

LIST OF CHANGES

1 Abstract

- 1.1 The following sentence was added to clarify parameter selection:

“Parameter selection was carried out based on preliminary results with different standard test functions.”

2 Introduction and fundamentals

- 2.1 The following text was added to clarify the comments of reviewer **B**:

“ On the other hand, accurate analysis of experimental data for modeling VLE requires consistent numerical schemes, being essential to have at hand several alternatives for solving parameter estimation problems. Traditional methods are easily trapped in local optima and do not guarantee convergence at all. In this sense, it is highly recommended to identify and study suitable approaches, such as the used in the present work. As reported in the technical literature, the non-linear parameter estimation in VLE modeling can be achieved either by solving a system of non-linear equations, a conventional method, or by direct optimization of the objective function [1]. ”

- 2.2 A sub-section was created to include the objective functions, following reviewer **A** comments:

“1.2.7 The Objective functions

Knowing the thermodynamic definitions for the fugacity and activity coefficients, the following objective functions were assembled:”

3 Materials and methods

- 3.1 Section 1.1 was rewritten striving to clarify the proposed optimization approach.
3.2 A clarification was added at the end of section 1.1, regarding SFHS parameters.
3.3 Equations (1) – (3) were reorganized and renumbered so that numbering relates to order of appearance.

4 Results and discussion

- 4.1 Section 2.1 (Parameter selection for SFHS) was added in order to clarify the way in which parameters were selected, as well as to show how randomness was handled:

“Different feasible ranges were considered, and tests were repeated 50 times in order to gather sufficient data. All tests were run with different seeds to favor randomness. In the case of the Harmony Memory Considering Rate (HMCR) the study was restricted to 0.2, 0.5, and 0.9, whilst in the case of the Pitch Adjusting Rate (PAR) the analysis hovered

above 0.2, 0.5, and 0.8. The main reason for not considering higher PAR values was that it implied adjusting each solution almost every time, thus resembling a random walk algorithm. The total number of solutions considered at any given time (HMS) was either 5 or 10.

Resulting data showed a clear effect due to HMCR and a somewhat lessen effect of PAR. In the first case (Figure 5), using a mid or low value implies increasing the number of iterations and, hence, the convergence time of the strategy. This effect can be so marked that the algorithm stops due to an excessive number of iterations. In the second case (Figure 6), the difference is harder to notice. Still, using a high level of PAR allows a reduction in the number of required iterations and convergence time, especially at higher dimensions.

The difference in performance when changing HMS was also evident. As an example consider the data shown in Figure 7, where the shifted Jong function is analyzed for different sizes while maintaining HMCR and PAR at the best values found so far (i.e. 0.9 and 0.8, respectively). It is easily seen that increasing the memory size hinders SFHS performance. Thus, running parameters for fugacity tests were selected as HMCR = 0.9, PAR = 0.8, and HMS = 5. The remaining parameters were set following literature recommendations, as discussed above [14].

Now, we present some simulation results obtained by applying the proposed methodology to the selected binary systems.”

“where P is the system’s pressure, given in atmospheres. R is the universal gas constant, f_2^V and f_2^L are the gas and liquid fugacities for the component two, respectively; $\varphi_{2,pure}$ is the solute fugacity coefficient, x_2 and y_2 are the mol fractions of the liquid and gas phases respectively, $f_2^{L(P0)}$ is the liquid fugacity at reference pressure of 0 [atm], \bar{V}_2 is the solute partial molar volume given in cm^3mole^{-1} , T is the system temperature, and γ_2 is the solute activity coefficient.”

“where x_1 and y_1 are the mol fractions of the liquid and gas phases for component one, respectively, $f_1^{L(P0)}$ is the liquid fugacity at reference pressure of 0 [atm], \bar{V}_2 is the solvent partial molar volume given in $cm^3/mole$ and γ_2 is the solvent activity coefficient.”

