

ΣΥΓΚΡΙΣΗ ΝΕΥΡΩΝΙΚΩΝ ΚΑΙ ΣΤΑΤΙΣΤΙΚΩΝ ΜΟΝΤΕΛΩΝ ΓΙΑ ΤΗ ΜΟΝΤΕΛΟΠΟΙΗΣΗ ΤΗΣ ΔΙΕΡΓΑΣΙΑΣ ΚΑΤΑΛΥΤΙΚΗΣ ΠΥΡΟΛΥΣΗΣ

Σ. Παπαδοκωνσταντάκης, Ι. Μιχαλόπουλος, Γ. Αραμπατζής, Α. Αυγερός
Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, 15780 Ζωγράφου

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Εξετάζεται η δυνατότητα χρήσης νευρωνικών δικτύων για τη μοντελοποίηση μιας βιομηχανικής μονάδας καταλυτικής πυρόλυσης, ως μία εναλλακτική πρακτική στη χρήση στατιστικών μοντέλων. Αναπτύσσονται τρία στατιστικά και τρία νευρωνικά μοντέλα πρόβλεψης της μετατροπής της αντίδρασης και της απόδοσης της μονάδας σε βενζίνη και κωκ με βάση τις ιδιότητες της τροφοδοσίας και του καταλύτη αλλά και άλλων λειτουργικών παραμέτρων. Τα αποτελέσματα δείχνουν ότι τα νευρωνικά μοντέλα υπερέχουν των αντίστοιχων στατιστικών, παρουσιάζοντας καλύτερες επιδόσεις στο σύνολο των δεικτών που χρησιμοποιούνται.

ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Η διεργασία καταλυτικής πυρόλυσης των βαρέων κλασμάτων πετρελαίου σε αντιδραστήρα ρευστοστερεάς κλίνης (Fluid Catalytic Cracking, FCC) κατέχει το σημαντικότερο ρόλο στην ανταγωνιστικότητα ενός διυλιστηρίου. Αποτελεί μια από τις πλέον περίπλοκες χημικές διεργασίες [1,2]. Η ανάπτυξη αξιόπιστων μοντέλων πρόβλεψης της κατανομής των προϊόντων της διεργασίας αποτελεί επιτακτική ανάγκη για τον προγραμματισμό της λειτουργίας ενός διυλιστηρίου και για την αξιολόγηση συγκεκριμένων τροφοδοσιών και νέων καταλυτών. Η πλειοψηφία των μοντέλων που χρησιμοποιούνται σήμερα στηρίζονται στη χρήση μη γραμμικών εξισώσεων συσχέτισης των μεταβλητών εισόδου-εξόδου (Στατιστικά Μοντέλα, ΣΜ).

Η αρχή λειτουργίας των Νευρωνικών Δικτύων (ΝΔ) είναι γνωστή από τα μέσα του προηγούμενου αιώνα. Μόλις την τελευταία δεκαετία, όμως, έχει βρει εφαρμογή ως μια εναλλακτική τεχνική μοντελοποίησης βιομηχανικών διεργασιών. [3,4]. Προσπάθειες μοντελοποίησης της διεργασίας FCC με τη χρήση ΝΔ έχουν παρουσιαστεί από του McGreavy et al. [5] και Michalopoulos et al. [6]. Οι Comrie [7] και Gardner and Dorling [8] παρουσίασαν μια διεξοδική σύγκριση μεταξύ ΝΔ και ΣΜ για την πρόβλεψη της συγκέντρωσης του όζοντος. Καταλήγουν στο συμπέρασμα ότι τα νευρωνικά δίκτυα εμφανίζουν μικρή αλλά στατιστικά σημαντική υπεροχή. Αντίστοιχη μελέτη για την περίπτωση μοντελοποίησης σύνθετων χημικών διεργασιών δεν έχει παρουσιαστεί στη βιβλιογραφία.

Στόχος της παρούσας εργασίας είναι η σύγκριση ΣΜ και ΝΔ για τη μοντελοποίησης της διεργασίας FCC. Το κρίσιμο ερώτημα είναι αν και κατά πόσο τα ΝΔ υπερτερούν των ΣΜ. Αναπτύσσονται συνολικά έξι μοντέλα, για την πρόβλεψη του κατ' όγκο βαθμού μετατροπής

της αντίδρασης (*Conv*), και των κατά βάρος αποδόσεων σε βενζίνη (*Gas*) και κωκ (*Coke*). Τα μοντέλα ελέγχονται με τη βοήθεια μιας σειράς κατάλληλων στατιστικών δεικτών.

