



УНИВЕРЗИТЕТ У НИШУ
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ



Мр Младена Г. Лукић

**АНАЛИЗА АТМОСФЕРСКИХ
ПОЛУТАНАТА ИНТЕЛИГЕНТНОМ
ИМПУЛСНОМ ФОТОАКУСТИКОМ**

ДОКТОРСКА ДИСЕРТАЦИЈА

Ниш, 2017.



UNIVERSITY OF NIŠ
FACULTY OF SCIENCES AND MATHEMATICS



M.Sc. Mladena G. Lukić

**ANALYSIS OF ATMOSPHERIC
POLLUTANTS BY INTELLIGENT PULSED
PHOTOACOUSTICS**

DOCTORAL DISSERTATION

Niš, 2017.

Подаци о докторској дисертацији

Ментор: Др Драган Маркушев, научни саветник, Институт за физику, Универзитет у Београду

Наслов: Анализа атмосферских полутаната интелигентном импулсном фотоакустиком

У раду су истражене могућности примене метода вештачке интелигенције у анализи атмосферских полутаната инфрацрвеном импулсном фотоакустичком спектроскопијом. Инфрацрвена фотоакустичка спектроскопија је метод за анализу механизма молекулске нерадијативне релаксације, која је од фундаменталног значаја за разумевање физичке и хемијске кинетике атмосфере. Анализиране су смеше полутаната $SF_6 + Ar$ и $C_2H_4 + Ar$, при укупном притиску смеше $p = 10 - 100$ mbar и притиску апсорбера (SF_6 и C_2H_4) $p_{aps} = 0,47$ mbar, за различите густине ласерског зрачења Φ . Методама вештачке интелигенције постигнуто је истовремено одређивање параметара експерименталних фотоакустичких сигнала: просторног профила ласерског зрачења - $R(r_L)$, времена вибрационо-транслационе релаксације - τ_{V-T} , растојања на коме се детектује сигнал - r^* и густине енергије ласерског зрачења Φ . Истовремено и прецизно одређивање параметара ласерског зрачења $R(r_L)$, Φ и времена релаксације молекула τ_{V-T} , пружа широке могућности за повећање осетљивости и селективности метода фотоакустичке детекције, али и поједностављење апаратуре. Заменом уређаја за мерење профила ласерског зрачења и густине енергије, одговарајућим софтвером, повећава се прецизност мерења, ефикасност, динамички опсег, али и олакшава руковање инструментом у мерењима *in situ*. Информације о растојању на коме се детектује сигнал r^* у реалном времену, отварају могућности анализе удаљених слојева атмосфере. Имплементацијом различитих интелигентних техника (вештачке неуронске мреже, неуро-фази системи и метахеуристичке технике) у постојећу фотоакустичку апаратуру, обезбеђују се услови за правовремено реаговање у случају детекције повећаног загађења ваздуха, као и у предикцији и пројектовању могућих сценарија загађења.

Научна област: Природне науке

Научна дисциплина:	Фотоакустика
Кључне речи:	Фотоакустичка спектроскопија, вибрационо-транслационо релаксационо време, мултифотонски процеси, просторни профил снопа ласерског зрачења, густина енергије ласерског зрачења, вештачке неуронске мреже, ANFIS, метахеуристички алгоритми
УДК:	543.428.3:544.032.65]:502.3/.7(043.2)
CERIF класификација:	P 002, P 200, P 230, P 176
Тип лиценце Креативне заједнице:	CC BY-NC-ND

Data on Doctoral Dissertation

Doctoral
Supervisor:

PhD Dragan Markušev, Full Research Professor, Institute of Physics,
University of Belgrade

Title:

Analysis of atmospheric pollutants by intelligent pulsed photoacoustics

Abstract:

The investigation has been focused on application of artificial intelligence (AI) methods for infrared impulse photoacoustic spectroscopy analysis of atmospheric pollutants. Infrared photoacoustic spectroscopy is a method for analyzing mechanisms of molecular non-radial relaxation, which is of fundamental importance for understanding the physical and chemical kinetics of the atmosphere. We have analyzed the mixtures of $\text{SF}_6 + \text{Ar}$ and $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{Ar}$ pollutants at the total pressure of $p = 10\text{-}100$ mbar and the pressure of the absorber (SF_6 and C_2H_4) $p_{aps} = 0.47$ mbar for different laser fluence Φ . The methods of artificial intelligence have been used for simultaneously determination of following parameters of experimental photoacoustic signals: the laser beam spatial profile $R(r_L)$, vibrational-to-translational relaxation time τ_{V-T} , distance from the laser beam to the absorption molecules in the photoacoustic cell r^* and laser fluence Φ . Simultaneously and precise real time software determination of the laser radiation parameters $R(r_L)$, Φ and vibrational-to-translational relaxation time τ_{V-T} may offer improvement in sensitivity and selectivity of the photoacoustic detection methods, as well as equipment saving. Swapping the device for measuring the laser radiation profile and laser fluence with AI based software may increase the accuracy, efficiency and dynamic range of the measurement, and relieve in situ manipulation with instruments. Real time estimation of distance at which the photoacoustic signal r^* is detecting, may enable assessment of the atmosphere's distant layers. In this investigation, use of different AI techniques (artificial neural networks, neuro-fuzzy systems and metaheuristic techniques) with existing photoacoustic equipment, may improve predictions of possible pollution scenarios and provide condition for timely detection and response in case of increased air pollution.

Scientific
Field:

Natural science

Scientific
Discipline:

Photoacoustic

Key Words:

Photoacoustic spectroscopy, vibrational-to-translational relaxation time, multiphoton processes, spatial laser beam profile, laser fluence, artificial neural networks, ANFIS, metaheuristic algorithms

UDC:

543.428.3:544.032.65]:502.3/.7(043.2)

CERIF
Classification:

P 002, P 200, P 230, P 176

Creative
Commons
License Type:

CC BY-NC-ND

Захвалница

Част ми је и задовољство да се захвалим свима који су ми на директан или индиректан начин помогли у изради ове докторске тезе. Искрену захвалност дугујем:

Др Драгану Маркушеву, ментору, на подрици и разумевању, бројним конструктивним смерницама и стручној помоћи у реализацији ове инспиративне теме, као и сталним охрабрењима на путу мог професионалног развоја.

Проф. др Жарку Ђојбашићу чији су ентузијазам и јасна, непогрешива визија, удахнули овој тези дух савременог и актуелног, а чије несебично ангажовање, практични и пријатељски савети учинили путовање ка постављеном циљу занимљивим и подстицајним.

Др Михаилу Рабасовићу, за несебичну помоћ у реализацији експерименталног дела ове дисертације, стручну и колегијалну подршку и подстрек за успешно савладавање постављених задатака.

Проф. др Љубиши Нешићу на изузетној, дугогодишњој сарадњи, стручној помоћи, разумевању и подрици током свих фаза мог усавршавања.

Проф. др Ивану Манчеву на подрици, дугогодишњој сарадњи током које сам имала прилику да учим и унапређујем теоријска и практична знања.

Свим колегама за искрену пријатељску помоћ, за многобројне речи охрабрења и подршке.

Мојим родитељима за бескрајну љубав, подршку и помоћ коју ми пружају током свих ових година.

Неизмерну захвалност дугујем својој породици, чија ми је љубав у сваком тренутку давала снагу и веру у заједнички успех.

Докторску тезу посвећујем својој деци: Сари и Радету.

Списак слика

Слика 1.1 Симулирани спектар апсорпције молекула у средњој ИЦ области	24
Слика 1.2 Фотографија мобилног ФА система за праћење атмосферских полутаната	25
Слика 1.3 Унутрашњост аутоматизованог мобилног ФА система за праћење атмосферских полутаната на терену	26
Слика 1.4 Временска промена концентрација: амонијака, етилена и CO ₂ , као и густине саобраћаја	28
Слика 2.1 Шема физичких процеса насталих у узорку након оптичке апсорпције	33
Слика 2.2 Изглед експерименталног фотоакустичког сигнала	34
Слика 2.3 Теоријски фотоакустички сигнали рачунати за различите вредности параметра ϵ	38
Слика 2.4 Модел процеса дисоцијације вишеатомског молекула у јаком инфрацрвеном пољу зрачења	42
Слика 2.5 Зависност средњег броја фотона $\langle n \rangle$, апсорбованих једним молекулом, од густине енергије ласерског зрачења Φ	44
Слика 2.6 Дијаграм енергијских нивоа који показује прелазе за молекуле са два активна вибрациона мода	48
Слика 3.1 Шематски приказ биолошког и вештачког неурона	52
Слика 3.2 Примери најчешће коришћених активационих функција	54
Слика 3.3 Приказ вишеслојне перцептронске неуронске мреже са простирањем сигнала унапред	56
Слика 3.4 Приказ неуронске мреже засноване на радијалним базисним функцијама	58
Слика 3.5 Приказ регресионе неуронске мреже	60
Слика 3.6 Примери најчешће коришћених функција припадности	64
Слика 3.7 Пример функције припадности	64
Слика 3.8 Фази систем закључивања	65
Слика 3.9 Шематски приказ ANFIS структуре	66
Слика 3.10 Sugeno <i>ако-онда</i> фази систем закључивања и ANFIS архитектура	67
Слика 3.11 Приказ рулет селекције	75
Слика 3.12 Пример примене генетских оператора на почетну популацију	76
Слика 3.13 Приказ кретања честица од једне позиције до друге у простору претраживања	78
Слика 3.14 Графичка репрезентација примера топологије суседства	81
Слика 3.15 Понашање пчела у потрази за храном	84
Слика 3.16 Приказ метода симулираног жарења	87
Слика 4.1 Експериментална поставка за фотоакустичка мерења:	91
Слика 5.1 Скуп теоријских фотоакустичких сигнала генерисаних за обучавање вишеслојне перцептронске мреже	99
Слика 5.2 Скуп различитих фотоакустичких сигнала са Lorentz-овим профилем снопа ласерског зрачења	99
Слика 5.3 Структура вишеслојне перцептронске неуронске мреже за мерења у импулсној фотоакустичкој спектроскопији	100
Слика 5.4 Експериментални и фитовани фотоакустички сигнал за смешу SF ₆ +Ar	103
Слика 5.5 Скуп теоријских сигнала за обучавање неуронске мреже засноване на радијалним базисним функцијама	106
Слика 5.6 Експериментални и фитовани сигнал за смешу C ₂ H ₄ + Ar	106
Слика 5.7 Регресиона неуронска мрежа са улазним слојем који садржи 21 неурон	109
Слика 5.8 Резултат поређења експерименталног ФА сигнала и сигнала добијеног регресионом мрежом са 50 улазних неурона	109
Слика 6.1 Вишеслојне перцептронске мреже за истовремено одређивање параметара фотоакустичког сигнала	122
Слика 6.2 Поређење експерименталних сигнала добијених у смеси SF ₆ + Ar и симулираног сигнала	124
Слика 6.3 Скуп теоријских фотоакустичких сигнала за обучавање вишеслојне перцептронске мреже	126

Слика 6.4 Теоријски фотоакустички сигнали добијени неуронском мрежом за различите вредности густине енергије ласерског зрачења Φ	127
Слика 6.5 ANFIS структура за одређивање параметра Φ експерименталног фотоакустичког сигнала.	131
Слика 6.6 Експериментални сигнали добијени из смеше $C_2H_4 + Ag$	134
Слика 6.7 Структура коришћеног ANFIS-а за процену вредности Φ за фотоакустичке сигнале из смеше $C_2H_4 + Ag$	135
Слика 6.8 Приказ опадања грешке током дефинисаног броја епоха.....	136
Слика 6.9 Теоријски сигнали за обучавање ANFIS-а	137
Слика 6.10 Шема експерименталне поставке за ФА мерења методом интелигентне импулсне фотоакустике.....	140
Слика 6.11 Експериментални сигнали за молекуле SF_6 и C_2H_4	143
Слика 7.1 Шематски приказ реално кодираног генетског алгоритма за решавање проблема истовременог одређивања $R(r)$ и τ_{v-T} импулсном фотоакустиком.	149
Слика 7.2 Неколико поступака оптимизације генетским алгоритмом показују зависност прецизности резултата од броја генерација (итерација) као критеријума заустављања.	150
Слика 7.3 Резултати GA фитовања за тачку која је показала најмање поклапање са тачном вредношћу (слика 7.2).	151
Слика 7.4 Најбоље нађено решење и најбоља вредност функције циља постигнута после сваке итерације.....	154
Слика 7.5 График зависности логаритма опсега за сваку променљиву у функцији броја итерација.	155
Слика 7.6 Резултат поступка оптимизације алгоритмом колоније вештачких пчела, који приказује опадање вредности функције циља током дефинисаног броја итерација.	159
Слика 7.7 Поступак оптимизације SA алгоритмом за најбоље пронађено решење.....	165

Списак табела

Табела 5.1 Избор неуронских мрежа са најбољим перформансама	101
Табела 5.2 Процењене вредности параметара ϵ и r^* за различите вредности σ	108
Табела 6.1 Процењене вредности параметра Φ експерименталних ФА сигнала, неуронском мрежом која је обучавана теоријским сигнаlima [Lukić et al., 2017].....	127
Табела 6.2 Поређење резултата неуронске мреже и ANFIS-а у процени параметра Φ експерименталних ФА сигнала.	133
Табела 6.3 Процењене вредности параметра Φ експерименталних сигнала ANFIS-ом	138
Табела 7.1 Резултати оптимизације алгоритмом ројева честица.....	155
Табела 7.2 Резултати оптимизације алгоритмом колоније вештачких пчела.....	158
Табела 7.3 Резултати оптимизације алгоритмом симулираног жарења.....	164

Списак скраћеница

ABC	Колонија вештачких пчела (енг. artificial bee colony)
AI	Вештачка интелигенција (енг. artificial intelligence)
ANFIS	Адаптивна мрежа заснована на фази систему закључивања (енг. adaptive network based fuzzy inference system)
ANN	Вештачка неуронска мрежа (енг. artificial neural network)
BP	Алгоритам повратног простирања грешке (енг. backpropagation algorithm)
GA	Генетски алгоритми (енг. genetic algorithm)
GRNN	Регресионе неуронске мреже (енг. generalized regression neural networks)
MLP	Вишеслојни перцептрон (енг. multilayer perceptron)
PNN	Пробабилитичке неуронске мреже (енг. probabilistic neural networks)
PSO	(оптимизација ројем честица (енг. particle swarm optimization)
RBF	Радијалне базисне функције (енг. radial basis function)
RLSE	Рекурзивни метод најмањих квадрата (енг. recursive least square estimator)
R-R	Ротационо-ротациони трансфер
R-T	Ротационо-транслациони трансфер
SA	Симулирано жарење (енг. simulated annealing)
VOC	Испарљиве органске компоненте (енг. volatile organic compounds)
V-T	Вибрационо-транслациони трансфер
V-V	Вибрационо-вибрациони трансфер
ИЦФАС	Инфрацрвена фотоакустичка спектроскопија
МФА	Мултифотонска апсорпција
МФП	Мултифотонска побуда
T-T	Транслационо-транслациони трансфер
ФА сигнал	Фотоакустички сигнал
ФАС	Фотоакустичка спектроскопија

САДРЖАЈ

1. Увод.....	14
1.1. Мотивација.....	14
1.2. Организација тезе.....	18
1.3. Фотоакустичка спектроскопија гасова, основне области примене.....	19
1.4. Анализа атмосферских полутаната методом фотоакустичке спектроскопије.....	22
1.5. Примена техника вештачке интелигенције у атмосферским истраживањима.....	29
2. Теоријске основе импулсне фотоакустике у гасним смешама.....	32
2.1. Теоријске основе импулсне фотоакустике у гасним смешама.....	32
2.2. Мултифотонски процеси.....	39
2.3. Молекулске релаксације.....	45
3. Технике вештачке интелигенције у импулсној фотоакустичкој спектроскопији.....	51
3.1. Неуронске мреже.....	51
3.1.1. Вишеслојне перцептронске мреже.....	52
3.1.2. Неуронске мреже засноване на радијалним базисним функцијама.....	57
3.2. Фази логика.....	62
3.2.1 Фази логика и расуђивање.....	63
3.3. Неуро-фази адаптивни систем закључивања ANFIS.....	66
3.4. Метакхеуристичке оптимизационе технике.....	70
3.3.1. Глобалне метакхеуристичке методе.....	72
3.3.2. Методе локалног претраживања.....	88
4. Експериментална апаратура.....	90
5. Анализа атмосферских полутаната применом неуронских мрежа за истовремено одређивање времена релаксације и просторног профила ласерског зрачења.....	94
5.1. Истовремено одређивање просторног профила ласерског зрачења и времена релаксације молекула SF ₆	94
5.2. Истовремено одређивање просторног профила ласерског зрачења и времена релаксације молекула C ₂ H ₄	103
5.3. Дискусија.....	111
6. Одређивање ефикасности апсорпције неуро и неуро-фази анализом интензитета фотоакустичког сигнала.....	117
6.1. Одређивање интензитета фотоакустичког сигнала у смеси SF ₆ + Ar неуронском мрежом....	118
6.2. Одређивање интензитета фотоакустичког сигнала у смеси SF ₆ + Ar адаптивним ANFIS неуро-фази системом.....	128

6.3. Одређивање интензитета фотоакустичког сигнала у смеси $C_2H_4 + Ar$ неуро-фази адаптивним системом ANFIS	133
6.3. Интелигентна импулсна фотоакустика	138
6.4. Дискусија.....	141
7. Анализа атмосферских полутаната применом метахеуристичке оптимизације на одређивање параметара фотоакустичког сигнала	146
7.1. Примена генетских алгоритама на одређивање параметара фотоакустичког сигнала.....	147
7.2. Примена технике оптимизације ројевима честица.....	151
7.3. Примена технике оптимизације ројевима пчела	156
7.4. Примена технике симулираног жарења	160
7.5. Дискусија.....	166
8. Закључак.....	170
ЛИТЕРАТУРА.....	174

1. УВОД

Проблем глобалног загревања је током протеклих деценија постао важна тема у многим научним али и политичким дискусијама. Упркос контраверзама које се могу чути, феномен глобалног загревања као последица растуће концентрације гасова стаклене баште има чврсто утемељење у науци. Глобално загревање и ефекат стаклене баште последица су процеса радијативне размене у систему Земља-атмосфера. Мерењима је потврђено да чак и веома мале концентрације неких гасова могу значајно допринети настанку различитих атмосферских појава, почев од настанка смога и киселих киша, преко глобалног загревања, све до веома комплексних климатских промена. Гасови присутни у атмосфери у траговима, апсорбују део одлазећег инфрацрвеног (ИЦ) зрачења реметећи постојећу радијативну равнотежу. Повећањем износа заробљеног ИЦ зрачења у нижим деловима атмосфере, повећава се температура земљине површине. Осим групе молекула чији је утицај на радијативну равнотежу добро познат (CO_2 , CO , NH_3 , NO_x , SO_2 , C_2H_4 , O_3 , CFCs , HFCs , PFCs), посебну пажњу у истраживању глобалног загревања треба посветити проучавању гасова стаклене баште насталим искључиво људском активношћу, а чија се концентрација у неколико последњих деценија значајно повећава. Будући да је атмосфера сложен систем у који се непрестано уводе и из кога се уклањају многобројне врсте путем: хемијских и физичких процеса, биолошке активности, вулканских ерупција, радиоактивних распада и антропогеном активношћу, тешкоће у анализи овог система настају и због постојања многобројних међусобних интеракција и повратних механизма. Концентрација гасова у траговима се драстично променила у последња два века. Упоредо са тим променама, значајне иновације и унапређења техника мерења и инструмената 80-тих година прошлог века омогућиле су детекцију веома ниских концентрација гасова у траговима реда 1 ppt (part per trillion или 10^{-12}).

1.1. Мотивација

Атмосфера је екстремно комплексан систем у коме се бројни физички и хемијски процеси дешавају истовремено. Математички модели обезбеђују неопходан оквир за интеграцију нашег разумевања индивидуалних атмосферских процеса и проучавање

њихових интеракција. Међутим, једино се комбинацијом резултата мерења и формираних модела отвара могућност за потпуно разумевање атмосферских процеса. Другим речима, за успостављање стварних релација између процеса у атмосфери потребно је извршити интеграцију: резултата праћења атмосферских полутаната, резултата лабораторијских експеримената и створених модела. Циљ овог истраживања је проналажење ефикасног метода којим би се могла извршити интеграција ова три важна аспекта у анализи атмосферских полутаната. Данас је јасно да једину алтернативу конвенционалним методама представљају адаптивне, нелинеарне методе, које су фокусиране на налажење најбољег могућег решења за систем под одређеним околностима, али без захтева за откривањем физичког значења створених нелинеарних модела. Значај примене нових метода и модела у наукама које се баве заштитом животне средине, још је већи, ако се има на уму њихова научна, социјална, али и економска вредност. Особине интелигентних метода: способност адаптације, предвиђања, препознавања и класификације узорака, уз јединствене особине метахеуристичких метода и потенцијале за ефикасно прикупљање и брзу обраду података, указују на систем који се лако може интегрисати у поменута три аспекта анализе полутаната. У складу са поменути особинама интелигентних техника, задатак овог истраживања је био испитати :

1) Да ли се применом интелигентних техника (које предности остварују првенствено адаптивност, аутоматизовањем интелигентних реакција везаних за процес мишљења и радом у реалном времену) може унапредити фотоакустички (ФА) метод детекције гасова у траговима, са аспекта повећања ефикасности, осетљивости, селективности, проширења потенцијалних области примене и др.?

2) Да ли се вредности параметара експерименталне поставке (профила и густине енергије ласерског зрачења као и позиције микрофона) које се процењују интелигентним методама, могу сматрати довољно прецизним да би се мерни инструменти који додатно оптерећују ФА апаратуру могли изоставити?

3) Да ли се применом интелигентних техника могу истовремено и у реалном времену одредити апсорпционе и релаксационе карактеристике молекула, важне за поступке детекције полутаната, али и формирање атмосферских и климатских модела?

4) У којој мери се можемо ослонити на интелигентне методе када је у питању калибрација апаратуре, ако знамо колики је значај једноставне, прецизне и ефикасне калибрације релативних спектроскопских метода у које спада и фотоакустичка спектроскопија (ФАС)?

5) Колико корака још морамо направити у смеру потпуније имплементације интелигентних техника у ФАС, како би се формирала довољно широка платформа за прелазак на следећи ниво – ниво когнитивног моделовања, као коначног циља примене вештачке интелигенције? Интелигентне реакције везане за процес мишљења, доношења одлука, закључивања и свесног деловања могу проширити потенцијале ФАС и на област предикције будућих атмосферских загађења.

Испитивање могућности примене различитих интелигентних техника, урађено је са циљем да се изврши карактеризација атмосферских полутаната у односу на њихове апсорпционе и релаксационе особине под различитим интензитетима побуде и са најједноставнијом експерименталном поставком. Апсорпционе и релаксационе карактеристике молекула су испитиване за различите гасне смеше ($\text{SF}_6 + \text{Ar}$ и $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{Ar}$) кроз интеракцију молекула - ласерско поље. Анализирани су различити облици фотоакустичких сигнала за различите молекуле апсорбенте (SF_6 , C_2H_4), под истим експерименталним условима. На основу анализе главних физичких карактеристика: количине апсорбоване енергије и вибрационо-транслационог релаксационог времена, може се проценити да ли је молекула добар апсорбер зрачења и ефикасан сударни партнер. Подаци о овим карактеристикама молекула, добијени у реалном времену и прецизно, могу помоћи у предвиђању понашања неких од гасова стаклене баште у различитим условима.

Велике просторне и временске варијације концентрација, све већег броја атмосферских полутаната, налажу да савремени уређаји за ефикасну детекцију морају осигурати континуиран рад и праћење полутаната у реалном времену. Данас се ФА апаратура истовремено са напредовањем технологије, све више и дизајном и конструкцијом прилагођава савременим потребама детекције атмосферских полутаната (нпр. мобилни ФА системи). Фотоакустичка спектроскопија је веома осетљива и прецизна техника, а особине које је издвајају од осталих техника детекције су: могућности детекције великог броја различитих полутаната истим инструментом, велика осетљивост, селективност, динамички опсег, добра временска резолуција, једноставно руковање итд. Још једно питање које представља оквир за анализу дату у овој тези је: Да ли интелигентне технике примењене на импулсну фотоакустику, осим што дају нове перспективе анализи атмосферских полутаната, радом у реалном времену, задржавају престижне особине конвенционалне ФА анализе? Недвосмислен одговор на ово питање, на основу урађене анализе је да се интелигентне технике могу сматрати перспективном техником за повећање ефикасности детекције ФА метода. Ефикасност детекције се остварује анализом ФА сигнала у реалном времену. Рад реалном времену омогућава да се у веома кратком временском року могу

извршити евентуалне интервенције на ФА експерименталној апаратури, са циљем повећања прецизности, осетљивости, селективности итд. Прецизност ФА метода се свакодневно усавршава и већ постоје експерименти који потврђују да је могуће подићи границу детекције гасова присутних у траговима на нивоу 10^{-15} (part per quadrillion-ppq) [Xionga et al. 2017]. Међутим, мотивација за ово истраживање је била постићи побољшања у раду без измена основних принципа анализе сигнала у временском домену и без суштинских измена у самој експерименталној апаратури.

Осетљивост и селективност ФА детекције су особине строго повезане са извором зрачења и карактеристикама детектора. Варијације у просторном профилу ласерског зрачења, утичу на прецизност којом се одређују: време релаксације и апсорпционе карактеристике, али и на осетљивост и селективност детекције. Уколико се интелигентним техникама може добити информација о просторном профилу ласерског зрачења у реалном времену, тада је у временском интервалу између два сукцесивна ласерска импулса могуће кориговати настале варијације (које могу износити и до 20%). Утицај просторног профила зрачења на време релаксације молекула разматран је у радовима [Rabasović et al. 2006a, 2006b, 2007] из којих се јасно може закључити да се прецизним одређивањем просторног профила зрачења постиже прецизно одређивање времена релаксације молекула. Потенцијали интелигентних метода у одређивању параметара теоријског ФА сигнала ($R(r)$ -класе профила, τ_{V-T} - времена вибрационо-транслационе релаксације и r^* - растојања на коме се детектује сигнал) представљени су у радовима [Lukić 2013; Lukić et. al. 2013a, 2013b]. Детаљнија истраживања у пољу имплементације интелигентних метода у ФА анализу, настављена су у овом раду.

У раду је разматрано да ли интелигентне технике могу остварити добре резултате и при процени параметара експерименталних сигнала. Проблем истовременог одређивања параметара експерименталног сигнала је решаван анализом ФА сигнала генерисаних у смешама SF_6 (апсорбер) + Ar (бафер гас) и C_2H_4 (апсорбер) + Ar (бафер гас). На основу процењених вредности параметара сигнала се може донети суд о осетљивости метода интелигентне фотоакустике. Следећи задатак који је требало решити, је испитати да ли метод интелигентне фотоакустике подржава селективност метода, као посебно важну карактеристику ФАС. Висока селективност омогућава мерења различитих врста полутаната у узорку, па су са циљем испитивања доприноса интелигентних техника селективној анализи, у разматрање укључена два атмосферска полутанта (SF_6 и C_2H_4).

Корак ка свеобухватној анализи ФА сигнала учињен је одређивањем вредности параметра значајног за апсорпцију молекула, параметра Φ . Теоријска анализа процеса

одговорних за настанак ФА сигнала, (мултифотонска побуда - МФП и мултифотонска апсорпција -МФА), заснива се на одређивању: броја апсорбованих фотона, диференцијалног и повећаног апсорпционог пресека. Заједничка карактеристика ових величина је да су функције густине енергије ласерског зрачења Φ . На тај начин вредност густине енергије ласерског зрачења Φ , постаје универзални параметар за изражавање резултата различитих експеримената у оквиру ФАС метода. Са друге стране, развој инструмената за мерење профила ласерског зрачења није у складу са прогресивним развојем ласера великих интензитета, неопходних у истраживањима процеса МФА. Из тих разлога се конвенционалним уређајима може мерити профил ласерског зрачења само у ограниченом опсегу вредности Φ , а флукуације профила ласерског снопа се одређују након завршеног мерења, у фази обраде података (*off-line*). Идеја надоградње метода импулсне ФАС, за истовремено одређивање параметара ($R(r)$, τ_{V-T} , r^* и Φ) у реалном времену, реализована је применом: неуронских мрежа и неуро-фази адаптивног система закључивања (ANFIS - Adaptive Neuro-Fuzzy Inference System). Неуро-фази систем ANFIS има разноврсне примене захваљујући особинама: да успешно обрађује податке који су непрецизни, да учи из искуства и да се прилагођава променама у окружењу. Адаптибилност је у посебно важна у раду са експерименталним сигнаlima. Поменута је још једна важна карактеристика ФАС - велики динамички опсег, који омогућава да се истим инструментом могу мерити различите концентрације полутаната у урбаним и руралним областима. Разматрано је у којој мери интелигентне технике (посебно ANFIS), могу испунити захтеве за прецизним одређивањем малих и великих интензитета ФА сигнала (који су директна последица високих и ниских концентрација полутаната). На тај начин би се препознатљива способност ФА система да мери концентрације полутаната у широком опсегу вредности, употпунила и унапредила могућношћу мерења различитих физичких величина. Разматрани су и упоређивани доприноси метахеуристичких оптимizacionих алгоритама, који иако не раде у реалном времену, показују предности у прецизном одређивању параметара ε и r^* . Њихов значај се огледа у карактеризацији сигнала, али и калибрацији ФА апаратуре.

1.2. Организација тезе

Рад се састоји из осам поглавља.

У првом, уводном поглављу је дат кратак осврт на примену ФАС и техника вештачке интелигенције у детекцији атмосферских полутаната.

У другом поглављу су разматране теоријске основе импулсне фотоакустике у гасним смешама. Приказан је механизам формирања ФА таласа, након апсорпције инфрацрвеног (ИЦ) ласерског зрачења молекулима узорка. Дате су и основе мултифотонских (МФ) процеса, карактеристичних за интеракцију јаког електромагнетног зрачења (ласерског) и материје. Описан је процес молекулских релаксација вишеатомских молекула.

Треће поглавље представља преглед свих интелигентних метода коришћених у анализи ФА сигнала. Поглавље садржи теоријски опис вишеслојне перцептронске мреже и неуронске мреже засноване на радијалним базисним функцијама, неуро – фази адаптивног ANFIS система и метода метахеуристичке оптимизације (генетских алгоритама, алгоритма ројева честица, алгоритма колоније вештачких пчела и алгоритма симулираног жарчења).

Поглавље четири садржи опис фотоакустичке апаратуре коришћене у експерименту.

У поглављу пет су приказани резултати примене неуронских мрежа на истовремено одређивање времена релаксације и просторног профила ласерског зрачења. Анализирано је и дискутовано време релаксације молекула SF_6 и C_2H_4 .

Шесто поглавље обједињује резултате примене неуро и ANFIS анализе интензитета експерименталног ФА сигнала у смешама апсорбер (SF_6 или C_2H_4) + бафер гас. Описан је метод одређивања густине енергије ласерског зрачења Φ на основу интензитета експерименталног ФА сигнала. Анализиране су апсорпционе карактеристике молекула апсорбера.

У седмом поглављу је дат преглед резултата примене различитих метахеуристичких метода на истовремено одређивање параметара ФА сигнала. Добијени резултати су упоређивани, како би се издвојила најефикаснија техника за имплементацију у ФА апаратуру за мерења *in situ*.

У последњем, осмом поглављу дата су закључна разматрања, као и правци будућих истраживања.

1.3. Фотоакустичка спектроскопија гасова, основне области примене

Фотоакустичка спектроскопија је спектроскопска техника заснована на појави акустичких таласа у средини која је апсорбовала електромагнетно зрачење. Захваљујући специфичним карактеристикама, ФАС је током година, постала престижна техника, за проучавања молекулских апсорпција у ИЦ области спектра. Седамдесетих и осамдесетих година прошлог века, упоредо са развојем ласера, интензивно се развијала и ФАС. Велика

снага зрачења и монохроматичност, учинили су ласере идеалним изворима зрачења. Висока осетљивост (реда ppbv - енг. parts per billion by volume или 1 молекул испитиване врсте у 10^9 молекула узорка и реда pptv - енг. parts per trillion by volume или 1 молекул испитиване врсте у 10^{12} молекула узорка), при мерењу концентрација је постигнута коришћењем CO и CO₂ ласера. Они представљају погодне изворе зрачења у области таласних дужина од 9-11 μm, у којој спектри великог броја молекула показују карактеристичне, јаке апсорпционе траке. Нагли развој ФАС почиње 70-их година прошлог века, Kreuzer-овим истраживањима [Kreuzer,1971]. Овим експериментима је демонстрирана успешна примена ФАС у детекцији малих концентрација гасова. Након тога, започињу многобројна теоријска и експериментална истраживања у области ФАС и њене примене у детекцији веома малих концентрација гасова [Pao,1977; Patel & Tam, 1981; West et al.1983; Zharov & Letokhov,1986; Sigrist, 1986, 1994a] .

Фотоакустички ефекат открио је Bell 1880. године у чврстом узорку. ФА ефекат се јавља у свим агрегатним стањима, а побуда се може извршити зрачењем било које таласне дужине електромагнетног спектра [Terzić & Jovanović-Kurepa, 2000; Sigrist, 1986; Patel & Tam, 1981; Tam,1986]. ФА ефекат може настати континуалном или импулсном побудом [Miklós & Hess, 2000]. Импулсна ФАС је посебно погодна техника за анализу гасова у траговима, због типа фотоакустичке коморе коју користи [Miklos et al.,2001]. ФАС је калориметријски метод у коме се оптичка енергија апсорбована молекулима гаса директно мери на основу топлоте настале у узорку. Сигнали анализирају у овом раду генерисани су у смешама гасова (SF₆ +Ar и C₂H₄+Ar), након побуде импулсним CO₂ ласером. Молекули испитиваног узорка (смештеног у ФА комору), апсорбују светлост и из основног стања прелазе на више енергетске нивое. Релаксација молекула из побуђених стања може се вршити радијативним и нерадијативним каналом, путем три релаксациона механизма: емитовањем фотона (флуоресценција), сударима са другим молекулима и конвертовањем енергије апсорбованих фотона у транслациону енергију, сударима са другим молекулима при чему се првобитно побуђени молекул враћа у основно стање а побуђује се молекул који је учествовао у судару.

Механизам радијативне релаксације је важан само на ниским притисцима гаса и високим енергијама фотона (обично у електронским прелазима у ултраљубичастој и видљивој области спектра). Главну улогу у настанку ФА сигнала има механизам судара, при коме долази до трансфера енергије апсорбованог фотона у транслациону, повећања енергије молекула и до загревања узорка у области која је озрачена. Мале локалне варијације температуре изазивају варијације притиска и формирање акустичког таласа који

наставља да се креће даље од извора. Акустички талас се детектује погодним сензором (микрофоном). Фотоакустичка детекција омогућава директно праћење релаксације путем нерадијативног канала и у том смислу представља комплементарну технику другим апсорпционим и флуоресцентним техникама. Важна карактеристика ФА технике је могућност детекције забрањених оптичких прелаза. Још једна предност овог метода налази се у чињеници, да је генерисани ФА сигнал пропорционалан апсорбованој енергији, што ФАС чини погодном техником за директна мерења оптичке апсорпције, али и концентрације апсорбујућих компонената. Будући да се ФА сигнал формира након апсорпције зрачења, уколико нема апсорпције, неће бити ни сигнала.

ФАС има три основне области примене у гасним срединама:

- 1) мерење оптичких апсорпционих коефицијената гасова,
- 2) анализа микропримеса у гасовима и
- 3) одређивање релаксационих времена у гасовима.

1) Формиран акустички талас (сигнал) има одређен интензитет и облик. Интензитет и облик акустичког таласа зависе од: интензитета побуде, врсте средине кроз коју се талас простире и временских и просторних карактеристика звучног извора. Амплитуда фотоакустичког сигнала (S) пропорционална је апсорпционом коефицијенту узорка α и снази ласерског зрачења P :

$$S \propto \alpha P. \quad (1.1)$$

Детекција атмосферских полутаната у апсорпционој спектроскопији ограничена је спектралном резолуцијом и најмањом вредношћу апсорпционог коефицијента α_{min} одређеног гаса, који је могуће детектовати. На основу познате (измерене) вредности ФА сигнала, и познате вредности снаге ласерског зрачења на одређеној таласној дужини, према приказаној релацији (1.1), се може одредити оптички апсорпциони коефицијент (α) гаса. Уколико се гас састоји од више компонената, релација (1.1) се модификује, јер сигнал представља суперпозицију акустичких таласа појединих компонената. На тај начин се може одредити и укупни апсорпциони коефицијент смеше α_{tot} . Осетљивост ФА система за мерење апсорпционих коефицијената одређена је снагом ласера, осетљивошћу микрофона и конструкцијом ФА коморе [Terzić & Jovanović-Kurepa, 2000].

2) Динамички опсег мерења се уз одговарајуће модификације ФА апаратуре, може кретати у опсегу већем од 5 редова величине, што омогућава мерење широког спектра концентрација. Предност ФА метода у одређивању концентрација загађивача је у постојању

директне пропорционалности између ФА сигнала забележеног микрофоном и интензитета апсорбованог зрачења. Концентрација полутаната се може одредити на основу енергије коју је супстанца апсорбовала, уколико је претходним поступком калибрације, дефинисан фактор пропорционалности између апсорбоване енергије и интензитета ФА сигнала. Концентрације гасова присутних у вишеккомпонентним смешама, могуће је одредити мерењем ФА сигнала на низу таласних дужина изабраних на основу апсорпционих спектра индивидуалних компонената [Sigrist, 2003; Terzić & Jovanović-Kurepa, 2000].

3) Време релаксације није проучавано конвенционалним спектроскопским методама, те је једна од првих примена ФА спектроскопије, била управо одређивање времена релаксације [Gorelik, 1946; Slobodkaya, 1948]. ФАС је погодна техника за одређивање времена релаксације молекула, јер интензитет и облик ФА сигнала, зависе од енергије апсорбоване у гасу. Та енергија се путем судара претвара у топлоту узорка, те се зависност ФА сигнала од релаксационог времена, може анализирати преко зависности амплитуде и фазе сигнала од релаксационог времена [Markushev et al., 1999; Beck et al., 1985; Beck & Gordon, 1988]. Време релаксације је рачунато анализом ФА сигнала у фреквентном или временском домену, зависно од врсте побуде (континуалне или импулсне). Међутим, различите методе одређивања времена релаксације давале су прилично различите резултате. Савременији и прецизнији методи којима се истовремено одређују време вибрационо-транслационе релаксације (τ_{V-T}) и просторни профил зрачења $R(r)$ засноване су на фотоакустичкој томографији [Rabasović et al., 2007, 2008] и техникама вештачке интелигенције [Lukić et al., 2012, 2013a, 2013b]. Познавање тачне вредности времена релаксације омогућава израчунавање најважнијих физичких параметара молекула, који дефинишу понашање молекула у специфичним условима, што значајно за разумевање физичке и хемијске кинетике атмосфере.

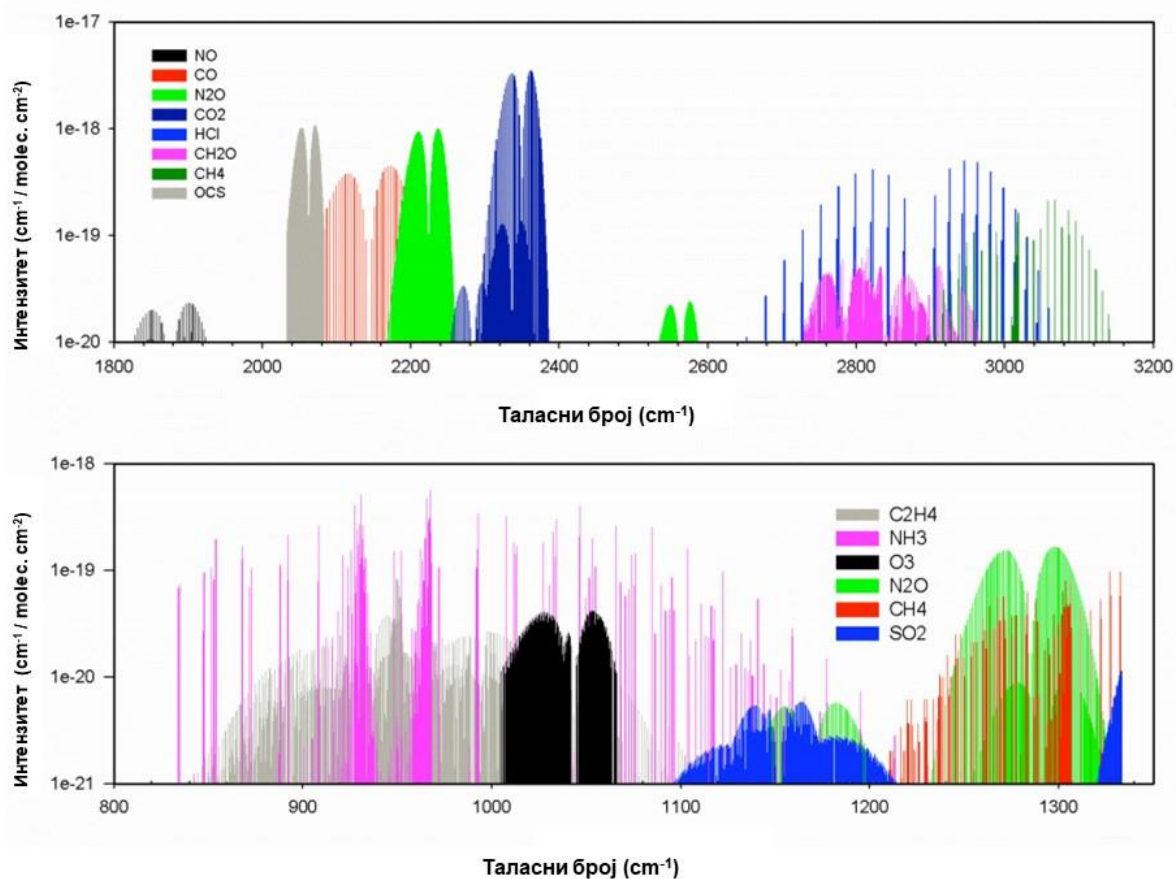
1.4. Анализа атмосферских полутаната методом фотоакустичке спектроскопије

За детекцију, праћење и анализу атмосферских полутаната развијене су различите не-спектроскопске и спектроскопске методе [Meyer & Sigrist, 1990]. Многе од не-спектроскопских метода (хемилуминесценција, гасна хроматографија) су успешно примењиване у контроли квалитета ваздуха и детекцији загађивача. Међутим, појавом и

усавршавањем ласера, почиње прогресиван развој спектроскопских техника, заснованим на мерењима апсорпције. Захваљујући томе што сваки молекул има свој карактеристични спектар апсорпције, могућа је истовремена детекција више компонената у складу са карактеристикама извора зрачења и спектралном резолуцијом детектора. За спектроскопска истраживања молекула присутних у атмосфери користе се таласне дужине у ИЦ области зрачења од 3 - 15 μm , јер у тој области молекули показују јаку апсорпцију условљену вибрационо-ротационим прелазима (слика 1.1).

Избор одговарајуће технике детекције зависи од: врсте и броја молекула које треба детектовати, минимума детектабилне концентрације, динамичког опсега и просторне и временске резолуције. ФАС представља технику детекције примењену на узорак који се налази у ФА комори. Узорак ваздуха се може транспортовати до лабораторије у којој се врши анализа или се може користити систем за детекцију који је преносив. Могућност детекције на терену има значајне предности, јер током транспорта може доћи до хемијске реакције између компонената узорка и материјала коморе. Поред тога, избором одговарајуће величине фотоакустичке коморе (мале запремине што обезбеђује брзу промену ваздуха у комори) и ласера са брзом променом фреквенције, постиже се добра временска резолуција и ефикасна детекција полутаната.

Основне карактеристике ФАС које представљају оквир за све ширу практичну примену су: могућност детекције великог броја различитих полутаната истим инструментом, велика осетљивост, велика селективност, велики динамички опсег (неопходан за мерења малих концентрација полутаната у руралним подручјима али и високих концентрација у непосредној близини извора емисије), добра временска резолуција, аутоматизован процес обраде података, једноставно руковање и могућност прилагођавања апаратуре мерењима на терену. Осетљивост ФА система расте са снагом ласера, што омогућава детекцију многих гасова у траговима у области концентрација реда sub-ppbV .



Слика 1.1 Симулирани спектар апсорпције молекула у средњој ИЦ области
Области ИЦ од 3,1 до 12,5 μ m.
Извор: [Tittel et al., 2011].

Један од првих ФА система коришћених за детекцију полутаната (слика 1.2) конструисали су Meyer и Sigrist [Meyer & Sigrist, 1990]. То је био мобилни ФА спектрометар развијен за детекцију и праћење гасова у траговима (амонијак, етилен, озон), чија је савременија верзија приказана на слици 1.3. Детекција и мерење концентрације многих атмосферских полутаната може у техничком смислу представљати велики изазов. У многим случајевима ФА апаратура може бити гломазна за теренска истраживања, а у неким случајевима апаратуру треба прилагодити и врсти испитиваних гасова. Пример успешне примене ФАС је мерење ниске, али прилично променљиве концентрације амонијака (од неколико ppb до 100 ppm), које захтева високо осетљиве инструменте, широког динамичког опсега и посебне конструкције, јер се ради о изразито поларном молекулу. У раду Rogany et al. (2009) је приказана прва примена ФА апаратуре са диодним ласером за одређивање концентрације амонијака. Диодни ласер је због мањих димензија, једноставнији за руковање и погоднији за мерења на терену од CO₂ ласера. ФА систем је успешно примењен и на мерење концентрације етилена, присутног у издувним гасовима аутомобила. Чињеница

да се концентрација етилена у атмосфери повећава, намеће строги захтев за мерењем овог полутанта на извору загађења [Kuster et al., 2005]. Процена квалитета ваздуха врши се између осталог и на основу података о концентрацији озона. Показано је у [Ajtai et al., 2010] да су ФА мерења концентрације озона за један ред величине прецизнија од претходно коришћених метода. Мерење концентрације аеросола представља још једну успешну примену ФАС [Petzold & Niessner,1996]. Осим за истраживања која се врше на земљи, ФА инструменти су се показали веома успешним и у мерењима која се врше у ваздуху [deGouw et al.,2009], посебно у мерењима концентрације водене паре која је важна са становишта доприноса ефекту стаклене баште, али и са становишта транспорта енергије [Szakall et al., 2006].

Савремени веома осетљиви и прецизни ФА инструменти користе, различите изворе побуде, конструкције комора и детекторе, како би се квалитативно унапредила ФА детекција полутаната [Spagnolo et al.,2016; Mao et al. 2016]. Допринос квалитативној ФА анализи дају и побољшања у смеру проширења динамичког опсега мерења концентрација, јер у случају високих концентрација полутаната, ФА сигнал престаје да буде линеарна и постаје растућа функција концентрације полутаната. Одговарајућим избором детектора и процеса калибрације могу се мерити не само ниске, већ и високе концентрације полутаната у ситуацијама када између сигнала и концентрације престаје да важи линеарна зависност [Zeninari et al.,2016].



Слика 1.2 Фотографија мобилног ФА система за праћење атмосферских полутаната.
Извор: [Sigrist, 2015].



Слика 1.3 Унутрашњост аутоматизованог мобилног ФА система за праћење атмосферских полутаната на терену.
Извор: [Sigrist, 1994b].

Амплитуда ФА сигнала, у случају смеше гасова која се састоји од молекула апсорбера и неапсорбујућег бафер гаса, може се једноставно приказати [Sigrist, 1994a]:

$$S(\lambda) = C\langle P(\lambda) \rangle N c \sigma(\lambda), \quad (1.2)$$

где C означава константу коморе, $\langle P(\lambda) \rangle$ је средња снага упадног ласерског зрачења на таласној дужини λ , N је густина молекула, c је концентрација молекула апсорбера и $\sigma(\lambda)$ апсорпциони пресек на таласној дужини упадног ласерског зрачења. Пропорционалност између амплитуде S ФА сигнала и апсорбоване енергије је кључна за осетљивост ФА метода. Та пропорционалност између амплитуде ФА сигнала и снаге упадног зрачења даје предност ласерима велике снаге (CO_2 ласер). За један гас апсорбер у ФА комори, најмања концентрација која се може измерити је на основу (1.2):

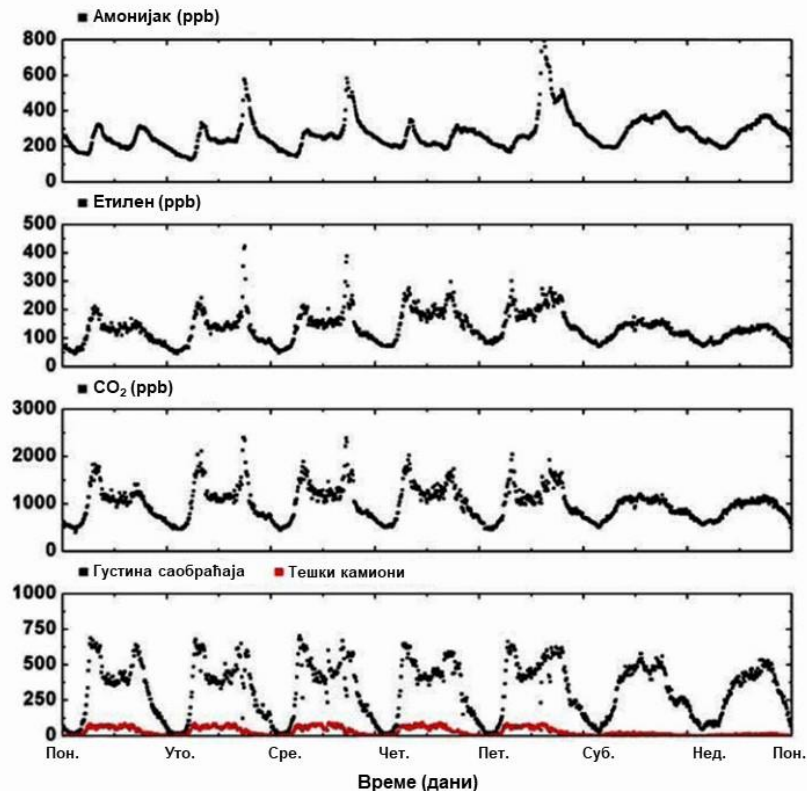
$$c_{\min}(\lambda) = \frac{S_{\min}(\lambda)}{NC\langle P(\lambda) \rangle \sigma(\lambda)}. \quad (1.3)$$

У случају вишеккомпонентне гасне смеше са неколико различитих врста апсорбујућих молекула, ситуација је компликованија и захтева модификацију релације (1.2). Сигнал $S(\lambda)$ тада представља суперпозицију свих доприноса индивидуалних апсорбујућих компоненти са концентрацијама c_j и апсорпционим пресеком $\sigma_j(\lambda)$:

$$S(\lambda_i) = C\langle P(\lambda) \rangle N_{\text{tot}} \sum_{j=1}^n c_j \sigma_j(\lambda_i), \quad (1.4)$$

$i = 1, \dots, m; j = 1, \dots, n \quad m \geq n$. Мерењем ФА сигнала на низу таласних дужина λ_i ($i = 1, \dots, m$), изабраних на основу апсорпционих спектра индивидуалних компоненти, може се наћи концентрација c_j . За фитовање мереног спектра калибрисаним спектром индивидуалних компоненти, у случају вишекомпонентне смеше, Levenberg-Marquardt-ов алгоритам се показао веома успешним [Моекли et al., 1998]. Резултати симултаног мерења, мобилним ФА системом, концентрације три компоненте (амонијака, етилена и угљен диоксида) током једне недеље, приказани су на слици 1.4 [Sigrist et al., 2008]. ФА систем је потпуно аутоматизован и постављен у мобилну приколицу, у близини извора емисије штетних гасова.

Методом импулсне ФАС биће анализирани смеше гасова SF_6+Ar и C_2H_4+Ar . Молекула SF_6 се издваја по изузетно великој вредности потенцијала глобалног загревања. Емитује се при разним индустријским процесима, топљењу алуминијума, производњи полупроводника, преношењу и расподели електричне енергије, ливењу магнезијума. Екстремно дуго време живота овог молекула (3200 година) и јака апсорпција инфрацрвеног зрачења, представљају велики потенцијал за утицај на климу у даљој будућности. У прилог потреби за интензивнијим проучавањем карактеристика овог молекула, иде и чињеница да упркос првобитном мишљењу да је безбедан по околину, јер није токсичан и не реагује са биомасом, дисоцијацијом у условима високог притиска, настају веома токсични нуспродукти (SF_5CF_3). Све поменуте карактеристике молекула SF_6 сврставају у групу потенцијално најопаснијих гасова у атмосфери, одговорних за глобално загревање и ефекат стаклене баште [Houghton et al., 2001].



Слика 1.4 Временска промена концентрација: амонијака, етилена и CO₂, као и густине саобраћаја
Приказ промена током једне недеље на излази из уличног тунела близу Цириха, Швајцарска.
Извор: [Sigrist et al. 2008].

Са друге стране, молекула етилена (C₂H₄) је атмосферски полутант настао углавном емисијом издувних гасова. Етилен потиче из различитих антропогених и природних извора. У природне изворе спадају: биљке, вулкани и шумски пожари. Осим познатог штетног ефекта који има на људе (јер у већим концентрацијама и константној изложености може довести до појаве канцера), уочено је његово штетно дејство и на биљке (посебно шуме), јер узрокује абнормалности и угинућа. Многобројне анализе ваздуха рађене у различитим урбаним областима широм света, показале су да се данас примарним атмосферским полутантима могу сматрати молекули азотних оксида NO_x и испарљиве органске компоненте (енг. Volatile Organic Compounds -VOC). Ова једињења улазе у фотохемијске реакције, формирајући секундарне полутанте, а учествују и у сложеним процесима формирања фотохемијског смога [Finlayson-Pitts & Pitts, 2000]. У групу испарљивих органских компоненти (VOC) спада и етилен (C₂H₄). У реакцијама VOC и азотних оксида NO_x уз сунчеву светлост се формира озон. Због тога, свака стратегија за контролу концентрације озона мора да укључи редукацију емисије NO_x и VOC. Уз то, последњих година све већа пажња истраживача се усмерава на анализу реакција озон-алкени (којима

припада и етилен), јер представљају значајан извор атмосферских радикала. Упркос напорима многих истраживача, механизми реакције озон-алкени у гасној фази још увек нису довољно јасни, али је извесно да се ради о реакцији са значајном продукцијом хидроксилних (ОН) радикала. Она одржава концентрацију ОН радикала на високом нивоу чак и током ноћи, када су његови фотолитички извори минимални. Реакција је веома важна са аспекта хемије тропосфере. То је довољно разлога да се посебна пажња усмери ка анализи апсорпционих и релаксационих карактеристика молекула SF₆ и C₂H₄, али и за деловање у смеру унапређења и поједностављења постојеће експерименталне апаратуре за мерење њихових концентрација.

1.5. Примена техника вештачке интелигенције у атмосферским истраживањима

Загађење ваздуха је феномен, који је у прошлости био карактеристичан за велике урбане центре и индустријске регионе. Данас је јасно да загађени ваздух у тим центрима чини само део континуума концентрација полутаната који окружује Земљу. Време живота молекула присутних у атмосфери зависи од ефикасности процеса уклањања и може да износи од неколико секунди до неколико хиљада година (3200 година за молекул SF₆). Животни циклус гасова у траговима одређен је спрегом различитих, комплексних физичких и хемијских процеса у атмосфери. Уколико је време живота неке врсте краће, њена просторна и временска расподела постаје веома променљива. Спектар варијација просторног распореда ових молекула још је шири. Да бисмо могли деловати у правцу смањења ових негативних последица, морамо разумети, велику сложеност физичких и хемијских процеса и интеракција које се дешавају у атмосфери, комплексном систему за који правила понашања нису строго дефинисана.

Атмосфера као сложен, нелинеарни систем, у коме су могуће најразличитије међусобне интеракције компонената система, представља погодно поље за успешну примену вештачке интелигенције. Приоритет у применама техника вештачке интелигенције, имају управо нелинеарни системи за које не мора нужно да постоји развијен теоријски модел. Капацитет метода вештачке интелигенције у анализирању великог броја података, успостављању образаца, толеранцији грешке, генерализацији, адаптивности и способности предвиђања на основу ранијих података, представља велики потенцијал за примене у анализи и моделовању различитих сценарија загађења ваздуха. Са наглим

развојем ових техника, посебно неуронских мрежа [Kohonen,1982; Hopfield,1982; Rumelhart, et al., 1986; Lippmann,1989], средином 80-тих година, почиње примена овог новог метода у различитим областима: атмосферским истраживањима, метеорологији, океанографији, хидрологији, али и у стварању нумеричких модела за прогнозу времена и климатских нумеричких модела [Krasnopolsky,2013; Haupt et al., 2009]. Успешна и перспективна примена вештачке интелигенције у анализи загађења и атмосферским истраживањима, потврђена је током година у радовима многих истраживача.

Вештачке неуронске мреже, а посебно вишеслојна перцептронска неуронска мрежа, која се користи за предвиђање, апроксимацију функција и класификацију узорака, употребљена је за предвиђање концентрације CO₂ у високо загађеним областима Словеније. Софтвер је имплементиран у једну од електрана у којој се врши континуирано праћење квалитета ваздуха [Voznar et al., 1993]. Неуронска мрежа је успешно примењена за предвиђање концентрација: O₃, CO₂, NO, NO₂ и NO_x, али и максималне дневне температуре, брзине и смера ветра, у индустријским областима Северне Америке [Yi & Prybutok,1996]. Динамика предвиђања лошег времена, је недовољно истражен феномен, али је корак у смеру предвиђања појаве торнада, учињен применом неуронске мреже [Marzban & Stumpf, 1996], што је дало могућност да се и овај феномен укључи у постојеће нумеричке моделе. Многобројне су примене употребе неуронских мрежа са циљем предвиђања: појаве монсуна у Индији, дневног сунчевог зрачења, атмосферске дисперзије полутаната итд. Уз способност предвиђања, неуронска мрежа има велике предности и на пољу апроксимације функције тј. у моделовању веза између постојећих података. На тај начин се може повезати концентрација озона са различитим локалним метеоролошким варијаблама [Gardner & Dorling, 1996]. Још једна важна особина неуронске мреже, способност препознавања узорака, коришћена је за идентификацију фронтова циклона и лошег времена директно са сателитских снимака. На велики потенцијал вештачке интелигенције у будућим истраживањима атмосферских полутаната указано је у раду Ćirić et al. (2012) у коме су упоређиване различите технике вештачке интелигенције: по ефикасности и прецизности процене квалитета ваздуха.

