corriger l'inexactitude des données empiriques utilisées pour prédire la viscosité du pétrole brut. Le nouveau modèle de réseau de neurones artificiels a été développé pour prédire la viscosité du pétrole brut en utilisant 32 ensembles de données collectés dans la région du delta du Niger de Nigeria. Dont environ 17 ensembles de données ont été utilisés pour former le modèle, 10 ensembles ont été utilisés pour tester l'exactitude du modèle et les 5 ensembles restants pour valider les relations établies au cours du processus de formation. Les résultats des tests ont révélé que le modèle de réseau neuronal à propagation arrière (APRN) était meilleur corrélations empiriques en termes d'erreur relative absolue moyenne et de coefficient de corrélation.

Abdolreza Moghadassi et al. 2010, ont proposé une nouvelle méthode basée sur des neurones artificiels (RNA) pour la prédiction de la viscosité d'un composé. Les données

requises étaient extraites du manuel Perry's Chemical Engineers "Handbook. La précision et la stabilité des tendances des réseaux formés ont été testées contre des données invisibles. Différents programmes de formation pour l'algorithme d'apprentissage de rétropropagation, tels que sous forme de gradient conjugué à l'échelle (SCG), de méthodes de Levenberg-Marquardt (LM) et de rétroprojection résiliente (RP) ont été utilisées. L'algorithme SCG avec 19 neurones dans la couche cachée s'est avéré être le plus approprié algorithme avec une erreur quadratique moyenne minimale (MSE) de 0,000381. Les résultats du modèle RNA ont été évalués contre les données invisibles et ensuite comparé avec les modèles empiriques. La capacité de l'RNA à prédire la viscosité est l'une des meilleures méthodes d'estimation à haute performance.

Abdulrahman et al. 2011, ont formé et testé deux réseaux neuronaux séparément pour prédire la viscosité du gaz et la densité du gaz. Les deux réseaux neuronaux ont été formés et validés à l'aide d'un ensemble de 800 points de données choisies au hasard dans l'ensemble de données recueillies. Les réseaux développés ont été testés à l'aveugle en utilisant un total de 3645 points de données. La prédiction des réseaux a été validée et leur efficacité a été testée par rapport à d'autres corrélations. La comparaison indique une meilleure performance pour les réseaux neuronaux développés par rapport aux corrélations conventionnelles testées avec une erreur absolue moyenne de 3.65% et 4.93% pour les filets de viscosité gazeuse et de densité gazeuse, respectivement.

Mostafa Lashkar blooki et al. 2012, ont utilisé le réseau neuronal artificiel pour prédire la viscosité ternaire des mélanges contenant des IL. Une collection de 729 points de données expérimentales a été recueillie à partir des littératures de hangar précédemment publiques. Différentes topologies d'un réseau neuronal artificiel multicouche à action directe (MFFRNA) ont été examinées et l'architecture optimale a été déterminée. Les données de viscosité ternaire de la littérature pour 5 IL avec 547 points de données ont été utilisées pour former le réseau. De plus, pour différencier les substances dissemblables, la masse moléculaire et la température du point d'ébullition des trois composants et de deux compositions des composants non-ILs ont été considérées comme des variables d'entrée. Il faut mentionner qu'en raison de la température d'ébullition élevée des ILs, la plupart d'entre eux se décomposent avant d'atteindre leur point d'ébullition. Par conséquent, la méthode de contribution du groupe Valderrama a été utilisée pour obtenir les points d'ébullition des liquides ioniques utilisés pour cette étude. Enfin, la capacité du réseau conçu a été testée en prédisant la viscosité ternaire des mélanges non pris en compte lors du processus d'apprentissage du réseau (182 points de données de viscosité ternaire pour 5 IL). Les

résultats ont démontré que le réseau proposé était capable de bien prédire les points de données de viscosité ternaire, même en utilisant les valeurs prédites des températures d'ébullition des liquides ioniques.

Ebrahim Nematilay et al. 2012, ont modélisé en utilisant un réseau neuronal artificiel (RNA) basé sur la méthode de back-propagation. Une base de données fiable comprenant plus de 3841 données expérimentales de viscosité pour les essais et la formation de RNA a été utilisée. Le réseau neuronal conçu peut prédire la viscosité du gaz naturel en utilisant une pression pseudo-réduite et une température pseudo-réduite avec un pourcentage AARD de 0. 221. La précision de la conception de RNA a été comparée à d'autres modèles empiriques publiés. La comparaison indique que la méthode proposée peut fournir des résultats précis.

Al-Marhoun et al. 2012, ont présenté la prédiction de la courbe de viscosité complète en fonction de la pression à l'aide de techniques d'intelligence artificielle (IA). La courbe de viscosité prévue à l'aide de techniques d'intelligence artificielle dérivées des compositions de gaz des champs pétrolifères canadiens reproduisait étroitement la courbe de viscosité expérimentale au-dessus et en dessous de la pression du point de bulle par rapport aux corrélations de sa classe. Les réseaux fonctionnels avec sélection vers l'avant (FNFS) ont surpassé toutes les techniques d'IA suivies par la machine à vecteur de support (SVM).

Mohammad-Reza Fateh et al. 2013, ont construit un réseau neuronal à action directe pour estimer les viscosités de mélanges binaires de cinq types différents de liquides ioniques avec divers solvants polaires et non polaires dans une plage de températures. Les liquides ioniques étudiés avaient divers anions et consistaient soit en cations imidazolium, ammonium, pyridinium, pyrrolidinium ou isoquinolinium, avec diverses chaînes latérales alkyles cationiques. Un total de 1996 données expérimentales a été collecté à partir de la littérature publiée précédemment et divisées au hasard en trois ensembles de données différentes: 1775 points de données constituant les ensembles de données de formation et de validation, et 221 points de données sélectionnés comme ensemble de données de test. Le poids moléculaire et la structure des groupes du liquide ionique, le poids moléculaire et la température d'ébullition réduite du solvant, ainsi que la composition molaire, la température et la pression du système ont été sélectionnés comme variables d'entrée indépendantes. Les résultats ont indiqué que la structure du réseau présentée dans cette étude est capable d'estimer la viscosité de ces mélanges binaires non idéaux, consistant en une gamme de liquides ioniques et de solvants, avec une erreur relative moyenne de 0,6%.

José et al. 2013, ont créé un modèle de réseau neuronal perceptron multicouche (RN) pour estimer la teneur en eau présente dans les liquides ioniques (IL) suivants: tétrafluoroborate de 1-butyl-3-méthylimidazolium, méthylsulfate de 1-butyl-3-méthylimidazolium, 1,3 -méthylsulfate de diméthylimidazolium et éthylsulfate de 1-éthyl-3-méthylimidazolium. Pour atteindre cet objectif, leurs valeurs de densité et de viscosité ont été utilisées. Les valeurs expérimentales de ces propriétés physico-chimiques, utilisées pour concevoir le modèle RN, ont été mesurées et enregistrées à 298,15 K. Elles ont été déterminées à différentes valeurs d'humidité relative allant de 11,1 à 84,3%. Les résultats estimés ont ensuite été comparés aux mesures expérimentales de la teneur en eau, qui ont été effectuées par la technique de Karl Fischer, et la différence entre les valeurs réelles et estimées était inférieure à 0,05 et 3,1% dans les processus de vérification et de validation, respectivement. De plus, un processus de validation externe a été développé en utilisant quatre références bibliographiques. Dans ce cas, l'erreur de prédiction moyenne était inférieure à 6,3%. À la lumière de ces résultats, le modèle RN montre une qualité d'ajustement acceptable, une robustesse suffisante et une capacité d'estimation adéquate pour déterminer la teneur en eau à l'intérieur de la plage étudiée des liquides ioniques analysés.

Forouzan Ghaderi et al. 2013, ont comparé, deux méthodes sont évaluées pour la prédiction de la viscosité dans toutes les gammes de densité. Ils ont déterminé l'efficacité de chacun des modèles et ils ont démontré leurs forces et leurs faiblesses. La viscosité des six réfrigérants est calculée par certains modèles basés sur les théories de Chapman Enskog et Rainwater Friend. Ensuite, un réseau de neurones artificiels (RNA) du type perceptrons multicouches est utilisé pour prédire la viscosité et enfin deux méthodes (modèles de calcul et réseau de neurones artificiels) se comparent. Il est conclu que les méthodes de calcul ne permettent pas de calculer la viscosité de faible densité. Les résultats montrent que la précision des prédictions des modèles de calcul dans les densités faibles et modérées est bonne comme méthode RNA. Cependant, le réseau neuronal artificiel a une très bonne précision dans les hautes densités tandis que la méthode de calcul est vaincue lorsque la densité est supérieure à 8.

Saeid Atashrous et al. 2014, ont développé un réseau neuronal polynomial auto-organisé hybride sur la base de la méthode du groupe de traitement des données (GMDH) pour étudier la viscosité de neuf nanofluides à base d'eau, d'éthylène glycol et de propylène glycol. Les résultats montrent que le modèle hybride GMDH peut prédire avec précision la viscosité des nanofluides. Le pourcentage de l'écart relatif absolu moyen (AARD%) pour tous

les systèmes était de 2,14% avec un coefficient de régression élevé de R = 0,9978. Les résultats estimés par le modèle hybride GMDH, comparés à ceux de divers modèles théoriques et d'une équation empirique, présentent une précision plus élevée.

Kamil Paduszyński et Urszula Domańska. 2014, ont collecté plus de 13000 points de données de viscosité dépendant de la température et de la pression de 1484 liquides ioniques ont été extraits de plus de 450 articles de recherche publiés dans la littérature ouverte au cours des trois dernières décennies. Les données ont été revues de manière critique puis utilisées pour développer et tester un nouveau modèle permettant des prédictions in silico des viscosités des liquides ioniques sur la base des structures chimiques de leurs cations et anions. Le modèle utilise une stratégie de réseau de neurones artificiels à action directe à deux couches (RNAFF) pour représenter la relation entre la viscosité et les variables d'entrée: température, pression et contributions du groupe (CG). Au total, le modèle CG- RNAFF résultant utilise 242 descripteurs moléculaires du type CG qui sont capables de représenter avec précision le comportement de viscosité des liquides ioniques. Les processus de formation, de validation et de test du réseau neuronal, impliquant respectivement 90,5 et 5% de l'ensemble du pool de données, ont donné des erreurs quadratiques moyennes de 0,0334, 0,0595 et 0,0603 unités logarithmiques, correspondant à des coefficients de corrélation au carré de 0,986, 0,973 et 0,972 et des écarts relatifs globaux au niveau de 11,1, 13,8 et 14,7%, respectivement. Les résultats calculés dans leur travail se sont révélés plus précis que ceux obtenus avec le meilleur modèle CG actuel pour la viscosité des liquides ioniques décrivent dans la littérature.

Mehdi Bahiraei et al. 2015, ont étudié un modèle des changements de viscosité dans le nanofluide eau-TiO_2 en examinant l'effet de la température et de la fraction volumique sur la viscosité. Les résultats ont été enregistrés et analysés dans une plage de températures de 25 à 70 ° C avec des incréments de cinq pour des fractions de volume de 0,1, 0,4, 0,7 et 1%. Les résultats obtenus ont démontré que la viscosité de ce nanofluide diminue en augmentant la température et augmente avec l'augmentation de la fraction volumique. Les résultats montrent que les corrélations conventionnelles sont incapables de prédire correctement la viscosité des nanofluides, en particulier à des fractions de volume élevé. Un modèle a été développé par les données obtenues à partir d'expériences pour estimer la viscosité du nanofluide eau-TiO_2 sur la base de deux variables de température et de fraction volumique à l'aide d'un réseau neuronal. Le modèle proposé a été qualifié de très compétent pour la détermination de la viscosité des nanofluides.

Atefeh Dargahi et al. 2016, ont utilisé une méthode du groupe de réseau de neurones de type traitement des données (GMDH) pour prédire la viscosité des mélanges d'hydrocarbures et de gaz purs contenant des composants lourds et des impuretés telles que le dioxyde de carbone, l'hélium et l'azote en utilisant plus de 3800 points de données. Premièrement, les ensembles de données ont été divisés en trois parties en fonction de leur densité. Ensuite, un modèle a été développé pour chaque pièce en fonction du poids moléculaire, de la température pseudo réduite, de la pression pseudo réduite et de la densité. Les modèles proposés ont été comparés à 13 modèles bien connus en effectuant des analyses graphiques et statistiques des erreurs. Les résultats indiquent que l'erreur relative moyenne absolue en pourcentage des modèles GMDH proposés est de 3,45% et l'écart-type des données expérimentales est de 0,0566. Les courbes de distribution des erreurs indiquent que les modèles proposés sont capables d'estimer avec précision la viscosité du gaz naturel sur une large gamme de conditions de pression et de température, car aucune tendance d'erreur significative n'est observée dans les prévisions. Enfin, les résultats de l'analyse du facteur de pertinence ont montré que la densité du mélange a le plus grand impact sur la viscosité par rapport aux autres paramètres d'entrée.

Mohammad Hemmat Esfe et al. 2016, ont modélisé la viscosité du nanofluide aqueux de TiO_2 par des réseaux de neurones artificiels à l'aide de données expérimentales. Les réseaux de neurones artificiels sont capables d'estimer le modèle de variation dynamique de la viscosité avec la température et la fraction de masse des nanoparticules avec une grande précision. Un réseau avec une couche cachée et 4 neurones a été utilisé. Le coefficient de régression a été obtenu à 0,9998 dans ce modèle, qui montre une très grande précision du réseau neuronal avec une structure très simple. De plus, une relation en termes de fraction massique et de température a été présentée afin de prédire la viscosité de ce nanofluide. Cette corrélation peut estimer la viscosité de TiO_2 - nanofluide d'eau dans une large gamme de fraction de masse de nanoparticules avec une erreur maximale de 0,5%.

Ali Barati-Harooni et al. 2016, ont utilisé un réseau neuronal artificiel (RNA) pour corriger l'inexactitude des données empiriques utilisées pour prédire la viscosité du pétrole brut. Le nouveau modèle de réseau de neurones artificiels a été développé pour prédire la viscosité du pétrole brut en utilisant 32 ensembles de données collectés dans la région du delta du Niger de Nigeria. Environ 17 ensembles de données ont été utilisés pour former le modèle, 10 ensembles ont été utilisés pour tester l'exactitude de la modèle et les 5 ensembles restants pour valider les relations établies au cours du processus de formation. Les résultats des tests

ont révélé que le modèle de réseau neuronal à propagation arrière (BPNN) était meilleur corrélations empiriques en termes d'erreur relative absolue moyenne et de coefficient de corrélation.

Dalkilic et al .2016, ont sélectionné les particules de graphite pour avoir un mélange de nanofluides avec son fluide de base d'eau pure. Leurs concentrations volumétriques varient de 0 à 2% dans l'eau pure. Une fois le nanofluide stabilisé préparé par un sonicateur et un bain à ultrasons, la viscosité est mesurée par un viscosimètre pour des températures allant de 20 °C à 60 °C. La validation des expériences a été réalisée au moyen de leur comparaison avec les 32 corrélations empiriques de la littérature. Ensuite, des analyses de réseau de neurones artificiels (RNA) ont été effectuées afin d'avoir une meilleure corrélation empirique que celles de la littérature. En outre, des informations détaillées sur la préparation des nanofluides, la mesure de la viscosité, une liste de données mesurées, un modèle numérique par le logiciel Matlab et l'altération de la viscosité en fonction de la température et de la concentration ont été fournies dans l'article. Il a été conclu que les corrélations de viscosité dans la littérature peuvent prédire différents types de viscosité des nanofluides bien qu'elles aient été dérivées en utilisant le type et le diamètre spécifiques des nanoparticules et de leurs fluides de base.

Karim Golzar et al. 2016, ont prédit, la densité, la viscosité, la tension superficielle et la solubilité dans le CO_2 des solutions aqueuses simples, binaires et ternaires de N-méthyldiéthanolamine (MDEA), de pipérazine (PZ) et de 12 liquides ioniques communs (IL) en appliquant un réseau de neurones artificiels (RNA) technique. Les données d'entrée comprenaient la température de fonctionnement (293,15–373,15 K) et la pression (0,177–3938,400 kPa) en plus des fractions pondérales des solutions aqueuses de MDEA, PZ et ILs qui étaient respectivement dans la plage de (0,0–1,0), (0,0 –0,09) et (0,0–1,0) ainsi que le poids moléculaire des IL (148,18–505,00 g / mol) et leurs facteurs acentriques (0,325–1,261). Plus de 2600 points de données expérimentales pour la densité, la viscosité, la tension superficielle et la solubilité du CO_2 ont été collectés dans la littérature. En utilisant respectivement la rétro-propagation de Levenberg-Marquardt et le tan-sigmoïde comme algorithme d'apprentissage et fonction de transfert, quatre modèles RNA ont été examinés pour traiter ces données. Il a été constaté que les meilleures architectures RNA pour prédire ces propriétés étaient respectivement (7: 3: 0: 1), (7: 6: 0: 1), (7: 4: 0: 1) et (7: 10: 0 :1). Les propriétés calculées ont été comparées aux données expérimentales correspondantes qui indiquaient une erreur négligeable.

Yongsheng Zhao et al. 2016, ont proposé, deux modèles, l'un intégrant la méthode des états de contribution-contribution des fragments (FC-CS) avec l'algorithme de régression

linéaire multiple (MLR) et l'autre avec l'algorithme de la machine à vecteurs de support (SVM), pour prédire la viscosité des liquides ioniques (IL) à base d'imidazolium. La méthode FC-CS est appliquée pour calculer le volume pseudo-critique et le facteur de compressibilité (Vc et Zc) ainsi que la température de point d'ébullition (T_b) qui sont utilisés pour prédire la viscosité avec les algorithmes MLR et SVM. Un grand ensemble de données de 1079 points de données expérimentales de 45 liquides ioniques à base d'imidazolium couvrant une large gamme de pression et de température est appliqué pour valider les deux modèles. L'écart relatif absolu moyen (AARD) de l'ensemble des données du MLR et du SVM est respectivement de 24,2% et 3,95%. Le modèle non linéaire développé par l'algorithme SVM est bien meilleur que le modèle linéaire construit par le MLR, ce qui indique que l'algorithme SVM est plus fiable dans la prédiction de la viscosité des liquides ioniques à base d'imidazolium.

Atefeh Dargahi-Zarandi et al. 2017, ont utilisé une méthode du groupe de réseau de neurones de type traitement des données (GMDH) pour prédire la viscosité des mélanges d'hydrocarbures et de gaz purs contenant des composants lourds et des impuretés telles que le dioxyde de carbone, l'hélium et l'azote en utilisant plus de 3800 points de données. Premièrement, les ensembles de données ont été divisés en trois parties en fonction de leur densité. Ensuite, un modèle a été développé pour chaque pièce en fonction du poids moléculaire, de la température pseudo réduite, de la pression pseudo réduite et de la densité. Les modèles proposés ont été comparés à 13 modèles bien connus en effectuant des analyses graphiques et statistiques des erreurs. Les résultats indiquent que l'erreur relative moyenne absolue en pourcentage des modèles GMDH proposés est de 3,45% et l'écart-type des données expérimentales est de 0,0566. Les courbes de distribution des erreurs indiquent que les modèles proposés sont capables d'estimer avec précision la viscosité du gaz naturel sur une large gamme de conditions de pression et de température car aucune tendance d'erreur significative n'est observée dans les prévisions. Enfin, les résultats de l'analyse du facteur de pertinence ont montré que la densité du mélange a le plus grand impact sur la viscosité par rapport aux autres paramètres d'entrée.

Vakili et al. 2017, ont étudié le comportement d'écoulement de transition de l'écoulement de nanofluides dans un tuyau incliné à l'aide de modèles monophasés et multiphasiques. Deux nanofluides différents sont pris en compte, à savoir les nanofluides Al_2O_3 – eau et TiO_2 – eau. De plus, un modèle de transition est mis en œuvre pour étudier l'écoulement des nanofluides dans les tuyaux inclinés. La force gravitationnelle est également

adoptée en considérant l'approximation de Boussinesq dans l'équation du momentum. Les résultats révèlent que la force de flottabilité joue un rôle important sur la dégénérescence du taux de transfert de chaleur avec l'augmentation du nombre de Reynolds pour différents angles d'inclinaison. Elle indique que la convection mixte a un effet opposé sur le tuyau incliné que la convection forcée sur le tuyau horizontal. De plus, une certaine déformation des champs d'écoulement et de température près de la région amont est observée avec l'augmentation de l'angle d'inclinaison due à la force de flottabilité.

Ansari et al. 2018, ont proposé un modèle complet pour prédire la viscosité relative des nano fluides sur la base d'un réseau de rétro-propagation à action directe en utilisant divers algorithmes de formation, notamment Scaled Conjugate Gradient (SCG), Levenberg-Marquardt (LM), Bayesian Regulation back propagation (BR) et la propagation arrière élastique (RP). De plus, différentes fonctions de transfert telles que la base radiale (radbas), le Tan-sigmoïde (tansig), le Log-sigmoïde (logsig), la limite dure (hardlim), la base triangulaire (tribas) et la fonction de transfert Soft max (softmax) ont été étudiées dans la couche cachée et leurs effets sur la précision du réseau ont été estimés. Un total de 1620 points de données expérimentales qui a été choisi parmi une large gamme de suspension de nanoparticules avec divers fluides de base a été recueilli à partir de la littérature fiable pour former, tester et valider le réseau proposé. La température, les valeurs de vitesse de cisaillement, la taille des nanoparticules, la nature des particules (densité des nanoparticules) et la concentration des particules ont été choisies comme variables d'entrée du réseau développé. Le réseau avec 1 couche cachée et 23 neurones avec des fonctions de transfert tan-sigmoïde et purelin dans les couches cachées et de sortie a été déterminé pour avoir les performances optimales. De plus, Levenberg-Marquardt (LM) était le meilleur algorithme de train alors que dans ce cas le modèle était plus précis que les autres. Les résultats ont révélé que le réseau proposé a la capacité de corréler et de prédire la viscosité relative avec précision avec une valeur d'erreur quadratique moyenne (MSE) globale de 0,00901 et un coefficient de corrélation (R^2) de 0,9954.

Arash Karimipour et al. 2018, ont modélisé la viscosité du nanofluide aqueux de TiO_2 par des réseaux de neurones artificiels à l'aide de données expérimentales. Les réseaux de neurones artificiels sont capables d'estimer le modèle de variation dynamique de la viscosité avec la température et la fraction de masse des nanoparticules avec une grande précision. Un réseau avec une couche cachée et 4 neurones a été utilisé. Le coefficient de régression a été obtenu à 0,9998 dans ce modèle, qui montre une très grande précision du

réseau neuronal avec une structure très simple. De plus, une relation en termes de fraction massique et de température a été présentée afin de prédire la viscosité de ce nanofluide. Cette corrélation peut estimer la viscosité de TiO_2 - nanofluide d'eau dans une large gamme de fraction de masse de nanoparticules avec une erreur maximale de 0,5%.

Mert Gülüm et al. 2018, ont comparé des modèles de régression et des réseaux de neurones artificiels (RNA) pour prédire les viscosités des mélanges. les paramètres de réaction optimaux fournissant la viscosité la plus faible ont été déterminés pour la méthanolyse des huiles de cuisson usagées, (2) l'ester méthylique d'huile de cuisson usée a été synthétisé sur la base des paramètres optimaux déterminés, et il a été mélangé avec du carburant diesel sur différents rapports de volume (3) des mesures de viscosité des mélanges préparés ont été effectuées dans les plages de températures comprises entre 273,15 K et 373,15 K, (4) des changements de viscosité en fonction de la température et de la fraction de biodiesel dans le mélange ont été étudiés et le modèle rationnel a finalement été proposé (5), la capacité prédictive du modèle rationnel a été comparée au modèle à trois termes de Vogel, au modèle de Bingham et à RNA en s'ajustant aux données de viscosité mesurées par les auteurs et par Geacai et al. Selon les résultats, les valeurs mesurées par les auteurs et Geacai et al. Sont les plus précisément prédits par le modèle rationnel.

Min Wu, Bailin Lv et al. 2020, ont étudié un nouveau facteur qui affecte la viscosité à l'état fondu des soudures ternaires sans plomb et ils ont utilisé ces facteurs comme paramètres d'entrée pour les modèles de réseau neuronal BP. Le modèle de réseau neuronal BP est plus pratique car il ne nécessite pas le calcul des paramètres thermodynamiques pertinents. De plus, un modèle mathématique pour estimer la viscosité d'un alliage de soudure sans plomb à base de Sn ternaire a été proposé. La recherche globale montre que le modèle de réseau neuronal BP peut être bien appliqué à l'étude théorique de la viscosité des alliages de soudure liquides. L'utilisation d'un réseau de neurones BP construit pour prédire la viscosité d'un bain de fusion sans plomb permet d'étudier les propriétés physiques liquides des soudures sans plomb qui sont largement utilisés dans les informations électroniques.

Sur la base de la recherche effectuée sur les travaux dans le domaine de la prédiction des coefficients de transport, il existe plusieurs publications dont le nombre varie par année, la figure II-1 présente le nombre de publication consacré à la modélisation de la viscosité.

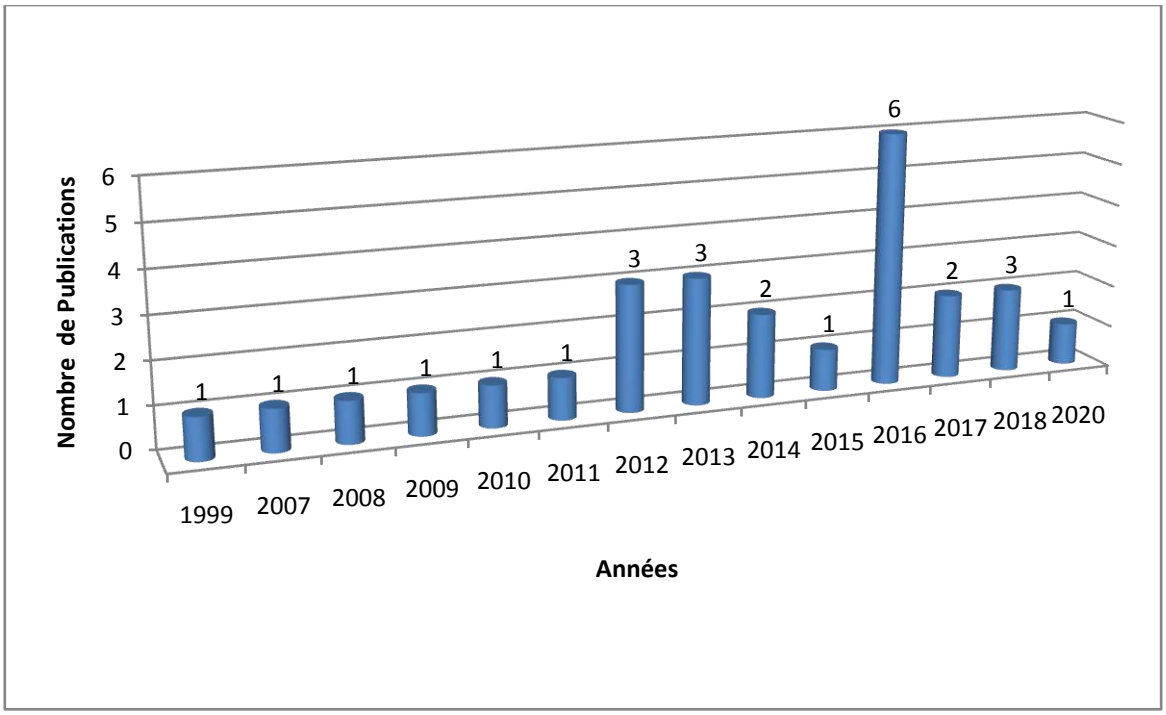


Figure II.1 : Nombre de publications traitant la modélisation de la viscosité.

II.2.2. Conductivité thermique

Pachepsky, Yakov A et al. 1999, ont étudié l'équation de Kozeny-Carman modifiée $K_{sat} = B_{\varphi e}$ n pour relier la conductivité hydraulique saturée du sol K_{sat} à la porosité effective φ_e. Cependant, différentes valeurs du coefficient B et de l'exposant n se trouvent dans différents ensembles de données. Notre objectif était de savoir si et comment B et n sont liés à la pression d'entrée d'air de Brooks-Corey h_b et à l'indice de distribution des pores λ. La base de données hydrologique des sols de la région du Sud d'environ 500 échantillons a été explorée. Tous les sols avaient une teneur B et n à h_b et λ en limon et en argile <70%. Les réseaux de neurones ont été utilisés pour relier B et n à h_b et λ, et un algorithme génétique a été appliqué pour trouver des poids dans les réseaux de neurones. Les dépendances de B et n sur h_b et λ avaient des formes similaires. Les valeurs de B et n étaient presque constantes pour des valeurs de λ supérieures à 1 et étaient proches de $2{,}6 \times 10^{-3}$ m s^{-1} et 2,5, respectivement. À mesure que les valeurs de λ passaient de 1 à 0, les valeurs de B et n diminuaient. Plus la pression d'entrée d'air est élevée, plus la diminution de B et n est forte.

Elife Öznur Karabulut et al. 2007, ont développé pour la première fois une corrélation de conductivité thermique du propane. Afin de tester la précision de la technique proposée et de démontrer son utilité dans l'ajustement de la surface de conductivité thermique du propane, Ils ont établi une corrélation de conductivité thermique en termes de température et de densité, puis comparé ses prédictions avec celles obtenues par la méthode

conventionnelle. Les résultats obtenus sont si impressionnants que la corrélation du réseau de neurones présente des écarts absolus moyens (AAD) dans chaque ensemble de données.

L'exigence d'utiliser une équation d'état de haute précision (EoS) pour les corrélations qui incluent la densité comme variable a été évitée en développant des équations de conductivité thermique en fonction de la température et de la pression. À cet effet, trois modèles de réseaux neuronaux ont été construits pour les phases liquides, vapeur et supercritique. On constate que l'approche du réseau neuronal produit une meilleure corrélation pour la région liquide tandis que les prédictions des deux autres modèles sont en accord substantiel avec les résultats traditionnels. Par conséquent, les réseaux de neurones offrent un outil puissant pour le développement de corrélations de conductivité thermique des fluides, peu importe si un EoS est utilisé ou non.

Eslamloueyan et Khademi 2009, ont proposé un réseau neuronal à trois couches d'alimentation pour prédire la conductivité (λ) des gaz purs à la pression atmosphérique et un large éventail de températures en fonction de leur température critique (T_c), pression critique (P_C) et poids moléculaire (MW). La précision de la méthode est évaluée et testée par son application aux conductivités expérimentales de divers gaz dont certains ne sont pas utilisés dans la formation en réseau. De plus, la performance de la technique proposée est comparée à celle des modèles classiques recommandés dans la littérature. Les résultats de cette comparaison montrent que le réseau neuronal proposé surpasse d'autres méthodes, en ce qui concerne la précision et les capacités d'extrapolation. En outre, les corrélations de conductivité conventionnelles sont généralement utilisées pour une plage limitée de température et de composants tandis que la méthode de réseau est capable de couvrir une large gamme de températures et de substances.

Aussi en 2009 Ils ont mis au point une nouvelle méthode pour estimer la conductivité des mélanges gazeux binaires à la pression atmosphérique. La méthode est un schéma de réseau neuronal composé de deux capteurs multicouches consécutifs (MLP). La première MLP estime la conductivité des composants purs en fonction de la température critique, de la pression critique, du poids moléculaire et de la température.

Les conductivités calculées dans la première MLP ainsi que les poids moléculaires des deux composés et la fraction mole des composants de la lumière sont alimentés à la deuxième MLP pour prédire la conductivité thermique du mélange. Le modèle proposé a été formé et mis à l'essai au moyen d'un vaste ensemble de données expérimentales portant sur de vastes gammes de températures, de compositions et de substances. La comparaison des résultats du

test et de la formation indique que la précision du modèle neuronal est remarquablement meilleure que d'autres méthodes proposées dans la littérature. Les corrélations de conductivité conventionnelles nécessitent plus de paramètres d'entrée qui ne sont pas disponibles pour de nombreux gaz. En outre, les corrélations recommandées pour la conductivité des gaz purs sont généralement valables pour une plage particulière de température et de substances. Cependant, le schéma MLP est capable de couvrir un large éventail de températures et de substances avec quelques nombres de paramètres qui sont abondants pour la plupart des gaz.

Hojjat .M et al. 2011, ont préparé trois types différents de nanofluides en dispersant des nanoparticules de γ-Al_2O_3, TiO_2 et CuO dans une solution aqueuse à 0,5% en poids de carboxyméthylcellulose (CMC). La conductivité thermique du fluide de base et des nanofluides avec diverses charges de nanoparticules à différentes températures a été mesurée expérimentalement. Les résultats montrent que la conductivité thermique des nanofluides est supérieure à celle du fluide de base et l'augmentation de la conductivité thermique varie exponentiellement avec la concentration en nanoparticules. En plus d'augmenter avec la concentration en nanoparticules, la conductivité thermique des nanofluides augmente avec la température. Des modèles de réseaux de neurones ont été proposés pour représenter la conductivité thermique en fonction de la température, de la concentration en nanoparticules et de la conductivité thermique des nanoparticules. Ces modèles étaient en bon accord avec les données expérimentales. En revanche, le modèle Hamilton Crosser n'était satisfaisant que pour de faibles concentrations de nanoparticules.

Bart Rogiers et al. 2012, ont combiné les réseaux de neurones artificiels (RNA) avec une approche d'estimation d'incertitude de vraisemblance généralisée (GLUE) pour prédire K_s à partir de données sur la taille des grains. Les prédictions de conductivité hydraulique GLUE-RNA résultantes et les estimations d'incertitude associées sont comparées à celles obtenues à partir des modèles de régression linéaire multiples par une validation croisée avec omission. La prédiction d'ensemble GLUE-RNA s'est avérée légèrement meilleure que la régression linéaire multiple. L'incertitude de prévision, cependant, a été réduite d'un demi-ordre de grandeur en moyenne, et a diminué au maximum d'un ordre de grandeur. Cela démontre que la méthode proposée surpasse les techniques classiques de modélisation pilotée par les données. De plus, une comparaison avec les méthodes de la littérature démontre l'importance de l'étalonnage spécifique au site. L'ensemble de données utilisé à cet effet provient principalement des sédiments sableux non consolidés de l'aquifère du Néogène, dans le nord de la Belgique. Les modèles prédictifs proposés sont développés pour 173 paires- K_s

de granulométrie. Enfin, une application avec les modèles optimisés est présentée pour un forage sans données K_s.

Ali Zeinolabedini Hezave et al. 2012, ont proposé un réseau de neurones artificiels (RNA), pour prédire la conductivité thermique des liquides ioniques purs. Au total, 209 points de données provenant de 21 liquides ioniques différents ont été utilisés pour former et tester le réseau proposé. Le nombre optimal de couches cachées a été déterminé à 1, avec 13 neurones dans la couche cachée et les fonctions logarithmiques – sigmoïdes et purelin comme fonctions de transfert dans les couches cachées et de sortie, respectivement. Les résultats obtenus révèlent que le réseau proposé est capable de corréler et de prédire la conductivité thermique de tous les liquides ioniques purs avec un pourcentage d'écart relatif moyen absolu (MARD%) de 0,5% et une erreur quadratique moyenne (MSE) de $1,2 \times 10^{-6}$. Le réseau optimisé a également été comparé aux corrélations de la littérature et à une méthode de contribution prédictive du groupe. Les résultats indiquent la précision assez bonne du réseau neuronal proposé par rapport aux méthodes de littérature précédemment proposées.

Giovanni A. Longo et al. 2012, ont présenté un modèle de réseau neuronal artificiel (RNA) à 3 entrées et à 4 entrées pour la prédiction de la conductivité thermique des nanofluides oxyde-eau. Les deux modèles tiennent compte de l'effet de la température, de la fraction volumique des nanoparticules et de la conductivité thermique des nanoparticules, tandis que le modèle à 4 entrées considère également l'effet de la taille moyenne des grappes de nanoparticules. Les modèles ont été formés sur un ensemble de données obtenues par les auteurs actuels et testés à la fois par validation croisée et sur des données provenant d'autres auteurs. Les deux modèles montrent un accord raisonnable dans la prévision des données expérimentales, même si le modèle à 4 entrées présente de meilleures performances. L'inclusion de la taille moyenne du cluster dans les variables d'entrée améliore les performances de prédiction du modèle de conductivité thermique des nanofluides RNA, cependant, ce paramètre est généralement absent des données présentées dans la littérature. Les paramètres caractéristiques des modèles RNA présentés sont entièrement rapportés dans l'article.