ΣΤΑΤΙΣΤΙΚΑ ΜΟΝΤΕΛΑ

Ακολουθώντας την πρακτική των Wollaston et al. [9], η ανάπτυξη των ΣΜ στηρίζεται στην ακόλουθη συναρτησιακή σχέση:

$$\frac{X}{1-X} = F_F \cdot F_C \cdot F_O \quad (1)$$

Όπου με X συμβολίζεται η εξαρτημένη μεταβλητή (μία εκ των *Conv*, *Gas*, *Coke*) και F_F , F_C , F_O είναι κατάλληλες συναρτήσεις των ιδιοτήτων της τροφοδοσίας, των ιδιοτήτων του καταλύτη και λειτουργικών παραμέτρων. Για τη συνάρτηση F_O χρησιμοποιείται η ακόλουθη εξίσωση, όπου η αντίδραση διάσπασης του αεριολαίου θεωρείται δεύτερης τάξης:

$$F_O = C/O^{c_1} \cdot CCR^{c_2} \cdot \exp(c_3/RT) \quad (2)$$

όπου με C/O , CCR και T συμβολίζονται ο λόγος καταλύτη/αεριολαίου, ο ρυθμός ανακυκλοφορίας του καταλύτη και η θερμοκρασία αντίδρασης αντίστοιχα. Οι μεταβλητές c_1 , c_2 , c_3 αντιπροσωπεύουν τους συντελεστές προσδιορισμού. Για τις συναρτήσεις F_F και F_C χρησιμοποιούνται οι ακόλουθες γραμμικές σχέσεις:

$$F_F = c_4 \cdot SG + c_5 \cdot S + c_6 \cdot RI + c_7 \quad (3)$$

$$F_C = c_8 \cdot MAT + c_9 \cdot APS + c_{10} \cdot SA + c_{11} \quad (4)$$

όπου SG , S και RI είναι το ειδικό βάρος της τροφοδοσίας, η περιεκτικότητα σε θείο και ο δείκτης διάθλασης στους 70 °C. Αντίστοιχα με MAT , APS και SA συμβολίζονται η δραστηριότητα, το φαινόμενο μέγεθος των πόρων και η ειδική επιφάνεια του καταλύτη. Ο προσδιορισμός των συντελεστών c_1 - c_{11} πραγματοποιήθηκε με τη μέθοδο μη-γραμμικής ανάλυσης παλινδρόμησης του στατιστικού πακέτου STATISTICA.

ΝΕΥΡΩΝΙΚΑ ΜΟΝΤΕΛΑ

Αν και υπάρχουν αρκετές αρχιτεκτονικές ΝΔ, χρησιμοποιήθηκε αυτή των Multi Layer Perceptrons (MLP) με μία στιβάδα κρυφών κόμβων. Τα ΝΔ του τύπου αυτού χρησιμοποιούνται ευρέως για τη μοντελοποίηση ισχυρά μη-γραμμικών φαινομένων [9]. Οι μεταβλητές εισόδου και εξόδου των νευρωνικών μοντέλων είναι οι ίδιες με αυτές που χρησιμοποιήθηκαν για την ανάπτυξη των ΣΜ. Για την «εκμάθηση» των παραμέτρων των μοντέλων χρησιμοποιήθηκε ο αλγόριθμος Error-Back-Propagation (EBP), όπως υλοποιείται στο πακέτο NeuroSolutions.

Ιδιαίτερη προσοχή δόθηκε στην ανάπτυξη αξιόπιστων ΝΔ με αυξημένες ιδιότητες γενίκευσης. Κατά τη διαδικασία «εκμάθησης» των μοντέλων, χρησιμοποιείται ένα επιπλέον σύνολο δεδομένων, το σύνολο ελέγχου. Τα δεδομένα του συνόλου αυτού δεν συμμετέχουν άμεσα στον προσδιορισμό των παραμέτρων του δικτύου αλλά χρησιμοποιούνται για τον έλεγχο της γενίκευσης. Η εκμάθηση του μοντέλου διακόπτεται στο σημείο εκείνο που το σφάλμα που αντιστοιχεί στο σύνολο αξιοπιστίας αρχίζει να αυξάνει. Περισσότερες λεπτομέρειες για τη διαδικασία επίτευξης του βέλτιστου ΝΔ παρουσιάζονται στην εργασία [6].