Компанија IBM је 2014. године покренула пројекат - Green horizon, с циљем решавања озбиљног, вишегодишњег проблема прекомерног загађења ваздуха у Пекингу. Стручњаци IBM-а започели су истраживање са идејом, да практично примене јединствене карактеристике вештачке интелигенције у симулирању процеса људског размишљања: опажања, расуђивања, аутоматизовања интелигентних реакција везаних за процес мишљења, доношења одлука, закључивања и свесног деловања. Чињеница је да данас

коришћење суперкомпјутера у анализи загађења, не представља новину. Допринос решавању проблема загађења представља когнитивно моделовање, засновано на интеграцији физичко-статистичких и хемијских модела. Систем који су стручњаци развили, користи механизам адаптивног машинског учења, за обучавање и прилагођавање параметара различитих модела, издвајајући онај који у специфичним ситуацијама показује најбоље понашање. На тај начин се може предвидети ниво загађења ваздуха три до десет дана унапред, са могућношћу раздвајања доприноса који потичу од различитих загађивача. Сврха оваквих анализа и пројектовања могућих сценарија загађења, је у обезбеђивању услова за правовремено реаговање кроз: привремену редукацију саобраћаја, привремено обустављања рада фабрика итд.

Захваљујући многобројним публикацијама, изузетно прецизним инструментима, социјалним мрежама, ми данас, знамо много више него било која генерација у прошлости. Обиље информација ствара неограничен број могућности за деловање у сфери унапређења квалитета живота. Научне и технолошке заједнице, чине значајне напоре на пољу синтезе постојећих сазнања кроз развој вештачке интелигенције и високо интерактивних система. Резултат је настанак нове класе тзв. когнитивних система, способних да уче и прилагођавају се средини. Идеја је да у блиској будућности когнитивни системи, постану наши „партнери“, уз чију помоћ, бисмо били спремни да у условима комплексног окружења, доносимо исправне одлуке.

2. ТЕОРИЈСКЕ ОСНОВЕ ИМПУЛСНЕ ФОТОАКУСТИКЕ У ГАСНИМ СМЕШАМА

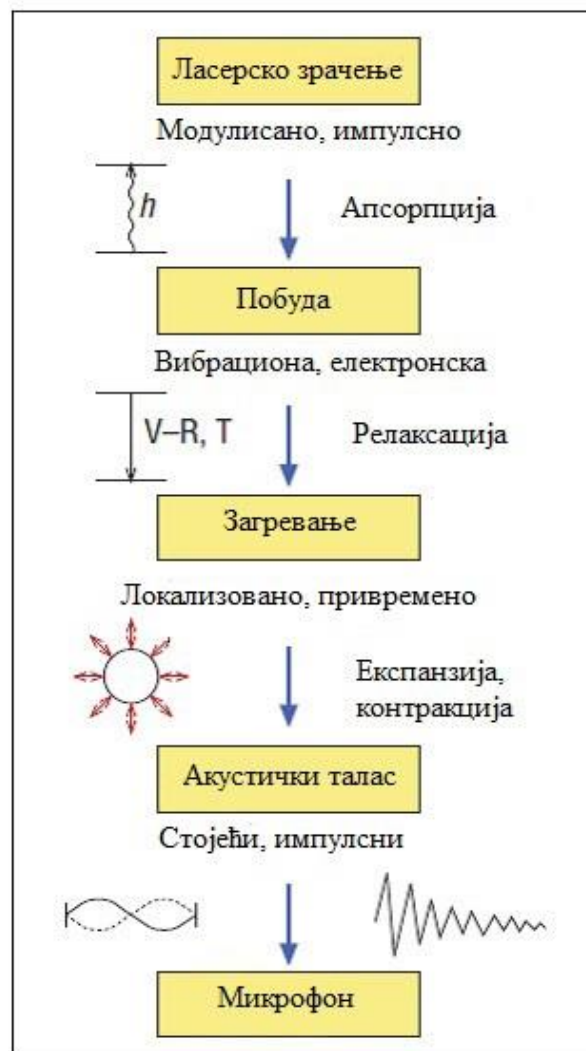
2.1. Теоријске основе импулсне фотоакустике у гасним смешама

Фотоакустички ефекат је феномен настанка звука у узорку који је озрачен нестационарним зрачењем. Фотоакустички ефекат се јавља у свим агрегатним стањима, а побуда се може извршити зрачењем било које таласне дужине електромагнетног спектра. За испитивање гасних смеша у ФАС најчешће коришћени извори зрачења су СО и СО₂ ласери. Побуда гасног узорка ласером може бити импулсна и континуална (модулисана). Анализа сигнала се у случају импулсне побуде врши у временском домену (прати се временска еволуција настале промене притиска) а у случају континуалне побуде у фреквентном домену (прати се зависност амплитуде и фазе сигнала од модуларне фреквенције). Фотоакустички ефекат је последица периодичног загревања и хлађења гаса који је апсорбовао ИЦ зрачење, при чему настаје талас притиска (звучни талас). Појава акустичких таласа у озраченом узорку последица је сложених процеса, који се ради једноставнијег проучавања могу груписати у три фазе (слика 2.1):

- 1) локализовано ослобађање топлоте у узорку услед релаксације апсорбоване енергије путем молекулских судара;
- 2) генерисање акустичких и топлотних таласа услед загревања и ширења;
- 3) побуђивање звука у ФА комори и мерење ФА сигнала микрофоном.

Процес који иницира ФА ефекат у гасу је промена насељености енергетских нивоа молекула који су у резонанцији са зрачењем. У средњој ИЦ области молекуларна апсорпција је резултат побуђивања вибрационих нивоа. Побуђени нивои могу изгубити енергију радијативним (спонтаном или стимулисаном емисијом) и нерадијативним каналом. Релаксација нерадијативним каналом доводи до загревања узорка, а подразумева релаксацију нееластичним сударом. Праћење нерадијативног канала релаксације, је могуће у случају да је време радијативне релаксације одговарајућих нивоа дуже од времена нерадијативне релаксације. Тада се значајан део апсорбоване енергије трансформише у топлотну енергију узорка. Формирање сигнала у ФАС је последица прерасподеле енергије

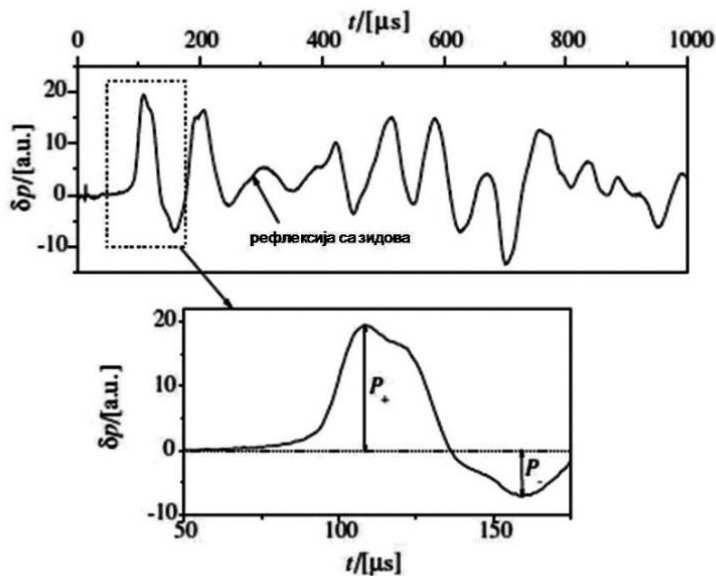
побуде у сударима. У ФАС енергија апсорбованих фотона најчешће путем вибрационо-транслационог (V-T) трансфера постаје транслациона (кинетичка) енергија молекула. Време потребно за трансфер енергије са побуђених вибрационих модова једног молекула на транслационе модове другог молекула је вибрационо-транслационо релаксационо време τ_{V-T} . ФАС је ефикасан метод за одређивање времена трансфера енергије са почетних побуђених вибрационих модова молекула на транслационе. Оваква врста трансфера енергије доводи до повећања кинетичке енергије узорка, што ФАС сврстава у групу калориметријских метода.



Слика 2.1 Шема физичких процеса насталих у узорку након оптичке апсорпције. Модулисани или импулсни извор зрачења побуђује ротациона, вибрациона или електронска стања. Сударна релаксација побуђених стања доводи до појаве акустичких таласа. Извор: [Miklos et al.,2001].

Са повећањем температуре и кинетичке енергије, услед нерадијативне релаксације, у ФА комори константне запремине, долази до повећања притиска. Да би дошло до појаве звука, настала промена мора бити периодична, што значи да функција ослобођања топлоте

у узорку мора бити временски променљива. Брзина промене има важну улогу: брза промена функције ослобођене енергије генерише звук много ефикасније него спора промена. Последица тих промена је настанак звучног (фотоакустички ефекат) и топлотног таласа (фототермални ефекат). Звучни и топлотни таласи могу се теоријски описати класичним законима: физике, механике флуида и термодинамике. Физичке величине које карактеришу фотоакустичке и фототермалне процесе су: температура, притисак, густина и три компоненте вектора брзине. Топлотни таласи се не простиру на растојања већа од неколико таласних дужина и значајни су само у области у близини извора зрачења. У ФАС се детектором директно мери само промена притиска. Теоријски модел који описује временску еволуцију ФА сигнала у импулсној ФАС подразумева следеће основне концепте: ниску апсорпцију, цилиндричну комору и геометрију ласерског снопа, занемарљиве ефекте вискозности, топлотног провођења унутар гасног узорка и зидова коморе. На слици 2.2 је приказан типичан облик ФА сигнала добијен у смеси SF_6+Ar . У интензитету и облику детектованог звучног сигнала, садржане су информације о просторним и временским карактеристикама звучног извора (побуђених молекула).



Слика 2.2 Изглед експерименталног фотоакустичког сигнала. Први максимум (P_+) и минимум (P_-) сигнала представљају стварни сигнал, док су сви остали последица рефлексија са зидова и прозора коморе. Извор:[Rabasović et al., 2007].

За већину гасова на атмосферском притиску, количина топлоте настале у узорку је пропорционална коефицијенту апсорпције узорка и упадном интензитету зрачења. Ова чињеница чини ФАС погодном за директна мерења оптичке апсорпције, јер је генерисани

звучни сигнал пропорционалан апсорбованој енергији из које се може одредити концентрација апсорбера.

За већину експерименталних поставки коришћених у ФАС, квантитативна анализа сигнала се постиже коришћењем основних једначина флуида и термодинамике, уз одговарајуће апроксимације и углавном за једноставне геометрије побуде. Претпоставља се да су промене ових физичких величина изазване апсорпцијом светлости мале у поређењу са равнотежним вредностима, те се одговарајуће једначине могу поједноставити. [Landau & Lifshitz, 1987].

Фотоакустички сигнал се анализира у временском домену. Временска еволуција импулса притиска, може се описати нехомогеном таласном једначином [Sigrist 1986, 1994a; Tam 1983, 1986; Bailey et al., 1983, Morse & Ingard 1968], која описује простирање, али и настајање звука. Таласна једначина (2.1) је линеаризована и добијена уз претпоставку да су сви процеси у средини адијабатски, што искључује нелинеарне чланове у једначини и подразумева довољно мали интензитет фотоакустичког сигнала.

$$\frac{\partial^2 \delta p(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} - c^2 \Delta \delta p(\mathbf{r}, t) = S(\mathbf{r}, t). \quad (2.1)$$

Величина $\delta p(\mathbf{r}, t)$ представља одступање притиска од равнотежне вредности, c је брзина звука у посматраној средини, а величина $S(\mathbf{r}, t)$ представља изворску функцију, која је одређена просторним и временским карактеристикама звучног извора. Анализом детектованог звучног сигнала, можемо одредити карактеристике молекула присутних у гасној смеси и просторне карактеристике извора. Информације о просторним карактеристикама звучног извора (побуђених молекула) садржане су у интензитету ФА сигнала. Просторна расподела побуђених молекула оделикава просторни профил ласерског импулса. Расподела побуђених молекула у тачки \mathbf{r} и у тренутку t , описана је функцијом енергије $E(\mathbf{r}, t)$, те се ова функција као и просторна расподела побуђених молекула, може одредити на основу познатог просторног профила ласерског снопа. Брзина ослобађања енергије $E(\mathbf{r}, t)$ је густина енергије која се ослободи из извора у јединици запремине у јединици времена. Изворска функција $S(\mathbf{r}, t)$ се може одредити на основу топлоте настале у узорку и представља извод функције $E(\mathbf{r}, t)$ по времену. Уколико претпоставимо да нема дифузије побуђених молекула из озрачене запремине пре предаје енергије побуђења, тј. да је процес дифузије много спорији од процеса релаксације, можемо функцију $E(\mathbf{r}, t)$, приказати производом две независне функције, $E(\mathbf{r}, t) = R(\mathbf{r})T(t)$. Функција $R(\mathbf{r})$ зависи само од координате, а функција $T(t)$ од времена. Функција $R(\mathbf{r})$ представља просторни део

изворске функције и одређена је геометријским карактеристикама ласерског зрачења и апсорпционим особинама средине. Временски део изворске функције $T(t)$ одређен је релаксационим особинама побуђених молекула.

Уз увођење одговарајућих апроксимација које су описане у литератури [Bailey et al., 1983], (ласерски импулс довољно кратак, тренутна апсорпција светлости, нерадијативна релаксација свих молекула, ласерски сноп и звучни извор цилиндрично симетрични) и уз познате функције $E(\mathbf{r}, t)$ и $S(\mathbf{r}, t)$, дефинисане почетне и граничне услове, можемо решити таласну једначину коришћењем различитих нумеричких метода. Један од њих је метод Fourier-ове трансформације, који се користи у случају једноставних профила ласерског зрака и експоненцијалног опадања енергије побуде. Теоријски облик ФА сигнала се добија решавањем једначине (2.1) уз претходно уведене бездимензионе параметре:

$r^* = \frac{r}{r_L}$ - редукована координата (r_L је полупречник ласерског снопа), дефинише растојање на коме ће бити рачунат ФА сигнал. Дефинише се према конкретним експерименталним условима, тј. према полупречнику ласерског зрака и удаљености микрофона од зрака.

$t^* = t/\tau_p$ - редуковано време, а $\tau_p = r_L/c$ је релаксационо време за акустички импулс или време потребно да талас притиска пређе растојање полупречника ласерског снопа,

$\varepsilon = \tau_p/\tau_{V-T}$ - бездимензиони параметар који говори о брзини ослобађања енергије побуде и представља однос релаксационог времена акустичког таласа и релаксационог времена извора (побуђених молекула)

$l = kr_L$ (k је таласни вектор)

Дефинисањем ових бездимензионих параметара, јединица дужине постаје полупречник ласерског снопа r_L , а јединица времена постаје време проласка звучног таласа τ_p . Решења таласне једначине (2.1), за једноставне профиле ласерског зрачења (top hat, Gauss, Lorentz итд) и експоненцијално опадање енергије побуде, добијена методом Fourier - ове трансформације, су ФА сигнали, чији је облик дат изразом [Beck et al. 1985]:

$$\delta p(r^*, t^*) = \frac{RE_0}{c_v V} \int_0^\infty (l^2 + \varepsilon^2)^{-1} [-\varepsilon \exp(-\varepsilon t^*) + l \sin l t^* + \varepsilon \cos l t^*] J_0(lr^*) h(l) dl. \quad (2.2)$$

У једначини је R - универзална гасна константа, E_0 - апсорбована енергија, V - озрачена запремина, C_v - специфична моларна топлота при константној запремини; J_0 - Bessel-ова функција прве врсте, нултог реда и $h(l)$ - функција која зависи од просторног профила побудног зрачења. Функција $h(l)$ у случају једноставнијих форми просторног профила ласерског зрачења има облик:

$$\text{за Gauss-ов профил} \quad h_G(l) = \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{1}{4}l^2\right), \quad (2.3a)$$

$$\text{за top hat профил} \quad h_{th(l)} = \frac{J_1(l)}{l}, \quad (2.3b)$$

$$\text{за Lorentz-ов профил} \quad h_L(l) = K_0\left(\frac{1}{2}l\right), \quad (2.3в)$$

где је J_1 - Bessel-ова функција прве врсте првог реда и K_0 - модификована Bessel-ова функција нултог реда.

Метод Green-ових функција се користи за решавање таласне једначине (2.1) у случају сложенијих профила ласерског зрачења и сложенијих динамика релаксације (описаних неекспоненцијалним функцијама), тј. погоднији је за рад са произвољним изворским функцијама. Први корак у решавању линеаризоване таласне једначине (2.1) методом Green-ових функција је као и у претходном методу, дефинисање изворске функције $S(\mathbf{r}, t)$. Опште решење таласне једначине коришћењем метода Green-ових функција [Beck & Gordon, 1988] за експоненцијално опадање енергије побуде се може приказати у облику:

$$\delta P(\mathbf{r}, t) = \int d^3\mathbf{r}' \int dt' g(\mathbf{r}, t|\mathbf{r}', t') S(\mathbf{r}', t'), \quad (2.4)$$

где је $g(\mathbf{r}, t|\mathbf{r}', t')$ Green-ова функција за дводимензионалну таласну једначину, $S(\mathbf{r}, t)$ је изворска функција. Функција $G(r, t - t')$ је усредњена Green-ова функција преко просторног дела $R(\mathbf{r})$ густине енергије $E(\mathbf{r}, t)$ у цилиндричној геометрији:

$$G(r, t - t') = \frac{1}{2\pi c} \int_0^{2\pi} d\theta \int_0^r \frac{R(r') r' dr'}{[(t-t')^2 - r^2 + (2r \cos\theta) r' - r'^2]^{1/2}}, \quad (2.5)$$

где су r и θ цилиндричне координате. Облик акустичког сигнала је тада:

$$\delta P(r, t) = -\frac{\partial T(0)}{\partial t} G(r, t) - \int_0^t \frac{\partial^2 T}{\partial t^2} G(r, t - t') dt'. \quad (2.6)$$

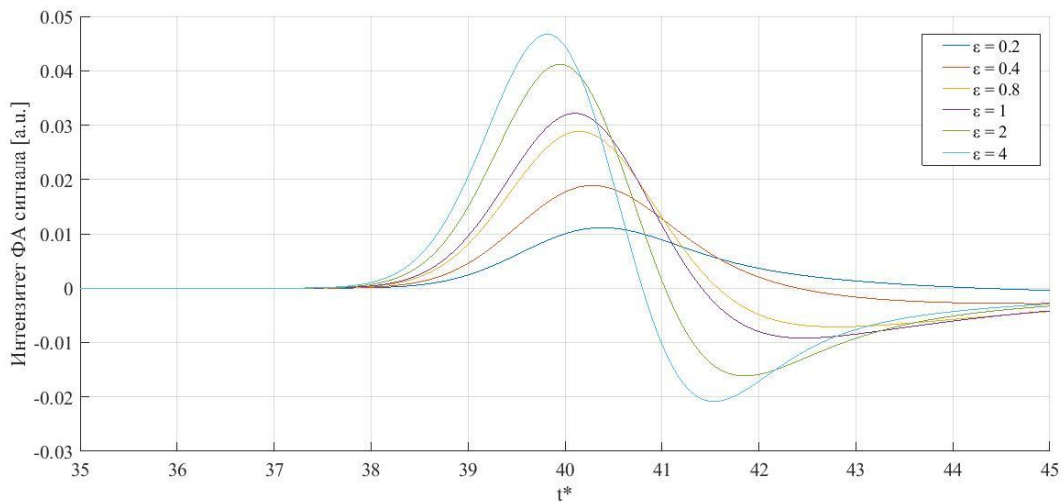
Акустички талас настао релаксацијом молекула састоји се од једног максимума, амплитуде I_+ и једног минимума амплитуде I_- (слика 2.2). Временски облик фотоакустичког сигнала одређен је вредностима параметара ε и r^* . Однос минимума (I_-) и максимума (I_+) сигнала [Beck & Gordon, 1988], је монотono растућа функција бездимензионог параметра ε

$\left(\frac{I_-}{I_+} = f(\varepsilon)\right)$. Вредност параметра ε говори о брзини релаксације: за $\varepsilon \rightarrow 0$ енергија побуде се споро ослобађа и нема импулса притиска, док се за вредност $\varepsilon \rightarrow \infty$ тренутно ослобађа енергија извора у виду топлоте и настаје максималан поремећај притиска и максимална амплитуда таласа (слика 2.3). Релаксационо време τ_{V-T} се може израчунати на основу везе која постоји између односа амплитуда $\frac{I_-}{I_+}$ и параметра ε , чија је зависност од релаксационог времена дата релацијом $\varepsilon = \tau_p/\tau_{V-T}$.

Квантитативна веза између $\frac{I_-}{I_+}$ и ε зависи од геометрије запремине побуђеног гаса и закона по коме се врши ослобађање енергије побуде (експоненцијални или неекспоненцијални). Релаксација молекула се у најједноставнијем случају може представити експоненцијалном функцијом:

$$T(t) = e^{-\varepsilon t^*}, \quad (2.7)$$

у којој t^* представља редуковано време.



Слика 2.3 Теоријски фотоакустички сигнали рачунати за различите вредности параметра ε . Фотоакустички сигнали рачунати за Gauss-ов профил ласерског зрачења, константну вредност $r^*=40$ и различите вредности параметра $\varepsilon \in (0.2, 0.4, 0.8, 1, 2, 4)$ у функцији бездимензионог параметра t^* . Интензитет ФА сигнала је приказан у произвољним јединицама (енг. arbitrary units –a.u.)

Да би се из облика сигнала могло одредити време релаксације, потребно је унапред знати временски облик изворске функције, тј. закон опадања енергија побуде. Уколико се однос амплитуда не мења са нивоом побуде молекула, можемо говорити о релаксацији

молекула која се одвија по експоненцијалном закону. ФА сигнали за различите вредности ε и експоненцијално опадање енергије побуде приказани су на слици 2.3.

2.2. Мултифотонски процеси

Након проналаска ласера у многобројним експериментима су уочени до тада непознати ефекти, настали интеракцијом јаког електромагнетног поља зрачења и материје. У интеракцији зрачења и материје, квантни систем (атом, молекул) може да апсорбује велики број фотона (десетине фотона) и пређе у побуђено стање. Овај феномен је назван мултифотонска апсорпција (МФА). Теоријско описивање процеса мултифотонске побуде (МФП) и апсорпције (МФА) је било веома захтевно, а чињеница да ни прелази између побуђених вибрационо-ротационих стања вишеатомских молекула нису били довољно истражени, чинила је проблем још сложенијим. Први експерименти МФА са симетричним молекулима, као што су SF_6 и SiF_4 , дали су информације о до тада недовољно истраженим спектрима прелаза између побуђених и посебно високопобуђених вибрационих нивоа вишеатомских молекула. Интерпретација спектра МФА је много комплекснија од интерпретације спектра насталих апсорпцијом једног фотона, првенствено због чињенице да дата апсорпциона карактеристика представља збирни ефекат многобројних енергетских прелаза насталих након апсорпције већег броја фотона. Будући да је у највећем броју истраживања анализа МФ апсорпције дата на примеру молекула SF_6 , с правом се улога овог молекула у МФ апсорпцији може поредити са улогом коју има водоников атом у истраживањима једнофотонске апсорпције.

Резултати различитих студија [Bagratashvili et al.,1976; Letokhov 1983] о процесима МФ апсорпције код вишеатомских молекула, дају веома важне информације о физичким карактеристикама апсорбујућих молекула, као што су: број апсорбованих фотона по молекулу, повећани и диференцијални апсорпциони пресек, параметри вибрационе структуре молекула, ниво дисоцијације и параметри ротационе релаксације. Анализом спектра МФ апсорпције уочен је помак, који настаје услед промене у вибрационој фреквенцији молекула, када атоми који вибрирају имају различите изотопске масе. Од тада почињу истраживања у области ласерског издвајања изотопа, али и селективне побуде молекулских вибрација и хемијске везе. Наравно, експерименти МФ апсорпције су током

година постали основни начин добијања и анализе вибрационих и ротационих спектра вишеатомских молекула.

Мултифотонска побуда и апсорпција показују карактеристике које не зависе од конкретне врсте молекула, већ имају општи карактер. За разлику од идеалног хармонијског осцилатора који има подједнако удаљене енергетске нивое, растојање између вибрационих нивоа реалног двоатомског молекула смањује се са растојањем, а молекуларне вибрације вишеатомских молекула показују још сложеније понашање. Са повећањем масе молекула повећава се и густина вибрационих стања. Велика густина вибрационих стања основна је карактеристика вишеатомских молекула. Одређено вибрационо кретање вишеатомских молекула можемо посматрати као суперпозицију неколико вибрација, које називамо нормалним модовима. У првој апроксимацији, сваки нормални мод вибрира независно. Као и код двоатомских молекула код којих долази до појаве анхармонизма вибрација (услед смањења растојања између суседних вибрационих нивоа), анхармонизам вибрација и код вишеатомских молекула ограничава ефикасну апсорпцију фотона. Осим овог рестриктивног фактора, у анализи апсорпције ИЦ енергије, постоји и низ додатних ограничења. Молекули гасног узорка имају различиту ротациону и транслациону енергију, што утиче на потенцијал за апсорпцију ИЦ зрачења. Како оптимална фреквенција за апсорпцију варира са ротационим и транслационим енергетским стањима, само се одређен број молекула може побудити у више вибрационо стање. Транслационо кретање не утиче на унутрашњу молекулску структуру, али доводи до Доплеровог ширења апсорпционе карактеристике. Комбинација вибрационог и ротационог кретања доводи до великог броја могућих прелаза, па се једна вибрациона линија састоји од апсорпционе траке која садржи хиљаде појединачних ротационих прелаза. Већина вишеатомских молекула има одређен степен ротационе побуде и пре примене ласерског зрачења. Међутим, расподела молекула по ротационим и транслационим стањима, се може променити у нееластичним сударима. На ниским притисцима се апсорпција одвија у скоро бесударном режиму.

На основу многобројних истраживања процеса МФ апсорпције и дисоцијације вишеатомског молекула у јаком ИЦ пољу, може се формирати општи модел МФ побуђења. За теоријско објашњење МФ процеса погодно је разматрати апсорпцију ИЦ фотона молекулом, у бесударном режиму. Упрошћени модел приказан на слици 2.4 чине четири стадијума [Letokhov, 1983].

- 1) област дискретних стања, са нисколежећим нивоима, који се могу описати и класичном теоријом и на којима је могућа резонантна побуда;

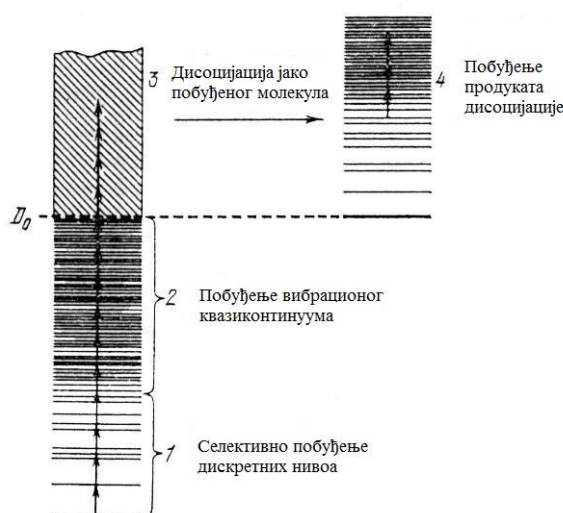
- 2) област високопобуђених стања, са карактеристичном великом густином стања - област вибрационог квазиконтинуума;
- 3) област у којој долази до дисоцијације – молекула апсорбује износ енергије довољан за дисоцијацију;
- 4) област у којој се дешава накнадна дисоцијација вишеатомских продуката услед јаког побуђења.

1) На нижим вибрационим прелазима, у ИЦ пољу умереног интензитета, могуће је резонантно, изотопски селективно вишестепено побуђење молекула. Са порастом нивоа побуде долази до израженије појаве анхармонизма, која је одговорна за одступање између фреквенције ласерског зрачења и резонантне фреквенције за побуду неког следећег нивоа. Треба нагласити да у случају великих интензитета ИЦ поља, прелази могу настати чак и ако се фреквенција поља не поклапа са фреквенцијом прелаза (јако поље зрачења шири апсорпциону линију, па је могућа апсорпција на крилима спектралне линије). То значи да поред резонантне апсорпције, увек постоји неки износ нерезонантне апсорбоване енергије који расте са повећањем интензитета ласера. Захваљујући компензацији анхармонизма могућа је вишестепена побуда. Уколико на неком од нижих прелаза не дође до компензације анхармонизма, при довољно великим интензитетима су могући дво- и трофотонски вибрациони прелази са интермедијалним нивоима блиским резонантним.

2) Следећи стадијум у процесу МФ побуде укључује енергетске нивое за које је приметно знатно одступање фреквенције ласерског зрачења од резонантне фреквенције потребне за прелаз на виши ниво. Побуђењем вишеатомских молекула на горње вибрационе нивое нагло расте број могућих вибрационих прелаза из датог вибрационо-ротационог стања. То је условљено великом густином вибрационих нивоа молекула са великим бројем степена слободе и њиховом интеракцијом. У том средњем региону побуђена стања резонантног мода „мешају“ се са другим стањима (вибрационим стањима исте енергије са различитим карактеристикама нормалног мода). Разлог „мешања“ стања је то, што вибрације нормалног мода нису потпуно независне. Овај процес доводи до помераја и ширења побуђеног стања молекула. На тај начин се формира квазиконтинуум, чиме се компензује анхармонизам и омогућава даља апсорпција фотона (јер се повећава број стања доступних за апсорпцију). Ласерска побуда квазиконтинуума је резонантна, али је природа побуде другачија од побуде појединачних нормалних мода, која се дешава на нижим нивоима. Стања у квазиконтинууму имају другачију динамику услед јаког „мешања“ нивоа. Из тог разлога спектар вибрационих прелаза између високо побуђених стања нема оштар резонантни карактер као за ниже прелазе. За означавање широких трака и релативно слабог спектра

прелаза између њих, прихваћен је термин „вибрациони квазиконтинуум“. Уколико је интензитет ИЦ импулса довољно велики, вишеатомски молекул може да се нађе на вишим вибрационим нивоима квазиконтинуума, чак и ако је вредност апсорпционог пресека мала.

3) Трећи могући стадијум МФ процеса је распад молекула на фрагменте, уколико је вредност апсорбоване енергије већа од вредности енергије дисоцијације. При великим интензитетима зрачења, молекул може да добије енергију која је упоредива са енергијом дисоцијације. Она се расподељује између многобројних вибрационих степена слободе, јер у апсорпцији на прелазима у вибрациони квазиконтинуум учествују многобројне сложене вибрације. У том региону се дешава дисоцијација сложеног молекула.



Слика 2.4 Модел процеса дисоцијације вишеатомског молекула у јаком инфрацрвеном пољу зрачења

1. стадијум- резонантно побуђење нисколежећих вибрационих нивоа; 2. стадијум- јако побуђење молекула у области вибрационог квазиконтинуума (област високопобуђених стања); 3. стадијум- дисоцијација (распад) молекула који је апсорбовао енергију упоредиву са енергијом дисоцијације; 4. стадијум- накнадно јако побуђење и дисоцијација вишеатомских продуката распада. Извор:[Letokhov,1983].

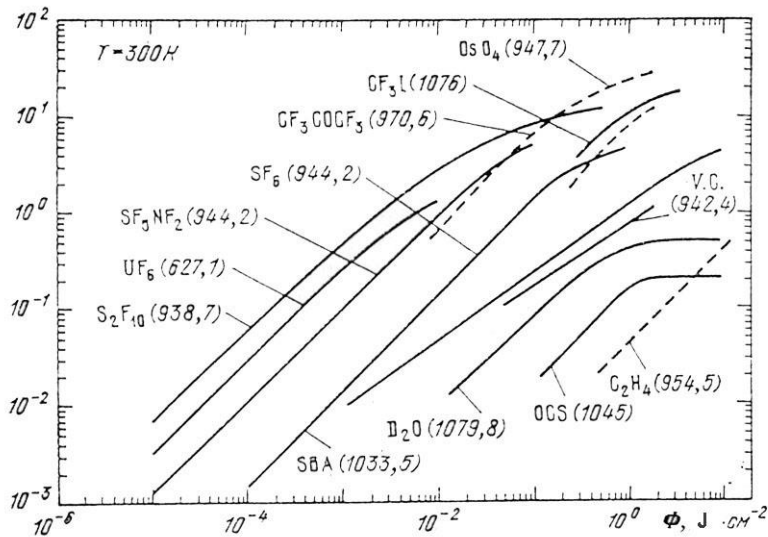
4) Сукцесивна дисоцијација вишеатомског молекула и његовог остатка је последњи могући стадијум процеса распада вишеатомског молекула у јаком ИЦ пољу.

Удео сваког стадијума у процесу МФ побуђења и дисоцијације може се мењати у зависности од врсте молекула. Молекуле испитиване у овом раду, карактерише различита граница вибрационог континуума. Молекул SF_6 има врло ниско постављену границу вибрационог квазиконтинуума и одмах почиње да врши прелазе у квазиконтинуум. Молекул C_2H_4 има високоу границу квазиконтинуума и то се одражава на вредност

апсорбоване енергије. Подела процеса на стадијуме је условна, а у којој мери је дати модел МФ побуђења и дисоцијације применљив на конкретни молекул, може се знати тек када се испитају карактеристике МФ побуђења и дисоцијације у широком дијапазону интензитета ИЦ поља. Многобројна истраживања МФ процеса су показала да је много погодније у експериментима, али и теоријским разматрањима користити густину енергије зрачења Φ , уместо интензитета [Luman et al., 1986]. Густина енергије ласерског зрачења Φ рачуна се за дати интензитет I ласерског зрачења и при задатој дужини импулса τ_i . У циљу квантитативног поређења резултата различитих студија, било је неопходно дефинисати универзалне променљиве, помоћу којих би се могли приказати резултати за велики број вишеатомских молекула и избегло коришћење додатних променљивих (унутрашњи параметри молекула, карактеристике поља зрачења или термодинамичке карактеристике гаса). Процес МФ побуде и апсорпције може се окарактерисати средњом енергијом апсорбованом по молекулу $\langle E \rangle$ или средњим бројем апсорбованих ИЦ фотона $\langle n \rangle$, енергије $h\nu$. Ова основна величина за описивање МФ апсорпције се одређује мерењима апсорбоване ИЦ енергије у озраченој запремини, тако што се израчуната апсорбована енергија расподељује подједнако на све молекуле присутне у запремини. Овакав начин дефинисања броја апсорбованих фотона подразумева да су сви молекули у озраченој запремини укључени у процес МФ апсорпције. Претпоставка важи када су примењени ласери великог интензитета зрачења, али не и за умерене интензитета побуде. Пре побуђења, молекули су расподељени по многобројним ротационим стањима, у оквиру основног вибрационог нивоа. Тај ефекат је познат као ефекат „уског грла“ [Letokhov, 1983]. Валидне информације о МФ процесу можемо добити само уколико је претходно одређен број молекула f , укључених у процес МФ апсорпције и зависност тог броја од густине енергије зрачења Φ . Потврђено је у низу експеримената да се процес МФ апсорпције за већину вишеатомских молекула, може приказати као једнозначна функција густине енергије Φ . Квантитативне разлике МФ апсорпција код вишеатомских молекула, се огледају у разликама између апсорпционог пресека $\sigma(\Phi)$ и броја фотона апсорбованих по молекулу $n(\Phi)$. Важну улогу у експериментима МФ апсорпције могу имати судари, не само у смислу деексцитације молекулских вибрација, већ и у вибрационој побуди других молекула.

Фотоакустичка спектроскопија је веома погодна техника за праћење процеса МФ апсорпције вишеатомских молекула. У првим ФА експериментима МФ побуђења и апсорпције [Bagratashvili et al., 1976], показано је да вишеатомске молекуле карактерише монотони раст апсорбоване енергије са порастом интензитета зрачења. То говори о

побуђењу вибрационог нивоа $\nu = 1$ или истовремено више вибрационих нивоа и о постепеном расту средњег нивоа вибрационог побуђења са повећањем интензитета I или густине енергије зрачења Φ . На слици 2.5. је приказана зависност средњег броја апсорбованих ИЦ фотона $\langle n \rangle$ од густине енергије зрачења Φ .



Слика 2.5 Зависност средњег броја фотона $\langle n \rangle$, апсорбованих једним молекулом, од густине енергије ласерског зрачења Φ .

Слика приказује карактеристике апсорпције различитих вишеатомских молекула на фреквенцијама зрачења означеним у заградама. Извор: [Letokhov,1983].

Каснији експерименти су показали да број побуђених молекула расте од релативно малих вредности до максималне вредности 1, са повећањем густине енергије зрачења Φ . Разлог томе је формирање две групе молекула. Молекули који учествују у процесу МФ побуђења, образује групу вибрационо „врућих молекула“ тј. јако побуђених молекула. Преостали део молекула остаје на нижим вибрационим нивоима и образује групу вибрационо „хладних молекула“, у условима који се не разликују много од почетних. За коректно описивање процеса МФ побуђења и апсорпције потребно је урачунати ефекат ротационог грла, као и ефекат формирања две групе молекула. Међутим, са порастом густине енергије зрачења Φ (до неколико Jcm^{-2}) побуђују се сви молекули тј. долази до образовања само једног - врућег ансамбла. У тим условима није неопходно урачунати ефекат образовања две групе молекула [Letokhov,1983].

За метод интелигентне ФАС и његову примену у анализи гасова у траговима који је предложен у овом раду, важна карактеристика МФА је зависност броја апсорбованих фотона по молекулу од густине енергије ласерског зрачења Φ . Зависност од Φ показују и

друге важне величине које се могу одредити ФА методом (диференцијални пресек, повећани пресек итд.). Међутим, често се због немогућности да се прецизно одреди вредност Φ у експерименту, зависност поменутих величина од Φ замењује зависношћу од неке друге променљиве, коју је могуће прецизније дефинисати [Kwok et al., 1981; Terzić et al., 2003].

2.3. Молекулске релаксације

Апсорпцијом ласерског зрачења одговарајуће фреквенције, долази до промене густине насељености енергетских ниво молекула. Време у току којег се систем враћа у равнотежно стање, је време релаксације. Систем постиже равнотежно стање путем размене енергије између молекуларних модова једног молекула (релаксације вибрационо-вибрационог V-V типа) или путем размене енергије са молекуларним модовима других молекула (релаксације вибрационо-транслационог V-T, ротационо-транслационог R-T и вибрационо-вибрационог V-V типа). У том смислу се време релаксације може дефинисати и као просечно време потребно за успостављање равнотеже између два мода током процеса трансфера енергије. Да би слика о процесима размене енергије, посебно у случају вишеатомских молекула који могу бити веома сложени, била јаснија развијени су различити методи. Преглед акустичких метода за одређивање времена релаксације дао је Lambert [Lambert,1977]. За проучавање V-V трансфера погодни су: метод ласерски индуковане флуоресценције и метод двоструке резонанције [Weitz & Flynn,1974; Yuan & Flynn,1973; Yuan et al., 1973]. Фототермалне технике су показале предност у проучавању V-T размене. Проучавање трансфера енергије између вибрационих и транслационих модова молекула фотоакустичким методом први је предложио Gorelik (1946), а касније реализовали многи истраживачи. Гас озрачен модулисаном ласерском светлошћу, апсорбује енергију ИЦ активним вибрационим модовима и загрева се након извесног времена кашњења, одређеног брзином трансфера енергије. Долази до флукуација притиска, чија се фаза разликује од фазе упадног зрачења. Анализом зависности фазе акустичког притиска од фреквенције модулисаног зрачења, могу се добити информације о V-T трансферу енергије у гасу.

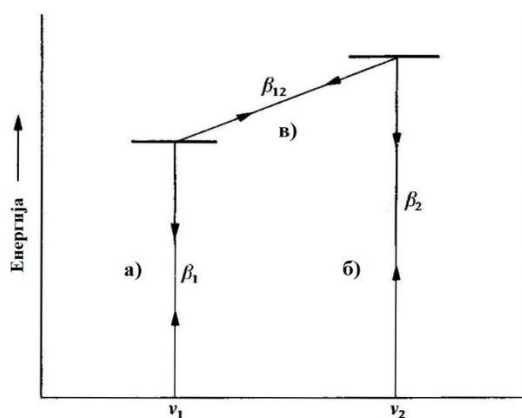
У највећем броју случајева су за релаксацију побуђених молекула и одговарајуће трансфере енергије одговорни нееластични судари. Међутим, сваки судар не доводи до размене енергије. У којој ће мери сударна релаксација бити ефикасна, зависи од енергије коју имају сударни партнери. Фотоакустички метод карактерише ефикасна конверзија

апсорбоване енергије фотона у транслациону енергију. Предност ФАС у односу на друге технике, представља и могућност селективног побуђења и праћења релаксационих процеса индивидуалних стања вишеатомских молекула. Процес трансфера енергије у транслациону није тренутан и укључује неколико механизма, те временски оквир за релаксацију обухвата опсег од фемтосекунде до секунде. Фактори који утичу на брзину релаксације неког побуђеног стања су: природа побуђеног стања, постојање међунивоа, који такође могу учествовати у релаксацији, природа узорка, концентрација свих молекула присутних у узорку, али и број судара, температура и притисак. Скоро истовремено са ласерском побудом почињу ротационо-ротациони (R-R), ротационо-транслациони (R-T) и транслационо-транслациони (T-T) трансфери енергије. Релаксација T-T типа се дешава путем судара. Овај процес је ефикасан, јер нема захтева за одређеним износом енергије, а потребан број судара за овај трансфер је мали (1-10). Релаксације R-R и R-T типа су високо ефикасни процеси услед мале разлике у енергији између нивоа. Релаксација R-R типа се дешава брже од чисто транслационе T-T релаксације. Молекули са великом вредношћу сталног диполног момента, релаксирају много брже него неполарни молекули, због дугодоментне диполне интеракције [Flygare,1968]. Релаксација R-T типа је индукована сударом и релаксационо време има око 100 пута већу вредност од времена R-R релаксације. То је последица геометријских фактора, који такође утичу на ефикасност судара. Због великог броја насељених ротационих нивоа, времена релаксације за R-R и R-T зависе од степена пертурбације равнотежног стања. Време потребно да дати молекул постигне равнотежну насељеност зависи од почетне расподеле насељености нивоа. Након брзих R-R, R-T и T-T процеса следећа по временској скали је V-V релаксација. Уз овај тип релаксације, у групу вибрационих релаксација спадају: вибрационо-ротациона (V-R) и вибрационо-транслациона (V-T) релаксација. Последње две релаксације су сличне и често се дефинишу као V-R /T релаксација. V-V и V-T релаксација се разликују једна од друге и по временској скали за релаксацију, али и по начину на који се енергија побуде расподељује дуж степена слободе. Процес V-T релаксације је дужи од V-V процеса, између осталог и због тога што започиње тек након већег броја судара (1000-10000). Време V-T релаксације које одређујемо ФА методом (и које смо дефинисали као време потребно за успостављање равнотеже између модова) разликује се од времена живота индивидуалног стања, које се такође користи за карактеризацију релаксације побуђеног стања. Време живота индивидуалног нивоа је средње време које молекул проведе у неком електронском, вибрационом или ротационом стању, пре преласка на други ниво. Време живота нивоа се може добити из спектроскопских мерења ширине линије. Иако време живота

индивидуалног стања зависи од истих параметара као и релаксационо време, краће је од релаксационог времена, јер подразумева прелазе на све нивое, а не само на оне који доводе до повећања транслационе енергије. Метод ФАС није осетљив на индивидуалне трансфере енергије, већ само на укупно учешће свих релаксационих процеса: „То значи да релаксационо време које се мери у експерименту није средње време живота побуђеног мода, него је време током ког енергија, која је иницијално ушла путем једног мода остаје зааробљена у различитим вибрационим модовима. То укупно релаксационо време, може бити сложена функција различитих релаксационих времена за прецизно дефинисане процесе“ [Cottrell et al.,1966].

Вишеатомски молекули имају више активних вибрационих модова, који се могу релаксирати потпуно независно, што анализу могућих начина релаксације и трансфера енергије чини веома сложеном. У општем случају могућа су два гранична типа релаксације. Први тип релаксације карактерише независна побуда различитих модова, при чему сваки има различито време релаксације τ_1, τ_2, τ_3 , итд. Други тип релаксације, који је применљив на већину вишеатомских молекула је директна побуда једног мода са релаксационим временом τ_1 . У овом случају енергија се преноси са побуђеног на друге модове са релаксационим временима $\tau_{12}, \tau_{13}, \dots$ итд. Вредности $\tau_{12}, \tau_{13}, \dots$ су занемарљиво мале у поређењу са релаксационим временом τ_1 . Енергија „улази“ у молекул директном побудом једног мода и расподељује се на друге модове. На слици 2.6 [Lambert,1977] је приказан пример молекула са два активна вибрациона мода фреквенција ν_1 и ν_2 и три могућа вибрациона прелаза. Трансфером транслационе енергије са вибрационог нивоа $\nu = 0$ на ниво $\nu = 1$ побуђује се мод ν_1 са релаксационим временом τ_1 . Трансфером транслационе енергије са вибрационог нивоа $\nu = 0$ на ниво $\nu = 1$ побуђује се мод ν_2 са релаксационим временом τ_2 . Могућ је и сложени трансфер кванта вибрационе енергије са мода ν_1 , уз одговарајуће повећање транслационе енергије за побуду мода ν_2 , са одговарајућим релаксационим временом τ_{12} . За дати модел, најбржи релаксациони процес ће бити сложени трансфер (в), а најспорији, V-T релаксација мода ν_2 кроз процес (б). То значи да је $\tau_2 > \tau_1 > \tau_{12}$. Вибрациона енергија тада улази у молекул путем процеса а) и брзо тече кроз сложене сударе до брзог процеса в) до горњег мода. Процес б) је сувише спор да би имао било какву функцију. Овај механизам, окарактерисан је простим релаксационим временом τ , које је повезано са τ_1 релацијом $\tau = (C_S/C_1)\tau_1$, где је C_S укупни вибрациони топлотни капацитет, а C_1 топлотни капацитет одговарајућег мода који се директно побуђује сударом (ν_1). Ова

једначина позната је као Schäfer-ова једначина. Једначина описује прост релаксациони процес, са једним укупним временом релаксације τ .



Слика 2.6 Дијаграм енергијских нивоа који показује прелазе за молекуле са два активна вибрациона мода
Извор: [Lambert,1977].

Овај тип релаксације карактеристичан је за вишеатомске молекуле са расподелом фундаменталних фреквенција таквом, да постоји само мала разлика између најниже и осталих фреквенција. За највећи број вишеатомских молекула релаксација се одвија кроз појединачни вибрационо релаксациони процес, који укључује целокупну вибрациону топлоту садржану у молекулу. Разлог томе је врло брз V-V трансфер енергије који одржава сталну равнотежу вибрационе енергије између активних фундаменталних мода. Укупна вибрациона топлота молекула се, после тога, релаксира у појединачном V-T трансферу енергије који се одвија обично кроз мод најниже фреквенције (који најчешће има највећу брзину V-T релаксације). Главни фактор који одређује вероватноћу побуде најнижег мода је његова фреквенција и присуство или одсуство водониковог атома у молекулу [Lambert & Salter,1959]. За молекуле који садрже два или више водоникова атома V-T трансфер ће бити вероватнији, него за друге молекуле. Можемо закључити да присуство водониковог атома у вишеатомским молекулима у многоме повећава вероватноћу енергетског трансфера између вибрације и транслације у сударима. Типичан пример оваквог модела релаксације, са брзим V-V трансфером који прати V-T релаксација укупне вибрационе енергије кроз један мод, је молекул SF₆.

Ефикасност енергетског трансфера, као што је већ поменуто, у уској је вези са укупним бројем судара, које доживи један молекул у секунди Z [Lambert,1977]. Landau и Teller су први развили елементарну теорију трансфера вибрационе енергије. По овом

теоријском моделу се може израчунати средња вероватноћа по судару (P_{10}), за вибрациони трансфер ν ($1 \rightarrow 0$). Будући да не доводи сваки судар до ефикасног трансфера енергије, дефинише се средњи број судара (Z_{10}) потребан за релаксацију молекула са вибрационог стања $\nu = 1$ на стање $\nu = 0$. Број Z_{10} представља реципрочну вредност вероватноће трансфера $Z_{10} = 1/P_{10}$. Средње време потребно за релаксацију молекула из стања $\nu = 1$ у стање $\nu = 0$, је:

$$\tau = \frac{Z_{10}}{Z} = Z_{10}/4n\sigma^2(\pi kT/m)^{\frac{1}{2}}. \quad (2.8)$$

где је укупан број судара које доживи један молекул у секунди $Z = 4n\sigma^2(\pi kT/m)^{1/2}$, а m молекуларна маса и σ растојање молекула при нултој енергији. Параметар τ је вибрационо релаксационо време, које представља карактеристично време за успостављање равнотеже између транслационог кретања и међумолекуларних вибрација. Број Z је пропорционалан концентрацији молекула n и притиску, па ће релаксационо време τ бити инверзно пропорционално притиску. Због погодности се релаксационо време увек дефинише на притиску од 1 atm. Важна полазна претпоставка је да се трансфер ν ($1 \rightarrow 0$) може десити једино у случају да се молекул у стању $\nu = 1$ судара са другим молекулом у стању $\nu = 0$ (подразумева се да су сви остали молекули у том стању). Између ова два стања молекули су расподељени сагласно Болцмановој расподели. Процес је реверзибилан и по принципу детаљне равнотеже, за вероватноћу P_{01} за инверзни трансфер, мора важити $P_{01} = P_{10} \exp(-\frac{h\nu}{kT})$. Урачунавајући ту чињеницу, коректна форма релације је:

$$Z_{10} = Z\tau\{1 - \exp(-h\nu/kT)\} = P_{10}^{-1}. \quad (2.9)$$

У експериментима се обично мери релаксационо време τ , а на основу те вредности се директно помоћу релације (2.9) могу одредити вредности P_{10} и Z_{10} .

Квантно-механички метод за одређивање вибрационог релаксационог времена у гасовима, за двоатомске молекуле, развили су Schwartz, Slawsky and Herzfeldl, познат као SSH теорија. Ова теорија даје семи-квантитативна објашњења за већину основних величина вибрационог трансфера енергије и предвиђа понашање једноставних молекула. Теорија SSH је широко коришћена за квантитативно поређење са експерименталним мерењима вибрационе релаксације. Тај метод је проширен и примењен на вишеатомске молекуле Tanczos-овом једначином. Релаксација вишеатомских молекула је комплекснија, јер за

разлику од двоатомских, вишеатомски молекули имају више активних вибрационих модова и сваки појединачно доприноси укупном молекулском вибрационом топлотном капацитету, а може се релаксирати потпуно независно. Вишеатомски молекули су структурно флексибилни и могу да промене свој ефективни облик током нормалних вибрација и током судара [Lambert,1977].

3. ТЕХНИКЕ ВЕШТАЧКЕ ИНТЕЛИГЕНЦИЈЕ У ИМПУЛСНОЈ ФОТОАКУСТИЧКОЈ СПЕКТРОСКОПИЈИ

3.1. Неуронске мреже

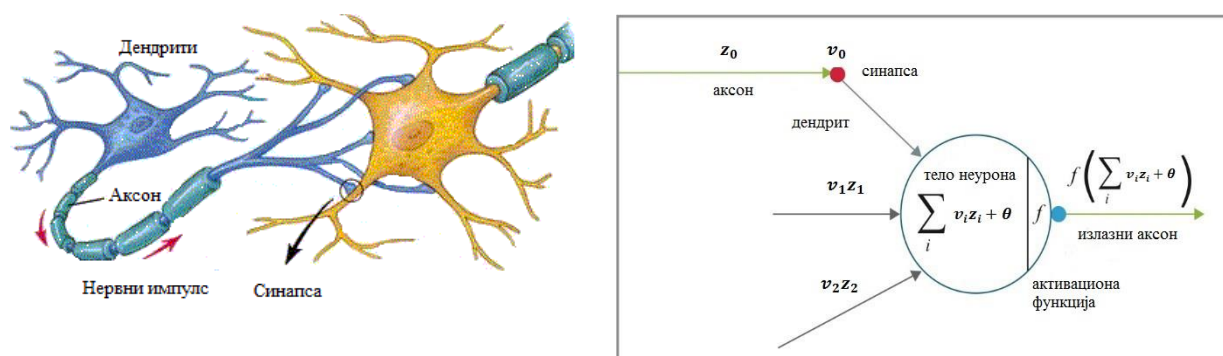
Нови правац у решавању комплексних проблема био је развој нових алгоритама заснованих на резултатима опсежних студија, у којима су живи организми проучавани са аспекта: грађе нервног система, еволуције, социјалног понашања, процеса размишљања. На карактеристикама тих природних система засновани су вештачки модели (вештачке неуронске мреже, еволутивни алгоритми, фази системи и многи други), са циљем да опонашајући начин размишљања, налажења решења, сналажења и преживљавања живих организама у природи, омогуће решавање веома компликованих задатака. Имплементација основних принципа ових природних процеса, пре свега процеса биолошке интелигенције, успешно је реализована кроз концепт назван „интелигентни системи“. Укључујући и логику, дедуктивно размишљање, експертске системе и машинско учење, интелигентни алгоритми представљају део области назване вештачка интелигенција (Artificial Intelligence - AI). Први велики допринос у области вештачке интелигенције дао је George Boole 1854. године, утемељењем концепта исказне логике. Век касније (1943. године), неурофизиолог Warren McCulloch и математичар Walter Pitts, су по угледу на биолошки неурон, осмислили вештачки. Први модел неурона назван је перцептроном. Основу за појаву неурорачунара, дао је Donald Hebb 1949. године у књизи у којој је представио правило учења биолошких синапси. Термин вештачка интелигенција први пут је употребљен 1956. године на Конференцији у Dartmouth-у коју је организовао John MacCarthy, који се данас и сматра оцем концепта вештачке интелигенције. Rumelhart-овим открићем алгоритма учења са повратним простирањем грешке (енг. back-propagation algorithm) 1986. године, расте интересовање за истраживања у области вештачких неуронских мрежа.

У овом поглављу ће из широког спектра техника и алгоритама, које нуди област вештачке интелигенције, бити детаљније описане: вештачке неуронске мреже, неуро -фази систем ANFIS и метахеуристички алгоритми.

3.1.1. Вишеслојне перцептронске мреже

Људски мозак је сложен, нелинеарни систем, који обрађује информације паралелно и може да решава задатке, препознаје узорке, перципира и контролише, много брже него било који постојећи рачунар. Овим способностима људског мозга треба додати и способност учења, памћења и генерализације. Досадашња сазнања о начину функционисања људског мозга употребљена су за формирање вештачких неуронских мрежа (енг. artificial neural networks - ANN). Основна јединица биолошке неуронске мреже је неурон. Претпоставља се да су 10-500 милијарди неурона повезани са 60 трилиона синапси, организованих у приближно 1000 главних модула, од којих сваки садржи око 500 неуронских мрежа [Engelbrecht, 2007]. Људски мозак, захваљујући таквој организацији неурона може решавати неколико задатака паралелно користећи различите моздане регионе. Досадашњи успех у моделовању вештачких неуронских мрежа ограничен је на мале неуронске мреже за решавање специфичних проблема.

Биолошки неурон се састоји од: тела, дендрита и аксона. Неурони су међусобно повезани синапсама које повезују аксон једног са дендритима другог неурона. Сигнал се преноси до аксона неурона само уколико је ћелија активирана. Сигнал кроз нервну ћелију путује од дендрита, преко тела ћелије ка аксону. Неурон може бити инхибиран или активиран сигналом. Пример биолошког и вештачког неурона дат је на слици 3.1.



Слика 3.1 Шематски приказ биолошког и вештачког неурона

Вештачки неурон прима сигнале из окружења или преко других вештачких неурона, сакупља их и уколико се активира шаље сигнал до других неурона са којима је повезан. Да ли ће неурон бити инхибиран или активиран, зависи од вредности тежине (негативна или позитивна вредност) придруженој свакој вези. Активирање неурона и јачина побудног сигнала се контролишу функцијом, названом активациона функција. Неурон сакупља све

улазне сигнале и рачуна укупни улазни сигнал као функцију одговарајућих тежина. Преко укупног улазног сигнала активациона функција, рачуна излазни сигнал неурона. Вештачку неуронску мрежу чине слојеви: улазни, скривени и излазни слој. Неурони у једном слоју су потпуно или делимично повезани са неуронима другог слоја. Могућа је и повратна веза са неуронима претходног слоја. У практичним применама најзаступљеније су статичке:

а) *вишеслојне перцептронске мреже* ;

б) *неуронске мреже засноване на радијалним базисним функцијама*.

Ове мреже не садрже динамичке чланове, што их чини структурно стабилним. Вишеслојне перцептронске мреже (енг. Multilayer Feed-forward Network -MLP) су мреже без повратних веза. У вишеслојним неуронским мрежама сви неурони у неком слоју повезани су са свим неуронима у два суседна слоја, преко једносмерних, унапредних веза. Данас постоје различити типови неуронских мрежа за велики број примена које укључују дијагностику болести, препознавање говора, обраду слике, прогнозу времена, класификацију, препознавање узорака, планирање стратегије игара, анализу података и многе друге.

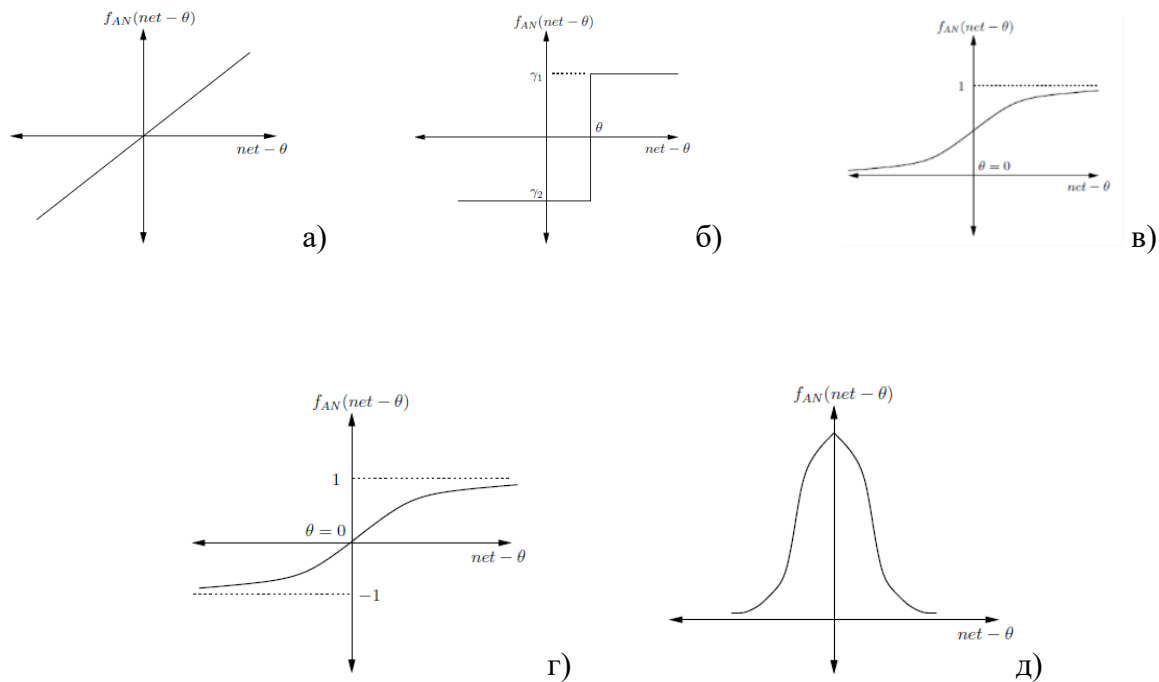
Неуронска мрежа реализује нелинеарно пресликавање простора \mathbb{R}^I у \mathbb{R}^K , где су I и K респективно димензије простора улазних променљивих и димензије простора који чине жељени излази [Engelbrecht, 2007]. Функција пресликавања f_{AN} је обично комплексна функција скупа нелинеарних функција (по једна за сваки неурон у мрежи). Пресликавање простора \mathbb{R}^I обично се врши у:

$$f_{AN} : \mathbb{R}^I \rightarrow [0, 1] \quad \text{или} \quad f_{AN} : \mathbb{R}^I \rightarrow [-1, 1], \quad (3.1)$$

зависно од примењене активационе функције. Ознаком I је представљен број улазних сигнала у мрежу. Улаз у неуронску мрежу је вектор који садржи I улазних сигнала $z = (z_1, z_2, \dots, z_I)$. Сваком улазном сигналу z_i је придружена тежина v_i која појачава или слаби улазни сигнал. Неуронска мрежа израчунава укупни улазни сигнал и користећи активациону функцију f_{AN} израчунава излазни сигнал o и излаз мреже. На јачину излазног сигнала утиче вредност прага θ . Укупни улазни сигнал представља отежињену суму свих улазних сигнала (3.2):

$$net = \sum_{i=1}^I z_i v_i. \quad (3.2)$$

Активациона функција на основу укупног улазног сигнала одређује излаз, односно јачину активације неурона. Користе се различити типови активационе функције. У општем случају је активациона функција монотono растућа. Најчешће коришћене активационе функције: линеарна, степ, сигмоидална, функција хиперболичног тангенса и Гаусова, приказане су на слици 3.2.