Bouzidi et al. 2013, ont mis au point une nouvelle méthode basée sur le réseau neuronal pour évaluer avec précision la conductivité thermique des gaz polyatomiques purs comprenant à la fois des gaz polaires et non polaires à la pression atmosphérique et sur une large gamme de températures. Deux réseaux neuronaux d'alimentation à couches

multiples ont été formés en utilisant respectivement cinq et quatre propriétés physicochimiques des gaz polaires, poids moléculaire (M), point d'ébullition (T_b), température critique (T_c), pression critique (P_C) et le moment dipôle (μ), pour les gaz polaires, combinés avec la température absolue (T) comme intrants. La conductivité thermique et les propriétés de chaque gaz individuel ont été compilées sur différentes températures allant de leurs points d'ébullition à 1100 K. L'erreur absolue maximale dans la conductivité thermique prédit par les réseaux neuronaux artificiels (RNA) était inférieure à 4%.

Ariana et al. 2015, ont développé une approche de réseau de neurones artificiels (RNA) pour estimer le rapport de conductivité thermique (TCR) des nanofluides à base d'eau d'alumine en fonction de la température, de la fraction volumique et du diamètre de la nanoparticule. Les paramètres RNA sont ajustés par l'algorithme d'apprentissage de la propagation arrière en utilisant 285 ensembles de données expérimentales collectées à partir de diverses littératures. L'analyse de la précision statistique confirme qu'un modèle RNA à deux couches à action directe avec quatorze neurones cachés est la meilleure architecture pour modéliser la tâche considérée. L'approche RNA développée a prédit les données expérimentales avec l'écart relatif absolu moyen (AARD%) de 1,27%, l'erreur quadratique moyenne (MSE) de $4{,}73\times10^{-4}$ et le coefficient de régression (R^2) de 0,971875. La comparaison de la capacité prédictive de la technique proposée avec certaines corrélations recommandées dans les littératures a confirmé que le modèle RNA est plus supérieur aux autres travaux publiés et peut donc être considéré comme un outil pratique pour estimer le rapport de conductivité thermique des nanofluides à base d'eau d'alumine.

Mohammadi Hemmat Esfe et al. 2015, ont concentré sur la conception d'un réseau neuronal artificiel qui peut prédire la conductivité thermique et la viscosité dynamique des nanofluides ferromagnétiques à partir de données expérimentales d'entrée, notamment la température, le diamètre des particules et la fraction volumique solide. Les données expérimentales ont été extraites et utilisées comme ensemble de données d'apprentissage pour former le réseau neuronal. Pour trouver une architecture appropriée pour le réseau, une méthode d'itération a été utilisée. Sur la base des résultats, il n'y a pas eu de sur-ajustement dans le réseau neuronal conçu et le réseau neuronal a pu suivre les données. Les résultats RNA ont montré que les erreurs maximales dans la prévision de la conductivité thermique et de la viscosité dynamique sont respectivement de 2% et 2,5%. Sur la base des résultats RNA, deux ensembles de corrélations pour estimer la conductivité thermique et la viscosité dynamique ont été présentés. Les comparaisons entre les données expérimentales et les

corrélations proposées ont montré que les corrélations présentées étaient en excellent accord avec les données expérimentales.

Mohammad Hemmat Esfe et al. 2015, ont modélisé la conductivité thermique du nanofluide Al_2O_3-eau à différentes températures et fractions de volume solide par un réseau de neurones artificiels (RNA) et une corrélation à l'aide de données expérimentales. La conductivité thermique des nanofluides à différentes températures de fluide, allant de 26 à 55 °C, est utilisée comme données d'apprentissage pour RNA. En outre, sur la base des données expérimentales et en utilisant un réseau neuronal artificiel, une corrélation pour modéliser la conductivité thermique du nanofluide en termes de température et de fraction volumique solide est proposée. Les résultats montrent que la corrélation proposée a une bonne capacité à prédire la conductivité thermique des nanofluides. En revanche, le modèle RNA montre un excellent accord avec les résultats des données expérimentales.

Mohammad Hemmat Esfe et al. 2015, ont utilisé le modèle de réseau neuronal artificiel (RNA) pour étudier la conductivité thermique des nanofluides MgO – eau / EG (60:40) sur la base de données expérimentales. Des nanoparticules de MgO dans un mélange binaire eau / EG (60:40) ont été dispersées pour fabriquer le nanofluide susmentionné en deux étapes. Les propriétés du nanofluide ont été mesurées à différentes concentrations (0,1, 0,2, 0,5, 0,75, 1, 2 et 3%) et à des températures de 20 à 50 ° C. Par la suite, deux corrélations ont été suggérées pour prédire la conductivité thermique des nanofluides. Les résultats de cette étude montrent que le modèle RNA peut prédire dans une large mesure la conductivité thermique et est en accord avec les résultats expérimentaux.

Mohammad Hemmat Esfe et al. 2015, ont présenté une étude sur la conductivité thermique des nanofluides à l'aide de données expérimentales, de réseaux de neurones et de corrélation pour modéliser la conductivité thermique. La conductivité thermique des nanoparticules de Mg $(OH)_2$ avec un diamètre moyen de 10 nm dispersées dans l'éthylène glycol a été déterminée en utilisant un analyseur thermique KD2-pro. Sur la base des données expérimentales à différentes fractions volumiques solides et températures, une corrélation expérimentale est proposée en termes de fractions volumiques et de température. Ensuite, le modèle de conductivité thermique relative en fonction de la fraction volumique et de la température a été développé via un réseau neuronal basé sur les données mesurées. Un réseau avec deux couches cachées et 5 neurones dans chaque couche a l'erreur la plus faible et le coefficient d'ajustement le plus élevé. En comparant les performances du modèle de réseau

neuronal et la corrélation dérivée de données empiriques, il a été révélé que le réseau neuronal peut prédire avec plus de précision la conductivité thermique des nanofluides Mg $(OH)_2$ – EG.

Ali Aminian et al. 2016, ont présenté un modèle neuromorphique pour prédire la conductivité thermique des nanofluides, qui prend en considération les effets de la taille, la fraction volumique, la température et la conductivité thermique des nanoparticules ainsi que les propriétés des fluides de base. Le modèle présenté s'avère prédire correctement les tendances observées dans les données expérimentales pour différentes combinaisons de fluides à base de nanoparticules avec des concentrations variables. Vingt-six types différents de nanofluides, à savoir, Al_2O_3-eau / EG, CuO-eau / TO / EG / MEG / paraffine, Cu-eau / EG / huile, Al-eau / EG / EO / TO, TiO_2-eau / EG , ZnO-eau / EG, SiO_2-eau / EG / huile, MWCNT-eau / EG / huile / R113 et Ag-eau sont utilisés pour évaluer l'efficacité du modèle neuromorphique proposé. Les conductivités thermiques efficaces globales prévues pour vingt-six nanofluides différents sont en excellent accord avec les données expérimentales avec un DAA de 3,06% et une valeur R^2 de 0,9309.

Mohammad Hemmat Esfe et al. 2016, ont étudié la conductivité thermique des nanoparticules d'Al_2O_3 dans l'eau (40%) - éthylène glycol (60%) a été étudiée. Une relation empirique a été proposée sur la base de données expérimentale et en termes de température et de fraction volumique. En outre, un modèle a été présenté en utilisant le réseau neuronal artificiel (RNA) de perceptron multicouche (MLP) à action directe. La relation de corrélation présentée estime très bien les données empiriques. Cependant, le réseau neuronal artificiel a un coefficient de régression plus élevé et une erreur plus faible par rapport à la relation présentée. Après avoir examiné différentes structures de réseau neuronal avec différentes fonctions de transfert, une structure a été sélectionnée avec deux couches cachées et 5 neurones dans la première et la deuxième couche et une fonction de transfert sigmoïde tangente pour les deux couches. Les résultats indiquent que les réseaux de neurones artificiels peuvent estimer avec précision les données expérimentales de conductivité thermique des nanofluides Al_2O_3 / eau (40%) - éthylène glycol (60%).

Juan A. Lazzús et al. 2016, ont optimisé un réseau de neurones artificiels à l'aide d'un algorithme génétique afin d'estimer la conductivité thermique des liquides ioniques à différentes températures et pressions. Des données expérimentales de conductivité thermique de 41 liquides ioniques (400 points de données expérimentales) dans la gamme de 0,10 à 0,22 $W\ m^{-1}\ K^{-1}$ ont été utilisées pour obtenir la méthode proposée pour la gamme de température de 273–390 K et la gamme de pression de 100 –20 000 kPa. De plus, la masse moléculaire M

et la structure des molécules, représentées par le nombre de groupes bien définis formant la molécule, ont été fournies comme paramètres d'entrée afin de caractériser les différentes molécules de liquides ioniques. Un ensemble hétérogène de liquides ioniques comprend des cations tels que l'imidazolium, l'ammonium, le phosphonium, le pyrrolidinium et le pyridinium. Il comprend également des anions tels que les halogénures, les sulfonates, les tosylates, les imides, les borates, les phosphates, les acétates et les acides aminés. L'ensemble de données a été divisé en un ensemble d'apprentissage avec 300 points de données expérimentales et un ensemble de prédiction avec 100 points de données expérimentales. Plusieurs architectures ont été étudiées et les poids optimaux pour le réseau ont été déterminés. Les résultats ont montré que la méthode proposée pour estimer la conductivité thermique des liquides ioniques à différentes températures et pressions présentait une bonne précision avec des écarts inférieurs tels que AARD inférieur à 0,91% et R^2 de 0,9969 pour l'ensemble d'entraînement, et AARD inférieur à 0,84% avec R^2 de 0,9963 pour l'ensemble de prédiction.

Ebrahim Ahmadloo et al. 2016, ont présenté un modèle de réseau de neurones artificiels (RNA) à 5 entrées pour la prédiction du rapport de conductivité thermique des nanofluides au fluide de base (k_{nf} / k_f) de divers nanofluides à base d'eau et d'éthylène glycol (EG) et d'un type de transformateur pétrole. Les nanofluides étudiés sont Al_2O_3 – Eau, Al – Eau, TiO_2 – Eau, Cu – Eau, Cuo – Eau, ZrO_2 – Eau, Al_2O_3– EG, Al – EG, Cu – EG, Cuo – EG, Mg (OH) $_2$– EG, Al_2O_3 – Oil, Al – Oil, Cuo – Oil et Cu – Oil (15 nanofluides). Le réseau est conçu et formé à l'aide d'un total de 776 points de données expérimentales recueillies auprès de 21 sources de données expérimentales disponibles dans la littérature. Le diamètre moyen, la fraction volumique, la conductivité thermique des nanoparticules et la température ainsi que certains nombres appropriés pour les nanoparticules et le fluide de base sont choisis comme variables d'entrée du réseau, tandis que la valeur correspondante de (k_{nf} / k_f) est choisie comme cible. Le modèle RNA optimal développé montre un accord raisonnable dans la prévision des données expérimentales avec un pourcentage absolu moyen d'erreur de 1,26% et 1,44% et un coefficient de corrélation de 0,995 et 0,993 pour les ensembles de données d'apprentissage et de test, respectivement.

Masoud Afrand et al. 2017, ont présenté d'abord une corrélation empirique basée sur des résultats expérimentaux pour estimer l'amélioration de la conductivité thermique du nanofluide MgO-eau en utilisant la méthode d'ajustement de courbe. Ensuite, les réseaux de neurones artificiels (RNA) avec différents nombres de neurones ont été évalués en

considérant la température et la fraction volumique de MgO comme variables d'entrée et l'amélioration de la conductivité thermique comme variable de sortie pour sélectionner le réseau le plus approprié et optimisé. Les résultats ont indiqué que le réseau avec 7 neurones avait une erreur minimale. Finalement, la sortie du réseau neuronal artificiel a été comparée avec les résultats de la corrélation empirique proposée et ceux des expériences. Les comparaisons ont révélé que la modélisation RNA était plus précise que la méthode d'ajustement de courbe pour prédire l'amélioration de la conductivité thermique du nanofluide.

Forouzan Ghaderi et al. 2017, ont développé deux méthodes, une approche par réseau neuronal artificiel (RNA) et une méthode de calcul établie selon la théorie Rainwater-Friend , ils ont été utilisées pour prédire la valeur de la conductivité thermique dans toutes les gammes de densité. La conductivité thermique de six frigorigènes, R12, R14, R32, R115, R143 et R152 a été prédite par ces méthodes et l'efficacité des modèles a été spécifiée et comparée.

Les résultats montrent que la méthode de calcul est une méthode utilisable pour prédire la conductivité thermique à de faibles niveaux de densité. Cependant, l'efficacité de ce modèle est considérablement réduite dans la moyenne de la densité. Cela signifie que ce modèle ne peut pas être utilisé à des niveaux de densité supérieurs à 6. D'autre part, l'approche RNA est une méthode fiable pour la prédiction de la conductivité thermique dans toutes les gammes de densité. La meilleure précision de RNA est obtenue lorsque le nombre d'unités est augmenté dans la couche cachée. Les résultats de la méthode de calcul indiquent que la dépendance régulière entre la conductivité thermique et la densité à des densités plus élevées est éliminée.

Il peut développer un problème non linéaire. Par conséquent, les approches analytiques ne sont pas en mesure de prédire la conductivité thermique dans de larges gammes de densité. Au lieu de cela, une approche non linéaire comme, RNA est une méthode précieuse à cette fin.

Mostafa Lashkarbolooki et al. 2017, ont examiné un modèle de réseau de neurones artificiels (RNA) à action directe pour corréler la conductivité thermique liquide des hydrocarbures normaux et aromatiques à des températures de 257 à 338 K et la pression atmosphérique. À cette fin, 956 conductivités thermiques expérimentales pour les hydrocarbures normaux et aromatiques sont collectées dans différentes publications précédemment publiées. Pendant la phase de modélisation, pour discriminer différentes

substances, la température critique (T_c), la pression critique (P_c) et le facteur acentrique (ω) sont utilisés comme entrées de réseau en plus de la température. Au cours de l'examen, les effets des différentes fonctions de transfert et du nombre de neurones dans la couche cachée sont étudiés pour trouver l'architecture de réseau optimale. En outre, une analyse statistique des erreurs tenant compte des résultats obtenus à partir des corrélations disponibles et des méthodes de contribution de groupe et du réseau neuronal proposé est effectuée pour vérifier de manière fiable la faisabilité et la précision de la méthode proposée. En ce qui concerne les résultats obtenus, on peut conclure que le réseau neuronal proposé se composait de trois couches à savoir, les couches d'entrée, cachées et de sortie avec 22 neurones dans la couche cachée était le modèle RNA optimal. Généralement, le modèle proposé permet de corréler la conductivité thermique des hydrocarbures normaux et aromatiques avec le pourcentage d'écart relatif moyen absolu (AARD), l'erreur quadratique moyenne (MSE) et le coefficient de corrélation (R^2) inférieur à 0,2%, $1,05 \times 10^{-7}$ et 0,9994, respectivement.

Mariano Pierantozzi et al. 2018, ont formé et évalué une architecture de Perceptron multicouche pour une tâche de régression dans laquelle la conductivité thermique d'un ensemble de familles de fluides frigorigènes à l'état liquide est prédite à partir de leur facteur acentrique, pression critique, température réduite et moment dipolaire ,à la pression atmosphérique. Un tel modèle s'est avéré capable de capturer des régularités profondes sur l'ensemble des données et également sur différentes familles de réfrigérants. Comparé à d'autres équations bien connues de la littérature pour la même tâche, leur modèle les a toutes largement surpassées.

Sathishkumar Kannaiyan et al. 2019, ont modélisé, la conductivité thermique et la densité d'alumine / silice (Al_2O_3 / SiO_2) dans des nanofluides hybrides à l'eau à différentes températures et concentrations en volume à l'aide des réseaux de neurones artificiels (RNA). Le nanocolloïde impliqué dans l'étude a été synthétisé par la méthode en deux étapes et caractérisé par l'analyse du potentiel XRD, TEM, SEM – EDX et zêta. Les propriétés du nanofluide synthétisé ont été mesurées à différentes concentrations volumiques (0,05%, 0,1% et 0,2%) et températures (20 à 60 °C). Établie à partir des données d'observation et de l'RNA, la structure neuronale optimale a été suggérée pour prédire la conductivité thermique et la densité du nanofluide hybride en fonction de la température et des concentrations volumiques solides. Les résultats indiquent qu'un réseau neuronal avec 2 couches cachées et 10 neurones a l'erreur la plus faible et le coefficient d'ajustement de conductivité thermique le plus élevé,

alors que dans le cas de la densité, la structure avec 1 couche cachée composée de 4 neurones s'est avérée être la structure optimale.

Amin Shahsavar et al. 2019, ont utilisé le réseau de neurones artificiels (RNA) pour modéliser la conductivité thermique et la viscosité du nanofluide à l'aide de données expérimentales. La précision des modèles a été évaluée sur la base de quatre indices statistiques connus, dont le carré moyen (RMS), racine carrée de l'erreur quadratique moyenne (RMSE), l'écart absolu moyen (MAE) et le coefficient de détermination (R^2). Les résultats ont montré que le modèle de conductivité thermique proposé pouvait estimer les sorties avec RMS, RMSE, MAE et des valeurs de 0,0678, 0,0179, 0,0041 et 0,96, respectivement.

Yeping Penga et al. 2020, ont utilisé une approche de réseau de neurones artificiels (RNA) pour déterminer la conductivité thermique de Al_2O_3 - Cu / EG avec un volume égal (50:50). Dans ce but, un mélange de nanoparticules d'Al_2O_3 et de Cu (50:50) est ajouté à EG à diverses concentrations de 0,125 à 2,0 à T = 25 à T = 50 ° C. La méthode de l'approche en deux étapes est appliquée pour ajouter des nanoparticules à travers le fluide de base. De plus, le perceptron multicouche à action directe de RN est examiné pour simuler le coefficient de conduction thermique du nanofluide Al_2O_3 - Cu. Ainsi, plus de trente-six points mesurés sont atteints grâce aux expériences, tandis que vingt-cinq sont choisis pour RNA et onze sont restés sont appliqués pour valider le réseau. On voit que l'approche proposée par l'RNA peut présenter le coefficient de conduction thermique des nanofluides hybrides avec une précision appropriée et un bon accord avec ceux des données empiriques disponibles.

Long Li et al. 2020, ont estimé la stabilité des nanofluides Al_2O_3-éthylène glycol (EG) en utilisant la distribution granulométrique et le rapport de vitesses. La conductivité thermique et la viscosité ont été mesurées dans des conditions ultrasoniques pour différents intervalles de temps, fraction massique (de 0 à 2,0% en poids) et plage de températures (de 25 à 60°C). De plus, divers critères ont été présentés pour estimer la performance thermique dans le transfert de chaleur par convection. Sur la base de différents ensembles de données expérimentales, de nouvelles corrélations et des modèles optimaux de réseau de neurones artificiels (RNA) ont été proposés. Les résultats ont montré que les nanofluides Al_2O_3-EG obtenus par ultrason pendant 60 min présentent les propriétés les plus encourageantes. De plus, les corrélations pour l'expérience et les modèles RNA peuvent prédire ces deux paramètres. Cependant, le modèle RNA est plus précis. On s'attend à ce que les résultats

soient utiles pour d'autres études sur la stabilité des nanofluides, d'autant plus qu'il recommande des critères de sélection appropriés basés sur le comportement de transfert de chaleur avant les applications réelles.

Mahyar Ghazvin et al. 2020, ont modélisé le rapport de conductivité thermique des nanoparticules de cuivre modifiées / nanofluide d'eau en appliquant des approches de réseaux de neurones artificiels en utilisant des données expérimentales. La conductivité thermique des nanofluides à diverses températures de fluide, concentration et diamètre de nanoparticules a été mesurée expérimentalement en utilisant KD2Pro. De plus, afin de modéliser la conductivité thermique du nanofluide en ce qui concerne la température, la fraction volumique solide et le diamètre, une corrélation est proposée en appliquant des réseaux de neurones artificiels et en considérant les données expérimentales. Selon une analyse de précision statistique, la meilleure structure pour modéliser cette tâche est un modèle RNA à deux couches avec 6 neurones cachés. Ce modèle a prédit les données expérimentales avec une erreur de pourcentage absolu moyen (MAPE) de 1,09%, des erreurs quadratiques moyennes (MSE) de 2,5 10^{-4} et un coefficient de détermination de 0,99. Sur la base des résultats de la comparaison, le modèle RNA est capable de prédire favorablement l'amélioration de la conductivité thermique des nanofluides.

Jiang Wanga et al. 2020, ont développé des modèles pour la prédiction de la conductivité thermique des nanofluides hybrides basés sur des modèles de réseaux de neurones artificiels (RNA) dans un système de chaleur perdue. Les expériences ont été menées avec 1,0% en poids de nanofluides hybrides Cu / Al_2O_3-EG / W à températures allant de 20 à 50 ° C, où le rapport de mélange fluide de base (EG / W) variait de 20:80 à 80:20. Pour rechercher des individus qui contiennent des poids et des seuils optimaux, un algorithme génétique (GA) et un un algorithme évolutionnaire mental (MEA) couplé à un réseau neuronal à rétropropagation (GA-BPNN et MEA-BPNN, espectivement) ont été utilisés pour améliorer la précision de la conductivité thermique prévue. Les résultats montrent que la conductivité thermique augmente de façon non linéaire avec le rapport eau / éthylène glycol et la température, en raison de la conductivité thermique de l'eau plus élevée et fréquence de collision plus élevée entre les particules moléculaires et les nanoparticules. La régression polynomiale binaire (BPR) correspondait à (coefficient de détermination) R^2 = 0,9984 en fonction de température et rapport de mélange. En comparant les performances de prédiction et la capacité de BPR, les performances de R^2 augmentent de 0,11% et 0,13% pour GA-

BPNN et MEA-BPNN. Il indique que les BPNN combinés les deux prédiquent plus précisément, en particulier MEA-BPNN a la plus haute précision de prédiction.

La figure II-2 présente le nombre de publication consacré à la modélisation de la conductivité thermique.

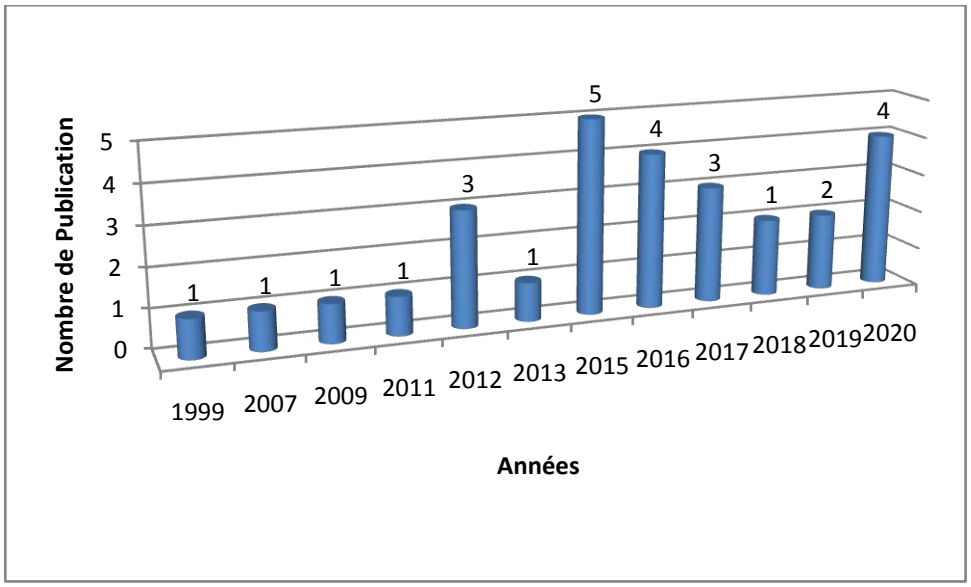


Figure II.2 : Nombre de publications traitant la modélisation de la conductivité thermique.

II.2.3. Diffusivité moléculaire

Eslamloueyan et Khademi. 2010, ont mis au point un modèle de réseau neuronal pour la prévision de la diffusivité binaire des gaz à la pression atmosphérique en fonction de la température. Un ensemble de 336 points de données expérimentales pour les coefficients de diffusion binaire des gaz organiques et inorganiques a été utilisé pour l'étape de formation du réseau où le modèle RNA développé a montré une erreur relative plus faible (4,47 %) et un bon rendement par rapport aux autres modèles rapportés dans la littérature.

Reza Beigzadeh et al. 2012, ont développé un réseau de neurones artificiels à action directe (RNA) pour estimer le coefficient de diffusion de Fick dans les systèmes liquides binaires. Il a été trouvé en fonction de la fraction molaire d'un composant, du coefficient de diffusion à dilution infinie, de la viscosité et du volume molaire de chaque composant. Ces valeurs sont facilement accessibles à partir des littératures et des manuels. Les données de 54 systèmes comprenant 851 points de données ont été collectées et l'RNA a été formé avec une et deux couches cachées utilisant différents nombres de neurones. Après la sélection du meilleur RNA, les résultats ont été comparés avec d'autres modèles. Les résultats montrent

que ce modèle a une performance supérieure sur l'estimation du coefficient de diffusion de Fick. De plus, un nouvel RNA a été développé pour prédire la diffusivité de Maxwell – Stefan (MS), sur la base duquel le coefficient de diffusion de Fick a été calculé. Les résultats montrent que la prédiction directe de la diffusivité de Fick conduit à une précision supérieure à celle de la prédiction indirecte. De plus, dans le calcul direct, il n'y a pas besoin du facteur de correction thermodynamique, qui peut être traité comme un deuxième avantage de cette méthode. La précision de la méthode a été évaluée par le biais de points de données d'autres systèmes, qui n'avaient pas été précédemment introduits dans l'RNA développé.

Majid Mohadesi et al. 2013, ont utilisé un réseau neuronal d'alimentation à trois couches pour estimer le coefficient de diffusion dilué infini (D_{12}) des systèmes binaires à fluide supercritique (SCF), liquide et gazeux. Le coefficient de diffusion dilué infini a été repéré en fonction de la température critique, de la pression critique, du volume critique, du point d'ébullition normal, du volume moléculaire au point d'ébullition normal, du diamètre de la molécule de Lennard-Jones (LJ) paramètre d'énergie, température et pression. Pour chaque ensemble de systèmes CSF, liquides et gazeux, un réseau à trois couches a été appliqué à un algorithme d'entraînement de Levenberg-Marquard (LM).

Les résultats obtenus des modèles ont montré une bonne précision du réseau neuronal artificiel (RNA) pour estimer le coefficient de diffusion dilué infini des systèmes binaires SCF, liquides et gazeux avec erreur relative moyenne (ERM) 2,88 % pour 231 systèmes contenant 4078 points de données (l'erreur relative moyenne pour le modèle RNA dans les systèmes binaires SCF, liquides et gazeux est de 3,00; 2, 99 et 1,21 %, respectivement).

Alireza Abbasi et al. 2014, ont estimé un modèle de relation quantitative structure-propriété (QSPR) pour la prédiction des coefficients de diffusion limites des liquides d'hydrocarbures, D_{AB}^{0}, est développé. La méthode de sélection des variables d'optimisation des essaims de particules (PSOvs), ainsi que le modèle de régression multi-linéaire (MLR), sélectionnent les descripteurs appropriés dans un pool de 1124 descripteurs prédéfinis. Le modèle MLR est formé sur la base d'une banque de données de 345 diffusivités binaires expérimentales d'hydrocarbures dans des solutions de dilution infinies. La fonction objective de l'optimiseur pour la sélection de descripteurs est la fonction RQK multivariante. De plus, un réseau de neurones artificiels (RNA) et un système d'inférence neuro-floue adaptatif (ANFIS) sont développés comme deux estimateurs non linéaires de boîte noire de DAB0 basés sur les descripteurs obtenus à partir de l'algorithme PSOvs. Les résultats d'estimation de

ces trois modèles QSPR (PSO-MLR, ANN et ANFIS) sont comparés à cinq corrélations semi-empiriques. De plus, en utilisant 402 données expérimentales de coefficient de diffusion binaire à différentes concentrations et températures, un autre réseau de perceptrons multicouches (MLPN) est construit pour prédire les coefficients de diffusion des systèmes liquides d'hydrocarbures binaires à différentes concentrations et températures. Les variables d'entrée de ce réseau sont D_{AB0}, D_{BA0} et la fraction molaire de la composante A. Les écarts relatifs absolus moyens (AARD) du modèle MLP-QSPR développé pour la formation, les tests et les données entières sont respectivement de 5,86%, 7,79%, et 6,32%. En effet ce modèle à moins de 5% AARD pour plus de 50% des points de données. De plus, les résultats du modèle MLP conçu pour estimer les diffusivités binaires des mélanges d'hydrocarbures concentrés montrent que l'erreur relative absolue moyenne pour l'ensemble des données d'essai et de formation est de 6,3%. La comparaison du modèle MLP développé avec des données expérimentales et certaines corrélations semi-empiriques indique que le schéma de modélisation suggéré basé sur la méthode QSPR et MLP a de très bonnes précisions pour l'estimation / prédiction de la diffusivité des hydrocarbures liquides non seulement en dilution infinie mais aussi à concentration concentrée solutions.

La figure II-3 présente le nombre de publication consacré à la modélisation de la la diffusivité moléculaire.

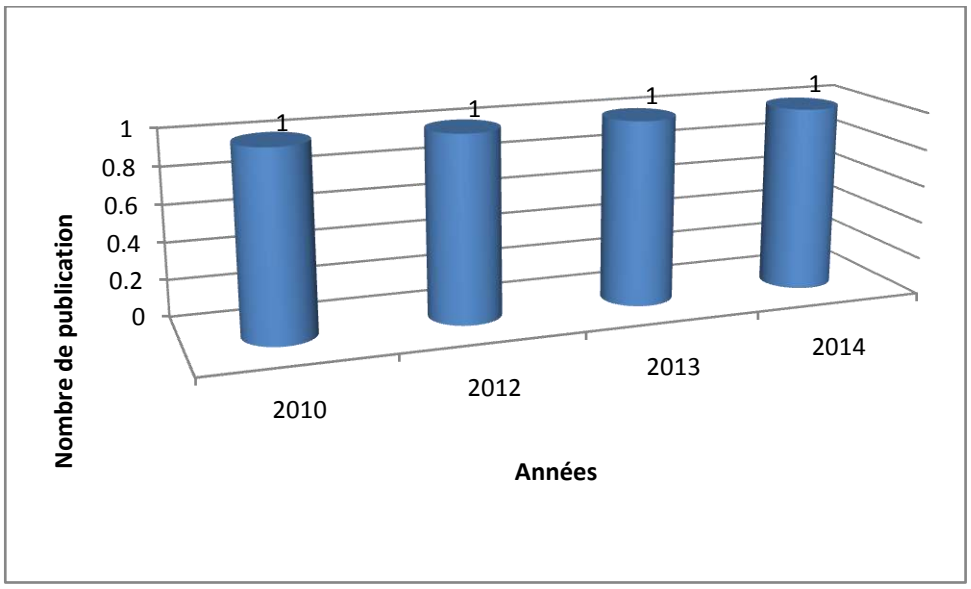


Figure II.3 : Nombre de publications traitant la modélisation de la diffusivité moléculaire.

II.3. Conclusion

La littérature met en évidence que la modélisation peut permettre de valider les hypothèses simplificatrices émises lors de la formulation mathématique des phénomènes de transport.

Une analyse détaillée des articles publiés sur la modélisation des phénomènes de transport par les réseaux de neurones artificiels (RNA) montre clairement que ces modèles ont été tirés à partir d'ensemble de données limitées de gazes.

En guise de conclusion, cette revue bibliographique nous a servi à fixer l'objectif de notre travail qui consiste en la prédiction des phénomènes de transport en utilisant des réseaux de neurones artificiels. Toutefois, nous avons fait en sorte de combler toutes les lacunes relevées dans les publications antérieures et ce en :

- Choisissant une base la plus large possible;
- Procédant à une optimisation pour le choix de nombre de neurone optimal dans la couche cachée et pour le choix des fonctions de transfert.

CHAPITRE III

MATERIELS ET METHODES

III.1. Introduction

Les réseaux de neurones artificiels (RNA) ont fait l'objet d'un intérêt soutenu et de nombreux travaux depuis plus d'une vingtaine d'années à cause de leur capacité à résoudre des problèmes non linéaires par apprentissage. Ce sont donc des méthodes numériques, en ce sens qu'ils ne reposent pas sur un modèle explicite des données. Il a été également démontré qu'un réseau de neurones ayant; une couche cachée et une fonction sigmoïde est un « approximateur universel » en ce sens qu'il peut approximer toute fonction multivariable non linéaire et ses dérivées avec une précision fixée, pourvu qu'il soit soumis à un apprentissage efficace. Ce potentiel d'approximation est cependant difficile à exploiter, car il n'existe à ce jour aucune méthode précise permettant de réaliser avec certitude l'approximation désirée pour un système donné. C'est pourquoi le choix et l'application d'un modèle neuronal demeurent un domaine de recherche très actif contrairement aux modèles classiques (Hertz 2018).

III.2. Méthodologie de calcul

La méthodologie adoptée pour le calcul de la viscosité des gaz polaires et non polaires par la technique neuronale et qui est d'ailleurs la même pour toutes les autres propriétés de transport des gaz, peut être schématisée conformément à l'organigramme suivant :

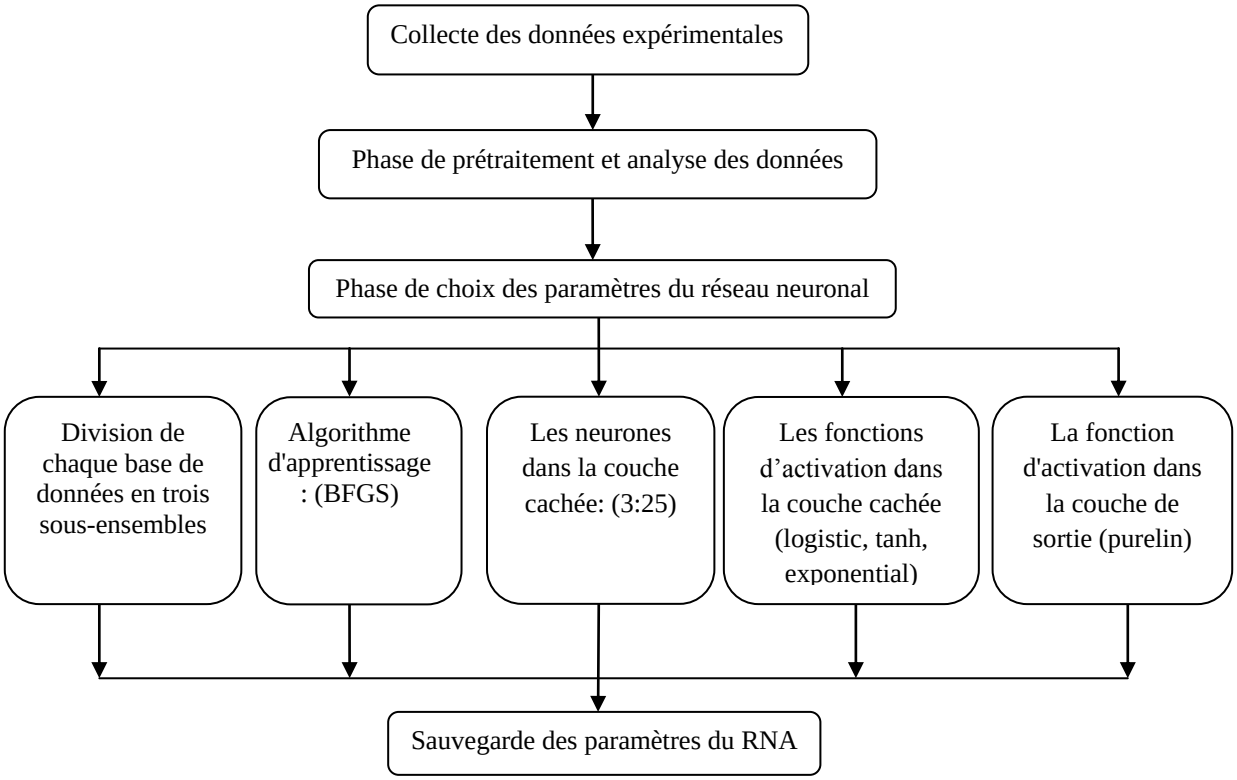


Figure III.1 : Organigramme de la procédure développée dans ce travail.