ΔΕΔΟΜΕΝΑ

Η ανάπτυξη και ο έλεγχος των μοντέλων στηρίζεται σε μετρήσεις που προέρχονται από τη λειτουργία της μονάδας FCC των Ελληνικών Πετρελαίων Α.Ε., για τα έτη 1999 και 2000. Μετά την επεξεργασία των δεδομένων (απομάκρυνση outliers, συμπλήρωση κενών) προέκυψαν 225 σειρές στοιχείων. Οι 25 σειρές χρησιμοποιήθηκαν για τον τελικό έλεγχο του μοντέλου (σύνολο πιστοποίησης). Οι υπόλοιπες 200 σειρές χρησιμοποιήθηκαν κατά την

ανάπτυξη των ΣΜ. Για τις ανάγκες των ΝΔ, από τις 200 σειρές χρησιμοποιήθηκαν οι 150 ως δεδομένα εκμάθησης ενώ οι υπόλοιπες 50 αποτέλεσαν το σύνολο ελέγχου.

ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ

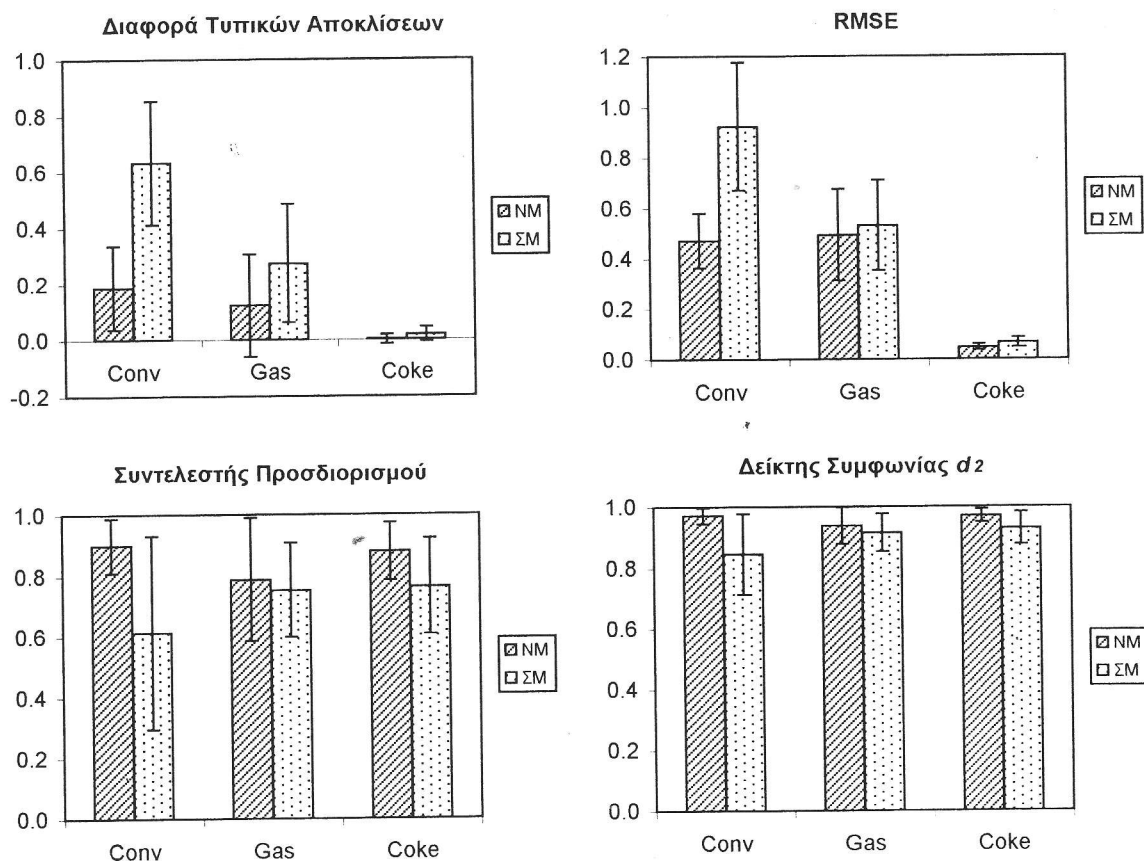
Ο έλεγχος των μοντέλων που αναπτύχθηκαν στηρίζεται στις 25 σειρές παρατηρήσεων του συνόλου πιστοποίησης. Στον Πίνακα 1 παρουσιάζονται συγκριτικά οι τιμές έντεκα στατιστικών δεικτών για κάθε ένα από τα έξι μοντέλα. Σε παρένθεση δίνονται τα αντίστοιχα 95% τυπικά σφάλματα της εκτίμησης των δεικτών. Για τον υπολογισμό των τυπικών σφαλμάτων ακολουθήθηκε η τεχνική της επανα-δειγματοληψίας με τη μέθοδο bootstrap [10]. Συγκεκριμένα, με βάση το δείγμα των 25 παρατηρήσεων, δημιουργήθηκαν 1.000 νέα δείγματα (μεγέθους 25 παρατηρήσεων το καθένα) ακολουθώντας την πρακτική της δειγματοληψίας με επανατοποθέτηση. Τα τυπικά σφάλματα των στατιστικών δεικτών εκτιμούνται από την τυπική απόκλιση των δεικτών στο σύνολο των 1.000 δειγμάτων.