Слика 3.2 Примери најчешће коришћених активационих функција
а) линеарна, б) степ функција, в) сигмоидална, г) функција хиперболичног тангенса, д) Гаусова функција. Извор: [Engelbrecht, 2007].

Споменут је значај вредности тежина v_i и прага θ . Зашто су ове вредности важне и како се дефинишу? Процес током кога се дефинишу најбоље вредности тежина и прага, је учење. Током процеса учења подешавају се вредности тежина и прага, док се не испуни један или више критеријума. Постоје три основна типа учења: алгоритам учења заснован на грешци, алгоритам учења заснован на излазу мреже, алгоритам учења са ојачањем. Сви остали алгоритми учења, припадају једној од наведених категорија. Вишеслојна перцептронска мрежа и мрежа заснована на радијалним базисним функцијама, користе алгоритам надгледаног обучавања или алготитам учења заснован на грешци. Ови алгоритми обучавања се називају и алгоритми са учитељем (енг. supervised learning algorithms) јер захтевају спољашњи референтни сигнал. Одзив неуронске мреже се упоређује са референтним сигналом и генерише се грешка. На основу израчунате грешке, алгоритам учења мења тежинске коефицијенте мреже како би вредност грешке била

минимална. Овај тип алгоритма учења се може применити уколико је унапред познато жељено понашање мреже, тј. подаци на основу којих мрежа учи морају садржати парове улазно-излазних сигнала.

Вишеслојна перцептронска мрежа састоји се од неурона (перцептрона) који могу бити организовани у један или више слојева, чинећи једнослојне или вишеслојне перцептронске неуронске мреже. Вишеслојни перцептрон са простирањем сигнала унапред је стандардна вишеслојна неуронска мрежа која се најчешће користи за апроксимацију функција. На слици 3.3 је приказана стандардна вишеслојна неуронска мрежа, која се састоји од три слоја: улазни, скривени и излазни слој. Доказано је да вишеслојна неуронска мрежа са једним скривеним слојем може да апроксимира било коју континуалну функцију, уколико садржи довољан број неурона [Hornik,1989]. Вишеслојна унапредна мрежа има директну линеарну везу између улазног и излазног слоја. Мрежа за сваки улаз израчунава одговарајући излаз. Под тим условима, за излаз o_k добијамо [Engelbrecht, 2007]:

$$o_{k,p} = f_{o_k}(\text{net}_{o_{k,p}}) = f_{o_k}\left(\sum_j^{J+1} w_{kj} f_{y_j}(\text{net}_{y_{j,p}})\right) = \left(\sum_{j=1}^{J+1} w_{kj} f_{y_j}\left(\sum_{i=1}^{I+1} v_{ji} z_{i,p}\right)\right) = f_{o_k} \quad (3.3)$$

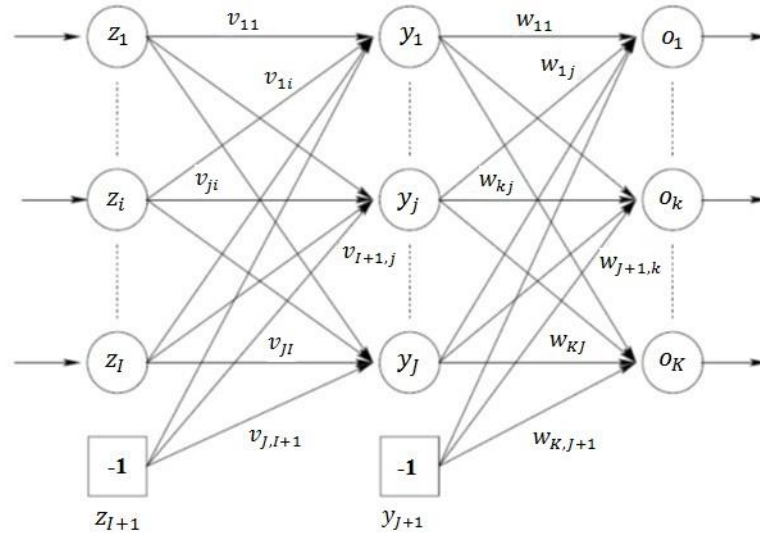
где су f_{o_k} и f_{y_j} активационе функције за излазне неуроне o_k и скривене неуроне y_j респективно; w_{kj} је тежина између излазног неурона o_k и скривеног неурона y_j ; $z_{i,p}$ је вредност улазног неурона z_i улазног узорка z_p ; $(I+1)$ излазни неурон и $(J+1)$ скривени неурон, представљају вредности прага за неурон у следећем слоју (слика 3.4). Све активационе функције не морају бити исте.

Обучавање мреже је процес прилагођавања тежина док се не постигне прихватљива вредност грешке. Постоје два типа алгоритма обучавања:

- Стохастичко (*on-line*) обучавање, у коме се тежине прилагођавају након сваког презентованог узорка. У том случају следећи узорак је насумично одабран из сета за обучавање, како начин на који се презентују узорци не би имао никакав утицај на процес обучавања.
- Batch (*off-line*) обучавање при коме се тежине мењају након што су презентовани сви узорци.

Најпопуларнији алгоритам за обучавање вишеслојне перцептронске мреже са простирањем сигнала унапред, предложио је Werbos – алгоритам учења са повратним простирањем грешке (енг.backpropagation algorithm - BP) [Bishop,1994; Moller,1993]. Грешка се најчешће

дефинише као разлика између излаза мреже и жељеног излаза и рачуна се у току процеса обучавања мреже. Функција грешке зависи од тежинских коефицијената као параметара.



Слика 3.3 Приказ вишеслојне перцептронске неуронске мреже са простирањем сигнала унапред
Извор: [Engelbrecht, 2007].

Проблем минимизације функције грешке се своди на одређивање вредности вектора тежина, за које ће функција грешке имати минималну вредност. Једна итерација током које се врши обучавање мреже назива се *епоха* и састоји се од:

1. **Директне фазе**, у којој се једноставно рачунају излазне вредности мреже за сваки узорак.
2. **Повратне фазе**, у којој сигнал грешке путује од излазног слоја ка улазном слоју. Тежине се подешавају као функције сигнала који се простира од излаза ка улазима мреже. Ако суму квадратних грешака сматрамо функцијом циља, за сваки узорак z_p важи:

$$\varepsilon_p = \frac{1}{2} \left(\frac{\sum_{k=1}^K (t_{k,p} - o_{k,p})^2}{K} \right), \quad (3.4)$$

где је K број излазних неурона, а $t_{k,p}$ и $o_{k,p}$, су стварни излаз (излаз који мрежа треба да постигне) и излаз мреже за k -ти излазни неурон. У излазном и скривеном слоју подразумевамо сигмоидалну активациону функцију.

Питање успешности неуронске мреже у решавању задатог проблема, може да се разматра и са аспекта прецизности, али и са аспекта комплексности израчунавања,

конвергенције важних карактеристика, али и времена потребног за продуковање одговора. Дизајнирање неуронске мреже захтева пажљиво разматрање неколико фактора који утичу на перформансе мреже. На почетном степену развоја концепта неуронских мрежа, проблем дизајнирања неуронске мреже је решаван ослањањем на осећај и искуство експерта. Истраживања показују зависност генерализационе грешке на скупу за обучавање од архитектуре мреже и вредности тежина [Schwartz et al.1990].

Генерализација или способност уопштавања је значајан аспект обучавања мреже. Један од циљева обучавања неуронске мреже је постићи малу генерализациону грешку. Уобичајен начин мерења прецизности је средња квадратна грешка. Да би се генерализационе способности мреже унапредиле, укупан број података се дели на три скупа: скуп за обучавање, валидациони скуп и тест скуп [Ћојбашић et al., 2011; Lazić et al., 2011]. Помоћу скупа за обучавање се врши израчунавање тежинских коефицијената. Валидациони скуп се користи за процену генерализационих способности мреже, а тест скупом се процењује укупан учинак мреже.

Преутренираност мреже је следећи важан аспект у обучавању мреже. Преутренираност значи да је мрежа почела да учи превише детаља. То се обично дешава, када се сложеност мреже не поклапа са величином скупа за обучавање. Значи да је број постојећих тежина (слободних параметара) већи од броја независних узорака. У том случају тежине уче индивидуалне узорке, чак и шум. У том случају мрежа нема добру процену вредности излаза за податке који јој нису презентовани током обучавања.

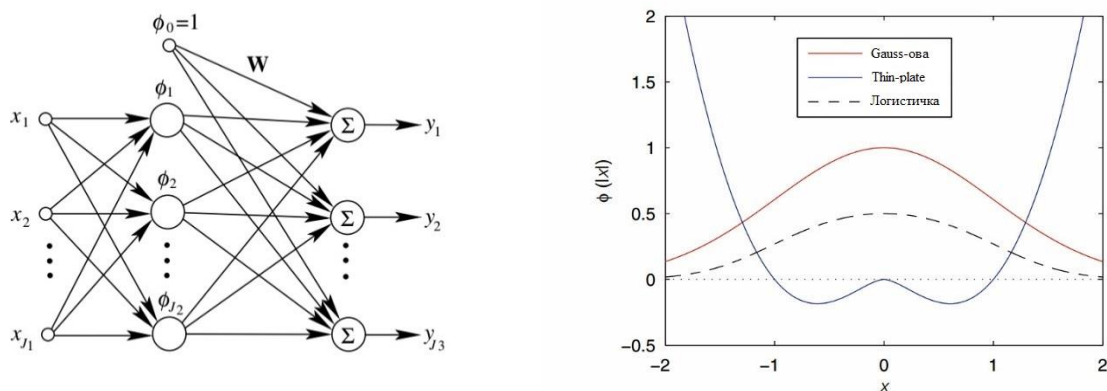
Након избора погодних почетних вредности тежина, важан је и избор критеријума за заустављање процеса обучавања. Критеријуми за заустављање процеса обучавања делују тако да заустављају процес обучавања: након одређеног броја итерација, након што функција грешка добије вредност мању од унапред дефинисане или када грешка мерења на независном валидационом скупу почиње да расте.

3.1.2. Неуронске мреже засноване на радијалним базисним функцијама

Концепт неуронских мрежа заснованих на радијалним базисним функцијама (енг. Radial Basis Function– RBF) проистекао је из поступака интерполације скупа података у вишедимензионалном простору радијалним базисним (RB) функцијама. Прве радове у области радијалних базисних функција, приказао је Powell током осамдесетих година, а Broomhead и Lowe [Broomhead & Lowe,1988] су развили први модел RBF неуронске мреже. Због једноставније структуре и бржег процеса обучавања, ове мреже представљају

популарну алтернативу вишеслојним перцептронским мрежама. RBF мреже су као и вишеслојне перцептронске мреже, универзални апроксиматор и могу се користити за: апроксимацију функција, класификацију и препознавање узорака.

RBF неуронске мреже су статичке, унапредне неуронске мреже, које се састоје из: улазног слоја неурона, скривеног слоја и излазног слоја (слика 3.4). Као и код вишеслојне перцептронске мреже, улазни слој је сачињен од улазних неурона који повезују мрежу са окружењем и прослеђују улазе у мрежу на улаз скривеног слоја. Други слој, једини скривени слој у мрежи, извршава нелинеарну трансформацију улаза. Излазни слој врши линеарну комбинацију трансформисаних улаза. Потврда оправданости коришћења нелинеарне трансформације коју прати линеарна, разматрана је у раду [Cover,1965], у коме је показано да је већа вероватноћа правилне класификације узорака, у простору са већим бројем димензија. RBF мреже имају велики број скривених неурона, што простор скривених неурона чини многодимензионалним. Оправдање за такву архитектуру мреже, лежи у чињеници да су димензије простора скривених неурона директно повезане са способношћу мреже да апроксимира.



Слика 3.4 Приказ неуронске мреже засноване на радијалним базисним функцијама
а) Архитектура RBF мреже б) Илустрације трансфер функција. Извор: [Du & Swamy, 2016]

RBF мрежа приказана на слици 3.4. је $J_1 - J_2 - J_3$ унапредна мрежа [Du & Swamy, 2016]. Сваки неурон у скривеном слоју користи RBF функцију $\phi(r)$, као нелинеарну активациону функцију. $\phi_0(x) = 1$ одговара вредности прага у излазном слоју, док је $\phi_i(x) = \phi(x - c_i)$, где је c_i центар i -тог неурона и $\phi(x)$ је RBF функција. RBF мрежа може постићи глобално решење прилагођавањем тежина у правцу минимализације функције средње квадратне грешке. За улазни вектор x , излаз мреже је:

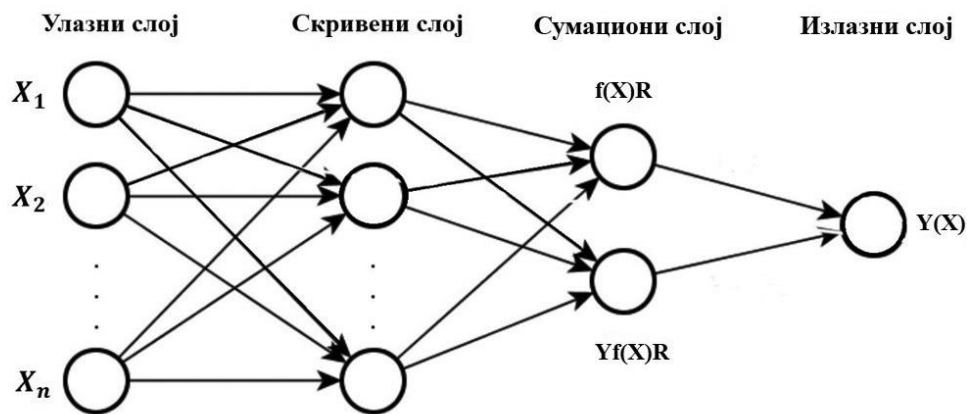
$$y_i(\mathbf{x}) = \sum_{k=1}^{J_2} w_{ki} \phi(\|\mathbf{x} - \mathbf{c}_k\|), i = 1, \dots, J_3 \quad (3.5)$$

где је $y_i(\mathbf{x})$ i – ти излаз RBF мреже, w_{ki} тежине веза од k – тог скривеног неурона до i – тог излазног неурона, \mathbf{c}_k је прототип или центар k – тог скривеног неурона и $\|\mathbf{x} - \mathbf{c}_k\|$ је еуклидска норма. За сваки улазни податак одређује се центар радијалне базисне функције (RBF центар или прототип), на основу узорака за обучавање. Евалуација сличности између улазног вектора и центра се врши рачунањем еуклидског растојања између два вектора $\|\mathbf{x} - \mathbf{c}_k\|$. Осим начина процене сличности, вишеслојне перцептронске мреже (MLP) и RBF мреже се разликују и по типу трансфер функције (слика 3.4 б). У раду је као радијално базисна функција (RB функција) коришћена Gauss-ова трансфер функције:

$$\phi(x) = e^{-\frac{\|x-c_i\|^2}{2\cdot\sigma^2}}, \quad (3.6)$$

где је c_i центар, односно положај центра симетрије Gauss – ове криве, док σ репрезентује њену ширину. Способност апроксимације произвољне континуиране нелинеарне функције, одређена је положајем центра RBF неурона, вредношћу σ и износима тежинских коефицијената у излазном слоју мреже. Израчунавање вредности ових параметара се остварује алгоритмом учења. Ефекат тежина и прагова у првом слоју RBF мреже се разликује од ефекта тежина и прагова код MLP мреже, па и задатак апроксимације функција извршавају на различите начине. Вишеслојне перцептронске мреже се одликују глобалним приступом, јер сваки од неурона у скривеном слоју узима учешће у одговору мреже. Код RBF мрежа, свака трансфер функција активна је једино у малом региону простора улазних променљивих – одговор је локални. Најчешће коришћени алгоритам за обучавање RBF мрежа има две фазе, које независно третирају два слоја RBF мрежа. Алгоритми се разликују углавном по томе како се бирају тежине и прагови у првом слоју. На основу изабраних тежина и прагова првог слоја, тежине другог слоја, се могу израчунати у једном кораку, коришћењем алгоритма најмањих квадрата. Та процедура није оптимална, због тога што ефикаснија апроксимација захтева више RB функција у области простора улазних променљивих у коме је функција која се апроксимира најкомплекснија. То значи да уколико димензија улазног простора расте, број потребних RB функција расте геометријски. Други метод за селектовање центара је селектовање насумичног подскупа улазних вектора у скупу за обучавање. То осигурава да ће центри RB функција бити смештени у области које су од користи за мрежу. Међутим, због насумичности избора, та процедура није оптимална. Много ефикаснији приступ је коришћење кластера. Центар кластера тада постаје центар RB функције. То осигурава да ће RB функције бити смештене у регион значајне активности.

RBF неуронске мреже, се могу поделити на два типа мрежа које су најчешће у употреби: регресиони (енг. Generalized Regression neural networks - GRNN) и пробабилистички (енг. Probabilistic neural networks - PNN). GRNN тип мреже [Specht, 1991] (слика 3.5) се најчешће користи за апроксимацију функција, а PNN тип за решавање проблема класификације. У овом раду је за истовремено одређивање параметара ФА сигнала коришћен GRNN тип мреже.



Слика 3.5 Приказ регресионе неуронске мреже
Извор: [Kartal & Oral, 2017].

Регресија представља моделовање веза између променљивих – зависне излазне променљиве y и независно променљивих x_i . Регресиона (GRNN) мрежа се састоји од четири слоја: улазног, скривеног, сумационог и излазног. Број неурона у улазном слоју једнак је броју параметара, а број неурона у скривеном слоју једнак је броју узорака за обучавање. Улазе у сумационе слојеве чине вредности излаза скривеног слоја. У сумационим слојевима се врши операција скаларног множења вектора тежина и вектора сачињеног од сигнала из неурона скривеног слоја. На крају, излазни неурон на основу односа вредности добијених неуронима у сумационом слоју процењује резултат. GRNN мрежа функцијом густине вероватноће процењује везе између простора улазних променљивих и жељених излаза. Функција густине вероватноће $f(x, y)$ је континуална функција векторске променљиве x и скаларне променљиве y . Нека је вредност X одређена вредност променљиве x . Функцијом густине вероватноће су потпуно описане статистичке карактеристике генератора података. За процену густине вероватноће се користи тзв. естиматор вероватноће $\hat{f}(X, Y)$, заснован на вредностима узорака X^i и Y^i променљивих x и y . У релацији (3.7) n представља број

узорака, а димензија вектора променљиве \mathbf{x} је p . Физичко тумачење естиматора вероватноће $\hat{f}(\mathbf{X}, Y)$ је да додељује вероватноћу ширине σ , сваком узорку \mathbf{X}^i и Y^i , а укупна процена вероватноће је сума вероватноћа за сваки узорак. На основу естиматора вероватноће $\hat{f}(\mathbf{X}, Y)$, се долази до коначног облика регресије, који моделује релације између простора улазних и излазних променљивих.

$$\hat{Y}(\mathbf{X}) = \frac{\sum_{i=1}^n Y^i \exp\left(-\frac{D_i^2}{2\sigma^2}\right)}{\sum_{i=1}^n \exp\left(-\frac{D_i^2}{2\sigma^2}\right)} \quad (3.7)$$

где је $D_i^2 = (\mathbf{X} - \mathbf{X}^i)^T (\mathbf{X} - \mathbf{X}^i)$ скаларна функција. Регресионе мреже (као и RBF мрежа) процењују сличност датог улаза са примером из скупа за обучавање. Сваки RBW неурон дефинише тзв. прототип, који представља један пример из скупа за обучавање. Сличност између новог улазног податка и прототипа мрежа процењује израчунавањем еуклидског растојања. Функција D_i , представља растојање између узорка за обучавање и изабране тачке и користи се за процену колико добро сваки узорак за обучавање може да репрезентује предвиђену позицију \mathbf{X} . Уколико је мало растојање D_i , између узорка за обучавање и изабраног прототипа мало, $\exp\left(-\frac{D_i^2}{2\sigma^2}\right)$ има велику вредност. За $D_i = 0$, $\exp\left(-\frac{D_i^2}{2\sigma^2}\right)$ постаје јединица и изабрана тачка најбоље репрезентује узорак за обучавање. Растојање свих осталих узорак за обучавање је веће, што значи да је у релацији за процену удео осталих узорака за обучавање мали. Параметар σ има важну улогу. За велику вредност параметра σ , тачка која репрезентује дати узорак за обучавање се бира у ширем опсегу вредности \mathbf{X} . Мала вредност параметра σ избор тачке ограничава на мали опсег вредности \mathbf{X} . Предност коришћења регресионе мреже, заснива се на релацији (3.7), помоћу које се већ на основу неколико узорака за обучавање може предвидети понашање система. Управо је ова особина важна за брзо обучавање, које карактерише регресиону мрежу. Процес обучавања не захтева итеративну процедуру (као MLP мреже), већ се мрежа обучава само једним „проласком“ кроз податке.

3.2. Фази логика

Одувек је основни задатак у проучавању појава у физици, било дефинисање закона и експлицитних једначина помоћу којих се може описати понашање система у будућности. Међутим, формулисање и решавање једначина које описују понашање неког система, може бити захтеван и тежак задатак, посебно у ситуацијама када је доступно само парцијално знање о систему. Када традиционалне методе нису директно применљиве, успешну примену налазе фази технологије. Са тачке гледишта математике и физике, фази метод је посебно користан у ситуацијама када треба предвидети понашање неког нелинеарног система.

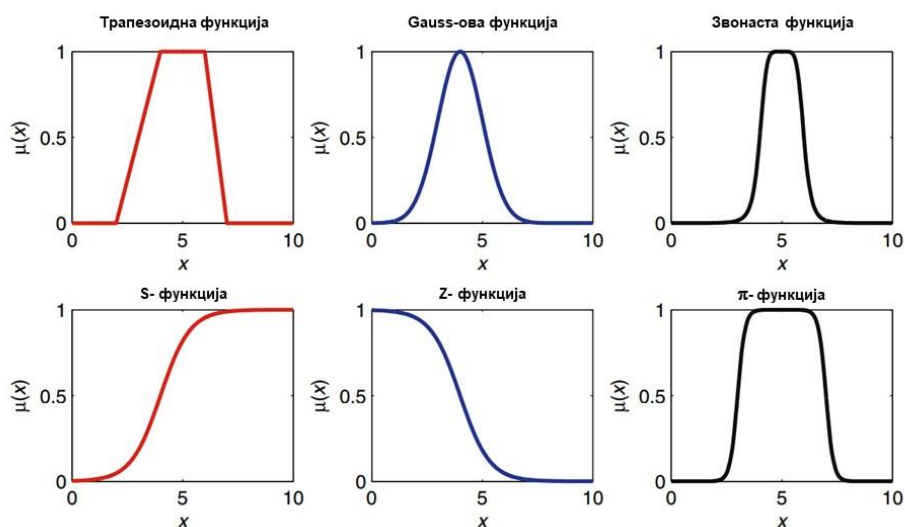
Реч фази је енглеског порекла (енг. *fuzzy*) а означава нејасан, замућен и магловит појам, који се може описати и појмовима: непрецизан, нејасан, неодређен, недефинисан, двосмислен. Оснивачем оваквог другачијег, фази погледа на свет сматра се Lotfi Zadeh. Правим почетком фази теорије сматра се 1965. година када је професор Lotfi Zadeh објавио рад „Фази скупови“ [Zadeh,1965]. Како је истакао у овом раду непрецизно дефинисани скупови играју важну улогу у људском размишљању, посебно у домену препознавања узорака, саопштавања информација и апстракцији. Та неодређеност није случајна, већ потиче од неодређене и непрецизне природе апстрактног размишљања. Седамдесетих година прошлог века дошло је до наглог развоја теорије фази скупова, фази закључивања и других важних елемената фази теорије. Осамдесете године су значајне по практичним реализацијама фази теорије. Основа концепта фази логике, коју је формулисао Zadeh, је да у решавању сложених проблема не треба ићи у правцу ригорозности и веће прецизности, већ дозволити непрецизност. Стога, фази технологије представљају погодан математички апарат за третирање неизвесности, субјективности и неодређености. Основ успешности фази технологија, лежи у коришћењу приближног рачуна. Како је рад рачунара заснован на манипулацији бројевима и фиксним симболима, а знање о проблему је бинарно кодирано, фази методологија трансформише идеје стручњака, формулисане у облику језика који користимо у свакодневној комуникацији у прецизна правила и формуле разумљиве рачунару. Многи реални проблеми, се не могу прецизно, комплетно и јасно дефинисати. Међутим, уз имплементацију искуства, интуиције и уз чињеницу да се не захтева математички модел процеса за решавање проблема, методама фази логике се и таква врста проблема може решити. Идеја фази концепта је да се опонашањем структуре и начина

функционисања људског мозга, посебно његове способности обраде непрецизних и нејасних информација, унапреди рад рачунарских система. То је од посебног значаја у домену интелигентне контроле система. Имплементацијом фази метода развијају се системи који се могу прилагодити условима окружења, учити из искуства, тј. развити интелигентно понашање, својствено људском понашању. Одатле и назив хумане технологије, који често представља синоним за фази технологије. Многобројне успешне практичне примене оправдале су употребу фази технологија и у свакодневном животу.

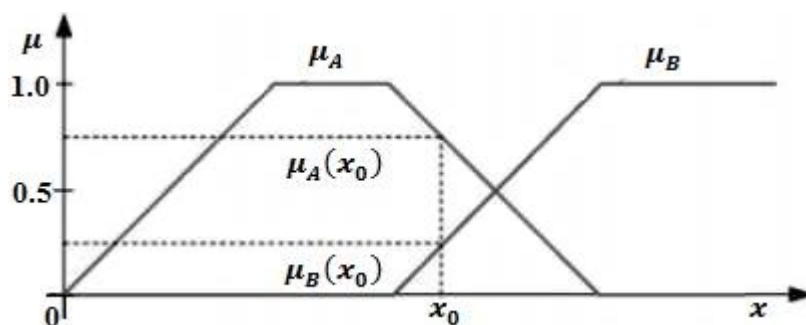
3.2.1 Фази логика и расуђивање

Теорија фази скупова се разликује од класичне теорије скупова. Фази скуп је основни елемент за представљање и обраду информација у фази технологијама. Фази скуп представља проширење појма класичног скупа [Sumathi & Surekha, 2010; Du & Swamy, 2014]. Док класичан скуп чине елементи са истим својствима, фази скуп представља скуп елемената са сличним својствима. Фази скупови немају јасно изражене границе, јер сваки елемент припада скупу у извесном степену. Степен припадности сваког елемента фази скупу се дефинише функцијом припадности. На слици 3.6 су приказани примери најчешће коришћених функција припадности за фази скупове. Припадност скупу могуће је изразити реалним бројем који се налази у интервалу од 0 до 1 (елемент припада фази скупу $\rightarrow 1$; елемент јако припада скупу $\rightarrow 0,9$; елемент мало припада скупу $\rightarrow 0,1$ и елемент не припада скупу $\rightarrow 0$ (слика 3.7).

Да би се фази теорија применила на решавање практичних проблема користе се бројни лингвистички изрази, који представљају мост између прецизног представљања и човековог начина размишљања. Када је знање изражено свакодневним језиком онда се за представљање знања и закључивање користи апроксимативно расуђивање. Апроксимативно расуђивање је основ фази закључивања. Lotfi Zadeh је 1973. године увео концепт лингвистичке (или фази) променљиве, који омогућава „рачунање“ речима, а не бројевима [Zadeh, 1973].



Слика 3.6 Примери најчешће коришћених функција припадности
Извор:[Du & Swamy, 2014].



Слика 3.7 Пример функције припадности
Функција припадности приказује припадност елемента (x_0) скуповима A и B : $\mu_A(x_0) = 0,75$ и $\mu_B(x_0) = 0,25$. Извор:[Sumathi & Surekha, 2010].

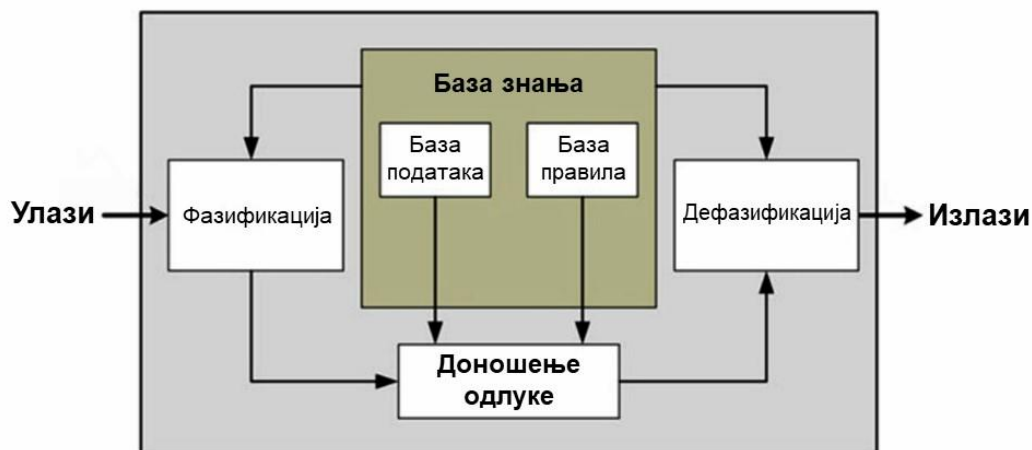
Zadeh је први увео фази правило у облику [Zadeh,1973]:

$$\text{Ако } x \text{ је } A \text{ онда } y \text{ је } B. \tag{3.8}$$

Лингвистичка *ако - онда* правила имају два дела: *премису* изражену као *ако* и *последицу онда*. Сложен фази предлог формира се коришћењем: *и, или, није* итд. Лингвистичка *ако-онда* правила се користе у свакодневном говору за описивање различитих појава.

Фази модел је заснован на концепту фази теорије, фази *ако-онда* правила и фази закључивања. Успешна примена фази система закључивања је остварена у областима аутоматске контроле, класификације података, одлучивања, експертских система итд. Основна структура фази система закључивања састоји се од компонената приказаних на слици 3.8. У употреби су најчешће три типа фази модела закључивања: Takagi–Sugeno, Mamdani и Tsukamoto. Sugeno фази модел (TSK фази модел) је најчешће коришћен [Takagi & Sugeno, 1985], а коришћен је и као модел закључивања у ANFIS систему примењеном у овом раду [Jang,1993]. Фази систем расуђивања (слика 3.8) се састоји од пет функционалних целина:

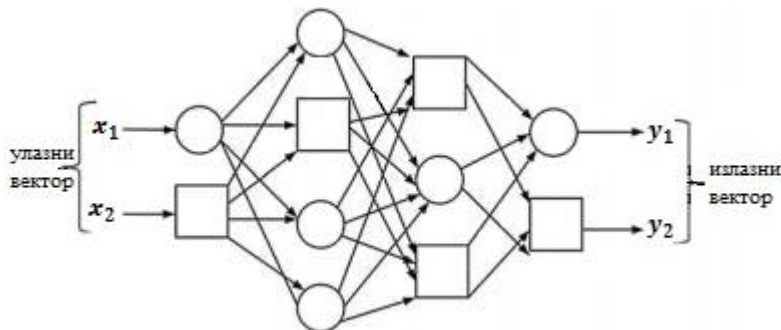
- Фазификационог процеса - који врши: трансформацију нумеричких вредности улазних променљивих у лингвистичке (језичке) променљиве, тј. трансформацију улазних података у фази скупове.
- Базе знања - које се састоје од базе података и базе правила.
- Логике одлучивања – којом се одређују фази вредности излаза система.
- Дефазификационог процеса – који врши трансформацију опсега вредности излазних променљивих у одговарајући домен.



Слика 3.8 Фази систем закључивања
Извор: [Suparta & Alhasa, 2016].

3.3. Неуро-фази адаптивни систем закључивања ANFIS

У пракси је остварена спрега фази система и неуронских мрежа у неуро-фази адаптивни систем закључивања - ANFIS. Постоји неколико типова фази неурона, који се од неурона разликују по томе што су улази и излаз из неурона, као и тежински коефицијенти фази бројеви. Улази помножени тежинским факторима се не сабирају, већ се над њима врши нека друга операција агрегације. Адаптивне мреже су структуре чије је целокупно понашање одређено скупом параметара. Конфигурација адаптивне мреже се састоји од скупа међусобно повезаних неурона, који представљају основне јединице за обраду информација. Функција неурона је обично параметарска функција. Променом вредности параметара постиже се жељено понашање адаптивне мреже. У општем случају функције адаптивне мреже су хетерогене и сваки неурон може имати различиту функцију. Везе у адаптивној мрежи углавном одређују правац простирања сигнала и немају придружене тежине. Уколико функција неурона зависи од параметара, онда се та врста неурона назива адаптивним неуроном и графички се приказује квадратом, а ако функција неурона не зависи од параметара, онда се такви неурони називају фиксним и приказују кругом (слика3.9).



Слика 3.9 Шематски приказ ANFIS структуре
Извор: [Suparta & Alhasa, 2016; Jang,1993].

Адаптивне мреже у зависности од типа веза које имају могу бити унапредне и рекурентне. Сигнали код унапредних адаптивних мрежа иду од улаза до излаза сваког неурона. У таквој мрежи нема веза између неурона у истом слоју. Адаптивне мреже прилагођавањем параметара постижу задовољавајуће вредности функције грешке. Када се адаптивне мреже спрегну са фази системима, онда научено може и квалитативно да се изрази.

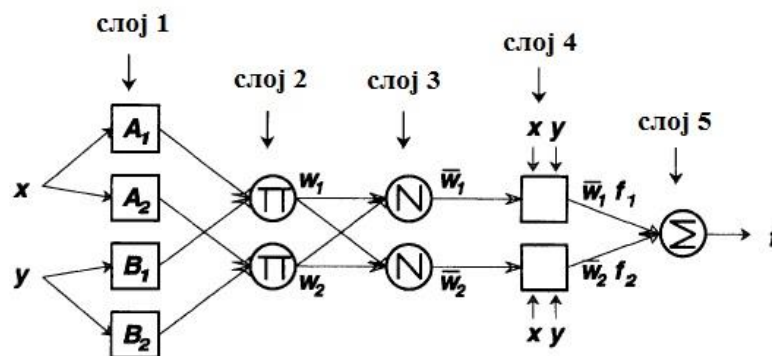
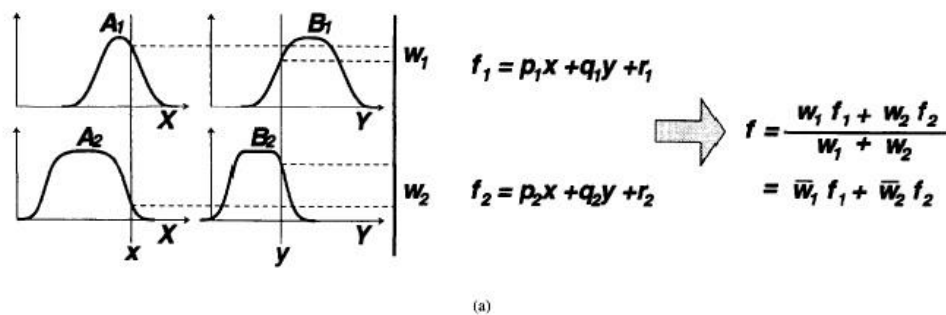
Један од најпознатијих примера Takagi-Sugeno-вих фази система који користи адаптациони механизам за подешавање параметара је ANFIS. Он обједињује потенцијале

адаптивне (неуронске) мреже и фази логике. Адаптациони механизам, на основу разлике између жељеног излаза и стварног излаза из фази система, одређује које промене треба извршити у фази систему у циљу минимизације грешке. Адаптациони механизам се најчешће користи за модификацију фази правила, промену тежинских фактора придружених фази правилима, модификацију примарних фази скупова или селекцију метода дефазификације. Механизам за адаптацију његових параметара је сличан механизму учења код неуронских мрежа, па се ANFIS још назива и неуро-фази системом. Брзина обучавања ANFIS -а је већа у поређењу са другим техникама, алгоритам обучавања је много ефикаснији, а структура једноставна. Захваљујући тим карактеристикама, ANFIS је техника која у односу на друге неуро-фази моделе, даје најбоље резултате у апроксимацији функција. Такође, брзина конвергенције је већа у поређењу са другим техникама.

ANFIS је вишеслојна адаптивна мрежа, састављена од пет слојева у којима су неурони са различитим функцијама обучавања и подешавања параметара. Ради једноставности биће описан ANFIS са два улаза (x, y) и једним излазом z . По Sugeno-вом фази моделу, скуп правила са два ако-онда фази правила је:

$$\text{Правило 1: Ако } x \text{ је } A_1 \text{ и } y \text{ је } B_1, \text{ онда } f_1 = p_1x + q_1y + r_1, \quad (3.9)$$

$$\text{Правило 2: Ако } x \text{ је } A_2 \text{ и } y \text{ је } B_2, \text{ онда } f_2 = p_2x + q_2y + r_2.$$



Слика 3.10 Sugeno ако-онда фази систем закључивања и ANFIS архитектура. Извор:[Jang, 1993].

У релацији која описује Takagi–Sugeno модел закључивања (3.9), A_1 , A_2 и B_1 , B_2 су функција припадности сваког улаза x и y , док су p_1 , q_1 , r_1 и p_2 , q_2 , r_2 линеарни параметри функција последице. На слици 3.10 је приказан механизам закључивања за Sugeno модел и одговарајућа ANFIS архитектура.

У ANFIS архитектури неурони истог слоја имају сличне функције. Излазни неурон i у слоју L обележен је са O_i^L .

Слој 1: Сваки неурон i у овом слоју је адаптивни неурон. Излаз из тог слоја је вредност функције припадности са дефинисаним излазом [Suparta & Alhasa, 2016]:

$$\begin{aligned} O_i^1 &= \mu_{A_i}(x), & i &= 1,2, \\ O_i^1 &= \mu_{B_{i-2}}(y), & i &= 3,4 \end{aligned} \quad (3.10)$$

где су μ_{A_i} и $\mu_{B_{i-2}}$ степени функције припадности за фази скуп A_i и B_i , респективно. Параметри функције припадности су означени са $\{a_i, b_i, c_i\}$ и могу мењати облик функције припадности. Функција припадности може бити било која од претходно поменутих функција.

Слој 2: Сваки неурон у слоју је фиксиран, неадаптибилан (обележен знаком П). Излаз из неурона је резултат множења улазног сигнала који се прослеђује следећем неурону.

$$O_i^2 = w_i = \mu_{A_i}(x) \times \mu_{B_i}(y), \quad i = 1,2. \quad (3.11)$$

где је w_i излаз који репрезентује јачину активације неурона.

Слој 3: Сваки неурон у овом слоју је фиксиран и обележен знаком N . Сваки неурон рачуна однос између i -тог правила активације и суме свих правила јачине активације:

$$O_i^3 = \bar{w}_i = \frac{w_i}{w_1 + w_2}, \quad i = 1,2. \quad (3.12)$$

Резултат је познат као нормализована јачина активације.

Слој 4: Сваки неурон i овог слоја је адаптивни неурон, чија је функција

$$O_i^4 = \bar{w}_i f_i = \bar{w}_i(p_i x + q_i y + r_i), \quad (3.13)$$

где је \bar{w}_i нормализована јачина активације из претходног слоја (трећег) и $(p_i x + q_i y + r_i)$ је параметар неурона. Параметри овог слоја се дефинишу као параметри функције последице.

Слој 5: Неурон у излазном слоју је фиксирани неурон означен словом Σ , који рачуна укупни излаз као збир свих пристиглих сигнала из претходних неурона:

$$O_1^5 = \text{укупни излаз} = \sum_i \bar{w}_i f_i = \frac{\sum_i w_i f_i}{\sum_i w_i}. \quad (3.14)$$

Први и четврти слој ове ANFIS структуре садрже параметре који се могу модификовати. У првом слоју параметри функције припадности су нелинеарни, а у четвртом слоју функција последице садржи линеарне параметре. Подешавање параметара услед адаптације и прилагођавања, врши се хибридном алгоритмом који је предложио Jang [Jang,1993]. Хибридни метод обучавања, комбинује градијентни метод и метод најмањих квадрата. Свака епоха (итерација) у процесу хибридног обучавања састоји се од директног простирања сигнала (израчунавања грешке) и простирања сигнала уназад. У директној фази параметри функције припадности у првом слоју имају одређене вредности. Рекурзивни метод најмањих квадрата (енг. recursive least square estimator –RLSE) за подешавање параметара функције последице у четвртом слоју. Ако су параметри линеарни, онда се RLSE метод користи за убрзавање конвергенције. У фази простирања сигнала уназад извод функције грешке за сваки неурон простире се од излаза према улазним неуронима. Израчуната грешка поређењем генерисаног излаза и актуелног излаза се простире ка првом слоју. Параметри функције припадности првог слоја се подешавају методом опадајућег градијента. Механизам обучавања се примењује за подешавање параметара функције припадности и функције последице, али не и за дефинисање функције припадности. Одлука о изгледу функције припадности се доноси зависно од проблема који се решава. У принципу, уколико је скуп улазно-излазних података довољно велики, могуће је прецизно подешавање функције припадности. У другачијој ситуацији, када скуп садржи недовољан број података о понашању система, избор функције припадности врши експерт према свом искуству. Такође, функција припадности може бити фиксирана током процеса обучавања.

Постоје два начина обучавања адаптивне мреже: *off-line* и *on-line* обучавање. У *off-line* обучавању мреже подешавање параметара се врши након презентовањих свих података из скупа за обучавање. У супротном, ако се параметри подешавају после сваког

приказаног улазног-излазног пара ради се о *on-line* обучавању. У овом раду је коришћен метод *off-line* обучавања.

У практичним реализацијама фази модела пре свега у избору броја правила, броја функција припадности, важно је колико је експертово познавање система. Одлука се доноси слично као и у раду са неуронским мрежама, кроз процес покушај – грешка, јер не постоји једноставан начин да се унапред одреди минималан број скривених неурона, помоћу којих се може постићи жељена тачност. Једна од најуспешнијих примена теорије фази скупова и система фази закључивања је фази контрола. Адаптивне способности и способности учења ANFIS -а су највише од свих других карактеристика допринеле да скоро у свим областима контроле замени неуронске мреже.

3.4. Метакхеуристичке оптимизационе технике

За многе проблеме који су од великог практичног и научног значаја проналажење оптималног решења, представља веома тежак и захтеван задатак. У пракси се задовољавајућа решења могу добити коришћењем хеуристичких и метакхеуристичких оптимизационих техника. Хеуристичке технике проналазе нове стратегије за решавање проблема оптимизације функција. Виши ниво опште хеуристичке методологије претраживања представља метакхеуристика, која се користи за решавање специфичних проблема. Метакхеуристичке технике представљају апроксимативне методе, које у последње две деценије постају све популарније, јер дају довољна добра решења у прихватљивом временском оквиру [Talbi, 2009]. Ове технике су апроксимативне и за разлику од егзактних, не гарантују да ће нађено решење бити оптимално. Метакхеуристичке методе су посебно погодне када је разумевање проблема недовољно, а време за детаљна истраживања ограничено. То су ситуације које се најчешће јављају у оптимизацији реалних проблема, чија је објективна функција (функција чија се оптимална вредност тражи) променљива, а мерене податке карактерише шум. Оптимизациони проблеми који се решавају метакхеуристиком не морају бити прецизно дефинисани. Та чињеница је посебно важна у раду са резултатима добијеним коришћењем различитих врста сензора, чије је инхерентно својство шум и неодређеност. Осим шума у многобројним практичним применама, посебан изазов представља рад са временски променљивим улазним елементима. У таквим ситуацијама је важно да ли и у којој мери алгоритам може да памти информације добијене

током претраживања простора, али и да их користи како би свој рад прилагодио променама. Популарност метахеуристичког приступа ће бити много већа у будућности, сразмерно повећању комплексности појава и процеса који нас окружују, али и захтевима за развој прецизних модела којима се описују сложени проблеми из реалног живота.

У раду метахеуристичких алгоритама важна су два процеса која треба уравнотежити: детаљно претраживање простора решења (диверзификација) и експлоатација најбољег пронађеног решења (интензификација). Детаљно претраживање простора омогућава генерисање различитих решења, што представља услов за проналажење оптималне вредности функције. Експлоатација најбољег пронађеног решења подразумева да се алгоритам фокусира на претраживање локалног подручја у коме се налази тренутно најбоље решење. Избор најбољег решења осигурава конвергенцију ка оптималном решењу. Поступак оптимизације представља проналажење равнотеже између ова два процеса. Алгоритми користе различите начине за успостављање равнотеже између ових процеса, од чега и зависи њихова ефикасност.

Метахеуристички алгоритми се могу класификовати на основу различитих критеријума [Talbi, 2009]. Неки од алгоритама су инспирисани природним процесима - еволуциони алгоритми и вештачки имуни системи, биологијом - колоније мрава, колоније пчела, оптимизација ројем честица, физиком - симулирано жарење. Алгоритми са стохастичком функцијом (симулирано жарење и еволутивни алгоритми) карактеристични су по томе што се различита коначна решења могу добити из истог почетног. Подела алгоритама се може извршити и на основу њихове способности да памте (симулирано жарење спада у групу алгоритама који не памте информације добијене током претраживања). Класификацију метахеуристичких алгоритама можемо извршити и на основу тога, да ли рад заснивају на популацији или на једном решењу. Карактеристике ове две врсте алгоритама су комплементарне. Алгоритми који раде са једним решењем интензивно претражују у локалном подручју, а ови други су оријентисани на претраживање у целом простору решења. Према приступу метахеуристички алгоритми се деле на глобалне (генетски алгоритми, оптимизација колонијом мрава, ројем честица, ројем пчела, симулирано жарење итд.) и локалне (метод Монте Карло, табу претраживање итд.). Међутим, та подела није строга, јер постоје локални метахеуристички алгоритми успешни у проналажењу глобалног оптимума.

Рад са метахеуристичким алгоритмима подразумева следеће фазе: теоријску - дефинисање корака у раду алгоритма и практичну процену перформанси. Процена перформанси се врши анализом: квалитета решења, времена потребног за извршавање задатка, стабилности метода и графичког приказа решења. Уколико је проблем оптимизације успешно решен, још један корак до потпуног дефинисања алгоритма је осигурати поновљивост метода. У пракси, није увек потребно пронаћи оптимум. Решење које је довољно близу оптимума, а које се добија у разумном временском оквиру је прихватљиво решење.

3.3.1. Глобалне метахеуристичке методе

Глобалне метахеуристичке методе ефикасне у налажењу глобалног оптимума функције, су најчешће алгоритми засновани на популацији (енг. Population based metaheuristics, P-metaheuristics) и подразумевају рад са целом популацијом. Еволутивни алгоритми спадају у групу глобалних оптимизационих метода, а глобални оптимум налазе комбинујући елементе као што су: адаптација и учење како би се формирала интелигентна шема оптимизације. Еволуција представља оптимизациони процес, чији је циљ да унапреди способности организма (система) за опстанак у динамички променљивом окружењу. То је начин адаптације организама, који кроз процесе као што су: природна селекција, преживљавање најбољих, репродукцију, мутацију, такмичење и симбиозу, побољшава могућности преживљавања организама у некој средини. Углавном се глобалне метахеуристичке методе могу поделити на микроскопске (генетски алгоритми) и макроскопске (које симулирају еволуцију одређене врсте - мрава, пчела итд). У групу глобалних оптимизационих алгоритама спада и алгоритам симулираног жарења, који је за разлику од еволутивних алгоритама инспирисан законима физике.

3.3.1.1. Генетски алгоритми

Структура еволутивних алгоритама је заснована на биолошким принципима и Дарвиновој теорији о пореклу врста. У применама у рачунарству подразумева се аналогија између биолошког појма популација и скупа потенцијалних решења, који поступцима вештачке еволуције – итерације, еволуирају, попут јединки у природи. Еволуција решења

која води ка издвајању најбољег решења, врши се помоћу оператора: укрштања (рекомбинације), мутације и селекције.

Генетске алгоритме (енг. Genetic Algorithm - GA) је увео J.H. Holland средином шездесетих година. Његова идеја је била да се вештачки симулира процес адаптације система и способност да се одговори променама у окружењу [Engelbrecht, 2007; Sivanandam & Деера, 2007]. Holland-ову идеју је касније разрадио De Jong, обједињујући постигнуте резултате и показао је да генетски алгоритми могу служити као ефикасан алгоритам за решавање проблема оптимизације функције. Данас генетски алгоритми чине групу најпопуларнијих хеуристичких метода за глобалну оптимизацију.

Генетски алгоритми су метод глобалног и паралелног претраживања простора, који не захтева информације о градијенту функције, а посебно је успешан у оптимизацији недиференцијабилних и функција са вишеструким локалним максимумима и минимумима. За разлику од класичних алгоритама, који у свакој итерацији дају само по једно решење, генетски алгоритми у свакој итерацији креирају популацију решења, од којих се најбоље решење приближава оптималном. У свакој генерацији нови скуп апроксимација настаје селекцијом јединки на основу њихове прилагођености и преживљавања коришћењем оператора преузетих из генетике. То води еволуцији популације јединки које су боље прилагођене окружењу, од јединке од којих су настале. Улогу окружења у вештачкој еволуцији има функција циља, на основу које се врши процена прилагођености јединке (квалитета решења). Процес еволуције који опонашају еволутивни алгоритми почиње случајним избором популације јединки и наставља претраживањем простора могућих решења. На ефикасног тог процеса утичу следеће главне карактеристике: начин кодирања решења кроз тзв. хромозоме, функција која врши евалуацију карактеристика јединки, иницијализација почетне популације, оператори селекције, оператори репродукције.

1) **Кодирање.** Генетски алгоритам је итеративни поступак који почиње рад приказом (кодирањем) популације јединки. Кодирање и евалуациона функција (функција циља) су функције које се дефинишу на основу проблема који се решава. Ефикасност генетског алгоритма у великој мери зависи од начина кодирања, којим се остварује веза између проблема који треба решити и генетског алгоритма. Кодирањем се у генетским алгоритмима, приказују карактеристике јединке. Јединка, тј. један хромозом представља једно решење. Начини чувања информације у хромозому могу бити различити. Информација може бити приказана низом битова који чине један хромозом (бинарно

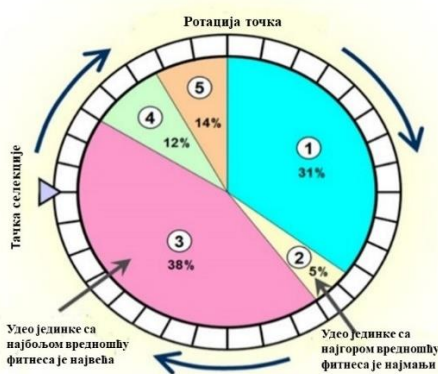
кодирање) или може бити приказана реалним бројевима (кодирање реалним бројевима) [Herrera et al.,1998; Michalewich, & Janikow,1991]. У проблемима оптимизације чије су променљиве из континуалног простора претраживања, када су променљиве кодирани реалним бројевима, процес кодирања и декодирања једноставан, што повећава брзину рада генетског алгорита. У овом раду су коришћени реално кодирани генетски алгорита. Кодирање реалним бројевима, је посебно значајно у пољу интелигентне контроле и применама које захтевају рад у реалном времену.

2) **Функција циља.** Функција циља дефинише како је јединка приказана у простору претраживања и њене карактеристике у односу на одређен скуп параметара. Функција циља се придружује свакој јединки у популацији, при чему је за рад генетског алгорита важна само вредност ове функције. Функција циља директно доприноси ефикасности решења, јер се у свакој генерацији евалуира сваки хромозом, те израчунавање функције циља мора бити брзо. Јединке које ће прећи у следећу генерацију бирају се по дефинисаном критеријуму, на основу кога се може оценити које су јединке „добре“. Сваки хромозом се евалуира, декодира и оцена квалитета јединке се даје вредношћу функције циља. Вредност функција циља уводи критеријум за селекцију јединки, којим се гарантује да ће из популације бити изабрана јединка, која представља најбоље решење проблема. Фитнес вредност је вредност функције циља за дату јединку. Када тражимо минимум функције циља, најбоља вредност је најмања фитнес вредност у популацији. Због тога је веома важно да се процена сваког хромозома у свакој популацији обавља брзо. Све операције генетског алгорита спроводе се над хромозомима у простору претраживања, осим евалуације, тј. процене квалитета јединке (фитнеса), која се обавља у простору решења.

3) **Популација.** Генетски алгорита је стохастички и спада у групу алгоритама заснованих на популацији, скупу јединки, које представљају потенцијална решења. Популација се дефинише у тренутку t . Свака успешна популација се назива генерација. Генетски алгорита почиње рад дефинисањем: величине популације и почетне популације. Величина популације зависи од комплексности проблема и током рада је константна. Уобичајено је да се популација састоји од 30 до 100 јединки. Већи број јединки повећава разноврсност и способности истраживања већег дела простора, али је и дуже време рада алгорита. Са друге стране мањи број јединки репрезентује мањи део простора претраживања, али је такав концепт погоднији када се захтева извршавање алгорита у реалном времену. Недостатак у раду са малим популацијама је и проблем конвергенције ка

оптимальном решењу. Одлука о величини популације се доноси и на основу времена потребног за рад алгоритма и доступне меморије рачунара.

4) **Селекција.** Сврха селекције је чување и преношење добрих својстава на следећу генерацију јединки. То је процес одабира два родитеља из популације јединки за поступак укрштања. Међутим, и лоше јединке могу имати добар генетски материјал, те је потребно и њима осигурати неку вероватноћу преживљавања. Вероватноћа преживљавања бољих јединки је већа, а самим тим и вероватноћа учествовања у процесу репродукције. Оператор селекције се примењује на стару популацију, како би се формирала међупопулација. На међупопулацију се примењују оператори укрштања и мутације, како би се формирала нова популација. Селекција на основу које се врши одабир јединки може бити: пропорционална и рангирајућа. У пропорционалне селекције спадају: рулет селекција и стохастичка универзална селекција. За рад алгоритма примењеног у овом раду коришћена је рулет селекција селекција (слика 3.11).

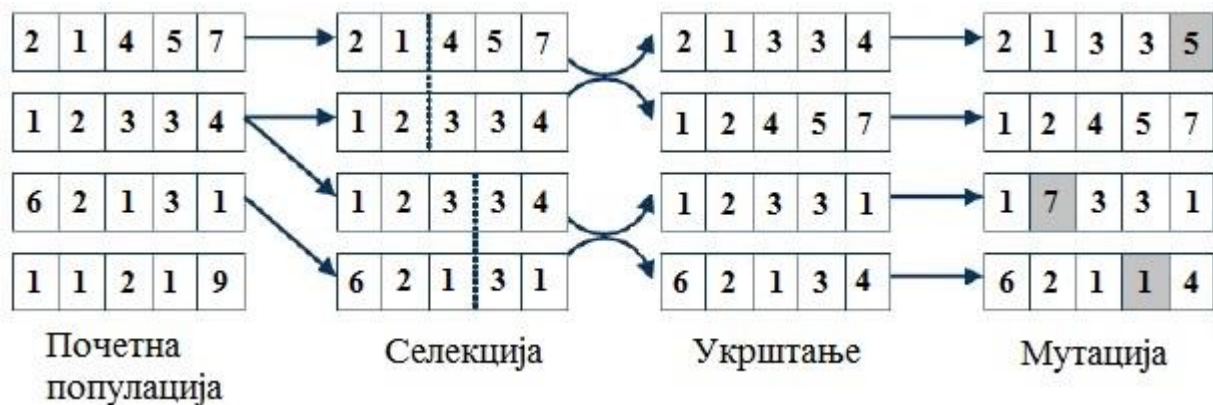


Слика 3.11 Приказ рулет селекције.

Принцип рулет селекције је избор јединки према фитнес вредности. Јединке су представљене суседним сегментима, чије величине одговарају фитнес вредностима. Алгоритам селектује родитеља на основу фитнес вредности. На тај начин се добија потребан број јединки. Селекциони алгоритми имају велики утицај на перформансе генетског алгоритма [Goldberg, 1989]. Међутим, само процесом селекције, се у популацију не могу увести нове јединке, тј. не могу се наћи нове тачке у простору претраживања. Нове јединке се формирају применом генетских оператора укрштања и мутације.

5) **Оператори укрштања и мутације.** Када се процесом селекције креира међупопулација, примењује се оператор укрштања. Оператор укрштања дефинише на који ће начин генетски алгоритам комбиновати две родитељске јединке и формирати потомке

који ће чинити следећу генерацију. Оператор који разликује генетски алгоритам од осталих метода оптимизације је оператор укрштања. Он процес еволуције води ка регионима простора претраживања у којима је могуће наћи решење. Међутим, то некада може довести до појаве преране конвергенције и налажења локалног екстрема. Мутација је оператор који је уведен да би еволутивни процес повео у правцу неистражених делова простора. Мутација је случајна промена једног или више гена неког хромозома (слика 3.12). Примењује се на међупопулацију након операције укрштања, са циљем да обезбеди структурну различитост популације. Мутацијом се осигурава да вероватноћа проналажења било које тачке у простору претраживања никада не буде нула. Уколико генетски алгоритам доспе у локални минимум, мутација омогућава скок у нову неиспитану област, у којој постоји могућност налажења глобалног минимума. Вероватноћа мутације је обично мала и у рангу од 0,001 до 0,01, како не би дошло до уништавања добрих јединки. Оператори који се могу применити на реално кодиране јединке су: случајна мутација, неуниформна мутација итд. Једна од предности у коришћењу реално кодираних генетских алгоритама, је и већа слобода у примени оператора мутације и укрштања. За мутацију реалних променљивих постоји могућност учења правца и корака успешне мутације, адаптацијом. Адаптацијом правца и корака мутације, алгоритам може научити везе између променљивих.