III.2.1. Viscosité

L'algorithme de formation utilisée dans ce travail est le BFGS quasi-Newton (trainbfg). Chaque RN contient trois couches de neurones ou de nœuds: une couche d'entrée avec cinq neurones pour RN1 et six neurones pour RN2 dans la couche d'entrée, une couche cachée avec un certain nombre de neurones actifs optimisés lors de la formation et une couche de sortie avec une unité qui a généré de la valeur estimée de la viscosité. Le nombre de neurones cachés a varié de 3 à 25 neurones. Les fonctions d'activations « La tangente hyperbolique sigmoïde (tansig), la sigmoïde logarithmique (logsig) et l'exponentielle » ont été utilisées dans la couche cachée. La fonction de transfert pur linéaire (purelin) a été utilisée dans la couche de sortie.

Le choix du type et le nombre d'entrées RN ont été faits après un examen complet des modèles proposés dans la littérature. L'application d'un réseau de neurone pour la modélisation de la viscosité a été réalisée en utilisant le logiciel STATISTICA (version 7).

Pour chaque base de données, les échantillons ont été divisés aléatoirement en trois sous-ensembles: 70% pour la phase d'apprentissage, 15% pour la phase de validation et 15% pour la phase de test (Figure III.2).

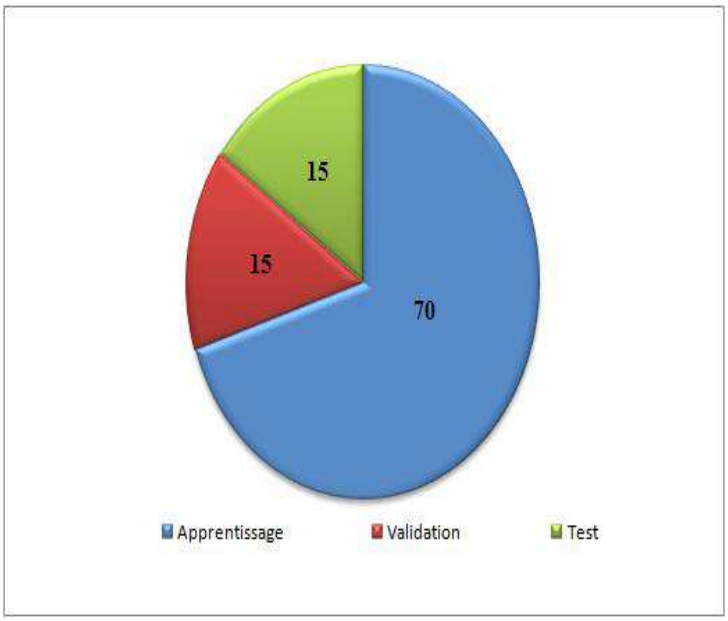


Figure III.2: Représentation des pourcentages de division de la base de données.

III.2.1.1. Collecte des données, prétraitement et analyse

La base de données ainsi constituée doit répondre à deux exigences (Dreyfus, Martinez et al. 2002):

- contenir le maximum d'échantillons ou d'exemples (génériques et/ou expérimentaux),
- être représentative des données susceptibles d'intervenir en phase d'utilisation du modèle neuronal.

La base de données collectée à partir de la littérature (Reid, Prausnitz et al. 1987 ; Gosse 1991 ; Bouzidi, Hanini et al. 2007) contient un total de 243 gaz avec 122 polaires et 121 non polaires gaz. L'analyse statistique des données d'entrée et de sortie, en termes du minimum "min", de la moyenne arithmétique (Équation III.1) "$\bar{x}$", du maximum "max" et de la déviation standard (écart type) "DS" (Équation III.2) (Khaouane 2013), est présentées dans le tableau III.1

$$\bar{x} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} x_i \qquad \text{(III.1)}$$

$$D_s = \left(\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(x_i - \bar{x})\right)^{\frac{1}{2}} \qquad \text{(III.2)}$$

Tableau III.1 : Analyse statistique des données d'entrée et de sortie.

Paramètres	**Symboles**	**Unité**	**Min**	**Max**	**Moyenne**	**DS**
Température	T	K	100	1100	420.8027	253.8125
Température critique	T_c	K	33.1800	647.3000	415.4862	120.2597
Température d'ébullition	T_b	K	20.3840	512.6000	255.6734	89.9244
Pression critique	P_c	bar	12.98	471.2000	68.5536	68.5536
Masse molaire	M	g /mole	2.0160	238.0900	65.5994	38.5080
Moment dipolaire	μ	D	0	2.9000	0.7771	0.8302
Viscosité dynamique	η	[pa. s]	0.0024	0.2580	0.0157	0.0211

III.2.1.2. Sélection des entrées du modèle neuronal

La sélection des entrées consiste à déterminer les variables pertinentes par rapport à la grandeur à modéliser. Elle vise deux points essentiels (Dreyfus, Martinez et al. 2002) :

- Réduction de la dimension de l'espace de représentation des variables du modèle,
- Élimination des entrées qui n'ont pas ou peu d'influence sur la sortie.

Il est important de mentionner que chaque ajout d'une variable encombre le modèle et entraîne une multiplication des paramètres du réseau. Raison pour laquelle, la représentation des entrées doit contenir tous les facteurs pertinents par rapport à la grandeur à modéliser, mais seulement ceux-ci.

Dans notre, cas c'est-à-dire la détermination de la viscosité des gaz polaires et non polaires, on a utilisé le modèle de Chapman-Enskog (Reid et al. (1987) comme base théorique pour extraire les variables pertinentes par rapport à la viscosité. Le diagramme de la figure III.3 explique les détails de la procédure de sélection des variables d'entrées.

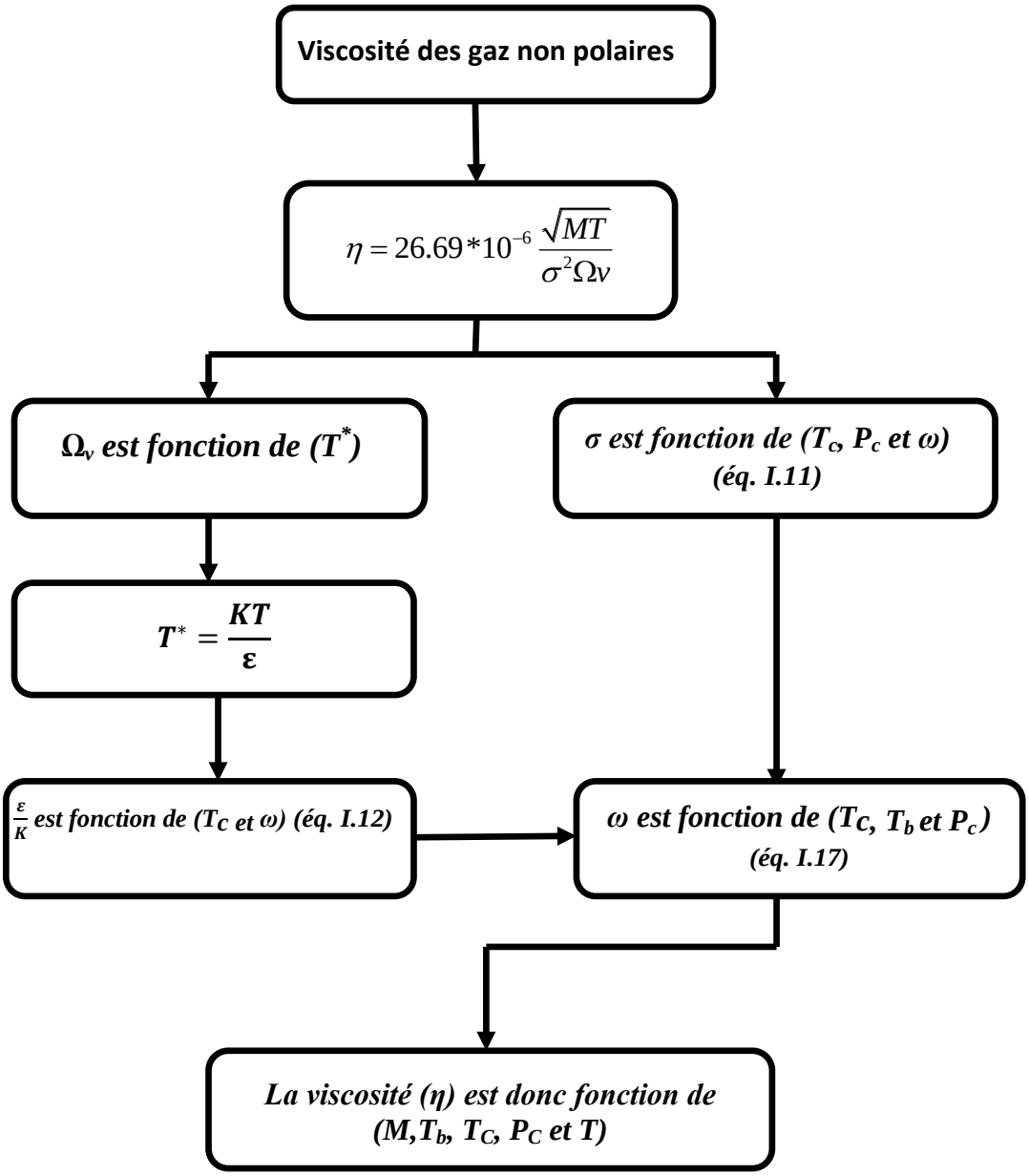


Figure III.3 : Procédure de la sélection des variables d'entrées.

La méthodologie adoptée pour le calcul de la viscosité des gaz polaires par la technique neuronale est semblable à celle adoptée pour les gaz non polaires.

En partant de la corrélation proposée par ce modèle, nous avons abouti aux grandeurs mesurables qui sont *M, T_b, T_c, P_c, et T* pour les gaz non polaires et *M, T_b, T_c, P_c,μ* et *T* pour les gaz polaires, dont on a utilisé comme entrées de notre modèle, le tableau III.2 présente les entrées, les sorties, pour chaque base de données (BD1, BD2).

Tableau III.2 : Entrées et sortie utilisées pour le développement des modèles (**RN1**, **RN2**).

	BD1 pour RN1	**DB2 pour RN2**
Entrées	T P_c T_b T_c M	T P_c T_b T_c M μ
Sorties	η	η

III.3. Conductivité thermique

III.3.1. Méthodologie de calcul de la conductivité thermique des gaz

En ce qui concerne la conductivité, il est nécessaire de distinguer deux types de gaz ; les monoatomiques et les polyatomiques. En effet, les mouvements internes des molécules polyatomiques (vibration, rotation, etc.) ont un effet négligeable sur les transferts de masse et de quantité de mouvement, si bien que la théorie relative à la viscosité et à la diffusion massique des gaz monoatomiques est applicable aux gaz polyatomiques. Mais ces mouvements internes interviennent de façon très sensible dans le cas de la conductivité thermique (scientifique 1976).

Les gaz polyatomiques sont à leur tour subdivisé en deux types ; les non polaires et les polaires. Ce qui nous, avons conduit à proposer trois modèles neuronaux pour la conductivité: un pour les gaz monoatomiques et deux pour les gaz polyatomiques.

III.3.1.1. Collecte des données, prétraitement et analyse

Un ensemble de 338 gaz avec 119 monatomiques et 219 polyatomiques inclus à la fois (87 gaz polaires et 132 gaz non polaires) a été utilisés pour former la validation et tester la performance de l'RNA nous avons utilisé des données accessibles dans la littérature (Song, Wang et al. (2013) ; Abdelkader, Djillali et al.(2013) ; Gosse (1991); Reid, Prausnitz et al.(2001)). L'analyse statistique des données d'entrée et de sortie est présentée dans le tableau III. 3.

Tableau III. 3 : Analyse statistique des données d'entrée et de sortie.

Paramètres	**Symboles**	**Unité**	**Min**	**Max**	**Moyenne**	**DS**
Température	T	K	81.8800	1500	407.1835	180.8292
Température critique	T_c	K	5.2000	647.3000	303.1760	167.0530
Températures d'ébullition	T_b	K	4.2240	373.2000	187.5717	107.1657
Pression critique	P_c	bar	2.2750	220.5000	54.1301	34.9186
Masse molaire	M (A)	g /mole	2.0160	200.0400	54.9916	36.6968
Moment dipolaire	μ (A)	D	0	2.9000	0.4875	0.8126
Conductivité	λ	[W/m K]	0.0037	0.3840	0.0352	0.0539

III.3.1.2. Sélection des entrées du modèle neuronal

Les variables retenues comme entrée dans les RN étaient la température absolue avec cinq propriétés physiques (M, T_c, T_b, P_C et μ) pour les gaz polaires, et la température absolue avec quatre propriétés physique (M, T_c, T_b et P_c) pour les gaz non polaires. Ils ont été sélectionnés après un examen exhaustif des modèles théoriques, (Gosse 1991) et (Reid and Prausnitz 1977).

La procédure de sélection des inputs illustrée par le diagramme suivant :

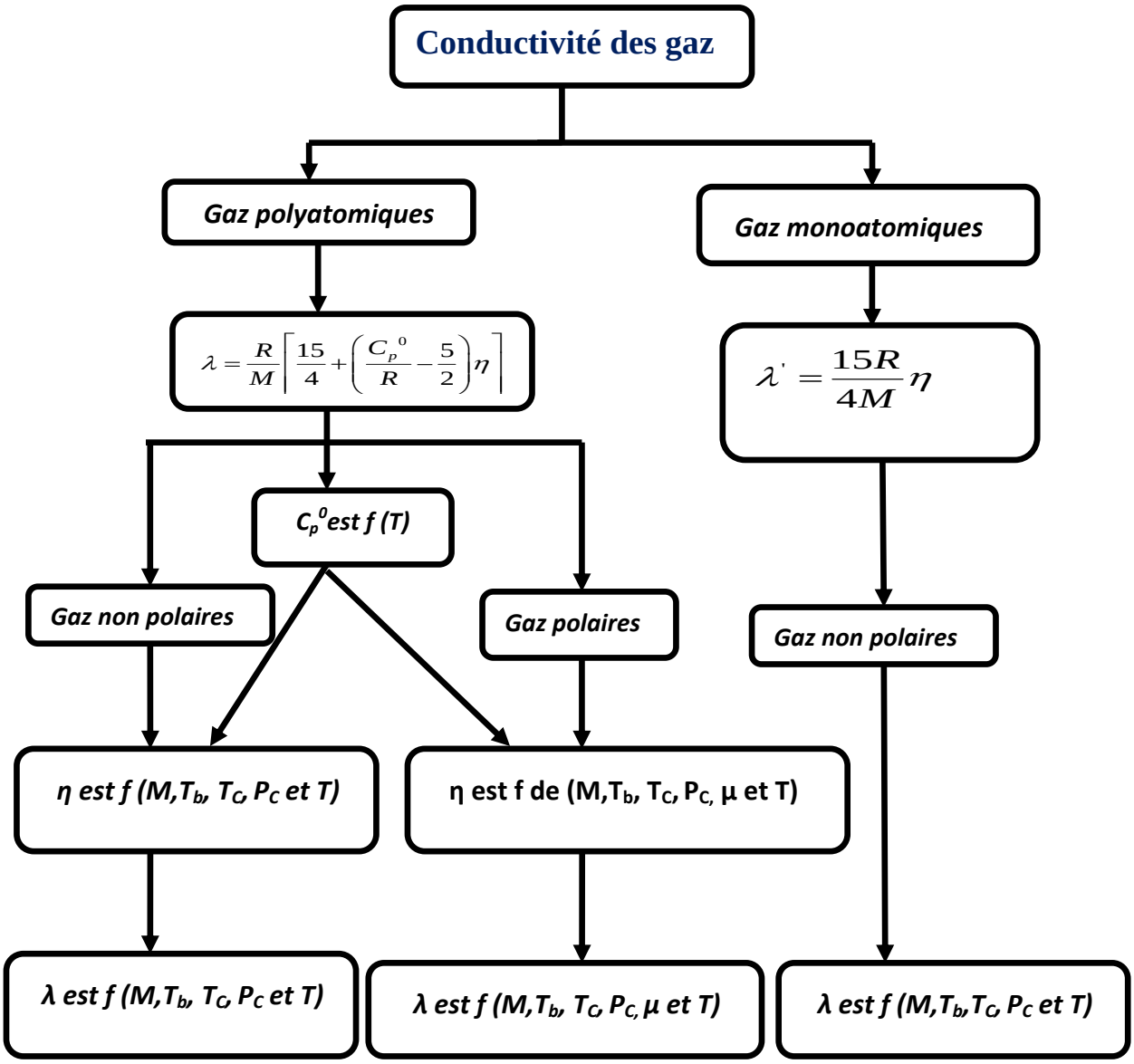


Figure III.4 : Procédure de la sélection des variables d'entrées.

Le tableau III.4. Présente les entrées, et les sorties, pour chaque base de données (BD1, BD2, BD3).

Tableau III.4 : Entrées et sorties utiliser pour le développement de modèles de réseaux de neurones (RN1, RN2, et RN3).

	BD1 **pour RN1**	BD2 **pour RN2**	BD3 **pour RN3**
Entrées	T P_c T_b T_c M	T P_c T_b T_c M μ	T P_c T_b T_c M
Sorties	λ	λ	λ

L'algorithme de formation utilisée dans ce travail est le BFGS quasi-Newton (trainbfg). Chaque RN contient trois couches de neurones ou de nœuds: une couche d'entrée avec cinq neurones pour RN1, six neurones pour RN2 et cinq neurones pour RN3 dans la couche d'entrée, une couche cachée avec un certain nombre de neurones actifs optimisés lors de la formation et une couche de sortie avec une unité qui a généré la valeur estimée de la conductivité. Le nombre de neurones cachés a varié de 3 à 25 neurones. Les fonctions d'activations « La tangente hyperbolique sigmoïde (tansig), la sigmoïde logarithmique (logsig) et l'exponentielle » ont été utilisées dans la couche cachée. La fonction de transfert pur linéaire (purelin) a été utilisée dans la couche de sortie.

III.4. Diffusivité Moléculaire

III.4.1. Méthodologie de calcul du coefficient de diffusion des gaz

La particularité dans la conception de ce modèle réside dans le nombre relativement élevé des inputs. Comme il s'agit de la diffusion de deux gaz différents.

III.4.1.1. Collecte des données, prétraitement et analyse

Dans cette étude, nous avons utilisé les données disponibles dans la littérature (Giddings and Seager 1960 ; Knox and McLaren 1963 ; Hirschfelder, Curtiss et al. 1964 ; Grushka and Maynard 1972; Liner and Weissman 1972; Huang TC 1972 ; Gotoh, Manner et al. 1974 ; Staker

and Dunlop 1976 ; Reid and Prausnitz 1977, Worth, Nüsse et al. 1978 ; Katsanos and Karaiskakis 1982; Singh, Singh et al. 1983 ; Poling, Prausnitz et al. 2001; Gavril, Atta et al. 2004 ; Karaiskakis et Gavril 2004 ; Bouzidi 2005 ; Eslamloueyan, Khademi et al. 2010; Fokin, Kalashnikov et al. 2011; Lu, Guo et al. 2013) . La base de données que nous avons pu contient 1252 exemples pour 117 gaz. Le domaine de température varie entre 77K et 1200K (selon la température normale ébullition des gaz), Cette base de données est en grande partie générique renforcée d'exemples expérimentaux. L'analyse statistique des données d'entrées et de sortie est présentée dans le tableau III.5.

Tableau III.5 : Analyse statistique des données d'entrées et de sortie.

Paramètres	**Symboles**	**Unité**	**Min**	**Max**	**Moyenne**	**DS**
Temperature	T	K	77.2	1200	387.34	143.84
Pression	P	atm	0.77	444.11	9.49	31.82
Temperature critique	$T_C^{(A)}$	K	5.19	761	238.49	245.97
Temperature critique	$T_C^{(B)}$	K	5.19	819	219.1	186.64
Volume critique	$V_C^{(A)}$	$cm^3\ mol^{-1}$	21.23	492	136.7	119.15
Volume critique	$V_C^{(B)}$	$cm^3\ mol^{-1}$	41.7	492.1	123.83	84.93
Masse molaire	$M\ (A)$	g /mole	4	235.9	41.15	43.99
Masse molaire	$M\ (B)$	g /mole	2.01	253.8	40.91	44.29
Moment dipolaire	$\mu(A)$	D	0	4.22	0.25	0.7
Moment dipolaire	$\mu(B)$	D	0	4.22	0.24	0.62
Pression critique	$P_C^{(A)}$	atm	2.3	220.48	35.17	35.9
Pression critique	$P_C^{(B)}$	atm	2.3	220.48	37.37	25.75
Coefficient de diffusion entre deux gaz A et B	D_{AB}	(cm^2/s)	$7.6000\ 10^{-6}$	8.1	0.58	0.8

III.4.1.2. Sélection des entrées du modèle neuronal

Le diagramme de la figure III.4 explique les détails de la procédure de sélection des variables d'entrées.

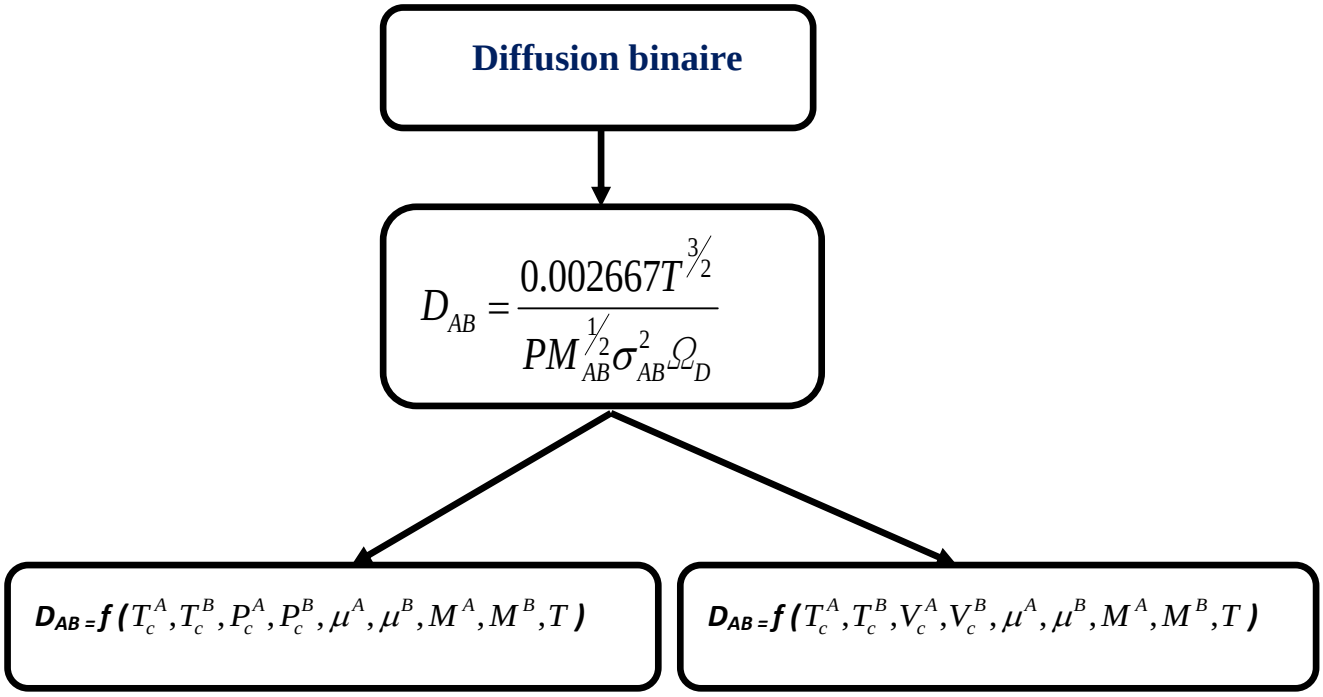


Figure III.5: Procédure de la sélection des variables d'entrées.

Le tableau III.6 présente les entrées, et les sorties, pour chaque base de données (BD1, BD2).

Tableau III.6 : Entrées et sortie utilisées pour le développement des modèles (RN1 et RN2).

	BD1 pour RN1	**BD2 pour RN2**
Entrées	T	T
	P	P
	$T_C^{(A)}$	$T_C^{(A)}$
	$T_C^{(B)}$	$T_C^{(B)}$
	$V_C^{(A)}$	$P_C^{(A)}$
	$V_C^{(B)}$	$P_C^{(B)}$
	$M\ (A)$	$M\ (A)$
	$M\ (B)$	$M\ (B)$
	$\mu(A)$	$\mu(A)$
	$\mu(B)$	$\mu(B)$
Sortie	D_{AB}	D_{AB}

L'algorithme de formation utilisée dans ce travail est le BFGS quasi-Newton (trainbfg). Chaque RN contient trois couches de neurones ou de nœuds: une couche d'entrée avec dix neurones pour RN1, dix neurones pour RN2 dans la couche d'entrée, une couche

cachée avec un certain nombre de neurones actifs optimisés lors de la formation et une couche de sortie avec une unité qui a généré la valeur estimée du coefficient de diffusion. Le nombre de neurones cachés a varié de 3 à 25 neurones. Les fonctions d'activations « La tangente hyperbolique sigmoïde (tansig), la sigmoïde logarithmique (logsig) et l'exponentielle » ont été utilisées dans la couche cachée. La fonction de transfert pur linéaire (purelin) a été utilisée dans la couche de sortie.

III.5. Conclusion

Nous avons décrit ici les outils nécessaires à la modélisation des phénomènes de transport par les réseaux de neurones artificiels (RNA). Dans cette étape, nous avons présenté les données collectées, prétraitement et analyse.

Le chapitre suivant sera consacré aux résultats et discussion pour mieux comprendre le phénomène étudié par les différentes méthodes.

CHAPITRE IV

RESULTATS ET DISCUSSION.

IV.1. Introduction

Dans ce chapitre, les résultats obtenus sont discutés, Ce chapitre est organisé en deux parties:

Dans la première partie, on présentera les performances des modèles RN. Ensuite l'extraction de formules mathématiques à partir de ces modèles.

La dernière partie est consacrée à une étude comparative des modèles RN avec RLM et par suite avec les modèles de la littérature.

IV.2. Première contribution : la viscosité

IV.2.1. Performances des modèles -RN

Dans cette étude, pour chaque base de données (BD1, BD2) les échantillons, ont été divisés aléatoirement en trois sous-ensembles : 70% pour la phase d'apprentissage, 15% pour la phase de validation et 15% pour la phase de test. Le tableau IV.1 montre la structure des modèles RN optimisés.

Table IV.1 : Structure du réseau utilisé dans la modélisation de la viscosité des gaz.

Modèles RN	**Variable de couche d'entrée**	**Couche cachée**		**Couche sortie**		**Algorithme d'apprentissage**
		Fonction d'activation	**Nombre de neurone**	**Fonction d'activation**	**variable**	
RN1 (**gaz non polaires**)	M (g/mol) P_C (bar) T_b (K) T_c (K) T (K)	La sigmoïde tangent (tansig)	11	fonction de transfert linéaire (purelin)	Viscosité (η) (Pa.s)	BFGS **: quasi-Newton (trainbfg)**
RN2 (**gaz polaires**)	M (g/mol) P_C (bar) T_b (K) T_c (K) T (K) μ	La sigmoïde tangent (tansig)	6	fonction de transfert linéaire (purelin)	Viscosité (η) (Pa.s)	BFGS **: quasi-Newton (trainbfg)**

Selon la discussion précédente (chapitre III méthodologie de calcul), deux modèles de réseaux neurones ont été développés dans le but de prédire la viscosité des gaz. L'intrigue et les paramètres de la régression linéaire sont obtenus en utilisant la fonction MATLAB "postreg". Le pouvoir de prédiction d'un tel modèle peut être estimé par le coefficient de corrélation R, où une valeur de R supérieure à 0.5 est généralement considérée comme satisfaisante, alors qu'une valeur supérieure à 0.9 est excellente (Golbraikh, Tropsha et al. 2002).

La figure IV.1(a) montre une comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées de la viscosité des gaz non polaires (RN1) avec un vecteur de régression approchant de l'idéal issu de l'équation linéaire, [équation linéaire : $Y^{cal} = \alpha Y^{\exp} + \beta$, [α =1 (pente), β=0.12 (ordonnée à l'origine), R=0.992 (coefficient de corrélation)].

Les coefficients des corrélations sont généralement considérés comme excellents ($0.90 \leq R \leq 1.00$), le coefficient de corrélation de RN1 développé était R=0,992, ce qui montre une bonne robustesse du premier modèle neuronal "RN1".

Pour estimer la performance du deuxième modèle neuronal obtenu « RN2 », les valeurs prédites de la viscosité des gaz non polaires ont été comparées aux valeurs expérimentales de la viscosité des gaz non polaires pour la phase totale. Ainsi la figure IV.1(b) représente les courbes de la régression linéaire de ce deuxième modèle neuronal avec un vecteur de régression approchant de l'idéal ([α (pente), β (ordonnée à l'origine), R (coefficient de corrélation)] = [1, 0.1, 0.991]) "phase totale". Ce qui implique que le deuxième modèle neuronal "RN2 est parfaitement adapté au calcul de la viscosité dynamique des gaz, dont le moment dipolaire dépasse les 0.5 Debye, avec une erreur admissible.

.

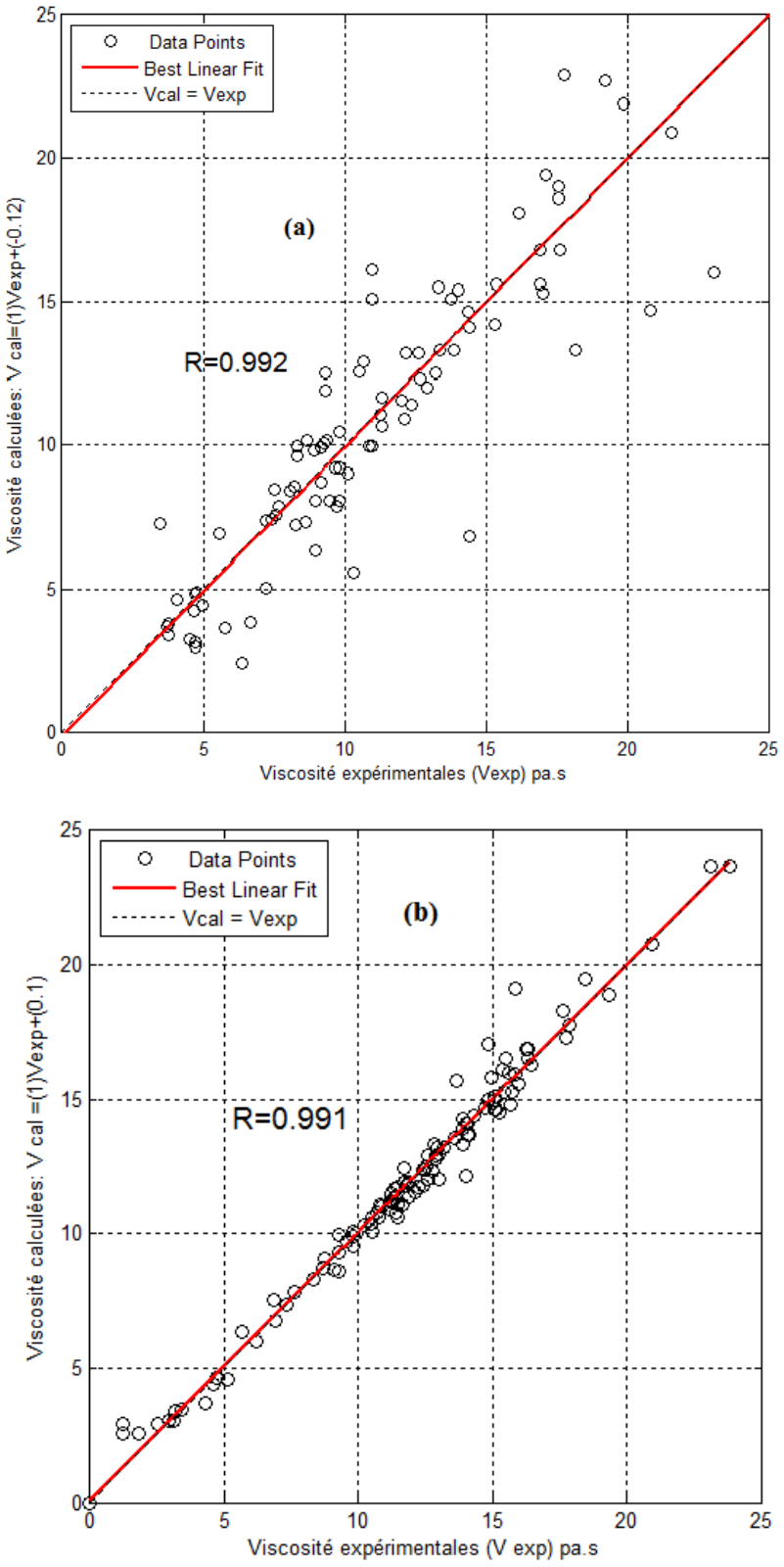


Figure. IV.1 : Comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées pour : (**a**) **viscosité des gaz non polaires** (RN1), (**b**) **viscosité des gaz polaires** (RN2).

La performance de chaque modèle a été évaluée en termes d'erreur quadratique moyenne (EQM), de la racine carrée de l'Erreur quadratique moyenne (REQM), et du coefficient de validité externe (Q^2_{ext}).

- **Erreur quadratique moyenne (EQM)**

$$EQM = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(Y_{i,\exp} - Y_{i,pred})^2 \qquad \text{(IV.1)}$$

Où n est le nombre total de points de données, $Y_{i,exp}$ est la valeur expérimentale et $Y_{i,pred}$ représente la valeur calculée à partir du modèle.