Πίνακας 1. Στατιστικοί δείκτες για τα έξι μοντέλα πρόβλεψης.

Δείκτης	% Μετατροπή		% Απόδοση Βενζίνης		% Απόδοση Κώκ	
	ΝΔ	ΣΜ	ΝΔ	ΣΜ	ΝΔ	ΣΜ
MBE	0,11 (0,17)	0,40 (0,33)	-0,03 (0,20)	0,07 (0,20)	0,02 (0,02)	0,01 (0,02)
$s_o - s_p$	0,19 (0,15)	0,63 (0,22)	0,12 (0,18)	0,27 (0,21)	0,001 (0,01)	0,02 (0,03)
a	12,7 (6,9)	38,1 (13,3)	10,4 (8,2)	16,7 (7,9)	0,18 (0,46)	0,92 (0,69)
b	0,84 (0,09)	0,51 (0,17)	0,79 (0,17)	0,66 (0,16)	0,96 (0,12)	0,76 (0,18)
MAE	0,38 (0,10)	0,70 (0,23)	0,36 (0,13)	0,41 (0,13)	0,04 (0,01)	0,05 (0,02)
RMSE	0,47 (0,11)	0,92 (0,25)	0,49 (0,18)	0,53 (0,18)	0,05 (0,01)	0,07 (0,02)
RMSE _S	0,27 (0,16)	0,83 (0,26)	0,23 (0,19)	0,37 (0,22)	0,02 (0,01)	0,03 (0,02)
RMSE _U	0,39 (0,08)	0,41 (0,11)	0,44 (0,14)	0,38 (0,10)	0,04 (0,01)	0,06 (0,02)
R^2	0,90 (0,09)	0,61 (0,32)	0,79 (0,20)	0,75 (0,15)	0,88 (0,09)	0,76 (0,16)
d_1	0,82 (0,08)	0,61 (0,12)	0,78 (0,10)	0,72 (0,10)	0,84 (0,06)	0,76 (0,08)
d_2	0,97 (0,03)	0,85 (0,13)	0,94 (0,06)	0,91 (0,06)	0,97 (0,02)	0,93 (0,05)