Слика 3.12 Пример примене генетских оператора на почетну популацију

За управљање радом генетског алгоритма користе се параметри алгоритма [Fleming, & Purshouse, 2002; Michalewicz & Janikow, 1991]. Параметри омогућавају флексибилност и робусност метода, а имају значајан утицај на ефикасност и ефективност метода. Подешавају се у зависности од проблема који се решава и циља који се жели постићи. Параметри се могу подешавати пре почетка извршавања алгоритма (*off-line*), али се могу

подешавати, контролисати и прилагођавати и током рада алгоритма (*on-line*). *On-line* подешавање параметара може бити веома ефикасно у случајевима када у току рада алгоритма треба прилагодити параметре променама које могу настати у било којој фази. Параметрима се може утицати на време извођења генетског алгоритма: како ће алгоритам претраживати простор решења, брзину којом ће конвергирати ка оптимуму, квалитет решења итд. Стандардни параметри који у највећој мери утичу на рад генетског алгоритма су:

1) **Величина популације** - Величина популације је параметар који директно утиче на квалитет решења и на време извођења алгоритма.

2) **Број генерација (итерација)** - Број итерација, такође, утиче и на време извођења алгоритма и на квалитет решења. Већи број итерација значи и боље решење, али и дужи рад алгоритма.

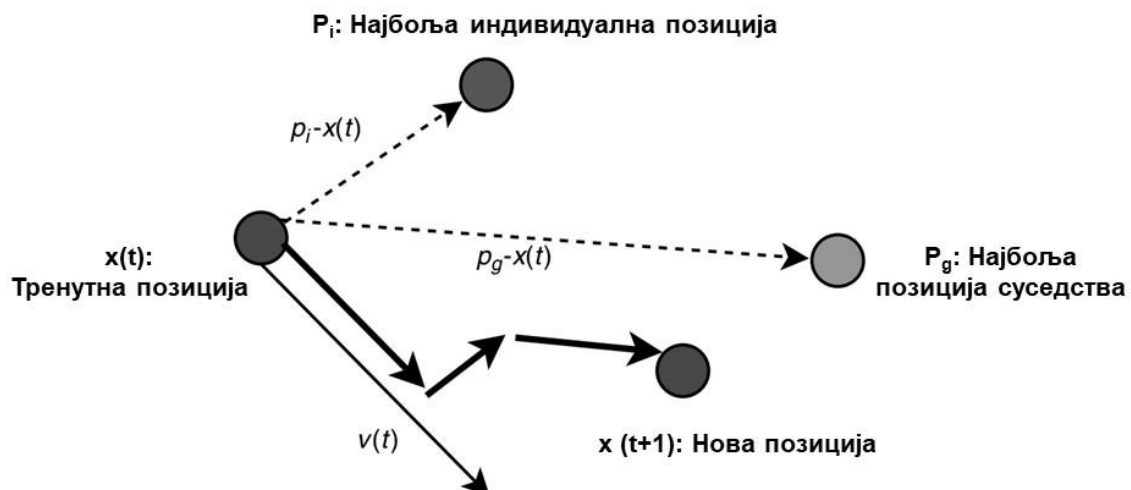
3) **Вероватноћа мутације** - је најважнији параметар генетског алгоритма. Генетски алгоритам је осетљив и на најмање промене овог параметра, те га због тога треба пажљиво дефинисати.

3.3.1.2 Оптимизација ројем честица

Последњих година истраживање интелигенције ројева, постаје важан сегмент у развоју оптимизационих техника. Термин рој је општи термин који се односи на скуп различитих интеракција између јединки. Интелигентно понашање роја јединки, засновано је на два концепта: самоорганизацији и подели рада [Karaboga et al., 2014]. Самоорганизација омогућава јединкама да искористе резултате сопствених активности, али и резултате активности других јединки. Тај механизам успоставља основна правила интеракције између компонената система. Самоорганизација се може дефинисати као скуп динамичких механизма, који резултира структуром система на глобалном нивоу, а последица је интеракција између компонената на нижим нивоима. Правила осигуравају да се интеракције извршавају на основу локалних информација. Концепт поделе рада унутар роја, посебна је врста организације у којој специјализоване јединке истовремено извршавају различите задатке. Подела рада омогућава роју да се брзо прилагоди променама у окружењу. Ова два концепта од суштинске су важности за решавање проблема

оптимизације функције. Алгоритми интелигенције роја имитирају социјално понашање: мрава, пчела, оса, риба и птица, које се такмиче у потрази за храном. Главна карактеристика ових алгоритама је да су честице једноставне, да међусобно директно сарађују и крећу се у простору решења.

Оптимизација ројем честица (енг. Particle Swarm Optimization - PSO) је стохастички метод базиран на популацији решења, а инспирисан интелигенцијом роја. Метод је развијен од стране J. Kennedya и R. Eberharta 1995. године. Динамика популације симулира понашање природних организама (риба, птица) у потрази за храном. Важно је преношење информација у оквиру групе, с циљем налажења нових места са довољно хране. То је једноставан еволутивни алгоритам, у коме се локалним кретањем координише понашање без било какве централне контроле. У основи је овај алгоритам био дизајниран првенствено за континуалне проблеме оптимизације. По аналогији са еволутивним алгоритмима појам честица одговара појму јединка, а појам роја, појму популација. Свака честица се посматра као тачка у простору која прилагођава свој „лет“ на основу сопственог искуства и на основу искуства других честица (суседства). Свака јединка на тај начин користи претходна искуства других јединки, стечена током потраге за храном слика 3.13.



Слика 3.13 Приказ кретања честица од једне позиције до друге у простору претраживања.

Извор:[Talbi, 2009].

За разлику од GA, оптимизација ројем честица не садржи еволуцијске операторе, као што су укрштање и мутација. У PSO оптимизацији, подразумева се итеративно кретање унутар простора претраживања. Свака честица i је могући кандидат решења проблема, а представљена је вектором x_i у простору решења. Потенцијална решења (честице), лете кроз простор проблема пратећи тренутно најбоље честице. Свака честица има свој положај и брзину преко којих се одређује смер и корак честице и води евиденцију својих координата у простору претраживања. Брзина се итеративно коригује на основу информација добијених у претходном кораку алгоритма. То се имплементира у меморију, у којој се чувају подаци о најбољој позицији постигнутој током претраге. Осим података о тренутном положају честице, PSO формира скуп који садржи податке о најбољим позицијама. Оптимизација користи сарадњу између честица. Успех појединих честица утиче на понашање других честица. Свака честица успешно прилагођава свој положај x_i према глобалном оптимуму, на основу два фактора: најбољег оствареног положаја посматране честица ($pbest$) и најбољег положаја оствареног од стране целог роја ($gbest$). Ако са $x_i(t)$ означимо позицију i – те честице у простору претраживања у тренутку t , положај честице се мења додавањем брзине $v_i(t)$ тренутном положају (3.15) [Engelbrecht, 2007].

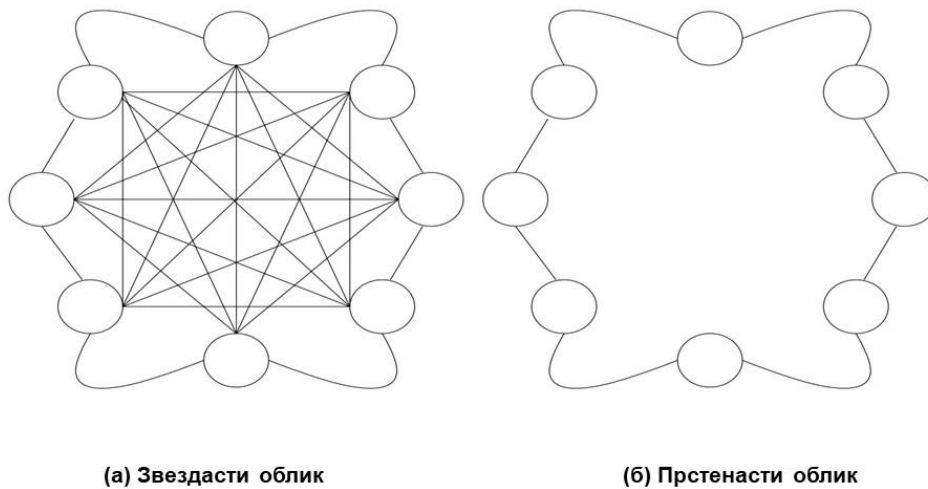
$$x_i(t + 1) = x_i(t) + v_i(t + 1). \quad (3.15)$$

Вектор брзине руководи оптимизационим процесом, одсликавајући искуствено знање честице и промену информације услед „социјалне“ интеракције честице са суседним. Искуствено знање представља когнитивну компоненту, која је пропорционална растојању честице од њене најбоље позиције (*personal best position*). Промена информација услед социјалне интеракције представља социјалну компоненту. Вредност најбољег решења се чува и назива се $pbest$. Рој честица прати још једну добру вредност, која је постигнута од стране целог роја честица $gbest$ (*global best position*). Концепт PSO се састоји од мењања брзине сваке честице према њеној $pbest$ и $gbest$ локацији у временском интервалу t . За израчунавање $gbest$ вредности важна је топологија суседства, тј. начин на који су честице роја међусобно повезане. Социјална информација је најбоља пронађена позиција за рој и означава се са $\hat{y}(t)$. За вредност $gbest$ се ажурирање брзине честице i врши се по релацији (3.16) [Engelbrecht, 2007; Parsopoulos & Vrahatis, 2010]:

$$v_{ij}(t + 1) = wv_{ij}(t) + c_1r_{1j}(t)[y_{ij}(t) - x_{ij}(t)] + c_2r_{2j}(t)[\hat{y}_j(t) - x_{ij}(t)], \quad (3.16)$$

где је $v_{ij}(t)$ брзина честице i у простору димензија $j = 1, \dots, n_x$, у времену t , $x_{ij}(t)$ је положај честице i у димензији j са временским интервалом t , c_1 и c_2 су позитивне константе које изражавају учешће когнитивне и социјалне компоненте респективно. Величине $r_{1j}(t)$ и $r_{2j}(t)$ су насумично изабране вредности из интервала $[0,1]$. Те случајне вредности уводе стохастички елемент у алгоритам. Величина w у релацији (3.16) представља инерцију, важан механизам који контролише способности роја да претражују простор и експлоатишу нађено решење. Коефицијент инерције w контролише утицај претходне брзине на тренутну. Вредност w утиче на конвергенцију алгоритма. Уколико је $w \geq 1$, брзина расте све време током рада алгоритма и рој дивергира. За $w < 1$, брзина опада током рада алгоритма и на крају достиже вредност нула. Мала вредност w омогућава локалну експлоатацију пронађеног решења. Избор вредности w , повезан је са избором вредности c_1 и c_2 .

За сваку честицу дефинише се суседство. Суседство показује друштвени утицај међу честицама. Постоје разне могућности дефинисања суседства. Перформансе алгоритма у великој мери зависе од комуникације између суседних честица и структуре социјалне повезаности. У високо повезаним социјалним мрежама, већина честица комуницира међусобно. Са аспекта оптимизације, већи степен повезаности, значи и бржу конвергенцију алгоритма. На слици 3.14 су дати неки примери структуре социјалних мрежа (суседства).



Слика 3.14 Графичка репрезентација примера топологије суседства
 1) звездасти облик 2) прстенасти облик. Извор: [Engelbrecht, 2007].

Критеријуми заустављања, као и у осталим оптимизационим алгоритмима могу бити: постигнут максималан број итерација, пронађено задовољавајуће решење или ситуација у којој нема побољшања вредности функције у оквиру дефинисаног броја итерација. Алгоритам прекида са радом и када нормализовани полупречник R_{norm} (однос максималног полупречника роја R_{max} и пречника почетне популације $D(S)$) роја достигне вредност нула.

3.3.1.3. Оптимизација колонијом вештачких пчела

Класичну слику роја, представља рој пчела око кошнице. Слично понашање показују и популације мравља, птица и риба. За решавање проблема оптимизације функције више променљивих, D. Karaboga је 2005. године, предложио алгоритам колоније вештачких пчела (енг. Artificial Bee Colony – ABC algorithm) [Karaboga, 2005]. Овај алгоритам спада у метахеуристичке алгоритме засноване на популацији решења, инспирисане интелигентним понашањем пчела у потрази за храном. Анализом карактеристика популације природних пчела, могу се издвојити два основна задатка које рој извршава: проналажење и напуштање

извора хране. Већ је поменуто да самоорганизација и подела рада коју показују ројеви у природи, даје алгоритмима интелигенције роја велике могућности у проналажењу оптимума функције. Колонија пчела се по том концепту дели на две групе: пчеле радилице и незапослене пчеле (у које спадају посматрачи и извиђачи). Пчеле радилице крећу у потрагу за извором хране. По ком критеријуму ће пчеле бирати извор хране зависи од многих фактора: близине кошнице, обилности извора и могућности искоришћења. Пчеле радилице чувају информацију о извору хране: правцу и растојању извора од кошнице и деле је са осталим пчелама у кошници. Размена информација између пчела је најважнији вид социјалног понашања и формирања колективног знања. Комуникација између пчела о квалитету и карактеристикама извора хране се одвија путем карактеристичног плеса. Информације о свим изворима хране прате посматрачи и бирају „најисплативији“ извор хране. Пчеле радилице, одређено време експлоатишу извор хране, а затим га напуштају. Тада пчела радилица постаје незапослена пчела – извиђач. Пчеле извиђачи траже нови извор хране за експлоатацију. Уобичајено је да је оптималан број извиђача у колонији пчела око 5-10% укупне популације. Другу групу незапослених пчела чине пчеле посматрачи који изворе хране проналазе на основу информација које деле са пчелама радилицама.

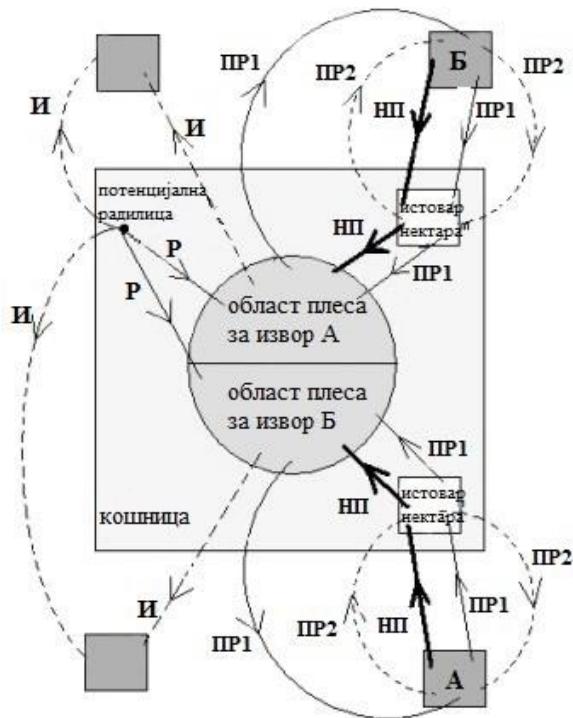
По аналогији са колонијом природних пчела, основу алгоритма колоније вештачких пчела чине: извор хране, пчеле радилице и незапослене пчеле (посматрачи и извиђачи) [Karaboga, & Basturk, 2008]. Половину колоније чине пчеле радилице, а другу половину чине посматрачи. За сваки извор хране постоји једна пчела радилица. Другим речима, број пчела радилица једнак је броју извора хране. Пчела радилица која напусти извор хране, јер његова експлоатација није исплатива, постаје извиђач. Због једноставности се „исплативост“ експлоатације извора у алгоритму АВС описује једном величином. Пчеле радилице деле информације о извору са вероватноћом пропорционалном исплативости извора хране. На слици 3.15 је симболично приказан начин понашања пчела у потрази за храном [Karaboga, & Basturk, 2008]. Откривени извори хране су обележени словима А и Б. Извор хране представља могуће решење проблема који се оптимизује. Количина нектара коју даје извор хране, одговара квалитету решења и представља његову фитнес вредност. Потрага креће са незапосленом пчелом (НП). Ова пчела нема информације о изворима хране у близини кошнице. За такву пчелу постоје две могућности: да постане извиђач (И) и започне претраживање извора спонтано на основу унутрашње мотивације или неких спољашњих трагова; или да истраживање започне након „плеса“ неке од пчела (пчела регрут - Р). Након проналажења извора, пчеле користе своје способности да локализују и

меморишу извор хране и почињу да га експлоатишу. Пчела радилица може након складиштења хране да напусти извор хране (постаје незапослена пчела - НП), да регрутује друге пчеле из кошнице пре повратка на исти извор хране (пчела радилица -ПР1) или да настави са потрагом без регрутовања осталих пчела (пчела радилица -ПР2). Важно је нагласити да све пчеле не крећу истовремено у потрагу за храном. Експерименти показују да је број пчела које крећу у потрагу, пропорционалан разлици између укупног броја пчела и броја оних које тренутно истражују. Процес претраживања колонијом вештачких пчела се може описати следећим етапама [Karaboga & Basturk, 2008]:

- 1) Пчеле радилице одређују извор хране у суседству меморисаног извора хране.
- 2) Пчеле радилице деле информацију са посматрачима у кошници, а затим посматрачи селектују један од извора.
- 3) Посматрачи селектују извор хране у суседству извора који сами изаберу.
- 4) Пчела радилица чији извор се више не експлоатише постаје извиђач и почиње насумично истраживање нових извора хране.

Главни кораци алгоритма су: формирање почетне популације; кретање радилица ка изворима хране и одређивање износа нектара; кретање посматрача према изворима хране и одређивање њиховог износа; кретање извиђача ради проналажења нових извора хране и меморисање најбољег извора хране.

Пчеле радилице процењују квалитет решења. Ту информацију деле са посматрачима, а посматрачи врше одабир извора путем селекције познате као „коло среће“. Итерација се завршава фазом извиђања до које долази само ако пчела напусти постојећи извор (решење). Извиђачи крећу у потрагу за храном без претходног упутства. Овакав начин претраживања резултује проналажењем било које врсте извора хране, малим трошковима претраживања, али и ниским квалитетом извора. Повремено, извиђачи могу случајно да нађу богат, потпуно непознат извор хране. Уколико нема побољшања решења у оквиру одређеног броја покушаја, тада се извор хране напушта и запослена пчела придружена том извору постаје извиђач.



Слика 3.15 Понашање пчела у потрази за храном.
Извор: [Karaboga & Basturk, 2008].

У складу са претходно поменутиим процесима претраживања простора и искоришћења добијеног решења, који морају бити у равнотежи, у овој техници посматрачи и пчеле радилице реализују процес експлоатације, а извиђачи контролишу процес претраживања простора, откривајући нове изворе хране. Опстанак и развој колоније пчела зависи од брзине претраживања и ефикасности у коришћењу најбољег извора хране.

Сваки циклус у ABC алгоритму се састоји од три процеса: кретање пчела радилица и посматрача ка изворима хране, израчунавање количине нектара и издвајање пчела извиђача и њихово насумично кретање ка могућим изворима хране. У првом кораку ABC алгоритам насумично генерише почетни извор хране од SN решења, где SN означава број извора хране. Свако решење x_i ($i = 1, 2, \dots, SN$) је D -димензионални вектор. Овде је D број оптимизационих параметара. За сваку пчелу радилицу, нови извор хране се генерише по релацији (3.17) [Karaboga & Akay, 2009]:

$$v_{ij} = x_{ij} + \phi_{ij}(x_{ij} - x_{kj}), \quad (3.17)$$

где је ϕ_{ij} је насумично изабран број из интервала $[-1, 1]$, индекс $k \in \{1, 2, \dots, SN\}$ и индекс $j \in \{1, 2, \dots, D\}$ су насумично изабрани. Такође, k је одређено случајним избором и различито је од i . Он контролише настанак нових извора око x_{ij} . Релација (3.17) је основна

формулација ABC алгоритма, јер се помоћу ње на основу старог решења генерише ново. Ново решење \vec{v}_i се пореди са старим \vec{x}_i и пчела радилица почиње да експлоатише бољи извор. Када пчеле радилице комплетирају претраживање, деле информације о квалитету извора. Пчеле посматрачи посматрају на основу резултата пчела радилица, бирају извор хране, у зависности од количине нектара (фитнес вредности функције циља). Вероватноћа да ће пчела посматрач прихватити ново решење дата је релацијом:

$$P_i = \frac{fit_i}{\sum_{j=1}^{SN} fit_j}, \quad (3.18)$$

где је fit_i фитнес вредност решења \vec{x}_i , које је пропорционално количини нектара из извора на позицији i . Када пчела посматрач изабере извор хране, тражи ново решење у окружењу изабраног. Уколико се, позиција извора не може побољшати током одређеног броја циклуса, извор се напушта. Тада наступају пчеле извиђачи, јер је потребно пронаћи ново, независно решење. Вредност дефинисаног броја циклуса након кога пчела напушта извор је важан контролни параметар ABC алгоритма и зове се „*limit*“. Ако подразумевамо да је напуштени извор x_i и $j \in \{1, 2, \dots, D\}$, тада извиђачи истражују нови извор хране којим замењују напуштени x_i . Уводи се нови извиђач који проналази ново решење унутар задатих граница, по релацији (3.19):

$$x_i^j = x_{min}^j + rand[0,1](x_{max}^j - x_{min}^j). \quad (3.19)$$

Поред уобичајених параметара: (број јединки у популацији и максималан број евалуација), за ефикасност ABC алгоритма је важан контролни параметар *limit*. Извор хране који се не може више експлоатисати напушта се када је пређена вредност параметра *limit*. Вредност параметра *limit*, зависи од димензија проблема и величине колоније:

$$limit = (SN * D). \quad (3.19)$$

Кораци алгоритма се понављају током дефинисаног броја циклуса, који називамо максималан број циклуса (енг. Maximum Number of Cycle - *MCN*) или док се не испуни критеријум заустављања. У основи ABC алгоритма су три кључна параметра: број извора хране који је једнак броју запослених или пчела посматрача (*SN*), вредност *limit* и максималан број циклуса (*MCN*).

3.3.1.4. Симулирано жарење

Раних осамдесетих година прошлог века истраживачи IBM-а, S. Kirkpatrick, C.D. Gelatt и M.P. Vecchi, предложили су нови итеративни метод за налажење локалног минимума функције, користећи аналогију између оптимизационих проблема и физичких појава [Kirkpatrick et al.,1983]. Ослањајући се на резултате које је 1953. објавио Metropolis примењујући Monte Carlo метод за одређивање карактеристика супстанце које су састављене од већег броја молекула који међусобно интерагују, развили су метод за проналажење глобалног оптимума, познат као симулирано жарење (енг. Simulated Annealing-SA). Полазна идеја је била аналогија између оптимизације функције и постизања стабилне конфигурације физичког система. У решавању проблема оптимизације функције полази се од дефинисања функције циља (у физици - слободна енергија система), затим се дефинише простор параметара функције (у физици - координате честица) и на крају налажење оптималног решења одговара налажењу стања са најнижом енергијом, чиме се постиже стабилност физичког система.

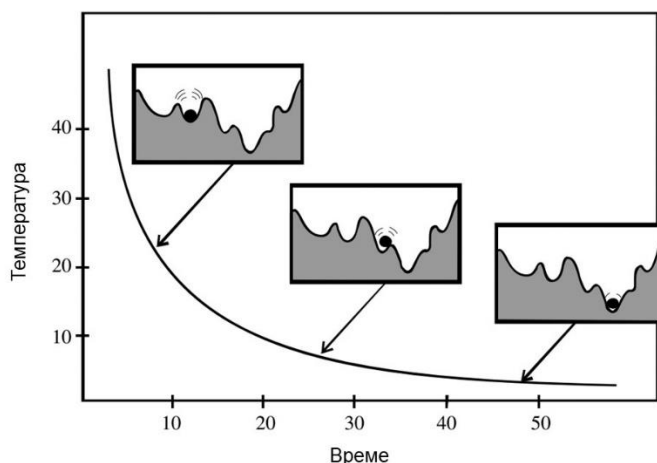
За промену стања материјала, у физици се користи, температура као параметар који се мења. Један од поступака којим се то постиже је жарење – термичка обрада у којој се метал излаже повишеним температурама у дужем временском периоду, а после тога споро хлади. Контролисано опадање температуре доводи до кристализације и настанка стабилног стања, које одговара апсолутном минимуму енергије. У супротном, нагло опадање температуре доводи до настанка аморфне структуре и метастабилног стања које одговара локалном минимуму енергије. Техника се састоји од увођења контролног параметра који има улогу температуре у процесу жарења. Улога тог параметра је иста као и у физичком систему: мора да води ка оптималном решењу, ако температура опада полако и контролисано или ка локалном минимуму уколико опада нагло. То је аналогија између минимизације функције циља и спорог хлађења до постизања најниже енергије основног стања. Енергија стања одговара вредности функције циља, а минимум енергије одговара оптималном решењу проблема.

Алгоритам симулираног жарења се заснива на још једном резултату статистичке физике - Болцмановом закону расподеле, који даје вероватноћу да физички систем на датој температури у термодинамичкој равнотежи, има енергију E . Та вероватноћа је пропорционална Болцмановом фактору $e^{-\frac{E}{k_B T}}$, где k_B означава Болцманову константу.

Алгоритам симулираног жарења захтева контролу следећих параметара:

- почетну температуру,
- критеријум промене температурне фазе
- закон опадања температуре
- критеријум за завршетак поступка.

Рад алгоритма се састоји од неколико етапа. У првој етапи алгоритам генерише насумично изабрану тачку $x(0)$ и почетну вредност температуре T (најчешће велика вредност) [Du & Swamy, 2016]. Затим се почетно решење пертурбује ($x = x + \Delta x$). Евалуира се функција енергије $\Delta E(x) = E(x + \Delta x) - E(x)$. Ако је нова тачка боља од тренутне ($\Delta E(x) < 0$), замењује старо решење. Функција циља је „енергија“ система и њена вредност ће бити прихваћена уколико се смањује, али уколико се повећава за неко ΔE , биће прихваћена са вероватноћом $P = e^{-\frac{\Delta E}{T}}$. Такав механизам обезбеђује претраживање већег дела простора. На високој температури $e^{-\frac{\Delta E}{T}}$ је блиско 1. На ниској температури, $e^{-\frac{\Delta E}{T}}$ је блиско нули, па се већина померања у смеру повећања енергије не прихвата. На средњим температурама, алгоритам повремено одобрава трансформације које деградирају функцију циља: стога оставља простора да се систем извуче из локалног минимума. Када температура тежи нули, алгоритам конвергира ка апсолутном минимуму енергије. У пракси се процес завршава, када дође до „очвршћавања“ система, тј. нема више померања изазваних повећањем енергије која је одређена током те фазе (слика 3.16) [Ledesma et al., 2008].



Слика 3.16 Приказ метода симулираног жарења
Извор: [Ledesma et al., 2008].

Температура је параметар који утиче на два аспекта алгоритма симулираног жарења: растојање од пробне тачке до тренутне тачке и на вероватноћу да ли ће бити прихваћена пробна вредност са већом вредношћу функције циља. Температура може бити вектор са различитим вредностима за сваку компоненту тренутне тачке. Уобичајено је да је почетна вредност температуре скаларна. Температура опада постепено током рада алгоритма. Температура, такође може бити функција броја итерација. Уколико температура опада спорије, већа је вероватноћа проналажења оптималног решења, али је дуже време рада алгоритма. Динамика алгоритма симулираног жарења се састоји из систематског смањења температуре током рада алгоритма. Како се температура смањује, алгоритам редукује степен претраживања с циљем конвергирања ка минимуму функције.

Распоред хлађења одређује за сваки корак алгоритма температуру T_i и има велики утицај на успех SA алгоритма. Перформансе SA алгоритма су јако осетљиве на избор распореда за хлађење. Параметри који се узимају у обзир приликом одређивања распореда хлађења су: полазна температура, равнотежно стање, функција хлађења и крајња температура која дефинише критеријум заустављања. Критеријуми заустављања могу бити:

- Постизање коначне температуре T_F (која бити врло ниска $T_{min} = 0,01$).
- Постизање унапред одређеног броја итерација без унапређења најбољег пронађеног решења.
- Постизање унапред одређеног броја прихватања суседног решења, при свакој температури.

SA алгоритам не користи информације прикупљене током претраживања, па спада у групу алгоритама који не памте. У недостатку општих теоријских резултата, проблем дефинисања параметара се своди на емпиријско прилагођавање. За конкретни проблем, задатак је компликован због велике осетљивости резултата (и времена израчунавања) на вредности подешених параметара. То је један од недостатака овог метода.

3.3.2. Методе локалног претраживања

Методе локалног претраживања су углавном једноставне и брзо дају прилично добра решења. Ове методе су углавном засноване на једном решењу (енг. Single-solution based metaheuristics, S-metaheuristics), које се трансформише током претраживања [Talbi, 2009]. Недостатак локалних метода је осетљивост на почетно решење, што може утицати на квалитет решења. Методе локалног претраживања најчешће конвергирају ка локалном

оптимуму и немају могућност напуштања локалног и проналажења глобалног минимума. Да би се избегао главни недостатак, заглављивање алгоритма у локалном оптимуму, предложени су многи алтернативни алгоритми.

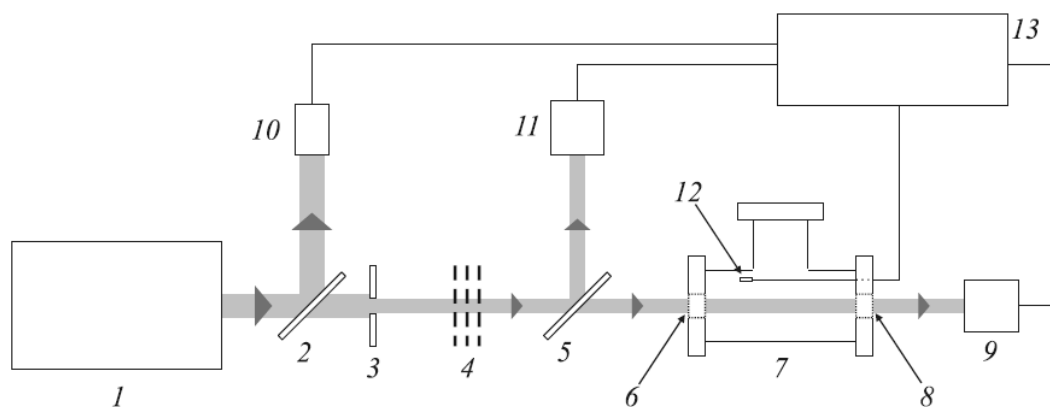
4. ЕКСПЕРИМЕНТАЛНА АПАРАТУРА

Фотоакустичка спектроскопија се захваљујући великој осетљивости за инфрацрвену линеарну и нелинеарну апсорпцију и релаксацију молекула у различитим смешама, користи за прецизну детекцију и мерења концентрација гасова присутних у атмосфери у траговима. Карактеристика која фотоакустичкој методи детекције даје предност у односу на друге методе детекције је постојање директне пропорционалности између фотоакустичког сигнала забележеног микрофоном и интензитета апсорбованог зрачења [Sigrist, 2003]. Међутим, фотоакустичка спектроскопија спада у групу релативних метода, па апсорбовану енергију у гасу, можемо одредити на основу интензитета фотоакустичког сигнала, само уколико је поступком калибрације, одређен фактор пропорционалности између ове две величине [Rabasović et al., 2006a, 2006b]. Калибрација фотоакустичког система се врши неком апсолутном методом, као што је трансмисиона спектроскопија. Експериментална поставка коришћена за добијање фотоакустичких сигнала анализираних у овом раду, прилагођена је истовременом коришћењу фотоакустичке и трансмисионе спектроскопије.

У овом поглављу ће бити детаљније анализирана експериментална апаратура за фотоакустичку спектроскопију којом је испитивана смеша апсорбер (SF_6 и C_2H_4) и неапсорбујући (buffer) гас с циљем проучавања процеса (МФ) апсорпције и релаксације. У општем случају експериментална апаратура за примену фотоакустичког ефекта генерисаног ласерским зрачењем садржи следеће, основне компоненте [Terzić & Jovanović-Kurera, 2000]:

- 1) *оптички део* – систем за побуђивање фотоакустичких таласа;
- 2) *акустички део* – фотоакустичка ћелија са узорком, детектор;
- 3) *електрични део* – систем за појачавање, регистрацију и обраду сигнала.

У применама и истраживањима су могуће различите модификације ове основне апаратуре. Експериментална фотоакустичка апаратура која је коришћена за испитивање гасне смеше апсорбер (SF_6 и C_2H_4) и неапсорбујући (buffer) гас, приказана је на слици 4.1.



Слика 4.1 Експериментална поставка за фотоакустичка мерења:

1 – TEA CO₂ ласер; 2, 5 – делитељ снопа; 3 – бленда; 4 – атенуатори; 6, 8 – улазни и излазни NaCl прозори; 7 – фотоакустичка комора; 9, 11 – џулметар; 10 – фотон-драг детектор; 12 – микрофон; 13 – систем за обраду сигнала. Извор: [Rabasović, 2007; Rabasović et al., 2008].

За побуду молекула SF₆ и C₂H₄ коришћен је TEA CO₂ ласер (1) [Rabasović, 2007]. Део зрачења (10%) се одваја и шаље помоћу делитеља снопа (2) на фотон-драг детектор (10). Фотон драг детектор се користи за детекцију зрачења у средњој ИЦ области. Сигнал са фотон-драг детектора се шаље на осцилоскоп, како би се одредио временски профил ласерског импулса. Просторни профил је дефинисан блендом (3), на коју наилази зрак који је прошао кроз делитељ снопа. Даље слабљење зрака и промена интензитета зрачења може да се оствари додавањем атенуатора (4). Један део зрака који наилази на делитељ снопа (5), се води на џулметар, којим се одређује енергија ласерског зрачења. Други део зрака након проласка кроз делитељ снопа долази до фотоакустичке коморе (7). Зрачење које прође кроз комору у којој се налази испитивана смеша, детектује се џулметром (9). У комори се налази микрофон који детектује фотоакустички сигнал (12). Даље, сигнал иде на аналогни осцилоскоп, који појачава и приказује облик фотоакустичког сигнала. Проласком кроз систем за обраду сигнала (13) добија се дигитални запис облика сигнала и одговарајуће енергије.

1) *Оптички део апаратуре.* Оптички део експерименталне апаратуре се састоји од: извора ласерског зрачења, који може бити континуални или импулсни и система за управљање параметрима ласерског зрачења. Као извор побуде, у експерименту је коришћен импулсни CO₂ ласер. Овај тип ласера је најважнији представник класе молекулских ласера, са врло високом снагом зрачења, услед велике ефикасности прелаза за таласну дужину $\lambda = 10,6\mu\text{m}$. TEA CO₂ ласер се управо из тог разлога користи у случајевима када је потребна велика снага зрачења (нпр. у експериментима МФ апсорпције). Скраћеница TEA потиче од

енглеских речи *Transversely Excited Atmospheric Pressure*, а дефинише ласер са попречном побудом (побуда је попречна на правац простирања зрачења), а радна смеша је на атмосферском притиску. У случају рада на атмосферском притиску или вишим притисцима, може се добити већа излазна снага зрачења при истој дужини ласера. Ласер коришћен у експерименту чија је поставка приказана на слици 4.1. ради у проточном режиму. Радна смеша је $\text{CO}_2 + \text{He} + \text{N}_2$, састава $\text{He} : \text{CO}_2 : \text{N}_2 = 10 : 8 : 6$. За примену фотоакустичког метода у анализи акустичких сигнала насталих процесима МФ апсорпције, од значаја је знати карактеристике временског профила ласерског зрачења. Веома је важно да се у раду може контролисати временски профил ласерског зрачења, контролом протока појединих гасова, који се уводе у ласер. За горе поменути састав смеше ласер даје импулсе трајања 45 ns (енг. Full Width at Half Maximum - FWHM, а означава ширину импулса на половини максималног интензитета), са репом ниског интензитета од 2 μ s. Облик и трајање ласерског импулса одређује се помоћу фотон-драг детектора (10). Фотон драг детектор се користи за детекцију зрачења у средњој ИЦ области. Сигнал са фотон-драг детектора се шаље на осцилоскоп, како би се одредио временски профил ласерског импулса. На основу трајања и облика импулса може се проценити максимална снага коју даје ласер. Просторни профил је дефинисан блендом. Ласерски сноп није фокусиран. Унутар резонатора се налази бленда којом се контролише начин рада ласера (у TEM₀₀ моду или мултимодно). Ласер који је коришћен у експерименту ради мултимодно, при потпуно отвореној бленди, па је због великог интензитета део зрачења одвајан делитељем снопа. Ласер ради у опсегу таласних дужина (9,21-10,83) μm на 65 линија. За избор и контролу таласне дужине коришћен је монохроматор, а за контролу и избора таласне дужине била је калибрисана скала микрометарског завртња. Максимална репетиција је 2 Hz. Радни напон је до 30 kV, али је ласер радио на напону од 26 kV [Rabasović, 2007].

2) *Акустички део апаратуре.* Фотоакустичке коморе за импулсну побуду могу бити мале или велике, од чега и зависи могућност добијања индивидуалних фотоакустичких сигнала. Фотоакустичка комора коришћена у овој експерименталној апаратури је велика комора прилагођена импулсној ексцитацији и истраживањима на ниском притиску. Дизајн фотоакустичке коморе је важан за добијање доброг односа сигнала и шума [Rabasović et al., 2008]. Велика фотоакустичка комора омогућава детектовање чистог сигнала без интерференције са зидова и прозора. Да би се једноставније могао да израчуна облик фотоакустичког сигнала, фотоакустичку комору сматрамо бесконачно великом, јер се у том случају гранични услови могу занемарити.

Комора коришћена у експерименту, у којој се налазила смеша гаса апсорбера SF_6 и C_2H_4 и бафер гаса Ar , има облик слова Т [Rabasović, 2007]. Тело коморе је цилиндричног облика са унутрашњим пречником од 9,3 cm (43). Према режиму рада коморе могу да се деле на резонантне и нерезонантне. За мерења анализирана у овом ради коришћена је нерезонантна комора. Помоћу такве коморе се могу анализирати појединачни фотоакустички сигнали и на основу њих се може одредити вибрационо-транслационо време релаксације. Унутрашња дужина коморе је 18,5 cm. Оваква дужина коморе, омогућава довољно велику апсорпцију, али је промена интензитета услед апсорпције незнатна. Дивергенција ласерског снопа се може занемарити.

Комора има два NaCl прозора за улазак и излазак ласерског зрачења, који нису под Брустеровим углом. Увођење гасова у комору, врши се у стационарном режиму. Систем за увођење гасова у комору обезбеђује да се у комори добије смеша гасова жељеног састава. Вакуумски систем треба да обезбеди рад на потпритисцима и добро чишћење коморе. Испитиване смеше се праве у самој комори, тако што се чисти гасови помоћу славина уводе из боца [Rabasović, 2007]. Притисак апсорбера је био 0,47 mbar. Притисак бафер гаса је мењан у опсегу од 10-100 mbar.

3) *Електрични део апаратуре*. Електрични део апаратуре за фотоакустичка мерења чини систем за појачање, регистрацију и обраду сигнала. Сигнал са микрофона (12) који се налази у фотоакустичкој комори, долази до осцилоскопа. Осцилоскоп појачава сигнал у зависности од осетљивости на коју је подешен и приказује облик фотоакустичког сигнала. Појачани сигнал се доводи на један канал дигиталног осцилоскопа, а на други канал се доводи сигнал са џулметра (9). Тако се добија дигитални запис фотоакустичког сигнала насталог у испитиваној гасној смеси.

5. АНАЛИЗА АТМОСФЕРСКИХ ПОЛУТАНАТА ПРИМЕНОМ НЕУРОНСКИХ МРЕЖА ЗА ИСТОВРЕМЕНО ОДРЕЂИВАЊЕ ВРЕМЕНА РЕЛАКСАЦИЈЕ И ПРОСТОРНОГ ПРОФИЛА ЛАСЕРСКОГ ЗРАЧЕЊА

5.1. Истовремено одређивање просторног профила ласерског зрачења и времена релаксације молекула SF₆

Нелинеарност, адаптивност и способност прилагођавања окружењу су инхерентна својства метода вештачке интелигенције. Комплексне реакције, сталне промене и међусобне интеракције делова система и окружења, прилагођавање, еволуција, основне су карактеристике атмосфере, као сложеног, динамичког система. Много заједничких карактеристика, са системом који треба анализирати, чини вештачку интелигенцију идеалном техником за проучавање процеса који се одигравају у атмосфери. Анализа атмосферских полутаната, са аспекта метода ФАС подразумева, праћење канала нерадијативне релаксације молекула након апсорпције зрачења и одређивање вибрационо-транслационог релаксационог времена τ_{v-T} . Апсорпцијом фотона чије су енергије у ИЦ области, а која је од највећег значаја за физику атмосфере, побуђују се вибрациона и ротациона стања молекула. У тропосфери, густина гаса је велика, па је велика и фреквенција судара, што сударну (нерадијативну) релаксацију чини главним процесом релаксације молекула. Међутим, вредности вибрационо-транслационог релаксационог времена, добијене применом различитих метода се веома разликују, те је од великог значаја наћи поуздан метод којим би било могуће прецизно одредити вредност ове важне величине. Примена интелигентних техника се чинила прилично перспективном из два разлога. Прво, до сада ове технике нису коришћене у ФАС, што је отворило могућности широке примене у анализи узорака у гасовитом, течном и чврстом стању и друго, ове технике су идеалне за анализу нелинеарних, комплексних, вишепараметарских система, због чега су све присутније у анализи атмосферских полутаната. Прецизно одређивање времена релаксације, али и налажење начина за унапређење постојеће експерименталне апаратуре у правцу минималног коришћења додатних оптичких инструмената чинили су оквир за анализу дату у радовима [Lukić 2013; Lukić et al. 2012, 2013a, 2013b], а у центру су истраживања датог у овој тези. При великим интензитетима ласерског зрачења, који се користе у фотоакустици, уобичајена је појава варијација просторног профила ласерског

зрака, које у неким случајевима нису занемарљиве и износе преко 20%. Резултат тих варијација су одступања у облику ФА сигнала. За прецизно одређивање просторног профила ласерског зрачења, постоје различити комерцијални инструменти, али се они не могу користити у случају ласера великих интензитета који су неопходни у истраживањима МФА [Mallidi & Emelianov, 2009]. У случају када је неопходно користити додатне инструменте, апаратура није прилагођена мерењима на терену (експериментални системи који садрже ласере, углавном су гломазни). Наравно, са аспекта прецизности важан ограничавајући фактор су управо додатни инструменти, који готово увек у мерења уносе грешку. Технике вештачке интелигенције су примењене са идејом да се: повећа прецизност у одређивању полупречника профила ласерског снопа, на основу кога се може извршити реконструкција реалног профила (значајно за одређивање времена релаксације), прецизно одреде карактеристике експерименталне апаратуре (кроз одређивање растојања на коме се детектује ФА сигнал), прецизно одреди време вибрационо-транслационе релаксације и обезбеди рад у реалном времену, што би унапредило и поједноставило коришћење гломазне ФА апаратуре.

Параметри ФА сигнала се истовремено одређују поступком фитовања експерименталног и теоријског сигнала. Директан утицај на облик ФА сигнала има просторни профил ласерског зрачења, јер се претпоставља да просторна расподела побуђених молекула одговара просторном профилу ласерског снопа. Уколико је апсорпциони коефицијент нелинеаран, просторна расподела побуђених молекула се не поклапа са профилем ласерског снопа. Тај проблем се превазилази коришћењем *top hat* профила [Rabasović et al., 2006a]. Просторни профили ласерског зрачења који се најчешће користе у анализи ФА сигнала и за које таласна једначина даје задовољавајућа решења Fourier-овим и Green-овим методом су: *top hat*, Gauss-ов и Lorentz-ов профил. Сложенији облик профила је Lorentz-ов профил са рупом, који се најчешће јавља у експерименту, а за који се одговарајући теоријски сигнали могу добити методом Green-ових функција. Временска расподела побуђених молекула, такође мора бити позната. У посматраном опсегу енергија, однос амплитуда минимума и максимума сигнала, не варира са нивоом побуде, те се може закључити да енергија побуде опада експоненцијално [Beck & Gordon, 1987]. До сада је показано и експериментално и теоријски [Rabasović et al., 2006a, 2006b, 2007] да и мале промене просторног профила ласерског зрачења могу значајно да утичу на облик ФА сигнала. Самим тим промене облика сигнала утичу и на вредност израчунатог времена релаксације, јер се време релаксације као параметар фита одређује фитовањем теоријског и експерименталног сигнала.

У раду су анализирани ФА сигнали настали у смешама $SF_6 + Ar$ и $C_2H_4 + Ar$. Израчунавање времена релаксације τ_{V-T} започиње анализом сигнала добијених у смеси $SF_6 + Ar$. Притисак смеше је мењан у опсегу од 10-100 mbar, а густина енергије ласерског зрачења Φ у опсегу од 0,4 – 1,5 Jcm⁻². Притисак апсорбера SF_6 је био константан и износио је 0,47 mbar. За истовремену процену полупречника профила ласерског снопа r_L и времена релаксације τ_{V-T} , коришћена је вишеслојна перцептронска мрежа са простирањем сигнала унапред [Lukić et al., 2014]. Овај тип мреже се најчешће користи за решавање проблема апроксимације функције. Вишеслојна перцептронска мрежа се састоји од система међусобно повезаних неурона, груписаних у слојеве: улазни слој, скривени слојеви и излазни слој [Ћојбашић et al., 2011]. Информација се кроз мрежу простире унапред, тако да излаз из једног слоја представља улаз у други слој. Основна идеја концепта вештачке неуронске мреже је да се жељено понашање, може постићи подешавањем параметара мреже. За обучавање вишеслојне перцептронске мреже [Hagan, & Menhaj, 1994] коришћен је алгоритам надгледаног обучавања на скупу парова које су чиниле улазна величина (ФА сигнал) и њој придружена излазна величина (параметри ФА сигнала). Када разлика између вредности излаза неуронске мреже и стварног излаза постане минимална, обучавање мреже се прекида. Циљ обучавања је мрежа, која добро генерализује, тј. има способност да продукује задовољавајући одговор и за податке из скупа који јој нису презентовани током обучавања. Да би мрежа постигла добре генерализационе способности, целокупан скуп података се дели на три скупа: скуп за обучавање (на коме се током обучавања подешавају вредности тежина), скуп за валидацију и тест скуп. Већ је поменуто у поглављу 2, да је због погодности при нумеричким израчунавањима, уместо полупречника ласерског зрачења r_L , коришћен бездимензиони параметар r^* ($r^* = r/r_L$) и уместо релаксационог времена τ_{V-T} , бездимензиони параметар ε ($\varepsilon = \frac{\tau_p}{\tau_{V-T}} = \frac{r_L}{c\tau_{V-T}}$). Задатак неуронске мреже је да процени вредности параметара r^* , ε и класу профила. За решавање проблема истовременог одређивања просторног профила ласерског снопа $R(r_L)$ (који се одређује на основу процењене вредности параметра r_L , јер се ради о симетричним профилима) и времена релаксације τ_{V-T} , дизајнирано је неколико мрежа. Структура неуронске мреже зависи од проблема који треба решити, а почиње одређивањем броја улазних, излазних и скривених неурона. Будући да се неуронском мрежом врши пресликавање скупа улазних променљивих у скуп излазних променљивих, мора се водити рачуна о сложености и структури физичког процеса који се решава. Физички процес приказујемо математички, пресликавањем улазног у излазни скуп, а да би поступак био ефикасан, морамо урачунати

и следеће: математичку сложеност операција (да ли је процес описан линеарним или нелинеарним једначинама), број елементарних математичких операција потребних да се на основу улазних података добију излазни, функционална зависност улаза и излаза. Прецизност апроксимације или способност мреже да тачно урачуна све детаље пресликавања, зависи од броја неурона у скривеном слоју. Треба имати у виду и то, да комплексност мреже зависи од броја неурона у свим слојевима и нагло расте са повећањем броја неурона у улазном и скривеном слоју. Због тога се при поређењу ефикасности више мрежа, у анализу мора укључити и комплексност мреже. Нема правила које одређује оптималан број улазних неурона, број скривених слојева или број неурона у скривеном слоју, па се оптимална архитектура за решавање конкретног проблема одређује на основу искуства и поређењем перформанси више мрежа. До одговарајуће архитектуре мреже за решавање проблема истовременог одређивања параметара r_L и τ_{V-T} дошло се устаљеним поступком покушај-грешка, поређењем генерализационих способности више различитих мрежа и компромисом између броја скривених неурона и захтевом да се сложеност мреже одржи на минималном нивоу. Подаци за обучавање мреже, су теоријски ФА сигнали (240) добијени на основу метода Green-ових функција (релација 2.6). За сваки тип профила ласерског зрачења, израчунато је по 80 сигнала. Теоријски сигнали су рачунати за три профила ласерског зрачења (Lorentz-ов, Gauss-ов и top hat профил), за вредности параметра ε у интервалу [0.5, 5] и вредности параметра r^* у интервалу [20, 50]. На слици 5.1. су због прегледности приказана само 32 теоријска сигнала од укупно 240 коришћених за обучавање мреже. Слика 5.2 приказује промене облика ФА сигнала услед промена ε и r^* , (један параметар је константан, а други се мења). На слици 5.3 је приказана структура неколико конструисаних мрежа са различитим бројем улазних неурона (21-28), различитим бројем скривених слојева (1 или 2) и различитим бројем неурона по слоју (7 до 15) неурона. У излазном слоју су три неурона за процену вредности три параметра фотоакустичког сигнала ε , r^* и класе профила (top hat, Lorentz-ов или Gauss-ов профил). Улаз у мрежу представљају фотоакустички сигнали узорковани у 21 или 28 еквидистантних тачака на t^* оси (слика 5.3). Након дефинисања топологије мреже, почиње обучавање мреже, којим се подешавају тежински коефицијенти на подацима из скупа за обучавање. Поступак обучавања мреже, који је коришћен је надгледано учење. Ово је тип учења захтева унапред дефинисане парове улазно - излазних података. Када разлика између излаза мреже и жељеног излаза достигне вредност која је претходно дефинисана, процес обучавања се прекида. Током процеса обучавања се подешавају тежински коефицијенти, како би се добила најмања грешка. У

већини примена се за функцију грешке узима средња квадратна грешка, јер се ради о једноставној и диференцијабилној функцији. У решавању проблема истовременог одређивања параметара ФА сигнала, за мерење перформанси током обучавања коришћена је средња квадратна грешка - усредњена квадратна грешка излаза мреже и жељеног излаза.

$$\text{MSE} = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n e_k^2 = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n (t_k - y_k)^2, \quad (5.1)$$

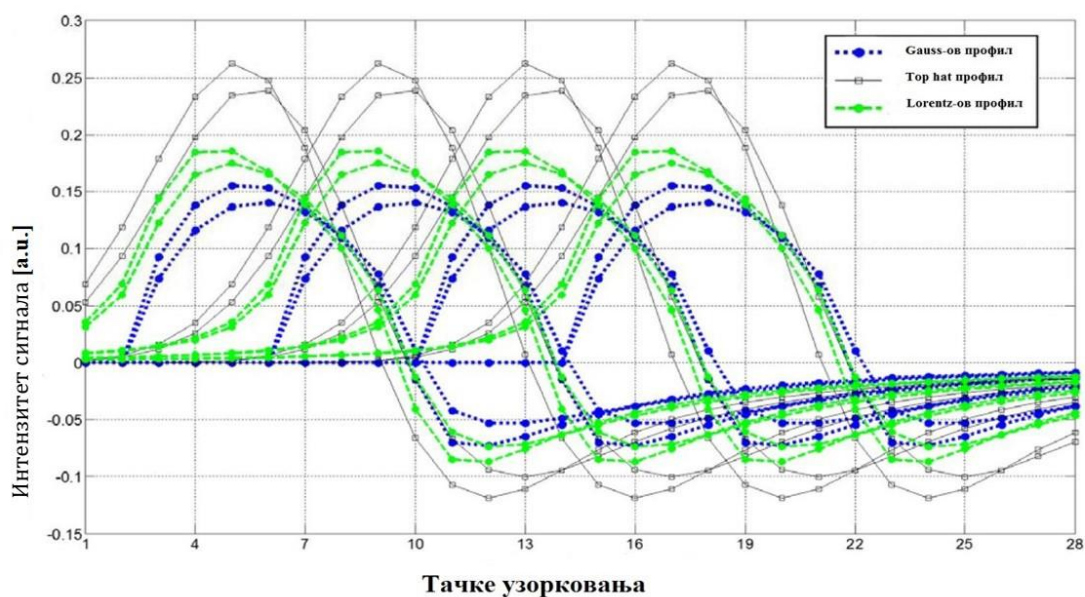
где n означава број узорака, e_k означава грешку мреже, t_k означава тражену вредност, а y_k је излаз мреже. Постоје многобројни методи подешавања вредности тежинских коефицијената, како би се добила минимална вредност функције грешке [Bishop, 2005]. Уобичајена функција је верзија метода опадајућег градијента, који је познат као алгоритам са простирањем грешке уназад (енг. back-propagation training algorithm - BP). Алгоритам са простирањем грешке уназад је заснован на једноставном итеративном поступку налажења минимума функције грешке, корак по корак, при чему се вредности тежина повећавају или смањују током обучавања, да би се добила минимална функција грешке. Алгоритам за подешавање тежина који се показао веома брзим и стабилним је Levenberg–Marquardt-ов алгоритам. Поступак подешавања тежина врши се према једначини:

$$\mathbf{w}_{k+1} = \mathbf{w}_k - (\mathbf{J}_k^T \mathbf{J}_k + \mu \mathbf{I})^{-1} \mathbf{J}_k e_k, \quad (5.2)$$

која се заснива на апроксимацији Hessian матрице.

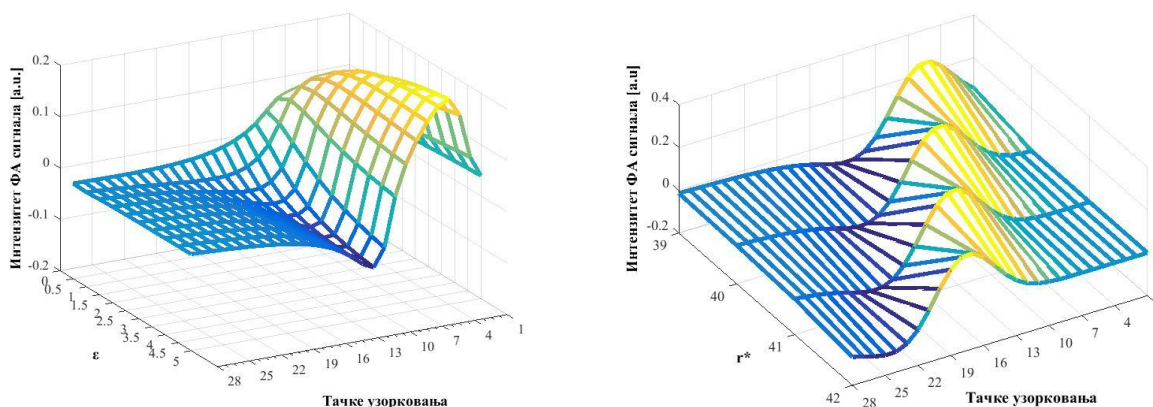
$$\mathbf{H} = \mathbf{J}\mathbf{J}^T + \mu \mathbf{I}, \quad (5.3)$$

где \mathbf{J} означава Јакобијан матрицу, \mathbf{I} означава јединичну матрицу и μ је увек позитиван коефицијент. Нове тежине се рачунају на основу претходних, па често је од пресудног значаја дефинисање почетних вредности тежина. Најчешће су почетне вредности мали случајни бројеви, а могу се дефинисати и на основу броја улазних неурона [Wessels & Barnard, 1992].



Слика 5.1 Скуп теоријских фотоакустичких сигнала генерисаних за обучавање вишеслојне перцептронске мреже

Узорак од 32 сигнала од укупног скупа од 240 фотоакустичких сигнала добијених за четири вредности r^* (39, 40, 41, 42) три класе профила – Lorentz-ов профил (приказане су две вредности $\varepsilon = 2.5$ и $\varepsilon = 3.5$), Gauss-ов профил (за две вредности $\varepsilon = 1.5$ и $\varepsilon = 2$) и top hat профил (за две вредности $\varepsilon = 2.5$ и $\varepsilon = 4.5$). Извор:[Lukić et al., 2014].

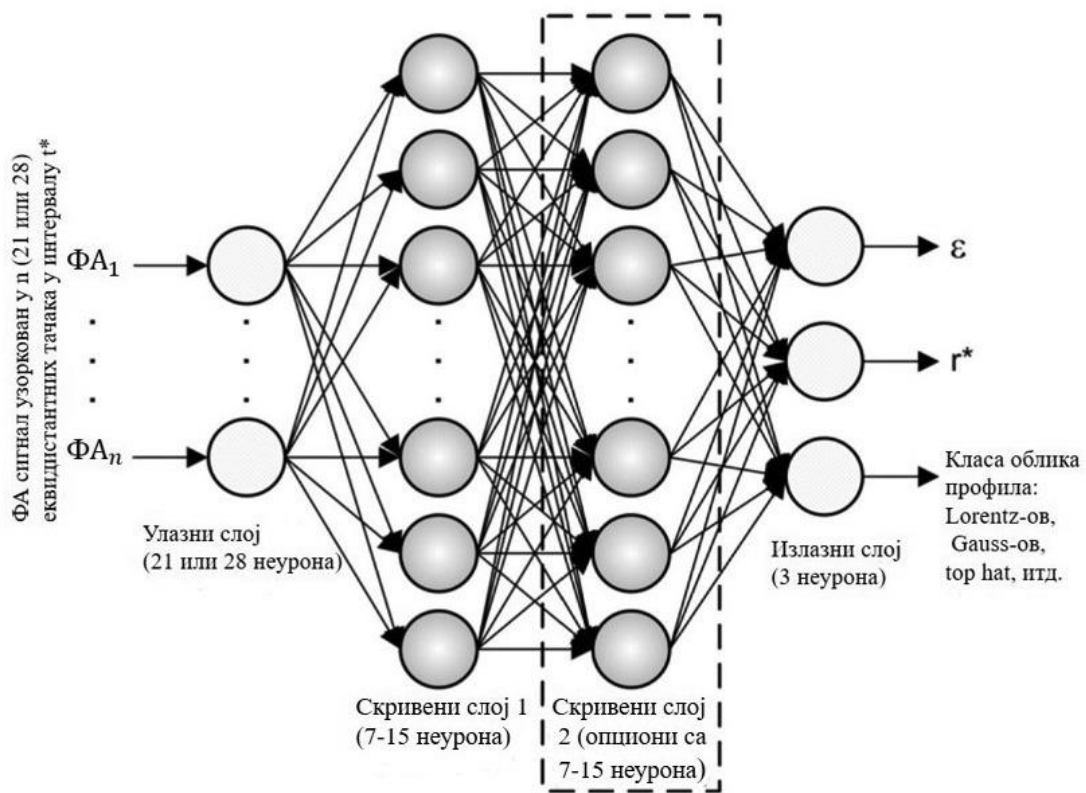


Слика 5.2 Скуп различитих фотоакустичких сигнала са Lorentz-овим профилем снопа ласерског зрачења

а) Скуп од 10 различитих ФА сигнала са Lorentz-овим профилем за десет вредности ε и константном вредношћу $r^* = 39$, узоркованих у 28 тачака. б) Скуп од 4 ФА сигнала за top hat профил за четири вредности r^* и константну вредност $\varepsilon = 3$, узоркованих у 28 тачака. Извор:[Lukić et al., 2014].