- **Racine carrée de l'Erreur Quadratique Moyenne (REQM)**

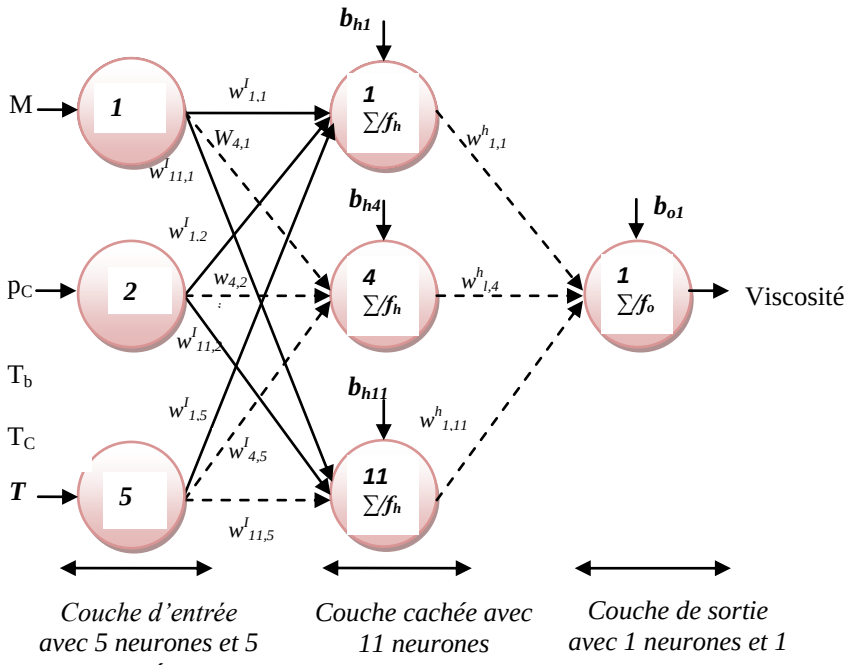
$$REQM = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^{n}(Y_{i,\exp} - Y_{i,pred})^2}}{n} \qquad \text{(IV.2)}$$

- **Coefficient de validité externe** (Q^2_{ext})

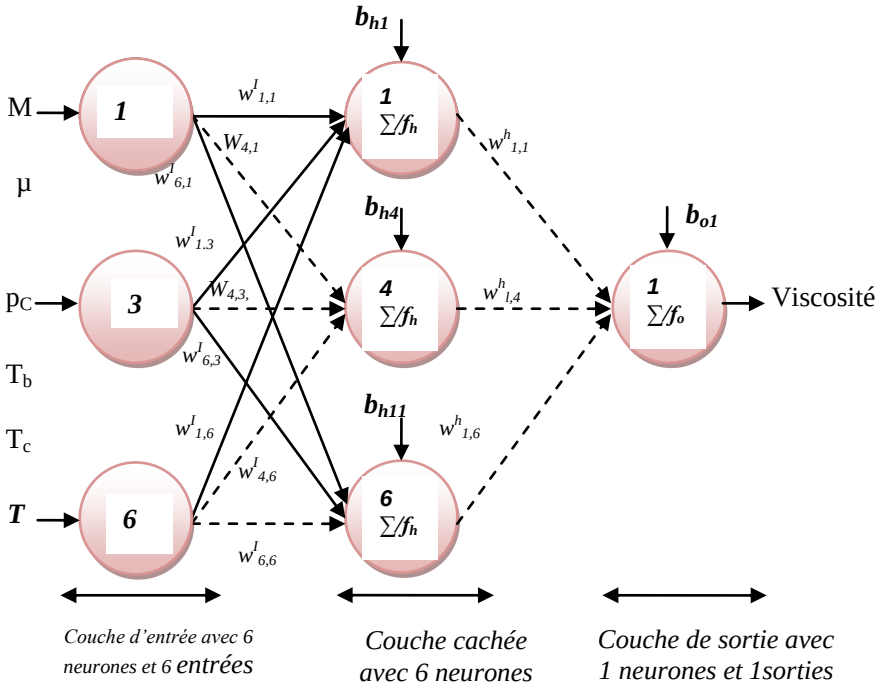
$$Q^2_{ext} = \frac{\sum_{i=1}^{pred}(X_{i,\exp} - X_{i,pred})^2}{\sum_{i=1}^{pred}(Y_{i,\exp} - Y_{TR})^2} \qquad \text{(IV.3)}$$

Où $Y_{i,pred}$ représente la sortie prédite à partir du modèle de réseau neuronal pour une entrée donnée, tandis que $Y_{i,exp}$ est la valeur expérimentale et y_{TR} sont les valeurs moyennes des échantillons destinés à l'ensemble d'apprentissage de la viscosité expérimentale.

L'architecture des réseaux de neurones optimaux pour le calcule de viscosité des gaz polaire et non polaire obtenus est présenté sur cette figure. IV.2.



(a)



(b)

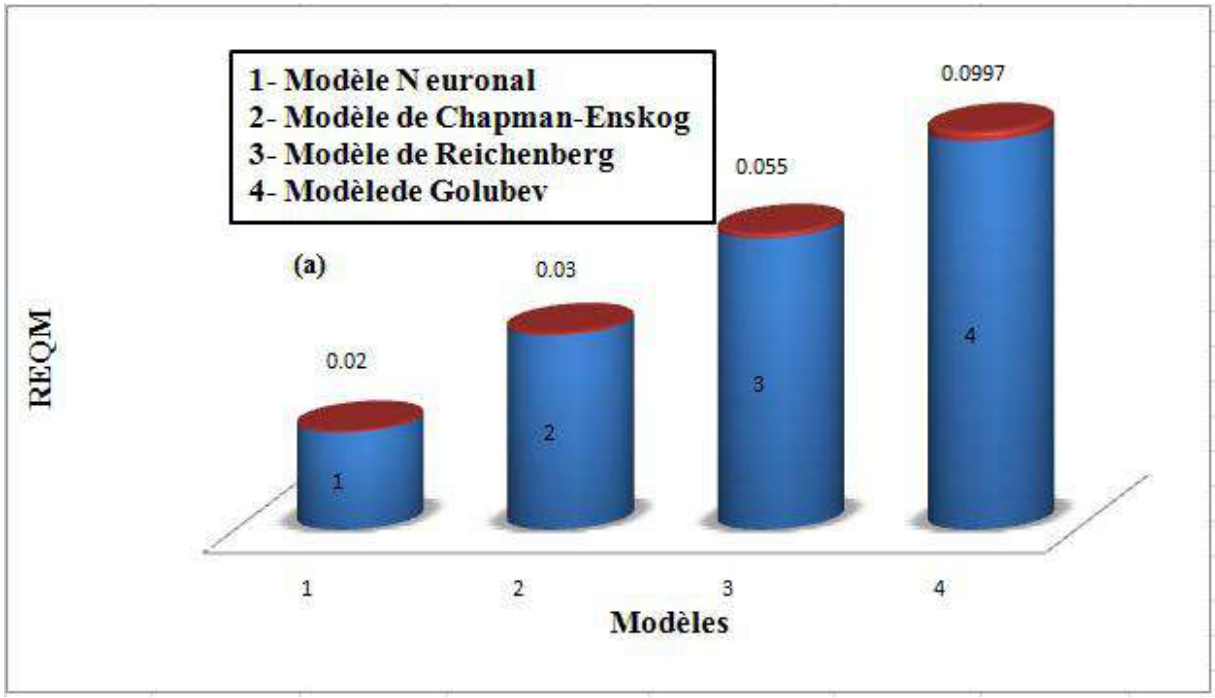
Figure IV.2 : Architecture finale du réseau de neurone optimal de type feedforward pour la prédiction de la viscosité (**(a) gaz non polaires (b) gaz polaires**).

IV.2.2. Comparaison entre les réseaux neuronaux et les modèles empiriques

Dans ce travail un réseau neuronal a été développé pour prédire la viscosité de gaz polaire et non polaire à différentes températures, une base de données collectée à partir de la littérature de 243 points de données expérimentales. Pour avoir une comparaison entre les modèles de réseaux neuronaux développés dans ce travail avec d'autres modèles, nous avons estimé la viscosité de plusieurs composants dans l'ensemble de données en utilisant le réseau développé ainsi que trois corrélations différentes proposées par Chapman-Enskog, Golubev, et Reichenberg.

Les performances de chaque modèle ont été estimées avec (la racine carrée de l'erreur quadratique moyenne (REQM)).

La figure IV.3 montre une comparaison entre le modèle neural proposé et divers modèles utilisés pour la prédiction de la viscosité des gaz polaires et non polaires en terme de la racine carrée de l'erreur quadratique moyenne. Cette comparaison indique que le modèle de réseau neural proposé possède une capacité de modélisation plus élevée par rapport aux autres modèles. L'erreur quadratique moyenne de la méthode RNA pour les données est de 0.02 pour la viscosité des gaz non polaires et de 0.01 pour la viscosité des gaz polaires RN2.



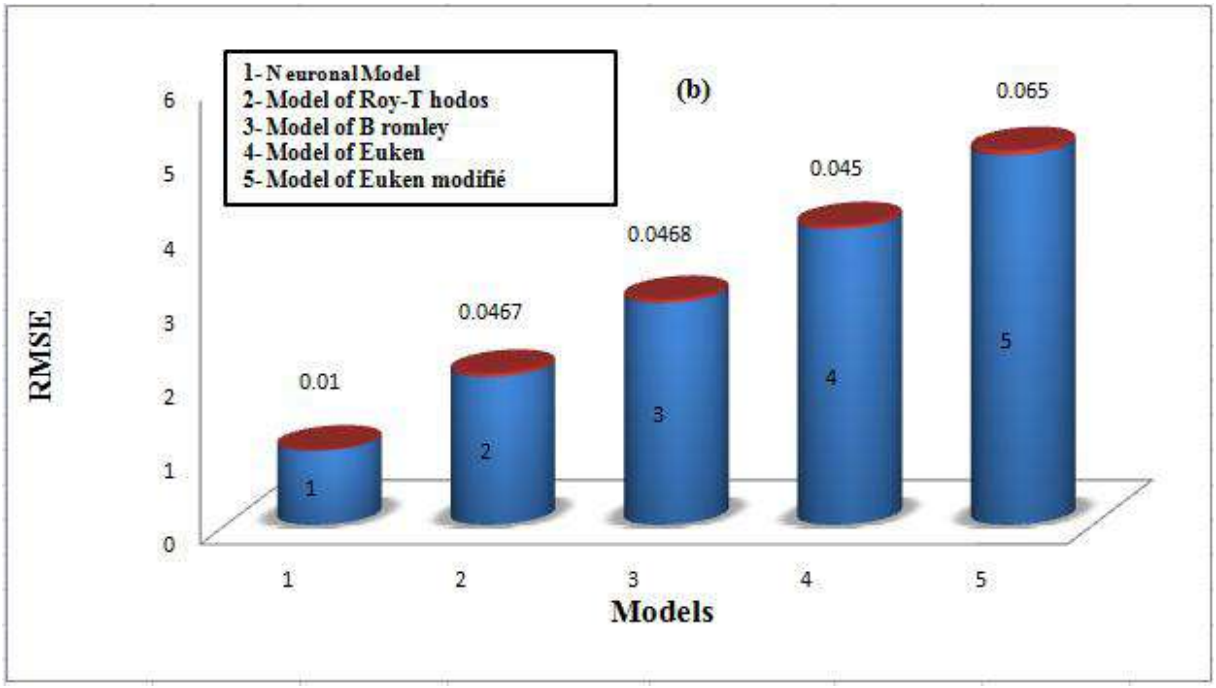


Figure IV.3 : Comparaison entre les modèles en termes de la racine de l'erreur quadratique moyenne:

(a) gaz non polaires (RN1), **(b)** gaz polaires (RN2).

IV.2.3. Expressions mathématiques des modèles neuronaux optimisés

À partir du RN optimisé, représenté sur la figure IV.4, on peut exprimer l'assimilation de viscosité par un modèle mathématique y incorporant toutes les entrées E_i (M(g/mol), P_C (bar),T_b (K),T_c(K) , T (K), μ(D)), comme suit :

Les sorties Z_j de la couche cachée :

$$Z_J = f_H\left[\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right] = \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)} \qquad \text{(IV.4)}$$

j=1, 2, …,11

La sortie "viscosité" :

$$\text{Viscosité (RN1)} = f_0\left[\sum_{i=1}^{11} W_{1j}^H Z_J + b_1^0\right] = \sum_{J=1}^{11} W_{1j}^H Z_J + b_1^0 \qquad \text{(IV.5)}$$

La combinaison des équations (VI.4) et (VI.5) mène à la formule mathématique suivante qui décrit l'assimilation de viscosité des gaz non polaires en prenant en compte toutes les entrées E_i ((M(g/mol), p_C (bar), T_b (K), T_c(K) , T (K), μ(D)) :

$$\text{Viscosité } (RN1) = \sum_{J=1}^{11} W_{1j}^{H} \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)} + b_1^{0} \qquad \text{(IV.6)}$$

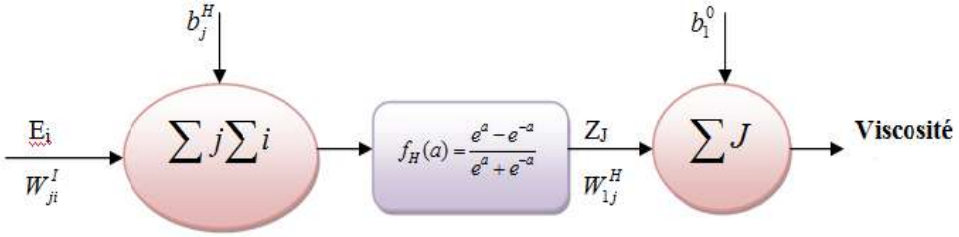


Figure IV.4. Représentation schématique du RN optimisé.

De même, la viscosité des gaz polaires peut être exprimée par des équations mathématiques extraites des RN2 optimisées comme suit :

$$\text{Viscosité } (RN2) = \sum_{J=1}^{6} W_{1j}^{H} \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{6} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{6} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{6} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{6} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)} + b_1^{0} \qquad \text{(IV.7)}$$

Ou W_{ji}^{I} représente le poids synaptique de la connexion du neurone *i* de la couche d'entrée au neurone *j* de la couche cachée (11 lignes x 4 colonnes pour RN1, 6 lignes x 5 colonnes pour RN2); W_{1j}^{H} représente le poids synaptique de la connexion du neurone *j* de la couche cachée au neurone de la couche de sortie (11 lignes x 1 colonnes pour RN1, 6 lignes x 1 colonnes pour RN2); b_j^{H} représente les biais du neurone *j* de la couche cachée (11 lignes pour RN1, 6 lignes pour RN2) et b_1^{0} représente les biais du neurone *j* de la couche de sortie (1 ligne pour RN1 et RN2).

IV.3. Deuxième contribution: la conductivité

IV.3.1. Performances des modèles -RN

Dans cette étude, pour chaque base de données (BD1, BD2 et BD3) les échantillons, ont été divisés aléatoirement en trois sous-ensembles : 70% pour la phase d'apprentissage, 15% pour la phase de validation et 15% pour la phase de test. Le tableau IV.2 montre la structure des modèles -RN optimisés.

Table IV.2 : Structure du réseau neuronal utilisé dans la modélisation de la conductivité des gaz.

Modèles RN	**Variable de Couche d'entreé**	**Couche cachée**		**Couche sortie**		**Algorithme d'apprentissage**
		Fonction d'activation	**Nombre de neurone**	**Fonction d'activation**	**variable**	
RN1 (**gaz monoatomiques**)	M (g/mol) P_C (bar) T_b (K) T (K) T_c (K)	La Sigmoïde tangent (tansig)	7	fonction de transfert linéaire (purelin)	Conductivité (λ) [W/m K]	BFGS **: quasi-Newton** ***(trainbfg)***
RN2 (**gaz polyatomiques polaires**)	M (g/mol) P_C (bar) T_b (K) T (K) T_c (K) µ	La Sigmoïde tangent (tansig)	3	fonction de transfert linéaire (purelin)	Conductivité (λ) [W/m K]	BFGS **: quasi Newton b** ***(trainbfg)***
RN3 (**gaz polyatomiques non polaires**)	M (g/mol) p_C *(bar)* T_b *(K)* T_c (K) *T (K)*	La Sigmoïde tangent (tansig)	8	fonction de transfert linéaire (purelin))	Conductivité (λ) [W/mK]	BFGS : **quasi-Newton (trainbfg)**

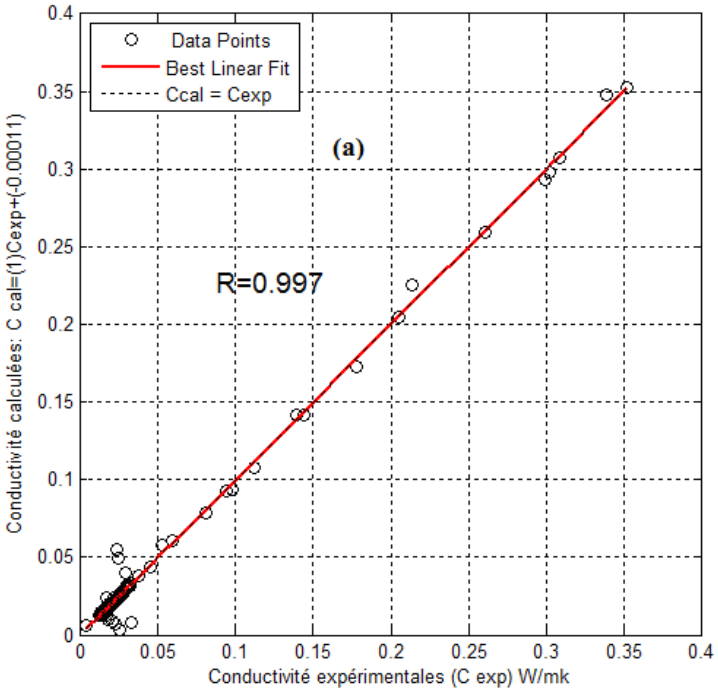
Selon la discussion précédente (chapitre III méthodologie de calcul), trois modèles de réseaux neurones ont été développés dans le but de prédire la conductivité des gaz. L'intrigue et les paramètres de la régression linéaire sont obtenus en utilisant la fonction MATLAB "***postreg***". Le pouvoir de prédiction d'un tel modèle peut être estimé par le coefficient de corrélation R où, une valeur de R supérieure à 0.5 est généralement considérée comme

satisfaisante cependant, une valeur supérieure à 0.9 est excellente (Golbraikh, Tropsha et al. 2002).

La figure IV.5 (a) montre une comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées de la conductivité thermique des gaz monoatomiques, Le coefficients de corrélation pour la phase totale est généralement considérés comme excellents dans la gamme ($0.90 \leq R \leq 1.00$) pour la phase totale, On remarque, d'après l'erreur et la valeur de R, que le premier modèle neuronal est performant.

La figure IV.5 (b) résume la capacité de généralisation du deuxième modèle neuronal "RN2" à travers le vecteur de régression linéaire [1, 0.00044, 0.988] et des points bien distribués sur la première bissectrice. On peut dire que ce modèle qui concerne les gaz polyatomiques polaires est parfaitement adapté au calcul de leurs conductivités thermiques.

Pour estimer la performance du troisième modèle neuronal obtenu « RN3 », les valeurs prédites de la conductivité des gaz polyatomiques non polaires par le modèle neuronal ont été comparées aux valeurs expérimentales de la conductivité des gaz polyatomiques non polaires, comme le montre la figure IV.5 (c) qui représente les courbes de la régression linéaire de ce troisième modèle neuronal avec un vecteur de régression acceptable
([α, β, R] = [1, 0.00059, 0.993] pour la phase totale". Le coefficient de corrélation est généralement considérés comme excellents ($0.90 \leqslant R \leqslant 1.00$) (Golbraikh and Tropsha 2002), ce qui implique une bonne robustesse de ce troisième modèle neuronal "RN3" établi la possibilité de la prédiction des différents paramètres qui caractérisent la conductivité.



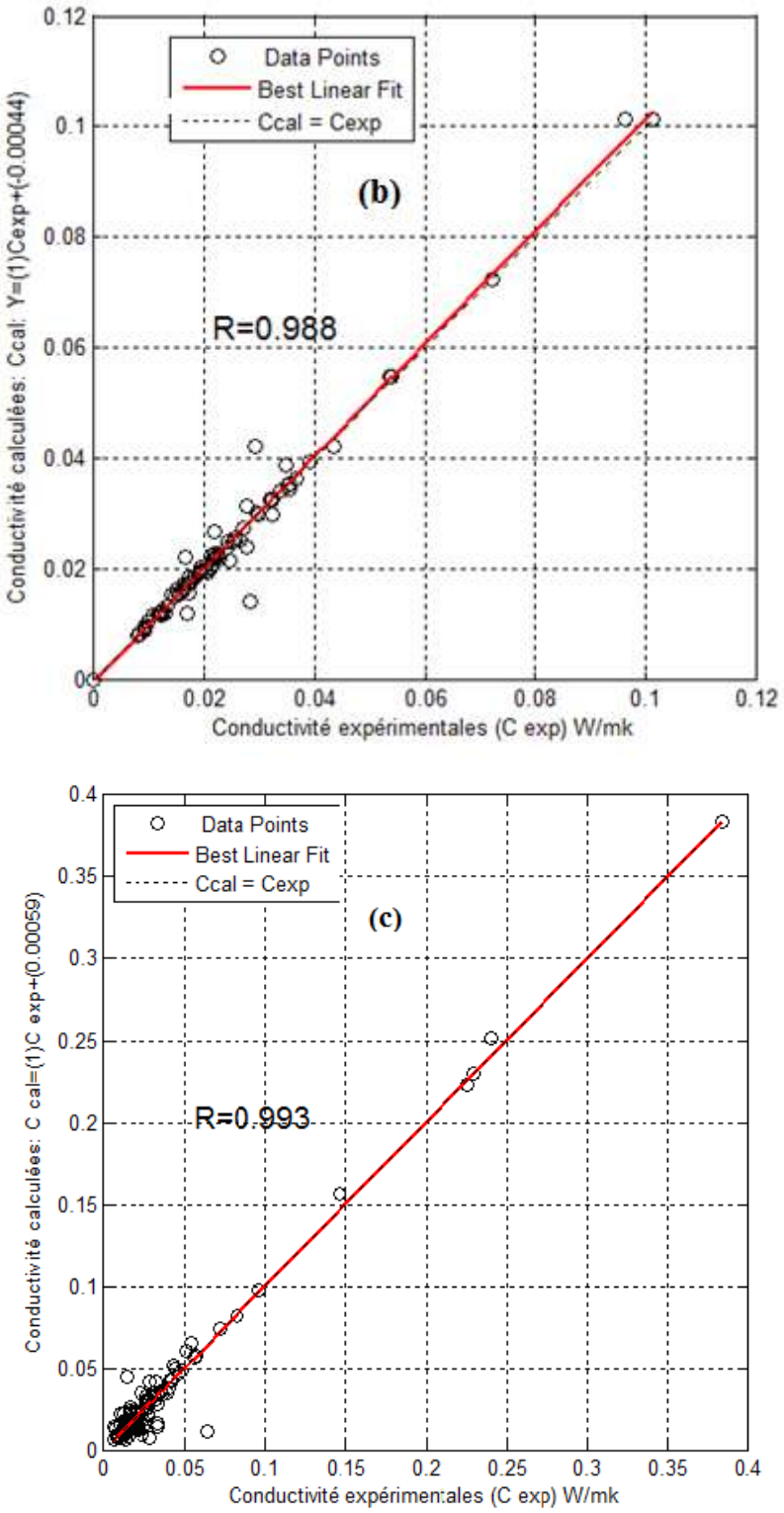


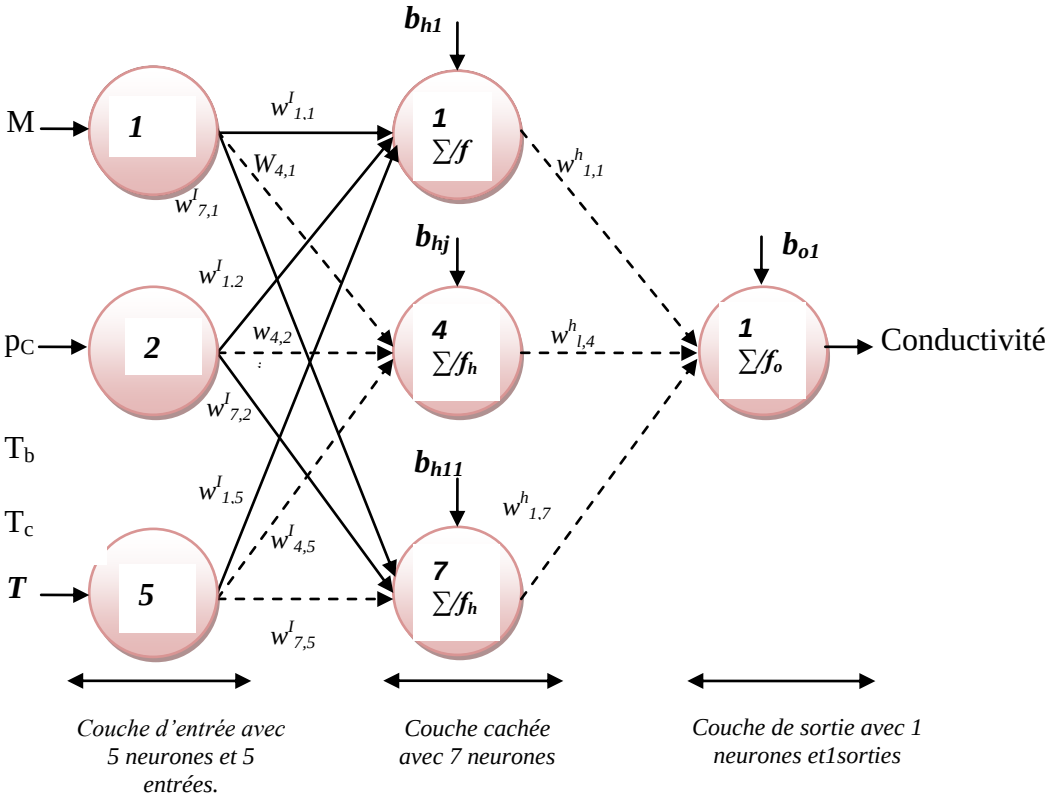
Figure. IV.5 : Comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées pour :

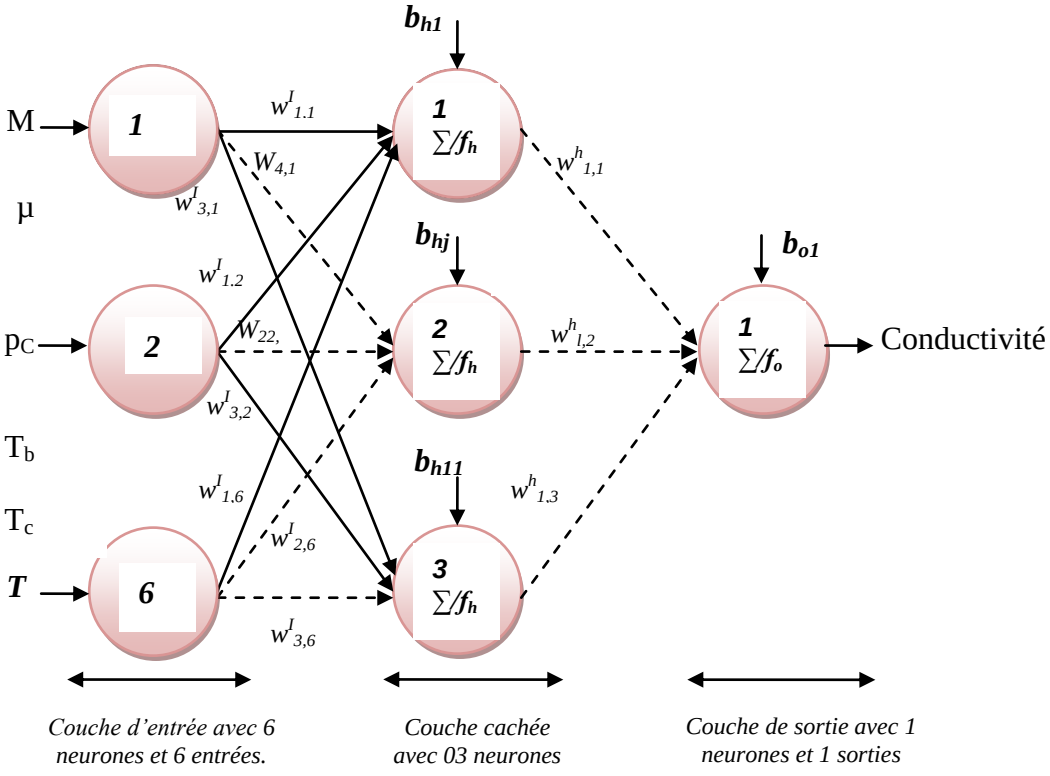
(a) **conductivité des gaz monoatomiques (**RN1),

(b) **conductivité des gaz polyatomiques polaires (**RN2),

(c) **conductivité des gaz polyatomiques non polaires** (RN3).

L'architecture des réseaux de neurones optimaux obtenus est donnée sur la figure IV.6.





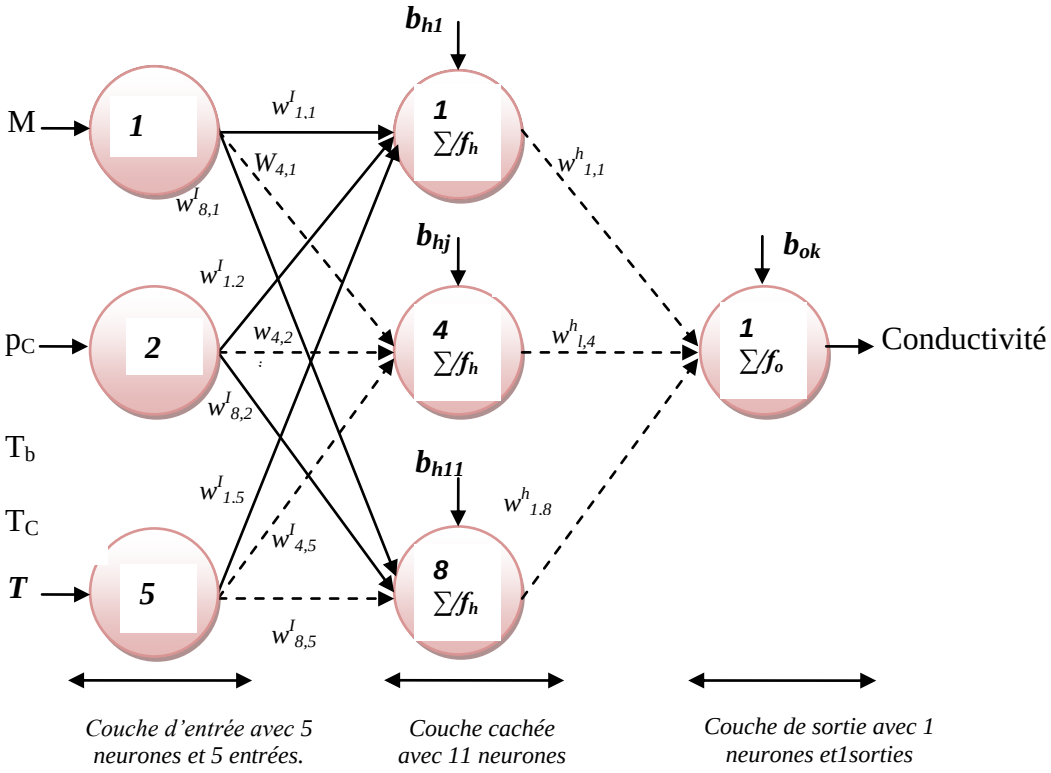


Figure IV.6 : Architecture finale du réseau de neurone optimal de type feedforward pour la prédiction de la conductivité ;

(a) **gaz monoatomiques (**RN1),

(b) **gaz polyatomiques polaires (**RN2),

(c) **gaz polyatomiques non polaires** (RN3).

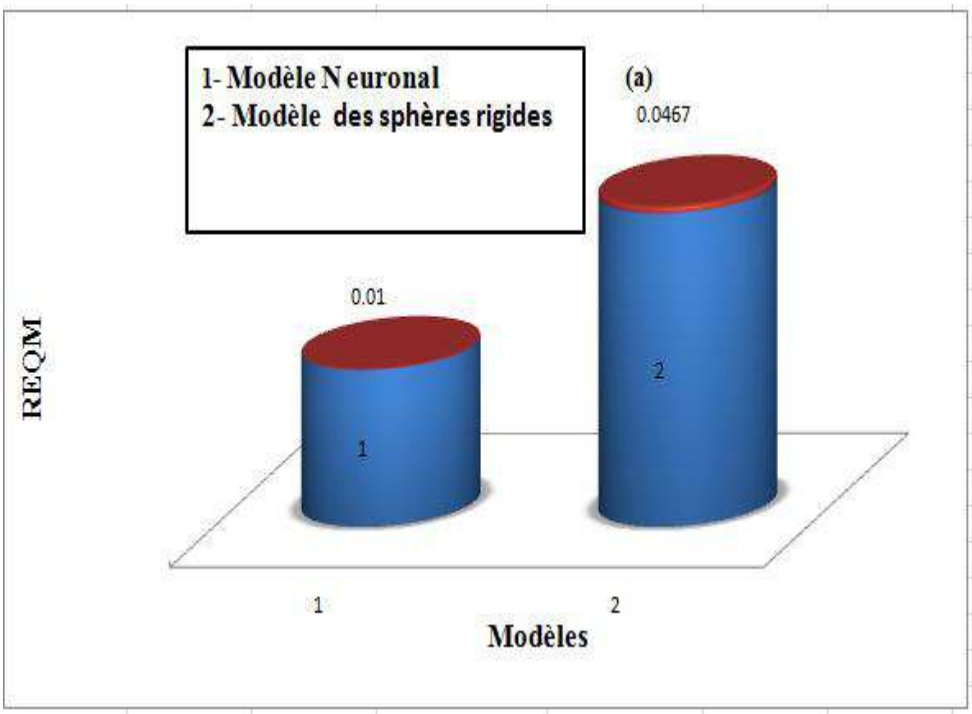
IV.3.2. Comparaison entre les réseaux neuronaux et les modèles empiriques

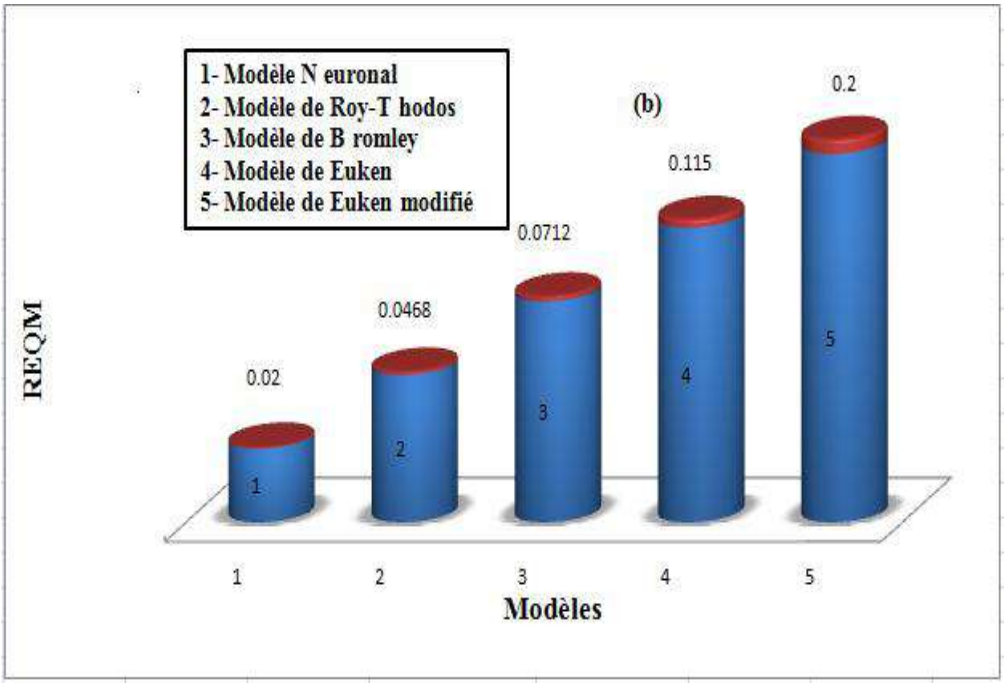
Dans ce travail un réseau neuronal a été développé pour prédire la conductivité de gaz polaire et non polaire à différentes températures, une base de données collectée à partir de la littérature de 338 points de données expérimentales.

Le rendement de chaque modèle a été évalué par (la racine carrée de l'erreur quadratique Moyenne (REQM)).

La figure IV.7 représente une comparaison entre le model neuronal proposé et divers modèles utilisés pour la prédiction de la conductivité thermique des gaz. Comme le montre l'histogramme, le modèle de réseau neural proposé est meilleur que les autres modèles. La racine carrée de l'erreur quadratique moyenne de la méthode RNA est de 0.01 pour les gaz

monoatomiques, de 0.02 pour les gaz polyatomiques polaires et de 0.01 pour les gaz polyatomiques non polaires.