5 General changes

5.1 The document was proof-read to search for any typos.

5.2 Author affiliation was updated

5.3 Five references were added:

[1] A. Bharti et al, “Applicability of Cuckoo Search Algorithm for the Prediction of Multicomponent Liquid-Liquid Equilibria for Imidazolium and Phosphonium Based Ionic Liquids”, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, n° 54(49), pp. 12393-12407, 2015.

[2] J. A. Fernández-Vargas et al, “An improved ant colony optimization method and its application for the thermodynamic modeling of phase equilibrium”, *Fluid Phase Equilibria*, n° 353, pp. 121-131, 2013.

[3] V. Bhargava et al, “Cuckoo Search: A new nature-inspired optimization method for phase equilibrium calculations”, *Fluid Phase Equilibria*, n° 337, pp. 191-200, 2013.

[4] A. Kabouche et al, “Interaction parameter estimation in liquid-liquid phase equilibrium modeling using stochastic and hybrid algorithms”, *Fluid Phase Equilibria*, n° 336, pp. 113-121, 2012.

[5] A. Bonilla-Petriciolet, “On the capabilities and limitations of harmony search for parameter estimation in vapor-liquid equilibrium modeling”, *Fluid Phase Equilibria*, n° 332, pp. 7-20, 2012.

3.4. The author’s guide was checked again.

RESPONSE TO REVIEWERS' COMMENTS

COMENTARIOS DEL EVALUADOR EVALUACIÓN ACADÉMICA "A"	RESPUESTA Y ACCIONES DE LOS AUTORES
<p>“2.1. ¿título y el resumen son coherentes con el contenido del artículo?</p> <p>SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>2.2. ¿El trabajo está bien escrito en términos de coherencia, redacción, ortografía y gramática?</p> <p>SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>2.3. ¿La organización de las secciones y la presentación de sus contenidos, permite concluir que la estructura facilita la comprensión de los contenidos?</p> <p>SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>2.4. ¿Son necesarias todas las tablas y figuras empleadas?</p> <p>SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>2.5. ¿Las referencias bibliográficas contenidas en el artículo, son pertinentes y actualizadas?</p> <p>NO</p> <p>Amplíe lo que estime conveniente: “Es conveniente incluir más referencias de la aplicación de métodos estocásticos a la modelación de equilibrio de fases.</p> <p>También, la forma de citar algunos autores es equivocada, incluyendo su nombre. Verificar y corregir las citas.”</p>	<p>Aceptamos su comentario y se hicieron los cambios sugeridos:</p> <ol style="list-style-type: none"> a. Se adicionaron cinco (5) artículos publicados en los últimos cuatro años y relacionados directamente con el modelado del equilibrio de fases (VLE) mediante métodos estocásticos. b. Se verificó en detalle el estilo de citación normalizado para esta revista y se adecuaron las referencias a éste.
<p>3.1. ¿Es posible diferenciar si en el artículo hay conocimiento nuevo o novedoso?</p> <p>SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>3.2. ¿Incluye el artículo suficientes datos e información de soporte para las conclusiones, teorías o conceptos a los que llega?</p> <p>NO</p>	<p>Aceptamos su comentario. Se realizaron más simulaciones y se complementó la información relacionada con el ajuste de los parámetros del algoritmo, con el fin de darle soporte a las conclusiones y conceptos que aparecen en el artículo.</p>