Скуп за обучавање мреже за истовремено одређивање ε , r^* и класе профила, тј. скуп ФА сигнала на основу којих се врши подешавање тежинских коефицијената, садржао је 168 ФА сигнала. Валидациони скуп за процену генерализационих способности мреже садржао је 36 ФА сигнала. Скуп за тестирање су чинили сигнали (36 ФА сигнала), који нису

презентовани мрежи током обучавања, јер се овај скуп користи за независну процену перформанси мреже. Мрежа је обучавана у лабораторијским условима (*off-line*). Целокупан скуп за обучавање, који садржи парове (жељени излаз-излаз мреже) се током једне итерације користи за подешавање тежина. То значи да је подешавање тежина вршено на крају сваке епохе. Међутим, по правилу, експериментални подаци садрже значајан ниво шума. Шум у ФА сигнаlima који припадају скупу за обучавање мреже, може довести до значајних грешака у процени вредности параметара у излазу мреже. У експерименталним ФА сигнаlima шум се уочава у области минимума сигнала, као осциловање сигнала због утицаја микрофона.



Слика 5.3 Структура вишеслојне перцептронске неуронске мреже за мерења у импулсној фотоакустичкој спектроскопији
Извор:[Lukić et al., 2014].

Апроксимационе способности мреже се тада могу поправити, уколико се на облик ФА сигнала утиче изменама у самој апаратури, техници или условима мерења. Са друге стране, рад са симулираним сигнаlima, обезбеђује већи степен контроле, због знатно мањег нивоа шума и продукује већи степен тачности. Скупови теоријских и експерименталних података се могу разматрати и користити одвојено (што је случај у овом раду), а могу се у

неким случајевима објединити у интегрисани скуп података за обучавање. У раду је неуронска мрежа за одређивање ε , r^* и класе профила, обучавана на теоријским, а тестирана на експерименталним подацима. На тај начин се смањују несигурности и неодређености које могу настати уколико се обе врсте података нађу у скупу за обучавање. Са аспекта обучавања мреже, то је важан закључак, јер показује да скуп теоријских сигнала садржи све релевантне информације, потребне за детаљно представљање проблема који треба решити. Обучавано је неколико мрежа са различитим бројем слојева и различитим бројем неурона у слоју, а критеријум за коначни избор мреже је представљао однос између перформанси и комплексности структуре (Табела 5.1).

Табела 5.1 Избор неуронских мрежа са најбољим перформансама

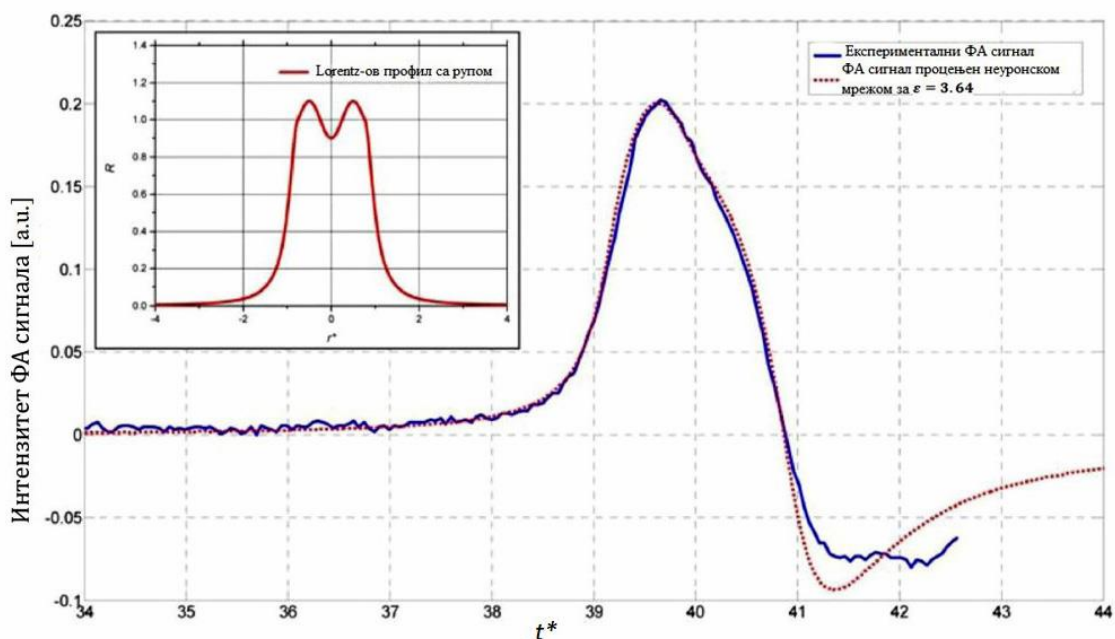
Структура неуронске мреже (бр.слојева и бр. неурона у слоју)	Укупан број неурона
ANN 28-10-3	41
ANN 28-15-3	46
ANN 28-7-7-3	45

У складу са савременим тенденцијама у развоју техника и метода за мерење атмосферских полутаната, први избор чине технике које омогућавају мерења на терену. Из тог разлога је неуронска мрежа за одређивање времена релаксације молекула SF₆, тестирана на експерименталним сигнаlima. За проверу способности мреже да процени тражене параметре (ε , r^* и класу профила) непознатог (експерименталног) фотоакустичког сигнала, дизајнирана је још једна мрежа [Lukić et al., 2014]. Мрежа је обучавана са 34 теоријских сигнала рачунатих методом Green-ових функција, за Lorentz-ов профил са рупом, који одговара експерименталном ласерском профилу. Већ је раније показано [Rabasović & Markushev, 2010] да се у ФА експериментима у којима се користе велики интензитети ласерског зрачења, просторни профил поклапа са Lorentz-овим профилем са рупом. Параметар ε је мењан у опсегу 0.4 до 5. На слици 5.4. је у левом углу приказан просторни профил ласерског снопа. Поклапање теоријског и експерименталног ФА сигнала је прилично добро, сем у делу минимума сигнала, где је евидентно осциловање експерименталног сигнала. У највећем делу су поклапања теоријског и експерименталног сигнала задовољавајућа. Иако постоје извесна одступања, не утичу на тачност процењених параметара. Израчунате вредности параметара експерименталног сигнала су: $\varepsilon = 3,64$ и

$r^* = 39$. Постигнута релативна грешка за параметар r^* је 2,5%, а за параметар ε је око 9%. Ова грешка је нешто већа у односу на грешке добијене тестирањем мреже симулираним сигнаlima, што је разумљиво због постојања разлике у теоријском и експерименталном профилу ласерског зрачења, али и због присуства шума у експерименталним сигнаlima.

Вредности вибрационо-транслационог релаксационог времена τ_{V-T} и параметра ε , одређене у различитим експериментима могу значајно да варирају, бележећи одступања и до 50% [Rabasović & Markushev, 2010]. Имајући ту чињеницу у виду, може се закључити да су вредности процењене мрежом одређене прецизно, са прилично малом грешком, будући да се ради о експерименталном сигналу, који увек у већој или мањој мери садржи шум. Толеранција и неосетљивост на шум је посебно важна особина неуронских мрежа, која омогућава њихову широку и ефикасну примену, што је потврђено и на овом примеру тестирања експерименталним сигнаlima. Захваљујући кључним особинама учењу и адаптацији, мрежа модификује своју унутрашњу структуру као одговор на промене у окружењу и постаје способна да предвиди понашање система на основу података који нису прецизно дефинисани или уколико постоје грешке мерења. За прецизно погађање непознатих параметара експерименталног сигнала пресудне су добре генерализационе особине, којим мрежа стиче способност предвиђања, јер научени образац понашања примењује на подацима који јој претходно нису презентовани. Из свега наведеног можемо закључити да се техника неуронских мрежа може успешно применити за одређивање времена релаксације молекула из експерименталног фотоакустичког сигнала.

Вредности тражених параметара процењене су истовремено у реалном времену. Можемо говорити о реалном времену, јер је утврђено да је време потребно за продуковање излаза, реда микросекунде [Lukić, 2013]. Ако се има у виду да је време које протекне између два сукцесивна ласерска импулса реда секунде, остаје довољно времена за кориговање детектованих варијација просторног профила ласерског снопа.



Слика 5.4 Експериментални и фитовани фотоакустички сигнал за смешу SF_6+Ar Експериментални сигнал је фитован ФА сигналом чији су параметри процењени неуронском мрежом: $\varepsilon = 3.64$, $r^* = 39$ и класа профила – Lorentz-ов профил са рупом. Извор: [Lukić et al., 2014].

5.2. Истовремено одређивање просторног профила ласерског зрачења и времена релаксације молекула C_2H_4

У претходном параграфу је показано да се непознати параметри (ε и r^*) експерименталног сигнала, насталог у смешу SF_6+Ar , могу одредити истовремено и са задовољавајућом тачношћу вишеслојном перцептронском (MLP) мрежом. Фаза која следи након успешне теоријске потврде, је фаза софтверске имплементације технике вештачких неуронских мрежа у постојећу ФА апаратуру и тестирања на терену. Међутим, сваки систем који се примењује у атмосферском мониторингу и анализи квалитета ваздуха, мора да испуњава неколико важних услова. Један од основних критеријума избора технике детекције на терену, је могућност детектовања више различитих врста полутаната истим инструментом. Већ је поменуто да се ФАС током година, издвојила као перспективна техника, управо због високе: осетљивости, селективности и динамичког опсега. Селективност је одређена карактеристикама примењеног ласера и детектора, док је велики динамички опсег инхерентно својство ФАС. Метода интелигентне импулсне фотоакустике има за циљ да унапреди метод ФА анализе, али и да истовремено задржи сва добра својства и предности ФА метода. С тим разлогом, је разматрана могућност одређивања времена

релаксације и растојања на коме се детектује експериментални ФА сигнал настао у смеси са апсорбујућим гасом (C_2H_4). Инертни гас Ar, који иначе представља природно окружење молекула SF_6 и C_2H_4 у атмосфери је и у овом случају коришћен као бафер гас. Питање, да ли интелигентна импулсна фотоакустика може испунити захтев за високом селективношћу, биће разматрано у овом параграфу испитивањем могућности и евентуалних ограничења вештачких неуронских мрежа у одређивању времена релаксације различитих молекула.

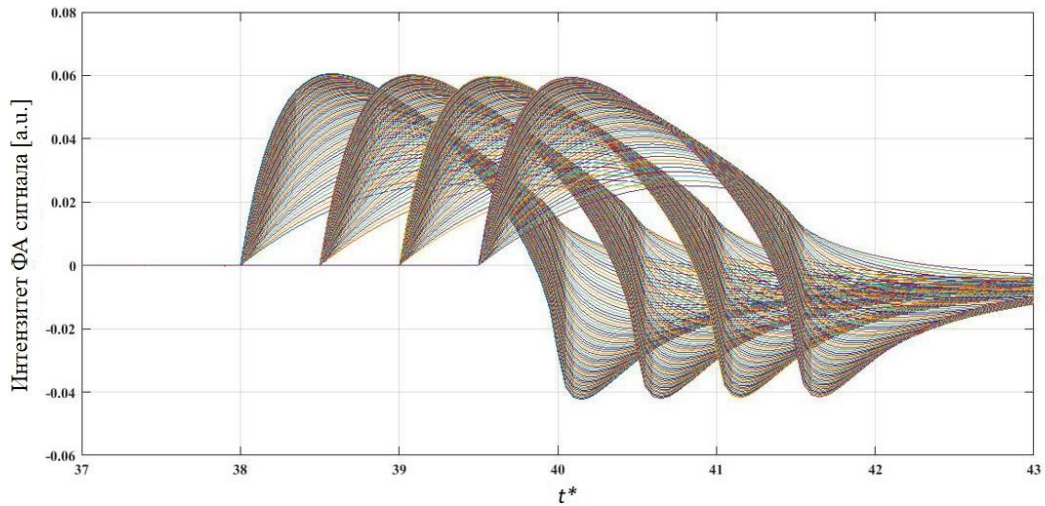
Претходно коришћена MLP мрежа, показала је добре резултате у процени вредности параметара ФА сигнала. Велики потенцијал овог типа вештачких неуронских мрежа потврђен је у различитим областима истраживања. Међутим, како за избор архитектуре мреже не постоје стриктна правила, до оптималне структуре мреже, долази се методом покушај – грешка (енг. trial and error process). Овим процесом се може доћи до оптималног броја слојева и оптималног броја неурона у слоју, али се при томе не сме занемарити утицај створеног модела на перформансе, као и време потребно за процену карактеристика великог броја дизајнираних мрежа. Имајући то у виду, али и чињеницу да постоје мреже које представљају добру алтернативу MLP мрежама (RBF, рекурентне, пробабилистичке, регресионе мреже итд.), за одређивање непознатих параметара ФА сигнала из смеси C_2H_4+Ar , коришћен је други тип мреже. Изабран је тип RBF мреже – генерализована регресиона неуронска мрежа (енг. Generalized Regression Neural Network –GRNN) [Specht, 1991]. Ова мрежа има фиксирану структуру, те је проблем избора оптималне архитектуре мреже (као у случају рада са MLP мрежом) превазиђен. Друга значајна предност ових мрежа је могућност селекције одговарајућих вредности параметара скривених неурона, без потребе да се изврши потпуна оптимизација мреже. Алгоритам повратног простирања грешке (BP алгоритам) је временски захтеван и може конвергирати у локални минимум. Регресиону мрежу, карактерише брз процес обучавања, јер нема итеративне процедуре којом се долази до оптималног решења. За конкретну примену на проблем анализе ФА сигнала у временском домену, посебно ако се има у виду анализа експерименталних сигнала добијених мерењима на терену, важна је чињеница да је техника регресионих мрежа погодна за рад са подацима који садрже шум. Шум је у експерименталним ФА сигнаlima увек присутан и веома је важно да се мрежа може обучити без фитовања шума који постоји у подацима. Међутим, поред предности GRNN мреже имају и недостатке, који су повезани са захтевним поступцима израчунавања при евалуацији нових података. Узрок томе је велики број неурона у скривеном слоју. Један од начина који се често користи за

превазилажење овог проблема је груписање података по сличности у тзв. кластере. На тај начин се смањује број неурона у скривеном слоју и повећава ефикасност.

Задатак који је решаван применом регресионе мреже је истовремено одређивање параметара (ε и r^*) експерименталног ФА сигнала. Експериментални сигнали су генерисани у смеси C_2H_4+Ar , на укупном притиску смеше $p = 10 - 100$ mbar, за притисак апсорбера $p_{C_2H_4} = 0,47$ mbar и за густину енергије ласерског зрачења $\Phi = 1$ J/cm². Резултати анализе сигнала добијених из смеша са различитим укупним притиском смеше, показују да је при већем притиску смеше, однос сигнал/шум повољнији. Уколико је присуство шума у сигналу сведено на разумну меру, неуронска мрежа ће показати добре генерализационе способности. У супротном, постојаће велике разлике између сигнала помоћу којих мрежа учи одговарајуће обрасце и сигнала чије вредности параметара одређује. Теоријски скуп за обучавање неће бити потпун, јер не садржи информације о шуму. Лоше генерализационе способности мрежа може показати, чак и у случају да подаци за обучавање садрже одређени ниво шума, јер мрежа може почети да учи шум из скупа за обучавање. Избор експерименталног сигнала са највећим односом сигнал/шум, је начин да се разлике у облику експерименталног и теоријског сигнала сведу на минимум. Методом фотоакустичке томографије, за истовремено одређивање параметара ФА сигнала [Rabasović et al., 2006а, 2007], одређене су вредности параметара изабраног експерименталног сигнала за $p_{C_2H_4} = 0,47$ mbar и укупни притисак смеше $p = 100$ mbar. Одређене су вредности параметра $\varepsilon = 1,27$ и параметра који описује карактеристике експерименталне апаратуре $r^*=40$ и класе профила (top hat). Метод фотоакустичке томографије је изузетно прецизан у одређивању вредности параметара ФА сигнала, те је на основу ових вредности, вршена процена учинка регресионе мреже.

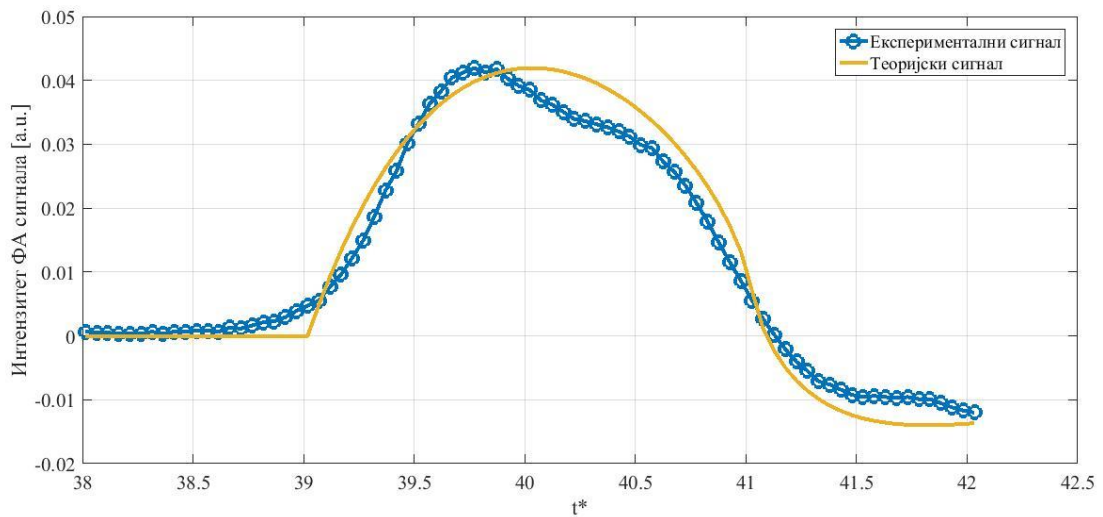
Регресиона мрежа је обучавана теоријским сигнаlima добијеним Fourier-овом методом за top hat профил ласерског зрачења (2.36). Генерисано је 284 теоријских сигнала са вредностима $\varepsilon \in [0.5-4]$ са кораком 0,05 и вредностима $r^* \in (39, 39.5, 40, 40.5)$. Скуп сигнала за обучавање је приказан на слици 5.5. На слици 5.6 приказан је експериментални и фитовани ФА сигнал. Фотоакустички сигнали су узорковани у 21 и 50 тачака. Једна регресиона мрежа је дизајнирана тако да има 21 улазни неурон, као и MLP мрежа, коришћена за одређивање параметара ФА сигнала насталог у смеси SF_6+Ar . Коришћен је исти број улазних неурона (исти број тачака којима се описује ФА сигнал) и анализирани су перформансе обе мреже. Друга мрежа са 50 улазних неурона је дизајнирана са намером

да се прати утицај броја неурона у улазном слоју (или броја тачака у којима се узоркује ФА сигнал) на прецизност у одређивању тражених параметра.



Слика 5.5 Скуп теоријских сигнала за обучавање неуронске мреже засноване на радијалним базисним функцијама.

Скуп 284 теоријских сигнала за обучавање мреже. Сигнали су добијени Fourier-овом методом за top hat профил ласерског зрачења, за 71 вредност ε из интервала (0,5-4) и вредности $r^* \in (39, 39.5, 40, 40.5)$.



Слика 5.6 Експериментални и фитовани сигнал за смешу $C_2H_4 + Ar$.

Архитектуру коришћене регресионе мреже чине три слоја неурона са потпуно различитим функцијама:

а) улазни слој са 21 (и 50) неурона,

б) скривени слој, у коме су неурони RB функције (RBF неурони), које врше нелинеарну трансформацију података из улазног у простор скривених неурона. Простор скривених неурона има велики број димензија (што је у складу са захтевом за прецизнију апроксимацију функција [Cover, 1965],

в) линеарни излазни слој у коме се налазе два неурона, један за процену параметра ε и други за процену параметра r^* .

Број неурона у скривеном слоју једнак је броју узорака за обучавање (284). За један улазни вектор сви неурони у скривеном слоју рачунају еуклидско растојање између одговарајућег неурона и узорка за обучавање. Израчунавањем норме (еуклидског растојања), детектује се у којој мери се улазни вектор разликује од вектора који је током учења изабран као прототип или репрезентативан вектор. Скривени слој мреже врши трансформацију посредством RB функција. Као трансфер функција, у овом слоју је коришћена Gauss-ова функција. У последњем слоју регресионе мреже налазе се неурони који извршавају линеарну трансформацију помоћу *purelin* функције.

Процес обучавања мреже подразумева подешавање три скупа параметара: прототипа (центра) и ширине σ Gauss-ове функције за сваки од RBF неурона, као и тежинских коефицијената између RBF неурона у скривеном слоју и неурона у излазном слоју. Најважнији параметар регресионе мреже је параметар σ , који се назива стандардна девијација или параметар ширења. Параметар σ контролише ширину Gauss-ове функције, односно одређује какав ће бити одговор RB неурона на улазне променљиве. За велику вредност параметра σ , тачка која репрезентује дати узорак за обучавање се бира у ширем опсегу вредности. На тај начин се постиже да већи број неурона из скривеног слоја даје излазе чија је вредност значајна. Мала вредност параметра σ , ограничава избор прототипа (центра) Gauss-ове функције на мали опсег вредности. У том случају ће значајнији утицај на излаз дати неурони са тежинским коефицијентом који је најближи улазу. RBF мреже имају локални приступ, па је свака трансфер функција једино активна у малом региону простора улазних променљивих. Због тога вредност ширине RB функција има логичко

значење, јер се овим параметром осликава утицај одређеног дела домена на простор који се моделира, тј. утицај који тај неурон има на своју околину у улазном домену.

Овакав начин обучавања, уз чињеницу да регресионе мреже имају локални приступ обучавању, чини да се већ на основу неколико узорака може предвидети понашање система. Управо је ова особина кључна карактеристика регресионе мреже, јер резултује веома брзим процесом обучавања. Процес обучавања не захтева итеративну процедуру (као код MLP мрежа), већ се мрежа обучава само једним „проласком“ кроз податке. Целокупни скуп података се дели на: скуп за обучавање и скуп података за тестирање. Као и у случају MLP мреже, подаци из скупа за тестирање нису укључени у фазу обучавања, већ се користе за евалуацију перформанси формираног модела мреже.

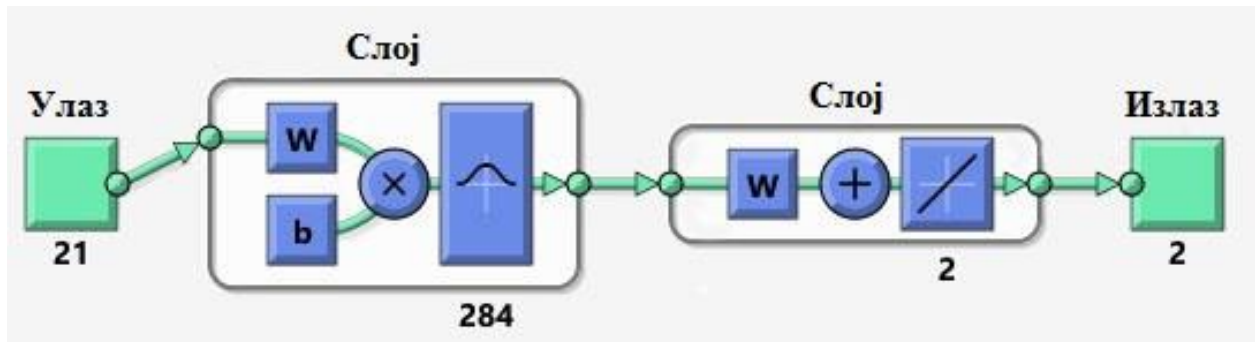
Током обучавања мрежа, процењује се средња квадратна грешка (енг. mean - squared error MSE), на основу чије вредности се дефинише вредност параметра σ . Селектована је вредност параметра σ , за коју мрежа даје најмању средњу квадратну грешку. Добијени резултати показују да мреже најпрецизније процењују вредности параметара ε и r^* за вредности σ у распону од 0,02-0,03 (Табела 5.2). Већа вредност σ имплицира мању осетљивост.

Табела 5.2 Процењене вредности параметара ε и r^* за различите вредности σ

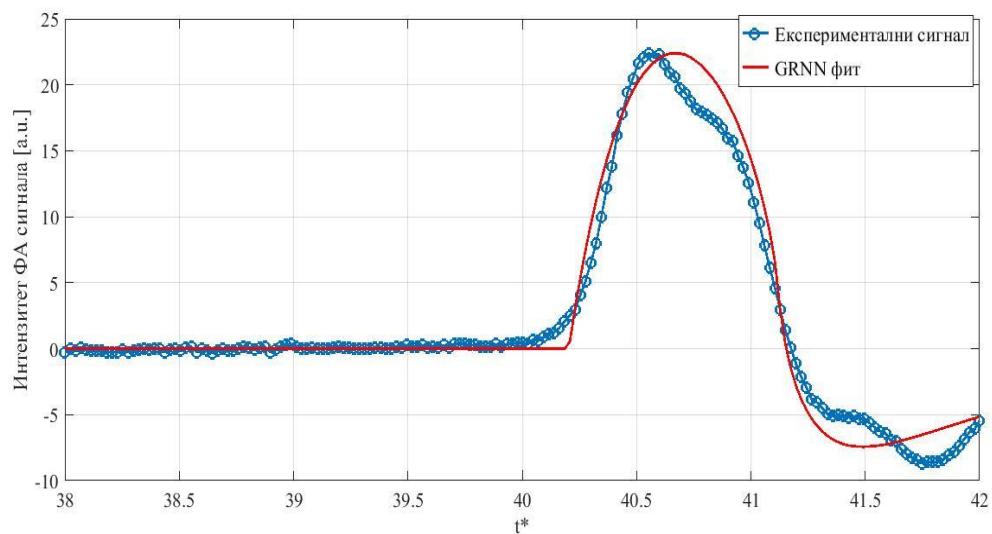
Бр.неурона у улазном слоју	Константа ширења (σ)	Параметар (ε)	Грешка (%)	Параметар (r^*)	Грешка (%)
21	0,03	1,35	6,30	39,96	0,10
	0,025	1,25	1,57	39,97	0,08
	0,02	1,2	5,51	39,98	0,05
50	0,03	1,26	0,79	39,99	0,02
	0,025	1,236	2,68	39,99	0,02
	0,02	1,21	4,72	40	0

Најбоље процењене вредности параметара експерименталног ФА сигнала насталог у смеси ($C_2H_4 + Ar$), мрежом која је садржала 21 неурон, биле су $\varepsilon = 1,25$ (грешка 1,57%) и $r^* = 39,97$ (грешка 0,08%). Мрежа са 50 неурона у улазном слоју је параметар ε проценила са грешком 0,79% ($\varepsilon = 1,26$), а параметар r^* са грешком од 0,02% ($r^* = 39,99$). На слици 5.7

приказана је структура регресионе мреже са 21-ним улазним неуроном. Слика 5.8 приказује резултат поређења експерименталног и сигнала добијеног регресионом мрежом.



Слика 5.7 Регресиона неуронска мрежа са улазним слојем који садржи 21 неурон.



Слика 5.8 Резултат поређења експерименталног ФА сигнала и сигнала добијеног регресионом мрежом са 50 улазних неурона.

Време релаксације два атмосферска полутанта SF_6 и C_2H_4 , може се веома прецизно одредити применом вештачких неуронских мрежа. Структура MLP и GRNN је веома различита, међутим, у многим детаљима их је интересантно поредити. Регресионе мреже је лакше имплементирати, јер имају једноставну, фиксирану структуру. Алгоритам обучавања регресионе мреже има локални приступ, не захтева паралелан рад свих неурона у процесу обучавања, што резултује бржим процесом обучавања. Међутим, RBF мреже имају већи

број неурона у скривеном слоју, због чега могу бити рачунски веома захтевне. Будући да су мреже обучаване у лабораторијским условима (*off-line*), разлике у времену потребном за обучавање нису од значаја, те нису ни разматране. Анализом перформанси обе мреже, добијених решавањем проблема истовременог одређивања параметара ФА сигнала, а имајући у виду њихове предности и недостатке, може се закључити да су обе врсте мрежа показале упоредиве резултате и истовремено велику прецизност. Значајнија разлика се може уочити у вредности параметра ε , јер је вредност одређена регресионом мрежом, скоро двоструко прецизнија (1,57% у односу на 9% код MLP мреже). За коначни избор мреже за процену параметара важи правило, компромиса између потребног времена, прецизности, комплексности мреже, захтеване меморије рачунара, сложености рачунских операција итд.

На основу претходног разматрања, може се закључити да вишеслојна перцептронска мрежа и регресиона мрежа примењене на анализу ФА сигнала, дају прецизне и упоредиве резултате. Сврха и крајњи циљ ове анализе је одговор на питање, да ли се вештачким неуронским мрежама, може постићи селективност у детекцији полутаната? Селективност примењене ФА апаратуре одређена је искључиво особинама примењеног извора зрачења и детектора. Уколико се користи ласер са подесивом фреквенцијом, може се извршити побуда одређене врсте молекула. Показано је да се време вибрационо-транслационе релаксације може одредити применом вештачких неуронских мрежа, одређивањем параметра ε . Уколико је претходно дефинисан и просторни профил ласерског зрачења, којим се врши побуда молекула SF_6 или C_2H_4 , остварују се услови, потребни за истовремено одређивање времена релаксације. Карактеристично време вибрационо-транслационе релаксације је критеријум на основу кога се може извршити детекција различитих молекула у смеси. Међутим, у практичној реализацији метода могу настати проблеми изазвани преклапањем сигнала који потичу од различитих молекула. Познато је да и у случају ФА технике која користи ласере са подесивом фреквенцијом може доћи до појаве интерференције спектра различитих молекула, што умањује селективност метода. Слични проблеми могу настати и у примени метода интелигентне фотоакустике. Фотоакустички сигнали који потичу од различитих молекула (како експериментални, тако и теоријски), могу се преклапати за одређене вредности параметра ε . Таква ситуација отежава обучавање мреже. Већ се и на основу резултата приказаних у табели 5.2, може уочити да је параметар r^* , одређен са већом прецизношћу, јер су сигнали са различитом вредношћу r^* јасно раздвојени. Узрок блиској вредности времена вибрационо-транслационе релаксације (и параметра ε), лежи у самој

природи вибрационо-транслационих процеса, о чему ће бити више речи у следећем параграфу.

5.3. Дискусија

У овом поглављу је показано, на примеру истовременог одређивања параметара експерименталног сигнала, да се техника неуронских мрежа може веома успешно имплементирати у ФАС. Међутим, осим предности које показују интелигентне технике у детекцији атмосферских полутаната (поглавље 1), треба напоменути да метод предложен у овом раду, може имати извесна ограничења. Основни захтев у раду са интелигентним техникама је адекватна репрезентација проблема који се решава. У случају одређивања времена релаксације, ова техника се ослања на уобичајен поступак анализе облика ФА сигнала, која даје јасну слику релаксационих карактеристика испитиваног молекула. На основу израчунатих времена релаксације молекула SF_6 и C_2H_4 ($\epsilon_{SF_6} = 3,64$ и $\epsilon_{C_2H_4} = 1,26$) можемо претпоставити, да потенцијални проблеми могу настати, уколико желимо да метод интелигентне импулсне фотоакустике применимо на детекцију полутаната, користећи време релаксације, као критеријум за разликовање молекула. Релаксационо време молекула SF_6 и C_2H_4 одређује се фитовањем теоријског и експерименталног ФА сигнала. У ФА сигналима садржана је информација о укупној трансформацији апсорбоване енергије у топлотну енергију (V-T/R процес), али не и о густини насељености одређеног нивоа молекула апсорбера. Различите експерименталне методе (ултразвучни метод, метод ласерски индуковане флуоресценције, метод ИЦ двоструке резонанције, метод ударних цеви итд.) коришћене за испитивање вибрационе релаксације, су показале да V-T релаксацију већине вишеатомских молекула, можемо описати на исти начин. Будући да се у ФАС прати V-T канал релаксације, да испитивани молекули SF_6 и C_2H_4 , спадају у групу вишеатомских молекула средње величине са карактеристичном простом релаксацијом, могу се очекивати сличне вредности времена V-T релаксације. За веома блиске вредности времена релаксације, може доћи до преклапања ФА сигнала који потичу од различитих молекула. У том случају остаје нејасно, који сигнал настаје релаксацијом једне, а који релаксацијом друге врсте молекула. Такви теоријски сигнали не садрже довољан број информација потребних за адекватну репрезентацију проблема, а неуронска мрежа обучавана непотпуним скупом података, не може постићи добре генерализационе способности и прецизност у одређивању вредности излазних параметара.

Механизам вибрационе релаксације вишеатомских молекула има много општих, заједничких карактеристика, што је потврђено у многобројним експериментима. Вишеатомски молекули (на 300 К) поседују више побуђених вибрационих модова, који са неколико релаксационих времена учествују у процесима релаксације. Фреквенције побуђених модова вишеатомских молекула се разликују, па постоји велики број могућности за вибрационо-транслационо прелазе. Процес трансфера апсорбоване енергије у транслациону није тренутан и углавном се састоји од неколико етапа. Информације о релаксацији високо побуђених вибрационих модова вишеатомских молекула на собној температури, по први пут су добијене у ФА експериментима. Треба нагласити да релаксационо време, које се мери у ФА експериментима, није средње време живота побуђеног мода, већ време у току кога енергија која је иницијално ушла у молекул путем једног мода, остаје „заробљена“ у многобројним вибрационим модовима [Cottrell et al., 1966]. Иако се релаксација молекула дешава на различите начине и уколико је (што је увек случај код вишеатомских молекула) активно више од једне вибрације, сви могући случајеви се могу свести на два гранична: механизам паралелне и серијске релаксације. У првом случају, за сваки мод се дефинише посебно релаксационо време, јер сваки мод учествује независно у размени енергије са транслацијом. У случају серијског механизма само један мод (најниже фреквенције), размењује енергију са транслацијом, док други модови, размењују енергију интерно. У комплексним молекулима постоје бројне могућности релаксације, које обухватају карактеристике серијске и паралелне релаксације. Експерименти су показали да је за већину испитиваних молекула доминантан механизам серијске релаксације модова. Најчешће се у експерименту не може направити разлика између механизма „серијске“ релаксације у којој горњи мод релаксира путем V-V трансфера кроз мод најниже енергије и механизма „паралелне“ релаксације у коме виши мод релаксира независно и то директним V-T трансфером. Потврђено је да механизам „серијске“ релаксације можемо сматрати главним начином релаксације вишеатомских молекула [Lambert et al., 1970]. Тада укупна вибрациона топлота садржана у молекулу релаксира кроз прост V-T трансфер путем најнижег мода. Овај механизам је окарактерисан простим релаксационим временом τ , које је повезано са релаксационим временом најнижег мода τ_1 , (параграф 2.3) релацијом (5.4):

$$\tau = \tau_1(C_s/C_1). \quad (5.4)$$

У релацији (5.4) C_s представља укупну вибрациону топлоту, а C_1 је учешће најнижег мода у укупној вибрационој топлоти молекула. Једначина важи у случају да је V-V трансфер

бржи од V–T трансфера, јер је тада највећи удео специфичне вибрационе топлоте најнижег мода (C_1) у укупној вибрационој топлоти (C_s), [Lambert, 1977]. Релаксација целокупне вибрационе топлоте садржане у молекулу, кроз појединачни вибрационо релаксациони процес је карактеристична за највећи број вишеатомских молекула. Иако има извесне недостатке, овај модел релаксације се показао успешним у поређењу релаксација различитих молекула. Механизам просте релаксације, кроз мод најниже енергије је потврђен и код молекула SF_6 и C_2H_4 , док само неколико до сада испитиваних молекула показује двоструки релаксациони процес.

Апсорпција ИЦ фотона молекулом SF_6 се одвија кроз троструко дегенерисани ν_3 мод. Процесима R-T и V-V енергетског трансфера, настаје скуп побуђених вибрационих нивоа, између којих се успоставља равнотежа у року од неколико микросекунди. [Bagratashvili et al., 1976]. Проста V-T релаксација овог молекула одвија се кроз мод ν_6 , (мод најниже фреквенције 363 cm^{-1}) и укључује целокупну вибрациону топлоту [Steinfeld et al., 1970]. На сличан начин се понаша и молекул C_2H_4 . Етилен има вибрациони ниво ниске енергије (изнад основног стања) и три вибрациона стања блиске енергије. Побуда обично иде путем мода ν_7 , а релаксација кроз мод најниже енергије ν_{10} (825 cm^{-1}) [Avatkov et al., 1977, Yuan et al., 1973; Yuan & Flynn, 1973]. V-V релаксација између три блиска нивоа је брза, због мале разлике у енергији, после које следи спора V-T релаксација на основно вибрационо стање. Експериментални резултати за релаксационо време етилена, сугеришу да постоји мало одступање од модела просте релаксације [Holmes, & Tempest 1961]. Молекул C_2H_4 након побуђења на више вибрационо стање, може да релаксира на два главна начина, на најближи вибрациони ниво путем (V-V) трансфера енергије, а затим на основно стање путем V-T/R енергетског трансфера. Упркос великој ефикасности V-V процеса, утицај овог процеса у насталој топлоти је мали, па се може занемарити [Yuan et al., 1973]. У неким смешама трансфер вибрационе енергије у ротациону, може постати конкурентан V-T трансферу. Релативна важност трансфера вибрационе енергије у ротацију насупротив транслацији ће зависити од: редуковане масе сударних партнера, момента инерције апсорбера и његових сударних партнера и међумолекуларног потенцијала. У случају молекула етилена (у смеси C_2H_4+Ar), процес V-R трансфера, постаје конкурентан процесу V-T трансфера [Yuan et al., 1973]. Lambert и Salter (1959) су на основу доступних експерименталних података за молекуле на 30^0C , установили да су фактори који значајно утичу на вероватноћу V-T трансфера: фреквенција најнижег вибрационог мода молекула ν_{min} и присуство водониковог атома у молекулу. Молекули који садрже два или више

водоникова атома много лакше размењују енергију путем транслационо-вибрационог трансфера него други молекули. Разлог за високу ефикасност вибрационог трансфера молекула који садрже водоник, је мали момент инерције који доводи до лаког R-V трансфера (због брзе ротације водониковог атома). За молекуле са малим моментом инерције (C_2H_4), трансфер енергије са ротационих на вибрационе модове је ефикаснији, па је за њих највероватнији механизам трансфера енергије, вибрација-ротација-транслација. Молекули који не садрже водоников атом имају већи момент инерције (SF_6). У молекулима са великим моментом инерције ротациона брзина може бити толико ниска да се енергетски трансфер одвија брже кроз директни транслационо-вибрациони процес. [Lambert, 1977].

Имајући у виду претходну анализу механизма релаксације вишеатомских молекула, можемо закључити да молекули на које је примењен метод интелигентне фотоакустике, иако различити по типу симетрије, маси, ротационој константи, густини вибрационих стања и положају квазиконтинуума, ипак имају заједничке релаксационе карактеристике. Ако се има у виду да је V-T релаксација доминантна у формирању ФА сигнала, да је окарактерисана укупним временом релаксације (τ) и да се вибрациона релаксација већине вишеатомских молекула може описати моделом прости релаксације, јасно је зашто између вредности релаксације молекула SF_6 и C_2H_4 , могу постојати веома мале разлике. Уопштено говорећи, вибрациона релаксација вишеатомских молекула је веома комплексан процес, због велике густине вибрационих нивоа и могућих прелаза. Поред заједничких релаксационих карактеристика вишеатомских молекула, ипак су индивидуалне карактеристике попут: густине стања и положаја квазиконтинуума, кључне за потпуно разумевање процеса апсорпције и релаксације. Молекули SF_6 и C_2H_4 , имају различиту структуру вибрационих нивоа, што се манифестује другачијим положајем квазиконтинуума и карактеристикама апсорпције. У експерименту је коришћен ТЕА CO_2 ласер, подешен на линију 10P(16) за молекулу SF_6 и 10P(14) за молекулу C_2H_4 , са укупном излазном густином зрачења од 0,2-1,4 J/cm². Изабране су линије за које сваки од испитиваних молекула показује највећу апсорпцију. Разлике у апсорпцији између испитиваних молекула, настале су услед различитог положаја квазиконтинуума и различите ефикасности трансфера енергије са молекулима бафер гаса. Резултат је већи степен побуде молекула SF_6 у односу на C_2H_4 , а време V-T релаксације молекула у уској је вези са износом апсорбоване енергије и показује опадање вредности са повећањем вибрационе енергије садржане у молекулу.

Када разматрамо однос времена релаксације и енергије апсорбоване у молекулу, треба нагласити да се утицај високих интензитета зрачења манифестује кроз зависност

релаксационе кинетике од нивоа побуде. Истраживање МФА фотоакустичким методом подразумева високе интензитете зрачења. Та зависност је потврђена у многобројним експериментима, у којима су коришћени високи интензитети ласерског зрачења. Услед повећања густине енергије зрачења (преко вредности $1,6 \text{ J/cm}^2$) и густине стања, настаје јача интеракција између модова, која за последицу има убрзавање V-T релаксације, тј. опадање вредности τ_{V-T} [Akhmanov et al., 1980]. У радовима [Tosa et al., 1990; De Lisio & Bruzzese, 1988], проучавана је зависност τ_{V-T} од апсорбоване енергије и показано да је слична за све вишеатомске молекуле. Понашање τ_{V-T} је резултат другачијих динамика еволуције насељености различитих вибрационих нивоа, у зависности од различитих степена побуде. Због тога, прецизно одређивање вредности релаксационог времена у ФА експериментима, подразумева и јасно дефинисање интензитета (или густине енергије Φ) ласерског зрачења, при којима се процеси V-T релаксације могу сматрати експоненцијалним. У овом раду разматрано време релаксације је независно од енергије побуде, што одговара режиму експоненцијалног распада вибрационе енергије. То значи, да време релаксације испитиваних молекула SF_6 и C_2H_4 , за примењене енергије ласерског зрачења, не зависи од нивоа побуде. За дати опсег коришћених енергија побуде и притиска смеше испитивано је понашање односа амплитуда сигнала I_-/I_+ . Добијена је константна вредност $p\tau_{V-T}$ (производ притиска и релаксационог времена је константан за константну температуру), која указује на то, да средња вибрациона енергија апсорбована у молекулима SF_6 и C_2H_4 , прати експоненцијални распад дуж вибрационог канала релаксације [Beck et al. 1985; Rabasović et al., 2006a].

Метод импулсне интелигентне фотоакустике, је због прецизности и рада у реалном времену, веома погодан за одређивање времена релаксације молекула присутних у смеши. Већ је поменуто да се приказани метод одређивања времена релаксације неуронским мрежама може користити за детекцију различитих молекула присутних у смеши, али се због веома блиских вредности релаксационих времена, сигнали за анализу морају припремити на одговарајући начин. Разликовање сигнала се може осигурати ласерском побудом на линијама највеће апсорпције испитиваних молекула, као и другачијим просторним профилем ласерског зрачења. У случају молекула SF_6 коришћена је 10P(16) ласерска линија и Lorentz-ов профил са рупом, за који је најбоље слагање експерименталних и теоријских сигнала, а за молекула C_2H_4 линија 10P(14) и top hat профил. На тај начин се јасније диференцирају сигнали који потичу од различитих молекула, а избором одговарајућег профила ласерског зрачења смањује се грешка у одређивању времена релаксације. Метод

се може учинити ефикасним и уколико се користи другачија врста побуде. За детекцију гасова, посебно је погодна континуална побуда ласером са подесивом фреквенцијом. У том случају се применом нумеричких метода и поређењем добијеног ФА спектра са одговарајућим референтним спектром уз доступне податке о: апсорпционом коефицијенту индивидуалних компонената, снази ласера, модулационој фреквенцији, притиску ваздуха и времену релаксације [Моекли et al., 1998], може одредити присуство конкретних полутаната, као и концентрације индивидуалних компонената смеше. Наравно и друге експерименталне технике, које омогућавају праћење релаксације тачно одређеног нивоа, могу бити добра основа за надоградњу интелигентним техникама и израчунавање времена релаксације.

6. ОДРЕЂИВАЊЕ ЕФИКАСНОСТИ АПСОРПЦИЈЕ НЕУРО И НЕУРО-ФАЗИ АНАЛИЗОМ ИНТЕНЗИТЕТА ФОТОАКУСТИЧКОГ СИГНАЛА

Многобројни експерименти МФА су показали [Lyman et al., 1986] да густина енергије ласерског зрачења Φ , има много већи значај у карактеризацији процеса апсорпције, од интензитета зрачења I (који само у неким специфичним ситуацијама, при великим притисцима гаса, игра значајну улогу). Густина енергије ласерског зрачења Φ , представља временски интеграл интензитета зрачења I и увек се дефинише за одређени временски облик ласерског импулса.

У импулсној инфрацрвеној фотоакустичкој спектроскопији, за истраживање МФ процеса неопходни су ласери великих интензитета. За мерење профила ласерског снопа доступни су различити механички инструменти као што су: комплементарни метал оксидни полупроводник (енг. Complementary Metal Oxide Semiconductor - CMOS) и уређај са везаним наелектрисањима (енг. Charge Coupled Device - CCD). Камере засноване на CMOS/CCD технологији имају добру просторну резолуцију, међутим, могу се користити само у случају малих снага ласера. Додатни оптички инструменти, који су у том случају неопходни за редукцију интензитета снопа, изазивају дисторзију снопа. У раду [Mallidi & Emelianov, 2009] је предложена нова техника мерења, високе резолуције, која се може користити у случају импулсних ласера великих интензитета. Међутим и овом техником се, у линеарном режиму рада, може одредити просторни профил ласерског зрачења само за ограничен опсег вредности густина енергије ласерског зрачења Φ (од неколико десетина $\mu\text{J}/\text{cm}^{-2}$, до неколико стотина mJ/cm^{-2}). У експериментима чији су резултати предмет анализе дате у овој тези, густина енергије ласерског зрачења Φ била је у опсегу од $0,2 - 1,4 \text{ J}/\text{cm}^{-2}$. Употреба ласера високих интензитета, може изазвати значајна оштећења инструмената за мерење просторног профила ласерског зрачења. Решење за проблем одређивања просторног профила ласерског зрачења је нађено у примени техника вештачке интелигенције [Lukić, 2013]. Даљи напредак у имплементацији интелигентних техника, остварен је применом неуронских мрежа на одређивање вредности Φ на основу интензитета детектованог ФА сигнала. Идеја је била да се применом неуронске мреже истовремено одреде најважнији параметри ФА сигнала: $R(\mathbf{r})$, τ_{V-T} , r^* и Φ . На тај начин би се сви параметри добили у

реалном времену, што се комерцијалним инструментима није могло постићи. Уз побољшања предложеног метода, применом неуро-фази система и погодних оптимизационих техника, могла би се постићи потпуна замена инструмената за дефинисање профила ласерског зрачења, одговарајућим софтвером. Употреба софтвера кроз рад у реалном времену пружа и могућност корекција варијација просторног профила ласерског зрачења.

6.1. Одређивање интензитета фотоакустичког сигнала у смеси SF₆ + Ar неуронском мрежом

Разматрање апсорпционих карактеристика вишеатомских молекула, готово увек почиње разматрањем карактеристика апсорпције молекула SF₆. Молекул SF₆ је посебно важан у проучавању процеса МФА, јер се квантитативни подаци за овај молекул веома добро поклапају са теоријским моделом МФА процеса. У поглављу 2 је поменуто да је процес МФА за скоро све вишеатомске молекуле, погодно описати величинама које су функције густине енергије ласерског импулса Φ : средњим бројем фотона апсорбованих по молекулу $\langle n \rangle$ и апсорпционим пресеком σ . Међутим, уобичајена је пракса у анализи апсорпционих података да се уместо апсорпционог пресека, због погодности користи бездимензиона величина – средњи број фотона апсорбованих по молекулу $\langle n \rangle$. То је уједно и главна физичка величина која се користи да изрази ниво побуђења и апсорпционе карактеристике вишеатомских молекула током процеса инфрацрвене мултифотонске апсорпције (ИЦМФА). Подсетићемо се да поглед на МФА у првој апроксимацији, почиње интеракцијом ласерског поља са изолованим системом два везана вибрациона нивоа - GCTL модел (енг. Generalized Coupled Two-Level Model – GCTL) [Judd, 1979]. Са порастом густине енергије ласерског зрачења Φ , повећава се насељеност горњег вибрационог нивоа. Иако, присуство ротационих нивоа и јака интеракција других вибрационих нивоа компликује концепт изолованог система два везана нивоа, тај ефекат не мења квалитативно резултате добијене GCTL моделом. Други вибрациони нивои који учествују у интеракцији путем судара, су укључени у тзв. резервоар стања. Једна од важних претпоставки GCTL модела [Nikolić et al., 2008; Markushev et al., 2003], је да због ефекта ротационог уског грла, не учествују сви молекули са одређеног вибрационог стања у апсорпцији, већ само они који се налазе у оптималном ротационо-вибрационом стању. Многобројни експерименти су потврдили да ефекат ротационог уског грла у случају побуде вишеатомских молекула делује као ограничавајући фактор само за мале вредности Φ , док за густине енергије

зрачења $\Phi > 0,1 \text{ J/cm}^2$ (што се поклапа са вредностима Φ коришћеним у експерименту), ротациона релаксација не игра значајну улогу. Тада велики број молекула са многобројних ротационих стања узима учешће у апсорпцији. Број молекула који директно интерагују са пољем - f , представља проценат укупног броја молекула апсорбера унутар озрачене запремине. Ако је $f = 1$, сви молекули у озраченој запремини директно интерагују са пољем и средњи број апсорбованих фотона по молекулу $\langle n \rangle$ је једнак експериментално добијеном средњем укупном броју апсорбованих фотона $\langle n \rangle_{total}$. Ако је $f < 1$, тада је $\langle n \rangle = \langle n \rangle_{total}/f$. У даљој анализи процеса апсорпције за примењене вредности Φ сматраћемо да су у првој апроксимацији, у интеракцију са пољем укључени сви молекули и подразумеваћемо укупни број апсорбованих фотона $\langle n \rangle_{total}$. Строжа анализа показује да се $\langle n \rangle_{total}$ не поклапа са $\langle n \rangle$, чак и кад је $f = 1$, јер се мора имати у виду да на број апсорбованих фотона утиче густина енергије ласерског зрачења Φ , али и судари. Посебно је уочљиво неслагање теоријског GCTL модела [Nikolić et al., 2007], за велике вредности Φ , јер предвиђа константну вредност броја апсорбованих фотона, док експерименти показују да број апсорбованих фотона за велике вишеатомске молекуле расте са Φ . Ово одступање од понашања које предвиђа теорија, може се објаснити учешћем судара, који имају веома важну улогу у ИЦМФА процесу. Судари кроз процесе ротационе и V–T релаксације, омогућавају апсорпцију много фотона током ласерског импулса.

$$\langle n \rangle_{total} = \langle n \rangle_{\Phi} + \langle n \rangle_{coll}. \quad (6.1)$$

Релација, која представља основу за примену интелигентних техника на одређивање интензитета ФА сигнала, је веза између укупне апсорбоване енергије у узорку и укупног броја апсорбованих фотона:

$$\langle E \rangle = h\nu \langle n \rangle_{total}, \quad (6.2)$$

где је $h\nu$ енергија фотона ласерског зрачења. Интензитет ФА сигнала је директно пропорционалан апсорбованој енергији $\langle E \rangle$, што јасно показује израз за теоријски облик ФА сигнала рачунат Fourier - овом методом (2.2). У овом поглављу неуро и неуро-фази технике ће бити примењене на одређивање интензитета ФА сигнала у смеси SF_6+Ar и $\text{C}_2\text{H}_4+\text{Ar}$.

Интензитет ФА сигнала је пропорционалан апсорбованој енергији, а апсорбована енергија концентрацији апсорбера. Мобилном ФАС, која се користи за мерења на терену, концентрација апсорбера се одређује на основу интензитета сигнала, о чему је било речи у уводном делу [Sigrist et al., 2008]. Информације о интензитету ФА сигнала које добијамо у реалном времену интелигентним техникама, могу се употребити за ефикасније одређивање концентрација атмосферских полутаната на терену.

Уз неке изузетке, одређивање зависности МФА од интензитета може бити само квалитативно. То је последица експерименталних услова, који подразумевају коришћење CO_2 ласера. Чињеница да је прецизно дефинисање величина Φ и $\langle n \rangle_{total}$, условљено тачношћу са којом је одређен просторни профил ласерског зрачења и геометријом експеримента је веома важна за ово истраживање. О вези између просторног профила ласерског зрачења и времена релаксације, детаљно је дискутовано у радовима [Rabasović et al., 2006a, 2006b, 2007]. Извор грешке у израчунавању вредности укупног броја фотона апсорбованих по молекулу $\langle n \rangle_{total}$ може бити непрецизно дефинисана запремина у којој се налазе молекули побуђени ласерским зрачењем. Иако се у многим случајевима донекле занемарује важност прецизног дефинисања профила ласерског зрачења, мерења која укључују детаљно одређивање просторног профила оптичког снопа сматрају се мерењима већег квалитета. Густина енергије ласерског зрачења Φ је параметар чија се вредност једноставно може мењати према захтевима експеримента. У већини експеримената МФП користи се CO_2 ласер на атмосферском притиску. Упркос широкој употреби, карактеристике овог извора могу значајно да варирају у различитим експериментима. Те разлике у оптичком извору (квалитет просторног мода оптичког снопа, временска природа импулса, ефективна ширина линије) доводе до значајних разлика у измереним апсорпционим параметрима. Уз то, увек су присутне и непожељне варијације које могу значајно да промене вероватноћу дисоцијације и апсорпциони пресек.

За вишеатомске молекуле који су у основи овог истраживања зависност броја апсорбованих фотона од густине енергије зрачења Φ се може приказати релацијом $n \propto \Phi^\gamma$ где је $\gamma \cong 2/3$ [Lyman et al., 1986; Nikolić et al., 2008]. Ова зависност је природна последица теорије, а резултат је анхармонизма вибрација. Зависност важи за монохроматско поље зрачења [Judd, 1979]. Уопштено говорећи зависност броја апсорбованих фотона од густине енергије ласерског зрачења се може проценити на основу вредности величине $\sigma_0 \Phi / \langle f \rangle$ која може бити већа или мања од 1. За вредности $\sigma_0 \Phi / \langle f \rangle >$

1, многи молекули побуђени фреквенцијом блиском фреквенцији апсорпционог прелаза, апсорбују енергију која зависи од густине зрачења по закону $\Phi^{2/3}$ [Markushev et al., 2003]:

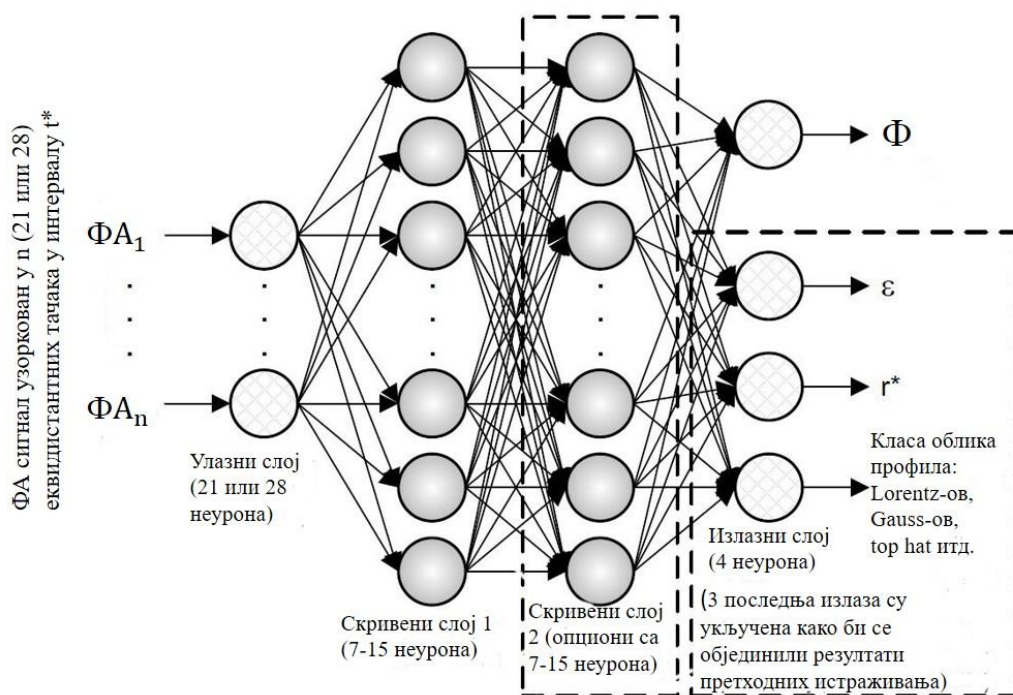
$$\langle n \rangle \propto \langle f \rangle^{1/3} (\sigma_0 \Phi)^{2/3}. \quad (6.3)$$

У литератури се могу наћи резултати мерења апсорпције молекула SF₆ за велики број линија CO₂ ласера. Линија P(16) на 947,7 cm⁻¹ је од посебног интереса. Зрачење на тој фреквенцији интерагује директно са ν₃ вибрационим модом, што је значајно из два разлога: 1) спектрална структура и интензитет апсорпције су веома добро теоријски проучени, 2) квантитативно поређење експерименталних података са теоријским моделом за МФ побуду је најбољи на овој фреквенцији. Квантитативни подаци за ову фреквенцију постоје за опсег Φ који обухвата пет редова величина, што је веома значајно јер омогућава шири приступ анализи апсорпционих карактеристика. У експерименту чији су резултати предмет истраживања молекула SF₆, је побуђиван ласерским зрачењем CO₂ ласера на линији 10P(16).

Неуронска мрежа дизајнирана за истовремено одређивање параметара $R(r)$, τ_{V-T} , и r^* [Lukić 2013; Lukić et al., 2013a] за обучавање, валидацију и тестирање користила је теоријске ФА сигнале. Фотоакустички сигнали су рачунати коришћењем метода Fourier-ове трансформације и метода Green-ових функција, за одређени просторни профил ласерског зрачења и експоненцијални распад енергије (сагласно експерименталним условима). Неуронске мреже приказане на слици 6.1 обучаване су да уз већ поменуте параметре експерименталног сигнала ($R(r)$, τ_{V-T} и r^*), процене и интензитет фотоакустичког сигнала I (тј. вредност Φ) [Lukić et al., 2017]. Топологију неуронских мрежа коришћених у овом истраживању чине: један улазни слој, један или два скривена слоја и излазни слој. Структура са два скривена слоја прилагођена је конкретном проблему, а дефинисана је у складу са правилом покушај-грешка. Архитектура неуронске мреже се састоји од четири неурона у излазном слоју (три неурона су укључења да би се објединили резултати претходног истраживања). Излази мреже су: вредност ε , вредност r^* , класа просторног профила ласерског зрачења и густина енергије ласерског зрачења Φ.

Levenberg-Marquardt-ов алгоритам је примењен за обучавање вишеслојног перцептрона. За мерење перформанси током обучавања коришћена је средња квадратна грешка. Излази мреже ε и r^* су претходно дефинисани, а излаз класа профила разликује четири профила: Gauss-ов, top hat, Lorentz-ов и Lorentz-ов профил са рупом. Додат је четврти тип профила – Lorentz-ов профил са рупом, јер су експерименти показали да је

просторни профил ласерског зрачења, за ласере великих интензитета најсличнији овом облику профила. Неуронска мрежа дизајнирана за процену параметра Φ , тестирана је експерименталним сигнаlima, те је било неопходно укључити и профил најприближнији реалном. Квантификација и визуелизација реалног профила ласерског зрачења, урађена је термалном траком и графитном плочом. Просторни профил ласерског зрака се дефинише блендом. Бленда дефинише одређени просторни профил који се састоји од концентричних кругова. Број кругова зависи од величине бленде, таласне дужине итд. Уобичајено, постојао је један прстен, те се профил може описати Lorentz-овим профилем са рупом.