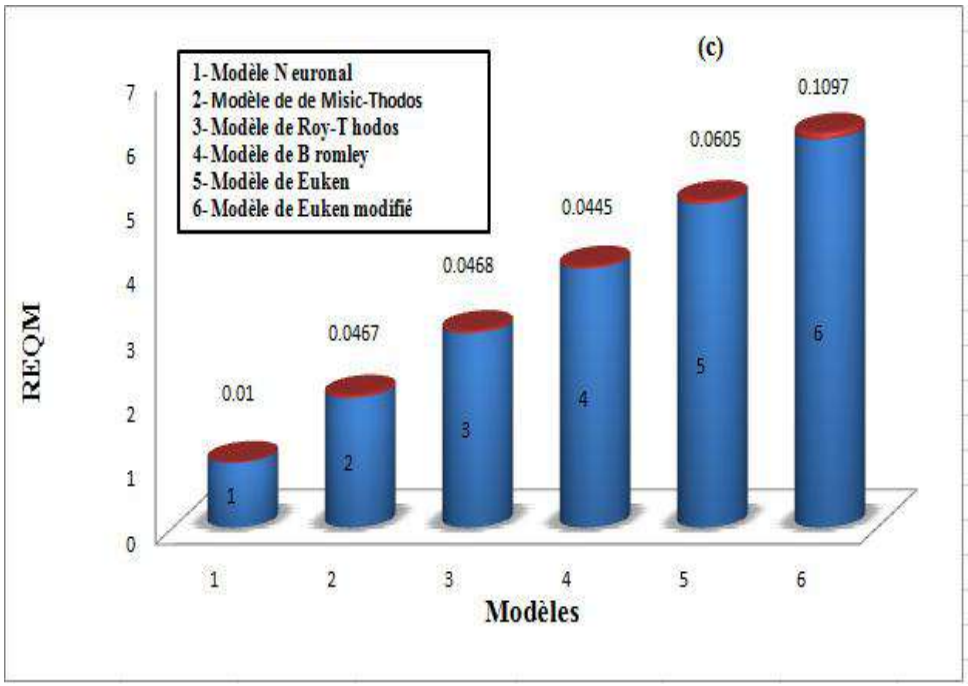


Figure IV.7 : Comparaison entre les modèles en termes de la racine de l'erreur quadratique moyenne:

(a) **gaz monoatomiques (**RN1),

(b) **gaz polyatomiques polaires (**RN2),

(c) **gaz polyatomiques non polaires** (RN3).

IV.3.3. Expressions mathématiques des modèles neuronaux optimisés

À partir du RN optimisé, représenté sur la figure IV.8, on peut exprimer l'assimilation de conductivité par un modèle mathématique y incorporant toutes les entrées E_i (M (g/mol), P_C (bar) T_b (K), T_c(K), T (K), μ(D)), comme suit :

Les sorties Z_j de la couche cachée :

$$Z_J = f_H\left[\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right] = \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)} \qquad \text{(IV.8)}$$

j=1, 2, …,7

La sortie " conductivité " :

$$\text{Conductivité des gaz monoatomiques (RN1)} = f_0\left[\sum_{i=1}^{7} W_{1j}^H Z_J + b_1^0\right] = \sum_{J=1}^{7} W_{1j}^H Z_J + b_1^0 \qquad \text{(IV.9)}$$

La combinaison des équations (VI.8) et (VI.9) mène à la formule mathématique suivante qui décrit l'assimilation de conductivité en prenant en compte toutes les entrées *Ei* (M(g/mol), p_C (bar), T_b (K), T_c(K) , T (K), μ(D)) :

$$\text{Conductivité } (RN1) = \sum_{J=1}^{7} W_{1j}^{H} \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)} + b_1^{0} \qquad \text{(IV.10)}$$

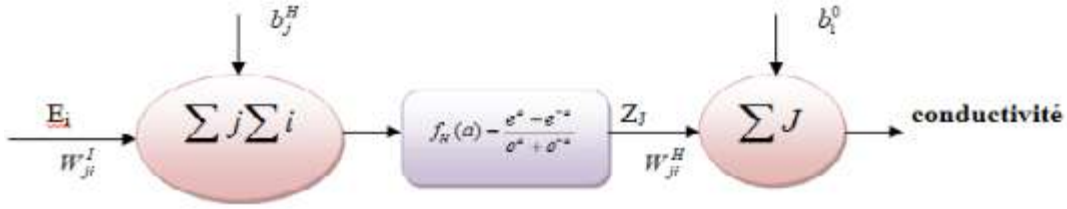


Figure IV.8: Représentation schématique du RN optimisé.

De même, la conductivité peut être exprimée par des équations mathématiques extraites des RN2 (**gaz polyatomiques polaires)**, RN3 (**gaz polyatomiques non polaires)** optimisées comme suit :

$$\text{Conductivité } (RN2) = \sum_{J=1}^{3} W_{1j}^{H} \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{6} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{6} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{6} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{6} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)} + b_1^{0} \qquad \text{(IV.11)}$$

$$\text{Conductivité } (RN3) = \sum_{J=1}^{8} W_{1j}^{H} \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{5} W_{ji}^{I} E_i + b_j^{H}\right)} + b_1^{0} \qquad \text{(IV.12)}$$

Ou W_{ji}^{I} représente le poids synaptique de la connexion du neurone *i* de la couche d'entrée au neurone *j* de la couche cachée (7 lignes x 4 colonnes pour RN1, 3 lignes x5 colonnes pour RN2 et 8 lignes x 4) colonnes pour RN3); W_{1j}^{H} représente le poids synaptique de la connexion du neurone *j* de la couche cachée au neurone de la couche de sortie (7 lignes x 1 colonnes pour RN1, 3 lignes x 1 colonnes pour RN2 et 8 lignes x 1 colonnes pour RN3); b_j^{H} représente les biais du neurone *j* de la couche cachée (7 lignes pour RN1,3 lignes pour RN2 et 8 lignes pour RN3) et b_1^{0} représente les biais du neurone *j* de la couche de sortie (1 ligne pour RN1, RN2 et RN3).

IV.4. Troisième contribution : le coefficient de diffusion

IV.4.1. Modèles RN

IV.4.1.1. Performances des modèles -RN

Dans cette étude, pour chaque base de données (BD1, BD2) les échantillons, ont été divisés aléatoirement en trois sous-ensembles : 70% pour la phase d'apprentissage, 15% pour

la phase de validation et 15% pour la phase de test. Le tableau IV.3 montre la structure des modèles RN optimisés.

Table IV.3 : Structure du réseau neuronal utilisé dans la modélisation de la diffusivité des gaz.

RN models	**variables d'entrées**	**Couche cachée**		**Couche sortie**		**Algorithme d'apprentissage**
		Fonction d'activation	**Nombre de neurone**	**Fonction d'activation**	**variable**	
RN1	$M(\mathrm{A})/\mathrm{g\,mol^{-1}}$ $M(\mathrm{B})/\mathrm{g\,mol^{-1}}$ $V_C^{(A)}/\mathrm{cm^3\,mol^{-1}}$ $V_C^{(B)}/\mathrm{cm^3\,mol^{-1}}$ $T_C^{(A)}/\mathrm{K}$ $T_C^{(B)}/\mathrm{K}$ μ (A)/D μ (B)/D T/K P/bar	La Sigmoïde tangente (tansig)	8	fonction de transfert linéaire (purelin)	coefficient de diffusion (D_{AB})/ $\mathrm{cm^2\,s^{-1}}$	BFGS : quasi-Newton (***trainbfg***)
RN2	$M(\mathrm{A})/\mathrm{g\,mol^{-1}}$ $M(\mathrm{B})/\mathrm{g\,mol^{-1}}$ $P_C^{(A)}/\mathrm{cm^3\,mol^{-1}}$ $P_C^{(B)}/\mathrm{cm^3\,mol^{-1}}$ $T_C^{(A)}/\mathrm{K}$ $T_C^{(B)}/\mathrm{K}$ μ (A)/D μ (B)/D T/K P/bar	La Sigmoïde tangente (tansig)	6	fonction de transfert linéaire (purelin)	coefficient de diffusion (D_{AB})/ $\mathrm{cm^2\,s^{-1}}$	BFGS : quasi-Newton (***trainbfg***)

Selon la discussion précédente (chapitre III méthodologie de calcul), deux modèles de réseaux neurones ont été développés dans le but de prédire le coefficient de diffusion des gaz. L'intrigue et les paramètres de la régression linéaire sont obtenus en utilisant la fonction MATLAB "***postreg***". Le pouvoir de prédiction d'un tel modèle peut être estimé par le coefficient de corrélation *R* où, une valeur de *R* supérieure à 0.5 est généralement considérée comme satisfaisante alors qu' une valeur supérieure à 0.9 est excellente (Golbraikh, Tropsha et al. 2002).

La Figure IV. 9 (a) montre une comparaison entre les valeurs de coefficients de diffusions calculées par le premier modèle neuronal « RN1 » optimisé avec les valeurs de coefficients de diffusions expérimentales avec un vecteur de régression acceptable [α (pente), β (ordonnée à l'origine), R (coefficient de corrélation)] = [0,968, 0,03, 0,98]. Les coefficients de corrélation pour la phase totale sont généralement considérés comme excellents dans la gamme ($0.90 \leq R \leq 1.00$) (Golbraikh and Tropsha 2002). Le coefficient de corrélation de RN1 développé était R=0,968 avec l'intervalle de confiance IC95%=0,005 qui indique une bonne robustesse du premier modèle neuronal « RN1 » établi et la possibilité de la prédiction des coefficients de diffusion des gaz à partir des différents paramètres.

Pour estimer la performance du deuxième modèle neuronal obtenu « RN2 », les valeurs prédites du coefficient de diffusion par le modèle RN2 ont été comparées et reportées aux valeurs expérimentales du coefficient de diffusion pour la phase totale comme le montre la figure IV.9 (b) qui représente les courbes de la régression linéaire du deuxième modèle neuronal avec un vecteur de régression acceptable [α (pente), β (ordonnée à l'origine), R (coefficient de corrélation)] = [0.97, 0.01, 0.984]. Le coefficient de corrélation du modèle RN2 était excellent (R=0,9845) avec un intervalle de confiance IC95%=0,0482. Les résultats obtenus montrent que le deuxième modèle neuronal a une puissance prédictive acceptable pour estimer le coefficient de diffusion des gaz malgré le changement effectué dans les entrées.

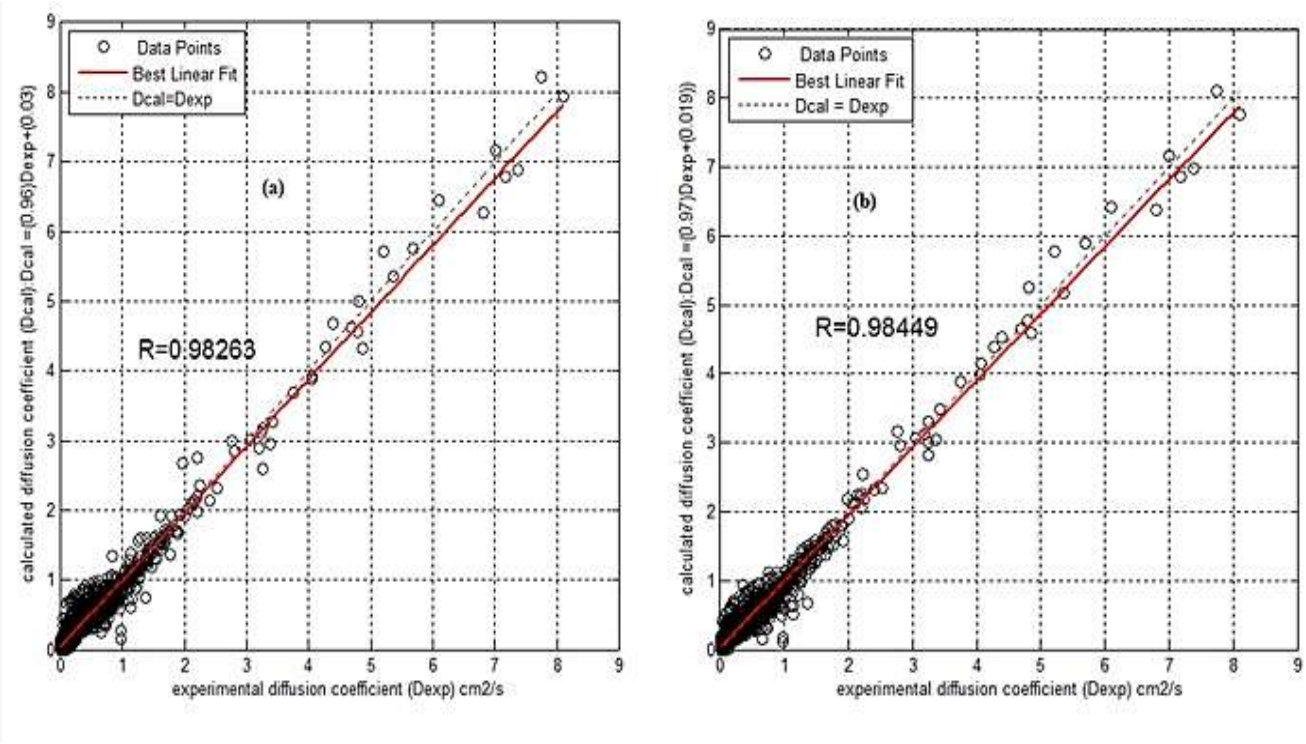


Fig. IV.9 : Comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées pour l'ensemble des données : (a) RN1 **(T, T_c , V_c , M, μ , P)** , (b) RN2 **(T, T_c , P_c , M, μ , P)**.

L'architecture des réseaux de neurones optimaux obtenus est donnée sur la figure IV.10.

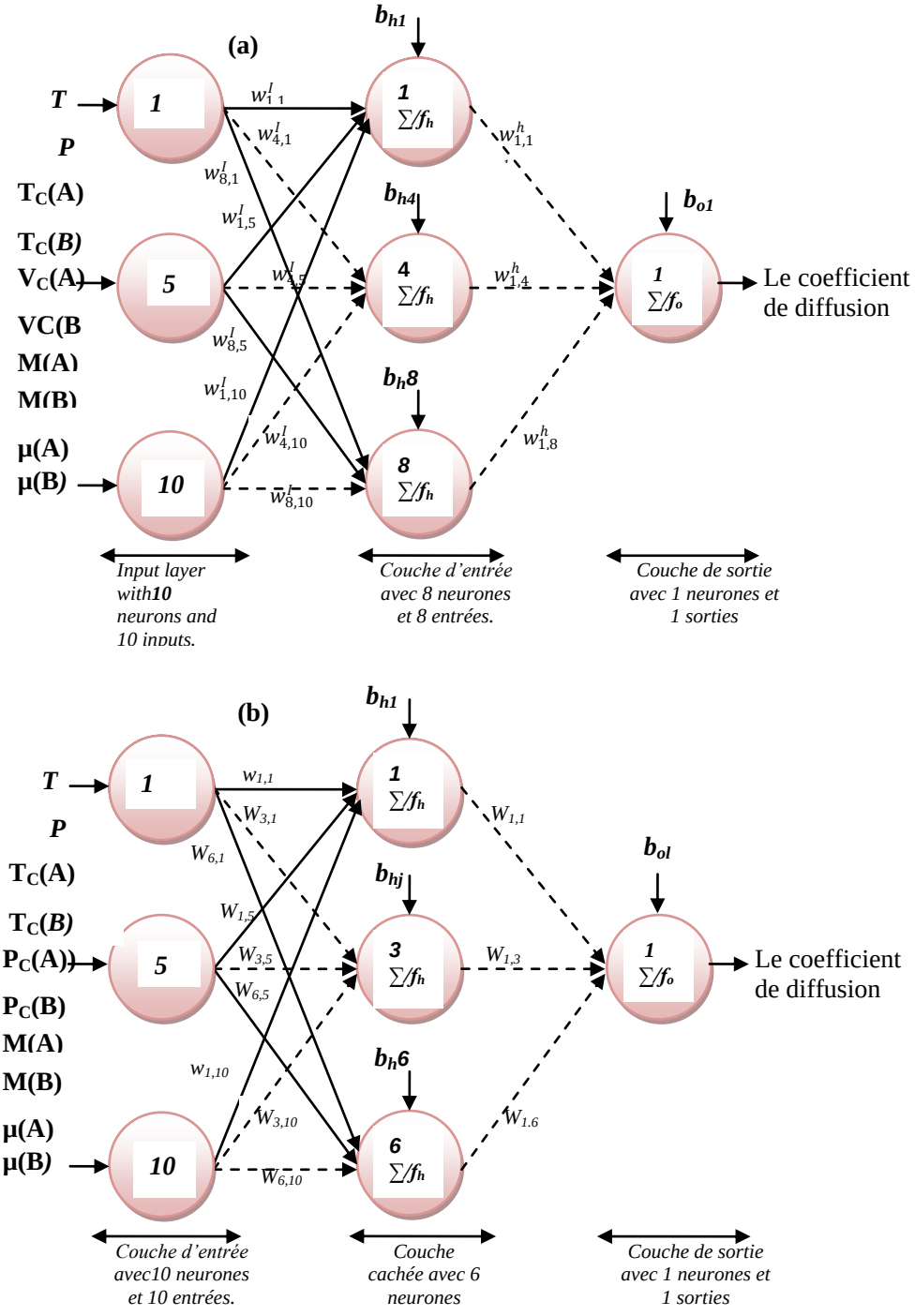


Figure IV.10 : Architecture finale du réseau de neurone optimal de type feedforward pour la prédiction de coefficient de diffusion des gazes binaires :

(**a**) RN1 **(T, T_c , V_c , M, μ , P)** , (**b**) RN2 **(T, T_c , P_c , M, μ , P)**.

IV.4.1.2. Régressions linéaires multiples

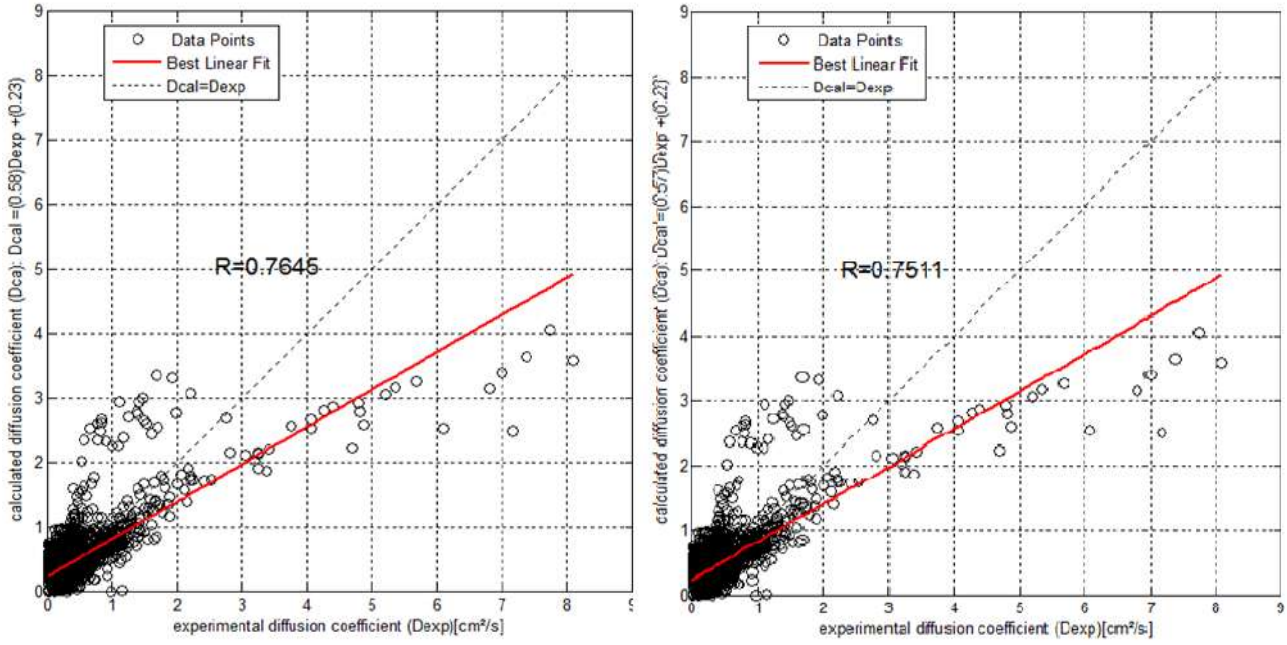
Les modèles obtenus pour la prédiction du coefficient de diffusion sont des modèles linéaires (Eqs. (IV.14) et (IV.15)) :

$$RLM1 = -0.229 + 0.0038T + 4.05\cdot10^{-4}P - 8.179\cdot10^{-4}T_C^{(A)} - 0.002T_C^{(B)} - 5.44\cdot10^{-4}V_C^{(A)} + 7.8\cdot10^{-5}V_C^{(B)} - 8.49\cdot10^{4}M(A) + 5.51\cdot10^{4}M(B) + 0.03\mu(A) + 0.117\mu(B) \quad \text{(IV.13)}$$

$$RLM2 = 0.214 + 0.003T + 7.484\cdot10^{-4}P - 9.1555\cdot10^{-4}T_C^{(A)} - 0.0014T_C^{(B)} - 2.456\cdot10^{-4}P_C^{(A)} - 0.001P_C^{(B)} - -0.001M(A) + 2.655\cdot10^{-4}M(B) + 0.0405\mu(A) + 0.106\mu(B) \quad \text{(IV.14)}$$

La figure IV.11 (a) montre les courbes de régression linéaire du modèle RLM1 par la comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées pour le premier modèle MLR. Le vecteur de régression linéaire, [α (pente), β (ordonnée à l'origine), R (coefficient de corrélation)] = [0,76, 0,26, 0,58] de la phase totale. Les résultats obtenus montrent que le modèle RLM1 a une mauvaise puissance prédictive pour estimer le coefficient de diffusion des gaz.

La figure. IV.11(b) montre les courbes de régression linéaire des coefficients de diffusion calculés par le modèle RLM2 avec les coefficients de diffusion expérimentaux avec le vecteur de régression linéaire [α, β, R] = [0.5004, 37.4867, 0.7038] de la phase totale. Le coefficient de corrélation de RLM2 était de 0,7511 avec un intervalle de confiance égal à CI95%=0,0717. De même, pour RLM1, les résultats ont indiqué que le modèle RLM2 est inapproprié pour la prédiction du coefficient de diffusion des gaz.



(a) **(b)**

Fig. IV.11 : Comparaison entre les valeurs expérimentales et calculées pour l'ensemble des données : (**a**) RLM1 **(T, T_c , V_c , M, μ , P)** , (**b**) RLM2 **(T, T_c , P_c , M, μ , P)**.

IV.4.2. Comparaison

IV.4.2.1. Comparaison entre les réseaux neuronaux et les régressions linéaires multiples

La comparaison entre les modèles de régression linéaire multiples (RLM) et le réseau neuronal artificiel (RN) a été estimée en fonction d'erreur quadratique moyenne (EQM), de la racine carrée de l'erreur quadratique moyenne (REQM), et le coefficient de validité externe Q^2_{ext} et en matière de coefficient de corrélation (R), pour l'ensemble des données.

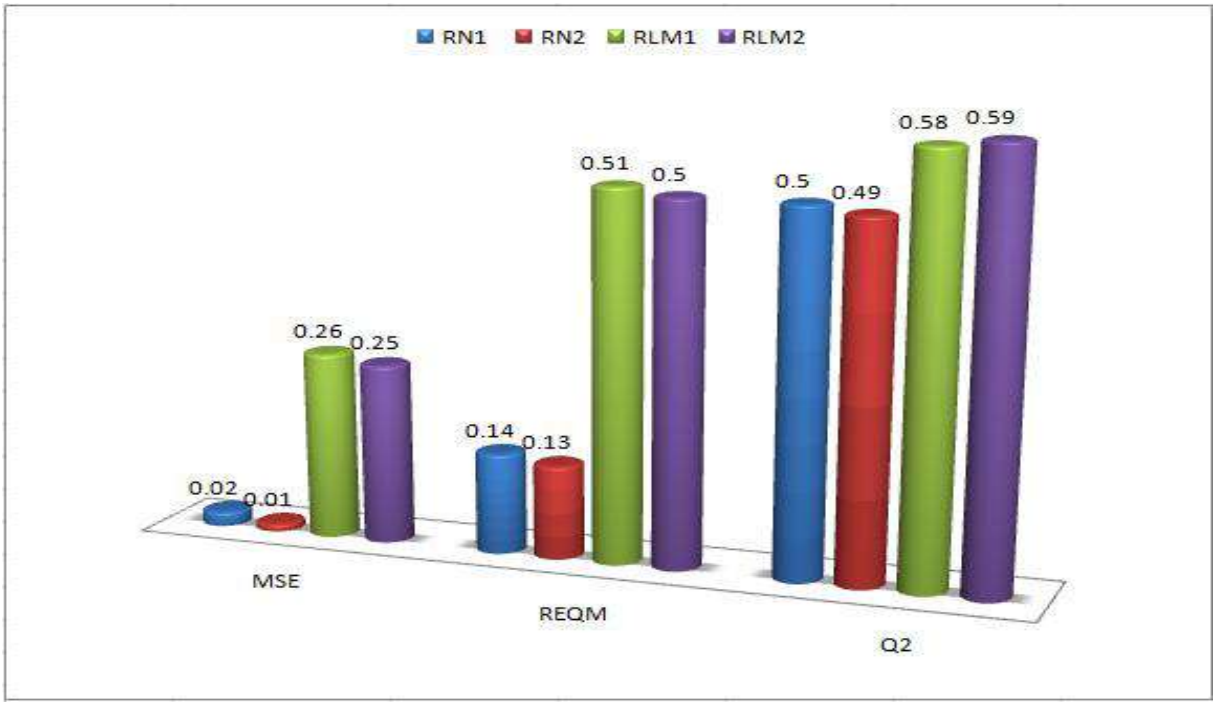


Fig. IV.12 : Comparaison entre les réseaux neuronaux et les modèles de régression linéaire multiple.

Comme le montre la figure III.12, les modèles RN élaborés dans le cadre de ce travail ont donné des erreurs moins importantes que les modèles MLR. Les erreurs quadratiques moyennes pour l'ensemble de données total étaient de 0,02 pour RN1, de 0,01 pour RN2, les racines carrées de l'erreur quadratique moyenne étaient de 0,14 pour RN1, de 0,13 pour RN2 et du coefficient de validation externe de 0,50 pour RN1, de 0,49 pour RN2. Les erreurs quadratiques moyennes pour l'ensemble de données total étaient de 0,26 pour RLM1 et de 0,25 pour RLM2, les racines carrées des erreurs quadratiques moyennes fondamentales étaient de 0,5172 pour RLM1 et de 0,5 pour RLM2 et le coefficient de validation externe était de 0,58 pour RLM1 et de 0,59 pour RLM2. Les résultats de cette comparaison ont montré la supériorité des modèles RN.

IV.4.2.2. Comparaison entre les réseaux neuronaux et les modèles empiriques

Pour comparer les modèles de réseau neuronal développés dans ce travail avec d'autres modèles, Il convient d'estimer la diffusivité de nombreux éléments de l'ensemble de données en utilisant les modèles de réseaux développés ainsi que cinq corrélations différentes proposées par Chapman-Enskog, Gilliland, Arnold, Hirschfelder, Bird et Spotz (HBS), Chen et Othmer, et Huang.

Le tableau IV.4 montre une comparaison entre les modèles théoriques et le modèle neuronal pour les coefficients de diffusions des gaz en termes d'erreurs quadratiques moyennes (EQM), de la racine carrée de l'erreur quadratique moyenne (REQM), du coefficient de validation externe (Q^2_{ext}) et du coefficient de corrélation (R). Comme le montre le tableau IV.4, il est clair que la bonne performance des modèles développés par RN modélise à la fois un coefficient de corrélation (R) plus élevé et leurs erreurs quadratiques moyennes (EQM) plus faibles, une racine carrée d'erreur quadratique moyenne (REQM) plus faible et un coefficient de validation externe ($Q2_{ext}$) plus faible que les modèles précédents présentés dans la documentation. Ceci confirme la solidité et la précision des modèles RN pour la prédiction du coefficient de diffusion.

Tableau IV.4 : Comparaison des modèles RNA optimisés avec les modèles de la littérature.

Models	α	β	*R*	EQM/ $cm^2\,s^{-1}$	REQM /$cm^2\,s^{-1}$	Q^2_{ext}
RN1 (T, Tc , Vc , M, μ , P)	0.968	0.03	0.98	0.02	0.14	0.50
RN2 (T, Tc , Pc , M, μ , P)	0.97	0.01	0.984	0.01	0.13	0.49
Wilke et Lee (1955)	0.712	0.101	0.95	0.09	0.30	0.89
Chapman-Enskog (1977)	0.734	0.101	0.95	0.07	0.282	0.9
Gilliland (1934)	0.455	0.112	0.95	0.24	0.496	0.70
HBS (1949)	0.427	0.117	0.74	0.352	0.59	0.58
Chen et Othmer(1962)	0.001	$9.14 \cdot 10^{-4}$	0.74	$3.27 \cdot 10^{4}$	181.01	0.95

IV.4.3. Expressions mathématiques des modèles neuronaux optimisés

À partir du RN optimisé, représenté sur la figure IV.13, on peut exprimer l'assimilation de coefficient de diffusion par un modèle mathématique y incorporant toutes les entrées E_i ((M(g/mol), P_C (bar), T_c (K), T (K), P(bar), μ(D),V_c ($cm^3\ mol^{-1}$)), comme suit :

Les sorties Z_j de la couche cachée :

$$Z_J = f_H\left[\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right] = \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)} \quad \text{(IV.15)}$$

j=1, 2, …,8

La sortie " coefficient de diffusion" :

$$\text{Coefficient de diffusion (RN1)} = f_0\left[\sum_{i=1}^{8} W_{1j}^H Z_J + b_1^0\right] = \sum_{J=1}^{8} W_{1j}^H Z_J + b_1^0 \quad \text{(IV.16)}$$

La combinaison des équations (VI.15) et (VI.16) mène à la formule mathématique suivante qui décrit l'assimilation de coefficient de diffusion en prenant en compte toutes les entrées *Ei* ((M(g/mol), P_C (bar), T_c (K), T (K), P(bar), μ(D),V_c (cm^3 mol^{-1})) :

$$\text{Coefficient de diffusion } (RN1) = \sum_{J=1}^{8} W_{1j}^H \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)} + b \quad \text{(IV.17)}$$

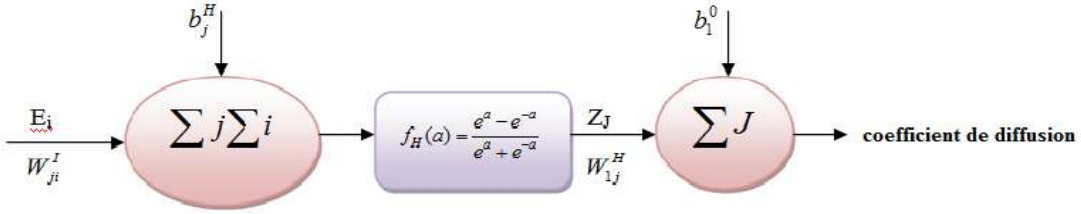


Figure IV.13: Représentation schématique du RN optimisé.

De même, le coefficient de diffusion peut être exprimé par des équations mathématiques extraites des RN2 optimisées comme suit :

$$\text{Coefficient de diffusion } (RN2) = \sum_{J=1}^{6} W_{1j}^H \frac{\exp\left(\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) - \exp\left(-\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)}{\exp\left(\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right) + \exp\left(-\sum_{i=1}^{10} W_{ji}^I E_i + b_j^H\right)} + b_1^0 \quad \text{(IV.18)}$$

Ou W_{ji}^I représente le poids synaptique de la connexion du neurone *i* de la couche d'entrée au neurone *j* de la couche cachée (8 lignes x 10 colonnes pour RN1, 6 lignes x 10 colonnes pour RN2); W_{1j}^H représente le poids synaptique de la connexion du neurone *j* de la couche cachée au neurone de la couche de sortie (8 lignes x 1 colonnes pour RN1, 6 lignes x 1 colonnes pour RN2); b_j^H représente les biais du neurone *j* de la couche cachée (8 lignes pour RN1,6 lignes pour RN2) et b_1^0 représente les biais du neurone *j* de la couche de sortie (1 ligne pour RN1 et RN2).

IV.5. Conclusion

Les tests effectués, en phase de généralisation, sur les modèles neuronaux conçus ont permis de mettre en évidence une très bonne concordance entre leurs résultats et ceux fournis par les exemples expérimentaux et/ou théoriques.

Les erreurs commises restent très acceptables. Les études comparatives effectuées entre ces derniers et les modèles proposés dans la littérature ont également témoigné de leurs efficacités et de leurs performances.

Suite à ces résultats, nous pouvons présenter ces modèles neuronaux comme des outils fiables et performants pour le calcul des propriétés de transport des gaz (viscosité, conductivité thermique et diffusivité), pour un intervalle de température assez large.

CONCLUSION GENERALE

Cette thèse traite la modélisation des propriétés de transport par la méthode des réseaux de neurones artificiels qui fait partie de nouvelles techniques sous l'égide de l'intelligence computationnelle ou des sciences cognitives.

Notre première contribution est portée sur l'utilisation des réseaux de neurones pour la modélisation de la viscosité à partir de variables facilement mesurables. Pour cela, un ensemble de 243 gaz dont 122 gaz polaires et 121 gaz non polaires a été utilisé, et une bonne corrélation a été trouvée (R =0,992 pour les gaz non polaires, R=0,991 pour les gaz polaires). Les racines des erreurs quadratiques moyennes pour la base de données totales étaient (0.02 pour les gaz non polaires, 0.01 pour les gaz polaires). Par ailleurs, la comparaison entre les modèles neuronaux optimisés et les modèles théoriques a démontré l'efficacité des modèles neuronaux. En plus de l'excellente corrélation des données expérimentales, les deux modèles neuronaux utilisés ont montré une bonne capacité prédictive d'interpolation.

Notre deuxième contribution est consacrée sur la prédiction de la conductivité thermique des gaz par les réseaux de neurones artificiels. Pour cela, un ensemble de 338 points de données expérimentales pour la conductivité thermique des gaz polyatomiques et monoatomiques a été utilisé. La meilleure architecture du réseau obtenue se compose d'une couche cachée avec 7 neurones de RN1, 3 neurones de RN2 et 8 neurones de RN3. Les résultats de cette évaluation indiquent que le modèle RNA mis au point est capable de prédire la conductivité thermique des gaz avec une corrélation considérable ; (R = 0,997 et REQM= 0.02 pour les gaz pour les gaz monoatomiques), (R = 0,988 et REQM = 0.02) pour les gaz pour les gaz polyatomiques polaires), (R =0,993 et REQM = 0.01 pour les gaz polyatomiques non polaires).

Notre troisième contribution était de mettre au point deux modèles de réseaux neuronaux artificiels (RNA) et deux modèles de régressions linéaires multiples (MLR) afin de prédire le coefficient de diffusion moléculaire de 1252 gaz binaires. Une bonne concordance a été observée entre les valeurs expérimentales et les valeurs prédites pour chaque modèle neuronal (les racines des erreurs quadratiques moyennes dans la base de données totales étaient de 0,1400 pour RN1 et de 0,1300 pour RN2).

D'autre part, Un modèle MLR a été développé pour la prédiction du coefficient de diffusion, ce modèle a montré une mauvaise correspondance avec les valeurs expérimentales (les erreurs quadratiques moyennes dans les bases de données totales étaient de 0,5172 pour

MLR1 et de 0,5000 pour MLR2), elle était moins précise avec des erreurs plus élevées par rapport aux modèles RNA. De plus, les modèles RNA mis au point dans le cadre de ce travail présentaient moins d'erreurs que les autres modèles présentés précédemment dans la littérature.

À la lumière des résultats obtenus, on peut tirer les conclusions suivantes :

- Les réseaux de neurones fonctionnent comme une boîte noire et les paramètres du réseau (poids et biais) n'ont pas de signification physique;
- Les réseaux de neurones sont des outils statistiques, qui permettent d'ajuster des fonctions non linéaires très générales à des ensembles de points comme toute méthode statistique;
- La modélisation par réseau de neurones est une méthode qui est basée seulement sur des données expérimentales et/ou semi-expérimentales (déduites des modèles analytiques empiriques, numériques, …), donc la qualité et la quantité de données décident de l'exactitude et la robustesse du modèle ;
- Les réseaux de neurones sont des méthodes robustes et performantes même en présence de peu de données expérimentales à condition que ces dernières soient statistiquement bien réparties dans le domaine d'entrée du modèle neuronal, ce qui est le cas avec le plan composite centré.
- Les formules mathématiques extraites des modèles neuronaux peuvent trouver des applications intéressantes pour la prédiction et la traçabilité des propriétés de transport (viscosité, conductivité et diffusion moléculaire).
- La régression linéaire multiple est déconseillée pour la modélisation de ces coefficients.