<p>3.3. ¿El artículo emplea de manera correcta métodos científicos, experimentales y análisis estadísticos cuando es necesario? SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>3.4. ¿Es clara la metodología y es adecuada para el tema del artículo? SI NO N/A Amplíe lo que estime conveniente: “En términos de metodología se deben corregir los siguientes puntos:</p> <p>a) Definir claramente la función objetivo. En la forma actual, no es posible identificar que función objetivo fue utilizada para determinar los parámetros de los modelos termodinámicos.</p> <p>b) Se debe realizar un análisis formal del comportamiento numérico del método de optimización propuesto.</p> <p>Básicamente, se deben realizar varios cálculos con estimaciones iniciales aleatorias y diferentes secuencias para la generación de números aleatorios. Estos resultados serán útiles para establecer ventajas y limitaciones del método de optimización.</p> <p>c) No se justifica como se seleccionaron los parámetros del método de búsqueda armónica.”</p>	<p>Aceptamos sus sugerencias. Sus comentarios nos muestran la correcta interpretación y completa lectura del artículo. Apreciamos sinceramente su esfuerzo. En relación con sus requerimientos:</p> <p>a. Se incluyó una sección donde se dejan completamente definidas las tres funciones objetivo requeridas para el cálculo de parámetros adicionales, así como de los coeficientes de actividad y fugacidad (ver cambio 2.2).</p> <p>b. Se aclaró que las pruebas se ejecutaron con variables aleatorias generadas a partir de diferentes semillas, en aras de favorecer la aleatoriedad del proceso (ver cambio 4.1). Adicionalmente, se muestran los datos promedio para una función de prueba, luego de 50 repeticiones para diferentes configuraciones de parámetros.</p> <p>c. Se agregó una sección que hace referencia a la selección de los parámetros. Sin embargo, se menciona que, debido a restricciones de espacio, no se pueden incluir todos los datos. Así, la información mostrada se limita a un caso de ejemplo (representativo), pero se mencionan los valores finales seleccionados (ver cambios 3.2 y 4.1).</p>
<p>3.5. ¿Es este artículo un aporte relevante en su área de conocimiento? SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>4. ¿Conoce de alguna publicación previa que contenga la esencia de este artículo y que lleve a hacer una revisión más exhaustiva del mismo? NO</p>	<p>De acuerdo.</p>

<p>Comentarios adicionales para el Comité Editorial y los autores:</p> <p>Se sugiere realizar una revisión mayor del trabajo.</p> <p>Fortalecer la parte de evaluación del comportamiento numérico del método de optimización propuesto.</p>	<p>Estamos de acuerdo y procedimos en consecuencia a revisar en detalle y corregir cada una de las secciones del artículo con el fin de darle mayor claridad. De igual forma se adicionaron algunos resultados de simulaciones, manteniendo la limitación del número de páginas establecido por la revista, relacionados con el desempeño del SFHS.</p>
--	---

<p>COMENTARIOS DEL EVALUADOR EVALUACIÓN ACADÉMICA “B”</p>	<p>RESPUESTA Y ACCIONES DE LOS AUTORES</p>
<p>2. Aspectos de estilo y organización 2.1 ¿título y el resumen son coherentes con el contenido del artículo? SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>2.2. ¿El trabajo está bien escrito en términos de coherencia, redacción, ortografía y gramática? SI</p>	<p>Compartimos su opinión.</p>
<p>2.3. ¿La organización de las secciones y la presentación de sus contenidos, permite concluir que la estructura facilita la comprensión de los contenidos? NO</p>	<p>No estamos de acuerdo con su opinión y desafortunadamente no aclara el por qué en ninguna parte de la evaluación.</p>
<p>2.4. ¿Son necesarias todas las tablas y figuras empleadas? NO</p>	<p>Desafortunadamente no hay ningún soporte a su opinión.</p>
<p>2.5. ¿Las referencias bibliográficas contenidas en el artículo, son pertinentes y actualizadas? SI</p>	<p>En principio compartimos su opinión, pero aceptamos también la recomendación de la evaluación académica “A”, y procedimos a incluir cinco (5) referencias más.</p>
<p>3.1. ¿Es posible diferenciar si en el artículo hay conocimiento nuevo o novedoso? NO</p>	<p>Desafortunadamente no hay ningún soporte a su opinión.</p>
<p>3.2. ¿Incluye el artículo suficientes datos e información de soporte para las conclusiones, teorías o conceptos a los que llega? NO</p>	<p>Desafortunadamente no hay ningún soporte a su opinión.</p>
<p>3.3. ¿El artículo emplea de manera correcta métodos científicos, experimentales y análisis estadísticos cuando es necesario?</p>	<p>Desafortunadamente no hay ningún soporte a su opinión.</p>