Слика 6.1 Вишеслојне перцептронске мреже за истовремено одређивање параметара фотоакустичког сигнала

Неуронске мреже обучаване да процене густину енергије ласерског зрачења Φ из интензитета ΦA сигнала, са могућношћу за проширење за истовремено одређивање параметра: профила ласерског зрачења $R(r)$, вибрационо-транслационог времена (τ_{V-T}) и растојања ласерског снопа до молекула апсорбера (SF_6) унутар ΦA коморе (r^*). Извор: [Lukić et al., 2017].

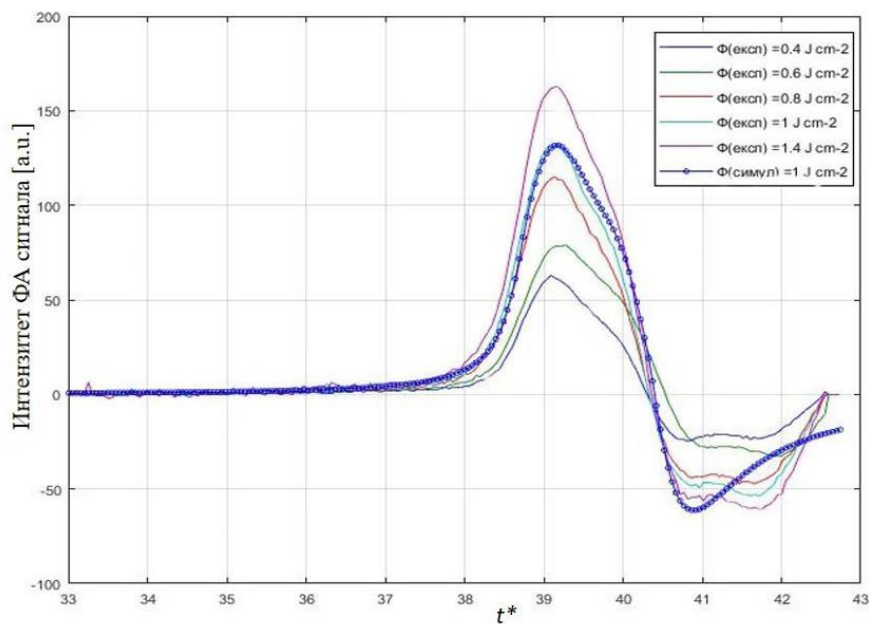
Додатни излаз мреже процењује вредност Φ . Због компатибилности са претходним резултатима ΦA сигнал, као улазни вектор, узоркован је у 21 или 28 тачака. Тај приступ омогућава да се вредности три претходна и додатног четвртог параметра процењују помоћу две одвојене мреже које раде паралелно, а могу се комбиновати у једну мрежу за процену сва четири параметра, као што је приказано на слици 6.1. Комбиновано решење је много

елегантнији начин, али захтева комплекснију структуру мреже, док је предност паралелног решавања у томе што јасно одваја нови резултат од претходно приказаних.

Карактеристике ФА уређаја који је коришћен за испитивање гасних смеша, састоји се од: ласера, ФА коморе и микрофона, а детаљно је описан у поглављу 4. Мерења су вршена за притисак смеше SF_6+Ar од 10 -100 mbar са густином енергије ласерског импулса у опсегу од 0.4–1.5 J cm⁻². Притисак апсорбера (SF_6) је био константан 0.47 mbar. Под таквим експерименталним условима, подразумева се да су сви озрачени молекули апсорбера побуђени, што значи да средњи број апсорбованих фотона (који можемо рачунати по формули 6.3) одговара стварном нивоу побуде молекула [Markushev et al., 2003]. Такође, експериментални резултати потврђују да су за константан притисак смеше варијације параметра ε (τ_{V-T}) као функције стварног нивоа побуде, много мање од варијација изазваних шумом, посебно за мале вредности Φ [Markushev et al., 2003; Nikolić et al., 2008].

Експериментални сигнали су добијени за пет различитих вредности $\Phi \in (0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.4)$ Jcm⁻². Селектоване вредности густине енергије ласерског зрачења Φ , испуњавају услове при којима се истражују МФ процеси у гасним смешама. Експериментални ФА сигнали добијени у смеси SF_6+Ar за пет различитих вредности Φ приказани су на слици 6.2. У претходном поглављу су приказани резултати процене параметара експерименталног сигнала из смеше SF_6+Ar (за притисак смеше $p = 100$ mbar и притисак апсорбера $p_{SF_6} = 0,47$ mbar) неуронском мрежом. На основу резултата приказаних у поглављу 5: тип профила – Lorentz-ов профил са рупом и $\varepsilon = 3.6$, рачунати су теоријски ФА сигнали методом Green - ових функција (релација 2.6). На слици 6.2 је приказано слагање теоријског и пет експерименталних ФА сигнала. У области минимума сигнала се уочава одступање експерименталних сигнала од теоријског. Одступања сигнала могу бити резултат варијација у просторном профилу (одступања идеалног од реалног профила у експерименту), али могу настати и због различите динамике релаксације, која је присутна у МФ процесима. За испитивану смешу SF_6+Ar , под поменутиим експерименталним условима (за дате притиске и густине енергије зрачења), важи апроксимација експоненцијалног распада [Rabasović et al., 2006a, 2006b]. Утицај просторног профила и динамике деексцитације на одређивање вредности релаксационог времена и калибрацију ФА система детаљно је дискутовано у [Rabasović et al., 2006b]. Неслагање експерименталних и теоријских сигнала у ФАС последица је и појаве познате као резонантно осциловање детектора [Rabasović et al., 2006a]. У ФАС експериментима

мерени ФА сигнал одговара промени притиска детектованој микрофоном. При томе сигнал који се детектује микрофоном не одговара у потпуности променама притиска у испитиваној смеси. Резонантно осциловање сигнала је увек присутно, али будући да зависи од притиска и интензитета ФА сигнала, његов утицај је различит. Уочава се у областима око максимума и минимума сигнала. Да би се умањио утицај непожељног осциловања сигнала (које називамо шум), бирамо сигнале са већим односом сигнал/шум (енг. S/N-signal to noise ratio). Експерименти показују да је однос сигнал/шум већи за смеше у којима је већи притисак бафер гаса. У смешама са већим притиском бафер гаса, услед већег броја судара, велики број молекула је доведен у одговарајућа вибрациона стања и способан је за апсорпцију. За анализу су изабрани ФА сигнали добијени у смешама SF₆+Ar и C₂H₄+Ar за притисак бафер гаса $p = 100 \text{ mbar}$, због одговарајућег односа сигнал/шум. Показано је да је за ове експерименталне услове дисторзија сигнала микрофоном занемарљива [Rabasović & Markushev, 2010]. Утицај шума се не може потпуно елиминисати, а одступања у добијеним резултатима услед присуства шума уочавају се и при примени метода вештачке интелигенције (табела 6.1).



Слика 6.2 Поређење експерименталних сигнала добијених у смеси SF₆ + Ar и симулираног сигнала

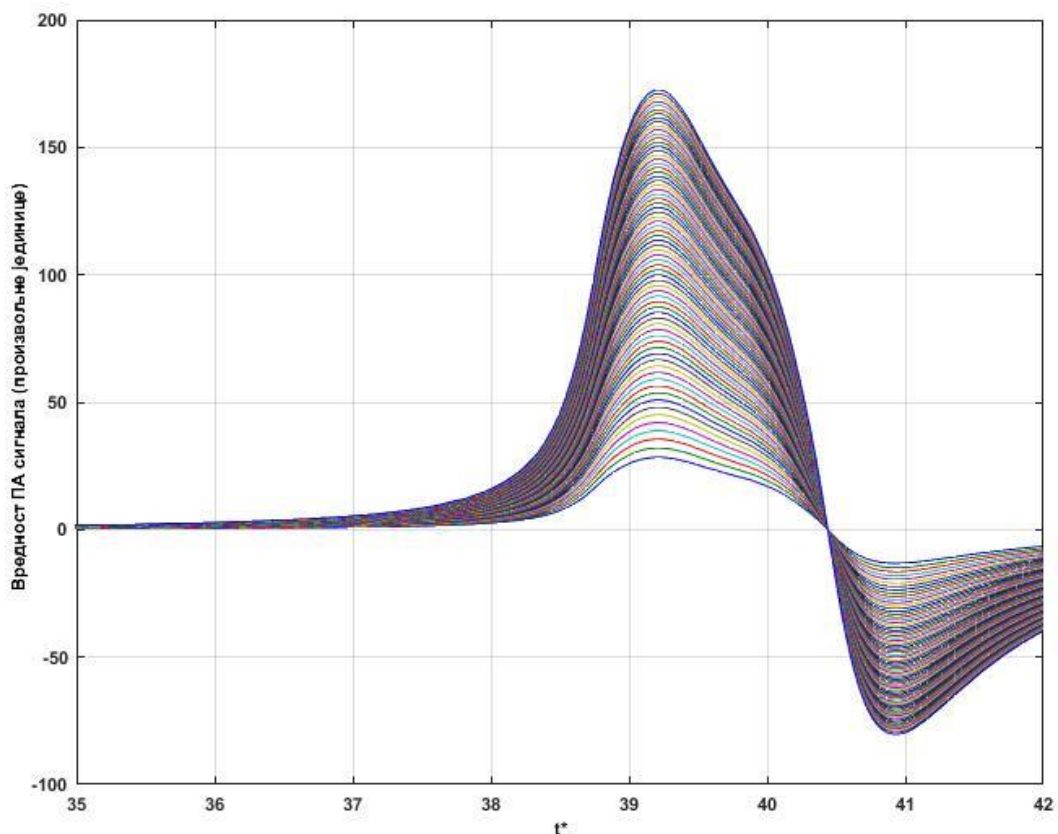
Приказано је пет експерименталних сигнала добијених у смеси SF₆ + Ar (за притисак апсорбера $p_{\text{SF}_6} = 0.47 \text{ mbar}$ и укупни притисак $p_{\text{total}} = 100 \text{ mbar}$) за вредности густине енергије ласерског импулса $\Phi = (0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.4) \text{ J cm}^{-2}$ и један симулирани сигнал $\Phi = 1.0 \text{ J cm}^{-2}$. Теоријски сигнал је рачунат за Lorentzov-ов профил са рупом за параметар $\epsilon = 3.6$. Интензитет сигнала је приказан у произвољним јединицама (а.у.), а x-осу представља бездимензиона величина (t^*). Извор: [Lukić et al., 2017].

Средњи број апсорбованих фотона по молекулу $\langle n \rangle$ је функција Φ . Такође, већ је наведено да је средњи број апсорбованих фотона по молекулу $\langle n \rangle$ пропорционалан $\Phi^{2/3}$ [Jovanovic-Kurepa et al., 1996; Markushev et al., 2003]. Дефинисаћемо интензитет ФА сигнала I као максималну вредност првог пика P_+ [Rabasović et al., 2006a]. Апсорбована енергија у узорку је одређена на основу разлике између енергије зрачења пропуштеног кроз евакуисану комору и енергије зрачења пропуштене кроз комору напуњену испитиваном гасном смешом. Због мале апсорпције број мерења мора бити довољно велики да би вредност апсорбоване енергије била прецизно одређена. Однос интензитета два ФА сигнала I_1/I_2 као и однос апсорбованих енергија E_{01}/E_{02} прати однос густина енергија ласерског зрачења $(\Phi_1/\Phi_2)^{2/3}$ по формули:

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{E_{01}}{E_{02}} = \left(\frac{\Phi_1}{\Phi_2}\right)^{2/3}. \quad (6.4)$$

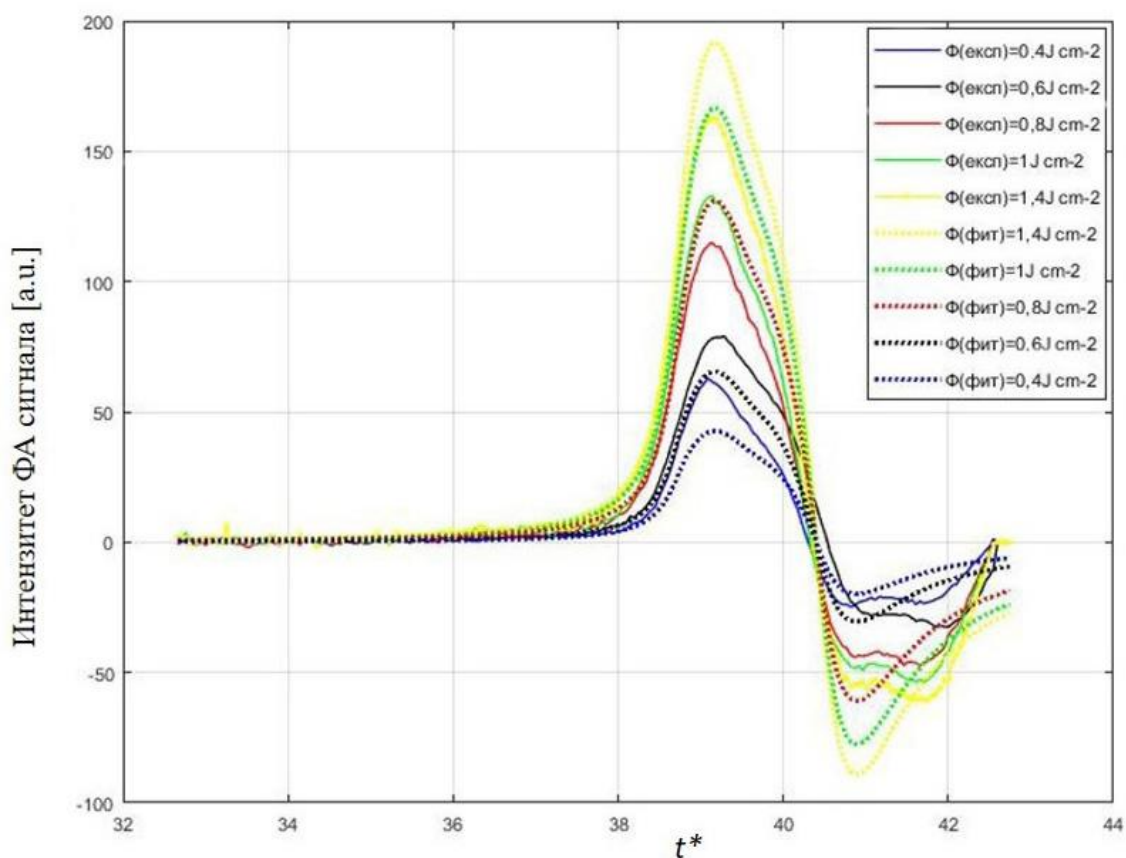
Зависност приказана релацијом (6.4) потврђена је на скупу теоријских и експерименталних ФА сигнала. Скуп теоријских ФА сигнала, за обучавање мреже генерисан на основу везе између апсорбоване енергије и интензитета ФА сигнала. Теоријски сигнали израчунати методом Green-ових функција сачињавали су скуп за обучавање. Комплетан скуп од 71 теоријских ФА сигнала за обучавање мреже приказан је на слици 6.3. Да би мрежа формирала статистички модел за генерализацију на скупу података који су јој презентовани, укупан скуп је подељен на: скуп за обучавање, тестирање и валидацију. Скуп за обучавање је садржао 49 ФА сигнала са одговарајућим паровима улазно-излазних података, који су мрежи презентовани током обучавања. На основу овог скупа мрежа подешава тежинске коефицијенте, како би грешка у одређивању излазних параметара била најмања. Скуп за валидацију (11 ФА сигнала) је коришћен за мерење генерализационих способности мреже током обучавања. Грешка на валидационом скупу се прати током обучавања и када генерализационе способности мреже престају да се поправљају, обучавање се прекида. Скуп за тестирање од 11 ФА сигнала нема ефекта на обучавање и треба да осигура независно мерење перформансе мреже током и после обучавања. За евалуацију грешке се користи тест скуп. Улазе у мрежу чинило је 21 до 28 еквидистантних тачака, што се показало довољним за ефикасан рад мреже. Сви ФА сигнали су узорковани у 21 или 28 еквидистантних тачака на t^* оси. Метод је тестиран помоћу пет експерименталних сигнала за различите вредности Φ . Процењене вредности параметра Φ

експерименталних сигнала и одговарајуће грешке, дате су у процентима и приказане у табели 6.1. Уочљиво је да је грешка мања за веће вредности Φ , јер је однос сигнал/шум бољи за веће интензитете зрачења, услед веће апсорпције. Резултати неуронске мреже у процени пет различитих вредности Φ приказани су на слици 6.4. Разлике које постоје између експерименталних и симулираних сигнала (слика 6.2), могу се уочити и на слици 6.4, на којој су приказани сигнали добијени неуронском мрежом [Lukić et al.,2017].



Слика 6.3 Скуп теоријских фотоакустичких сигнала за обучавање вишеслојне перцептронске мреже

Скуп од 71 симулираних ФА сигнала за обучавање мреже, добијених за вредности Φ у опсегу Φ (0.2 - 1.5) J cm^{-2} . Сигнали су рачунати коришћењем метода Green-ових функција за Lorentz-ов профил са рупом и параметар $\epsilon = 3.6$, који обезбеђује најбоље поклапање са експерименталним сигналом [Lukić et al., 2017].



Слика 6.4 Теоријски фотоакустички сигнали добијени неуронском мрежом за различите вредности густине енергије ласерског зрачења Φ . ФА сигнали добијени неуронском мрежом за пет различитих вредности $\Phi = (0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.4)$ J cm⁻². Пуну и испрекидану линијом исте боје су означени експериментални и сигнали добијени неуронском мрежом респективно за исту вредност Φ . (Интензитет сигнала је у произвољним јединицама и функција је редукованог времена t^*). Извор: [Lukić et al., 2017].

Табела 6.1 Процењене вредности параметра Φ експерименталних ФА сигнала, неуронском мрежом која је обучавана теоријским сигналимa [Lukić et al., 2017]

	Стварна вредност Φ (J/cm ²)					Макс. грешка (%)	Средња грешка (%)
	1.4	1.0	0.8	0.6	0.4		
Процењена вредност	1.4552	1.2650	0.9941	0.4967	0.3240	26.50%	18.18%
Грешка (%)	3.94%	26.50%	24.26%	17.22%	19.00%		

Уз постојећа ограничења (неслагања теоријског и експерименталног профила, постојања шума), можемо закључити да се неуронском мрежом може у реалном времену проценити густина енергије ласерског зрачења Φ . Међутим, иако је грешка у одређивању параметара сигнала (посебно времена релаксације τ_{V-T}), увек присутна у већем или мањем проценту, да би се побољшала прецизност у одређивању параметра Φ , у анализу је укључен још један метод вештачке интелигенције. Из групе многобројних метода изабран је адаптивни неуро-фази систем ANFIS. У поглављу 3 је овај метод детаљније описан, а разлог за примену у анализи ФА сигнала су његове посебне карактеристике: адаптација, ефикасни хибридни алгоритма обучавања, робустност и толеранција грешке. Осим тога, за конкретну примену је важно да ANFIS даје одличне резултате и са малим бројем улаза. У том случају уместо 21 или 28 улазних сигнала ФА сигнал се може описати само помоћу две величине: интензитетом максимума и минимума.

6.2. Одређивање интензитета фотоакустичког сигнала у смеси SF6 + Ar адаптивним ANFIS неуро-фази системом

У радовима [Beck et al.1985; Beck & Gordon, 1987, 1988] главне величине којима се описује ФА сигнал су максимални и минимални интензитет сигнала. К.М.Бек је предложио метод за израчунавање времена релаксације само на основу максималне (I_+) и минималне вредности амплитуде (I_-). Уочио је да је однос амплитуда (I_-/I_+) једнозначна функција параметра ε , те се на основу тог односа може израчунати и релаксационо време молекула. За веома велике вредности ε ($\varepsilon = 10$) релаксација је брза, што се манифестује великом вредношћу амплитуде. Са опадањем вредности ε долази до опадања амплитуде. Иако је овај метод био веома погодан за израчунавање времена релаксације τ_{V-T} , резултати нису били прецизни. Главни узрок грешке је било фитовање сигнала на основу само две тачке (минимума и максимума сигнала). Традиционалне методе и конвенционални математички апарат нису довољно прилагођени раду са лоше дефинисаним и недовољно прецизним подацима. Међутим, идеја дата у поменутих радовима је ипак представљала добру полазну основу за рачунање параметра Φ адаптивном неуро-фази мрежом (ANFIS).

Концепт фази логике је погодан, јер је дефинисан за решавање проблема који нису сасвим одређени или за које је тешко развити егзактан модел. Ови алгоритми имитирају хумани начин размишљања и понашања, који функционише и у непрецизним и

неодређеним условима. Изабран је адаптивни неуро-фази систем ANFIS, који представља изузетно робустан систем (неосетљив на варијације, одступања и неодређености које постоје у улазним величинама). Фази систем омогућава рад са подацима који су непрецизни, а неуронска мрежа захваљујући својој кључној особини да учи из искуства и да се прилагођава аутоматизује процес промене параметара фази система и значајно га убрзава. Осим примене у предикцији и апроксимацији функција, ANFIS се користи као неуро - фази класификатор за препознавање објеката у роботици, у системима аутоматског управљања али и многим другим системима.

Примењена ANFIS структура, користи алгоритам надгледаног обучавања и Takagi–Sugeno фази систем закључивања слика 6.5. Постоје два улаза у мрежу u_1 (максимум фотоакустичког сигнала) и u_2 (минимум фотоакустичког сигнала) и један излаз y (густина енергије ласерског зрачења Φ). За Takagi–Sugeno модел у ако-онда методу се користе два правила:

$$\text{Правило 1: Ако } u_1 \text{ је } A_1 \text{ и } u_2 \text{ је } B_1 \text{ онда } y_1 = p_1 u_1 + q_1 u_2 + r_1 \quad (6.5)$$

$$\text{Правило 2: Ако је } x \text{ је } A_2 \text{ и } u_2 \text{ је } B_2 \text{ онда } y_2 = p_2 u_1 + q_2 u_2 + r_2,$$

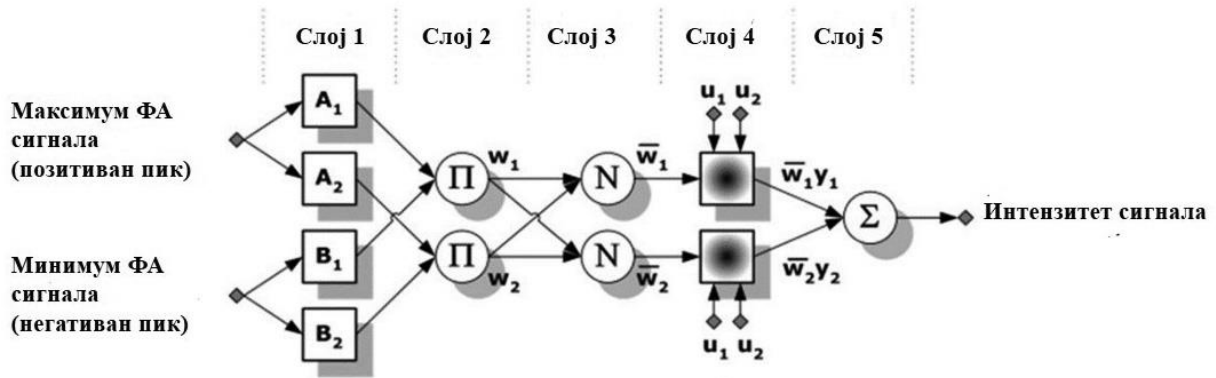
где су A_1, A_2 и B_1, B_2 функције припадности сваког од улаза u_1 и u_2 , док су p_1, q_1, r_1 и p_2, q_2, r_2 линеарни параметри функција последица у Takagi–Sugeno моделу фази закључивања. Функција припадности $\mu(u)$ је трапезног облика. Облик трапезне функције припадности мења се помоћу скупа параметара $\{a, b, c, d\}$. Током обучавања ANFIS-а мењају се вредности следећих параметара:

1. параметри функције припадности $\{a, b, c, d\}$ на страни правила ако
2. параметри функција последице на страни правила онда .

ANFIS мрежа учи по хибридном алгоритму који комбинује метод опадајућег градијента (метод повратног простирања грешке) и рекурзивни метод најмањих квадрата (RLSE). Фази неурон учи мењајући параметре функције припадности $\mu_{A_i}(u)$. Циклус учења почиње, тако што се на улаз фази - неуронске мреже доведу конкретне вредности максимални и минимални интензитет сигнала, а на излаз вредности густине енергије ласерског зрачења Φ . Ови парови улаза и излаза, називају се узорци учења. Када се мрежи представи довољан број узорака учења, она је у стању да на познате улазе одговори познатим излазима. Након тога, мрежа захваљујући поступку генерализације, може да

продукује разумне излазе и за непознате улазе. Овим поступком генерализације мрежа постаје способна да апроксимира вишедимензиону нелинеарну функцију. Фази системи користе ову особину неуронских мрежа за учење фази функција припадности на основу познатих вредности добијених мерењем. ANFIS користи алгоритам опадајућег градијента (BP алгоритам) за оптимизацију параметара функције припадности и алгоритам најмањих квадрата за оптимизацију параметара функција последице.

ANFIS се састоји од пет слојева. Први слој адаптивне мреже садржи нелинеарне параметре функција припадности, док четврти слој садржи линеарне параметре функција последице. Да би се ажурирали ови параметри потребно је да се врши модификација обе групе параметара обучавањем и да се прилагоди окружењу. Коришћен је хибридни алгоритам који је предложио [Jang, 1993]. Хибридни алгоритам се састоји од директног и повратног процеса. У директном процесу параметри функција припадности у првом слоју морају бити дефинисани. Рекурзивни метод најмањих квадрата RLSE се примењује за корекцију параметара последице у четвртном слоју. Ако су параметри функција последица линеарни, RLSE метод се користи да убрза конвергенцију. Даље, када су параметри функција последица одређени, улазни подаци се враћају уназад у улаз адаптивне мреже и генерисани излаз се пореди са актуелним излазом. Док се спроводи повратна фаза алгоритма, параметри функција последица морају бити фиксирани. Грешка која се одређује поређењем између излаза генерисаног актуелним излазом простире се уназад према првом слоју. У исто време параметри функција припадности у првом слоју се подешавају BP методом. Хибридни метод обучавања RLSE, заједно са методом опадајућег градијента, може осигурати бржу конвергенцију, јер може редуковати димензије простора претраживања у односу на BP. У последњем слоју се параметри функције последице могу одредити применом алгоритма најмањих квадрата.



ANFIS неуро-фази мрежа

Слика 6.5 ANFIS структура за одређивање параметра Φ експерименталног фотоакустичког сигнала.

Улази у мрежу су максимум и минимум ФА сигнала, а излаз је интензитет сигнала, тј. одговарајућа вредност Φ .

Функција неурона у истом слоју ANFIS-а припада истој фамилији функција и описана је релацијом (6.6), у којој O_i^j означава излаз i -тог неурона у слоју j . Први и четврти слој садрже адаптивне неуроне.

Слој 1: Сваки неурон у слоју генерише степен припадности лингвистичке променљиве.

$$O_i^1 = \mu_{A_i}(u). \quad (6.6)$$

Параметри у том слоју су параметри функције припадности. За сваки улаз дефинише се одређени број фазних скупова и дефинишу се њихове функције припадности. Изабране функције припадности за примењену ANFIS структуру су трапезоидне. Трапезоидну функцију припадности одређују параметара $\{a, b, c, d\}$, чијом променом функција припадности мења облик. Дефинисане су три функције припадности за сваки улаз. Уобичајено је да избор функција припадности буде 3, 5 или 7.

Слој 2: У слоју 2 је 9 неурона, а излаз сваког неурона је производ свих долазећих сигнала. Сваки неурон у овом слоју рачуна ниво активације односно јачину окидања сваког правила, множењем

$$O_i^2 = w_i = \mu_{A_i}(u_1) \times \mu_{B_i}(u_2). \quad i = 1, 2 \quad (6.7)$$

Слој 3: i -ти неурон у овом слоју рачуна однос тежине i -тог правила и суме тежине свих

правила:

$$O_i^3 = \bar{w}_i = \frac{w_i}{w_1 + w_2}, \quad i = 1, 2 \quad (6.8)$$

Слој 4: Неурон i у овом слоју израчунава излазна правила заснована на параметрима функције последице.

$$O_i^4 = \bar{w}_i y_i = \bar{w}_i (p_i u_1 + q_i u_2 + r_i), \quad (6.9)$$

где је \bar{w}_i излаз из *слоја 3* и $\{p_i, q_i, r_i\}$ скуп параметара. Параметри у овом слоју се називају параметри функције последице.

Слој 5: Неурон у овом слоју рачуна укупан излаз као суму свих излазних сигнала, продукујући резултат класификације:

$$\begin{aligned} O_i^5 &= \sum_i y_i = \sum_i \bar{w}_i f_i = \\ &= (\bar{w}_1 u_1) p_1 + (\bar{w}_1 u_1) q_1 + \bar{w}_1 r_1 + (\bar{w}_2 u_2) p_2 + (\bar{w}_2 u_2) q_2 + \bar{w}_2 r_2. \end{aligned} \quad (6.10)$$

ANFIS је обучаван теоријским сигналинама добијеним решавањем таласне једначине методом Green-ових функција за Lorentz-ов профил са рупом и параметар $\varepsilon = 3.6$, који обезбеђује најбоље поклапање са експерименталним сигналом. Тестирање ANFIS-а је извршено експерименталним сигналинама. Дobar начин да се провере стварне способности мреже да генерализује, је да се користи други скуп података за тестирање и валидацију. Уколико се за валидацију способности мреже користе подаци који нису били у скупу за обучавање, могу се добити праве информације о способности мреже да створи адекватне обрасце. У табели 6.2 је приказано поређење резултата добијено неуронском мрежом и неуро-фази системом ANFIS.

Табела 6.2 Поређење резултата неуронске мреже и ANFIS-а у процени параметра Φ експерименталних ФА сигнала.

	Стварна вредност Φ (J/cm ²)					Макс. грешка (%)	Средња грешка (%)
	1.4	1.0	0.8	0.6	0.4		
Процена мрежом	1.4552	1.2650	0.9941	0.4967	0.3240	26.50%	18.18%
Грешка мреже (%)	3.94%	26.5%	24.26%	17.22%	19%		
ANFIS процена	1.3252	0.9933	0.8109	0.4677	0.3312	22.05%	9.32%
ANFIS грешка (%)	5.35%	0.67%	1.36%	22.05%	17.2%		

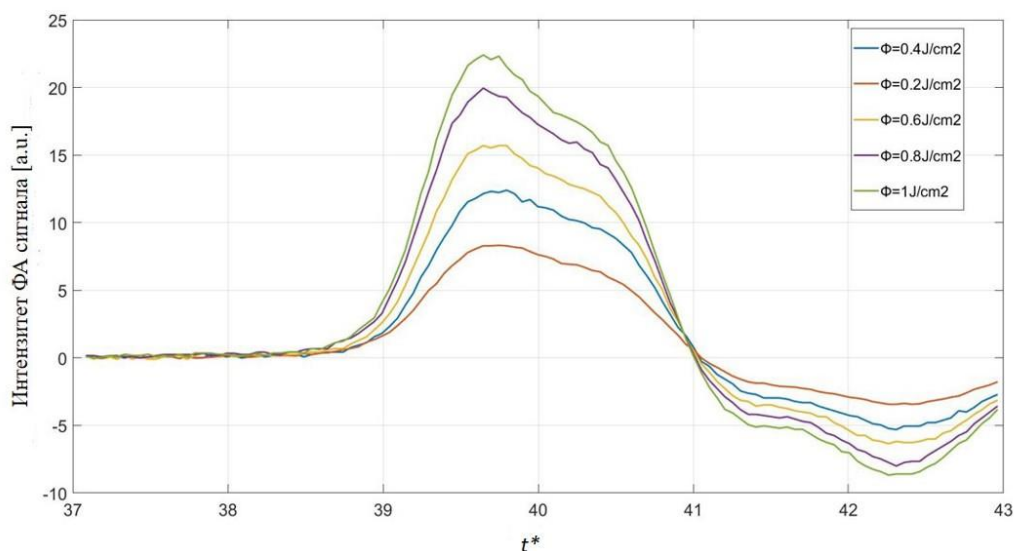
На основу поређења са учинком MLP мреже, можемо закључити да се ANFIS-ом може прецизније проценити вредност Φ . Средња грешка процене параметра Φ је скоро двоструко мања, од средње грешке добијене неуронском мрежом. Овакав резултат је очекиван, с обзир на капацитете ANFIS-а у успостављању образаца и у апроксимацији функција. Још један аргумент који иде у прилог неуро-фази методу је чињеница да је са малим бројем улаза, ANFIS постигао боље резултате. У раду са великим бројем сигнала, посебно у применама на терену, које су предмет разматрања у овој тези, захтев за једноставним описом сигнала, може представљати значајну предност у односу на друге методе.

6.3. Одређивање интензитета фотоакустичког сигнала у смеси C₂H₄ + Ar неуро-фази адаптивним системом ANFIS

Један од захтева који успешна техника детекције атмосферских полутаната треба да испуни је могућност детекције више полутаната истим инструментом. За мерења на терену је важно да техника има широк динамички опсег, што подразумева да се истим инструментом могу мерити високе концентрације полутаната у урбаним подручјима, али и ниске конентрације у руралним областима. Метод анализе сигнала помоћу тачака минимума и максимума, ANFIS методом може да обједини оба ова захтева.

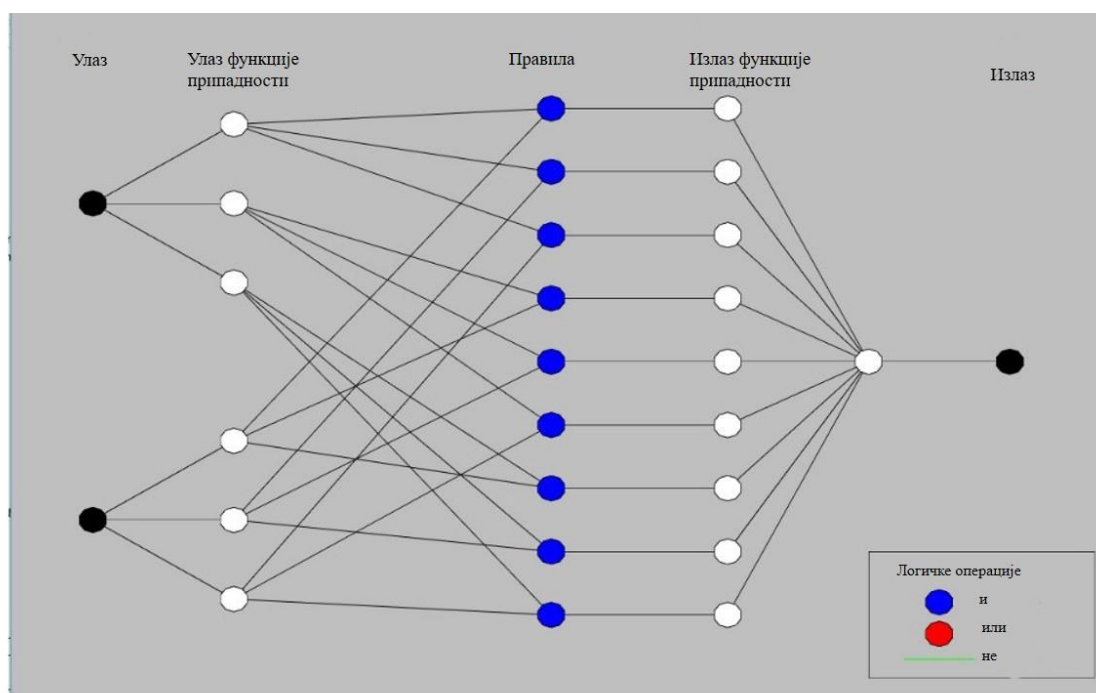
За анализу је коришћена смеша C₂H₄ + Ar на укупном притиску $p = 100$ mbar и притиску апсорбера $p_{C_2H_4} = 0,47$ mbar. Молекули C₂H₄, побуђивани су ласерским зрачењем

на 10P(14) линији, за коју је апсорпција максимална. Експериментални сигнали су добијени за пет различитих вредности густине енергије ласерског зрачења Φ из интервала вредности (0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1) J cm^{-2} . Молекули SF_6 и C_2H_4 , припадају различитим типовима симетрије, имају различите ИЦ спектре и имају различите апсорпционе карактеристике. Молекул C_2H_4 је слабији апсорбер, те ће ФА сигнал имати мањи интензитет од ФА сигнала који се добија за SF_6 као апсорбер. За процену вредности Φ (и њој припадајућег интензитета сигнала) и у овом случају је коришћена адаптивна мрежа ANFIS. Циљ је био испитати да ли ће мрежа са истом прецизношћу одредити параметар Φ и у случају молекула чије апсорпционе карактеристике значајно одступају од карактеристика молекула SF_6 . Молекул SF_6 је основни молекул за проучавања МФА, са dobrим апсорпционим карактеристикама и понашањем које се поклапа са теоријски предвиђеним. Због тога је поклапање експерименталних и теоријских сигнала за молекул SF_6 задовољавајуће, док су разлике експерименталних и теоријских сигнала за молекул C_2H_4 израженије. Предности неурофази метода, у овом случају, постају очигледније. Захваљујући адаптивности, фази систему закључивања, робусности и толеранцији на грешку, очекивано је да и случају не тако израженог односа интензитета ($\frac{I_t}{I}$) сигнала, прецизност буде задовољавајућа. На слици 6.6 приказани су експериментални ФА сигнали добијени у смеси $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{Ar}$ за пет различитих вредности Φ .



Слика 6.6 Експериментални сигнали добијени из смеше $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{Ar}$. Сигнали за пет различитих вредности $\Phi \in (0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1) \text{J/cm}^2$, за притисак смеше $p = 100 \text{ mbar}$ и притисак апсорбера $p_{\text{C}_2\text{H}_4} = 0,47 \text{ mbar}$.

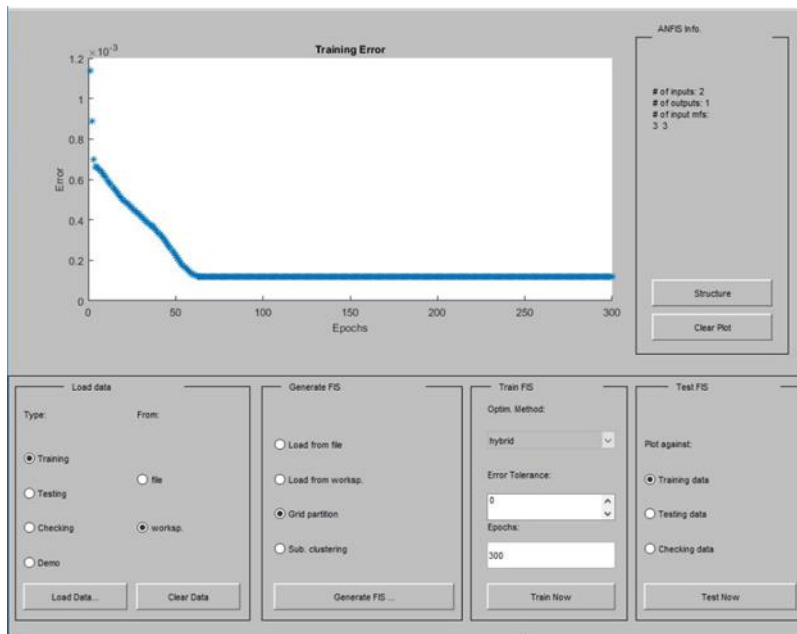
Као и у претходном случају, ANFIS је имао два улаза. Један улаз описује максималну вредност интензитета сигнала, а други улаз описује минимум сигнала. Излаз мреже представља одговарајући интензитет, односно вредност Φ . Коришћена ANFIS структура је приказана на слици 6.7.



Слика 6.7 Структура коришћеног ANFIS-а за процену вредности Φ за фотоакустичке сигнале из смеше $C_2H_4 + Ar$
ANFIS се састоји од два улазна и једног излазног неурона.

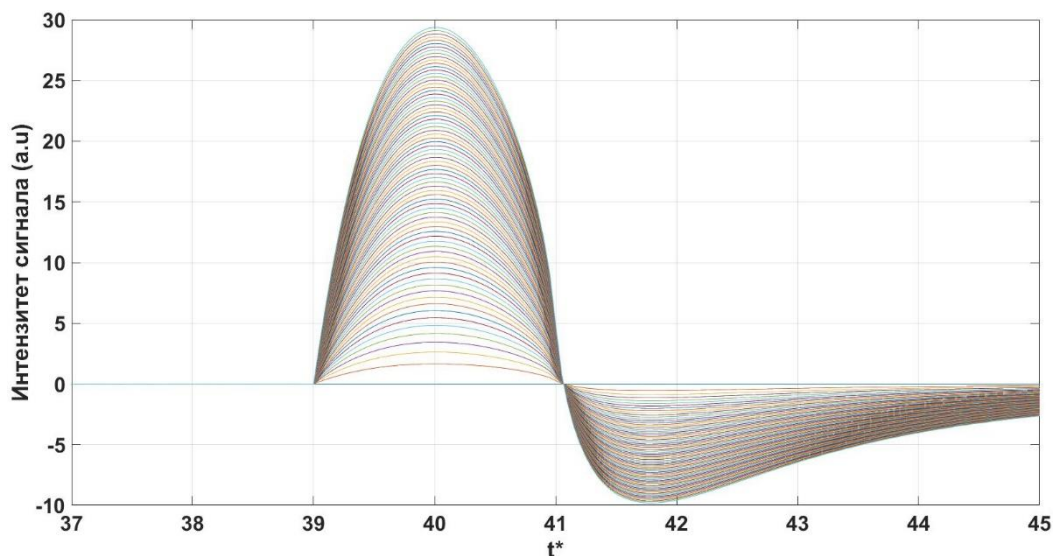
Перформансе ANFIS-а зависе од параметара: броја фазних скупова улаза, облика њихових функција, правила одлучивања итд. У поступку фазификације дефинишу се фазни скупови, тако да се свакој улазној величини придружује вредност степена припадности фази скупу. Изабрана је троугаона функција припадности. Важно је да распон функција припадности покрива област могућих вредности улазних променљивих. За сваки улаз су изабране 3 функције припадности, које истовремено одређују и број правила понашања. За избор облика и броја функција припадности не постоји одређено правило, већ се одређује (као и у случају избора броја неурона и скривених слојева код MLP мрежа), системом покушај-грешка. Изабрани број функција представља компромис између прецизности и времена извршавања алгоритма, јер већи број функција даје прецизнију вредност излаза, али је процес временски захтеван и мање погодан за рад у реалном времену. Међутим, изабрани број фази скупова у конкретним применама одређен је и бројем расположивих

експерименталних података. Подешавање већег броја параметара захтева већи број података за обучавање, па у раду са недовољним бројем података резултати могу бити лоши. Модел фази закључивања је Takagi–Sugeno. У овом моделу закључивања функције припадности излаза могу бити константне и линеарне. Изабрана је опција линеарних функција припадности излаза. Обучавање ANFIS-а је вршено током 300 епоха (циклуса) слика 6.8.



Слика 6.8 Приказ опадања грешке током дефинисаног броја епоха.

ANFIS је обучаван теоријским сигнаlima добијеним методом Green-ових функција за top hat профил ласерског зрачења, за вредност $\varepsilon = 1,27$ и $r^* = 40$. На слици 6.9 је приказано 75 теоријских сигнала за обучавање ANFIS-а. Одступање експерименталног и теоријског ФА сигнала веће је него у случају молекула SF_6 . То је разумљиво, јер се мора имати у виду неслагање између теоријског и експерименталног профила зрачења. Молекул C_2H_4 , спада у групу молекула, са вишом границом вибрационог квазиконтинуума, па апсорбује мањи број фотона.



Слика 6.9 Теоријски сигнали за обучавање ANFIS-а
 Теоријски сигнали (75) су рачунати коришћењем метода Green-ових функција за top hat профил и параметре $\varepsilon = 1.27$ и $r^* = 40$, који обезбеђује најбоље поклапање са експерименталним сигналом.

Процењене вредности параметра Φ , на основу пет експерименталних ФА сигнала добијених за вредности $\Phi \in (0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1) \text{ J/cm}^2$ ANFIS-ом приказане су у табели 6.3.

Резултати приказани у табели 6.3 показују да средња грешка процењене вредности Φ , износи 9,8%. Средња грешка је упоредива са грешком добијеном при одређивању параметра Φ из експерименталних ФА сигнала генерисаних у смеси $\text{SF}_6 + \text{Ar}$ (9,23%). Највећа грешка је учињена при процени најмање вредности $\Phi = 0,2 \text{ J/cm}^2$. Ова непрецизност се може приписати израженијем утицају шума на експериментални сигнал. У свим експерименталним сигнаlima је шум посебно уочљив у области минимума сигнала. За веће вредности Φ , однос сигнал/шум је повољнији, тако да ће се у случају мањих интензитета сигнала, резултат неповољнијег односа сигнал/ шум бити већа грешка у процењеној вредности Φ .

Табела 6.3 Процењене вредности параметра Φ експерименталних сигнала ANFIS-ом

	Стварна вредност Φ (J/cm ²)					Макс. грешка (%)	Средња грешка (%)
	1.0	0.8	0.6	0.4	0.2		
ANFIS процена	1.0714	0.7913	0.6427	0.4305	0.2521	26.05%	9.80%
ANFIS грешка (%)	7.14%	1.08%	7.12%	7.62%	26.05%		

Неуро-фази приступ анализи гасова у траговима, има велики потенцијал за примене у импулсној ФАС. Са једне стране, рад у реалном времену нуди многобројне погодности за *in situ* мерења. Са друге стране, његова инхерентна својства: толеранција на неодређености и непрецизности, рад у променљивом, динамичком окружењу и способност адаптације, могу бити пресудни за успешну имплементацију у традиционалну технику детекције атмосферских полутаната, каква је ФАС. Међутим, у неким случајевима, перформансе ANFIS-а могу бити ограничене избором улазних података који нису у опсегу вредности променљивих коришћених за обучавање. Такође, за примене на терену се мора направити одговарајући избор параметара ANFIS-а. ANFIS, као и неуронска мрежа, представља масивну паралелну структуру високо зависну од параметара. Потешкоће могу настати у дефинисању функције припадности, која одговара функцији прага у неуронским мрежама.

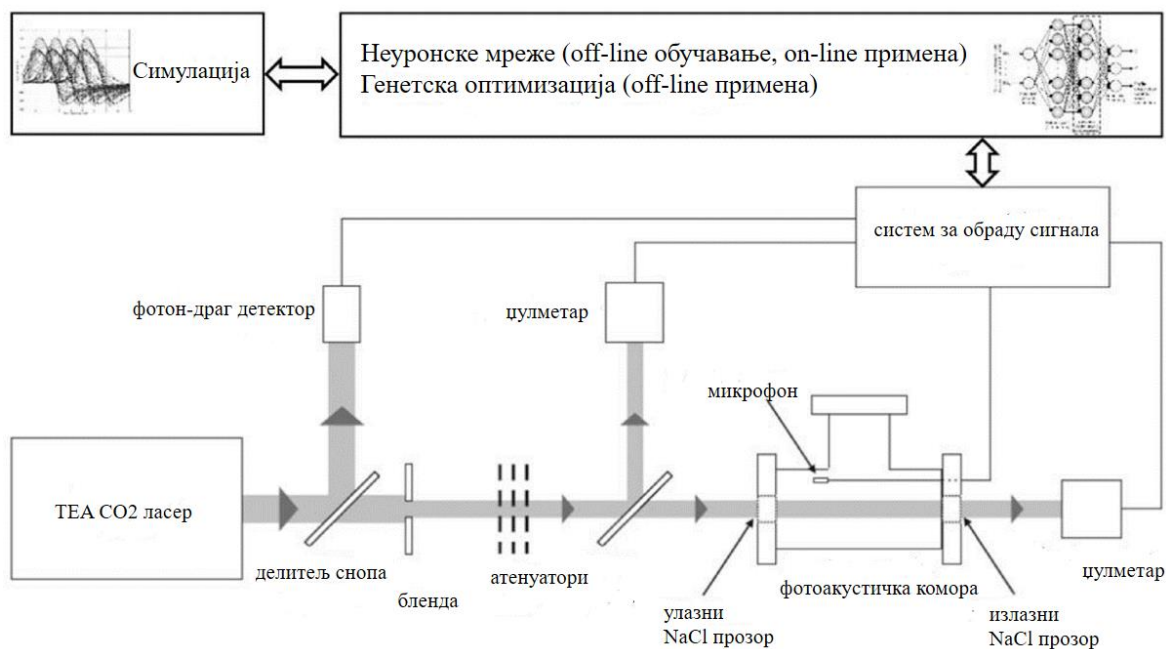
6.3. Интелигентна импулсна фотоакустика

Прве примене ФАС, како је већ речено, биле су: анализа гасова присутних у траговима у атмосфери и израчунавање времена релаксације. Успешна анализа полутаната је могућа уз високу осетљивост и селективност инструмената. Посебна предност се остварује инструментима прилагођеним мерењима на терену, јер обезбеђују услове за карактеризацију просторне и временске расподеле загађујућих супстанци у атмосфери. Императив у савременим техникама детекције, представља употреба рачунара, као саставних делова апаратуре за мерење и контролу експерименталних параметара, за обраду података, за моделовање и нумеричко решавање основних једначина посматраних процеса.

У будућности ће се развој метода и апаратуре за детекцију и праћење полутаната кретати у правцу повећања прецизности и брзине обраде података, како би се у разумном времену могла извршити процена поклапања компјутерских модела са тренутним саставом атмосфере. У ФАС се под дејством ласерског зрачења индукује низ веома комплексних процеса. Већ је поменуто, да квантитативна анализа подразумева многобројна поједностављења, јер већина термофизичких и кинетичких процеса који се дешавају у процесу формирања и детекције сигнала, нису прецизно дефинисани.

Показано и експериментално и теоријски [Rabasović et al., 2006a, 2007] да мале промене просторног профила ласерског зрачења могу да доведу до значајних промена облика фотоакустичког сигнала, а самим тим и до промена вредности израчунатог времена релаксације молекула. Применом интелигентних техника начињен је корак у правцу повећања прецизности у одређивању полупречника профила ласерског снопа, времена релаксације, густине ласерског зрачења и обезбеђивању рада у реалном времену. Следећи корак подразумева поједностављење експерименталне апаратуре и примене техника вештачке интелигенције, како би се избегло коришћење уређаја за одређивање просторног профила ласерског снопа.

У односу на уобичајену експерименталну поставку за ФА мерења, апаратура за интелигентну импулсну фотоакустику унапређена је техникама вештачке интелигенције у делу који врши обраду података мерења слика 6.10. У већини експеримената МФА користи се CO_2 ласер на атмосферском притиску. Карактеристике овог извора могу значајно да варирају у различитим експериментима и у мањој или већој мери су присутне непожељне варијације. Захваљујући особини неуронских мрежа и ANFIS - а да у реалном времену продукују резултат, могуће је кориговати проблем нежељених варијација у просторном профилу ласерског зрачења и густини енергије. Уз коришћење стандардног хардвера за персоналне рачунаре, обучене мреже различитих топологија врше процену параметара за време реда величине $10 \mu\text{s}$, па је могуће у периоду између два ласерска импулса извршити корекција профила ласерског зрачења. Након обучавања у лабораторијским условима и анализе прецизности и времена потребног за одређивање непознатих параметара сигнала, мрежу можемо користити у *on-line* режиму. Шема интелигентног фотоакустичког система дата је на слици 6.10. Основна идеја ове тезе је да се ФА апаратура унапреди одговарајућим софтвером, којим би се вршила процена параметара ФА сигнала (тип профила, полупречник профила, време релаксације и густина енергије ласерског зрачења), а настале грешке би се могле кориговати модификацијом софтвера.



Слика 6.10 Шема експерименталне поставке за ФА мерења методом интелигентне импулсне фотоакустике.

Извор: [Lukić et al., 2014]

Са друге стране, технике оптимизације иако не решавају проблем у реалном времену, омогућавају прецизно налажење параметара теоријског сигнала (ϵ и r^*) који дају најбоље поклапање са експерименталним ФА сигналом. Метакхеуристичке оптимизационе технике, о којима ће бити више речи у следећем поглављу, могу се у одређивање параметара непознатог сигнала укључити након завршеног експеримента (*off-line*), а могу се употребити и за оптимизацију параметара неуронских мрежа и ANFIS система. На тај начин би се повећала ефикасност и прецизност у одређивању времена релаксације молекула, профила ласерског зрачења, густине енергије зрачења као и важне карактеристике апаратуре, удаљености микрофона од извора зрачења. Модел интелигентне импулсне фотоакустике, има особине које га могу учинити незаменљивим у мерењима на терену и променљивом окружењу. То је сасвим сигурно могућност адаптације и надоградње у правцу имплементације сложенијих система као што су хибридни-неуро-фази-генетски системи итд. У поређењу са другим методама детекције атмосферских полутаната, највећу потенцијалну предност интелигентне фотоакустике, ипак представља јединствена способност да се помоћу рачунара оствари: опажање, закључивање, доношење одлука и аутоматизовање интелигентних акција. На тај начин се остварују услови, не само за брзу и

прецизну обраду великог броја података, већ и за предвиђање будућих догађаја и усмеравање људског деловања ка превенцији и умањењу нежељених последица.

6.4. Дискусија

Густина енергије ласерског импулса Φ даје важне информације о расподели енергије унутар профила ласерског зрачења, па може имати кључну улогу у експериментима интеракције зрачења и материје. Улога овог параметра је посебно важна у областима физике у којима се користе високе енергије ласерског зрачења и у којима је доминантна појава нелинеарних феномена, као што је ФАС. У експериментима МФА, густина енергије ласерског зрачења Φ , има много значајнију улогу од интензитета зрачења I , али представља и један од параметара који најчешће варира. Варијације вредности Φ у експерименту, могу бити контролисане коришћењем атенуатора. У пракси су у већој или мањој мери присутне и непожељне варијације, које доводе до значајних грешака у одређивању апсорпционих карактеристика испитиваног узорка: број апсорбованих фотона по молекулу $\langle n \rangle$, повећани и диференцијални пресек итд. Тачност са којом се дефинише Φ , одређује и тачност са којом се одређује средња апсорбована енергија у узорку, дефинисана преко броја апсорбованих фотона $\langle n \rangle = \frac{\Phi}{h\nu} \sigma_e$. Непрецизно дефинисана средња енергија апсорбована молекулима узорка, представља најзначајнији извор грешке у ФА мерењима, јер је за калибрацију ФА апаратуре важна стварна енергија коју је узорак апсорбовао. Због значаја који вредност параметра Φ има у апсорпционим мерењима, многи аутори су, у немогућности да прецизно одреде ту вредност, уместо густине енергије ласерског зрачења користили неку другу величину коју је могуће прецизније одредити [Terzić et al., 2003]. Анализа атмосферских полутаната импулсним фотоакустичким методом, заснована је на апсорпционим карактеристикама узорка. Пропорционалност између амплитуде ФА сигнала и апсорбоване енергије је кључна за осетљивост ФА метода. Фотоакустички сигнал, у чијем је интензитету садржана информација о концентрацији гаса апсорбера, функција је апсорпционог коефицијента. Варијације параметра Φ утичу на вредност апсорпционог коефицијента и на тачност са којом се одређује концентрација апсорбера (полутанта). Пропорционалност између амплитуде ФА сигнала и снаге упадног зрачења даје предност ласерима велике снаге (CO₂ ласер), са чијом употребом проблеми мерења вредности параметра Φ и појаве варијација, постају још израженији. Слични проблеми јављају се и у другим областима истраживања, која за основу имају ФА ефекат (Photoacoustic imaging –PAI). Један од

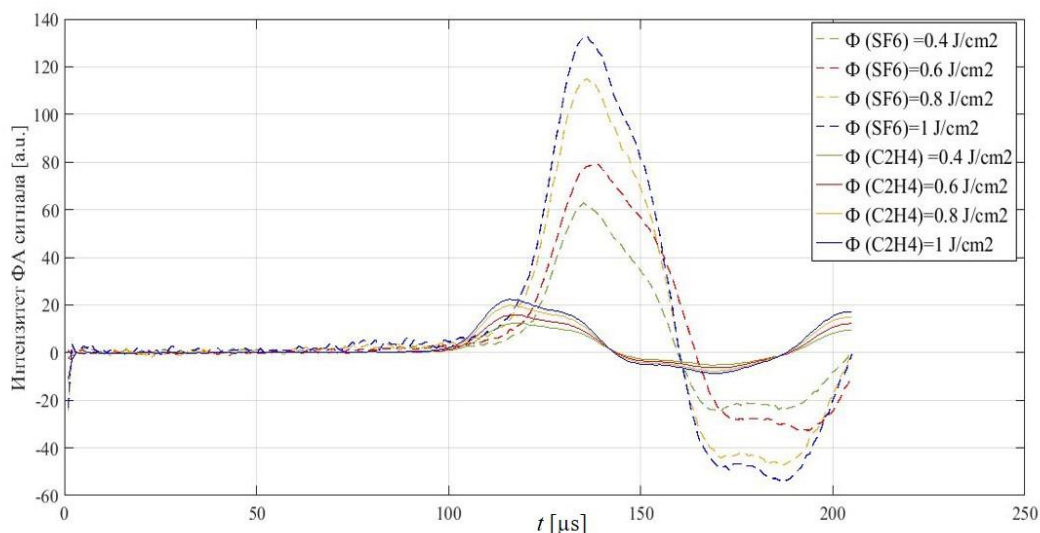
примера је формирање фотоакустичке слике ткива, озраченог кратким ласерским импулсима, а која је квантификована апсорпционим коефицијентом. Са тим разлогом се последњих година интензивније истражују нови методи којим се могу кориговати одступања параметра Φ у експерименту [Chalupský et al., 2013; Daoudi et al., 2012].

У претходним поглављима је ФАС описана као осетљива и селективна техника. Прецизно одређене карактеристике ласерског зрачења, просторни профил зрачења $R(r_L)$ и густина енергије зрачења Φ , су предуслов за поуздане резултате ФА мерења. Осетљивост и селективност технике примарно је условљена прецизно дефинисаним условима експеримента (познат просторни профил ласерског зрачења, вредност густине енергије, растојања на коме се рачуна ФА сигнал). На основу добро дефинисаних параметара извора зрачења и експерименталне поставке, може се одредити време релаксације τ_{V-T} апсорбера у испитиваном узорку. Да би се избегло подешавање експерименталне апаратуре понављањем експеримента и дуга процедура израчунавања параметара на основу добијеног сигнала, коришћене су интелигентне технике. Евентуалне корекције и дефинисања прецизних почетних услова, се у том случају могу извршити у реалном времену, на основу добијених резултата. Неуронске мреже и неуро-фази систем (ANFIS) су обучавани, да из интензитета експерименталног ФА сигнала у реалном времену процене вредности $R(r_L)$, ε , r^* и Φ . Неуронска и адаптивна мрежа су обучаване коришћењем теоријских фотоакустичких сигнала, рачунатих за услове који одговарају коришћеној експерименталној апаратури.