En perspective, tout en estimant avoir atteint notre objectif tracé pour cette étude, il serait souhaitable d'essayer de concevoir un seul modèle neuronal, à trois sorties, capable de calculer à la fois les 3 propriétés de transport (viscosité, conductivité thermique et diffusivité) à n'importe quelle température et à n'importe quelle pression. Et aussi d'essayer de savoir utiliser d'autre méthode d'une intelligence artificielle.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Abdelkader, B., K. Djillali et R. Fayçal (2013). "Thermal Conductivity Calculation at Moderate Pressure for Polyatomic Gases Using a Neural Network Approach". International Journal of Engineering and Advanced Technology. 2(3): 2249 – 8958.

AlQuraishi, A. A. et E. M. Shokir (2011). "Artificial neural networks modeling for hydrocarbon gas viscosity and density estimation". Journal of King Saud University-Engineering Sciences. 23(2): 123-129.

Ammi,Y.(2016). " Modelisation des phenomenes de transport lors d'osmose inverse". Thèse de doctorat. Université de Médéa. Médéa. Algérie.

Beale, M. H., M. T. Hagan et H. B. Demuth (2010). "Neural network toolbox". User's Guide, MathWorks. 2: 77-81.

Benahmed, N. (2002). "Optimisation de réseaux de neurones pour la reconnaissance de chiffres manuscrits isolés: Sélection et pondération des primitives par algorithmes génétiques". École de technologie supérieure.

Bird, R. B., W. E. Stewart et E. N. Lightfoot (1960). "Transport Phenomena John Wiley & Sons". New York 413.

Boardman, L. et N. Wild (1937). "The diffusion of pairs of gases with molecules of equal mass". Proceedings of the Royal Society of London. Series A-Mathematical and Physical Sciences. 162(911): 511-520.

Bouzidi, A. (2006). "Methode des réseaux de neurones pour le calcul des coefficients pertinents des phénomenes de transport: viscosité, conductivité et diffusion moléculaire des gaz". Thèse de magistère. Université de Médéa. Médéa. Algérie.

Brokaw, R. S. (1969). "Predicting transport properties of dilute gases". Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development. 8(2): 240-253.

Bromley, L. A. (1952). "Thermal Conductivity of Gases at Moderate Pressures". United States Atomic Energy Commission, Technical Information Service.

Changeux, J.-P. (1991). "L'homme neuronal (1983) ". Collection: Le temps des Sciences, Paris, Fayard.

Dreyfus, G., J.-M. Martinez, M. **Samuelides, M. B. Gordon, F. Badran, S. Thiria et L. Hérault (2002)**. "Réseaux de neurones-Méthodologie et applications". Eyrolles.

Dupuis, d. (2008). "Mesure de la viscosité-Principes généraux".

Edminister, W. (1968). "Applied hydrocarbon thermodynamics. Part 32-compressibility factors and fugacity coefficients from the Redlich-Kwong equation of state". Hydrocarbon Process. 47: 239-244.

Eslamloueyan, R. et M. Khademi (2010). "A neural network-based method for estimation of binary gas diffusivity". Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems. 104(2): 195-204.

Flynn, L. W. et G. Thodos (1962). "Lennard-Jones force constants from viscosity data: Their relationship to critical properties". AIChE Journal. 8(3): 362-365.

Fokin, L., A. Kalashnikov et A. Zolotukhina (2011). "Transport properties of mixtures of rarefied gases. Hydrogen–methane system". Journal of Engineering Physics and Thermophysics. 84(6): 1408-1420.

Gavril, D., K. R. Atta et G. Karaiskakis (2004). "Determination of collision cross-sectional parameters from experimentally measured gas diffusion coefficients". Fluid Phase Equilibria. 218(2): 177-188.

Giddings, J. C. et S. L. Seager (1960). "Rapid determination of gaseous diffusion coefficients by means of gas chromatography apparatus". The Journal of Chemical Physics. 33(5): 1579-1580.

Gilliland, E. (1934). "Diffusion coefficients in gaseous systems". Industrial & Engineering Chemistry. 26(6): 681-685.

Golbraikh, A. et A. Tropsha (2002). "Beware of q2!". Journal of molecular graphics and modelling. 20(4): 269-276.

Golub′ev, I. j. F. (1970). "Viscosity of gases and gas mixtures: A handbook, Israel Program for Scientific Translations". [available from the US Department].

Gosse, J. (1991). "Propriétés de transport des gaz à pression modérée. Viscosité, conductivité thermique, coefficient de diffusion". Techniques de l'ingénieur. Constantes physico-chimiques. 3(K425): K425. 421-K425. 418.

Grushka, E. et V. Maynard (1972). "Measurements of gaseous diffusion coefficients by gas chromatography". Journal of Chemical Education. 49(8): 565.

Hagan, M. T., H. B. Demuth et M. Beale (1997). "Neural network design". PWS Publishing Co.

Hirschefelder, J., C. F. Curtiss et R. B. Bird (1954). "Molecular theory of gases and liquids". New York.

Hirschfelder, J. O., R. B. Bird et E. L. Spotz (1949). "The Transport Properties of Gases and Gaseous Mixtures. II". Chemical Reviews. 44(1): 205-231.

Hirschfelder, J. O., C. F. Curtiss, R. B. Bird et M. G. Mayer (1964). "Molecular theory of gases and liquids". Wiley New York.

Huang, T.-C., F. J. Yang, C.-J. Huang et C.-H. Kuo (1972). "Measurements of diffusion coefficients by the method of gas chromatography". Journal of Chromatography A. 70(1): 13-24.

Jack, L. et A. Nandi (2000). "Genetic algorithms for feature selection in machine condition monitoring with vibration signals". IEE Proceedings-Vision, Image and Signal Processing. 147(3): 205-212.

Jamnongwong, M. (2010). "Transfert de matière gaz/liquide en milieux complexes". Toulouse, INSA.

Karaiskakis, G. et D. Gavril (2004). "Determination of diffusion coefficients by gas chromatography". Journal of Chromatography A. 1037(1-2): 147-189.

Katsanos, N. et G. Karaiskakis (1982). "Measurement of diffusion coefficients by reversed-flow gas chromatography instrumentation". Journal of Chromatography A. 237(1): 1-14.

Khaouane, L. (2013). "Etude et modélisation de la biosynthèse des antibiotiques à partir de différentes souches productrices-cas de pleuromutiline". Thèse de doctorat. Université de Médéa, Algeria.

Knox, J. et L. McLaren (1963). "The Spreading of Air Peaks in Capillary and Packed Gas Chromatographic Columns". Analytical Chemistry. 35(4): 449-454.

Laurent, M. et P.-L. Vuillermoz (1993). "Conductivité thermique des solides". Techniques de l'ingénieur". K420.

Le Neindre, B. (1991). "Effets des hautes et très hautes pressions".Ed. Techniques Ingénieur.

Le Neindre, B. (1996). "Mesure de la conductivité thermique des liquides et des gaz". Techniques de l'ingénieur. Mesures et contrôle. (R2920): R2920. 2921-R2920. 2921.

Le Neindre, B. (1998). "Conductivité thermique des liquides et des gaz". Ed. Techniques Ingénieur.

Le Neindre, B. (2004). "Viscosité. Définitions et dispositifs de mesure". Techniques de l'ingénieur. Constantes physico-chimiques. 3(K478): K478. 471-K478. 412.

Lee, B. I. et M. G. Kesler (1975). "A generalized thermodynamic correlation based on three-parameter corresponding states". AIChE Journal. 21(3): 510-527.

Liner, J. et S. Weissman (1972). "Determination of the temperature dependence of gaseous diffusion coefficients using gas chromatographic apparatus". The Journal of Chemical Physics. 56(5): 2288-2290.

Lippmann, R. (1987). "An introduction to computing with neural nets". IEEE Assp magazine. 4(2): 4-22.

Lu, W., H. Guo, I.-M. Chou, R. Burruss et L. Li (2013). "Determination of diffusion coefficients of carbon dioxide in water between 268 and 473 K in a high-pressure capillary optical cell with in situ Raman spectroscopic measurements". Geochimica et Cosmochimica Acta. 115: 183-204.

Marrero, T. R. et E. A. Mason (1972). "Gaseous diffusion coefficients". Journal of Physical and Chemical Reference Data. 1(1): 3-118.

Medard, L. (1976). "Encyclopedie des gaz". Amsterdam: Elsevier.

Medjili, F. (2010). "Modélisation par Réseaux de Neurones Artificiels (RNA) et commande Prédictive non linéaire d'une station de production d'eau froide". Université Badji Mokhtar de Annaba.

Meyer, N. g. (2017). "Simulation numérique de la viscosité de liquides: effets des paramètres d'interaction, de la température et de la pression sous conditions ambiantes et extrêmes".

Misic, D. et G. Thodos (1961). "The thermal conductivity of hydrocarbon gases at normal pressures". AIChE Journal. 7(2): 264-267.

Monchick, L. et E. Mason (1961). "Transport properties of polar gases". The Journal of Chemical Physics .35(5): 1676-1697.

Othmer, D. et H. Chen (1962). "Correlating diffusion coefficients in binary gas systems. Use of viscosities in a new equation and nomogram". Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development. 1(4): 249-254.

Perry, R. H. (1954). "Chemical engineers' handbook".

Poling, B. E., J. M. Prausnitz et J. P. O'connell (2001). "The properties of gases and liquids". Mcgraw-hill New York.

Poulard, H. (1996). "Statistiques et réseaux de neurones pour un système de diagnostic: application au diagnostic de pannes automobiles".

Reichenberg, D. (1975). "The viscosities of pure gases at high pressures, National Physical Laboratory, Division of Chemical Standards".

Reid, R. C., J. M. Prausnitz et B. E. Poling (1987). "The properties of gases and liquids".

Reid, R. C., J. M. Prausnitz et T. K. Sherwood (1977). "The Properties of Liquids and Gases". (Stichworte Teil 2), McGraw-Hill.

Roy, D. et G. Thodos (1970). "Thermal conductivity of gases. Organic compounds at atmospheric pressure". Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals. 9(1): 71-79.

Santos, T., D. Mendes et R. R. Torres (2016). "Artificial neural networks and multiple linear regression model using principal components to estimate rainfall over South America".

Si Moussa, C. (2010). "Modélisation des équilibres de phases à pressions élevées par les réseaux de neurones artificiels", Ecole Nationale Polytechnique. Alger. Algérie.

Singh, P. et S. Singh (1983). "Development of a new correlation for binary gas phase diffusion coefficients". International Communications in Heat and Mass Transfer. 10(2): 123-140.

Song, B., X. Wang et Z. Liu (2013). "Thermal conductivity of pure noble gases at low density from ab initio Prandtl number". International journal of thermophysics. 34(3): 402-411.

Sousa, S., F. G. Martins, M. Alvim-Ferraz et M. C. Pereira (2007). "Multiple linear regression and artificial neural networks based on principal components to predict ozone concentrations". Environmental Modelling & Software. 22(1): 97-103.

Staker, G. et P. J. Dunlop (1976). "The pressure dependence of the mutual diffusion coefficients of binary mixtures of helium and six other gases at 300 K: tests of Thorne's equation". Chemical Physics Letters. 42(3): 419-422.

Svehla, R. A. (1963). "Estimated viscosities and thermal conductivities of gases at high temperatures". National Aeronautics and Space Administration.

Taine, J. et J.-P. Petit (2003). "Transferts thermiques". Sciences Sup. Paris, dunod edition.

Tufeu, R. (1971). "Étude expérimentale en fonction de la température et de la pression de la conductivité thermique de l'ensemble des gaz rares et des mélanges héliu-argon".Verlag nicht ermittelbar.

Turq, P. et J.-P. Simonin (1990). "Mesure des coefficients de diffusion". Techniques de l'ingénieur. Analyse et caractérisation. 2 (P1515): p1515. 1511-p1515. 1517.

Ul-Saufie, A. Z., A. S. Yahya, N. A. Ramli et H. A. Hamid (2011). "Comparison between multiple linear regression and feed forward back propagation neural network models for predicting PM10 concentration level based on gaseous and meteorological parameters". International Journal of Applied. 1(4): 42-49.

Wilke, C. et C. Lee (1955). "Estimation of diffusion coefficients for gases and vapors". Industrial & Engineering Chemistry. 47(6): 1253-1257.

Worth, H., W. Nüsse et J. Piiper (1978). "Determination of binary diffusion coefficients of various gas species used in respiratory physiology". Respiration physiology. 32(1): 15-26.

Zalani, S., E. A. Holley-Guthrie, D. E. Gutsch et S. C. Kenney (1992). "The Epstein-Barr virus immediate-early promoter BRLF1 can be activated by the cellular Sp1 transcription factor". Journal of virology. 66(12): 7282-7292.

VALORISATION SCIENTIFIQUE

https://doi.org/10.15255/KUI.2019.010
KUI-39/2019
Original scientific paper
Received March 31, 2019
Accepted June 10, 2019

Comparative Study of Predicting the Molecular Diffusion Coefficient for Polar and Non-polar Binary Gas Using Neural Networks and Multiple Linear Regressions

N. Melzi,[a] *L. Khaouane*,[a] *Y. Ammi*,[a,b*] *S. Hanini*,[a] *M. Laidi*,[a] and *H. Zentou*[c]

[a] Laboratory of Biomaterials and Transport Phenomena (LBMPT), University of Médéa, 26 000 Médéa, Algeria
[b] Department of Chemical Engineering, University Center Ahmed Zabana Relizane, 48 000 Relizane, Algeria
[c] Department of Chemical and Environmental Engineering, Universiti Putra Malaysia, 43 400 Serdang, Malaysia

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

Abstract

In the current study, an *artificial neural network* (ANN) and *multiple linear regressions* (MLR) have been used to develop predictive models for the estimation of molecular diffusion coefficients of 1252 polar and non-polar binary gases at multiple pressures over a wide range of temperatures and substances. The quality and reliability of each method were estimated in terms of the *correlation coefficient* (*R*), *mean squared errors* (MSE), *root mean squared error* (RMSE), and in terms of *external validation coefficients* (Q^2_{ext}).

The comparison between the artificial neural network (ANN) and the multiple linear regressions (MLR) revealed that the neural network models showed a good predicting ability with lower errors (the roots of the mean squared errors in the total database were 0.1400 for ANN1 and 0.1300 for ANN2), and (root mean squared errors in the total databases were 0.5172 for MLR1 and 0.5000 for MLR2).

Keywords

Prediction, molecular diffusion, neural networks, multiple linear regressions

1 Introduction

Mass transfer is a term generally used to describe the transport of a substance (mass) in liquid and gaseous media. It commonly appears in different industrial applications, including the chemical reactions and petroleum industry, as well as ecological natural processes.[1] The mass transfer process mainly includes two aspects: molecular diffusion and convective mass transfer. Diffusion is a form of mass transfer by which molecules, ions, or other small particles spontaneously mix, moving from regions of relatively high concentration into regions of lower concentration. The knowledge of diffusion coefficient is essential to describe several processes and chemical reactions.[1–4] Diffusion is normally a slow process, and is a rate-determining factor in many cases of mass transfer. The hydrodynamic theory of diffusion mass transfer is well developed. However, there is no rigorous theory for estimation of the constituting parameters in this theory, the diffusion coefficients.[1] Motivated by the development in theoretical concepts such as the molecular kinetic theory, several studies have suggested various theoretical and semi-empirical models for the estimation of diffusion coefficients of binary gas mixture, such as Stefan-Maxwell (SM), Chapman–Enskog,[5] Gilliland,[6] Arnold,[7] Hirschfelder–Bird–Spotz (HBS),[8] Chen and Othmer,[9] Fuller–Schettler–Giddings,[10] Huang *et al.*[11] However, it is found that these empirical or semi-empirical ground models had a limited predictive capacity due to the lack of experimental data needed for the validation of the models.

More models have been developed based on HBS equation to estimate gases diffusion coefficients accurately using gas dynamic properties, but these models are frequently proposed for infrequent systems (high temperatures, big molecules, *etc.*), which does not reflect the real range of Gilliland and Arnold equations. The equation proposed by Fuller–Schettler–Giddings (FSG)[10] may represent a more practical and reliable concept, which shows more precision and accuracy. On the other hand, *artificial neural networks* (ANN) models can be considered a powerful tool for simulation, identification, design and control of processes. They have been widely used in a diverse range of fields, such as chemical engineering, biology, medical sciences, agriculture, and other applications. Therefore, ANN seems to be an effective and promising tool in developing models for predicting the molecular diffusion coefficients accurately. In parallel, *multiple linear regressions* (MLR) have been highly applied in process engineering recently, and shown good accuracy.

Zaefizadeh compared the artificial neural network (ANN) with multiple linear regressions (MLR) in predicting performance, and revealed that the neural network method worked better than linear regression.[12] In addition, *Soares* studied the applicability of artificial neural networks and

* Corresponding author: Dr Yamina Ammi
Email: ammi.yamina@yahoo.fr

the analysis of multiple linear regressions of major components. Their results also indicated that the use of ANN might offer more accuracy compared to the MLR.[13]

Although having a high accuracy with the simplicity of implantation, there is a lack of studies investigating the application of MLR and ANN for diffusion coefficient estimation. *Eslamloueyan and Khademi*[14] have developed a neural network-based model for prediction of binary gas diffusivity, at atmospheric pressure as a function of temperature. A set of 336 experimental data points for the binary diffusion coefficients of both organic and inorganic gases has been used for the network training stage, where the developed ANN model showed lower relative error (4.47 %) and good performance compared to the other models reported in the literature. However, further studies are needed to develop universal models capable of estimating diffusion coefficients of both polar and non-polar gases at a large range of conditions. In this context, the presented study has used artificial neural networks and multiple linear regressions for predicting the molecular diffusion coefficient for 311 polar and 941 non-polar binary gases over a wide range of temperatures and pressures with high accuracy.

2 Materials and methods

2.1 Empirical equations of the molecular diffusion coefficient

The mass diffusivity D_{AB} for a binary system is a function of temperature, pressure, and composition. The available data on D_{AB} for most binary mixtures are, moreover, quite limited in range and accuracy.[15] Low pressure of binary gas mixtures, D_{AB}, increases with increasing temperature, inversely proportional to the pressure.[16] These disparities are all depicted, with diverse degrees of accuracy, by the following empirical equations of the kinetic theory of gases, which are employed for the prediction of the D_{AB} values. Some of these correlations are presented in Table 1.

2.2 Neural networks

Artificial neural networks (ANNs) have become a popular tool in the analysis of non-linear relationships between process variables and product characteristics due to the simplicity of application and high accuracy. Several studies in the literature have recently used ANN models for

Table 1 – Empirical models for diffusion coefficients estimation

Equation	Equation formula		Details
Stefan–Maxwell (SM) equation[14]	$D_{AB} = \frac{a}{n\sigma_{AB}^2}\left[\frac{8RT}{\pi}\left(\frac{1}{M_A}+\frac{1}{M_B}\right)\right]^{\frac{1}{2}}$	(1)	D_{AB}: diffusion coefficient P: gas pressure / bar T: absolute temperature / K σ_{AB}: collision diameter between A and B (A)°. Ω_D: collision integral. M_A, M_B: molecular masses of gas A and gas B, respectively / g mol^{-1} V_A and V_B: molar volumes at boiling point / cm^3 mol^{-1} k: Boltzmann constant T_C, V_C: critical temperature and critical volume, respectively
Chapman–Enskog equation[16]	$D_{AB} = \frac{0.002667T^{\frac{3}{2}}}{PM_{AB}^{\frac{1}{2}}\sigma_{AB}^2\Omega_D}$ $\sigma_{AB} = (\sigma_A+\sigma_B)/2$ $M_{AB} = 2[(1/M_A)+(1/M_B)]^{-1}$	(2)	
Wilke and Lee[17]	$D_{AB} = \frac{\left[3.03-\left(\frac{0.98}{M_{AB}^{\frac{1}{2}}}\right)\right](10^{-3})T^{\frac{3}{2}}}{PM_{AB}^{\frac{1}{2}}\sigma_{AB}^2\Omega_D}$	(3)	
Gilliland equation[7]	$D_{AB} = \frac{0.0043T^{1.5}(1/M_A+1/M_B)^{1/2}}{P\left[(V)_A^{\frac{1}{3}}+(V)_B^{\frac{1}{3}}\right]^2}$	(4)	
Hirschfelder–Bird–Spotz (HBS)[8]	$D_{AB} = \frac{0.00816T^{1.5}(1/M_A+1/M_B)^{1/2}}{P\sigma_{AB}^2\Omega_D}$	(5)	
Chen and Othmer[9]	$D_{AB} = \frac{0.43(\frac{T}{100})^{1.81}(1/M_A+1/M_B)^{1/2}}{[(V_{CA}/100)0.4+(V_{CB}/100)0.4]^2P\left(\frac{T_{CB}T_{CA}}{10}^4\right)^{0.1405}}$	(6)	
Huang *et al.*[11]	$D_{AB} = \frac{5.06T^{1.75}(1/M_A+1/M_B)^{1/2}}{P^{1.286}\left[V_A^{\frac{1}{3}}+V_B^{\frac{1}{3}}\right]^2}$	(7)	

the prediction of physicochemical properties. The majority of these models were multi-layered feed-forward non-linear ANN, trained *via* the back-propagation rule to satisfy a function approximation[19] where non-linear *feed-forward neural networks* (FFNN) have shown efficacy for universal functional approximation.

A multi-layered feed-forward neural network is composed of three layers: the input layer, the output layer, and a hidden layer, as illustrated in Fig. 1. For the formal description of the neuron, the so-called mapping function *r* can be used, which assigns for each neuron *i* a subset μ_i. The subset μ_i consists of all predecessors of the given neuron *i*. Each neuron in a particular layer is connected with all neurons in the next layer. The connection between the i^{th} and j^{th} neuron is characterised by the weight coefficient w_{ij} (Fig. 1). The weight coefficient reflects the degree of importance of the given connection in the neural network.[19]

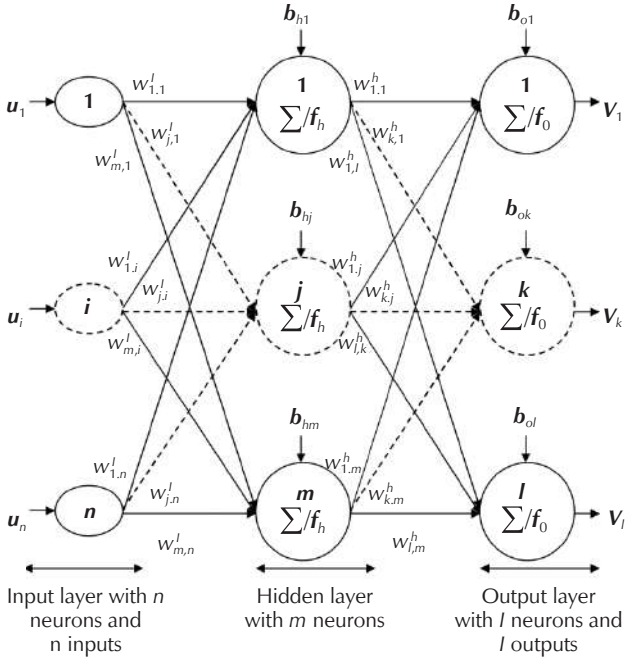


Fig. 1 – Three-layer feed-forward neural network

2.3 Multiple linear regressions

Multiple linear regressions (MLR) is a statistical technique used to study a linear relationship between a dependent variable Y_i and several independent variables X_i.[13,20] A multiple regression model can be represented by the following equation:

$$Y_i = A_0 + \sum_{i=1}^{n} A_i X_i \qquad (8)$$

where Y_i represents the output, X_i represents the inputs, A_i their coefficient, A_0 is a constant (called the intercept), and *n* is the number of inputs.[21]

3 Modelling procedure

3.1 Database collection

In the present research, a database "DB" accessible in the literature has been used.[11,14,15,18,19,20-33] The database collected from literature includes 1252 experimental data composed of 219 binary systems and 117 gases. The training database collected from the literature can be accessed in supplementary data.

The selection of the type and number of inputs was conducted after a comprehensive review of the models proposed in the literature.[14,22,23,29] Two distinct databases were used (DB1 with the critical volume) and (DB2 with the critical pressure) in order to develop two different neural networks and two multiple linear regression models. Table 2 shows the inputs and outputs used for each database: "DB1 for developed NN1 and MLR1", and "DB2 for developed NN2 and MLR2".

Table 2 – Inputs and output used for each database "DB1 and DB2"

	DB1 for NN1	DB2 for NN2
Inputs	T P $T_C^{(A)}$ $T_C^{(B)}$ $V_C^{(A)}$ $V_C^{(B)}$ M (A) M (B) μ(A) μ(B)	T P $T_C^{(A)}$ $T_C^{(B)}$ $P_C^{(A)}$ $P_C^{(B)}$ M (A) M (B) μ(A) μ(B)
Output	D_{AB}	D_{AB}

The statistical analyses for each database in terms of minimum, maximum, mean, and standard deviation are depicted in Table 3.

3.2 Modelling with neural networks

Details of the different steps conducted to develop the models presented in this study are shown in Fig. 2. In this work, the samples were split randomly into three subsets: seventy percent (70 %) of the data was used to train the model, 15 % for validation, and 15 % in the test case for both databases (DB1 and DB2).

The training algorithm used in this work was the BFGS quasi-Newton (***trainbfg***). Each NN contained three layers of neurons or nodes: one input layer with ten neurons of NN1 and neurons for NN2 in the input layer, one hidden layer with a number of active neurons optimized during training, and one output layer with one unit that generated the estimated value of diffusion coefficient D_{AB}. The number of hidden neurons differed from 3 to 25 neurons.

The tangent sigmoid (tansig), the log sigmoid (logsig), and the exponential transfer functions were used in the hidden layer. The pure-linear (purelin) transfer function was used in the output layer.

The application of ANN for diffusion coefficient modelling was performed by STATISTICA software, which was used to optimize the architecture of the two neural networks models (ANN1 and ANN2).

Table 3 – Statistical analysis of parameters for each database (DB1 and DB2)

Parameters	Symbol	Unit	Minimum	Maximum	Mean	STD
temperature	T	K	77.2	1200	387.34	143.84
pressure	P	bar	0.78	449.88	9.73	32.23
critical temperature	$T_C^{(A)}$	K	5.19	761	238.49	245.97
critical temperature	$T_C^{(B)}$	K	5.19	819	219.1	186.64
critical volume	$V_C^{(A)}$	$cm^3\,mol^{-1}$	21.23	492	136.7	119.15
critical volume	$V_C^{(B)}$	$cm^3\,mol^{-1}$	41.7	492.1	123.83	84.93
molecular weight	M (A)	$g\,mol^{-1}$	4	235.9	41.15	43.99
molecular weight	M (B)	$g\,mol^{-1}$	2.01	253.8	40.91	44.29
dipole moment	μ(A)	D	0	4.22	0.25	0.7
dipole moment	μ(B)	D	0	4.22	0.24	0.62
critical pressure	$P_C^{(A)}$	bar	2.33	223.34	35.62	36.36
critical pressure	$P_C^{(B)}$	bar	2.33	223.34	37.85	26.08
diffusion coefficient between two gases A and B	D_{AB}	$cm^2\,s^{-1}$	$7.6000 \cdot 10^{-6}$	8.1	0.58	0.8

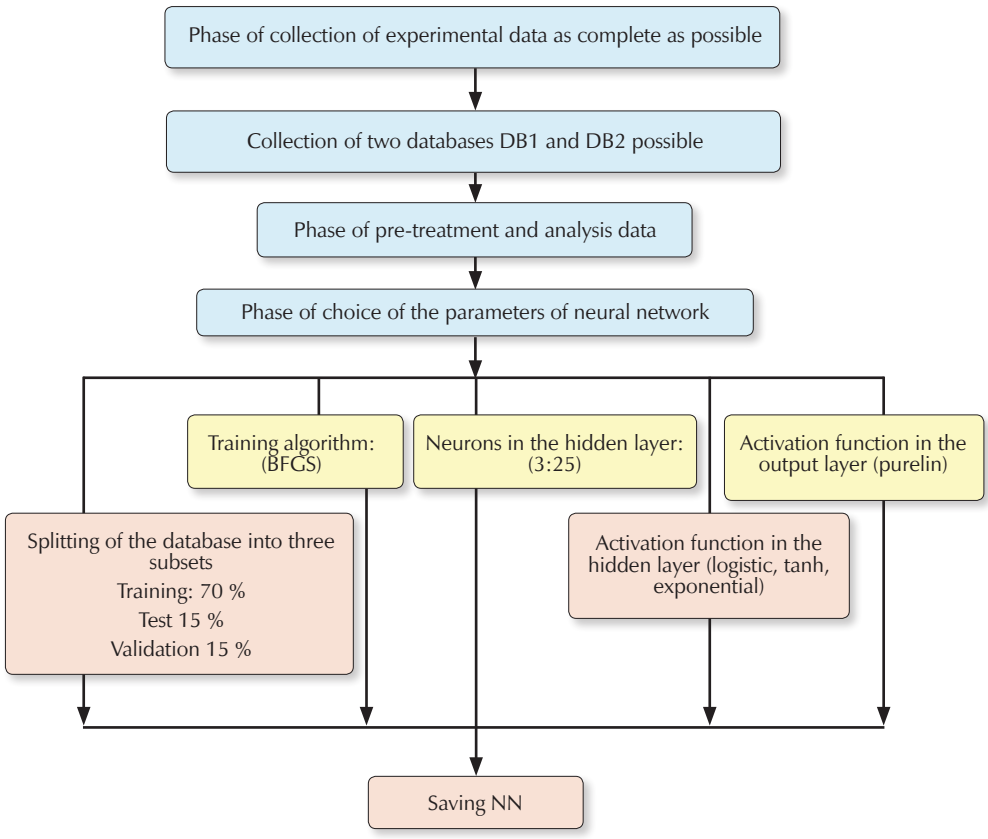


Fig. 2 – Flowchart of the neural networks models development procedure

Table 4 – Multi-layer feed-forward artificial neural networks with the best architectures

NN models	Input layer variables	Hidden layer		Output layer		Training method
		transfer function	number of neurons	transfer function	variable	
NN1	M (A) / g mol^{-1} M (B) / g mol^{-1} $V_C^{(A)}$ / cm^3 mol^{-1} $V_C^{(B)}$ / cm^3 mol^{-1} $T_C^{(A)}$ / K $T_C^{(B)}$ / K μ(A) / D μ / D T / K P (atm)	Hyperbolic tangent Sigmoid (tansig)	8	linear transfer function (purelin)	diffusion coefficient (D_{AB}) / cm^2 s^{-1}	BFGS: quasi-Newton back- propagation (***trainbfg***)
NN2	M (A) / g mol^{-1} M (B) / g mol^{-1} $P_C^{(A)}$ / cm^3 mol^{-1} $P_C^{(B)}$ / cm^3 mol^{-1} $T_C^{(A)}$ / K $T_C^{(B)}$ / K μ(A) / D μ(B) / D T / K P / bar	Hyperbolic tangent Sigmoid (tansig)	6	linear transfer function (purelin)	diffusion coefficient (D_{AB}) / cm^2 s^{-1}	BFGS:quasi-Newton back- propagation (***trainbfg***)

Table 4 shows the inputs, outputs, number of neurons, training methods, and adaptation learning functions. It depicts the formation of the architectures of NN models.

3.3 Modelling with multiple linear regressions

The same databases mentioned for ANN development were employed to develop MLR by using the "regress" MATLAB function.

4. Results and discussion

4.1 Neural networks

The plot and the specification of the linear regression were acquired directly with the use of MATLAB function "postreg".

Fig. 3(a) shows the curves of the linear regression of the diffusion coefficient rates calculated by the first neural model "ANN1" optimized with the rates of experimental diffusion coefficient with vectors of regression approaching the ideal [α, β, R] = [0.968, 0.03, 0.98]. The correlations coefficients for the total phase are generally considered as excellent in the range ($0.90 \le R \le 1.00$). The correlation coefficient of the developed ANN1 was $R = 0.968$ with interval of confidence IC95% = 0.005, which indicates good robustness of the first neural model "ANN1" established and the prediction possibility for the different parameters of the diffusion coefficient of gases.

To estimate the performance of the second neural model obtained "ANN2", the predicted values of the diffusion coefficient by the ANN2 model were compared and plotted to the experimental values of diffusion coefficient for the total phase, as shown in Fig. 3(b), which represents the curves of the linear regression of the second neural model with vectors of regression approaching the ideal [α, β, R] = [0.97, 0.01, 0.984]. The correlation coefficient of the ANN2 model was excellent ($R = 0.9845$) with an interval of confidence IC95% = 0.0482, which implies good robustness of the second neural model "ANN2" established and the possibility of predicting the diffusion coefficients of gases from the different parameters.

4.2 Multiple linear regressions

The models obtained for the prediction of the diffusion coefficient are linear models (Eqs. (9) and (10)):

$$\begin{aligned}\mathrm{MLR1} = {} & -0.229 + 0.0038T + 4.05\cdot10^{-4}P - \\ & - 8.179\cdot10^{-4}T_C^{(A)} - 0.002T_C^{(B)} - 5.44\cdot10^{-4}V_C^{(A)} + 7.8\cdot10^{-5}V_C^{(B)} \\ & -8.49\cdot10^{4}M(\mathrm{A}) + 5.51\cdot10^{4}M(\mathrm{B}) + 0.03\mu(\mathrm{A}) + 0.117\mu(\mathrm{B})\end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned}\mathrm{MLR2} = {} & 0.214 + 0.003T + 7.484\cdot10^{-4}P - 9.1555\cdot10^{-4}T_C^{(A)} - \\ & - 0.0014T_C^{(B)} - 2.456\cdot10^{-4}P_C^{(A)} - 0.001P_C^{(B)} - \\ & -0.001M(\mathrm{A}) + 2.655\cdot10^{-4}M(\mathrm{B}) + 0.0405\mu(\mathrm{A}) + 0.106\mu(\mathrm{B})\end{aligned} \quad (10)$$

Fig. 4(a) shows the linear regression curves of model MLR1 by comparison between the experimental values and the calculated values for the first MLR model. Linear regression vectors, [α, β, R] = [0.76, 0.26, 0.58] of the total phase indicated a moderate MLR1 model predictive ability. The correlation coefficient of MLR1 was 0.7645 with an interval of confidence IC95% = 0.0717. The correlation coefficients are generally considered satisfactory ($0.50 \le R < 0.90$).[32]

The obtained results show that the MLR1 model had an acceptable predicting power to estimate the diffusion coefficient of gases.

Fig. 4(b) shows the linear regression curves of the diffusion coefficient rates calculated by the MLR2 model with the experimental diffusion coefficient rates with regression vectors approaching approval [α, β, R] = [0.5004, 37.4867, 0.7038] of the total phase. The correlation coefficient of MLR2 was 0.7511 in the satisfactory range ($0.50 \leq R < 0.90$); [34] with an interval of confidence equal to IC95% = 0.0717. Similarly to MLR1, the results indicated that the MLR2 model showed a good performance for the prediction of the diffusion coefficient of gases.