Η απόκλιση των μέσων τιμών (MBE) αντιπροσωπεύει τη διαφορά μεταξύ της μέσης τιμής των προβλέψεων και των μετρήσεων. Η διαφορά των τυπικών αποκλίσεων μεταξύ μετρήσεων και προβλέψεων ($s_o - s_p$) δείχνει το μέγεθος της μεταβολής των μετρήσεων που εξηγείται από το μοντέλο. Οι δείκτες a και b , αντιπροσωπεύουν την αποτέμνουσα και την κλίση της ευθείας ελαχίστων τετραγώνων του διαγράμματος προβλέψεων-μετρήσεων. Οι «ιδανικές» τιμές των δεικτών αυτών είναι 0 και 1 αντίστοιχα. Με MAE συμβολίζεται το μέσο απόλυτο σφάλμα και με RMSE η τετραγωνική ρίζα του μέσου τετραγωνικού σφάλματος. Ο τελευταίος δείκτης αναλύεται στη συστηματική RMSE_S και μη-συστηματική RMSE_U συνιστώσες του. Η πρώτη στηρίζεται στη διαφορά μεταξύ αναμενόμενων προβλέψεων και μετρήσεων ($\hat{P}_i - O_i$) ενώ η δεύτερη στη διαφορά μεταξύ προβλέψεων και αναμενόμενων προβλέψεων ($P_i - \hat{P}_i$), όπου η αναμενόμενη πρόβλεψη ορίζεται ως $\hat{P}_i = a + bO_i$. Ο συντελεστής προσδιορισμού R^2 εκφράζει το ποσοστό της μεταβολής των μετρήσεων που εξηγείται από το μοντέλο και αποτελεί ένα ευρέως χρησιμοποιούμενο δείκτη αξιολόγησης μοντέλων. Σύμφωνα με τους Willmott et al. [11], ο δείκτης αυτός δεν συσχετίζεται με το μέγεθος της διαφοράς $P_i - O_i$ και μπορεί να οδηγήσει σε λάθος συμπεράσματα. Οι ερευνητές αυτοί προτείνουν τη χρήση ενός ειδικού δείκτη συμφωνίας d_a με $a=1$ ή $a=2$.

Στο Σχήμα 1 παρουσιάζονται διαγραμματικά τέσσερις από τους παραπάνω δείκτες για κάθε ένα από τα έξι μοντέλα που αναπτύχθηκαν.



Σχήμα 1. Συγκριτικά διαγράμματα μεταξύ των έξι μοντέλων πρόβλεψης.

ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

Όπως προκύπτει από τα αποτελέσματα, τα ΝΔ υπερέχουν των αντίστοιχων ΣΜ σε όλους τους στατιστικούς δείκτες που χρησιμοποιήθηκαν. Μεγαλύτερη υπεροχή εμφανίζεται στο μοντέλο πρόβλεψης της μετατροπής της αντίδρασης (Conv). Τα αποτελέσματα αυτά σε συνδυασμό με το γεγονός ότι δεν απαιτούν τον καθορισμό της μορφής του μοντέλου, αναδεικνύουν τη σημασία των ΝΔ στη μοντελοποίηση σύνθετων χημικών διεργασιών.

ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ

- [1] Hanu A. and Sohrab R., *Chemical Engineering and Technology* **20**: 118 (1997).
- [2] Theologos K.N., Nikou I.D., Lygeros A.I. and Markatos N.C., *AIChE Journal* **43**:486 (1997).
- [3] Lennox B., Rutherford P., Montague G.A. and Haughin C., *Computers and Chemical Engineering* **22**:1573 (1998).
- [4] Zamarreno J.M. and Vega P., *Artificial Intelligence in Engineering* **11**:365 (1997).
- [5] McGreavy C., Lu M.L., Wang X.Z and Kam E.K.T., *Chemical and Engineering Science* **49**: 4717 (1994).
- [6] Michalopoulos J., Papadokonstantakis S., Arampatzis G. and Lygeros A., Modeling of an Industrial Fluid Catalytic Cracking Unit using Neural Networks, *Chem. Eng. Res. Des.*, (2001), in print.
- [7] Comrie A.C., *Journal of the Air & Waste Management Association* **47**:653 (1997).
- [8] Gardner M.W. and Dorling S.R., *Atmospheric Environment* **34**:21 (2000).
- [9] Ramasamy S., Desphande P.B., Paxton G.E. and Hajare R.P., *Hydrocarbon Processing* (June 1995), p. 59.
- [10] Hair J.F. Jr, Anderson R.E., Tatham R.L and Black W.C, "Multivariate Data Analysis", Prentice-Hall (1998).
- [11] Willmott C.J., Ackleson S.G., Davis R.E., Feddema J.J., Klink K.M, Legates D.R., O'Donnell J. and Rowe C.M., *Journal of Geophysical Research* **90**(C5):8995 (1985).