Зашто је важно у реалном времену детектовати варијације параметра Φ у извору зрачења који се користи у ФА апаратури за детекцију гасова присутних у траговима? Варијације параметра Φ , изазивају значајне промене у апсорпционом пресеку (и интензитету сигнала), које могу да маскирају стварни однос између ефикасности апсорпције за SF_6 , C_2H_4 , али и других гасова под истим експерименталним условима.

Мултифотонска апсорпција, која је у основи ФА метода је општи феномен, квалитативно исти за све вишеатомске молекуле [Lyman et al., 1986]. Молекул SF_6 је прототип молекула погодног за проучавања процеса МФА, што није случај са молекулом C_2H_4 код кога су одступања експерименталног и теоријског сигнала израженија. То се може уочити на слици 5.6, на којој су приказани експериментални и одговарајући теоријски сигнал. На слици 6.11 су приказани експериментални сигнали добијени у смешама SF_6+Ar и $\text{C}_2\text{H}_4+\text{Ar}$, за укупни притисак смеше $p = 100 \text{ mbar}$ и густину енергије ласерског зрачења $\Phi = 1 \text{ J cm}^{-2}$. Молекул SF_6 има максималну апсорпцију за 10P(16) линију, а за молекул C_2H_4

максимална апсорпција је за 10P(14) линију CO₂ ласера. Међутим, апсорпциони пресек молекула C₂H₄ је много мањи од одговарајућег пресека за молекулу SF₆, чак и на линији максималне апсорпције. Мање апсорбоване енергије за последицу има и мањи интензитет ФА сигнала, што се јасно уочава на слици 6.11.



Слика 6.11 Експериментални сигнали за молекуле SF₆ и C₂H₄. Фотоакустички сигнали генерисани у смеси SF₆ + Ar означени су испрекиданом линијом, а сигнали генерисани у смеси C₂H₄ + Ar пуном линијом.

Очигледно је да под истим експерименталним условима ова два молекула имају значајно другачије апсорпционе карактеристике. Особина молекула, која у највећој мери утиче на процес апсорпције, је густина вибрационих стања. Густина вибрационих стања зависи од броја атома у молекулу, те ће већи молекули имати већу густину вибрационих стања. Међутим, молекули SF₆ и C₂H₄ имају сличан број атома и показују монотони раст апсорбоване енергије (слика 2.5). Оно што их разликује је број апсорбованих фотона, који је условљен различитим положајем доње границе квазиконтинуума вибрационих нивоа. SF₆ има нижу границу квазиконтинуума и акумулација вибрационе енергије за тај молекул се дешава веома брзо, па молекул SF₆ може да апсорбује велики број фотона (око 30 фотона) [Markushev et al., 2003; Beck & Gordon, 1987]. Вишеструко мањи број апсорбованих фотона (n) (од 2 до 9), по молекулу C₂H₄, може се објаснити вишим положајем квазиконтинуума вибрационих нивоа. Молекул SF₆ достиже границу дисоцијације много брже него молекул C₂H₄, за скоро исте вредности густине енергије и притиска смеше [Nikolić et al., 2007]. Осим

различитог положаја квазиконтинуума, треба нагласити да молекули SF₆ и C₂H₄ припадају различитим групама симетрије, што указује на различиту структуру ИЦ спектара.

У анализи апсорпције, важно место заузимају сударни процеси. Додавањем неапсорбујућег (бафер) гаса, може се повећати износ апсорбоване енергије. У експерименту је коришћен атомски бафер гас Ar, јер се вибрационо-вибрациони међумолекуларни трансфер у том случају може занемарити. За ниске и умерене вредности густине енергије ласерског зрачења, са порастом притиска бафера, број апсорбованих фотона молекулом расте. За велике вредности Φ (изнад 1 J cm⁻²), ефекат судара је мали. У гасном узорку само молекули у одређеном ро-вибрационом стању апсорбују. На температури T = 300K, само 30% молекула SF₆ је у основном стању, а осталих 70% молекула је на вишим вибрационим нивоима. Током ласерског импулса, зрачење апсорбују сви молекули у основном стању и део молекула на вишим вибрационим нивоима. Додавањем бафер гаса, услед судара, многи молекули заузимају погодна ро-вибрациона стања и почињу да апсорбују. У испитиваном узорку постоје две врсте молекула: молекули који апсорбују (и чине ансамбл вибрационо врућих молекула) и молекули који не апсорбују (и чине ансамбл вибрационо хладних молекула). У случају C₂H₄, већина молекула је у основном вибрационом стању. Додавањем бафер гаса расте апсорпција, али C₂H₄ не достиже границу дисоцијације при истим условима као и SF₆ [Nikolić et al., 2007]. Повећање апсорпције услед судара са молекулима бафер гаса (посебно за ниске вредности Φ) се може објаснити феноменом ротационог уског грла. Ротационом релаксацијом, молекули из хладног ансамбла постижу одговарајућа ро-вибрациона стања и почињу да апсорбују. Међутим, услед разлика у структури, молекули SF₆ и C₂H₄, не показују исте карактеристике, чак и у истим условима (исти притисак бафер гаса и густина енергије ласерског зрачења). Иако судари са бафер гасом омогућавају молекулима да достигну одговарајућа ро-вибрациона стања и да директно интерагују са ласерским зрачењем, тај процес је много ефикаснији за SF₆ него за C₂H₄. [Nikolić et al., 2007]

Релација 6.11:

$$\langle n \rangle_{total}(p_{buffer}, \Phi) = \{[1 - \exp(-ap_{buffer})]b\}^{1/3} f_i^{1/3} (\sigma_0 \Phi)^{2/3}, \quad (6.11)$$

приказује зависност укупног броја апсорбованих фотона од притиска бафер гаса p_{buffer} и густине енергије ласерског зрачења Φ. Параметри a и b су параметри фитовања. Анализирајући једначину, уочавамо да је чине два дела која репрезентују различите утицаје

МФА процеса: први део $\{[1 - \exp(-ap_{buff})]b\}^{1/3} f_i^{1/3}$ представља утицај притиска гасне смеше (у многим случајевима је притисак бафер гаса, јер је тај притисак много већи од притиска апсорбујућих молекула), а други део приказује утицај густине енергије зрачења Φ , $(\sigma_0\Phi)^{2/3}$.

За висок притисак бафер гаса ($p_{buff} > 50$ mbar), вредност укупног броја апсорбованих фотона постаје константна или споро расте са повећањем притиска бафера преко 100 mbar. У области високих притисака изражен је утицај V-T релаксације, за разлику од области нижих притисака у којима је доминантна R-R релаксација. Молекул C_2H_4 показује сасвим другачије понашање са повећањем притиска бафер гаса, јер након достизања неке максималне вредности апсорпције, услед доминантног утицаја V-T релаксације долази до значајног смањења нивоа апсорпције. Детаљна анализа зависности укупног броја апсорбованих фотона од притиска бафер гаса и Φ , дата је у раду [Nikolić et al., 2007]. Велика моћ апсорпције ИЦ зрачења у односу на остале молекуле присутне у атмосфери, чини молекул SF_6 веома моћним гасом стаклене баште. Молекул C_2H_4 нема тако високу моћ апсорпције, али ни тако велику ефикасност трансфера енергије са вибрационих на транслационе модове [Gajević et al., 2006].

Одређивањем вредности Φ у реалном времену, на основу ФА сигнала, може дати информације о апсорпционим карактеристикама апсорбера. ANFIS систем је показао предности у процени вредности параметра Φ на основу интензитета ФА сигнала. У решавању овог задатка, робустност ANFIS система и фази-логичко закључивање, утицали су на продуковање прецизног одговора и у условима, када је сигнал описан са минималним бројем тачака. Улаз у адаптивну мрежу представљала су два неурона, помоћу којих се описује минимум и максимум ФА сигнала. Та чињеница чини имплементацију ANFIS система једноставном и погодном за рад на терену, а добијени резултати показују да је без обзира на врсту полутанта, могуће прецизно одредити вредности Φ . За различите фреквенције ласерске побуде, ова техника би могла да да информације о интензитету ФА сигнала побуђеног молекула, у реалном времену. Захтев за великим динамичким опсегом ФАС технике, који се огледа у способности инструмента да детектује ниске и високе концентрације једне или више врста, би применом неуро и неуро-фази система био испуњен.

7. АНАЛИЗА АТМОСФЕРСКИХ ПОЛУТАНАТА ПРИМЕНОМ МЕТАХЕУРИСТИЧКЕ ОПТИМИЗАЦИЈЕ НА ОДРЕЂИВАЊЕ ПАРАМЕТАРА ФОТОАКУСТИЧКОГ СИГНАЛА

Фотоакустичка спектроскопија као релативна техника захтева калибрацију, тј. одређивање фактора пропорционалности између интензитета ФА сигнала и апсорбоване енергије у узорку [Rabasović et al., 2006a]. Поступак калибрације ФА апаратуре заснива се на оптимизационој процедури, најчешће Levenberg–Marquardt-овим алгоритмом као стандардним методом за одређивање параметара нелинеарне функције. Фитовањем експерименталног и теоријског сигнала (за познат притисак смеше и познато Φ), одређује се вредност ε . За познату вредност ε и притиска смеше p , израчунава се коефицијент пропорционалности, на основу кога се може одредити апсорбована енергија у узорку. Практична примена ФАС метода, у одређивању концентрација атмосферских полутаната такође подразумева фитовање измереног ФА спектра, спектром који је узет као стандард. Оптимизацијом функције представљене сумом разлике квадрата експерименталног и теоријског сигнала [Moeskli et al., 1998], могу се као параметри сигнала, добити концентрације индивидуалних компонената. Јасно је да оптимизационе методе директно утичу на прецизност којом се у ФАС детектују различите врсте молекула и одређују њихове концентрације. Осим прецизности, за мерења мобилним фотоакустичким спектрометрима, важно је обезбедити резултате у веома кратком временском року, јер просторна и временска расподела концентрација полутаната може бити веома променљива. У овом поглављу, ће бити испитани потенцијали различитих оптимизационих техника у одређивању вредности параметара ФА сигнала. Изабрана су четири метахеуристичка алгоритма, који се међусобно разликују по начину претраживања простора, по процесу који имитирају (биолошки или физички), по томе да ли рад почињу једним решењем или популацијом решења, операторима које користе итд. Из групе глобалних метода претраживања, које рад започињу популацијом решења коришћени су: генетски алгоритми, оптимизација ројем честица и оптимизација ројем пчела, а алгоритам симулираног жарења припада групи алгоритама који рад започиње избором једне јединке. Идеја је била да се сваком од наведених техника одреде параметри непознатог фотоакустичког сигнала: полупречник профила ласерског снопа (r_L) и време релаксације (τ_{V-T}) и да се упореде њихове перформансе на основу неколико критеријума. На тај начин би се могла издвојити ефикасна и прецизна техника

детекције полутаната. Због нумеричких израчунавања било је погодније уместо параметара r_L и τ_{V-T} увести бездимензионе параметре r^* и ε , дате релацијама ($r^* = \frac{r}{r_L}$) и ($\varepsilon = \frac{\tau_p}{\tau_{V-T}} = \frac{r_L}{c\tau_{V-T}}$), респективно.

Показано је у [Rabasović, 2007] да је стандардним Levenberg–Marquardt-овим алгоритмом могуће веома прецизно одредити параметре сигнала (r^* и ε). Међутим, прецизне вредности полупречника профила ласерског зрачења и времена релаксације се могу добити конвенционалним техникама, само уколико су претпостављене вредности почетних параметара близу оптималних. У супротном, алгоритам ће највероватније достићи само вредност локалног екстремума (максимума или минимума), а не и глобалног. Метакхеуристичке методе и у случају када треба одредити почетне вредности великог броја параметара и када почетни услови нису добро дефинисани, дају задовољавајућа решења. Сваким новим покретањем алгоритма, хеуристичке методе дају решења која се мало разликују, међутим просечно решење ипак представља поуздану процену оптималног решења. Осим прецизности, ефикасности и брзине извршавања задатка, као критеријум за одабир метода, можемо увести и величину меморијског простора потребног за рад алгоритма, која може представљати ограничење у *in situ* мерењима.

Процес оптимизације започиње дефинисањем функције коју треба оптимизовати – *функције циља*. У свим разматраним оптимизационим техникама функција циља χ^2 је представљена сумом квадрата одступања експерименталног (симулираног) и теоријског сигнала. Процесом оптимизације се проналазе вредности променљивих r^* и ε , за које вредност функције циља χ^2 постаје минимална. Теоријски ФА сигнали су добијени решавањем таласне једначине дате у поглављу 2. Експериментални фотоакустички сигнал симулиран је теоријским, рачунатим на основу Fourier- ове трансформације за Gauss-ов (2.3а), top hat (2.3б) или Lorentz-ов профил (2.3в).

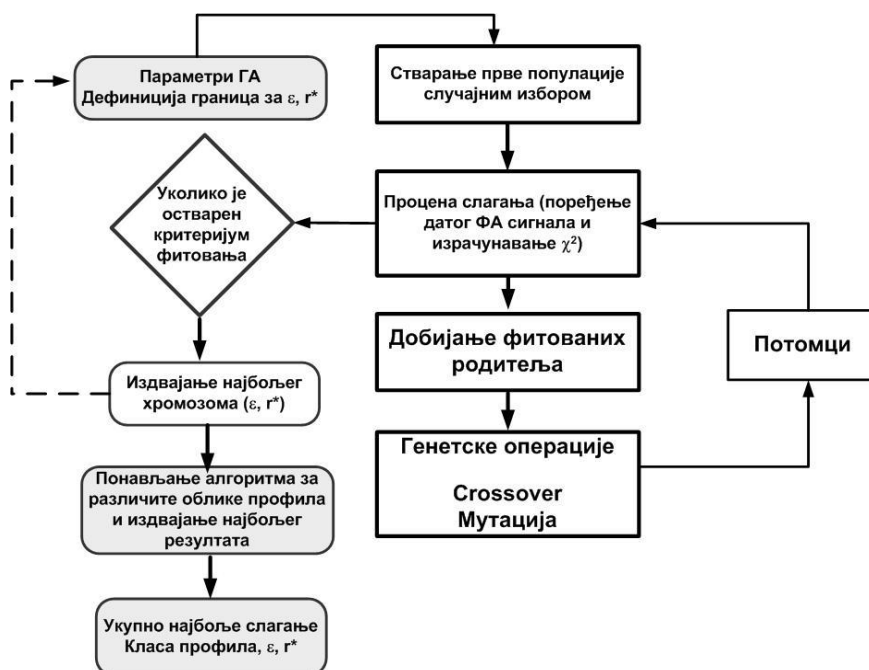
7.1. Примена генетских алгоритама на одређивање параметара фотоакустичког сигнала

Генетски алгоритми (GA) се већ више деценија успешно примењују на различите проблеме оптимизације функција. Веома су поуздан и прецизан метод за оптимизацију комплексних функција. Оптимизација генетским алгоритмима је заснована на

проналажењу вредности параметара фотоакустичког сигнала за које функција циља, дата као мера одступања теоријског од експерименталног сигнала, добија минималну вредност. Како би израчунавање вредности функције циља χ^2 , било ефикасније уведени су претходно дефинисани бездимензиони параметри. Након дефинисања функције коју треба оптимизовати, треба изабрати интервал вредности за сваки од параметара. Параметар r^* је селектован из интервала [20, 50], а ε из интервала [0.5, 5]. Овим је дефинисан простор претраживања, који се по потреби може проширити избором других граничних вредности. Доња и горња граница интервала вредности из којих су параметри селектовани, представљају најмању и највећу вредност параметара ε и r^* , које се могу очекивати у експерименту. Следећи корак је избор репрезентације. Коришћени су реално-кодирани генетски алгоритми јер се од осталих типова репрезентације издвајају ефикасношћу и прецизношћу и прилично конзистентним резултатима (процеси кодирања и декодирања су једноставнији и бржи). Генетски алгоритми спадају у групу алгоритама који рад заснивају на популацији, те је потребно случајним избором дефинисати почетну популацију. Генетски алгоритам претражује простор паралелно и за сваки пар (r^*, ε) , тј. за сваку јединку у популацији, рачуна теоријски фотоакустички сигнал за познати ласерски профил (Gauss-ов, top hat или Lorentz-ов профил). Евалуација функције циља се врши упоређивањем израчунатог теоријског сигнала са експерименталним сигналом. Будући да се за сваку јединку израчунава фитнес (вредност функције циља χ^2 која говори о квалитету јединки), одлука о броју јединки у почетној популацији, треба да буде компромис између времена потребног за евалуацију сваког потенцијалног решења и прецизности. Почетну популацију чинило је 60 јединки. За сваку јединку (r^*, ε) у свакој генерацији је рачуната фитнес вредност. На основу израчунате фитнес вредности врши се селекција родитељских јединки, које ће даље учествовати у процесима укрштања и мутације. Примењен је тип пропорционалне селекције, рулет селекција. Искоришћена је и опција - елитизам као начин селекције у коме се неки број најбољих јединки директно копира у следећу генерацију. У овом алгоритму селекције је 5 елитних јединки. Да би се у следећој генерацији појавиле нове јединке, као нове тачке у простору претраживања и потенцијална решења, примењују се оператори укрштања и мутације. Тип укрштања коришћен у овом раду је конвенционално (scattered) укрштање. Случајним избором се формира бинарни вектор (нпр. [1 1 0 1 0]). Уколико је вредност 1, селектују се гени првог родитеља, а вредност 0 означава да на тој позицији треба да се нађе ген другог родитеља. На тај начин се комбинују родитељски гени и ствара потомак. На све јединке у популацији изузев елитних делује

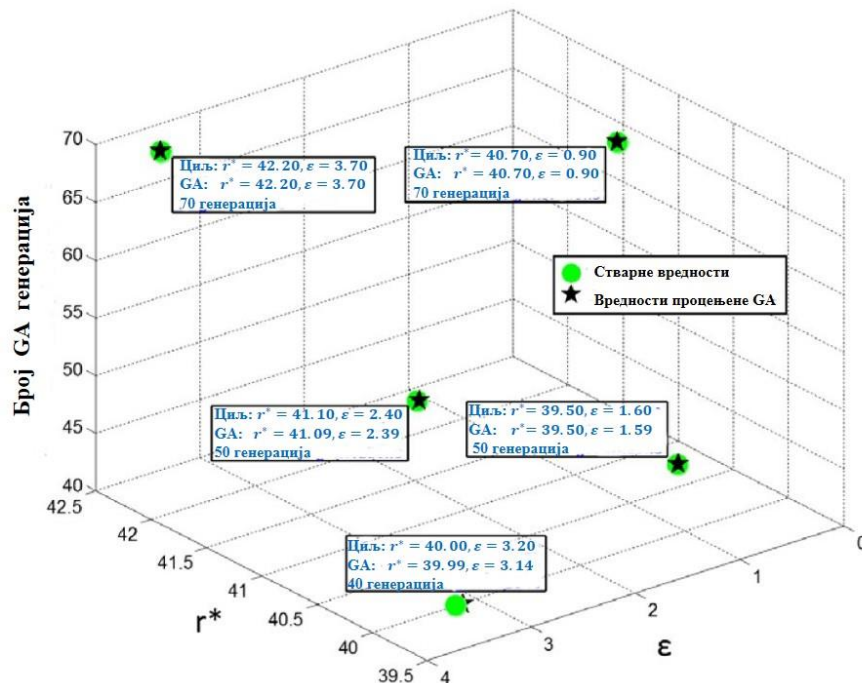
оператор мутације. Ефикасност рада генетског алгоритма, зависи од избора репрезентације и начина на који смо дефинисали: функцију циља, операторе, величину популације, број итерација, критеријуме заустављања алгоритма итд. Параметрима се подешава број генерација који дефинише када алгоритам прекида са радом или након колике промене вредности фитнес функције. Алгоритам се зауставља када се испуне наведени услови. Резултати оптимизације се могу поправити изменом вредности ових параметара. Као и у случају рада са неуронским мрежама, када је најбоља топологија мреже издвојена поређењем перформанси више мрежа, тако су и приказани параметри сигнала резултат селекције већег броја оптимизационих поступака. На тај начин је направљен избор одговарајућих параметара генетског алгоритма како би се дошло до најбољег решења.

Шематски приказ тока реално кодираног генетског алгоритма, којим се израчунавају непознати параметри фотоакустичког сигнала, дат је на слици 7.1. Генетска оптимизација је урађена посебно за три карактеристична теоријска профила ласерског зрачења: Gauss, top hat и Lorentz-ов профил. Након тога, су упоређивана најбоља поклапања, теоријских и експерименталног сигнала. На тај начин су добијени тражени параметри r^* и ε и облик профила.



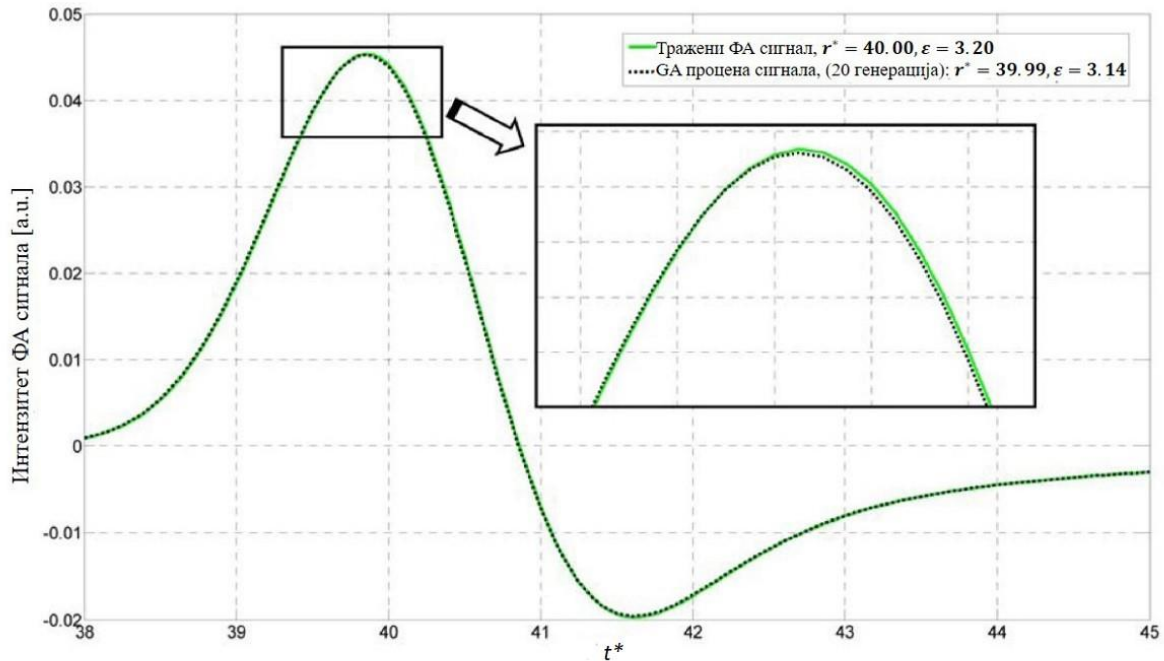
Слика 7.1 Шематски приказ реално кодираног генетског алгоритма за решавање проблема истовременог одређивања $R(r)$ и τ_{v-T} импулсном фотоакустиком. Извор:[Lukić et al., 2013a].

Слика 7.2 илуструје у којој мери тачност резултата зависи од броја генерација. Наиме, приказана су решења за четири сукцесивна поступка GA оптимизације са различитим бројем генерација и критеријумима заустављања. Очигледно је да дуже време рада алгоритма и већи број генерација (тј. већи број итерација), производи тачнији резултат.



Слика 7.2 Неколико поступака оптимизације генетским алгоритмом показују зависност прецизности резултата од броја генерација (итерација) као критеријума заустављања. Извор:[Lukić et al., 2014].

На слици 7.3, је приказано поклапање експерименталног сигнала и сигнала добијеног GA оптимизацијом у процесу у коме је популација имала најмањи број јединки и показала најмање поклапање (слика 7.2). Резултати недвосмислено показују да чак и у случају умереног броја генерација и за широк простор претраживања, генетским алгоритмима се изузетно прецизно може фитовати експериментални сигнал. Даљим подешавањем GA параметара (величине популације и броја генерација), вредности се могу, уколико је потребно и прецизније одредити. За разлику од неуронских мрежа приказаних у поглављу 5, које предност у односу на друге интелигентне технике остварују радом у реалном времену, генетски алгоритми су временски захтевни, али се издвајају високом прецизношћу у одређивању параметара дефинисаних у широком опсегу вредности.



Слика 7.3 Резултати ГА фитовања за тачку која је показала најмање поклапање са тачном вредношћу (слика 7.2). После 20 генерација и у широком опсегу вредности параметара, поклапање сигнала је прилично прецизно. Извор: [Lukić et al., 2014].

Посебна предност у раду са генетским алгоритмима, је да чак иако не нађе оптимално решење, алгоритам нуди задовољавајуће решење. Поузданост резултата се може повећати понављањем поступка. У фази имплементације ове технике, треба пажљиво дефинисати параметре, због њиховог јаког утицаја на ефикасност алгоритма и обезбедити велику снагу процесора, због великог броја рачунских операција које алгоритам извршава.

7.2. Примена технике оптимизације ројевима честица

Оптимизација ројем честица представља глобалну методу претраживања простора решења базирану на популацији решења. Ова техника се најчешће користи за оптимизацију функција са континуалним вредностима параметара. Оптимизација ројем честица је примењена на проблем истовременог одређивања параметара фотоакустичког сигнала. За разлику од генетских алгоритама, код којих помоћу еволуцијских оператора укрштања и мутације, стварају нова решења, концепт оптимизације ројевима честица је мењање брзине честице према најбољој вредности коју је сама постигла и према локалној најбољој вредности.

Оптимизацијом ројем честица су, као и у претходном параграфу истовремено одређивани непознати параметри r^* и ε фотоакустичког сигнала. Алгоритмом роја честица, одређује се минимална вредност функције циља, која је дефинисана на исти начин као и у случају генетских алгоритама, разликом два сигнала – познатог теоријског и непознатог (симулираног) сигнала. За ефикасан рад алгоритма важна је одлука о броју честица у роју (величина популације), коефицијентима убрзања процеса, коефицијенту инерције, величини суседства, броју итерација и вредностима когнитивне и социјалне компоненте учења. Рад алгоритма започиње избором почетне популације, тј. одређивањем броја честица или одређивањем величине роја. Велики број честица у роју захтева велики простор претраживања. То подразумева већи број итерација, а због веће сложености дуге време рада алгоритма. Искуства у раду са техником оптимизације ројева честица показују, да је за ефикасан рад алгоритма у налажењу оптималне вредности довољно дефинисати рој са 10 до 30 честица. Наравно, избор величине роја, условљен је карактеристикама проблема који треба решити. Почетна популација за оптимизацију дефинисане функције циља садржала је 20 јединки. Простор претраживања дефинисан доњом и горњом границом параметра $r^* \in [30,50]$ и параметра $\varepsilon \in [0.5,5]$. Након тога дефинисана је величина суседства, која одсликава начин социјалне интеракције и повезаност између честица. При дефинисању почетних параметара треба имати на уму њихов утицај на конвергенцију алгоритма, јер уколико је мање суседство, мања је и интеракција између честица, спорија конвергенција алгоритма и обрнуто. Број итерација је параметар чија вредност такође, зависи од конкретног проблема и представља један од критеријума за заустављање алгоритма. Како и овај параметар представља компромис између потребног времена и прецизности, стављен је оптималан број итерација 200. У свакој итерацији за сваку честицу се ажурира брзина и локација, као и вредност функције циља. При малом броју итерација, алгоритам прерано завршава рад, а велики број итерација може без потребе повећати сложеност израчунавања и продужити неопходно време за рад алгоритма. Брзина свих честица популације је на почетку нула, јер честице мирују. Коефицијенти убрзавања, c_1 и c_2 , заједно са случајним векторима r_1 и r_2 , контролишу стохастички утицај когнитивне и социјалне компоненте у укупној брзини честице [Parsopoulos & Vrahatis, 2010]. Као и остали параметри и ови параметри се дефинишу према конкретном проблему. Већина примена подразумева да су ови коефицијенти једнаки $c_1 = c_2$, чиме се спречава већи утицај једне или друге компоненте. Вредности ових коефицијената се одређују емпиријски, а лоше дефинисане вредности могу довести до дивергенције. Показано је у многим теоријским студијама да су

за конвергенцију PSO алгоритма, важне вредности инерције и коефицијента убрзања. Изабране вредности коефицијената убрзања биле су $c_1 = c_2 = 2$. У имплементацији алгоритма оптимизације ројевима честица, параметар инерције ω осигурава конвергенцију, јер уравнива процес претраживања већег дела простора и експлоатацију најбољег решења. За $\omega \geq 1$, брзина све време рада алгоритма расте, убрзавајући процес до максималне вредности брзине. То може довести до конвергенције роја. За $\omega < 1$, честице успоравају до брзине нула. Велика вредност параметра инерције утиче на већу способност претраживања простора, повећавајући разноврсност. Мала вредност инерције значи да алгоритам ради локално у окружењу најбоље пронађене вредности. Избор вредности ω , зависи од параметара c_1 и c_2 . Показано је [Engelbrecht, 2007; Van den Bergh & Engelbrecht, 2006] да веза $w > \frac{1}{2}(c_1 + c_2) - 1$, осигурава конвергенцију трајекторија честица. Због тога је узета вредност параметра $w = 1$. Параметар *globalbest* памти најбоље пронађено решење. Потенцијална решења лете кроз простор претраживања пратећи тренутно најбоље честице. У свакој итерацији се са брзином и новом локацијом, рачунају нове вредности *globalbest*. Након сваке итерације алгоритам приказује најбоље вредности функције циља. На слици 7.4 је приказано најбоље нађено решење и најбоља вредност функције циља постигнута после сваке итерације. Задати параметри симулираног (непознатог) сигнала били су: $r^* = 40.253$ и $\varepsilon = 1.286$, за Gauss-ов тип профила. Алгоритмом оптимизације ројем честица, истовремено су одређене вредности параметара: $r^* = 40.253$ и $\varepsilon = 1.28601$.

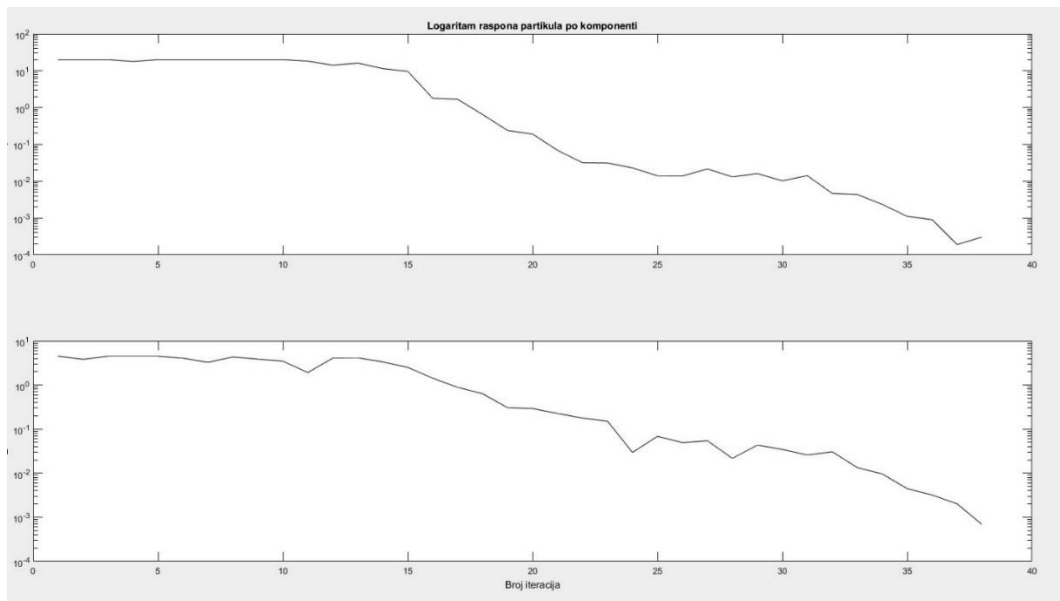
На слици 7.4 је приказан командни прозор на коме се може пратити рад алгоритма оптимизације ројевима честица: број итерација, број евалуација функција, најбоља и средња вредност функције. Број евалуација функција, представља веома важан критеријум у компарацији оптимизационих метода, јер директно утиче на ефикасност алгоритма. У алгоритму ројева честица, број евалуација функције није велики, што овај метод чини веома ефикасним.

Iteration	f-count	Best f(x)	Mean f(x)	Stall Iterations
2	60	0.00255	0.04056	0
3	80	0.00255	0.03919	1
4	100	0.00255	0.06066	2
5	120	0.0008327	0.03808	0
6	140	0.0008327	0.037	1
7	160	0.0008327	0.04492	2
8	180	0.0008327	0.04602	3
9	200	0.0008327	0.04993	4
10	220	0.0008327	0.04211	5
11	240	0.0008327	0.03868	6
12	260	0.0008327	0.05039	7
13	280	4.21e-05	0.03917	0
14	300	4.21e-05	0.03084	1
15	320	2.2e-05	0.01835	0
16	340	8.055e-06	0.006121	0
17	360	8.055e-06	0.005145	1
18	380	5.787e-06	0.001059	0
19	400	1.708e-07	0.0001854	0
20	420	2.396e-08	4.084e-05	0
21	440	1.718e-08	3.592e-05	0
22	460	1.658e-08	7.031e-06	0
23	480	9.325e-09	5.633e-06	0
24	500	6.23e-11	1.108e-06	0
25	520	6.23e-11	1.368e-06	1
26	540	6.23e-11	7.217e-07	2
27	560	6.23e-11	1.405e-06	3
28	580	6.23e-11	3.539e-07	4
29	600	6.23e-11	8.687e-07	5
30	620	6.23e-11	3.763e-07	6
31	640	4.282e-11	3.32e-07	0
32	660	4.282e-11	3.145e-07	1
33	680	2.048e-11	4.037e-08	0
34	700	2.048e-11	1.783e-08	1
35	720	4.288e-12	4.607e-09	0
36	740	7.873e-13	4.308e-09	0
37	760	3.927e-13	9.972e-10	0
38	780	2.506e-13	2.187e-10	0

Optimization ended: relative change in the objective value over the last OPTIONS.MaxStallIterations iterations is less than OPTIONS.FunctionTolerance.
Switching to the hybrid optimization algorithm (FMINCON).
FMINCON ended.
Najbolje pronadjeno rešenje je 40.253 1.28601

Слика 7.4 Најбоље нађено решење и најбоља вредност функције циља постигнута после сваке итерације.

Након дефинисаног броја итерација (200) све честице се налазе на истој локацији и имају исту вредност функције циља. На слици 7.5, приказан је логаритам распона честица по једној променљивој у зависности од броја итерација. График је логаритамски јер је прилагођен и проблемима чије вредности променљивих обухватају широк опсег вредности. Помоћу овог графика се може пратити процес конвергенције. Уколико честице конвергирају ка једној тачки, која представља решење, тада опсег дат за сваку променљиву конвергира ка нули. Ако честице не конвергирају ка једној тачки, тада опсег за неке променљиве није нула, што се манифестује већим одступањима у процени параметара. Слика 7.5 илуструје конвергенцију логаритма распона оба параметра r^* и ε ка нули (опадање логаритма распона честица са бројем итерација). Елементаран услов за успешан рад алгоритма, јесте конвергенција ка оптималном решењу.



Слика 7.5 График зависности логаритма опсега за сваку променљиву у функцији броја итерација. Први приказани график описује логаритам распона за променљиву r^* , а други за променљиву ε .

Урађено је више оптимизационих поступака за различите вредности броја јединки у популацији (20, 50 и 100). Број итерација је био 60 у свим случајевима. Коришћена је и хибридна функција *fmincon*, чији је задатак да проверава да ли је пронађени минимум функције глобални или локални. Резултати показују да се PSO алгоритмом и за мали број јединки у популацији може добити тачно решење : $r^* = 40$, $\varepsilon = 3.20$.

Табела 7.1 Резултати оптимизације алгоритмом ројева честица

Параметри PSO алгоритма			Резултати PSO оптимизације		
Број итерација	Број јединки	Опсег	Хибридна функција*	r^* ; ε	Најбоља вредност f(x)
60	20	r^* [10 50] ε [0.2, 4]	fmincon	$r^* = 40$ $\varepsilon = 3.20$	1.138e-13
60	50	r^* [10 50] ε [0.2, 4]	fmincon	$r^* = 40$ $\varepsilon = 3.19$	2.976e-12
60	100	r^* [10 50] ε [0.2, 4]	fmincon	$r^* = 40$ $\varepsilon = 3.19$	3.285e-12

Задате тачне вредности: $r^* = 40$, $\varepsilon = 3.20$

7.3. Примена технике оптимизације ројевима пчела

На проблем истовременог одређивања параметара фотоакустичког сигнала, примењена је још једна оптимизациона техника заснована на интелигенцији роја. Оптимизација ројевима пчела је релативно нова техника оптимизације, која је у свом кратком периоду развоја нашла примену у најразличитијим областима [Karaboga et al., 2014]. Многобројне примене оптимизације ројем пчела у решавању: нумеричких проблема, у електроници, софтверском инжењерству, у саобраћају и транспорту, у области обраде слика, у оптимизацији протеинских структура итд. су потврдила велики потенцијал ове технике. Предност алгоритама заснованих на ројевима је у значајној толеранцији, јер „неуспех“ једне јединке у популацији не утиче на перформансе целог система, те су погодна техника за решавање проблема које карактерише извесна неодређеност. Свака јединка роја има ограничене могућности и знања о окружењу, али ројеви развијају колективну интелигенцију, засновану на размени информација између јединки, што уз основне особине: самоорганизацију и поделу рада, чини да су ови алгоритми стабилни, немају много контролних параметара и једноставно се имплементирају.

Детаљнија шема оптимизације ројевима пчела дата је у поглављу 3, а у овом поглављу ће бити приказани резултати примене алгорита на истовремено одређивање параметара r^* и ϵ . Циљ овог истраживања је да се испита ефикасност и прецизност различитих интелигентних техника у одређивању параметара фотоакустичког сигнала насталог у смешама атмосферски полутант –инертни гас. Будући да су алгоритми засновани на интелигенцији роја, показали стабилност, толеранцију на непрецизности (које може изазвати присуство шума у сигналу) и способност да за мали број јединки у популацији и мали број евалуација функција, продукују тачно решење, параметри фотоакустичког сигнала одређивани су још једном техником из групе интелигенције ројева.

Функција циља је дефинисана као и у претходним случајевима. Функција циља представља разлику два фотоакустичка сигнала (теоријског и симулираног). Алгоритмом се тражи минимум дате функције. Осим уобичајеног параметра који регулише рад било ког оптимизационог алгорита (величина популације), алгоритам роја пчела користи и три контролна параметра: број извора хране (SN), вредност $limit$ и максималан број циклуса (MCN). Почетна популација јединки је садржала 20 пчела. Показано је [Акау & Karaboga, 2009] мењањем броја јединки у популацији да алгоритам колоније вештачких пчела задржава стабилност за различите величине популације. Половину популације вештачких пчела чине радилице, а половину посматрачи. По сваком циклусу, број извиђача је константан и износи 1.

У алгоритму је дефинисан подједнак број радилица и посматрача, да би број контролних параметара алгоритма био мањи. Капацитет алгоритма вештачке колоније пчела за одређивање непознатих параметара сигнала, испитиван је за различите вредности величине популације и различите вредности параметра *limit*. При избору величине популације, мора се имати у виду утицај овог параметра на брзину конвергенције. Вредности величине популације су изабране тако да брзина конвергенције алгоритма буде прихватљива и износиле су: 20, 50 и 100. Други важан параметар, који утиче на ефикасност алгоритма је *limit*, којим се контролише продукција извиђача. Заправо је продукција извиђача обрнуто пропорционална вредности *limit*. Уколико је вредност *limit* мала, ствара се већи број извиђача (јер пчеле радилице брже напуштају изворе хране – пронађено решење), а уколико је вредност *limit* велика, ствара се мањи број извиђача (пчеле радилице дуже експлоатишу извор хране). Правилно изабраном вредношћу *limit* се уравнотежују процеси претраживања простора (који врше извиђачи) и експлоатације решења (које извршавају радилице и посматрачи). Испитиване су перформансе алгоритма за различите вредности *limit* и различите вредности величине популације, али су задовољавајућа решења (прихватљиве вредности параметара фотоакустичког сигнала) добијене за вредности *limit*-а, предложене у раду [Karaboga, & Basturk, 2008]. Симулирани сигнал је рачунат Фуријеовом методом за Gauss-ов профил и вредности параметара $r^* = 40$ и $\varepsilon = 3.20$. Максималан број итерација је износио 60 у свим случајевима. Максималан број итерација истовремено представља и критеријум заустављања. Као и у сваком од претходних алгоритама дефинисане су границе простора претраживања. За параметар r^* је дат шири опсег вредности од оног који се обично јавља у експерименту [10,50], а параметар ε је приказан интервалом [0.2,4]. Величина популације пчела је мењана и износила је: 20, 50 и 100 јединки. Пчела је заправо симболичан приказ положаја и вредности функције циља. Почетној популацији пчела се даје насумична локација у простору и за сваки положај се рачуна функција циља. За одабир извора хране (решења у простору претраживања) је коришћена селекција „коло среће“. У свакој итерацији алгоритам памти најбољу вредност функције циља, а посебна променљива памти најбоље пронађено решење (минимум функције). Уколико се положај извора хране не побољшава током унапред одређеног броја циклуса (*limit*), онда се напушта и замењује новим. Другим речима, уколико нема побољшања решења током достизања вредности *limit*, радилица постаје извиђач и генерише ново решење по формули (3.18). Пчеле извиђачи представљају механизам који се користи да би се избегло заглављивање алгоритма у локалном минимуму и стагнација популације. Због тога је број пчела извиђача и време генерисања нових извиђача веома важан фактор у претраживању простора и подешава се према конкретном проблему.

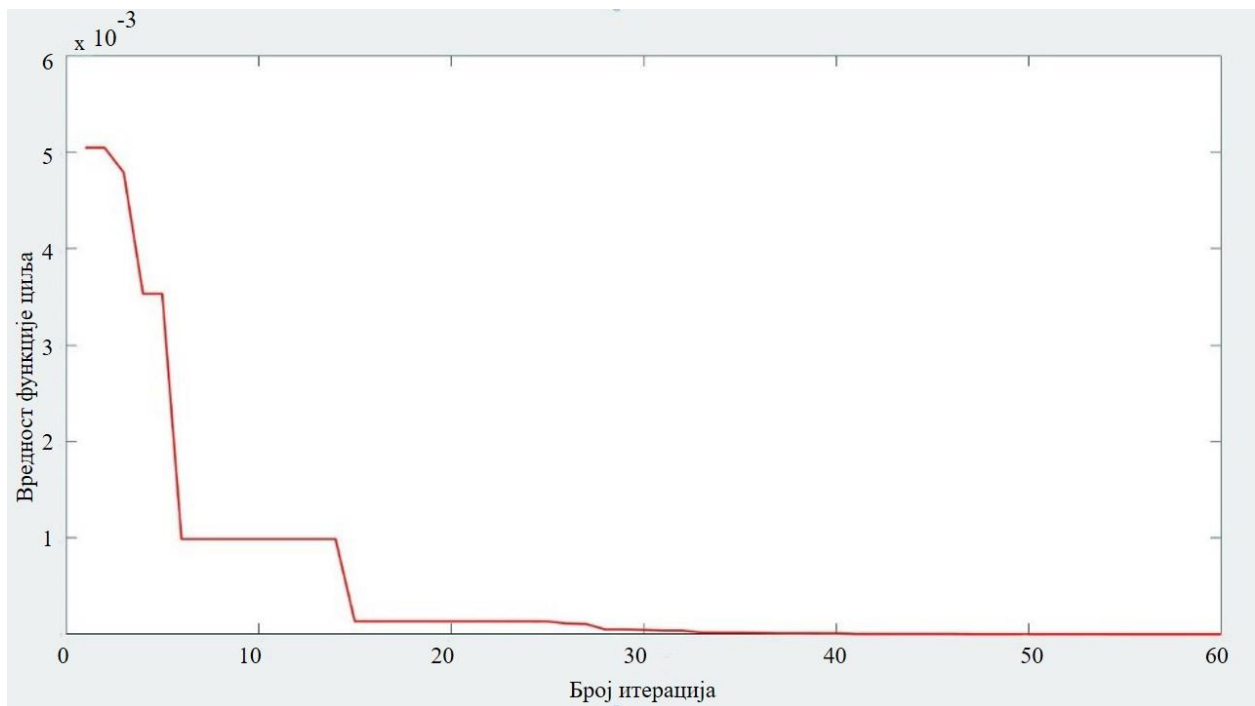
Табела 7.2 Резултати оптимизације алгоритмом колоније вештачких пчела

Параметри АВС алгоритма			Резултати АВС оптимизације		
Број итерација	Популација	Опсег	Лимит	r^* ; ϵ	Грешка
60	20	r^* [10 50]	2	$r^* = 39.95$	5.4036e-05
		ϵ [0.2, 4]		$\epsilon = 2.79$	
		r^* [10 50]	10	$r^* = 40.01,$	1.4987e-05
	ϵ [0.2, 4]		$\epsilon = 3.48$		
	r^* [30 50]	10	$r^* = 40.00,$	3.756e-06	
	ϵ [0.5, 4]		$\epsilon = 3.31$		
60	30	r^* [10 50]	25	$r^* = 39.95,$	5.6205e-05
		ϵ [0.2, 4]		$\epsilon = 2.74$	
60	50	r^* [10 50]	15	$r^* = 40.03,$	2.6394e-05
		ϵ [0.2, 4]		$\epsilon = 3.68$	
60	50	r^* [10 50]	5	$r^* = 40.05$	0.00014723
		ϵ [0.2, 4]		$\epsilon = 3.37$	
		r^* [10 50]	25	$r^* = 39.98,$	8.7166e-06
	ϵ [0.2, 4]		$\epsilon = 3.11$		
	r^* [30 50]	25	$r^* = 40.00$	1.1514e-08	
	ϵ [0.5, 4]		$\epsilon = 3.21$		
60	100	r^* [10 50]	50	$r^* = 39.99,$	2.3439e-07
		ϵ [0.2, 4]		$\epsilon = 3.16$	
60	100	r^* [10 50]	25	$r^* = 39.99,$	1.349e-07
		ϵ [0.2, 4]		$\epsilon = 3.17$	
60	100	r^* [30 50]	50	$r^* = 40$	1.2466e-10
		ϵ [0.5, 4]		$\epsilon = 3.20$	

Задата тачна вредност $r^* = 40$, $\epsilon = 3.20$

Испитиван је и утицај параметра *limit* на перформансе алгоритма. Коришћен је метод за одређивање оптималних вредности овог параметра, који је предложио [Karaboga, & Basturk, 2008]. Вредности параметра *limit* се израчунавају по формули $0,1 \times n_r \times D$, $0,5 \times n_r \times D$ и $n_r \times D$, где је n_r број радилица, а D је број димензија или број променљивих. Будући да је број променљивих чије вредности одређујемо алгоритмом константан ($D = 2$), параметар *limit* је мењан у зависности од величине популације. Резултати више оптимизационих поступака дати су у Табели 7.2. За различите вредности величине популације (20, 50, 100) и константну вредност параметра напуштања $limit = 25$, величина популације није значајније утицала на прецизност у одређивању параметра r^* непознатог сигнала, али се уочава тенденција повећања прецизности у одређивању параметра ϵ , са повећањем броја јединки у популацији ($r^* = 39.95$ и $\epsilon = 2.74$, $r^* = 39.98$ и $\epsilon = 3.11$ и $r^* = 39.99$ и $\epsilon = 3.17$). На слици 7.6 је приказано опадање вредности функције циља током дефинисаног броја итерација.

За формулисање коначног закључка о утицају различитих параметара на ефикасност алгоритма вештачке колоније пчела, треба размотрити и утицај опсега, који дефинише величину простора претраживања. Дефинисан је шири и ужи опсег вредности параметара: у првом случају $r^* \in [10,50]$ и $\varepsilon \in [0.2,4]$, а у другом $r^* \in [30,50]$ и $\varepsilon \in [0.5,4]$. Мењана је величина популације и опсег вредности у оквиру којих алгоритам тражи оптималну вредност, док је вредност *limit* рачуната по формули $0,5 \times n_r \times D$, за сваку величину популације. Резултати дати у Табели 7.2, јасно показују да уколико се редукује простор претраживања ($r^* \in [30,50]$ и $\varepsilon \in [0.5,4]$), алгоритам веома прецизно одређује тражене вредности (за $n_{pop} = 20$, $r^* = 40.00$ и $\varepsilon = 3.31$; за $n_{pop} = 50$, $r^* = 40.00$, $\varepsilon = 3.21$; за $n_{pop} = 100$, $r^* = 40.00$ и $\varepsilon = 3.20$). Разлике у величини популације узрок су малим разликама у прецизности са којом су одређени параметри у ова три оптимизациона поступка. Наравно, за већи број јединки у популацији, захтева дуже извршавања алгоритма.



Слика 7.6 Резултат поступка оптимизације алгоритмом колоније вештачких пчела, који приказује опадање вредности функције циља током дефинисаног броја итерација.

На основу анализе већег броја оптимизационих поступака, могу се издвојити неке основне карактеристике алгоритма колоније вештачких пчела, које могу утицати на одлуку о избору најефикаснијег алгоритма за процену параметара фотоакустичког сигнала. Очигледна предност овог алгоритма је мали број параметара. Наиме, ако се изузму

параметри: величина популације и максималан број циклуса (као критеријум заустављања), који су заједнички за све алгоритме засноване на популацији, алгоритам вештачке колоније пчела има само један контролни параметар – *limit* (генетски алгоритми и ројеви честица имају по 3 параметра). У фази имплементације подешавање једног параметра може представљати значајну предност, јер утиче на флексибилност алгоритма. У раду са различитом величином популације, показује стабилност и што је још важније не захтева велики број јединки у популацији да би продуковао прихватљиво решење. Како је претходно напоменуто, процес експлоатације решења обављају пчеле радилице и посматрачи, а процес претраживања – извиђачи, чији се број дефинише параметром *limit*. Алгоритам ефикасно претражује различите области простора помоћу пчела посматрача (селекцијом базираном на вероватноћи (3.17), али и помоћу извиђача, случајном селекцијом, према релацији (3.18). Процес експлоатације пронађених решења није интензиван, али се овај алгоритам може сматрати ефикасним за глобалну оптимизацију.

7.4. Примена технике симулираног жарења

Алгоритам симулираног жарења спада у групу метахеуристичких техника заснованих на једном решењу, а не на популацији. Још једна разлика у односу на претходно разматране технике, је да опонаша физички процес, а не процес еволуције или социјално понашање животиња. Управо су другачији концепт и приступ решавању проблема оптимизације функције представљали критеријум за избор техника оптимизације, али и полазну тачку за поређење квалитета добијених решења. С обзиром на почетну идеју, да се испита могућност примене метахеуристичких техника у атмосферским мерењима, за одређивање параметара фотоакустичког сигнала, брзина и прецизност су била два најважнија критеријума за процену успешности технике. Брзина којом алгоритам продукује решење и прецизност су својства која се правилним избором вредности параметара могу унапредити, те је као и у претходним случајевима, избор скупа параметара који дају најбоље перформансе алгоритма, извршен на основу великог броја оптимизационих поступака за различите вредности параметара.

На основу аналогије са процесом жарења, оптимално решење проблема одговара равнотежном стању система, или стању са минимумом енергије. Другим речима, функција циља у алгоритму симулираног жарења представља енергетско стање система који се хлади. У стандардном алгоритму симулираног жарења, коришћеном у овом раду, нема ограничења у начину одређивања функције циља, изузев захтева да мора бити добро

дефинисана и константна. У неким ситуацијама, су дозвољени изузеци, посебно када функција циља садржи шум [Gutjahr & Pflug, 1996]. Функција циља и у овом случају представља разлику теоријског и симулираног (експерименталног) фотоакустичког сигнала, а њеном оптимизацијом се одређују вредности параметара r^* и ε .

Из групе различитих алгоритама симулираног жарења, изабран је стандардни алгоритам (како би се перформансе различитих метода, могле исправно класификовати). Прва, важна одлука у раду са SA алгоритмом је везана за: почетну температуру, распоред хлађења, коначну температуру T_i , функцију опадања температуре и критеријум заустављања. Затим следи моделовање конкретне проблема кроз дефинисање: простора претраживања, функције циља, избора структуре суседства. Теоријски посматрано, требало би правилним избором параметара, осигурати одговарајућу брзину конвергенције алгоритма и квалитет решења, што у практичним применама значи да се одлуке о вредностима параметара морају пажљиво спроводити.

У SA алгоритму, најважнији параметар је температура, којом се одређује растојање између тачака у простору, тј. решења, али и вероватноћа прихватања решења. Уобичајено је да се до оптималног решења стиже прихватањем решења за које функција циља има мању вредност. Међутим, да би се избегло заглављивање алгоритма у локални минимум, повремено се прихвати и решење за које функција циља има већу вредност. Температура је најчешће скалар, мада може бити и вектор са различитим компонентама тренутне тачке. Температура у алгоритму симулираног жарења представља параметар контроле и постепено опада током рада алгоритма (према распореду хлађења), до постизања равнотежног (оптималног) стања. Начин хлађења је потпуно дефинисан почетном температуром, правилом опадања температуре и критеријумом заустављања. Довољно висока вредност почетне температуре би требало да омогући насумичну претрагу преко целе области претраживања. Са друге стране, велики број итерација неопходан при високој вредности температуре, није пожељан, јер је временски захтеван, а и средња вредност добијеног решења је углавном лоша [Triki et al., 2005]. Алтернатива може бити једноставно подешавање ниже температуре и брзо повећање, док се не постигне жељени однос прихватљивости, одакле почиње хлађење. Овај поступак је аналоган физичком поступку при коме се материјал у чврстом стању загрева мало изнад вредности тачке топљења пре него што почне спори процес жарења. Оптимална вредност почетне температуре за дату функцију циља, може се израчунати помоћу софтвера. У неким случајевима, се почетна температура може проценити на основу функције циља по формули: $T_0 = (-U/\ln(R_{acc}))$,

где је U средње повећање у вредности функције циља и R_{acc} је однос прихваћених решења и генерисаних решења. Чак иако није могуће проценити U теоријски, та вредност се може проценити спровођењем насумичног претраживања простора [Triki et al., 2005]. Почетна температура $T_0 = 60$, погодна за истовремено одређивање параметара сигнала SA алгоритмом, процењена је кроз поступак покушај-грешка. Показало се да вредност почетне температуре значајно утиче на квалитет решења. Иако је сугестија да вредности почетне температуре, треба да буду веће, да би се обезбедило слободно претраживање простора, потврђено је као и у [Triki et al., 2005], да су решења добијена при већим вредностима почетне температуре углавном лоша.

Алгоритма симулираног жарења је прилично осетљив на брзину којом опада температура. Важно је да алгоритам доста времена проводи на нижим температурама да би се осигурало добро претраживање региона око локалног минимума. Будући да је теорија симулираног жарења заснована на концепту равнотеже на свакој температури, један од начина да се то осигура је да се равнотежа постигне за почетну температуру и да се затим редукује температура у довољно малим износима, тако да се брзо постигне равнотежа на новој температури. Постоје два типична распореда хлађења у литератури: експоненцијално и линеарно. Током процеса експоненцијалног опадања температуре, алгоритам ради кратко време на високим температурама, а више времена троши на побољшање вредности решења добијеног при нижим температурама. У случају процеса линеарног хлађења, температура опада линеарно са временом, тако да је за сваку вредност температуре, време рада алгоритма исто. Мања брзина опадања температуре, даје већу вероватноћу проналажења глобалног оптимума, али је време извршавања алгоритма дуже. Показало се у пракси, да је овакав начин хлађења временски захтеван, па је за одређивање параметара фотоакустичког сигнала коришћен бржи, експоненцијални процес опадања температуре. Следећи важан параметар је вероватноћа прихватања решења. Алгоритам одређује да ли је нова тачка боља или лошија од тренутне. Ако је боља, нова тачка замењује тренутну, али алгоритам прихвата и лошија решења на основу дефинисане функције прихватања. У основној верзији алгоритма коришћена је функција Болцманове расподела, која дефинише критеријум по коме се генерисано решење прихвата или одбацује. Болцманова расподела има одређене пожељне карактеристике, између осталог и критеријум прихватања решења. Решење се прихвата на основу величине пораста функције циља Δ : вероватноћа прихватања опада монотонно како Δ расте и вероватноћа тежи 0 када $\Delta \rightarrow \infty$. Многе практичне имплементације

су показале побољшање, променом правила прихватања. Функција којом је дефинисана вероватноћа прихватања лошијих решења, у коришћеном алгоритму је:

$$\frac{1}{1+\exp\left(\frac{\Delta}{\max(T)}\right)} \quad (7.1)$$

где је Δ разлика нове и старе вредности функције, а $\max(T)$, означава већа вредност добијену поређењем почетне и тренутне температуре.

Са питањем вероватноће прихватања новог решења, везан је параметар *reannealing* - поновљено жарење. Поновљено жарење је корак у раду алгоритма који доводи до повећања температуре. Након што алгоритам прихвати одређени број нових тачака, почиње претраживање решења и за више вредности температуре. То је начин на који се спречава „заглављивање“ алгоритма у локални минимум. Параметар поновног жарења подешава параметре жарења на вредност нижу од итерационог броја. Параметри жарења зависе од вредности процењеног градијента функције за сваку димензију по формули:

$$k_i = \log\left(\frac{T_0 \max(s_j)}{T_i s_i}\right), \quad (7.2)$$

где је: k_i – параметар жарења за компоненту i , T_0 – почетна температура компоненте i , T_i – тренутна температура компоненте i и s_i – градијент функције у правцу i . У комбинацији са другим вредностима примењених параметара, подешених за одређивање параметара фотоакустичког сигнала, показало се да је најоптималније да вредност поновног жарења буде 100. На крају, треба дефинисати услове при којима долази до заустављања алгоритма. Теоријски се рад алгоритма завршава, када вредност температуре постане нула и када даље промене нису могуће. У пракси, алгоритам престаје са радом када нема даљих побољшања у вредности функције циља. У алгоритму се, као критеријум заустављања дефинише максималан број евалуација функције циља. За проблем оптимизације који је решаван, максималан број евалуација функције је био 1000. Међутим, алгоритам је прекидао са радом и пре испуњења овог услова, односно када би вредност грешке пала испод алгоритмом дефинисане вредности. Да би се побољшао квалитет решења била је укључена и хибридна функција *fmincon*. Издвојени су резултати неколико оптимizacionих поступака, који илуструју, утицај параметара алгоритма на тачност добијеног решења (Табела 7.3).