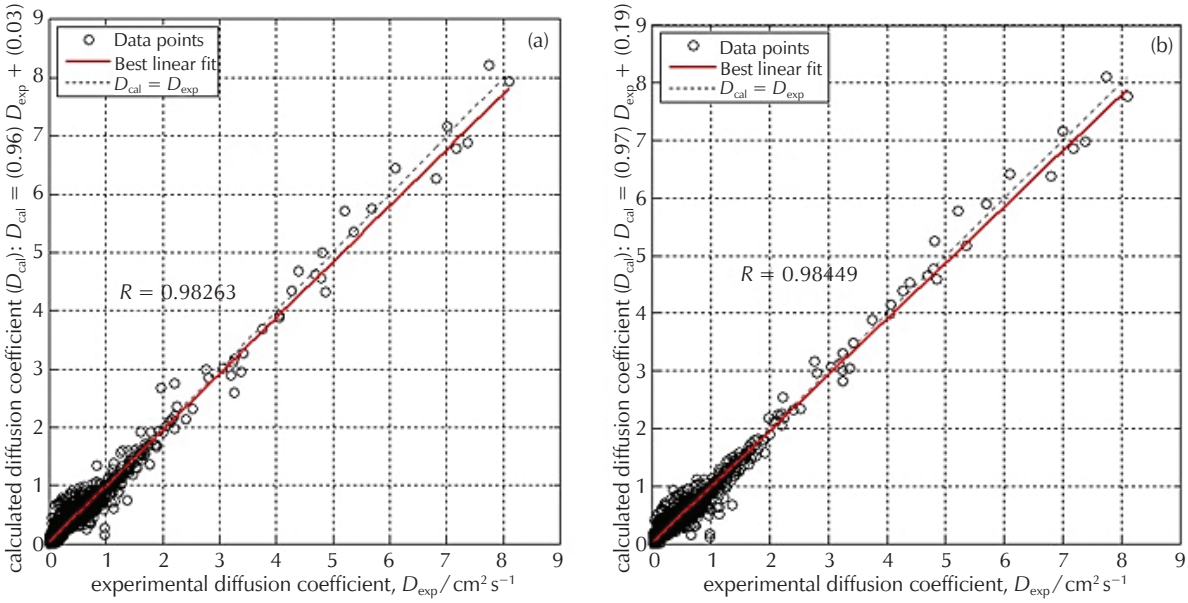


Fig. 3 – Comparison between experimental and calculated values for the whole data set: (a) NN1, (b) NN2

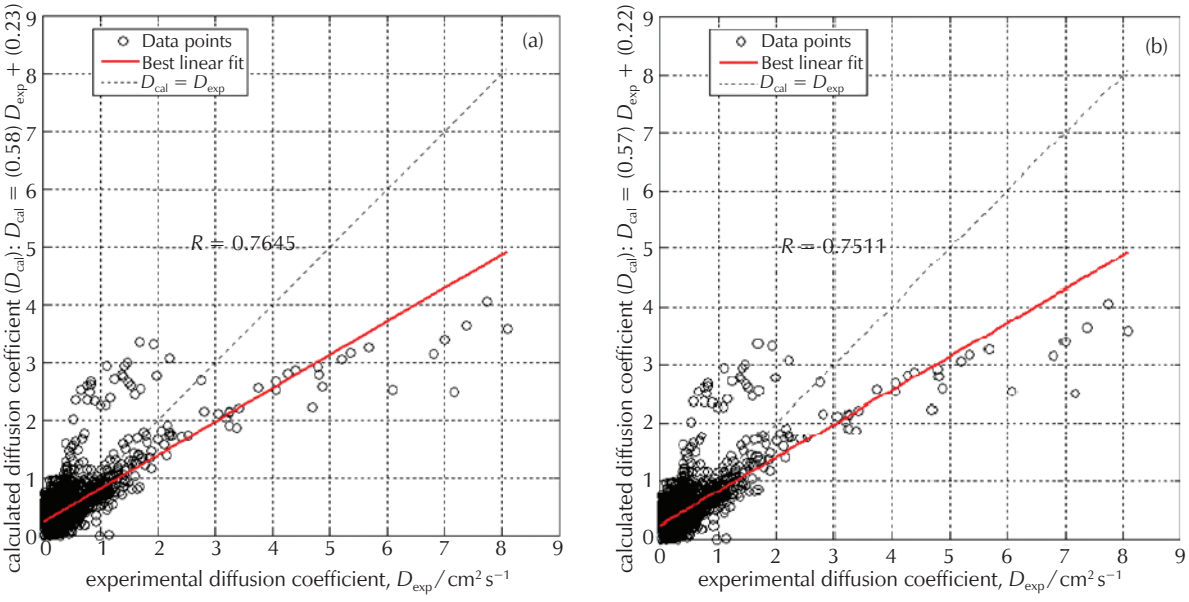


Fig. 4 – Comparison between experimental and calculated values for the whole data set: (a) MLR1, (b) MLR2

5. Comparison

5.1 Comparison between Neural networks and multiple linear regressions

The comparison between the multiple linear regressions (MLR) and the artificial neural network (ANN) models was estimated in terms of root mean squared error (RMSE), mean squared errors (MSE), external validation coefficient (Q^2_{ext}), and in terms of the correlation coefficient (R), for the entire data set.

- mean squared errors (MSE)

$$MSE = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{n}(Y_{i,exp} - Y_{i,pred})^2 \quad (11)$$

- root mean squared error (RMSE)

$$RMSE = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^{n}(Y_{i,exp} - Y_{i,pred})^2}}{n} \quad (12)$$

- external validation coefficient (Q^2_{ext})

$$Q^2_{ext} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{pred}(Y_{i,exp} - Y_{i,pred})^2}{\sum_{i=1}^{pred}(Y_{i,exp} - Y_{TR})^2} \quad (13)$$

where N is the total number of data, $Y_{i,exp}$ is the experimental value, $Y_{i,cal}$ indicates the calculated value from the neural network models or multiple linear regressions, respectively, and Y_{TR} is the mean experimental diffusion coefficient value of the samples for the training set.

As shown in Fig. 5, the ANN models developed in this work gave lower errors than the MLR models. The mean squared errors for the total dataset were 0.02 for ANN1, 0.01 for ANN2, root mean squared errors were 0.14 for ANN1, 0.13 for ANN2, and the external validation coefficient were 0.50 for ANN1, 0.49 for ANN2. The mean squared errors for the total data set were 0.26 for MLR1 and 0.25 for MLR2, the root mean squared errors were 0.5172 for MLR1 and 0.5 for MLR2 and the external validation coefficients were 0.58 for MLR1 and 0.59 for MLR2. The results of this comparison showed superiority of the ANN models.

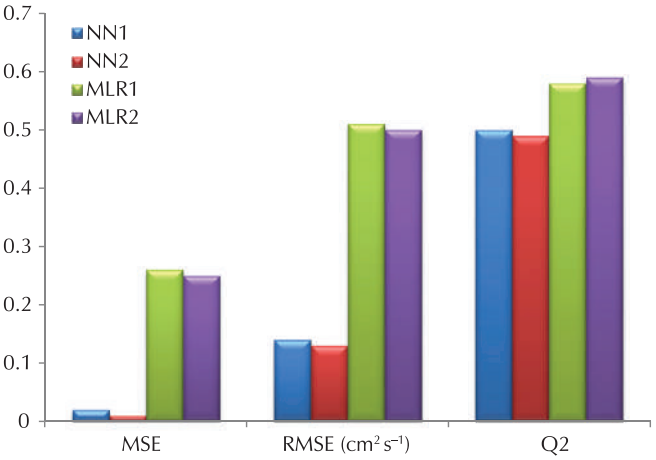


Fig. 5 – Comparison between neural networks and multiple linear regressions models

5.2 Comparison between neural networks and empirical models

To compare the neural network models developed in this work with other models, the diffusivity of numerous elements in the data set needed to be estimated using the developed networks models, as well as seven different correlations, which Chapman–Enskog, Gilliland proposed: Arnold, Hirschfelder–Bird–Spotz (HBS), Chen and Othmer, Fuller–Schettler–Giddings (FSG), and Huang.

In order to estimate the true predictive power of neural network models, one must compare the predicted and observed (experimental) activities of a fairly large set of external test compounds that have not been used in model development.[35] It is the accuracy of the performance on this test set that determines the true predictive power of

Table 5 – Comparison of the optimized ANN models with other models in the literature

Models	α	β	R	MSE	RMSE / cm² s⁻¹	Q^2
NN1	0.968	0.03	0.98	0.02	0.14	0.50
NN2	0.97	0.01	0.984	0.01	0.13	0.49
Wilke and Lee (1955)	0.712	0.101	0.95	0.09	0.30	0.89
Chapman–Enskog (1977)	0.734	0.101	0.95	0.07	0.282	0.9
Gilliland (1934)	0.4558	0.112	0.95	0.24	0.496	0.70
HBS (1949)	0.427	0.117	0.74	0.352	0.59	0.58
Chen and Othmer (1962)	0.001	$9.14 \cdot 10^{-4}$	0.74	$3.27 \cdot 10^{4}$	181.01	0.95

a neural network model. The predictive power of such a model can be estimated by the coefficient (Q^2_{ext}).[36]

Table 5 shows a comparison between the proposed ANN and various models reported in the literature for D_{AB} for prediction in terms of the mean squared errors (MSE), root mean squared error (RMSE), external validation coefficient (Q_2) and correlation coefficient (R), which were calculated using the training data. Table 5 clearly shows good performance of ANN developed models. Both ANN models show higher correlation coefficient (R), and their lower mean squared errors (MSE), lower root mean squared error (RMSE), and lower external validation coefficient (Q_2) compared to the previous models reported in the literature. This confirms the strength and the accuracy of ANN models for the prediction of diffusion coefficient.

6. Conclusions

The aim of the present study was to develop two feed-forward artificial neural networks (ANN) models and two multiple linear regression (MLR) models in order to predict the molecular diffusion coefficient of the binary gas mixture. A good agreement was observed between the experimental values and the predicted values for each neural model (the roots of the mean squared errors in the total database were 0.1400 for ANN1 and 0.1300 for ANN2). On the other hand, the developed MLR model for diffusion coefficient prediction showed acceptable agreement with experimental values (root mean squared errors in the total databases were 0.5172 for MLR1 and 0.5000 for MLR2), but it was less accurate with lower relation coefficient and higher errors compared to the ANN models. Moreover, the ANN models developed in this work showed lower errors compared to the other models reported previously in the literature.

Thus, the good predicting power and the high accuracy of ANN models in estimating the coefficient of diffusion of binary gas mixture is clear, which makes these models highly recommended over the other models for coefficient diffusion prediction in different chemical processes.

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors acknowledge the team of LBMPT laboratory, University of Medea, the University Center Ahmed Zabana Relizane, and University Putra Malaysia for their help throughout this project.

List of abbreviations
Popis kratica

ANN – artificial neural network
– umjetna neuronska mreža

FFNN – feed-forward neural network
– aciklička neuronska mreža

FSG – Fuller–Schettler–Giddings

HBS – Hirschfelder–Bird–Spotz

MLR – multiple linear regressions
– model višestruke linearne regresije

MSE – mean squared error
– srednja kvadratna pogreška

R – correlation coefficient
– korelacijski koeficijent

RMSE – root mean squared error
– korijen srednje kvadratne pogreške

SM – Stefan-Maxwell

References
Literatura

1. *O. Medvedev*, Diffusion coefficients in multicomponent mixtures, 2004, Ph. D. thesis, Technical University of Denmark, Copenhagen, Denmark.
2. *L. Boardman, N. Wild*, The diffusion of pairs of gases with molecules of equal mass, Proc. R. Soc. Lond. A **162** (1937) 511–520, doi: https://doi.org/10.1098/rspa.1937.0199.
3. *J. Bosma, J. Wesselingh*, Estimation of diffusion coefficients in dilute liquid mixtures, Chem. Eng. Res. Des. **4** (1999) 325-328. doi: https://doi.org/ 10.1205/026387699526250.
4. *T. R. Marrero, E. A. Mason*, Gaseous diffusion coefficients, J. Phys. Chem. Ref. Data. **1** (1972) 3–118, doi: https://doi.org/10.1063/1.3253094.
5. *J. Giddings*, Dynamics of Chromatography, Marcel Decker, New York, 1965, NY, Part I, p. 340, doi: https://doi.org/10.1201/9781315275871.
6. *E. R. Gilliland*, Diffusion coefficients in gaseous systems, Ind. Eng. Chem. **26** (1934) 681–685, doi: https://doi.org/10.1021/ie50294a020.
7. *J. H. Arnold*, Studies in diffusion: Studies in diffusion. II. A kinetic theory of diffusion in liquid systems, J. Am. Chem. Soc. **52** (1930) 3937–3955, doi: https://doi.org/10.1021/ja01373a025.
8. *J. C. Hirschfelder, R. B. Bird, E. L. Spotz*, The transport properties of gases and gaseous mixtures, J. Chem. Phys. **44** (1930) 205–231, doi: https://doi.org/10.1021/cr60137a012.
9. *D. F. Othmer, H. T. Chen*, Correlating diffusion coefficients in binary gas systems, Ind. Eng. Chem. Process. Des. Dev. **1**

(1962) 249–254, doi: https://doi.org/10.1021/i260004a003.

10. *E. N. Fuller, P. D. Schettler, J. C. Giddings*, A new method for prediction of binary gas phase diffusion coefficient, Ind. Eng. Chem. **58** (1966) 19–27, doi: https://doi.org/0.1021/ie50677a007.
11. *T. C. Huang, J. F Young, C. J. Huang, C. H. Kuo*, Measurement of diffusion coefficients by the method of the gas chromatography, J. Chromatogr. A **70** (1972) 13–24, doi: https://doi.org/10.1016/s0021-9673(01)91051-9.
12. *M. Zaefizadeh*, Comparison of Multiple Linear Regressions (MLR) and Artificial Neural Network (ANN) in Predicting the Yield Using its Components in the Hulless Barley American-Eurasian, J. Agric. Environ. Sci. **33** (2011) 1828–1837.
13. *T. Santos, D. Mendes, R. Torres*, Artificial neural networks and multiple linear regression model using principal components to estimate rainfall over South America, Nonlin. Processes Geophys. **23** (2016) 13–20, doi: https://doi.org/10.1016/s0021-9673(01)91051-9.
14. *R. Eslamloueyan, M. Khademi*, A neural network-based method for estimation of binary gas diffusivity, Chemom. Intell. Lab. Syst. **104** (2010) 195–204, doi: https://doi.org/10.1016/j.chemolab.2010.08.009.
15. *D. Gavril, K. R. Atta, G. Karaiskakis*, Determination of collision cross-sectional parameters from experimentally measured gas diffusion coefficients, Fluid. Phase. Equilib. **218** (2004) 177–188, doi: https://doi.org/10.1016/j.fluid.2003.12.010.
16. *S. Chapman, T. G. Cowling*, The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases, 3rd Ed. Cambridge Math, 1970, doi: https://doi.org/10.1002/zamm.19920721124.
17. *C. Wilke, C. Lee*, Estimation of diffusion coefficients for gases and vapors, Ind. Eng. Chem. **47** (1955) 1253–125747, doi: https://doi.org/10.1021/ie50546a056.
18. *J. C. Giddings, S. L. Seager*, Rapid determination of gaseous diffusion coefficients by means of gas chromatography apparatus, J. Chem. Phys. **33** (1960) 1579–1580, doi: https://doi.org/10.1063/1.1731448.
19. *C. Si-Moussa, S. Hanini*, Prediction of high-pressure vapor liquid equilibrium of six binary systems carbon dioxide with six esters using an artificial neural network model, J. Chem. Eng. **25** (2008) 183–199, doi: https://doi.org/10.1590/s0104-66322008000100019.
20. *N. Tebal, P. Pinang*, Comparison Between Multiple Linear Regression And Feed forward Back propagation Neural Network Models For Predicting PM 10 Concentration Level Based On Gaseous And Meteorological Parameters, IJAST. **1** (2011) 42–49.
21. *S. I. V. Sousa, F. G. Martins, M. C. Pereira*, Multiple linear regression and artificial neural networks based on principal components to predict ozone concentrations, Environ. Model. Soft. **22** (2007) 97–103, doi: https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2005.12.002.
22. *B. E. Poling, J. M. Prausnitz, J. P. O'Connel*, The properties of gases and liquids. McGraw-Hill., New York, 2001, doi: https://doi.org/10.1021/ja0048634.
23. *G. Karaiskakis, D. Gavril*, Determination of diffusion coefficients by gas Chromatography, J. Chromatogr. A **1037** (2004) 147–189, doi: https://doi.org/10.1002/chin.200435278.
24. *J. Knox, L. McLaren, L. Anal*, The Spreading of Air Peaks in Capillary and Packed Gas Chromatography Columns, An. Ch. **35** (1963) 449–454, doi: https://doi.org/10.1021/ac60197a033.
25. *E. Grushka. V. Maynard*, Measurements of gaseous diffusion coefficients by gas chromatography, J. Chem. Educ. **49** (1972) 565, doi: https://doi.org/10.1021/ed049p565.
26. *J. Line, S. Weissman*, Determination of the temperature dependence of gaseous diffusion coefficients using gas chromatographic apparatus, J. Phys. Chem. **56** (1972) 2288–2F0, doi: https://doi.org/10.1063/1.1677533.
27. *S. Gotoh, M. Manner, J. P. Sorensen, E. Stewart, J. Warren*, Binary diffusion coefficients of low-density gases, Chem. Eng. Data. **19** (1974) 169–171. doi: https://doi.org/10.1021/je60061a026.
28. *G. Staker, P. J. Dunlop*, The pressure dependence of the mutual diffusion coefficients of binary mixtures of helium and six other gases at 300 K: tests of Thorne's equation, Chem. Phys. Lett. **42** (1976) 419–422, doi: https://doi.org/10.1016/0009-2614(76)80643-4.
29. *T. K. Sherwood, R. C. Reid, J. M. Prausnitz*, The properties of gases and liquids, New York, McGraw-Hill, 1966, p. 688, doi: https://doi.org/10.1002/aic.690150602.
30. *H. Worth, W. Nüsse. J. Piiper*, Determination of binary diffusion coefficients of various gas species used in respiratory physiology, Respir. Physiol. **32** (1978) 15–26, doi: https://doi.org/10.1016/0034-5687(78)90097-x.
31. *N. Katsanos, G. Karaiskakis*, Measurement of diffusion coefficients by reversed-flow gas chromatography instrumentation, Chromatogr. Sci. **237** (1982) 1–14, doi: https://doi.org/10.1016/S0021-9673(00)88267-9.
32. *L. Fokin, A. Kalashnikov, A. F. Zolotukhina*, Transport properties of mixtures of rarefied gases. Hydrogen–methane system, J. Eng. Phys. Thermophys **84** (2011) 1408–1420, doi: https://doi.org/10.1007/s10891-011-0612-7.
33. *W. Lu, G. Huirong, I. M. Chou, R. C. Burruss, L. Li*, Determination of diffusion coefficients of carbon dioxide in water between 268 and 473K in a high-pressure capillary optical cell with in situ Raman spectroscopic measurements, Geochim. Cosmochim. Acta **115** (2013) 183–204, doi: https://doi.org/10.1016/j.gca.2013.04.010.
34. *Y. Ammi, L. Khaouane. S. Hanini*, Prediction of the rejection of organic compounds (neutral and ionic) by nanofiltration and reverse osmosis membranes using neural networks, Korean J. Chem. Eng. **32** (2015) 2300–2310, doi: https://doi.org/10.1007/s11814-015-0086-y.
35. *A. Golbraikh, A. Tropsha*, Beware of q^2!, J. Mol. Graph. Model. **2** (2002) 269–276, doi: https://doi.org/10.1016/s1093-3263(01)00123-1.
36. *M. Hamadache*, Modélisation en vue de la prédiction ou de la corrélation de l'activité toxicologique à partir de la structure moléculaire, 2004, Ph. D. thesis, University of Medea, Algeria.

SAŽETAK

Usporedna studija predviđanja koeficijenta molekularne difuzije za polarni i nepolarni binarni plin pomoću neuronskih mreža i višestrukih linearnih regresija

Naima Melzi,[a] *Latifa Khaouane*,[a] *Yamina Ammi*,[a,b*] *Salah Hanini*,[a] *Maamar Laidi*[a] i *Hamid Zentou*[c]

U ovoj studiji primijenjene su *umjetna neuronska mreža* (ANN) i *model višestruke linearne regresije* (MLR) za razvoj prediktivnih modela za procjenu koeficijenata molekularne difuzije 1252 polarnih i nepolarnih binarnih plinova pri višestrukim tlakovima u širokom rasponu temperatura i tvari. Kvaliteta i pouzdanost svake metode procijenjeni su pomoću *korelacijskog koeficijenta* (*R*), *srednjih kvadratnih pogrešaka* (MSE), *korijena srednje kvadratne pogreške* (RMSE) te *koeficijenata vanjske validacije* (Q^2_{ext}).

Usporedba između umjetne neuronske mreže (ANN) i višestrukih linearnih regresija (MLR) otkrila je da modeli neuronske mreže pokazuju dobru sposobnost predviđanja s nižim pogreškama (korijeni srednjih kvadratnih pogrešaka u ukupnoj bazi podataka bili su 0,1400 za ANN1 i 0 (1300 za ANN2 a pogreške korijena srednje vrijednosti u ukupnim bazama podataka bile su 0,5172 za MLR1 i 0,5000 za MLR2).

Ključne riječi
Predviđanje, molekularna difuzija, neuronske mreže, višestruke linearne regresije

[a] *Laboratory of Biomaterials and Transport Phenomena (LBMPT), University of Médéa, 26 000 Médéa, Alžir*
[b] *Department of Chemical Engineering, University Center Ahmed Zabana Relizane, 48 000 Relizane, Alžir*
[c] *Department of Chemical and Environmental Engineering, Universiti Putra Malaysia, 43 400 Serdang, Malezija*

Izvorni znanstveni rad
Prispjelo 31. ožujka 2019.
Prihvaćeno 10. lipnja 2019.

ISSN 0021-8944, Journal of Applied Mechanics and Technical Physics, 2020, Vol. 61, No. 2, pp. 207–216. © Pleiades Publishing, Ltd., 2020.
Original Russian Text © N. Melzi, L. Khaouane, S. Hanini, M. Laidi, Y. Ammi, H. Zentou.

OPTIMIZATION METHODOLOGY OF ARTIFICIAL NEURAL NETWORK MODELS FOR PREDICTING MOLECULAR DIFFUSION COEFFICIENTS FOR POLAR AND NON-POLAR BINARY GASES

N. Melzi[a,*], L. Khaouane[a], S. Hanini[a], M. Laidi[a], Y. Ammi[a], and H. Zentou[b]

UDC 004.89, 533.6

Abstract: In this study, an artificial neural network (ANN) is used to develop predictive models for estimating molecular diffusion coefficients of various gases at multiple pressures over a large field of temperatures. Two feed-forward neural networks NN1 and NN2 are trained using six physicochemical properties: molecular weight, critical volume, critical temperature, dipole moment, temperature, and pressure for NN1 and molecular weight, critical pressure, critical temperature, dipole moment, temperature, and pressure for NN2. The diffusion coefficients are regarded as the output. A set of 1252 gases (941 non-polar gases and 311 polar gases) is used for training and testing the ANN performance, and good correlations are found ($R = 0.986$ for NN1 and $R = 0.988$ for NN2). The result of the sensitivity analysis shows the importance of the six input parameters selected for modeling the diffusion coefficient. Moreover, the present ANN model provides more accurate predictions than other models.

Keywords: artificial neural networks, modeling, molecular diffusion, prediction.

DOI: 10.1134/S0021894420020066

INTRODUCTION

Diffusion is an important property of gases and is of large theoretical and applied significance [1–4]. Diffusion is also a major factor in peak broadening in chromatography [5]; hence, numerous researchers were interested in the development of more precise correlations for determining the diffusion coefficients [6]. Availability of famous theories for the gas phase, such as the kinetic theory of gases, encouraged scientists to suggest various theoretical and semi-empirical equations for estimating the binary diffusivity coefficients of gases: Stefan–Maxwell, Chapman–Enskog [7], Gilliland [8], Arnold [9], Hirschfelder–Bird–Spotz [10], Chen–Othmer [11], Fuller–Schettler–Giddings [12], Huang et al. [13], and other equations. However, it was found that these empirical or semi-empirical models had a limited predictive capacity.

More convoluted methods extracted from the Hirschfelder–Bird–Spotz equation ought to be used in order to obtain higher accuracy in estimating the gaseous diffusion coefficients. These methods, which are based on detailed

[a]Laboratory of Biomaterials and Transport Phenomena (LBMPT), University of Medea, Algeria; *melzinaima@gmail.com; latifa_khaouane@yahoo.fr; s_hanini2002@yahoo.fr; maamarw@yahoo.fr; ammi.yamina@yahoo.fr. [b]Department of Chemical and Environmental Engineering, Universiti Putra Malaysia, 43400 Serdang, Malaysia; hamidzen@gmail.com. Translated from Prikladnaya Mekhanika i Tekhnicheskaya Fizika, Vol. 61, No. 2, pp. 60–70, March–April, 2020. Original article submitted March 16, 2018; revision submitted August 18, 2019; accepted for publication September 30, 2019.

*Corresponding author.

gas dynamics, are frequently proposed for uncommon systems (e.g., large molecules, high temperatures, etc.), which are further away than the pertinent range of the Gilliland and Arnold equations. The diffusion coefficients in both liquid and gas mixtures greatly differ with temperature and composition [14]. For most binary mixtures, the diffusivity data gained from experiments are rather incomplete. Fuller and Giddings [15] compared the existing theoretical or empirical equations for predicting the gaseous diffusion coefficients. Eslamloueyan and Khademi [16] developed a feed-forward three-layer neural network for calculating the thermal conductivity of pure gases at atmospheric pressure over a wide range of temperatures, based on their critical temperatures, critical pressures, and molecular weights. They also developed a feed-forward neural networks to envisage the binary diffusion coefficients D_{AB} of gases at atmospheric pressure over a wide range of temperatures [5], where a set of 467 experimental data points for binary diffusion of a non-polar gas at 1 atm was used at the network training stage.

The surface tension, viscosity, and thermal conductivity for common organic solvents were appraised by Kauffman and Jurs [17] by using multiple linear regression methods and computational neural networks to train and evaluate their models. Boozarjomehry et al. [18] distinguished the fundamental features of pure substances and petroleum fractions by using a neural network [18].

In this context, a neural network model was developed for predicting the binary diffusion coefficients of 941 non-polar gases and 311 polar gases in wide ranges of temperatures and pressures.

The network inputs are the molecular weight M, critical volume V_{cr}, critical temperature T_{cr}, dipole moment μ, pressure P, and absolute temperature T for NN1; molecular weight M, critical pressure P_{cr}, critical temperature T_{cr}, dipole moment μ, pressure P, and absolute temperature T for NN2; the diffusion coefficients were considered as an output.

EMPIRICAL EQUATIONS

The mass diffusivity D_{AB} for a binary system is a function of temperature, pressure, and composition. The available data on D_{AB} for most binary mixtures are quite limited in range and accuracy [19]. In binary gas mixtures at low pressures, D_{AB} is inversely proportional to pressure, increases with increasing temperature, and is almost independent of the composition of a specific gas pair [20]. These disparities are all depicted, with diverse degrees of accuracy, by the following empirical equations of the kinetic theory of gases, which are employed for the prediction of D_{AB} values:

•Stefan–Maxwell equation [6]

$$D_{\mathrm{AB}} = \frac{a}{n\sigma_{\mathrm{AB}}^2}\Big[\frac{8RT}{\pi}\Big(\frac{1}{M_{\mathrm{A}}}+\frac{1}{M_{\mathrm{B}}}\Big)\Big]^{1/2};$$

•Chapman–Enskog equation [6]

$$D_{\mathrm{AB}} = \frac{0.002\,667T^{3/2}}{PM_{\mathrm{AB}}^{1/2}\sigma_{\mathrm{AB}}^2\Omega_D}, \qquad \sigma_{\mathrm{AB}} = \frac{\sigma_{\mathrm{A}}+\sigma_{\mathrm{B}}}{2},$$

where σ_{AB} is the collision diameter between the gas molecules A and B, Ω_D is the collision integral, $M_{\mathrm{AB}} = 2[(1/M_{\mathrm{A}})+(1/M_{\mathrm{B}})]^{-1}$, and M_{A} and M_{B} [g/mol] are the molecular weights of the gas A and gas B, respectively;

•Wilke–Lee equation [6]

$$D_{\mathrm{AB}} = \frac{10^{-3}T^{3/2}(3.03-0.98/M_{\mathrm{AB}}^{1/2})}{PM_{\mathrm{AB}}^{1/2}\sigma_{\mathrm{AB}}^2\Omega_D};$$

•Gilliland equation [6]

$$D_{\mathrm{AB}} = \frac{0.0043T^{1.5}(1/M_{\mathrm{A}}+1/M_{\mathrm{B}})^{1/2}}{P(V_{\mathrm{A}}^{1/3}+V_{\mathrm{B}}^{1/3})^2}$$

(V_{A} and V_{B} [cm^3] are the molar volumes at the boiling point);

•Hirschfelder–Bird–Spotz equation [6]

$$D_{\mathrm{AB}} = \frac{0.008\,16T^{1.5}(1/M_{\mathrm{A}}+1/M_{\mathrm{B}})^{1/2}}{P\sigma_{\mathrm{AB}}^2\Omega_D};$$

Table 1. Statistical analysis of parameters

Parameter	Minimum value	Maximum value	Mean value	Standard deviation
T, K	77.20	1200.00	387.34	143.84
P, atm	0.77	444.11	9.49	31.82
T_{cr}^{A}, K	5.19	761.00	238.49	245.97
T_{cr}^{B}, K	5.19	819.00	219.10	186.64
V_{cr}^{A}, cm^3/mol	21.23	492.00	136.70	119.15
V_{cr}^{B}, cm^3/mol	41.70	492.10	123.83	84.93
M_A, g/mol	4.00	235.90	41.15	43.99
M_B, g/mol	2.01	253.80	40.91	44.29
μ_A, D	0	4.22	0.25	0.70
μ_B, D	0	4.22	0.24	0.62
P_{cr}^{A}, atm	2.30	220.48	35.17	35.90
P_{cr}^{B}, atm	2.30	220.48	37.37	25.75
D_{AB}, cm^2/s	$7.6 \cdot 10^{-6}$	8.10	0.58	0.80

•Approximation of the Hirschfelder–Bird–Spotz equation with the use of the critical values of temperature T_{cr} and volume V_{cr} [6]

$$D_{AB} = \frac{0.43(T/100)^{1.81}(1/M_A + 1/M_B)^{1/2}}{[0.4(V_{cr,A}/100) + 0.4(V_{cr,B}/100)]^2 P((T_{cr,B}T_{cr,A}/10)^4)^{0.1405}}$$

(the values of T_{cr} and V_{cr} can be estimated in various ways [24]);

•Modified Arnold equation [6]

$$D_{AB} = \frac{5.06T^{1.75}(1/M_A + 1/M_B)^{1/2}}{P^{1.286}(V_A^{1/3} + V_B^{1/3})^2}.$$

The term Ω_D is the collision integral depending in an intricate manner on temperature and interaction energy of the colliding molecules σ_{AB}. Hirschfelder et al. followed the Chapman–Enskog kinetic approach combined with the Lennard-Jones intermolecular potential function [22, 23]. The values of Ω_{AB} for calculating the temperature $T^* = kT/\sigma_{AB}$ (k is the Boltzmann constant) were tabulated in [22].

The main disadvantage of the Hirschfelder–Bird–Spotz equation is the difficulty encountered in evaluating σ_{AB} and Ω_D.

In the present research, we used data accessible in the literature [1, 5, 6, 13, 19, 20, 25, 26–35]. The database collected available publications includes a total of 1252 experimental data composed of 219 binary systems and 117 gases. The statistical analysis of the database variables is illustrated in Table 1.

ARTIFICIAL NEURAL NETWORK

Artificial neural networks (ANNs) are universal approximates of intricate nonlinear relationships between the input and output data. ANNs that were used for the appraisal and prediction of physicochemical specifications were mainly multilayered feed-forward nonlinear ANNs trained via the back-propagation rule to satisfy the function approximation [37]. It was shown that nonlinear feed-forward neural networks (FFNNs) are capable of universal functional approximation and that one neuron in the output layer with a linear transfer function and a unique hidden layer with a sigmoid transfer function are fully sufficient for inconsistent approximation of any incessant limited function. This work is confined to a multilayered feed-forward neural network type with a hyperbolic tangent function.

The artificial neurons are disposed in layers (Fig. 1) wherein the input layer receives inputs μ_i from the real world and each succeeding layer receives weighted outputs $w_{ij}\mu_i$ from the previous layer as its inputs. The outputs of the last layer represent the outputs to the actual world [34]. In such feed-forward neural networks, the output layer or the neuron has two tasks.

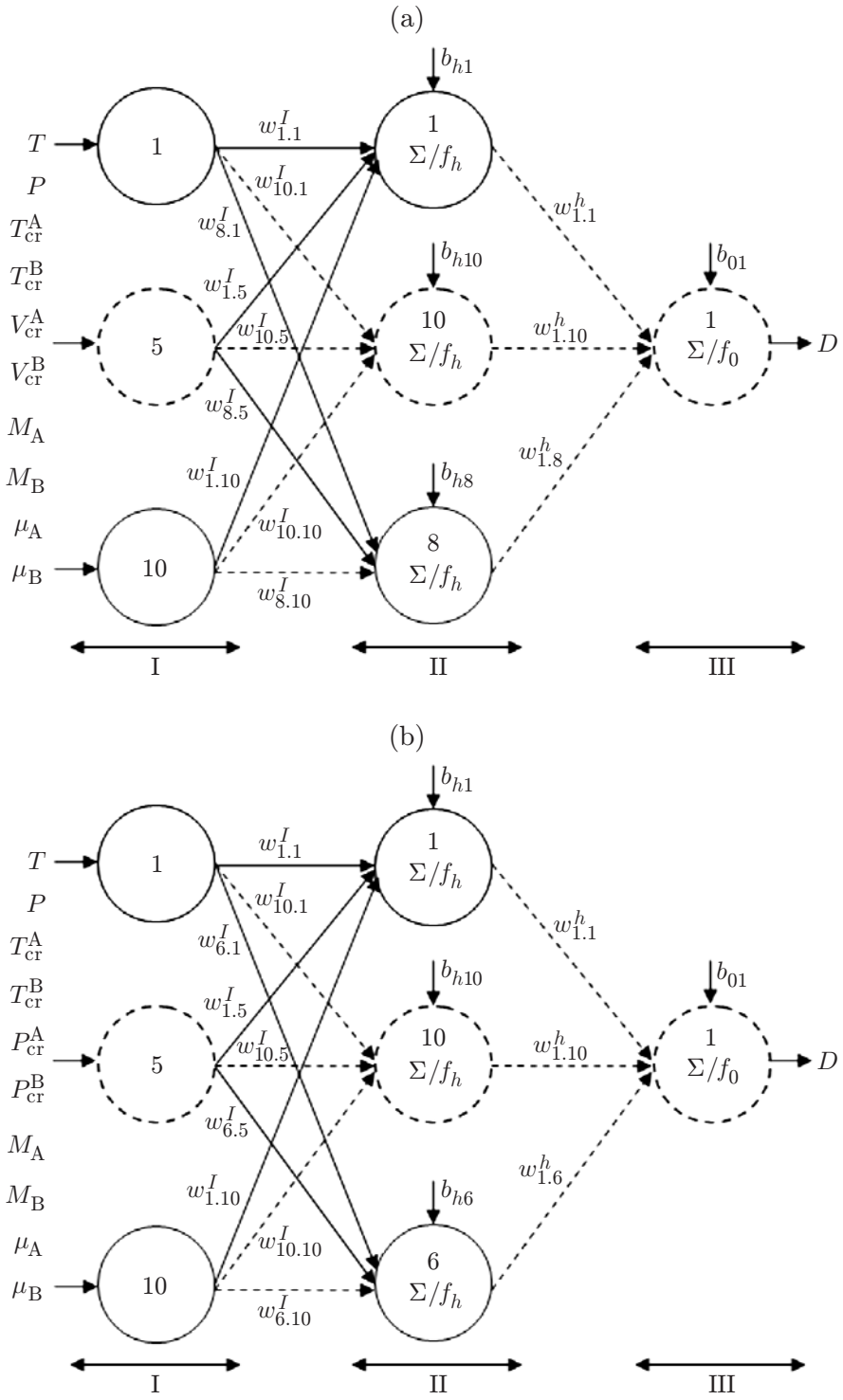


Fig. 1. Three-layer binary feed-forward neural networks for predicting the diffusion coefficient: (a) NN1 with an input layer containing ten neurons and ten inputs (I), hidden layer containing eight neurons (II), and output layer containing one neuron and one output (III); (b) NN2 with an input layer containing ten neurons and ten inputs (I), hidden layer containing six neurons (II), and output layer containing one neuron and one output (III).

1. It recaps the weighted inputs from various links plus a bias worth and then exerts a transfer function to the sum; thus, for the neuron of the jth hidden layer, we have

$$z_j = f_h\Big(\sum_{i=1}^{n} w_{ji}^I \mu_i + b_{hj}\Big), \qquad j = 1, 2, \ldots, m;$$

2. It transfers the resulting value through outgoing connections of the neurons of the successive layer where it undergoes the same process; for instance, the outputs z_j of the hidden layer fed to the neuron of the kth output layer yield the output V_k:

$$V_k = f_0\Big(\sum_{j=1}^{m} w_{kj}^h z_j + b_{0k}\Big), \qquad k = 1, 2, \ldots, 1. \tag{1}$$

Based on Eq. (1), the relation between the output V_k and the inputs μ_i of the ANN is obtained:

$$V_k = f_0\Big(\sum_{j=1}^{m} w_{kj}^h f_h\Big(\sum_{i=1}^{n} w_{ji}^I \mu_i + b_{hj}\Big) + b_{0k}\Big), \qquad k = 1, 2, \ldots, 1.$$

The output is computed by means of a transfer function named the activation function. The classical activation functions are the logarithmic sigmoid transfer function

$$f(a) = \frac{1}{1 + \mathrm{e}^{-a}},$$

the pure linear transfer function

$$f(a) = a,$$

and the hyperbolic tangent sigmoid transfer function

$$f(a) = \frac{\mathrm{e}^{a} - \mathrm{e}^{-a}}{\mathrm{e}^{a} + \mathrm{e}^{-a}}.$$

The network grasps the relationships between the independent and dependent variables by means of iterative comparisons of the estimated and experimental outputs and subsequent alteration of the weight matrix and bias vector of each layer by a back propagation training algorithm.

Thus, an ANN model able to predict with adequate precision the output variables lying within the model space expounded by the training set is developed. The aim of ANN modelling is to diminish the prediction misconceptions of affirmation data.

The number of neurons in the input and output layers is determined by the number of independent and dependent variables. The user explains the number of hidden layers and the number of neurons in each hidden layer.

The success of ANN modeling depends on the selection of the process variables, quality of the data, types of the network used, and number of neurons in the hidden layers. A small number of neurons leads to imprecise fitting. If the number of neurons is large, the training points are accurately estimated, but the fitting curve exhibits wild oscillations between these points.

MODELING PROCEDURE

For two databases (DB1 and DB2), an NN model was developed and a set of input and output variables was identified. The nonlinear method was chosen because of the nonlinear behavior of the diffusion coefficient (Fig. 2). The samples were randomly split into three subsets: 70% of the data were used to generate the model and the validation was performed with 15% of the total data. Independent predictions were calculated for the remaining 15% of the data. The training algorithm used in this work is the BFGS quasi-Newton algorithm (trainbfg). Each NN contains three layers of neurons or nodes: one input layer with eight neurons for NN1 and six neurons for NN2, one hidden layer with several active neurons optimized in the course of training, and one output layer with one unit generating the estimated value of the diffusion coefficient R. The number of hidden neurons varies from 3 to 25. The tangent sigmoid (tansig), log sigmoid (logsig), and exponential transfer functions are used in the hidden layer. The pure-linear (purelin) transfer function is used in the output layer.

The type and the number of ANN inputs were chosen after a comprehensive review of models proposed in available publications. Details of various stages of the process in the present study are shown in Fig. 3.

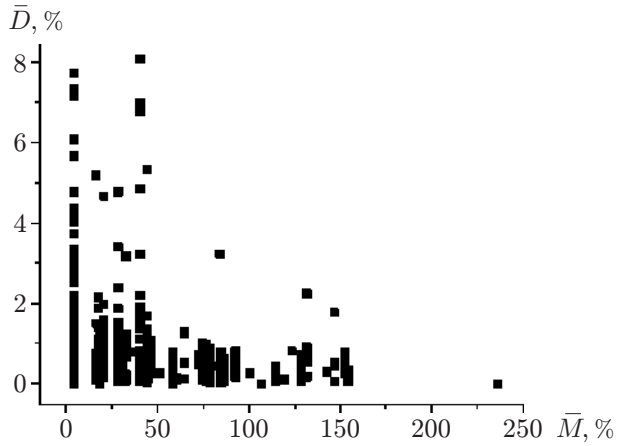


Fig. 2. Experimental behavior of the diffusion coefficient versus the molecular weight.

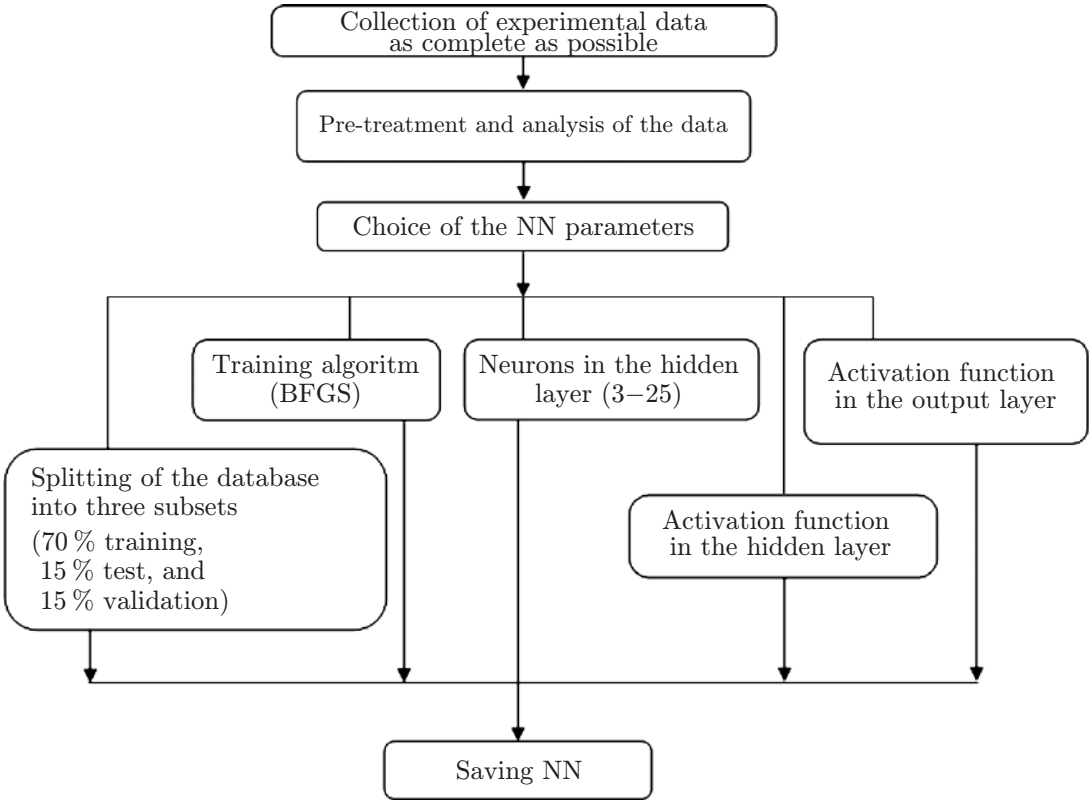


Fig. 3. Flow chart of the algorithm.

RESULTS AND DISCUSSION

The STATISTICA software was used in this study. The BFGS quasi-Newton training algorithm (trainbfg) and the hyperbolic tangent sigmoid with a linear transfer function were used in the hidden and output layers, respectively. The results were obviously more accurate than those obtained in [5]. The results of each variant of model operation were estimated by the error functions, namely, the mean square error

$$\mathrm{MSE} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{n}(Y_{i,\mathrm{exp}} - Y_{i,\mathrm{cal}})^2,$$

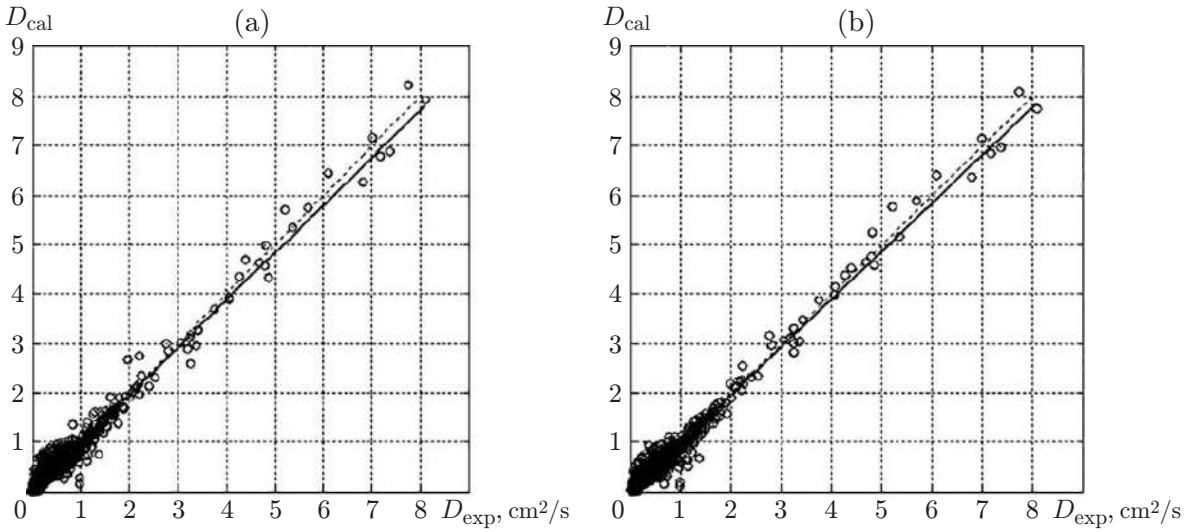


Fig. 4. Experimental values (points) and calculated values (curves) of the diffusion coefficient for the entire data set: (a) NN1 ($D_{cal} = 0.96D_{exp} + 0.03$ and $R = 0.982\,63$); (b) NN2 ($D_{cal} = 0.97D_{exp} + 0.019$ and $R = 0.984\,49$); the solid curve is the best linear fit; the dashed curve shows the values of $D_{cal} = D_{exp}$.

the root-mean square error

$$\mathrm{RMSE} = \sqrt{\sum_{i=1}^{n}(Y_{i,\mathrm{exp}} - Y_{i,\mathrm{cal}})^2},$$

and the external validation coefficient

$$Q^2_{\mathrm{ext}} = 1 - \sum_{i=1}^{\mathrm{pred}}(Y_{i,\mathrm{exp}} - Y_{i,\mathrm{pred}})^2 \qquad \sum_{i=1}^{\mathrm{pred}}(Y_{i,\mathrm{exp}} - Y_{TR})^2,$$

where N is the total number of data, $Y_{i,\mathrm{exp}}$ is the experimental value, $Y_{i,\mathrm{cal}}$ is the value calculated with the use of the neural network model, Y_{pred} is the predicted output from the neural network model for a given input, Y_{exp} is the experimental value, and Y_{TR} is the mean experimental diffusion coefficient values of the samples for the training set.

The prediction accuracy was improved by using acceptable correlation coefficients for NN1 and NN2: $R^2 = 0.979$ and 0.983 (training data base), $R^2 = 0.984$ and 0.986 (validation database), and $R^2 = 0.986$ and 0.988 (prediction database). Figure 4 show the results obtained by using the postreg MATLAB function at the NN model design phase.

Eslamloueyan and Khademi [5] developed a three-layer feed-forward model for predicting the binary diffusion coefficient D_{AB} of gases by using a total of 467 experimental data points of both organic and inorganic gases at $P = 1$ atm. However, in our study, a neural network was developed in order to predict the diffusion coefficient of polar and non-polar gases at a variable pressure, and the database collected from the literature consists of 1252 experimental data points for 219 binary systems.

Table 2 demonstrates the error functions and the correlation coefficient of the proposed ANN and various models used to predict the value of D_{AB} for all data points (α and β are the coefficients in the regression equation $Y_{\mathrm{cal}} = \alpha Y_{\mathrm{exp}} + \beta$). As it can be perceived from Table 2, the suggested neural network model provides more accurate results than the other models: RMSE = 0.14 cm^2/s and MSE = 0.02 for NN1; RMSE = 0.13 cm^2/s and MSE = 0.01 for NN2.

In order to perceive the effect of each input on the network output, a sensitivity analysis was carried out using the STATISTICA software. This method provides quantification of the relative importance of various inputs (variables) on the NN output (Fig. 5). It can be observed that the most important variables that may influence the diffusion coefficients are the pressure and temperature for both NN1 and NN2.

The results of the sensitivity analysis reveal the importance of ten variables (RI > 5%) selected for modelling the binary diffusion coefficient.

Table 2. Parameters predicted by various models

Model	α	β	R	MSE	RMSE, cm^2/s	Q_2
NN1	0.9680	0.030	0.980	0.020	0.140	0.97
NN2	0.9700	0.010	0.984	0.010	0.130	0.97
Wilke and Lee [22]	0.7120	0.101	0.950	0.090	0.300	0.89
Chapman–Enskog [7]	0.7340	0.101	0.950	0.070	0.282	0.90
Gilliland [8]	0.4558	0.112	0.950	0.240	0.496	0.70
Hirschfelder–Bird–Spotz [10]	0.4270	0.117	0.740	0.352	0.590	0.58
Chen–Othmer [11]	0.0010	$9.14 \cdot 10^{-4}$	0.740	$3.27 \cdot 10^4$	181.010	0.95

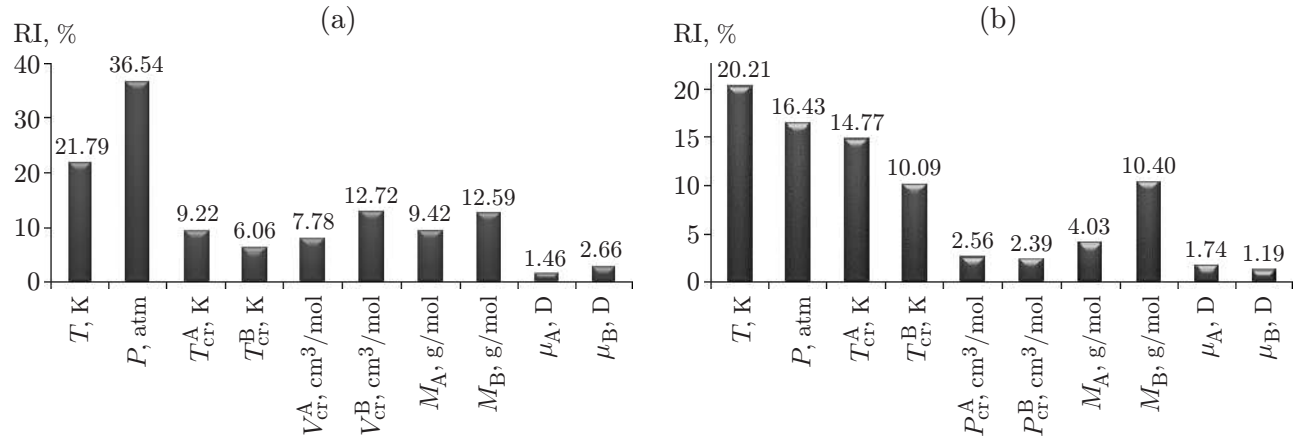


Fig. 5. Relative importance (RI) histograms: (a) NN1; (b) NN2.

CONCLUSIONS

An artificial neural network was developed for predicting the diffusion coefficients of binary gaseous mixtures for variable values of pressure, temperature, critical temperature, critical pressure, critical volume, dipole moment, and molecular weight used as the input variables.

A set of 1252 experimental data points for the binary diffusion coefficient of both polar and non-polar gases was used at the network training stage. The best architecture of the feed-forward network, obtained by trial and error method, consists of one hidden layer containing eight neurons for NN1 and six neurons for NN2. The results of this evaluation indicate that the developed ANN model is able to predict the binary gas diffusion coefficient more accurately than alternative models: RMSE = 0.14 cm^2/s and MSE = 0.02 for NN1; RMSE = 0.13 cm^2/s and MSE = 0.01 for NN2.

Another advantage of the ANN method is that its input variables are usually available for most substances.

REFERENCES

1. B. E. Poling, J. M. Prausnitz, and J. P. O'Connell, *The Properties of Gases and Liquids* (McGraw-Hill, New York, 2001).
2. J. Bosma and J. Wesselingh, "Estimation of Diffusion Coefficients in Dilute Liquid Mixtures," Chem. Eng. Res. Design. **77**, 325–328 (1999).
3. L. Boardman and N. Wild, "The Diffusion of Pairs of Gases with Molecules of Equal Mass," Proc. J. R. Soc. **162**, 511–520 (1937).
4. T. Marrero and E. A. Mason, "Gaseous Diffusion Coefficient," J. Phys. Chem. Ref. Data **1**, 3–118 (1972).

5. R. Eslamloueyan and M. Khademi, "A Neural Network-Based Method for Estimation of Binary Gas Diffusivity," Chemometrics Intelligent Lab. Syst. **104**, 195–204 (2010).
6. G. Karaiskakis and D. Gavril, "Determination of Diffusion Coefficients by Gas Chromatography," J. Chromatogr. A **1037**, 147–189 (2004).
7. J. Giddings, *Dynamics of Chromatography*, Part 1 (Marcel Decker, New York, 1965).
8. E. R. Gilliland, "Diffusion Coefficients in Gaseous Systems," Indust. Eng. Chem. **26**, 681–685 (1934).
9. J. H. Arnold, "Studies in Diffusion. 2. A Kinetic Theory of Diffusion in Liquid Systems," J. Amer. Chem. Soc. **52**, 3937–3955 (1930.
10. J. C. Hirschfelder, R. B. Bird, and E. L. Spotz, "The Transport Properties of Gases and Gaseous Mixtures," J. Chem. Phys. **44**, 205–231 (1930).
11. D. F. Othmer and H. T. Chen, "Correlating Diffusion Coefficients in Binary Gas Systems," Indust. Eng. Chem. Process Des. Devel. **1**, 249–254 (1962).
12. E. N. Fuller, P. D. Schettler, and J. C. Giddings, "A New Method for Prediction of Binary Gasphase Diffusion Coefficients," Indust. Eng. Chem. **58**, 19–27 (1966).
13. T. C. Huang, J. F. Young, C. J. Huang, and C. H. Kuo, "Measurement of Diffusion Coefficients by the Method of the Gas Chromatography," J. Chromatogr. A **70**, 13–24 (1972).
14. A. Abbasi and R. Eslamloueyan, "Determination of Binary Diffusion Coefficients of Hydrocarbon Mixtures using MLP and ANFIS Networks Based on QSPR Method," Chemometr. Intell. Lab. Syst. **132**, 39–51 (2014).
15. M. Laidi and S. Hanini, "Optimal Solar COP Prediction of a Solar-Assisted Adsorption Refrigeration System Working with Activated Carbon/Methanol as Working Pairs using Direct and Inverse Artificial Neural Network," Int. J. Refriger. **36**, 247–257 (2013).
16. R. Eslamloueyan and M. Khademi, "Estimation of Thermal Conductivity of Pure Gases by Using Artificial Neural Networks," Int. J. Therm. Sci. **48**, 1094–1101 (2009).
17. G. W. Kauffman and P. C. Jurs, "Prediction of Surface Tension, Viscosity, and Thermal Conductivity for Common Organic Solvents Using Quantitative Structure Property Relationships," J. Chem. Inf. Comput. Sci. **41**, 408–418 (2001).
18. R. B. Boozarjomehry, F. Abdolahi, and M. A. Fmoosavian, "Characterization of Basic Properties for Pure Substances and Petroleum Fractions by Neural Network," Fluid Phase Equilib. **231**, 188–196 (2005).
19. G. Gavril, K. R. Atta, and G. Karaiskakis, "Determination of Collision Cross-Sectional Parameters from Experimentally Measured Gas Diffusion Coefficients," Fluid Phase Equilib. **218**, 177–188 (2004).
20. J. C. Giddings and S. L. Seager, "Rapid Determination of Gaseous Diffusion Coefficients by Means of Gas Chromatography Apparatus," J. Chem. Phys. **33**, 1579–1580 (1960).
21. J. O. Hirschfelder, C. F. Curtis, and R. B. Bird, *Molecular Theory of Gases and Liquids* (Wiley, New York, 1954).
22. C. Wilke and C. Lee, "Estimation of Diffusion Coefficients for Gases and Vapors," Indust. Eng. Chem. **47**, 1253–1257 (1955).
23. J. O. Hirschfelder, R. B. Bird, and E. L. Spotz, "The Transport Properties of Gases and Gaseous Mixtures," Chem. Rev. **44**, 205–231 (1949).
24. R. B. Bird, W. E. Stewart, and E. N. Lightfoot, "Transport Phenomena," James Madison J. **59**, 780–783 (1960).
25. J. Knox and L. McLaren, "The Spreading of Air Peaks in Capillary and Packed Gas Chromatographic Columns," Anal. Chem. **35**, 449–454 (1963).
26. D. Marquardt and W. Nuss, "An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameter," J. Soc. Indust. Appl. Math. **11**, 431–441 (1963).
27. J. Line and S. Weissman, "Determination of the Temperature Dependence of Gaseous Diffusion Coefficients using Gas Chromatographic Apparatus," J. Phys. Chem. **56**, 2288–2290 (1972).
28. S. Gotoh, M. Manner, J. P. Sorensen, et al., "Binary Diffusion Coefficients of Low-Density Gases," Chem. Eng. Data **19**, 169–171 (1974).
29. G. Staker and P. J. Dunlop, "The Pressure Dependence of the Mutual Diffusion Coefficients of Binary Mixtures of Helium and Six Other Gases at 300 K: Tests of Thorne's Equation," Chem. Phys. Lett. **42**, 419–422 (1976).
30. T. K. Sherwood, R. C. Reid, and J. M. Prausnitz, *The Properties of Gases and Liquids* (McGraw-Hill, New York, 1977).
31. H. Worth, W. Nüsse, and J. Piiper, "Determination of Binary Diffusion Coefficients of Various Gas Species used in Respiratory Physiology," Respir. Physiol. **32**, 15–26 (1978).

32. N. Katsanos and G. Karaiskakis, "Measurement of Diffusion Coefficients by Reversed-Flow Gas Chromatography Instrumentation," Chromatogr. Sci. **237**, 1–14 (1982).
33. L. Fokin, A. Kalashnikov, and A. F. Zolotukhina, "Transport Properties of Mixtures of Rarefied Gases. Hydrogen–Methane System," J. Eng. Phys. Thermophys. **84**, 1408–1420 (2011).
34. C. Si-Moussa and S. Hanini, "Prediction of High-Pressure Vapor Liquid Equilibrium of Six Binary Systems, Carbon Dioxide with Six Esters, Using an Artificial Neural Network Model," J. Chem. Eng. **25**, 183–199 (2008).
35. W. Lu, G. Huirong, I. M. Chou, et al., "Determination of Diffusion Coefficients of Carbon Dioxide in Water between 268 and 473 K in a High-Pressure Capillary Optical Cell with in situ Raman Spectroscopic Measurements," Geochim. Cosmochim. Acta **115**, 183–204 (2013).

2018 International Conference on Applied Smart Systems (ICASS'2018)
24-25 November 2018, Médéa, ALGERIA

Correlating of Thermal Conductivity of monatomic Gases Using Artificial Neural Networks

Naima Melzi*, latifa khaouane , Salah Hanini, Maamar Laidi

Laboratory of Biomaterials and Transport Phenomena (LBMPT),

University of Médéa,

Algeria.

*Corresponding author:

Email: melzinaima@gmail.com; melzi.naima@univ-medea.dz

Abstract— A set of 119 monatomic Gas was used to train validation and test the performance of the ANN, good correlations were found (R=0.993 for NN). The root mean squared errors for the total data set were 1%, and mean square errors (MSE) 0.01 for NN. Moreover, it was revealed by the comparison between the forecasted outcomes and other models that the neural network models provided greater results. (*Abstract*)

Keywords— Artificial neural network, Modeling, Prediction; Thermal conductivity, monatomic gases. (*key words*)

I.Introduction

Data on thermal conductivity are required for mathematical modeling and computer simulation of heat transfer processes. Over the years, the thermal conductivity has been compiled for many gases, [1]. A several methods currently available for gases were proposed by theoretical studies. But none is entirely comprehensive and all have some limitations. On the other hand, an accurate experimental measurement of thermal conductivity of gases, particularly at very high and/or very low temperature, is too laborious and complex task, [2, 3, and 4].

In this context, we have developed afeed-feed forward ANN models to predict the thermal conductivity of 119 monatomic gases at atmospheric pressure over a large field of temperatures with reasonable accuracy substances and particularly using conventional data.

II. Materials and method

2.1 Empirical equations

The thermal conductivity λ for a gas is in function of temperature, pressure, and composition. Low pressure sat for gas, λ is proportional to the pressure, although the effect is relatively small at low and moderate pressures, increases with increasing temperature, [05]. These variations are all described, with different degrees of precision, by the following empirical equations of the kinetic theory of gases, which are used for the prediction of the λ values. Some of these correlations have been presented in the following:

The model of the spheres proposes for the thermal conductivity of a monatomic gas, for which intervenes only the energy of translation, the following expression:

$$\lambda = \frac{15R}{4M}\eta \quad (1)$$

Where η is in units MKS (that is, there [Pa.s]), R = 8,314 [J · mol^{-1}· K^{-1}] (Constant of perfect gases) and M must be counted there [kg · mol-1]; then λ' is obtained there [W. m-^{1}. K^{-1}].

1. Eucken model, [6]

For a gas polyatomic, Eucken proposed a law which can spell:

$$\lambda = \frac{R}{M}\left[\frac{15}{4} + \left(\frac{C_p{}^0}{R} - \frac{5}{2}\right)\eta\right] \quad (2)$$

The second term inside hooks represents the contribution to the transfer of energy by the degrees of freedom other than of translation. The thermal capacity molar with the constant pressure of the gas in the completed state $C_p{}^0$ y is counted in the same units there as R (that is $J.\,mol^{-1}\cdot K^{-1}$). She was estimated by the following correlation [5]:

$$C_p{}^0 = 4.18\,(A+BT+CT^2+DT^3) \quad (3)$$

978-1-5386-6866-5/18/$31.00 ©2018 IEEE

A, B, C and D are constants appropriate (peculiar) to every gas.

2. *Modified Eucken Models*, [6]

The expression (2) was retouched then there:

$$\lambda = \frac{R}{M}\left[\frac{15}{4} + Sc^{-1}\left(\frac{C_p^{\ 0}}{R} - \frac{5}{2}\right)\eta\right] (4)$$

Said formula of modified Eucken. Where Sc counts him of Schmidt of the pure gas, is:

$$SC = \frac{\eta}{\rho D} = \frac{5\Omega_D}{\Omega_V} (5)$$

Researchers noticed on a set of examples a general fact: The experimental results (profits) are better approached at low temperature by the formula of Eucken and, in high temperature, by the modified formula.

$$\lambda = \frac{R}{M}\left[\frac{15}{4} + f_{\text{int}}\left(\frac{C_P^0}{R} - \frac{5}{2}\right)\eta\right] (6)$$

With

$$f_{int} = \left[1 + (Sc^{-1} - 1)\exp\left(\frac{h^*}{\sqrt{T^*}}\right)\right] (7)$$

Where h* is a grouping dimensional characteristic of the quantum state of the molecule;

$$h^* = \frac{43.76}{\sigma\sqrt{M(\varepsilon / K)}} (8)$$

With σ *[Å]*, (ε/*k*) [*K*] and *M* en [g. mol^{-1}].

$$\lambda = \frac{R}{M}\left[\frac{15}{4} + f_P f_{\text{int}}\left(\frac{C_P^0}{R} - \frac{5}{2}\right)\eta\right] (9)$$

With f_{int} calculated from the equation (7), and:

$$f_P = \exp\left(-11h^{*2}\sigma / T^*\right) (10)$$

3. *Model of Bromley* [07]

For monatomic gases:

$$\lambda = \frac{10.54C_V}{M}\eta (11)$$

Not linear molecules

$$\lambda = \frac{4.186}{M}\left[1.3C_V + 3.66 - 0.3C_{ir}\frac{0.69}{T_r} - 3\alpha\right]\eta \ (12)$$

λ:low-pressure thermal conductivity, [W.K^{-1}.m^{-1}].

η: viscosity, [Pa.s].

M: molecular mass, [g. mole^{-1}].

C_v : specific heat with constant volume, [J. mole^{-1}. K^{-1}].

T_r: reduced temperature, T / Tc.α: Coefficient of interaction of the molecular collisions, [J. mole-1. K-1], see reference, [03].

C_{ir} *:* contribution to the specific heat of the movements of rotation, interns molecules, [J. mole^{-1}. K^{-1}], see reference, [03].

4. *Model of misic-Thodos* [08, 09]

Misic and Thodos based itself on the dimensional analysis to give their model, an approach completely different from other authors whose models are all based on the kinetic theory of gases.

For the methane, and the aromatic hydrocarbons with $T_r<1$

$$\lambda = 4.4510^{-6}T_r\frac{C_P}{T} (13)$$

For the rest of hydrocarbons *and* $T_r \geq 1$

$$\lambda = (10^{-6})(14.52T_r + 15.4)^{2/3}\frac{C_p}{T} (14)$$

With

$$T = \frac{T_C^{\frac{1}{6}}M^{\frac{1}{2}}}{P_C^{\frac{2}{3}}} \ (15)$$

5. *Modèle of Roy-Thodos*, [10]

This model establishes (constitutes) an extension of the previous model:

$$\lambda = \frac{1}{T}\left(\left(\lambda T_{tr}\right) + \left(\lambda T_{\text{int}}\right)\right) (16)$$

$$\left(\lambda T\right)_{tr} = 99.610^{-6}(e^{0.0464Tr} - e^{-0.2412Tr}) (17)$$

$$\left(\lambda T\right)_{int} = \tau f(T_r) (18)$$

f(Tr) et *ζ Are given in the reference*, [03].

ζ: specific constant in every substance.

2.2 Database collection

A feed-forward neural network (NN) models, characterized by (Seven neurons, one hidden layer and one neuron in the output layer), are constructed with the aim of predicting the Thermal Conductivity.

In the present research, we have used data accessible in the literature [1, 3, 5, and 11] Database collected from literature includes a total of 119 monoatomic. The variable retained as inputs to the ANNs were absolute temperature and four physical properties (*M, Tc, Tb,* and *Pc*) for gases. They have been selected after exhaustive

examination of theoretical models [05], [12].

III.RESULTS AND DISCUSSION

A set of 119 monatomic gases was used to train validation and test the performance of the ANN. 70% of the data were used to train the model, 15% for validation and 15% for the test case.

In this study, the software ''STATISTICA'' was used. The training algorithm was BFGS quasi-Newton ***(trainbfg)*** and ***hyperbolic*** tangent sigmoid and linear transfer function is used in hidden and output layer respectively. Errors were clearly lower than the results reported in the literature (Eslamloueyan and Khademi 2009) and generally considered acceptable with a large database. Figure 1 displays the frame of optimized NN models, the plot and the parameters of the linear regression were directly obtained using the MATLAB function "postreg".

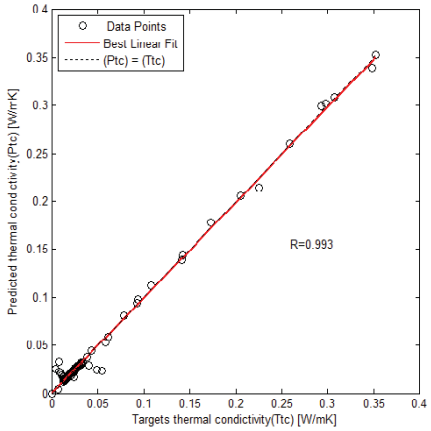


Figure1. Comparison between experimental and calculated values for the whole data set.

IV. Conclusion:

A set of 119 experimental data points for thermal conductivity of monatomic gases has been used for the network training stage. The best architecture of the feedforward network, obtained by trial and error, consists of one hidden layer with 7 neurons of NN. The results of this evaluation indicate that the developed ANN model is capable to predict the thermal conductivity for gas with a considerably Root Mean Square Error (RMSE) than other alternative correlations.

Another advantage of the ANN method, in comparison to some suggested cumbersome correlations, is that its input variables are usually available for most substances.

REFERENCES

[1] Bouzidi, A., D. Khelfi and F. Rebhi. (2013) " Thermal Conductivity Calculation at Moderate Pressure for Polyatomic Gases Using a Neural Network Approach." International Journal of Engineering and Advanced Technology (IJEAT) 2(3): 2249 – 8958.

[2] Eslamloueyan, R. and M. Khademi (2009). " Estimation of thermal conductivity of pure gases by using artificial neural networks." International Journal of Thermal Sciences 48(6): 1094-1101.

[3] Poling, B. E., J.M. Prausnitz and J.P. O'connell. (2001). " The properties of gases and liquids", Mcgraw-hill New York.

[4] Roy, D. and G. Thodos (1970). "Thermal conductivity of gases. Organic compounds at atmospheric pressure." Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals 9(1): 71-79.

[5] Reid, R., J.M. Prausnitz and B.E. Poling "The Properties of Gases and Liquids, McGraw-Hill, New York, 1987." Google Scholar: 592.

[6] LE NEINDRE, B. (1996). "Mesure de la conductivité thermique des liquides et des gaz." Techniques de l'ingénieur. Mesures et contrôle(R2920): R2920. 2921-R2920. 2921.

[7] Bromley, L. (1952). Thermal conductivity of gases at moderate pressures, Radiation Lab., Univ. of Calif., Berkeley

[8] Misic, D. and G. Thodos (1961). "The thermal conductivity of hydrocarbon gases at normal pressures." AIChE Journal 7(2): 264-267.

[9] Misic, D. and G. Thodos (1965). "Thermal conductivity measurements for nitrogen in the dense gaseous state." AIChE Journal 11(4): 650-656.

[10] Roy, D. and G. Thodos (1970). "Thermal conductivity of gases. Organic compounds at atmospheric pressure." Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals 9(1): 71-79.

[11] Song, B., X. Wang and Z. Liu. (2013). "Thermal conductivity of pure noble gases at low density from ab initio Prandtl number." International journal of thermophysics 34(3): 402-411.

[12] Gosse, J. (1991). "Propriétés de transport des gaz à pression modérée. Viscosité, conductivité thermique, coefficient de diffusion." Techniques de l'ingénieur. Constantes physico-chimiques 3(K425): K425. 421-K425. 418.

ICASS . 2018
International Conference on Applied Smart Systems

24-25 November 2018 | Médéa University, ALGERIA

Certificate of Participation

This is to certify that,

Naima MELZI

Has presented a paper titled,

Neural Prediction of Thermal Conductivity for Monoatomic Gas

Authors: *Naima MELZI, latifa KHAOUANE, Salah HANINI and Maamar LAIDI*

at the 2018 International Conference on Applied Smart Sytems (ICASS'2018) between 24-25 November 2018 at Médéa University

Dr. Mounir BOUHEDDA
ICASS2018 General Chair

ID : *192*

№ 416

DEMOCRATIC AND PEOPLE'S REPUBLIC OF ALGERIA

Ministry of Higher Education and Scientific Research

University 20 Août, 1955 – Skikda

Faculty of Technology

CERTIFICATE OF PARTICIPATION

This is to certify that

Naima Melzi

attended International Seminar in Industrial Engineering and Applied Mathematics (ISIEAM'2018), held October 23-24, 2018, in Skikda, Algeria, and presented the paper entitled :

Neural Prediction of the Viscosity for Polar and non polar Gas

Co-autors : **Salah Hanini, Maamar Laidi**

General Chair Conference:

Dr. Mohamed BOUDIAF

Date: October 23,24, 2018

ISIEAM 2018 20 AOUT 1955 SKIKDA University-Algeria ISIEAM 2018