Закључак, који се недвосмислено може извести је да се алгоритмом симулираног жарења веома брзо, могу одредити тачне вредности параметара фотоакустичког сигнала. Опсег

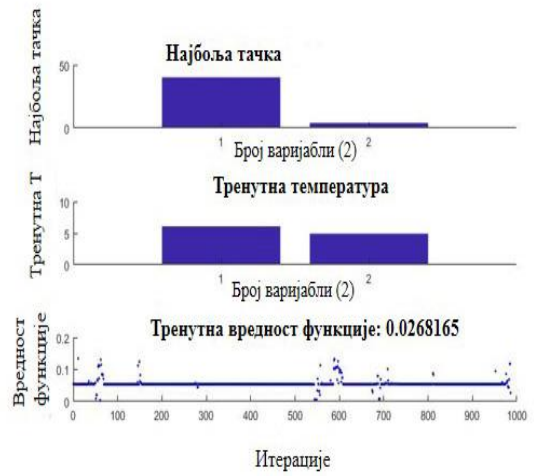
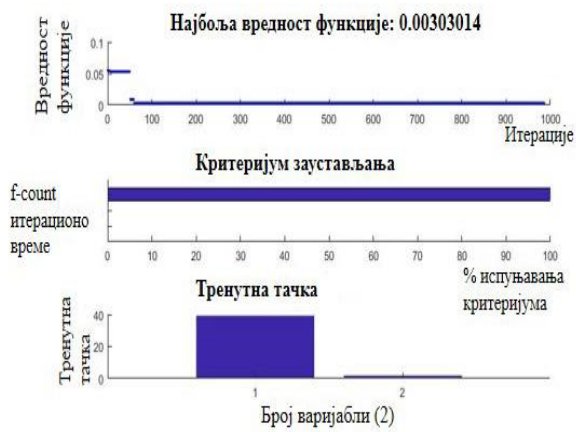
вредности параметара r^* и ε дефинисан је као и у претходним случајевима [10, 50] и [0.2, 4], респективно. За оптималну комбинацију параметара алгоритма и при овом широко дефинисаном опсегу вредности, алгоритмом су одређиване тачне вредности параметара. Потврђено је да ни начин дефинисања опсега за почетну тачку претраживања није имао приметан утицај на тачност решења.

Табела 7.3 Резултати оптимизације алгоритмом симулираног жарења

Параметри алгоритма симулираног жарења					Резултати
Доња и горња граница параметара r^* и ε	Почетна тачка	Температура	Поновљено жарење	Макс. бр. евалуација функција	Процењене вредности параметара r^* и ε
[10, 0.2] [50, 4]	[30, 4]	100	100	3000	[40.233, 2.989]
[10, 0.2] [50, 4]	[30, 4]	50	100	1000	[40.187, 2.912]
[10, 0.2] [50, 4]	[30, 4]	50	80	1000	[39.994, 2.815]
[10, 0.2] [50, 4]	[30, 4]	60	100	1000	[40.023, 3.549]
[10, 0.2] [50, 4]	[30, 4]	60	100	1000	[40.00, 3.199]
[10, 0.2] [50, 4]	[39, 3.5]	60	100	1000	[40.00, 3.199]
[10, 0.2] [50, 4]	[20, 1]	60	100	1000	[40.00, 3.199]

Задата тачна вредност $r^* = 40$, $\varepsilon = 3.20$

Још једном треба поменути основну карактеристику хеуристичких алгоритама, која је била јасно препозната и у случају алгоритма симулираног жарења. Алгоритам симулираног жарења користи насумично одабране бројеве и сваки пут када се покрене алгоритам, може се добити другачији резултат. То може бити недостатак, али у овом случају се показало као предност, јер је алгоритам за исте вредности опсега, почетне тачке и вредности параметара продуковао боља решења. На слици 7.7 је приказан поступак оптимизације алгоритмом симулираног жарења за најбоље пронађено решење.



Слика 7.7 Поступак оптимизације SA алгоритмом за најбоље пронађено решење.

7.5. Дискусија

Метахеуристички приступ у решавању проблема истовременог одређивања параметара непознатог (симулираног) фотоакустичког сигнала, дао је задовољавајуће резултате. Примењене су различите технике оптимизације функција: генетски алгоритми (GA), алгоритам ројева честица (PSO), алгоритам вештачке колоније пчела (ABC) и алгоритам симулираног жарења (SA). Показано је да све примењене технике проналазе прилично прецизно, непознате параметре r^* и ε сигнала. У раду су коришћене стандардне верзије свих алгоритама, како би се поређењем добила реална слика њихових карактеристика, иако данас постоји велики број побољшаних верзија, насталих из потребе да се алгоритам прилагоди решавању конкретног проблема или да се унапреде његове перформансе. Процена перформанси метахеуристичких алгорита се врши анализом показатеља или индикатора перформанси [Talbi, 2009]. Индикаторе перформанси, можемо поделити у три групе: квалитет решења, брзина и време извршавања задатка и робустност. Не треба изоставити и друге аспекте као: једноставност, лако руковање, флексибилност и др. Квалитет решења се обично процењује мерењем одступања добијеног од траженог решења и изражава у процентима. Показатељ - време потребно рачунару да изврши дати задатак, не може бити једини критеријум за успешност метода, јер може навести на погрешне закључке. Време потребно рачунару да успешно реши проблем, у великој мери зависи од карактеристика хардвера (процесора, меморије), затим оперативног система, језика, итд. Уместо времена се као критеријум за поређење успешности више метахеуристичких алгоритама може користити: број итерација, број евалуација функција и др. Робустност метода је важан критеријум за избор методе, посебно ако примена подразумева појаву варијација или одступања у улазним променљивим величинама или параметрима. Алгоритам је робустан када није осетљив на ове промене. У стохастичким алгоритмима (који су предмет анализе у овом раду), термин робустност се односи и на мала одступања у резултатима, до којих долази приликом више сукцесивних покретања алгорита.

Генетски алгоритми (GA), спадају у алгоритме инспирисане еволуцијом. Основни процес који извршава алгоритам је евалуација вредности функције циља (фитнес вредност), за насумично генерисану популацију јединки. На основу фитнес функције се врши селекција јединки за репродукцију. На селектоване јединке се примењују оператори укрштања и мутације, како би се креирала следећа генерација. Процес се понавља док се не

достигне максимална вредност генерација (итерација) или док се не постигне конвергенција. Предност генетских алгоритама је паралелно претраживање простора. Веома су поуздани и способни да продукују прецизно решење и у широко дефинисаном простору претраживања. Примена GA на проблем истовременог одређивања параметара сигнала, потврдила је да су веома поуздани, али и временски захтеvни, јер их карактерише велики број евалуација функција. Већи број параметара који дефинишу ток вештачке еволуције и које треба правилно подесити, у применама могу представљати проблем. Генетски алгоритми, су ипак незаменљиви у раду са комплексним функцијама у широко дефинисаном простору претраживања.

Алгоритам ројева честица (PSO), симулира рој честица који се креће у простору претраживања, пратећи честицу са актуелном оптималном вредношћу. Свака честица у популацији је дефинисана позицијом и брзином. Позиција се стално ажурира, како би се дошло до оптималне вредности. Алгоритам памти најбоље решење које је постигао рој (социјални фактор), али и најбоље решење које је постигла свака честица појединачно (индивидуални фактор). Смер кретања сваке јединке се одређује на основу утицаја сваког од фактора. Алгоритам ројева честица, као и већина алгоритама интелигенције ројева, користи тренутно најбоље решење у процесу претраживања. То је добро, јер може да убрза конвергенцију, али истовремено може да води процес ка локалном оптимуму. Резултати добијени овим алгоритмом су показали велики потенцијал ове методе. Са релативно малим бројем евалуација функције циља (која директно утиче на ефикасност алгоритма), PSO алгоритам је показао значајну прецизност, што је у сагласности са резултатима истраживања приказаним у Hassan et al. (2005).

Алгоритам вештачке колоније пчела (ABC), имитира понашање пчела у потрази за храном. Популацију пчела чине: пчеле радилице (50%) и пчеле посматрачи (50%). Број извора хране (потенцијалних решења) једнак је броју пчела радилица. Претраживање простора обављају пчеле извиђачи, које алгоритам генерише сваки пут кад пчела радилица напусти извор хране (или лоше решење). Најважнији параметар који треба подесити је параметар напуштања, који регулише колико дуго ће радилица експлоатисати извор хране, пре него што га напусти. Алгоритмом се могу прецизно одредити вредности тражених параметара сигнала, али ефикасност је мања у односу на алгоритам PSO. Иако даје задовољавајуће резултате и са малим бројем јединки у популацији (20), повећањем броја јединки се може утицати на прецизност, али време рада алгоритма тада постаје веома дуго. Главни недостатак ове методе, је непостојање оператора укрштања (који постоји у GA), па

расподела информација између јединки није на задовољавајућем нивоу. То доводи до споре конвергенције алгорита. Узрок спорој конвергенцији може бити неравнотежа између процеса претраживања простора и експлоатације решења, која врло често постоји код алгоритама интелигенције ројева. Међутим, ABC алгоритам предност остварује малим бројем параметара, које треба подесити, што у фази имплементације може бити значајно.

Алгоритам симулираног жарења (SA), опонаша процес жарења, преузет из физике. Алгоритам почиње избором једне јединке (решења) и подешавањем почетне температуре. Решење се током времена побољшава, по дефинисаном поступку опадања температуре. Уз температуру и закон опадања температуре важан је и параметар - поновљено жарење. Овим параметром се дефинише динамика прихватања лошијих решења. На тај начин се претражује шири део простора и осигурава пут ка оптималном решењу. Овај алгоритам са правилно подешеним параметрима је показао велики потенцијал за истовремено одређивање параметара сигнала. До тачног решења је алгоритам стигао са малим бројем евалуација функција. Иако постоје различита искуства у примени овог алгорита, у решавању проблема истовременог одређивања параметара ФА сигнала, показало се да је ефикаснији од других. Разлог томе може бити добро дефинисана функција циља. У случају веома комплексних функција ефикасност овог алгорита и GA (који је много сложенији), може бити веома слична.

Будући да се ради о алгоритмима који припадају различитим групама у односу на то да ли користе популацију (генетски алгоритми, алгоритми ројева честица и колоније вештачких пчела) или почињу рад дефинисањем једног решења, критеријуми за поређење су били: прецизност решења (%) и број евалуација функција. Резултати показују да GA захтева највећи број евалуација функција, па је његова ефикасност у одређивању параметара најмања. Број евалуација функција код алгоритама PSO, ABC и SA је сличан. Најмањи број евалуација функција потребан за прецизно одређивање непознатих параметара, показују алгоритми PSO (<1000) и SA (<1000), те се може закључити да су они били ефикаснији у решавању дефинисаног задатка.

Анализа атмосферских полутаната, интелигентним техникама, подразумева мерења на терену, у променљивом, динамичком окружењу. Примена метахеуристичких техника на реалне проблеме готово увек подразумева рад са подацима који садрже шум. Шум у фотоакустичком сигналу, представља добро познати проблем, а последица је: топлотних ефеката насталих у испитиваној гасној смеси, али и карактеристика детектора. У

лабораторијским условима се одговарајућим избором експерименталне апаратуре и подешавањем услова експеримента, може утицај шума смањити, али се у детекцији и мерењима концентрација молекула присутних у атмосфери, услови не могу прецизно контролисати. Због тога, при избору технике оптимизације, треба увести још један критеријум: перформансе алгоритма у присуству шума и у променљивом окружењу. Истраживања [Parsopoulos & Vrahatis, 2001; Kockanat & Karaboga, 2013] су показала да су алгоритми ројева честица и пчела, погодни за рад са подацима које карактерише присуство шума. Потврђено је [Parsopoulos & Vrahatis, 2001], да укључивање шума не уноси значајне нестабилности у рад алгоритам ројева честица. Наиме, експериментални резултати су показали не само чињеницу да алгоритам ројева честица и у том случају остаје стабилан и ефикасан, већ да постоје индикације да присуство шума може помоћи алгоритму у проналажењу глобалног и заобилажењу локалног оптимума функције. Са друге стране, испитивани су параметри алгоритма колоније пчела, праћена промена средње вредности и стандардна девијација при подешавању контролних параметара (величина колоније, *limit*) у присуству шума, али и способност алгоритма да елиминише шум који постоји у дигиталној слици [Kockanat & Karaboga, 2013]. И ови резултати показују да се правилним избором контролних параметара може успешно превазићи проблем постојања шума у сигналу.

Анализа сигнала у коме је присутан шум, захтева дубљу и свеобухватнију анализу, што представља изазов за даља истраживања, чији резултати могу помоћи да се повећа прецизност у раду са експерименталним сигнаlima. Свеобухватнијом и детаљнијом анализом фотоакустичког сигнала, али и применом напреднијих, хибридних метода вештачке интелигенције, могу се побољшати карактеристике фотоакустичке спектроскопије у детекцији атмосферских полутаната и одређивању њихових концентрација.

8. ЗАКЉУЧАК

Приказано истраживање је започето са идејом да се унапреди ФА анализа, у правцу поједностављења апаратуре и повећања ефикасности, кроз синтезу постојећих сазнања и примену нових тзв. интелигентних система, способних да уче и прилагођавају се средини. Током последњих неколико деценија, тежиште истраживања у атмосферским наукама, померено је са једноставних, линеарних или слабо нелинеарних процеса на сложене, вишедимензионалне, интердисциплинарне и нелинеарне процесе и моделе. Технике вештачке интелигенције су алат за рад са јако нелинеарним системима, помоћу којих се кроз спајање експерименталних података и теоријских модела, остварују услови за разумевање сложених атмосферских процеса. Фотоакустичка спектроскопија је високо осетљива и селективна техника, са широким динамичким опсегом. Висока осетљивост и селективност остварена је употребом ласера велике снаге. Уз ласере, ФА системи садрже и додатну апаратуру за мерење просторног профила ласерског снопа (R_L) и за мерење густине енергије зрачења (Φ), јер варијације у вредностима ових величина, могу значајно утицати на осетљивост и селективност мерења. Додатни инструменти, осим што нису погодни за мерења на терену, углавном у мерења уносе грешку.

Добијени резултати показују да:

1. Неуронским мрежама (MLP и GRNN) се у реалном времену може истовремено одредити вредност четири параметра ФА сигнала. Неуронска мрежа је процењивала истовремено класу профила (R_L) и густину Φ ласерског зрачења, параметре који се за високе снаге ласера конвенционалним методама мерења не могу одредити. Ови параметри су од суштинског значаја у процесима МФ апсорпције, који су у основи ФА детекције. Непрецизно одређене вредности параметара ласерског зрачења, утичу на резултате који карактеришу апсорпцију молекула испитиваног узорка, али и на осетљивост ФА детекције. Вредност параметра Φ је одређена неуронском мрежом и ANFIS-ом из експерименталних сигнала насталих у смешама са молекулима SF_6 и C_2H_4 , као апсорберима. Рад у реалном времену омогућава да се на основу добијених резултата уколико је потребно, између два сукцесивна импулса може извршити корекција просторног профила зрачења и густине енергије зрачења.
2. Време релаксације τ_{V-T} , процењено истовремено са осталим параметрима експерименталног ФА сигнала, може бити критеријум за детекцију специфичне врсте

молекула у смеси. На вредност времена релаксације утиче просторни профил ласерског зрачења и параметар Φ . Време τ_{V-T} и параметар r^* су успешно процењени неуронским мрежама за молекуле SF_6 и C_2H_4 . Време релаксације и број апсорбованих фотона молекулом (који директно зависи од прецизно дефинисане вредности Φ), могу бити од значаја за идентификацију стања атмосфере, кроз информације о индивидуалним апсорпционим и релаксационим карактеристикама атмосферских полутаната.

3. Интелигентне технике имплементиране у постојећу ФА апаратуру, могу унапредити ФА анализу атмосферских полутаната, не нарушавајући препознатљиве потенцијале које има ФА детекција: осетљивост, селективност, широк динамички опсег, једноставно руковање. Прецизним одређивањем полупречника профила ласерског зрачења и параметра зрачења Φ , остварују се услови за побољшање осетљивости метода. Такође, као параметри ласерског зрачења, ове величине одређене тачно и у реалном времену, учествују у повећању селективности метода. Време релаксације одређено прецизно за два атмосферска полутанта, говори о могућности детекције више врста истим инструментом, уз одговарајућу ласерску побуду, подржавајући осетљивост и селективност метода. Могућност да се одреди растојање r^* , на коме се детектује сигнал, указује на могућности детекције полутаната и у удаљеним слојевима атмосфере.
4. Процена параметра Φ , из експерименталних сигнала молекула SF_6 и C_2H_4 , неуронском мрежом и ANFIS-ом, може представљати први корак ка широј употреби ове технике у ФАС. Поменути молекули се битно разликују по ефикасности апсорпције, али та разлика није имала утицаја на тачност са којом је одређен интензитет сигнала. У интензитету сигнала су садржане и информације о концентрацији полутанта, што иде у прилог чињеници да се неуро-фази техникама може подржати широк динамички опсег ФАС.
5. Методе метахеуристичке оптимизације представљају подесан алат за симултану оптимизацију више параметара. Задатак симултане оптимизације неколико параметара, може бити веома захтеван, посебно у случају функција са више локалних оптимума. Поступак калибрације ФА апаратуре је поступак проналажења оптималне вредности параметара (ε и r^*) које дају најбоље поклапање теоријског и експерименталног

сигнала. У зависности од испитиване смеше, процесом фитовања се може добити калибрациона крива која одговара реалној експерименталној. У раду су испитане перформансе више различитих метахеуристичких метода, са једним задатком – истовремена процена вредности параметара сигнала (ε и r^*). Резултати показују да се било која од техника оптимизације: генетски алгоритми, оптимизација ројем честица и оптимизација вештачком колонијом пчела, симулирано жарење) може успешно имплементирати у импулсну ФАС. Избор технике зависи од конкретних захтева: комплексности проблема, доступне меморије рачунара, захтеване прецизности, временског ограничења итд.

Треба поменути и неке од недостатака које имају интелигентне технике. Као прво, основни недостатак интелигентних техника је уједно и недостатак ФАС методе: селективност у мултикомпонентним смешама може се постићи различитим таласним дужинама ласера. Облик сигнала у временском домену није поуздани параметар разликовања различитих апсорбера. Као друго, успешна примена ових техника захтева, пре свега валидне и бројне податке за обучавање, који на адекватан начин описују проблем који се решава. Прикупљање репрезентативних података, остварује се многобројним експериментима, чија реализација у неким случајевима није једноставна. Осим тога, процес обучавања мреже може бити веома захтеван и спор и подразумева правилан избор скупа података за обучавање. Проблем може представљати и одлука о архитектури мреже, броју слојева и броју неурона у слојевима. Анализом перформанси два различита типа мреже (MLP и RBF), дата је могућност избора према конкретним захтевима. Недостаци неуронских мрежа, у погледу алгоритма обучавања, адаптивности, закључивања, могу се у извесној мери превазићи коришћењем ANFIS-а. Метахеуристичке методе, такође имају ограничења као што су: потреба прилагођавања проблема алгоритму, дефинисање одговарајућих параметара за решавање конкретног проблема и велики утицај параметара на ефикасност. Због спровођења великог броја рачунских операција, метахеуристички алгоритми не раде у реалном времену, мада се њихова ефикасност може унапредити.

Даља истраживања у овој области могу бити усмерена на решавање поменутих недостатака, коришћењем хибридних алгоритама. Метахеуристички алгоритми (генетски алгоритми, алгоритми ројева, симулирано жарење) су добар метод за оптимизацију параметара: тежина, прагова, параметара одговарајућих функција припадности итд. у неуро и неуро-фази системима. Посебно перспективним се показао неуро-фази систем, ANFIS, који даје широк спектар могућности за примене у ФАС. Главни изазов у даљем

истраживању, ипак представља, конкретна реализација и имплементација одговарајућег софтвера. Корекције и подешавања ФА апаратуре биле би сведене на модификације софтвера, што је представљало основну идеју са којом је ово истраживање започето. Осим тога, будући да је у свим коришћеним интелигентним методама примењен *off-line* начин обучавања (обучавање у лабораторијским условима), намеће се питање – да ли би се другачијим типом обучавања (*on-line* обучавањем), добили бољи резултати? *On-line* обучавање омогућава динамичко подешавање и прилагођавање параметара променама у окружењу. Интелигентне методе могу обезбедити рад у реалном времену, са великим бројем података, високу прецизност, али у ери наглог развоја најразличитијих технологија, то није њихова најзначајнија предност. Прави допринос ових техника се може препознати, тек када на основу успешних примена у домену анализе ФА сигнала, можемо недвосмислено одговорити на питање: Да ли систем који смо развили, користи механизме адаптивног машинског учења, за обучавање и прилагођавање параметара различитих модела, издвајајући онај који у специфичним ситуацијама показује најбоље понашање? Да ли се когнитивним моделовањем, кроз процесе: опажања, расуђивања, аутоматизовања интелигентних реакција везаних за процес мишљења, доношења одлука, закључивања и свесног деловања, може ФА анализа атмосферских полутаната употпунити системом за предвиђање будућих загађења? Проналажење одговора на ова питања, представља смерницу за даља истраживања у пољу свеобухватније и дубље имплементације интелигентних метода у ФА технику.

ЛИТЕРАТУРА

- Ajtai, T., Filep, A., Varga, A., Motika, G., Bozoki Z. & Szabo, G. (2010) Ozone concentration-monitoring photoacoustic system based on a frequency-quadrupled Nd:YAG laser. *Appl. Phys. B* 101: 403-409.
- Akay, B., Karaboga, D. (2009) Parameter Tuning for the Artificial Bee Colony Algorithm. In: Nguyen, N. T., Kowalczyk, R., Chen S.M. (Eds.), *Computational Collective Intelligence. Semantic Web, Social Networks and Multiagent Systems*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg. 608-619.
- Akhmanov, S.A., Gordienko, V.M., Lazarev, V.V., Mikheenko, A. V. & Panchenko, V.Ya. (1980) Nonlinear processes in the vibrational-translational relaxation of a gas composed of highly excited molecules. *Sov. Phys. JETP*.51 (6): 1087-1096.
- Avatkov, O.N., Bagratashvili, V.N., Knyazev, I.N., Kolomiiskii, Yu.R., Letokhov, V.S., Lobko, V.V. & Ryabov, E.A. (1977) Many-photon absorption, luminescence, and dissociation of ethylene molecules in the field of high-intensity CO₂ laser pulses. *Sov. J. Quantum Electron.* 7(4): 412-417.
- Bagratashvili, V.N., Knyazev, I.N., Letokhov, V.S. & Lobko, V.V. (1976) Optoacoustic detection of multiple photon molecular absorption in a strong IR field. *Opt. Commun.* 18(4): 525-528.
- Bailey, R.T., Cruickshank, F.R., Guthrie, R., Pugh, D. & Weir, I.J.M. (1983) Short time - scale effects in the pulsed source thermal lens. *Mol. Phys.* 48(1): 81-95.
- Beck, K.M. & Gordon, R.J. (1987) The vibrational relaxation of highly excited SF₆ by Ar. *J. Chem. Phys.* 87(10): 5681-5686.
- Beck, K.M. & Gordon, R.J. (1988) Theory and application of time-resolved optoacoustics in gases. *J. Chem. Phys.* 89: 5560 – 5567.
- Beck, K.M., Ringwelski, A. & Gordon, R.J. (1985) Time-resolved optoacoustic measurements of vibrational relaxation rates. *Chem. Phys. Lett.* 121: 529 - 534.
- Bishop, C. M. (1994) Neural networks and their applications. *Rev. Sci. Instrum.* 65(6): 1803-1832.
- Bishop, C.M. (2005) *Neural Networks for Pattern Recognition*. Oxford University Press. Great Britain.

- Boznar, M., Lesjak, M. & Mlakar, P. (1993) A neural network-based method for short-term predictions of ambient SO₂ concentrations in highly polluted industrial areas of complex terrain. *Atmos. Environ.* 27B (2): 221-230.
- Broomhead, D.S. & Lowe, D. (1988) Multi variable functional interpolation and adaptive networks. *Complex Syst.* 2: 321-355.
- Chalupský, J., Burian, T., Hájková, V., Juha, L., Polcar, T., Gaudin, J., Nagasono, M., Sobierajski, R., Yabashi, M. & Krzywinski, J. (2013) Fluence scan: an unexplored property of a laser beam. *Opt. Express* 21(22): 26363-26375.
- Cottrell, T.L., Macfarlane, I.M., Read, A.W. & Young A.H. (1966) Measurement of vibrational relaxation times by the spectrophone. Application to CH₄, CO₂, N₂O, COS, NH₃ and HCN. *Trans. Faraday Soc.* 62: 2655-2666.
- Cover, T.M. (1965) Geometrical and Statistical Properties of Systems of Linear Inequalities with Applications in Pattern Recognition. *IEEE Trans. Comput.* EC-14 (3): 326-334.
- Ćirić, I.T., Čojbašić, Ž.M., Nikolić, V.D., Živković, P.M. & Tomić, M.A. (2012) Air quality estimation by computational intelligence methodologies. *Therm. Sci.* 16 (Suppl.2): S493-S504.
- Čojbašić, Ž., Nikolić, V., Ćirić, I. & Čojbašić, Lj. (2011) Computationally intelligent modeling and control of fluidized bed combustion process. *Thermal Science* 15(2): 321-338.
- Daoudi, K., Hussain, A., Hondebrink, E. & Steenbergen, W. (2012) Correcting photoacoustic signals for fluence variations using acousto-optic modulation. *Opt. Express* 20(13): 14117-14129.
- de Gouw, J.A., Hekkert, S.L., Mellqvist, J., Warneke, C., Atlas, E.L., Fehsenfeld, F.C. et al. (2009) Airborne measurements of ethene from industrial sources using laser photo-acoustic spectroscopy. *Environ. Sci. Technol.* 43: 2437-2442.
- De Lisio, C. & Bruzzese R. (1988) Vibrational-translational relaxation time spectroscopy of polyatomic molecules. *Opt. Commun.* 68(5): 352-356.
- Du, K.L. & Swamy, M.N.S. (2014) *Neural Networks and Statistical Learning*. Springer-Verlag London.
- Du, K.L. & Swamy, M.N.S. (2016) Simulated annealing. *Search and Optimization by Metaheuristics*. Springer International Publishing, AG Switzerland. 29-36.
- Engelbrecht, A.P. (2007) *Computational Intelligence*. 2nd edition. John Wiley and Sons.
- Finlayson-Pitts B. J., & Pitts J. N. Jr. (2000) *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere, Theory, Experiments, and Applications*, Academic Press.

- Fleming, P.J. & Purshouse, R.C. (2002) Evolutionary algorithms in control systems engineering: a survey. *Control Eng. Pract.* 10:1223-1241.
- Flygare, W.H. (1968) Molecular Relaxation. *Acc. Chem. Res.* 1: 121-127.
- Gajević, J., Stević, M., Nikolić, J., Rabasović, M. & Markushev, D. (2006) Global warming and SF₆ molecule. *FU Phys. Chem. Tech.* 4: 57 - 69.
- Gardner, M.W. & Dorling, S.R. (1996) Neural network modelling of the influence of local meteorology on surface ozone concentrations. *Proceedings 1st International Conference on GeoComputation, University of Leeds, UK, 359–370.*
- Goldberg, D.E. (1989) *Genetic algorithms in search, optimization, and machine learning.* Addison-Wesley Professional, USA.
- Gorelik, G. (1946) On a possible method of studying the energy exchange time between the different degrees of freedom of molecules in a gas. *Dokl. Akad. Nauk SSSR.* 54: 779.
- Gutjahr, W. J. & Pflug, G. Ch. (1996) Simulated annealing for noisy cost functions. *J. Global Optim.* 8(1): 1-13.
- Hagan, M.T. & Menhaj, M.B. (1994) Training feedforward networks with the Marquardt algorithm. *IEEE Trans. Neural Netw.* 5(6): 989-993.
- Hassan R., Cohanin B., de Weck O., Venter G. (2005) A comparison of particle swarm optimization and the genetic algorithm. 46th AIAA/ASME/ASCE/AHS/ASC Structures, Structural Dynamics and Materials Conference, Austin, Texas. DOI:10.2514/6.2005-1897
- Haupt, S.E., Pasini, A. & Marzban, C. (eds). (2009) *Artificial Intelligence Methods in the Environmental Sciences,* Springer Netherlands.
- Herrera, F., Lozano, M. & Verdegay, J.L. (1998) Tackling real-coded genetic algorithms: Operators and tools for behavioural analysis. *Artif. Intell. Rev.* 12(4): 265-319.
- Holmes, R. & Tempest W. (1961) The Eexcitation of the vibrational modes of ethylene in homo-molecular collisions. *Proc. Phys. Soc.* 78: 1502-1511.
- Hopfield, J.J. (1982) *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.* 79 (8): 2554-2558.
- Hornik K., Stinchcombe, M. & White, H. (1989) Multilayer feedforward networks are universal approximators. *Neural Netw.* 2(5): 359-366.
- Houghton J. T., Ding Y., Griggs D.J., Noguer M., Van Der Linden P.J., Dai X., Johnson C.A., & Maskell K. (2001) *Climate Change; A Scientific Basis, Intragovernmental Panel on Climate Change;* Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Jang, J.S.R. (1993) ANFIS: Adaptive-Network-Based Fuzzy Inference System. *IEEE Trans. Syst., Man, Cybern.* 23(3): 665-684.

- Jovanovic-Kurepa, J., Markusev, D.D. & Terzic, M. (1996) Multiple absorption and relaxation processes in SF₆-CH₄ mixtures: an experimental study. *Chem. Phys.* 211(1-3): 347-358
- Judd, O.P. (1979) A quantitative comparison of multiple-photon absorption in polyatomic molecules. *J. Chem. Phys.* 71(11): 4515-4530.
- Karaboga, D. & Akay, B. (2009) A comparative study of artificial bee colony algorithm. *Applied Mathematics and Computation* 214(1):108-132.
- Karaboga, D. & Basturk, B. (2008) On the performance of artificial bee colony (ABC) algorithm. *Appl. Soft Comput.* 8(1): 687-697.
- Karaboga, D. (2005) An idea based on honey bee swarm for numerical optimization. *Technical Report-TR06*. Erciyes University, Engineering Faculty, Computer Engineering Department.
- Karaboga, D., Gorkemli, B., Ozturk, C. & Karaboga, N. (2014) A comprehensive survey: artificial bee colony (ABC) algorithm and applications. *Artif. Intell. Rev.* 42(1): 21-57.
- Kartal S., Oral M. (2017) New Pattern Reduction Method for Generalized Regression Neural Network. *Int. J. Adv. Res. Comput. Sci. Softw. Eng.* 7(2):122-129
- Kirkpatrick, S., Gelatt, C. D. & Vecchi, M. P. (1983) *Science* 220(4598): 671-680.
- Kockanat S, Karaboga N.. (2013) *Innovations in Intelligent Systems and Applications (INISTA), IEEE International Symposium on Innovations in Intelligent Systems and Applications*
- Kohonen, T. (1982) Self-organized formation of topologically correct feature maps. *Biol. Cyber.* 43 (1): 59-69.
- Krasnopolsky, V.M. (2013) *The Application of Neural Networks in the Earth System Sciences*, Springer Netherlands.
- Kreuzer, L.B. (1971) Ultralow Gas Concentration Infrared Absorption Spectroscopy. *J. Appl. Phys.* 42: 2934-2943.
- Kuster, W.C., Harren, F.J.M. & de Gouw. (2005) *Environ. Sci. Techn.* 39: 4581-4585.
- Kwok, H.S., Yablonovitch, E. & Bloembergen, N. Study of collisionless multiphoton absorption in SF₆ using picosecond CO₂ laser pulses.(1981) *Phys. Rev. A.* 23 (6): 3094-3106.
- Lambert, J. D. & Salter, R. (1959) Vibrational Relaxation in Gases. *Proc. R. Soc. Lond A.* 253: 277-288.
- Lambert, J. D., Parks-Smith, D. G. & Stretton, J. L. (1970) Multiple vibrational relaxation in polyatomic gases and mixtures. *Trans. Faraday Soc.* 66: 2720-2731.
- Lambert, J.D. (1977) *Vibrational and Rotational Relaxation in Gases*, Oxford University Press.
- Landau, L.D. & Lifshitz, E.M. (1987) *Mechanics Fluid.* 2nd edition. Pergamon Press.

- Lazić, D., Čojbašić, Ž. & Ristanović, M. (2011) Fuzzy-neuro-genetic aerofin control. *Facta Univ. Ser. Mech. Autom. Control. Robot.* 10(1), 71-82.
- Ledesma, S., Avina, G. & Sanches, R. (2008) Practical Considerations for Simulated Annealing Implementation. In: Tan C.M. (ed.) *Simulated Annealing*. InTech. Vienna.401-420.
- Letokhov, V.S. (1983) Multi-photon monomolecular photoprocesses in the ground electronic state. *Nonlinear Laser Chemistry*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- Lippmann, R.P. (1989) Pattern classification using neural networks. *IEEE Comm. Mag.* 27: 47-50.
- Lukić, M (2013) *Примена вештачке интелигенције у физици околине и настави физике*. Магистарски рад. Природно-математички факултет. Департман за физику. Универзитет у Нишу
- Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M.D. & Markushev D.D. (2014) Computationally intelligent pulsed photoacoustics. *Meas. Sci. Technol.* 25(12): 125203. 9(pp).
- Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M., Markushev, D. & Todorović, D. (2012) Computational intelligence based simultaneous determination of the spatial profile of the laser beam and vibrational-rotational relaxation time by pulsed photoacoustics. *FU Phys. Chem. Tech.* 10 (1): 1-12.
- Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M., Markushev, D. & Todorović, D. (2013a) Genetic Algorithms Application for the Photoacoustic Signal Temporal Shape Analysis and Energy Density Spatial Distribution Calculation. *Int. J. Thermophys.* 34(8-9):1466-1472.
- Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M., Markushev, D. & Todorović, D. (2013b) Neural Networks-Based Real-Time Determination of the Laser Beam Spatial Profile and Vibrational-to-Translational Relaxation Time Within Pulsed Photoacoustics. *Int. J. Thermophys.* 34 (8-9):1795-1802.
- Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M.D., Markushev, D.D. & Todorović D.M. (2017) Laser fluence recognition using computationally intelligent pulsed photoacoustics within the trace gases analysis. *Int. J. Thermophys.* 38:165 (12 pp).
- Lyman, J.L., Quigley, G.P. & Judd O.P. (1986). Single-infrared-frequency studies of multiple-photon excitation and dissociation of polyatomic molecules. In: Cantrell, C.D. (ed.) *Multiple-Photon Excitation and Dissociation of Polyatomic Molecules*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg. 9 - 87.
- Mallidi S. & Emelianov S. (2009) Photoacoustic technique to measure beam profile of pulsed laser systems. *Rev. Sci. Instrum.* 80: 054901-1 – 054901-5.

- Mao, X., Zhou, X., Gong, Z. & Yu, Q. (2016) An all-optical photoacoustic spectrometer for multi-gas analysis. *Sens. Actuators B* 232: 251-256.
- Markusev, D.D., Jovanovic-Kurepa, J., Slivka, J. & Terzic, M. (1999) *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 61 (6): 825-837.
- Markushev, D.D., Jovanović-Kurepa, J. & Terzić, M. (2003) Excitation dynamics during the multiphoton absorption in SF₆+buffer-gas mixtures. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 76: 85-99.
- Marzban, C. & Stumpf, G.J. (1996) A Neural Network for Tornado Prediction Based on Doppler Radar-Derived Attributes. *J. Appl. Meteorol. Climatol.* 35 (5): 617-626.
- Meyer, P.L. & Sigrist, M.W. (1990) Atmospheric pollution monitoring using CO₂-laser photoacoustic spectroscopy and other techniques. *Rev. Sci. Instrum.* 61 (7): 1779-1807.
- Michalewicz, Z. & Janikow, C. Z. (1991) Genetic algorithms for numerical Optimization. *Stat. Comput.* 1:75-91.
- Miklós, A. & Hess, P. (2000) Modulated and Pulsed Photoacoustics in Trace Gas Analysis, *Anal. Chem.* 72 (1), 30A-37A.
- Miklos, A., Hess, P. & Bozóki, Z. (2001) Application of acoustic resonators in photoacoustic trace gas analysis and metrology. *Rev. Sci. Instrum.* 72 (4):1937-1955.
- Moeckli, M.A., Hilbes, C. & Sigrist, M.W. (1998) Photoacoustic multicomponent gas analysis using a Levenberg–Marquardt fitting algorithm. *Appl. Phys. B* 67: 449-458.
- Moller, M.F. (1993) A scaled conjugate gradient algorithm for fast supervised learning. *Neural Netw.* 6(4):525-533.
- Morse, P.M. & Ingard, K.U. (1968) *Theoretical Acoustics*. McGraw-Hill Book Company. USA.
- Nikolić, J. D., Rabasović, M.D., Markushev, D.D. & Jovanović-Kurepa, J. (2008) Buffer-gas influence on multiphoton absorption and dissociation in different gas mixtures. *Opt. Mater.* 30(7):1193-1196.
- Nikolić, J.D., Rabasović, M.D. & Markushev, D.D. (2007) Limitations of the Generalized Coupled Two-Level Model during the multiphoton absorption in different gas mixtures. *Acta Phys. Pol. A.* 112(5): 811-816.
- Pao, Y.H. Ed. (1977) *Optoacoustic Spectroscopy and Detection*. Academic Press. USA.
- Parsopoulos K., Vrahatis M.N. (2001) Particle swarm optimizer in noisy and continuously changing environments. In: Hamza M.H. (ed.), *Artificial Intelligence and Soft Computing* IASTED/ACTA Press, Anaheim, CA, U.S.A.289-294.

- Parsopoulos, K. & Vrahatis, M. (2010) *Particle swarm optimization and intelligence: Advances and applications*. IGI Global. Joanina, Greece.
- Patel, C.K.N. & Tam, A.C. (1981) Pulsed optoacoustic spectroscopy of condensed matter. *Rev. Mod. Phys.* 53 (3): 517-553.
- Petzold, A. & Niessner, R. (1996) Photoacoustic soot sensor for in-situ black carbon monitoring. *Appl. Phys. B.* 63:191-197.
- Pogany, A., Mohacsi, A., Varga, A., Bozoki, Z., Galbacs, Z., Horyath, L. & Szabo, G. (2009) *Environ. Sci. Technol.* 43 (3): 826–830.
- Rabasović, M.D. & Markushev, D.D. (2010) Laser beam spatial profile determination by pulsed photoacoustics: exact solution. *Meas. Sci. Technol.* 21:065603 (7pp)
- Rabasović, M.D. (2007) Одређивање просторног профила ласерског зрачења импулсном фотоакустиком у гасним смешама. Докторска теза. Физички факултет Универзитета у Београду.
- Rabasović, M.D., Markushev, D.D. & Jovanović-Kurepa, J. (2006a) Pulsed photoacoustic system calibration for highly excited molecules. *Meas. Sci. Technol.* 17:1826-1837.
- Rabasović, M.D., Nikolić J.D. & Markushev, D.D. (2007) Simultaneous determination of the spatial profile of the laser beam and vibrational-to-translational relaxation time by pulsed photoacoustics. *Appl. Phys. B* 88: 309-315.
- Rabasović, M.D., Nikolić, J.D. & Markushev, D.D. (2006b) Pulsed photoacoustic system calibration for highly excited molecules: II. Influence of the laser beam profile and the excitation energy decay. *Meas. Sci. Technol.* 17:2938-2944.
- Rabasović, M.D., Nikolić, J.D., Markushev, D.D. & Jovanovic-Kurepa, J. (2008) Pulsed photoacoustic gas cell design for low pressure studies. *Optical Materials* 30(7): 1197-1200.
- Rumelhart, D.E., Hinton, G.E. & Williams, R.J. (1986) Learning internal representations by error propagation. In: Rumelhart, D.E., McClelland, J.L. & PDP Research Group (eds) *Parallel distributed processing*, vol 1. MIT Press, Cambridge, USA. 318-362.
- Schwartz, D.B., Samalam, V.K., Solla, S.A. & Denker, J.S. (1990) Exhaustive learning. *Neural Comput.* 2(3): 374-385.
- Sigrist M.W. (1994) Laser Photoacoustic Spectrometry for Trace Gas Monitoring. *Analyst.* 119: 525-531.
- Sigrist, M.W. (1986) Laser generation of acoustic waves in liquids and gases. *J. Appl. Phys.* 60 (7): R83-R121.

- Sigrist, M.W. (1994) Air Monitoring by Laser Photoacoustic Spectroscopy. In: Sigrist M.W. (ed) Air Monitoring by Spectroscopy Techniques, John Wiley & Sons, Inc., New York: 163-238.
- Sigrist, M.W. (2003) Trace gas monitoring by laser photoacoustic spectroscopy and related techniques (plenary). *Rev. Sci. Instrum.* 74(1):486-490.
- Sigrist, M.W. (2015) Mid-infrared laser-spectroscopic sensing of chemical species. *J. Adv. Res.* 6: 529-533.
- Sigrist, M.W., Bartlome, R., Marinov, D., Rey, J.M., Vogler, D.E. & Wachter, H. (2008) Trace gas monitoring with infrared laser-based detection schemes. *Appl. Phys. B.* 90: 289-300.
- Sivanandam, S.N. & Deepa, S.N. (2007) *Introduction to genetic algorithms*, Springer Science & Business Media.
- Slobodskaya, P.V. (1948) Determination of the energy transfer rate from vibrational to translational molecular motion by means of a spectrophone. *Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Seriya Fizicheskaya* 12: 656-662.
- Spagnolo, V., Patimisco, P., Sampaolo, A., Giglio, M., Dong, L., Scamarcio, G. & Tittel, F.K. (2016) Innovative quartz enhanced photoacoustic sensors for trace gas detection. *Proc. of SPIE Vol. 9899, Optical Sensing and Detection IV*, 98990S-1 - 98990S-7.
- Specht, D.F. (1991) A General Regression Neural Network. *IEEE Trans. Neural Netw.* 2 (6): 568-576.
- Steinfeld, J.I., Burak, I., Sutton, D.G. & Nowak, A.V. (1970) Infrared double resonance in sulfur hexafluoride. *J. Chem. Phys.* 52 (10): 5421-5434.
- Sumathi, S. & Surekha P. (2010) *Computational Intelligence Paradigms*. Taylor and Francis Group, LLC.
- Suparta, W. & Alhasa, K.M. (2016) *Modeling of Tropospheric Delays Using ANFIS*. Springer International Publishing AG Switzerland.
- Szakall, M., Huszar, H., Bozoki, Z. & Szabo, G. (2006) On the pressure dependent sensitivity of a photoacoustic water vapor detector using active laser modulation control. *Infrared Phys. Tech.* 48: 192-201.
- Takagi, T. & Sugeno, M. (1985) Fuzzy Identification of Systems and Its Applications to Modeling and Control. *IEEE Trans. Syst., Man, Cybern.* SMC-15 (1):116-132.
- Talbi, E. G., (2009) *Metaheuristics - From design to implementation*. John Wiley & Sons. New Jersey.

- Tam, A.C. (1983) Photoacoustic, Spectroscopy and other applications. In: Kliger D.S. (ed.) *Ultrasensitive Laser Spectroscopy*. Academic Press, New York. 1-108.
- Tam, A.C. (1986) Applications of photoacoustic sensing techniques. *Rev. Mod. Phys.* 58(2): 381- 434.
- Terzić, M., Markushev, D.D. & Jovanović-Kurepa, J. (2003) Photoacoustic observation of multiphoton absorption and relaxation parameters in gas mixtures. *Rev. Sci. Instrum.* 74 (1): 322-324.
- Terzić, M. & Jovanović-Kurepa, J. (2000) *Linearna fotoakustička spektroskopija*. Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno matematički fakultet. .
- Tittel, F., Curl, R.F., Dong, L., Doty, J.H., Kosterev, A.A., Lewicki, R., Thomazy, D. & Wysocki G. (2011) Recent Advances in Infrared Semiconductor Laser based Chemical Sensing Technologies. *NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics*, 165
- Tosa, V., Bruzzese, R., De Lisio, C. & Solimeno, S. (1990) Modeling the vibrational relaxation of polyatomic molecules. The methylfluoride case study. *Laser Chem.* 10:147-158.
- Triki, E., Collette, Y. & Siarry P. (2005) *Eur. J Oper Res.* 166: 77-92.
- Van den Bergh, F. & Engelbrecht, A.P. (2006) A study of particle swarm optimization particle trajectories. *Inf. Sci.* 176 (8): 937-971.
- Weitz, E. & Flynn, G. (1974) Laser studies of vibrational and rotational relaxation in small molecules. *Annu. Rev. Phys. Chem.* 25, 275-315.
- Wessels, L.F.A. & Barnard, E. (1992) Avoiding false local initialization of minima by proper connections. *IEEE Trans. Neural Netw.* 3(6): 899-905.
- West, G. A., Barrett, J. J., Siebert, D. R. & Reddy, K. V. (1983) Photoacoustic spectroscopy. *Rev. Sci. Instrum.* 54(7): 797-817.
- Xionga, L., Baia, W., Chenb, F., Zhao, X., Yu, F. & Diebold, G.J. (2017) *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.* 114(28): 7246-7249.
- Yi, J. & Prybutok, R. (1996) A neural network model forecasting for prediction of daily maximum ozone concentration in an industrialized urban area. *Environ. Pollut.* 92(3), 349-357.
- Yuan, R. C.L. & Flynn, G.W. (1973) Laser induced combination band fluorescence study of vibrational deactivation of ethylene in C₂H₄-X mixtures*. *J. Chem. Phys.* 58(2): 649-655.

- Yuan, R.C.L., Preses, J.M., Flynn, G.W. & Ronn, A.M. (1973) V- V and V - T / R energy transfer studies of C₂H₄ by infrared laser double resonance. *J. Chem. Phys.* 59(11): 6128-6135.
- Zadeh, L.A. (1965) Fuzzy sets. *Inf. Control* 8(3): 338-353.
- Zadeh, L.A. (1973) Outline of a New Approach to the Analysis of Complex Systems and Decision Processes. *IEEE Trans. Syst., Man, Cybern.* SMC-3(1): 28-44.
- Zeninari, V., Vallon, R., Risser, C. & Parvitte, B. (2016) Photoacoustic detection of methane in large concentrations with a helmholtz sensor: simulation and experimentation. *Int. J. Thermophys.* 37: 7 (pp11).
- Zharov, V.P. & Letokhov V.S. (1986) *Laser Optoacoustic Spectroscopy*. In: Tamir T. (ed.). Springer Series in Optical Sciences 37, Springer-Verlag Berlin Heidelberg.

Биографија аутора

Младена Г. Лукић рођена је 24.11.1971. године у Нишу. Основну и средњу школу завршила је у Нишу са одличним успехом. Звање дипломирани физичар за примењену физику стекла је на Одсеку за физику Филозофског факултета (сада Природно-математичког факултета) Универзитета у Нишу 1999. године, са просечном оценом 8,3. Дипломски рад са темом „Квазистационарна стања у теорији расејања“ одбранила је са оценом 10. Магистарску тезу под називом „Примена вештачке интелигенције у физици околине и настави физике“, под менторством др Драгана Маркушева, одбранила је 11.12.2013. године на Департману за Физику, Природно-математичког факултета у Нишу. Запошљена је на Факултету заштите на раду као асистент на предмету Физика. Удата је и има двоје деце.

Библиографија

1. Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M., Markushev, D., Todorović, D. (2017) Laser Fluence Recognition Using Computationally Intelligent Pulsed Photoacoustics Within the Trace Gases Analysis. *International Journal of Thermophysics* 38:165. (pp 12). DOI 10.1007/s10765-017-2296-5
2. Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M. & Markushev D. (2014) Computationally intelligent pulsed photoacoustics. *Measurement Science and Technology* 25:125203 (9pp). DOI:10.1088/0957-0233/25/12/125203
3. Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M., Markushev, D., Todorović, D. (2013) Genetic Algorithms Application for the Photoacoustic Signal Temporal Shape Analysis and Energy Density Spatial Distribution Calculation. *International Journal of Thermophysics* 34 (8-9):1466-1472. DOI 10.1007/s10765-013-1529-5

4. Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M., Markushev, D., Todorović, D. (2013) Neural Networks-Based Real-Time Determination of the Laser Beam Spatial Profile and Vibrational-to-Translational Relaxation Time Within Pulsed Photoacoustics. *International Journal of Thermophysics* 34 (8-9):1795-1802.
DOI 10.1007/s10765-013-1507-y
5. Rabasović, M., Markushev, D., Čojbašić, Ž., Lukić M. & Todorović, D. (2013) Spatial laser beam determination by pulsed photoacoustics: detection radius/signal wavelength approximation. *Physica Scripta T157*: 014058 (6pp)
DOI:10.1088/0031-8949/2013/T157/014058.
6. Lukić, M., Čojbašić, Ž., Rabasović, M., Markushev, D., Todorović, D. (2012) Computational intelligence based simultaneous determination of the spatial profile of the laser beam and vibrational-translational relaxation time by pulsed photoacoustics. *Facta Universitatis, Series Physics, Chemistry and Technology* 10 (1):1-12. DOI: 10.2298/FUPCT1201001L
7. Димитријевић П., Лукић М., Маринковић Н. (2014) *Збирка задатака из физике*. Универзитет у Нишу, Факултет заштите на раду, Ниш.
ISBN:978-86-6093-057-8 ; COBISS.SR-ID 207456012

ИЗЈАВА О АУТОРСТВУ

Изјављујем да је докторска дисертација, под насловом

АНАЛИЗА АТМОСФЕРСКИХ ПОЛУТАНАТА ИНТЕЛИГЕНТНОМ ИМПУЛСНОМ ФОТОАКУСТИКОМ

која је одбрањена на Природно-математичком факултету Универзитета у Нишу:

- резултат сопственог истраживачког рада;
- да ову дисертацију, ни у целини, нити у деловима, нисам пријављивала на другим факултетима, нити универзитетима;
- да нисам повредила ауторска права, нити злоупотребила интелектуалну својину других лица.

Дозвољавам да се објаве моји лични подаци, који су у вези са ауторством и добијањем академског звања доктора наука, као што су име и презиме, година и место рођења и датум одбране рада, и то у каталогу Библиотеке, Дигиталном репозиторијуму Универзитета у Нишу, као и у публикацијама Универзитета у Нишу.

У Нишу, 13.11.2017.

Потпис аутора дисертације:

Младена Т. Лушић
(Име, средње слово и презиме)

**ИЗЈАВА О ИСТОВЕТНОСТИ ЕЛЕКТРОНСКОГ И ШТАМПАНОГ ОБЛИКА
ДОКТОРСКЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ**

Наслов дисертације:

**АНАЛИЗА АТМОСФЕРСКИХ ПОЛУТАНАТА ИНТЕЛИГЕНТНОМ
ИМПУЛСНОМ ФОТОАКУСТИКОМ**

Изјављујем да је електронски облик моје докторске дисертације, коју сам предала за уношење у **Дигитални репозиторијум Универзитета у Нишу**, истоветан штампаном облику.

У Нишу, 13.11.2017.

Потпис аутора дисертације:


(Име, средње слово и презиме)

ИЗЈАВА О КОРИШЋЕЊУ

Овлашћујем Универзитетску библиотеку „Никола Тесла“ да у Дигитални репозиторијум Универзитета у Нишу унесе моју докторску дисертацију, под насловом:

АНАЛИЗА АТМОСФЕРСКИХ ПОЛУТАНАТА ИНТЕЛИГЕНТНОМ ИМПУЛСНОМ ФОТОАКУСТИКОМ

Дисертацију са свим прилозима предала сам у електронском облику, погодном за трајно архивирање.

Моју докторску дисертацију, унету у Дигитални репозиторијум Универзитета у Нишу, могу користити сви који поштују одредбе садржане у одабраном типу лиценце Креативне заједнице (Creative Commons), за коју сам се одлучио/ла.

1. Ауторство (CC BY)

2. Ауторство – некомерцијално (CC BY-NC)

3. Ауторство – некомерцијално – без прераде (CC BY-NC-ND)

4. Ауторство – некомерцијално – делити под истим условима (CC BY-NC-SA)

5. Ауторство – без прераде (CC BY-ND)

6. Ауторство – делити под истим условима (CC BY-SA)

У Нишу, 13.11.2017.

Потпис аутора дисертације:



(Име, средње слово и презиме)

**ПРИРОДНО - МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ****НИШ****КЉУЧНА ДОКУМЕНТАЦИЈСКА ИНФОРМАЦИЈА**

Редни број, РБР:	
Идентификациони број, ИБР:	
Тип документације, ТД:	монографска
Тип записа, ТЗ:	текстуални / графички
Врста рада, ВР:	докторска дисертација
Аутор, АУ:	Младена Г. Лукић
Ментор, МН:	Драган Д. Маркушев
Наслов рада, НР:	Анализа атмосферских полутаната интелигентном импулсном фотоакустиком
Језик публикације, ЈП:	српски
Језик извода, ЈИ:	енглески
Земља публикавања, ЗП:	Србија
Уже географско подручје, УГП:	Србија
Година, ГО:	2017.
Издавач, ИЗ:	ауторски репринт
Место и адреса, МА:	Ниш, Вишеградска 33
Физички опис рада, ФО: <small>(поглавља/страна/ цитата/табела/слика/графика/прилога)</small>	8 поглавља / 183 страна / 133 цитата / 8 табела / 53 слика
Научна област, НО:	Физика
Научна дисциплина, НД:	Фотоакустика
Предметна одредница/Кључне речи, ПО:	Фотоакустичка спектроскопија, вибрационо-транслационо релаксационо време, мултифотонски процеси, просторни профил снопа ласерског зрачења, густина енергије ласерског зрачења, вештачке неуронске мреже, ANFIS, метахеуристички алгоритми
УДК	543.428.3:544.032.65]:502.3/.7(043.2)517.984/.986 (043.3)
Чува се, ЧУ:	библиотека
Важна напомена, ВН:	Експериментална мерења су извршена у Лабораторији за фотоакустику, Института за физику у Београду.



Извод, ИЗ:

У раду су истражене могућности примене метода вештачке интелигенције у анализи атмосферских полутаната инфрацрвеном импулсном фотоакустичком спектроскопијом. Инфрацрвена фотоакустичка спектроскопија је метод за анализу механизма молекулске нерадијативне релаксације, која је од фундаменталног значаја за разумевање физичке и хемијске кинетике атмосфере. Анализиране су смеше полутаната $SF_6 + Ar$ и $C_2H_4 + Ar$, при укупном притиску смеше $p = 10 - 100$ mbar и притиску апсорбера (SF_6 и C_2H_4) $p_{aps} = 0,47$ mbar, за различите густине ласерског зрачења Φ . Методама вештачке интелигенције постигнуто је истовремено одређивање параметара експерименталних фотоакустичких сигнала: просторног профила ласерског зрачења - $R(r_L)$, времена вибрационо-транслационе релаксације - τ_{V-T} , растојања на коме се детектује сигнал - r^* и густине енергије ласерског зрачења Φ . Истовремено и прецизно одређивање параметара ласерског зрачења $R(r_L)$, Φ и времена релаксације молекула τ_{V-T} , пружа широке могућности за повећање осетљивости и селективности метода фотоакустичке детекције, али и поједностављење апаратуре. Заменом уређаја за мерење профила ласерског зрачења и густине енергије, одговарајућим софтвером, повећава се прецизност мерења, ефикасност, динамички опсег, али и олакшава руковање инструментом у мерењима *in situ*. Информације о растојању на коме се детектује сигнал r^* у реалном времену, отварају могућности анализе удаљених слојева атмосфере. Имплементацијом различитих интелигентних техника (вештачке неуронске мреже, неуро-фази системи и метахеуристичке технике) у постојећу фотоакустичку апаратуру, обезбеђују се услови за правовремено реаговање у случају детекције повећаног загађења ваздуха, као и у предикцији и пројектовању могућих сценарија загађења. Резултати истраживања указују на велике потенцијале интелигентних техника, у раду са високо нелинеарним и комплексним процесима присутним у атмосфери.



ПРИРОДНО - МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ
НИШ

КЉУЧНА ДОКУМЕНТАЦИЈСКА ИНФОРМАЦИЈА

Датум прихватања теме, ДП:

10.03.2015. године

Датум одбране, ДО:

Чланови комисије, КО:

Председник:

Члан:

Члан, ментор:

Члан, ментор

Члан, ментор



ПРИРОДНО - МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ
НИШ

KEY WORDS DOCUMENTATION

Accession number, ANO :	
Identification number, INO :	
Document type, DT :	monograph
Type of record, TR :	textual / graphic
Contents code, CC :	doctoral dissertation
Author, AU :	Mladena G. Lukić
Mentor, MN :	Dragan D. Markušev
Title, TI :	Analysis of atmospheric pollutants by intelligent pulsed photoacoustics
Language of text, LT :	Serbian
Language of abstract, LA :	English
Country of publication, CP :	Serbia
Locality of publication, LP :	Serbia
Publication year, PY :	2017
Publisher, PB :	author's reprint
Publication place, PP :	Niš, Višegradska 33.
Physical description, PD : (chapters/pages/ref./tables/pictures/graphs/appendixes)	8 chapters / 183 pages / 133 references / 8 tables / 53 graphs
Scientific field, SF :	Physics
Scientific discipline, SD :	Photoacoustic
Subject/Key words, S/KW :	Photoacoustic spectroscopy, vibrational-to-translational relaxation time, multiphoton processes, spatial laser beam profile, laser fluence, artificial neural networks, ANFIS, metaheuristic algorithms
UC	543.428.3:544.032.65]:502.3/.7(043.2)
Holding data, HD :	library
Note, N :	Measurements were performed at Laboratory for Photoacoustics at the Institute of Physics, University of Belgrade



Abstract, **AB:**

The investigation has been focused on application of artificial intelligence (AI) methods for infrared impulse photoacoustic spectroscopy analysis of atmospheric pollutants. Infrared photoacoustic spectroscopy is a method for analyzing mechanisms of molecular non-radial relaxation, which is of fundamental importance for understanding the physical and chemical kinetics of the atmosphere. We have analyzed the mixtures of $\text{SF}_6 + \text{Ar}$ and $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{Ar}$ pollutants at the total pressure of $p = 10\text{-}100$ mbar and the pressure of the absorber (SF_6 and C_2H_4) $p_{\text{aps}} = 0.47$ mbar for different laser fluence Φ . The methods of artificial intelligence have been used for simultaneously determination of following parameters of experimental photoacoustic signals: the laser beam spatial profile $R(r_L)$, vibrational-to-translational relaxation time τ_{V-T} , distance from the laser beam to the absorption molecules in the photoacoustic cell r^* and laser fluence Φ . Simultaneously and precise real time software determination of the laser radiation parameters $R(r_L)$, Φ and vibrational-to-translational relaxation time τ_{V-T} may offer improvement in sensitivity and selectivity of the photoacoustic detection methods, as well as equipment saving. Swapping the device for measuring the laser radiation profile and laser fluence with AI based software may increase the accuracy, efficiency and dynamic range of the measurement, and relieve in situ manipulation with instruments. Real time estimation of distance at which the photoacoustic signal r^* is detecting, may enable assessment of the atmosphere's distant layers. In this investigation, use of different AI techniques (artificial neural networks, neuro-fuzzy systems and metaheuristic techniques) with existing photoacoustic equipment, may improve predictions of possible pollution scenarios and provide condition for timely detection and response in case of increased air pollution. Results of this investigations suggest the great potentials of AI techniques for determination of nonlinear and complex atmospheric interaction in the atmosphere.



ПРИРОДНО - МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ
НИШ

KEY WORDS DOCUMENTATION

Accepted by the Scientific Board on, ASB :	10.03. 2015.
Defended on, DE :	
Defended Board, DB :	President:
	Member:
	Member, Mentor:
	Member
	Member